

# Généralités sur la piézoélectricité et les transducteurs ultrasonores

Pierre et Jacques Curie ont découvert l'effet piézoélectrique en 1880 [19]. Ils arrivent à le mettre en évidence dans de nombreux cristaux dont la tourmaline ou le sel de Rochelle. La piézoélectricité est l'interaction entre les domaines électrique et mécanique. L'effet direct est l'apparition d'une polarisation électrique due à une contrainte mécanique. Les frères Curie ont vérifié l'année suivante l'existence de l'effet inverse prédit par Gabriel Lippmann sur le quartz : le cristal se déforme sous l'effet d'un champ électrique. L'observation de la piézoélectricité s'est faite dans la continuité des travaux entrepris sur la pyroélectricité qui est l'interaction entre les domaines électrique et thermique, nom donné par Sir David Brewster en 1824 [20].

La première application pratique de ce phénomène s'est faite pendant la première guerre mondiale, en France, où Paul Langevin l'utilise pour la mise en place du SONAR (**SO**und **N**avigation **A**nd **R**anging) en élaborant le premier transducteur ultrasonore [21].

Dans ce chapitre, les conditions de l'effet piézoélectrique et ses caractéristiques seront détaillées dans une première partie pour continuer, dans une deuxième partie, sur son application : le transducteur ultrasonore.

## 1.1 Le matériau piézoélectrique

Tous les matériaux ne possèdent pas les caractéristiques indispensables pour être piézoélectriques. La propriété diélectrique est la première des conditions nécessaires : le matériau ne possède pas de charges électriques pouvant se déplacer à l'échelle macroscopique. Dans le langage courant, il est qualifié d'isolant. Dans un premier temps, la classification des matériaux piézoélectriques sera donnée. Les lois physiques régissant leur comportement sont également rappelées.

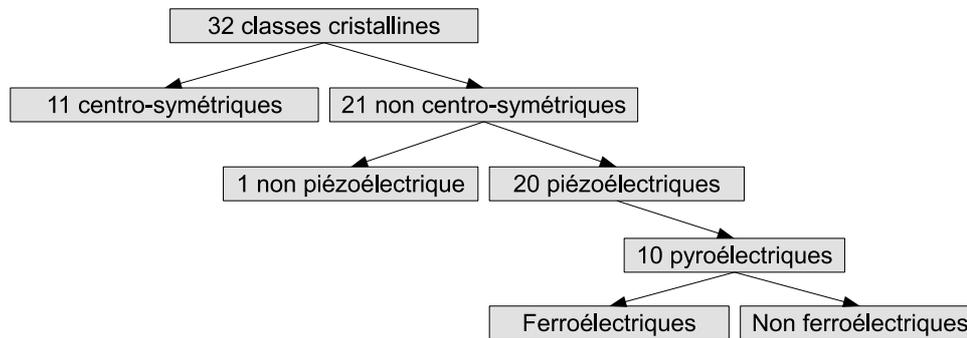


FIGURE 1.1 – Propriétés des classes cristallines [5].

### 1.1.1 Aspect structurel

Il faut aborder dans un premier temps la structure du matériau à l'échelle micro-structurale où l'organisation des atomes de la maille élémentaire permet sa classification cristallographique et donne les conditions pour obtenir des propriétés piézoélectriques.

**La structure cristalline** L'effet piézoélectrique n'apparaît que dans les classes cristallines ne contenant pas de centre de symétrie. Sur les 32 existantes, seulement 21 sont non centro-symétriques dont 20 piézoélectriques. Parmi ces 20 dernières classes, seulement 10 possèdent une polarisation spontanée qui varie avec la température. Elles sont dites pyroélectriques. Enfin, dans cette dernière catégorie, il existe les matériaux ferroélectriques qui, en plus de posséder une polarisation spontanée, peuvent en changer la direction sous l'effet d'un champ électrique externe. Ces catégories sont résumées dans la Figure 1.1. La ferroélectricité, bien que mise en évidence en 1921 [22] dans le sel de Rochelle, n'a vraiment été étudiée qu'à partir des années 50 avec la découverte des structures perovskites [23]. Il s'agit d'une structure cristalline commune type  $ABO_3$ . Parmi elles, le titanate de barium ( $BaTiO_3$ ) qui sera utilisé dans ce travail de thèse.

Chaque maille cristalline est caractérisée par ses trois axes cristallographiques  $\vec{a}$ ,  $\vec{b}$  et  $\vec{c}$  et la disposition de ses atomes. La Figure 1.2.a) donne l'exemple d'une maille élémentaire pérovskite. À l'échelle d'observation supérieure, l'ensemble des mailles élémentaires, toutes orientées de la même manière, se nomme une cristallite (Fig 1.2.b)). Enfin, l'ensemble des cristallites formera le matériau final.

**Le monocristal** Le monocristal est le cas d'une cristallite mais généralisé à l'ensemble du matériau final. C'est un matériau dont toutes les cristallites sont orientées dans la même direction. Il a de très bonnes propriétés piézoélectriques mais aussi optiques, par rapport à d'autres types de structures. La croissance ou la création de monocristal est un domaine de recherche très développé car la production de masse et à bas coût est un enjeu important sur le marché des matériaux de haute performance. Généralement, toutes les cristallites des monocristaux trouvés chez les fournisseurs ne sont pas orientées dans la même direction. Ce monocristal est qualifié de polydomaine en opposition au monocristal dit « monodomaine ». Actuellement, en piézoélectricité, la céramique reste l'alternative qui possède un rapport performance-coût le plus intéressant.

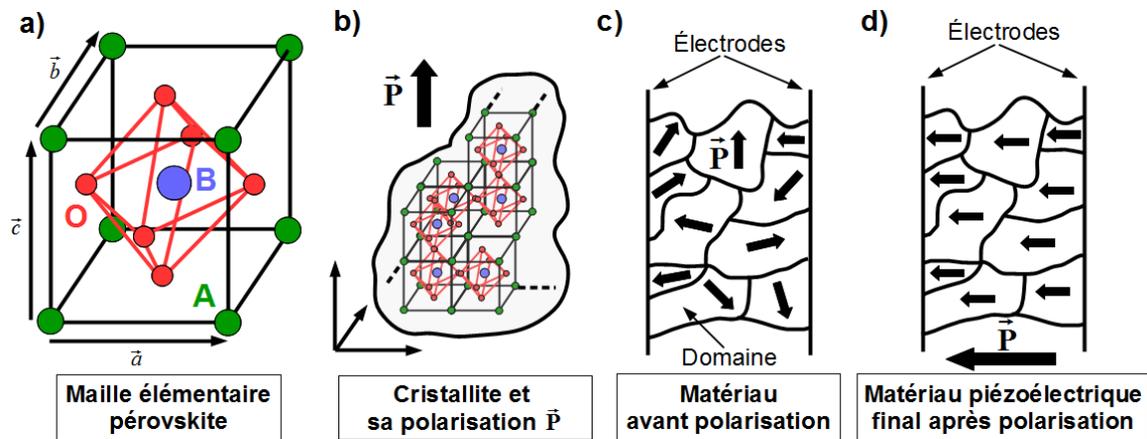


FIGURE 1.2 – Les différentes échelles d'organisation de la matière

**Les céramiques** Au départ, une poudre de céramique est préparée. La cohésion des grains de cette poudre se fait par une étape de frittage qui est une montée en température généralement au-delà de  $1000^{\circ}\text{C}$ . Après cette étape, le matériau est dense et composé de zones possédant un moment dipolaire dans une direction privilégiée (Fig. 1.2.c). Cette direction est différente pour chaque domaine. Il est donc nécessaire de passer par une étape de polarisation, c'est-à-dire l'application d'un champ électrique externe, pour orienter tous les domaines dans une direction choisie et ainsi donner au matériau final une polarisation rémanente macroscopique (Fig. 1.2.d). La polarisation permet donc d'obtenir un matériau piézoélectrique à partir d'un matériau ferroélectrique.

Après avoir décrit les deux principales catégories de matériaux utilisés en piézoélectricité, la prochaine section présente les lois physiques qui les régissent.

### 1.1.2 Grandeurs physiques associées au matériau

Comme nous l'avons vu précédemment, de nombreux matériaux piézoélectriques sont accompagnés par des effets pyroélectriques qui peuvent modifier les caractéristiques élastiques, diélectriques et piézoélectriques. Ces effets sont assez faibles pour que l'influence thermique ne soit pas prise en compte dans ce manuscrit [1].

Après avoir, dans une première partie, décrit les grandeurs physiques mises en jeu dans un matériau piézoélectrique, les relations comportementales de ce dernier seront données.

**Élasticité et propriété diélectrique** L'élasticité est la capacité d'un matériau à se déformer sous l'application de contraintes puis à retrouver sa forme initiale. La piézoélectricité s'inscrit dans la théorie de l'élasticité qui s'appuie sur les hypothèses de matériau continu et homogène, de petites déformations devant les dimensions géométriques du corps et des forces appliquées inférieures aux valeurs limites du domaine élastique. Le but est de déterminer les déformations du matériau résultantes des forces qui lui sont appliquées en fonction de ses caractéristiques intrinsèques.

Les variables du domaine mécanique sont les déformations  $S_{ij}$  et les contraintes  $T_{ij}$  où  $i$

## 1.1. LE MATÉRIAU PIÉZOÉLECTRIQUE

---

et  $j$  varient de 1 à 3 et représentent les trois directions d'un repère orthogonal de l'espace à 3 dimensions [24]. Ce sont des tenseurs d'ordre deux. Les composantes du tenseur des déformations sont données par la relation :

$$S_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_j}{\partial x_i} + \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \right) \quad (1.1)$$

où  $u_i$  est la composante du vecteur de déplacement selon l'axe  $x_i$ . Comme une déformation est un rapport de distance, elle est sans unité. Les contraintes apparaissent dans le matériau pour essayer de le ramener à son état d'origine lorsqu'il est déformé par des forces extérieures. Elles sont définies de la manière suivante :

$$T_{ik} = \frac{dF_i}{d\sigma_k} \quad (1.2)$$

où  $F_i$  est la composante de la force  $F$  selon l'axe  $i$  et  $\sigma_k$  est la projection de la surface  $\sigma$  où s'applique la force selon la direction  $k$ . Une contrainte s'exprime en  $\text{N.m}^{-2}$  (ou Pa).

En 1675, Robert Hooke a énoncé une loi de comportement d'élasticité où l'allongement du matériau est proportionnel à la force qui lui est appliquée dans le cas de petites déformations. C'est à partir de là que le tenseur des contraintes  $T$  peut être relié avec le tenseur des déformations  $S$  suivant la relation :

$$T_{ij} = c_{ijkl} S_{kl} \quad (1.3)$$

où  $c_{ijkl}$  est le tenseur des constantes élastiques. En inversant la relation, le tenseur des souplesses  $s$  se définit également par :

$$S_{ij} = s_{ijkl} T_{kl}. \quad (1.4)$$

Les tenseurs des contraintes et des déformations étant symétriques, il en est de même pour les deux autres tenseurs  $c$  et  $s$  d'ordre 4. Il est montré que les tenseurs  $S$  et  $T$  ont seulement 6 termes indépendants. C'est pour cela que nous utiliserons la notation contractée des indices  $(i, j)$ , appelée notation de Voigt, passant donc d'un tenseur d'ordre 4 à une matrice de dimensions  $6 \times 6$  :

$$(11) = 1, (22) = 2, (33) = 3, (23) = (32) = 4, (13) = (31) = 5 \text{ et } (12) = (21) = 6. \quad (1.5)$$

Cependant, les composantes des tenseurs ne sont pas toujours strictement égales aux composantes des tenseurs contractés [1]. Les contractions sont donc explicitées ci-dessous pour chaque tenseur.

$$\begin{array}{l} \text{Contraintes :} \\ \text{Déformations :} \\ \text{Constantes élastiques :} \\ \text{Souplesses élastiques :} \end{array} \quad \begin{cases} T_{ij} \rightarrow T_\lambda \\ S_{ij} \rightarrow S_\lambda \text{ pour } i = j \\ 2S_{ij} \rightarrow S_\lambda \text{ pour } i \neq j \\ c_{ijkl} \rightarrow c_{\lambda\mu} \\ s_{ijkl} \rightarrow s_{\lambda\mu} \text{ pour } i = j \text{ et } k = l \\ 2s_{ijkl} \rightarrow s_{\lambda\mu} \text{ pour } i = j \text{ et } k \neq l \text{ ou } \textit{vice versa} \\ 4s_{ijkl} \rightarrow s_{\lambda\mu} \text{ pour } i \neq j \text{ et } k \neq l \end{cases}$$

## 1.1. LE MATÉRIAU PIÉZOÉLECTRIQUE

---

Dans le domaine électrique, les deux variables généralement utilisées sont le champ électrique  $E$  (en V/m) et le déplacement électrique  $D$  (en C/m<sup>2</sup>), constitués de 3 composantes. La relation constitutive les reliant, dans le cas d'un matériau homogène et à comportement linéaire, est :

$$D_i = \epsilon_{ij} E_j \quad \text{ou} \quad E_i = \beta_{ij} D_j \quad (1.6)$$

où  $\epsilon$  et  $\beta$  sont respectivement les tenseurs de rang 2 de la permittivité diélectrique et de la constante d'imperméabilité. Pratiquement, les valeurs de permittivité diélectrique sont normalisées par rapport à celle du vide,  $\epsilon_0$ , qui vaut  $8,85 \cdot 10^{-12}$  F.m<sup>-1</sup>. Il s'agit de la permittivité relative (ou constante diélectrique). Enfin, le matériau piézoélectrique étant un dipôle diélectrique, une polarisation  $\vec{P}$  lui est également associée et qui relie  $\vec{D}$  à  $\vec{E}$  par :

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \quad (1.7)$$

**Relations fondamentales de la piézoélectricité** Comme expliqué précédemment, l'effet piézoélectrique est un couplage entre le domaine mécanique et électrique. En thermodynamique, il s'agit d'un cas particulier de phénomène de couplage qui est considéré comme une transformation d'énergie quasi-statique. L'énergie libre dans le système peut être déterminée grâce à deux paramètres appropriés dans les deux domaines. Les relations fondamentales de la piézoélectricité découlent du choix de la fonction thermodynamique pour décrire cette énergie. Elles sont listées dans la dernière colonne de la Table 1.1. Généralement, les variables mécaniques utilisées sont les déformations  $S$  et les contraintes  $T$ . Pour les variables électriques, le déplacement électrique  $D$  et le champ électrique  $E$  seront choisis. Puisque dans un matériau piézoélectrique, les domaines élastique et électrique ne sont pas indépendants, les tenseurs sont donnés avec, en exposant, la grandeur constante. Ainsi,  $c^D$  est le tenseur élastique pour un déplacement électrique constant. Les relations

TABLE 1.1 – Les différentes écritures des relations fondamentales de la piézoélectricité

Variables indépendantes	Type	Relations piézoélectriques	Fonction thermodynamique
$S, D$	Extensif	$\begin{cases} T = c^D S - h D \\ E = -h S + \beta^S D \end{cases}$	Énergie libre d'Helmholz
$T, E$	Intensif	$\begin{cases} S = s^E T + d E \\ D = d T + \epsilon^T E \end{cases}$	Énergie libre de Gibbs
$T, D$	Mixte	$\begin{cases} S = s^D T + g D \\ E = -g T + \beta^T D \end{cases}$	Énergie élastique de Gibbs
$S, E$	Mixte	$\begin{cases} T = c^E S - e E \\ D = e S + \epsilon^S E \end{cases}$	Énergie électrique de Gibbs

## 1.1. LE MATÉRIAU PIÉZOÉLECTRIQUE

TABLE 1.2 – Relations entre les constantes du matériau en notation tensorielle complète. Le symbole  $\delta$  est le symbole de Kronecker.

$\beta_{np}\epsilon_{pm} = \delta_{nm}$	$c_{ijpq}s_{pqkl} = \delta_{(ij)(kl)}$	$d_{nij} = \epsilon_{nm}^T g_{mij} = e_{nkl} s_{kl ij}^E$
$\beta_{nm}^S - \beta_{nm}^T = g_{nkl} h_{mkl}$	$c_{ijkl}^D - c_{ijkl}^E = e_{mij} h_{mkl}$	$e_{nij} = \epsilon_{nm}^S h_{mij} = d_{nkl} c_{kl ij}^E$
$\epsilon_{nm}^T - \epsilon_{nm}^S = d_{nkl} e_{mkl}$	$s_{ijkl}^E - s_{ijkl}^D = d_{mij} g_{mkl}$	$g_{nij} = \beta_{nm}^T d_{mij} = h_{nkl} s_{kl ij}^D$
		$h_{nij} = \beta_{nm}^S e_{mij} = g_{nkl} c_{kl ij}^D$

fondamentales de la piézoélectricité peuvent s'écrire de 4 manières différentes en choisissant donc les couples de variables indépendantes. Il est important de différencier les types de variables qui peuvent être extensives (proportionnelle à la taille du système) ou intensives (indépendante de la quantité de matière) car, lorsqu'elles sont mélangées, certaines grandeurs piézoélectriques caractéristiques, comme le coefficient de couplage (détaillé partie 1.1.4), se calculent différemment [1]. Finalement, la Table 1.1 regroupe ces différentes écritures où les indices tensoriels ont été volontairement omis pour la clarté des équations. Les tenseurs piézoélectriques d'ordre 3 ( $h$ ,  $d$ ,  $g$  et  $e$ ) sont ainsi définis. Ils permettent le couplage entre les deux domaines. La notation contractée pourra être également utilisée et elle suivra l'écriture :

$$e_{(i)(jk)} = e_{i\alpha} \quad (1.8)$$

Les relations entre les constantes élastiques, piézoélectriques et diélectriques du matériau sont détaillées Table 1.2. Il est nécessaire d'insister ici sur toutes les manières d'écrire les relations de la piézoélectricité car elles seront utilisées dans le travail sur la consistance des bases de données des matériaux dans le chapitre 5.

### 1.1.3 Résonateur piézoélectrique

Dans cette section, les bases sur la propagation du son dans un milieu sont données ainsi que le cas particulier d'un résonateur mécanique. Ces informations aident à la compréhension du comportement vibratoire d'un échantillon piézoélectrique qui sert à la caractérisation piézoélectrique d'un matériau.

**Équation d'onde** La propagation du son dans un milieu non-piézoélectrique est régie par l'équation de propagation [24] :

$$\rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = c_{ijkl} \frac{\partial^2 u_l}{\partial x_j \partial x_k} \quad (1.9)$$

où  $\rho$  est la masse volumique du milieu et  $u$  le déplacement. L'équation peut être résolue en cherchant une solution qui est une combinaison de deux ondes planes,  $f$  et  $g$ , se propageant dans deux directions opposées :

$$u(\vec{r}, t) = f(\vec{n} \cdot \vec{r} - vt) + g(\vec{n} \cdot \vec{r} + vt) \quad (1.10)$$

où les vecteurs  $\vec{n}$  et  $\vec{r}$  sont, respectivement, un vecteur unitaire normal au front d'ondes et le vecteur du repère de l'espace.  $v$  est la vitesse de l'onde dans le milieu et  $t$  est le temps.

## 1.1. LE MATÉRIAU PIÉZOÉLECTRIQUE

---

En écriture complexe, la solution de l'onde est de la forme  $\exp(j(\vec{k}\cdot\vec{r} - \omega t))$  où  $\omega$  est la pulsation et  $\vec{k}$ , le vecteur d'onde. Le vecteur unité  $\vec{n}$  est égal  $\vec{k}/|\vec{k}|$ . C'est l'approximation en ondes planes. Lorsque cette hypothèse est faite, l'équation (1.9) se ré-écrit sous la forme :

$$\Gamma_{il}P_l = \rho v^2 P_i \quad (1.11)$$

où  $P_i$  et  $\rho v^2$  sont respectivement le vecteur propre et la valeur propre de  $\Gamma_{il}$  qui s'appelle le tenseur de Christoffel. Il est défini par :

$$\Gamma_{il} = c_{ijkl}n_j n_k \quad (1.12)$$

où les indices  $i, j, k, l$  varie de 1 à 3 pour les 3 directions de l'espace. En résolvant l'équation (1.11), chaque composante de la solution (et il y en a donc 3) s'exprime en fonction d'une constante élastique effective  $c_{\text{eff}}$  définie pour chaque mode :

$$v = \sqrt{c_{\text{eff}}/\rho}. \quad (1.13)$$

Finalement, trois types d'ondes se propagent dans chaque direction : deux ondes quasi-transversales et une onde quasi-longitudinale.

**Résonateur mécanique** La fréquence de ces ondes planes dépend évidemment de la fréquence de l'excitation qui est imposée au milieu. Cependant, le milieu, grâce à ses dimensions finies dans le cas des solides, va exacerber certaines ondes à des fréquences particulières. Ce type de solide est appelé résonateur mécanique et les fréquences particulières sont les fréquences de résonance mécanique qui seront notées  $f_{\lambda/2}$ . L'onde qui s'y propage sera en majeure partie reflétée sur les parois du solide à cause de la rupture d'impédance (cf 1.1.4). L'interférence des ondes incidente et réfléchie sera constructive et formera des ondes stationnaires pour une longueur d'onde  $\lambda$  égale à  $2d/N$  où  $d$  est la dimension du matériau dans le sens du vecteur d'onde et  $N \in \mathbb{N}$ . La fréquence de résonance vérifiera :

$$f_{\lambda/2} = \frac{Nv}{2d}. \quad (1.14)$$

La propagation du son dans un milieu piézoélectrique s'accompagne d'un champ électrique par le couplage piézoélectrique. À l'équation du mouvement se rajoute les équations de Maxwell. Cependant, la vitesse du son est très faible devant celle de l'onde électromagnétique. L'approximation quasi-statique peut être faite, c'est à dire que le champ électrique peut être considéré comme en équilibre à chaque fois. Les conditions électriques sont alors données par :

$$\text{div}\vec{D} = 0 \quad \text{et} \quad \text{rot}\vec{E} = 0. \quad (1.15)$$

et se traduisent donc par :

$$n_i D_i = 0 \quad \text{et} \quad n_n E_m - n_m E_n = 0, \quad (1.16)$$

ce qui signifie que :

$$\vec{D} \perp \vec{k} \quad \text{et} \quad \vec{E} \parallel \vec{k}. \quad (1.17)$$

Ces conditions permettent la détermination de  $c_{\text{eff}}$  qui est détaillée dans de nombreux ouvrages dont celui d'Ikeda [1]. Pour résumer, lorsque :

- $\vec{P} \parallel \vec{k}$ , les coefficients diagonaux de  $c^D$  déterminent  $c_{\text{eff}}$ . Cette condition crée alors un effet longitudinal.
- $\vec{P} \perp \vec{k}$ ,  $c_{\text{eff}}$  est donnée par les éléments non-diagonaux de  $c^E$ . Ce sera l'effet transverse.

Ce sont les deux cas extrêmes mais il est évident que la polarisation peut être ni perpendiculaire, ni parallèle au vecteur d'onde. Les effets longitudinaux et transversaux seront combinés. Il est important de garder en tête ces deux types de conditions électriques qui amènent à deux types d'effets de propagation car c'est la base d'une caractérisation piézoélectrique correcte.

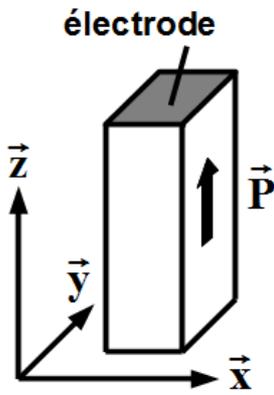


FIGURE 1.3 – Échantillon piézoélectrique en forme de barreau excité à ses extrémités (avec 2 électrodes).

**Exemple** Pour rattacher ces bases à un exemple concret qui servira également dans le chapitre 5 (caractérisation piézoélectrique), le cas d'un barreau est explicité en s'appuyant sur le schéma de la Figure 1.3.

Tout d'abord, la géométrie de l'échantillon spécifique qui respecte la norme IEEE [25] sera plus précisément détaillée dans le chapitre correspondant mais la dimension selon l'axe  $\vec{z}$  doit être nettement supérieure aux deux autres. Dans ce cas, le mode observé se propagera selon la direction  $\vec{z}$  donc  $\vec{k} \parallel \vec{z}$ . Or la polarisation  $\vec{P}$  du matériau est dirigé selon l'axe  $\vec{z}$ . Nous obtenons donc la condition  $\vec{P} \parallel \vec{k}$  décrite auparavant et qui définit l'effet longitudinal de l'onde. La constante  $c_{\text{eff}}$  est donc déterminée par les coefficients diagonaux de  $c^D$ . Pour ce cas précis et par simplification de l'expression [1],  $c_{\text{eff}}$  est égale à  $1/s_{33}^D$ .

Cette constante élastique est donc liée par la relation (1.13) à la vitesse et vaut :

$$s_{33}^D = \frac{1}{\rho v^2} \quad (1.18)$$

La vitesse  $v$  sera calculée grâce à la mesure de  $f_{\lambda/2}$  (les détails de cette mesure sont donnés dans la partie suivante) grâce à la relation (1.14).

#### 1.1.4 Les caractéristiques fonctionnelles

Dans le cadre de la transduction électromécanique, la grandeur la plus importante est le coefficient de couplage électromécanique, noté  $k$ , qui traduit l'efficacité du matériau à convertir l'énergie mécanique en énergie électrique et *vice-versa*. Ensuite, l'impédance acoustique  $Z_a$  du matériau est décisive quand le transfert d'énergie mécanique doit être maximal entre le matériau et le milieu environnant. Enfin, l'impédance électrique  $Z$  du matériau a un rôle important pour un bon transfert d'énergie électrique entre le transducteur intégrant ce matériau et le reste du système constituant la chaîne d'instrumentation ultrasonore. Outre leur définition qui sera donnée, la méthode de détermination pour chaque grandeur est spécifiée.

**L'impédance acoustique** Notée  $Z_a$ , l'impédance acoustique est caractéristique d'un matériau et est définie comme le rapport de la pression acoustique sur la vitesse de dépla-

## 1.1. LE MATÉRIAU PIÉZOÉLECTRIQUE

gement du milieu. Elle s'exprime en Rayleigh (Rayl). Plus généralement, elle se détermine par

$$Z_a = \rho c \quad (1.19)$$

où  $\rho$  est la masse volumique en  $kg/m^3$  du matériau et  $c$  est la célérité de l'onde en  $m/s$ . Pour un transfert optimal d'énergie entre deux milieux, il est nécessaire d'avoir les impédances acoustiques  $Z_1$  et  $Z_2$  des milieux concernés les plus proches pour réduire le coefficient de réflexion énergétique  $R_{Z_a}$  et maximiser le coefficient de transmission énergétique  $T_{Z_a}$  qui sont définis par :

$$R_{Z_a} = \left( \frac{Z_2 - Z_1}{Z_1 + Z_2} \right)^2 \quad \text{et} \quad T_{Z_a} = \frac{4Z_1 Z_2}{(Z_1 + Z_2)^2} \quad (1.20)$$

**L'impédance électrique** Utilisée pour décrire l'opposition d'un système électrique au passage d'un courant alternatif sinusoïdal, l'impédance électrique  $Z$  s'exprime en Ohm ( $\Omega$ ) et est définie par :

$$Z = \frac{U}{I} = R + jX \quad (1.21)$$

où  $U$  est la tension (en volt) aux bornes du dipôle considéré,  $I$  le courant (en ampère) le traversant,  $R$  la résistance (ou partie réelle de l'impédance) et  $X$  la réactance (ou partie imaginaire de l'impédance). L'admittance  $Y$ , exprimée en Siemens ( $S$ ), est aussi utilisée et se définit par :

$$Y = \frac{1}{Z} = G + jB \quad (1.22)$$

où  $G$  est la conductance et  $B$  la susceptance. Pratiquement, pour déterminer l'impédance électrique du matériau piézoélectrique, il faut le considérer métallisé sur deux faces opposées où lui sont appliquées les forces  $F_1$  et  $F_2$  correspondant aux charges des différents milieux environnant. Les vitesses de déplacement des surfaces métallisées sont notées  $v_1$  et  $v_2$  comme le montre la Figure 1.4. Pour modéliser cette configuration, Mason [26] fut le premier à donner un circuit électrique équivalent avec quatre ports dans la branche mécanique, correspondant aux deux faces avec les électrodes et deux ports dans la branche électrique. Ce modèle à une dimension est donc valable pour un mode pur, c'est-à-dire découplé des autres et pour cela, certaines conditions doivent être respectées [25]. Dans l'exemple de la Figure 1.4, si le mode observé se propage selon la direction  $\vec{x}_3$ , l'épaisseur  $d$  doit être nettement inférieure aux autres dimensions. Il s'agit du mode épaisseur d'une plaque qui sera donc longitudinal puisque  $\vec{P} \parallel \vec{k}$ . Le circuit électrique équivalent de Mason se construit de deux manières différentes pour

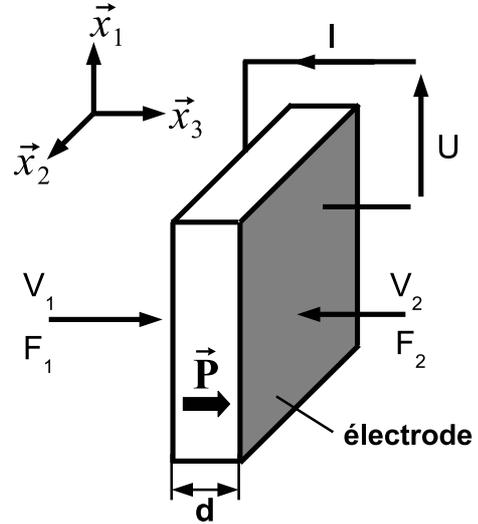


FIGURE 1.4 – Schéma d'une plaque de matériau piézoélectrique représentant la mesure du mode épaisseur.

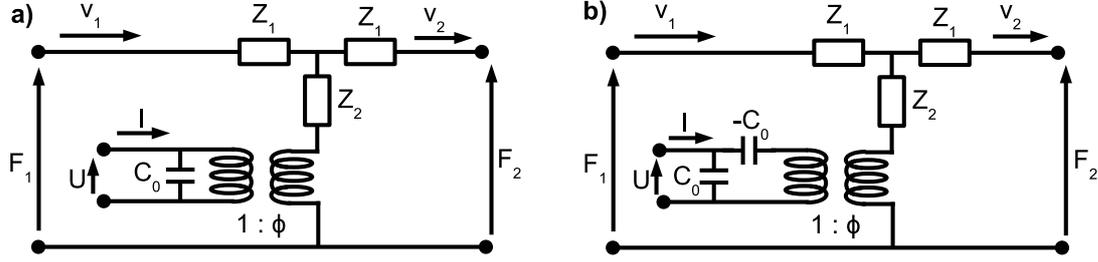


FIGURE 1.5 – Circuit électrique équivalent de Mason pour a) l'effet transverse et b) l'effet longitudinal.

pouvoir modéliser les deux types d'effet (transverse et longitudinal) [1]. Ils sont donnés Figure 1.5. Dans ce schéma, le matériau est considéré comme une capacité  $C_0$  où vient s'appliquer un transformateur électromécanique représentant la piézoélectricité. Les impédances  $Z_1$  et  $Z_2$  sont les impédances mécaniques des faces du matériau qui s'expriment en fonction de l'impédance caractéristique mécanique  $Z_0 = Z_a A$  où  $A$  est l'aire de la surface de l'électrode. Leurs expressions sont :

$$\begin{cases} Z_1 = jZ_0 \tan(\omega d/2v) \\ Z_2 = -jZ_0 / \sin(\omega d/v) \end{cases} \quad (1.23)$$

où  $d$  est la distance inter-électrodes,  $\omega$  la pulsation et  $v$  la vitesse de l'onde qui se propage dans le milieu piézoélectrique, dans la direction  $\vec{x}_3$  pour notre exemple. Enfin, le rapport  $\Phi$  du transformateur représentant la piézoélectricité se déduit des équations fondamentales de la piézoélectricité pour un mode spécifique. Typiquement, pour un mode de résonance, l'allure de l'admittance est donnée Figure 1.6 où  $f_r$  et  $f_a$  sont respectivement les fréquences de résonance ( $|Y| \rightarrow \infty$ ) et d'antirésonance ( $|Y| = 0$ ) du système. Les résonances ou antirésonances électriques apparaissent uniquement à des fréquences où le mode qui se propage impose aux électrodes à se déplacer en opposition de phase. Grâce à la mesure de l'admittance électrique du matériau et plus particulièrement aux fréquences de résonance et d'antirésonance, la valeur de  $c_{\text{eff}}$  peut être déterminée au mode fondamental en utilisant les relations 1.13 et 1.14 :

$$c_{\text{eff}} = \rho(2df_{\lambda/2})^2 \quad (1.24)$$

Puisque que la fréquence intéressante pour déterminer  $c_{\text{eff}}$  est  $f_{\lambda/2}$  et que les mesures électriques donnent  $f_r$  et  $f_a$ , il est nécessaire de connaître la relation liant ces fréquences qui est détaillée dans l'ouvrage d'Ikeda [1], aux pages 107 à 115 :

$$f_{\lambda/2} = f_a \text{ pour l'effet longitudinal en circuit ouvert} \quad (1.25)$$

$$\text{et } f_{\lambda/2} = f_r \text{ pour l'effet transversal en court-circuit.} \quad (1.26)$$

Dans le cas de l'exemple de la Figure 1.4, le circuit électrique équivalent est le schéma fig. 1.5.b). Si la polarisation est orientée selon l'axe  $\vec{x}_1$  et que le reste est identique, le mode de cisaillement en épaisseur ( $k_{15}$ ) sera observé. Il lui est attribué cependant l'effet longitudinal car  $\vec{P}$  est toujours colinéaire à  $\vec{k}$  qui est maintenant colinéaire à  $\vec{x}_1$  pour ce mode

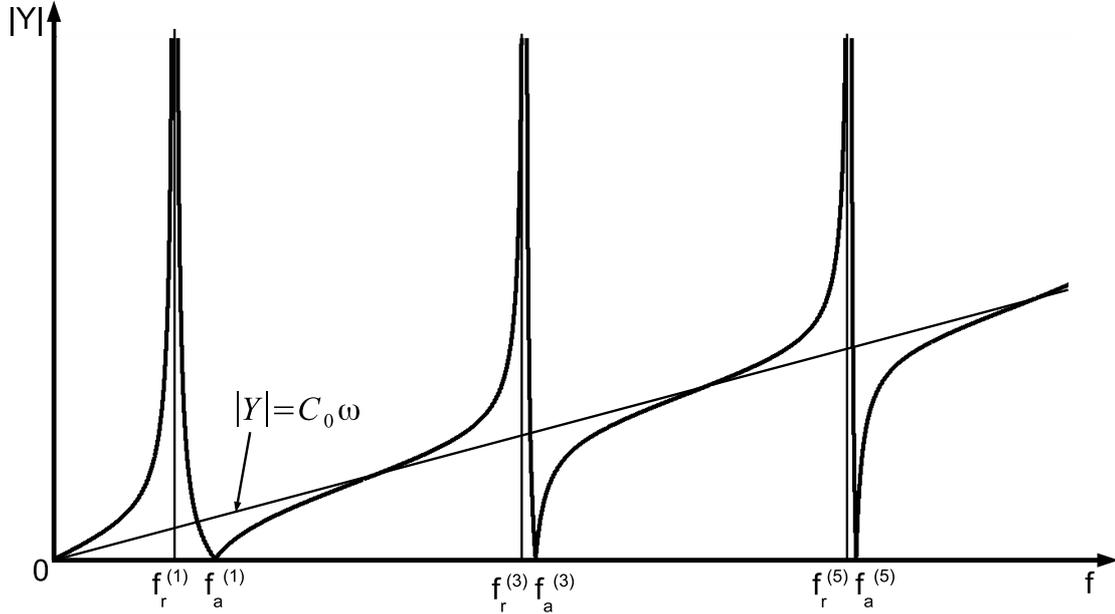


FIGURE 1.6 – Module de l’admittance électrique ( $Y$ ) d’un résonateur piézoélectrique en fonction de la fréquence ( $f$ ).

particulier [1]. Cette précision est faite pour ne pas confondre les noms « onde de compression » et « onde de cisaillement » avec les qualificatifs « longitudinal » et « transverse » tels qu’ils sont définis dans ce manuscrit en fonction des conditions (1.17). Un mode de compression peut être accompagné par l’effet transverse comme le mode latéral  $k_{31}$  (défini dans de nombreux ouvrages [26, 24]). Son circuit électrique équivalent sera donc celui de la Figure 1.5.a).

**Le coefficient de couplage électromécanique** Expliqué brièvement dans l’introduction, le coefficient de couplage garantit la conversion d’énergie entre deux domaines. Il est défini pour chaque type de mode de vibration du matériau piézoélectrique et son expression sera donnée au moment utile (pour les modes de vibration considérés) dans le manuscrit. Cependant, sa forme générale est donnée par :

$$k^2 = \frac{U_{int}^2}{U_{elas}U_{elec}} \quad (1.27)$$

où  $U_{int}$ ,  $U_{elas}$ ,  $U_{elec}$  sont, respectivement, les énergies d’interaction, élastique et électrique. Pratiquement, le coefficient de couplage pour un mode se calcule grâce aux fréquences de résonance et d’antirésonance en dissociant toujours l’effet longitudinal de l’effet transversal :

– pour l’effet longitudinal,

$$k^2 = \frac{\pi f_r}{2 f_a} \tan \left( \frac{\pi f_a - f_r}{2 f_a} \right), \quad (1.28)$$

– pour l'effet transversal,

$$\frac{k^2}{1-k^2} = \frac{\pi f_a}{2 f_r} \tan\left(\frac{\pi f_a - f_r}{2 f_r}\right). \quad (1.29)$$

L'expression (1.29) peut, théoriquement, dépasser la valeur 1 mais, le coefficient de couplage étant défini comme un rapport d'énergies, l'écart entre  $f_r$  et  $f_a$  pour lequel cela se produirait ne sera jamais atteint. Le coefficient de couplage se calcule avec les fréquences de résonance et d'antirésonance seulement dans le cas où le mode étudié n'est pas couplé à un autre. Pour que ces modes ne soient pas couplés, il a été déterminé un rapport de 8 au minimum entre les dimensions du résonateur [25].

Jusqu'ici, les pertes élastique et diélectrique du matériau piézoélectrique n'ont pas été prises en compte. Elles jouent pourtant un rôle très important dans la détermination des fréquences de résonance. En effet, les fréquences de résonance mesurées sur l'admittance, par exemple, notées  $f_m$  pour  $|Y| \rightarrow \infty$  et  $f_n$  pour  $|Y| = 0$  diffèrent des fréquences  $f_r$  et  $f_a$  définies précédemment à cause de ces pertes [25]. Cette différence est illustrée sur la Figure 1.7.

**Pertes élastique et diélectrique** Premièrement, pour tenir compte des pertes élastiques, un coefficient de viscosité  $\eta$  est introduit dans l'équation du mouvement (1.9) selon une seule dimension :

$$\rho \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = c^* \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \quad (1.30)$$

où  $c^* = c + j\omega\eta$ . La constante élastique  $c^*$  dépend donc de la fréquence mais, cette dépendance étant unique pour chaque matériau et dans un souci d'écriture générale des équations (c'est à dire pour n'importe quel matériau), les pertes élastiques seront prises en compte en utilisant un terme constant pour la partie complexe :

$$c^* = c' + jc'' \quad (1.31)$$

Les pertes élastiques sont données par  $\tan \delta_m$  qui est le rapport de la partie imaginaire sur la partie réelle :

$$\tan \delta_m = c''/c' \quad (1.32)$$

À partir de cette définition, le facteur de qualité  $Q$  qui donne la forme de la résonance s'exprime également à l'aide des pertes élastiques :

$$Q^{-1} = \tan \delta_m \quad (1.33)$$

Enfin, les pertes diélectriques seront introduites de la même façon, avec  $\epsilon^* = \epsilon' + j\epsilon''$  :

$$\tan \delta_e = \epsilon''/\epsilon' \quad (1.34)$$

Les deux types de perte sont insérés dans les circuits équivalents par deux résistances placées pour l'une dans la branche électrique et pour l'autre dans la branche mécanique. De ce fait, l'expression de l'admittance est modifiée et les fréquences de résonance et d'antirésonance, notées respectivement  $f_m$  et  $f_n$ , sont modifiées. Ces dernières sont différentes des fréquences  $f_r$  et  $f_a$  qui ont servi à calculer le coefficient de couplage  $k$ . En écrivant l'expression analytique des admittances, on remarque que  $f_r$  et  $f_a$  sont nécessairement comprises dans l'intervalle  $[f_m, f_n]$  comme le

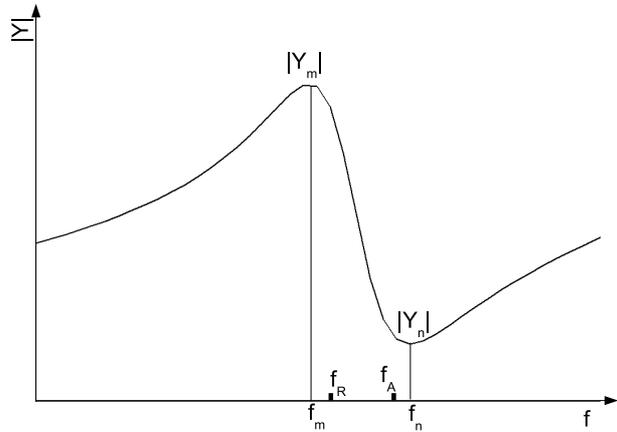


FIGURE 1.7 – Dépendance fréquentielle de la valeur absolue de l'admittance.

montre la Figure 1.7. C'est pour cela qu'il faut être très vigilant en utilisant les expressions (1.28) et (1.29) car, de cette manière, les valeurs de coefficients de couplage peuvent être surestimées. Pour la détermination des coefficients de couplage de modes de compression à effet longitudinal, le modèle de schéma électrique équivalent développé au laboratoire et basé sur le schéma KLM [27] est utilisé. Il prend en compte les pertes électrique et mécanique [28, 29, 30]. Pour les effets transverses, les couples  $(f_m, f_n)$  et  $(f_r, f_a)$  seront confondus, introduisant ainsi une possible erreur. Toutefois, elle sera très faible voire négligeable pour les matériaux caractérisés dans ce manuscrit.

## 1.2 Le transducteur ultrasonore

Un transducteur est un système permettant de convertir une énergie d'un domaine physique à un autre. Le matériau piézoélectrique est donc un transducteur électromécanique qui permet une conversion d'énergie entre le domaine électrique et mécanique et *vice versa*. Néanmoins, le terme « transducteur » sera utilisé pour un système plus complet autour de ce matériau représenté Figure 1.8 et composé :

- d'un milieu arrière qui permet entre autres l'absorption des ondes acoustiques,
- d'une lame adaptatrice pour l'adaptation d'impédance acoustique,
- et d'un élément pour l'adaptation d'impédance électrique.

Ce schéma de transducteur est fait pour fonctionner avec le mode épaisseur du matériau piézoélectrique, décrit dans la partie précédente. Dans un premier temps, les grandeurs physiques d'intérêt pour l'évaluation des performances d'un transducteur sont décrites. Puis, le rôle des éléments ajoutés autour du matériau piézoélectrique dans l'amélioration des paramètres d'évaluation est donné.

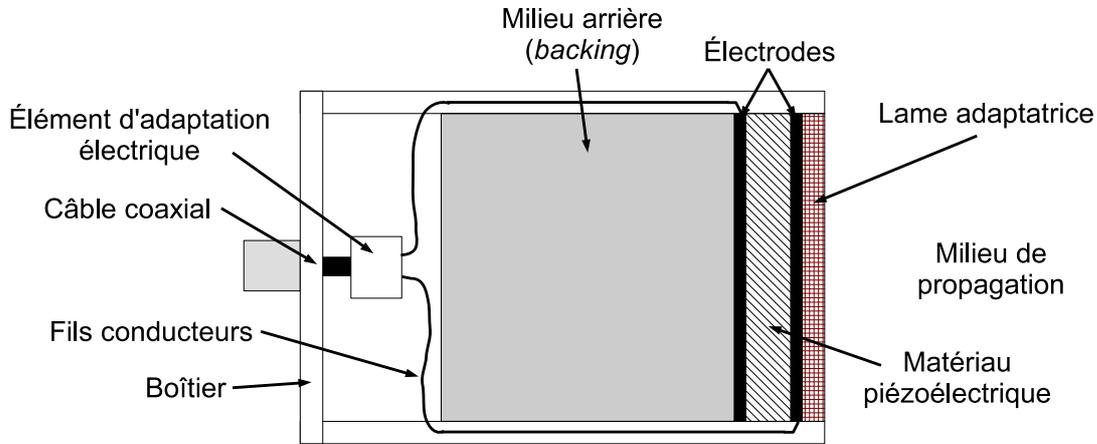


FIGURE 1.8 – Représentation d'un transducteur ultrasonore mono-élément plan

### 1.2.1 Les caractéristiques du transducteur

En général, les transducteurs sont évalués sur des paramètres électromécaniques et acoustiques. La mesure de la réponse électroacoustique (REA) permet de déduire entre autres, la fréquence centrale, la bande passante (BP) et la résolution axiale du transducteur. La mesure du diagramme de rayonnement acoustique complète ces propriétés avec la profondeur de champ et la résolution latérale (en particulier pour les transducteurs focalisés).

**Propriétés électromécaniques** Pour accéder aux propriétés fréquentielles, la réponse électroacoustique du transducteur en régime impulsionnel doit être mesurée. La mesure de la REA se fait généralement dans l'eau puisque son impédance acoustique est proche de celle du corps humain pour les applications en imagerie médicale. Une cible (miroir acoustique) est placée devant le transducteur pour travailler en émission/réception. Le miroir acoustique a pour rôle de réfléchir *quasi*-parfaitement l'énergie qui lui est envoyée. Il aura donc une impédance très différente de l'eau (cf relation (1.20)). Enfin, grâce à un oscilloscope et un générateur, le signal électrique émis  $V_{\text{émis}}$  et le signal électrique de réception  $V_{\text{écho}}$ , appelé « écho », sont visualisés. Cette mesure est illustrée Figure 1.9. Le régime impulsionnel, avec une impulsion électrique en signal d'entrée, est le plus utilisé et cette mesure s'appelle le « pulse-echo ».

De cette mesure, la résolution axiale est déduite ainsi que la fréquence centrale et la bande passante grâce à la transformée de Fourier du signal (FFT). Pratiquement, la résolution axiale peut se déterminer sur l'enveloppe de l'écho tel qu'il est défini sur la Figure 1.9. Cette enveloppe atteint un maximum d'amplitude  $V_{\text{reçu}}$  pour un temps  $t_{\text{max}}$ . Les temps  $t_{\text{inf}}$  et  $t_{\text{sup}}$  encadrent  $t_{\text{max}}$  et l'enveloppe y vaut  $V_{\text{reçu}}/2$ . La différence entre ces deux temps est  $\Delta t_{\text{-6dB}}$ . La résolution axiale  $R_{ax}$  se calcule alors de la manière suivante :

$$R_{ax} = \frac{v \times \Delta t_{\text{-6dB}}}{2} \quad (1.35)$$

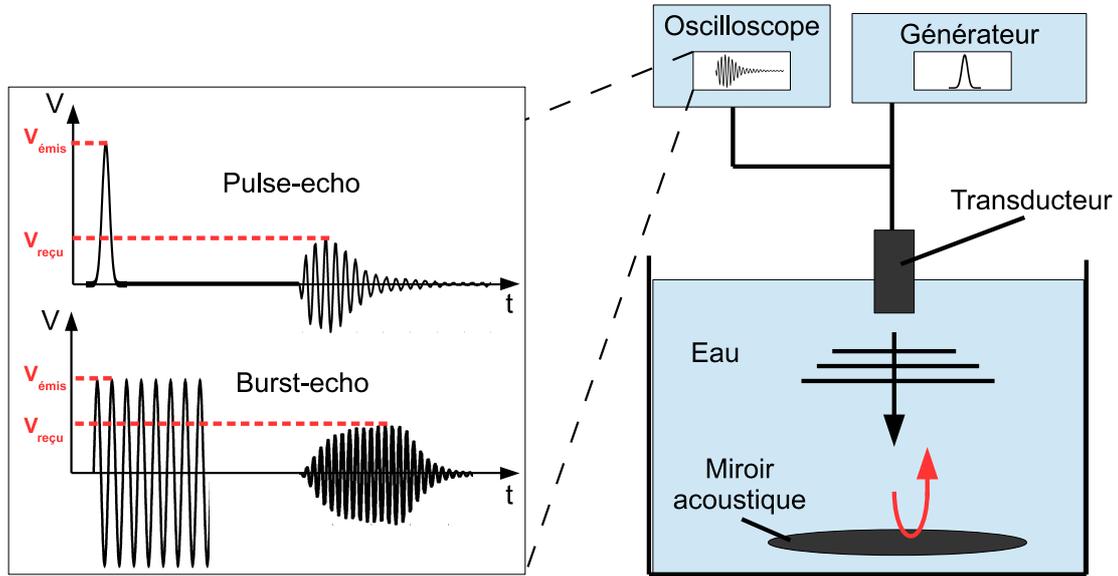


FIGURE 1.9 – Schéma d’une mesure de réponse électro-acoustique.

où  $v$  est la vitesse de propagation de l’onde dans le milieu. Pour les deux types de résolution (latérale et axiale), plus leur valeur est faible et plus la capacité à distinguer deux objets proches sera grande. Les paramètres qui suivent sont définis sur les FFT des signaux électriques d’entrée et de sortie. La réponse en fréquence est généralement normalisée par rapport au signal d’émission et représentée en dB. La valeur maximale de ce spectre sera obtenue pour la fréquence de résonance  $f_r$  du mode de vibration le plus rayonnant qui est le mode épaisseur pour ce type de transducteur. Lorsque le spectre est normalisé par rapport à cette valeur maximale  $f_r$ , il existe un intervalle de fréquences dans lequel toutes ses valeurs sont supérieures à -6dB. Cet intervalle  $[f_{min}, f_{max}]$  s’appelle la bande passante à -6dB (BP<sub>-6dB</sub>). La fréquence centrale du transducteur  $f_c$  est le centre de cet intervalle qui n’est pas forcément égal à  $f_r$ . La bande passante relative à -6dB se définit alors par :

$$BP_{-6dB} = (f_{max} - f_{min})/f_c \quad (1.36)$$

Toutes ces grandeurs sont résumées sur la Figure 1.10. La BP peut se définir selon différents seuils de sensibilité. Les BP à -20dB et -40dB sont aussi étudiées en imagerie médicale. Pour mesurer une BP, le pulse-echo est suffisant puisque le spectre est systématiquement normalisé donc le niveau absolu n’est pas nécessaire.

Pour la mesure d’une autre grandeur caractéristique, la sensibilité, un *burst* peut être utilisé pour imposer une fréquence précise au transducteur. Il s’agit d’un signal sinusoïdal parfait avec un nombre de cycles fini.

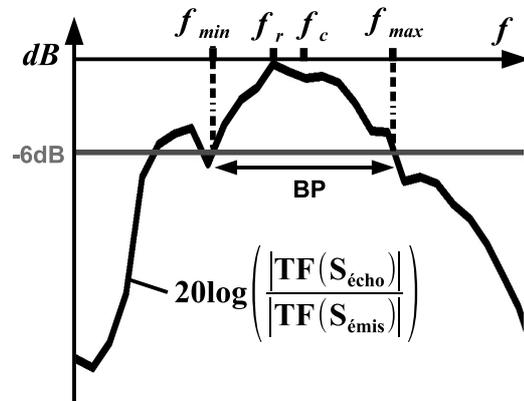


FIGURE 1.10 – Représentation d’un spectre fréquentiel normalisé d’un transducteur.

Cette mesure s'appellera, dans ce manuscrit, le « *burst-echo* ». Ce dernier type de mesure est plus précis mais beaucoup moins rapide. En effet, la REA est construite fréquence par fréquence, ce qui signifie que le nombre de mesures à faire correspond au nombre de fréquences désirées. La sensibilité peut s'exprimer en fonction du rapport de l'amplitude maximale  $V_{\text{reçu}}$  de l'écho du signal électrique dans la domaine temporel sur l'amplitude maximale du signal électrique temporel envoyé  $V_{\text{émis}}$  soit :

$$\text{Sensibilité} = 20 \log \left( \frac{V_{\text{reçu}}}{V_{\text{émis}}} \right) \quad (1.37)$$

D'autre part, la sensibilité en fréquence peut être également utilisée et sera simplement la valeur maximale en décibels du spectre fréquentiel à la fréquence  $f_r$ . Dans ce cas, la valeur absolue du spectre pour une fréquence est extrêmement importante. Cette mesure sera donc faite en *burst-écho*.

Les paramètres de caractérisation du transducteur expliqués ici seront les principaux critères d'appréciation dans ce manuscrit.

**Propriétés acoustiques** Les critères d'évaluation spatiale se déterminent grâce à des mesures directes du champ de pression créé par le transducteur. C'est l'étude du faisceau acoustique formé. Cette mesure s'effectue grâce à un hydrophone qui balaie l'espace face au transducteur pour récupérer la pression maximale en chaque point. C'est une mesure par transmission à l'inverse d'une mesure par réflexion comme celle de la REA ou de la sensibilité. Cette mesure peut se faire aussi en émission/réception mais la cible doit être ponctuelle [30].

Le faisceau acoustique formé peut être focalisé ou non. Si, par diverses techniques, des interférences dans le milieu de propagation se font de façon constructive, apparaîtra alors

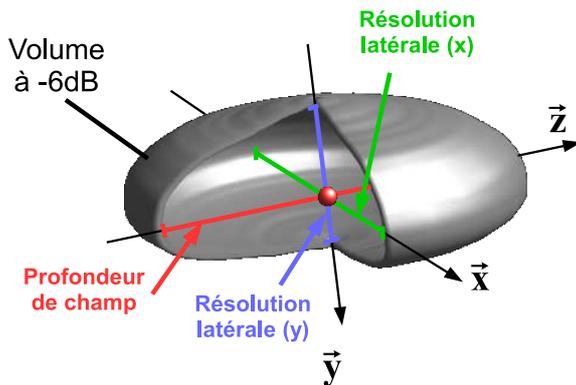


FIGURE 1.11 – Illustration d'une tâche focale en 3 dimensions pour une mesure en émission/réception, où le centre du repère (sphère rouge) est la valeur maximale de la pression  $P_{\text{max}}$ .

un point spécifique de l'espace où la pression sera maximale ( $P_{\text{max}}$ ) : le point focal (même définition pour les ondes électromagnétiques). Cette focalisation peut être physique en ajoutant une lentille ou en courbant directement la face avant du transducteur et le matériau piézoélectrique.

Expérimentalement, la tâche focale est définie comme le volume autour du point focal  $P_{\text{max}}$ , comme l'illustre la Figure 1.11. Les limites de ce volume sont à choisir mais, généralement, les points de l'espace où la pression  $P$  est égale à  $P_{\text{max}}/2$  sont choisis comme limite. La tâche focale est alors appelée également

« volume à -6dB ». Toutes les pressions des points  $P_{\text{int}}$  de ce volume vérifient donc :

$$\frac{P_{\text{max}}}{2} < P_{\text{int}} < P_{\text{max}} \quad (1.38)$$

À partir de la définition de la tâche focale, 3 caractéristiques peuvent être extraites : 2 résolutions latérales et la profondeur de champ. Il s'agit simplement des 3 paramètres caractéristiques d'un ellipsoïde. En prenant l'axe  $\vec{z}$  du repère comme la normale à la surface du transducteur produisant la tâche focale de la Figure 1.11, le paramètre caractéristique selon cette direction est appelé profondeur de champ. Les deux autres caractéristiques de l'ellipsoïde sont les résolutions latérales. Elles sont représentées sur la Figure 1.11.

### 1.2.2 La structure d'un transducteur standard

Maintenant que les paramètres d'évaluation d'un transducteur électromécanique ont été définis, nous allons voir de quelle manière chaque élément constituant le transducteur final améliore ces performances.

**La lame adaptatrice** L'adaptation acoustique en face avant du transducteur est souvent nécessaire pour un transfert optimal de l'énergie acoustique. En effet, l'impédance acoustique d'un matériau piézoélectrique est environ de 34MRa (typiquement pour une céramique de type PZT) et, dans les applications sous-marines ou médicales, le milieu de propagation a une impédance acoustique de 1,5MRa (impédance acoustique de l'eau). Cette différence d'impédances empêche une bonne transmission d'énergie (équation (1.20)). La solution est d'intercaler une lame qui vérifie [31], en régime harmonique :

- $e_{\text{lame}} = \lambda_{\text{lame}}/4$ , où  $e_{\text{lame}}$  est l'épaisseur de la lame adaptatrice et  $\lambda_{\text{lame}}$  la longueur d'onde de l'onde s'y propageant.
- et  $Z_{a,\text{lame}} = \sqrt{Z_{a,\text{piezo}} \times Z_{a,\text{milieu}}}$ .

Cependant, les transducteurs sont souvent utilisés en régime impulsionnel et la lame doit vérifier de nouvelles conditions pour lesquelles l'épaisseur reste proche du quart de la longueur d'onde et son impédance acoustique vaut  $\sqrt[3]{Z_{a,\text{piezo}} \times Z_{a,\text{milieu}}^2}$  [31]. Au lieu de rajouter une seule lame, il peut y en avoir 2 voire plus pour une meilleure adaptation mais un compromis doit être trouvé entre la difficulté de fabrication et le gain en transmission. La lame permet d'améliorer la sensibilité mais aussi la résolution axiale.

**Le milieu arrière** Lors de la conception d'un transducteur, le deuxième élément important est le milieu arrière ou *backing*. En effet, collé sur l'autre face du matériau piézoélectrique, il a pour rôle d'absorber une partie de l'énergie émise par cette face. Comme le montre la Figure 1.12, lorsqu'une impulsion acoustique est créée par le matériau piézoélectrique, une partie de l'énergie se propage vers la face avant du transducteur alors que le reste se dirige vers la face arrière. Si le milieu arrière est mal adapté (Figure 1.12.a), une grande partie de l'énergie qui s'y dirigeait est réfléchi à l'interface pour revenir vers la face avant. La REA possède donc une durée plus longue. Une grande partie de l'énergie émise au départ est ainsi récupérée vers la face avant. A l'inverse (Figure 1.12.b), avec un milieu arrière adapté, c'est à dire que l'impédance acoustique est proche de celle du matériau

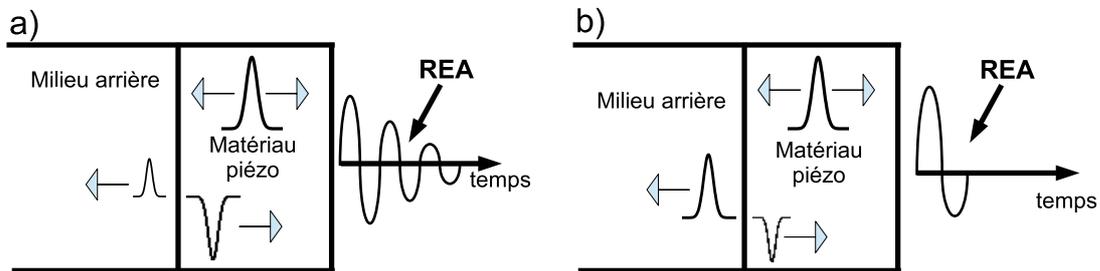


FIGURE 1.12 – Schéma de l'influence d'un milieu arrière a) non-adapté et b) adapté sur la propagation d'une impulsion acoustique.

piézoélectrique, une grande partie de l'énergie émise est transmise au milieu arrière. Elle sera dissipée si le matériau constituant le *backing* est suffisamment atténuant. Lorsque la REA est de courte durée, la BP est plus large et la sensibilité plus faible que pour une REA de durée plus longue qui aura une BP étroite et une grande sensibilité. Le choix du milieu arrière est donc un compromis entre la BP (et donc la résolution axiale) et la sensibilité.

**L'adaptation électrique** De même que pour l'adaptation d'impédance mécanique du transducteur vers le milieu de propagation, une adaptation d'impédance électrique est nécessaire pour un transfert optimal entre le transducteur et le système sur lequel il est connecté. Habituellement, l'impédance électrique du système où se branche le transducteur est purement réelle et est souvent égale à  $50\Omega$ . Adapter électriquement le transducteur consiste essentiellement à éliminer la partie imaginaire de son impédance électrique. Pour ce faire, une inductance en série ou en parallèle est ajoutée la plupart du temps. Pour approcher la valeur de la partie réelle, un transformateur peut également être utilisé. Ce sont ici les moyens les plus simples mais l'adaptation électrique est généralement plus complexe et dépend spécifiquement de chaque type de sonde fabriqué.

## Chapitre 2

# Composites piézoélectriques et céramiques texturées

Le matériau piézoélectrique étant le cœur du transducteur électromécanique, même si les éléments l'entourant améliorent ses performances, de nombreux scientifiques travaillent sur son amélioration. Dans cette optique, il existe la voie chimique avec la recherche de nouvelles compositions ou la fabrication de matériaux composites piézoélectriques qui est l'assemblage d'au moins deux composants non miscibles. C'est cette dernière voie qui nous intéresse pour la suite. Dans les composites piézoélectriques, la combinaison d'une phase polymère et d'une phase piézoélectrique est la plus largement répandue. L'intérêt de cette association est l'obtention de propriétés qui améliorent les performances du transducteur. La sensibilité va dépendre essentiellement de la phase piézoélectrique alors que la phase polymère diminuera l'impédance acoustique du composite et donnera une meilleure flexibilité pour la fabrication de transducteurs incurvés.

Dans un premier temps, le concept de connectivité est explicité et des détails sur la fabrication et le fonctionnement des composites piézoélectriques de connectivité 1-3 sont donnés. Enfin, une présentation succincte des céramiques texturées est faite car elles font partie des matériaux piézoélectriques présentant de bonnes propriétés.

### 2.1 Concept de connectivité

Pour décrire simplement l'agencement des phases polymère et piézoélectrique dans un matériau composite, Newnham [32] a défini le concept de connectivité. Lorsqu'un cube représentatif du matériau composite est considéré, la connectivité est le nombre de dimensions dans laquelle la phase est inter-connectée avec elle-même. Ce sera une connectivité  $i$ - $j$ , où  $i, j \in [0, 3]$  et sont des nombres entiers. Le premier chiffre décrit la phase piézoélectrique et le second, le polymère. Dans ce cas, il existe 10 connectivités différentes qui sont représentées Figure 2.1. Les caractéristiques électro-mécaniques du composite piézoélectrique dépendent énormément de cet agencement. Les composites les plus performants pour les transducteurs à ce jour sont les composites piézoélectriques de connectivité 1-3 pour des raisons détaillées dans la section 2.2. Il s'agit ici de composites pour la transduc-

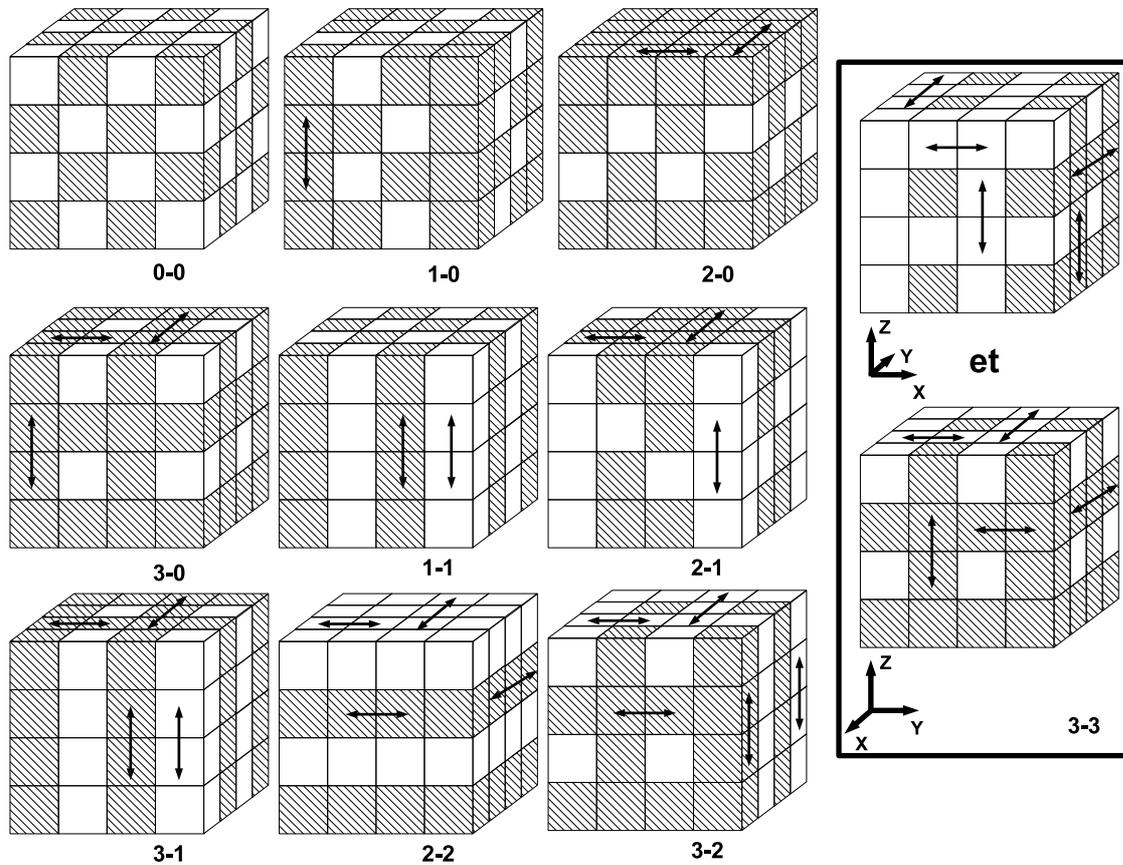


FIGURE 2.1 – Représentation des 10 connectivités possibles pour un composite piézoélectrique bi-phasique. Les flèches représentent les dimensions inter-connectées avec elles-même.

tion ultrasonore. Cela ne veut pas dire que pour des applications différentes, les mêmes connectivités sont retenues comme peut le montrer le cas de la connectivité 2-2 dans le filtrage fréquentiel [33]. Ce concept de connectivité peut aussi être élargi à plus de 2 phases en présence pour améliorer encore certaines performances [34].

## 2.2 Composite de connectivité 1-3

L'intérêt du composite piézoélectrique de connectivité 1-3 est sa grande sensibilité par rapport au même matériau piézoélectrique seul, ainsi que sa faible valeur d'impédance acoustique grâce à l'introduction du polymère. La sensibilité du matériau est directement liée à la valeur de son coefficient de couplage du mode longitudinal en épaisseur  $k_t$ . Pour ces composites, ce coefficient de couplage dépend du  $k_{33}$  du matériau piézoélectrique seul s'il est optimisé.

### 2.2.1 Conditions pour un composite 1-3 efficace (mode épaisseur)

Dans un premier temps, un composite piézoélectrique de connectivité 1-3 type est représenté Figure 2.2 avec la définition de deux distances caractéristiques qui sont le « *kerf* » (rainure en français) et le « *pitch* » (pas en français). Il s'agit donc de barreaux à section carrée de matériau piézoélectrique plongés dans un polymère. Sur la représentation du composite 1-3, ces barreaux ont un arrangement périodique mais la réalité peut être tout autre comme le montre la fabrication de certains prototypes [8].

Pour que ce type de composite soit performant, il est nécessaire que son  $k_t$  soit élevé. Le mode épaisseur du composite doit son existence au mode longitudinal se propageant selon la hauteur des barreaux piézoélectriques (mode barreau) et dont le coefficient de couplage s'écrit  $k_{33}$ . Il est donc évident que la justification de la fabrication d'un composite 1-3 tient au fait que le  $k_{33}$  du matériau piézoélectrique doit être supérieur à son propre  $k_t$ , ce qui est souvent le cas pour les compositions de type PZT. De façon générale, il est facile de le savoir si ses caractéristiques sont connues car les expressions analytiques de ces deux coefficients de couplage sont :

$$k_{33}^2 = \frac{d_{33}^2}{s_{33}^E \epsilon_{33}^T} \quad \text{et} \quad k_t^2 = \frac{e_{33}^2}{c_{33}^D \epsilon_{33}^S} \quad (2.1)$$

Un autre paramètre important dans la conception de composites est la fraction volumique de matériau piézoélectrique et se définit par :

$$v_f = \frac{v^p}{(v^p + v^r)^2} \quad (2.2)$$

où  $v^p$  est le volume de matériau piézoélectrique et  $v^r$  est le volume du polymère qui est, dans la plupart des cas, de la résine époxy. Grâce à un modèle d'homogénéisation [35, 36], il est possible de prévoir les caractéristiques électromécaniques du composite final en fonction de la fraction volumique  $v_f$  si les caractéristiques des deux phases sont connues. Pour comprendre l'effet de la fraction volumique sur le  $k_t$  du composite, ce coefficient de couplage a été tracé Figure 2.3 pour une céramique PZT standard et de la résine époxy. Ce couple de matériau est le plus utilisé pour ses hautes performances. Plusieurs connectivités sont comparées et les performances de la connectivité 1-3, pour toutes fractions volumiques confondues, sont au-dessus. Les points remarquables sont la valeur nulle du  $k_t$  pour  $v_f = 0$  car la résine n'est pas piézoélectrique et la valeur du  $k_t$  pour  $v_f = 1$  n'est autre que la valeur du  $k_t$  du matériau piézoélectrique seul. Entre ces deux valeurs, le  $k_t$  du composite passe par une valeur qui est égale au  $k_{33}$  du matériau piézoélectrique. Si le  $k_{33}$  du matériau piézoélectrique est supérieur à son propre  $k_t$  alors ce point remarquable sera le maximum pour la valeur du  $k_t$  du composite.

### 2.2.2 Fabrication

Le mode de fabrication des composites 1-3 influence leurs propriétés finales. Pour en comprendre les raisons, les différentes méthodes sont détaillées dans cette partie.

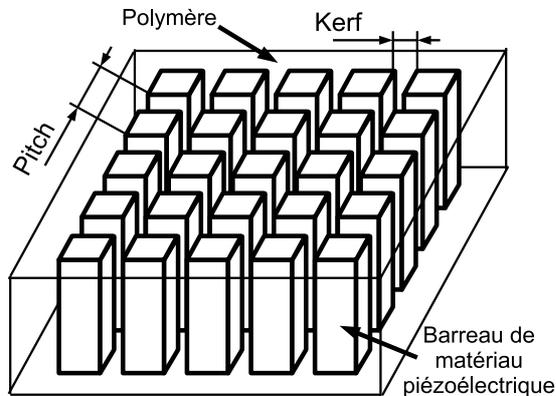


FIGURE 2.2 – Schéma d'un composite piézoélectrique de connectivité 1-3.

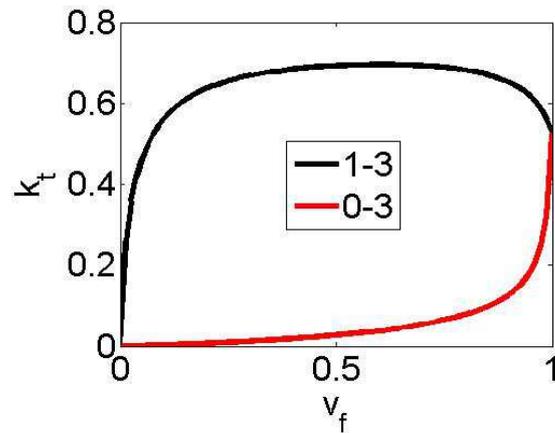


FIGURE 2.3 – Coefficient de couplage  $k_t$  du composite 1-3 en fonction de la fraction volumique  $v_f$  pour du PZT/Epoxy.

**La méthode « Dice and Fill »** Proposée par Savakus [37], cette méthode de fabrication est la plus largement répandue pour des raisons de facilité de mise en œuvre. Dans un premier temps, il est nécessaire de se procurer une plaque de matériau piézoélectrique dont la surface conditionnera la taille finale du composite 1-3. Ensuite, une scie fait des rainures pour laisser une série de barreaux qui aura donc un agencement régulier. C'est l'étape « Dice » traduit en français par « découper ». Une fois les plots découpés, le polymère en phase liquide est coulé dans les rainures faites par la scie. Sa polymérisation n'a lieu qu'après son coulage. Il s'agit de l'étape « Fill » ou « remplir » en français. Le principe général a été expliqué ici mais il existe évidemment de nombreuses variantes [38, 39, 40, 41]. Le schéma récapitulatif de la méthode est représenté Figure 2.4.a).

**La méthode par lamination** En 1985, un brevet américain propose une nouvelle méthode de fabrication [18] qui s'appelle la technique par lamination et Smith insiste sur les atouts de cette méthode [42]. Cette technique sera surtout utilisée quelques années plus tard pour la fabrication de composites de grande surface à base de monocristaux [43, 44]. Il s'agit tout d'abord de faire un empilement en alternant une couche de polymère et une couche de matériau piézoélectrique (étape 1 de la Figure 2.4.b)). Il s'agit finalement d'un composite 2-2. Ceci fait, l'empilement est découpé en tranche dans le sens de sa hauteur (étape 2) puis des couches de polymère sont intercalés (étape 3). Enfin, un re-découpage est nécessaire (étape 4) pour obtenir le composite 1-3 (étape 5). Une variante de cette méthode est utilisée durant ce travail de thèse pour la fabrication d'une nouvelle structure de composite 1-3. Elle sera détaillée le moment voulu.

### 2.2.3 Les modes parasites

Dans le cas des composites 1-3 avec des plots de céramique régulièrement espacés, la périodicité de la structure permet l'existence de certains modes transverses. Ils sont appelés les modes parasites car ils détériorent les performances du composite 1-3. Ces modes ont

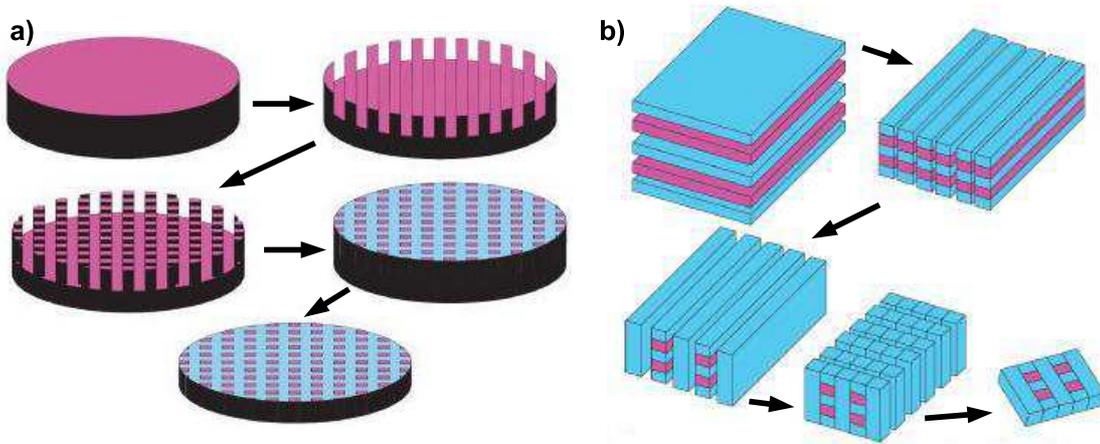


FIGURE 2.4 – Schéma des méthodes de fabrication des composites 1-3 par a) « Dice and Fill » et b) « lamination ». Le polymère est en bleu et le matériau piézoélectrique en rose [6].

aussi le qualificatif « latéral » car la périodicité de la structure qui permet leur existence est dans le plan parallèle aux électrodes.

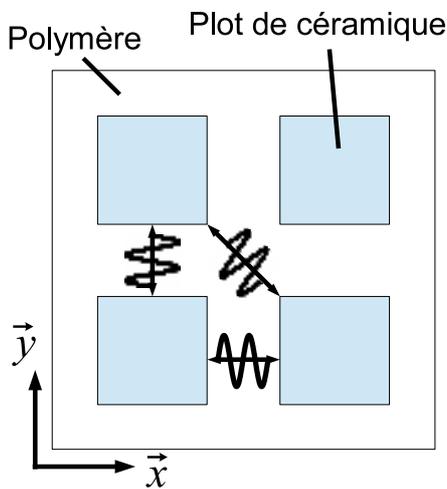


FIGURE 2.5 – Les deux premiers modes latéraux dans un composite 1-3 (vue de dessus).

**La création des modes latéraux** Ces modes parasites se créent grâce au couplage de deux effets qui sont :

- la réflexion due à une rupture d'impédance à l'interface entre le polymère et la céramique
- et la diffraction de Bragg qui se produit dans un réseau périodique.

Gururaja *et al.* [45] ont été les premiers à identifier les deux premiers modes latéraux qui sont des ondes stationnaires se formant pour l'un selon la diagonale du plot et pour l'autre selon sa médiane (Figure 2.5). Ils ont ensuite été étudiés théoriquement [46] en utilisant le formalisme de Bloch-Floquet appliqué à la propagation d'onde de Lamb dans de telles structures et donnent de bons résultats. Puis un modèle, basé sur l'analyse de la propagation des ondes transverses

dans un milieu périodique 2D, améliore la précision des résultats [47] pour les deux premiers modes latéraux. Grâce à ces modèles analytiques, les fréquences précises des modes latéraux peuvent être prédites. L'information qui en émane est la dépendance du mode latéral principalement à la largeur du kerf et donc des propriétés du polymère.

En parallèle, des études utilisant le calcul par éléments finis (voir chapitre 6) ont aussi été

réalisées [48, 49, 50]. Ce travail complémentaire a pour but d'établir les conditions pour lesquelles les modes latéraux détériorent les performances de composite 1-3 en rendant la valeur du  $k_t$  plus faible ou en diminuant la bande passante du composite seul dans l'eau. Cela arrive lorsque les modes latéraux sont trop proches en fréquence du mode utile (ou mode épaisseur). C'est ainsi que Hladky *et al.* [50] préconise de respecter la condition :

$$\frac{h}{p} > 3 \quad (2.3)$$

où  $h$  est la hauteur du plot et  $p$  le pas de la structure. De cette manière, les modes latéraux sont assez éloignés (en fréquence) pour ne pas perturber le mode épaisseur. Cependant, ce critère est donné pour une fraction volumique  $v_f$  assez faible (<30%). En effet, lorsque  $v_f$  augmente, ce rapport peut être inférieur à 3. Hayward *et al.* [51] définissent la grandeur  $Q_{\text{dil}}$  qui quantifie le déplacement de la surface du composite de manière homogène (mode piston) grâce au calcul par éléments finis. Grâce aux valeurs des noeuds du maillage,  $Q_{\text{dil}}$  s'exprime par :

$$Q_{\text{dil}} = \frac{\sum_{i=1}^n d_i A_i}{d_{\text{max}} A_t} \quad (2.4)$$

où  $d_i$  est le déplacement normal à la surface d'un noeud,  $A_i$  est l'aire entre quatre noeuds voisins,  $n$  le nombre de noeuds de la surface,  $d_{\text{max}}$  le déplacement maximal existant entre tous les noeuds et  $A_t$  l'aire totale de la surface. La valeur de  $Q_{\text{dil}}$  retenue dans ce travail pour considérer que la surface se déplace de façon homogène est 90%. Comme mentionné précédemment, ce genre de critère doit tenir compte de la fraction volumique du composite donc il est précisé que la fréquence du premier mode latéral  $f_{L1}$  doit également vérifier :

$$\begin{aligned} f_{L1} &> 2f_a \quad \text{pour } v_f > 20\% \\ f_{L1} &> 3f_a \quad \text{pour } v_f < 20\% \end{aligned}$$

où  $f_a$  est la fréquence d'antirésonance du composite (mode épaisseur). Les critères  $Q_{\text{dil}}$  et  $f_{L1}$  devant être respectés, ils introduisent le MPAR (**M**aximum **P**illar **A**spect **R**atio) qui n'est autre que la valeur limite de l'inverse du rapport défini en (2.3). Il est évident que des valeurs de MPAR indépendantes des caractéristiques des matériaux et dépendantes uniquement de la géométrie (hauteur, pas et fraction volumique) ne sont pas possibles. La publication d'abaques pour des couples de matériaux donnant ces MPAR est donc nécessaire comme le montre les premières études faites par Hayward *et al.* [51]. Pour conclure, la définition d'un paramètre, indépendant des matériaux, qui indique la limite précise de fonctionnement du mode épaisseur d'un composite semble difficile. Dans ce cas, la majorité des fabricants préfère utiliser la limite du cas le plus critique :  $h/p > 3$ .

La demande, dans le domaine de l'imagerie, d'une résolution toujours plus grande nécessite des transducteurs fonctionnant plus haut en fréquence. Pour ce faire, l'épaisseur des composites est réduite et le MPAR (ou équivalent) ne peut plus être respecté à cause des limites technologiques pour la fabrication par « Dice and Fill ». Ont alors démarré les recherches sur de nouvelles structures de connectivité 1-3 qui diminuent l'existence des modes latéraux.

**La minimisation des modes latéraux** La première idée porte sur la forme des plots pour atténuer les effets néfastes des modes latéraux [49, 52, 53, 54]. L'effet des plots de formes carrée, triangulaire ou circulaire a été quantifié par des mesures de  $k_t$  du composite ou de l'amplitude de l'impédance électrique pour les modes latéraux. L'idée de plots en forme de pyramide a également émergé. La Figure 2.6 résume les principales formes de plots essayées. Tous ces travaux se sont portés sur les formes des plots avec, à la clé, des fabrications de transducteurs avec ces mêmes composites [7]. L'effet positif de la géométrie des plots sur l'atténuation des modes latéraux n'est pas fortement marqué, excepté pour Brown *et al.* avec la structure de la Figure 2.6.d) où la bande passante n'est pas du tout affectée à l'inverse d'un composite équivalent avec des plots carrés.

Avec l'apparition de nouvelles méthodes de fabrication [40], les scientifiques commencent à travailler sur la rupture de la périodicité du réseau. Ainsi, des composites piézo-électriques de connectivité 1-3 aléatoires ont vu le jour [9, 7, 8] et ces nouvelles structures sont visibles

sur la Figure 2.7. Yang *et al.* comparent leur structure à des structures équivalentes périodiques sur leur bande passante et l'allure de ces BP est nettement améliorée. Cette différence entre l'aléatoire à base de fibres et le périodique est moins visible sur la publication d'Harvey *et al.* Enfin, aucune comparaison avec un équivalent régulier n'est faite pour la structure, Figure 2.7.b). Les moyens mis en oeuvre pour la fabrication de ces structures sont coûteux. Dans cette thèse, l'idée d'une structure aléatoire sera donc combinée avec une méthode de fabrication moins onéreuse qu'est la technique par lamination.

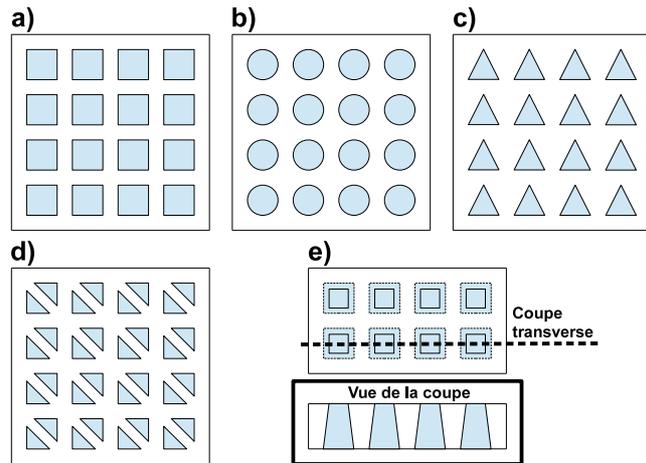


FIGURE 2.6 – Exemples basiques des différentes formes de plots des composites 1-3.

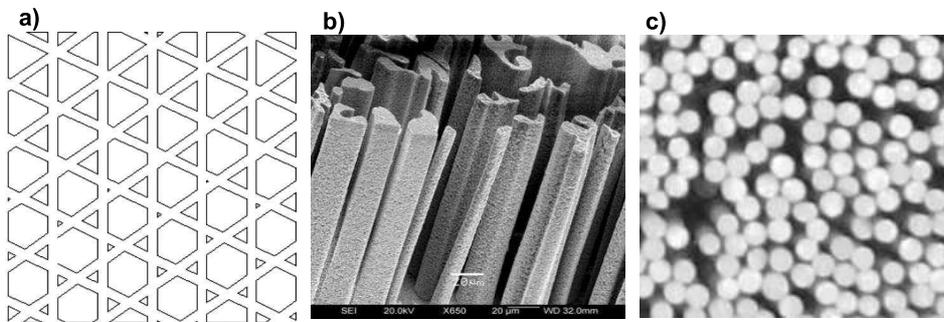


FIGURE 2.7 – Les structures piézoélectriques aléatoires de connectivité 1-3 de a) Yang *et al.* [7], b) Jiang *et al.* [8] et c) Harvey *et al.* [9].

## 2.3 Céramiques texturées

L'objectif de ce paragraphe est de décrire brièvement ce qu'est une céramique texturée. Elle est un agencement de deux matériaux qui sont pour l'un, sous forme cristalline et pour l'autre, sous forme polycristalline. Ces deux formes de matériau peuvent avoir la même composition. L'atout essentiel de ce type de matériau est l'obtention de caractéristiques piézoélectriques aussi bonnes que les monocristaux qui sont, comme expliqué dans la partie 1.1.1, la référence en terme de performance. En 1998, Tani [55] montre que si les grains de monocristal sont orientés dans la céramique, les propriétés piézoélectriques sont augmentées.

Le principe de fabrication d'une céramique texturée est l'introduction de germes de monocristal de petite taille (« *templates* » en anglais) dans une poudre de céramique ou plus communément appelée « matrice ». Pour ce faire, la méthode de fabrication essentiellement utilisée pour les céramiques texturées est la TGG (**T**emplated **G**rain **G**rowth). Son schéma de principe est représenté sur la Figure 2.8. Les germes possèdent une forte anisotropie de forme dans une direction donnée, ce qui permet leur orientation durant le coulage de la bande de céramique. Durant le frittage, ces germes vont croître grâce à la présence de la matrice environnante. Pour estimer l'orientation globale des germes dans la direction privilégiée, le taux de texturation s'évalue par le facteur de Lotgering [56] et donne un pourcentage de l'orientation des plans cristallographiques de la céramique par rapport à une céramique non-orientée.

L'avantage de ce type de céramique est de pouvoir fabriquer un matériau piézoélectrique avec de grandes surfaces tout en tendant vers des propriétés des phases monocristallines.

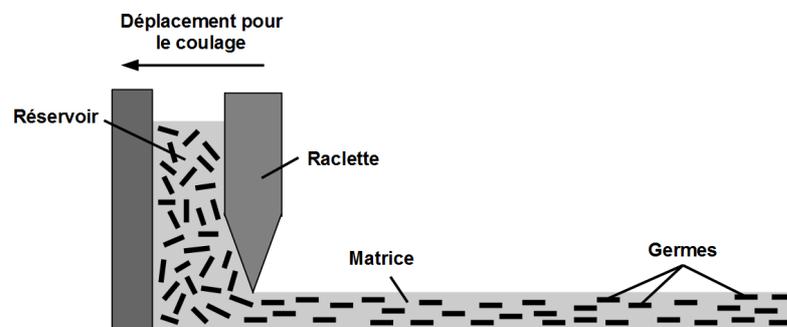


FIGURE 2.8 – Schéma de principe de la fabrication d'une céramique texturée par TGG.