

CFA/VISHNO 2016

Développement et Intégration de Capteurs Acoustiques pour la Détection de Polluants en Milieu Aquatique

D. Lapeine, J.Y. Ferrandis, D. Laux, F. Pascal et P. Combette
Université de Montpellier, CNRS, IES, UMR 5214, 860, rue Saint Priest, Campus Saint
Priest, Bat 5, 34095 Montpellier Cedex 5, France
lapeine@ies.univ-montp2.fr



LE MANS

L'objectif du projet est d'élaborer des capteurs environnementaux innovants pour la détection et le suivi de polluants en milieu aquatique comme par exemple les hydrocarbures. A partir d'une recherche bibliographique, nous avons retenu une technique acoustique basée sur l'analyse des caractéristiques des ondes sonores se propageant dans le milieu pollué. Dans ce papier, nous discutons de la réalisation de transducteurs ultrasoniques par sérigraphie basés sur la structuration du matériau piézoélectrique PZT (Titano-Zirconate de Plomb). Pour cela, nous présenterons les étapes suivantes : la fabrication de l'encre de PZT, le procédé de sérigraphie, la polarisation, la caractérisation des éléments et le banc de test mis en place pour faire l'analyse du temps de vol des ondes dans le liquide à analyser. Enfin les premières études d'intégration du système sont présentées.

1 Introduction

Les travaux présentés s'inscrivent dans le cadre du projet "Eco-Cité, Cité Intelligente" de la métropole de Montpellier dans sa phase de développement, d'expérimentations et de tests de solutions techniques urbaines en grandeur nature et fait l'objet d'un contrat de Recherche et Développement. Ce contrat permet aux partenaires, la Métropole de Montpellier, IBM France, les Universités de Montpellier, l'IDATE ainsi que les entreprises Egis eau, Esec System, Predict Services de développer de nouveaux savoirs et techniques afin de susciter l'intérêt des acteurs du territoire.

En ce qui concerne notre projet, il s'agit de développer des capteurs environnementaux innovants pour la détection, par niveau de seuil de polluants en milieu aquatique (hydrocarbures), dans le cadre de la gestion de crises liées aux phénomènes de crue sur le territoire du sud montpelliérain (milieu lagunaire et bassins versants). Le capteur proposé doit être intégrable dans une balise d'alerte, et à faible coût.

La technique retenue pour détecter les polluants en milieu contraint est la réalisation de transducteurs acoustiques avec comme matériau actif le PZT. Ces transducteurs vont émettre et recevoir des ondes sonores dont la vitesse va changer en fonction du liquide dans lequel elles se propagent. En effet la relation de propagation des ondes est définie par [1] :

$$\frac{\partial^2 X}{\partial t^2} = \frac{M^*}{\rho} \cdot \frac{\partial^2 X}{\partial x^2} \quad (1)$$

avec X : le déplacement des particules parallèle à la direction de propagation et ρ : la masse volumique du milieu. Dans le cas de l'acoustique linéaire et d'une excitation sinusoïdale de pulsation ω , la solution de l'équation des ondes longitudinales est :

$$X = X_0 \exp(-\alpha_T x) \exp\left(-j\omega\left(t - \frac{x}{v_L}\right)\right) \quad (2)$$

Avec v_L : la vitesse de l'onde dans le liquide.

2 Fabrication des transducteurs acoustiques

Les transducteurs acoustiques présentés dans ce papier sont réalisés par la technique de la sérigraphie (Figure 1). Il s'agit d'une méthode de dépôt dite "couches épaisses" (>1 μm) permettant la structuration de composants électroniques. Le principe est le suivant : un écran souple est disposé au dessus du substrat à sérigraphier. L'écran utilisé comme pochoir, est composé d'ouvertures correspondant aux motifs à imprimer. L'encre est placée sur la face supérieure de l'écran. Puis une racle passe avec une certaine pression en

déformant la surface de l'écran. La racle va alors forcer le dépôt de l'encre au travers des ouvertures de l'écran et ainsi recréer les motifs sur le substrat [2].

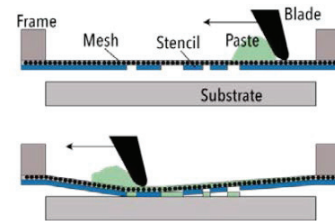


FIGURE 1 – Schéma de principe de sérigraphie

2.1 Élaboration de l'encre de PZT

Le matériau utilisé et déposé sur un substrat d'alumine est du PZT. De part ses très bonnes propriétés piézoélectriques [3], cette céramique est utilisée dans de nombreuses applications électro-mécanique. Pour réaliser cette encre, 3 composés sont utilisés : - la poudre de Pz27 (Ferropem), qui est l'élément actif, - du verre broyé (CF 7575) permettant le frittage du composant lors de la cuisson, - le liant organique (ESL 400) destiné à ajuster la viscosité de l'encre et assurer de bonnes propriétés rhéologiques pour la sérigraphie. Un contrôle rhéologique est effectué avec un rhéomètre permettant d'évaluer la viscosité de l'encre (Figure 2). L'aspect rhéofluidifiant de l'encre est nécessaire pour la sérigraphie puisqu'elle doit présenter une viscosité élevée lors du passage de la racle et de la traversée du masque.

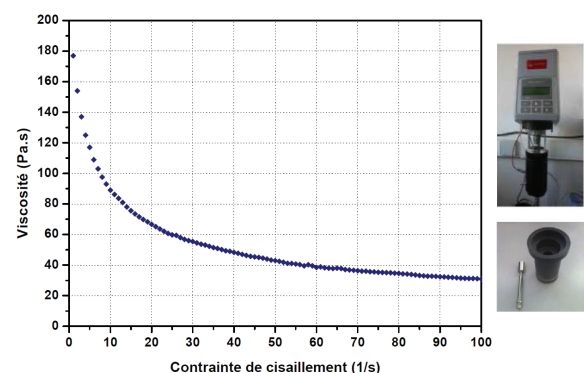


FIGURE 2 – Gauche : Graphique indiquant la nature rhéofluidifiante de l'encre, Droite : Photo du rhéomètre

2.2 Processus de sérigraphie

La figure 3 présente les transducteurs fabriqués. L'élément piézoélectrique est pris entre deux électrodes Ag/Pd permettant de faire le contact électrique. 5 couches

de $20\mu\text{m}$ soit $100\mu\text{m}$ de PZT sont alors déposées sur une surface circulaire de 1 cm de diamètre. Après chaque couche, une étape de nivelage de 10 minutes est réalisée suivie d'un séchage au four à $150\text{ }^\circ\text{C}$ pendant 10 minutes. A la fin du processus, un recuit à $850\text{ }^\circ\text{C}$ pendant 15 minutes est nécessaire pour éliminer les liants organiques et fritter le matériau.

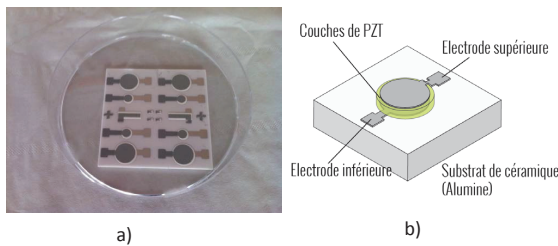


FIGURE 3 – a) Photo des transducteurs sérigraphiés, b) Schéma des transducteurs

2.3 Polarisation

Après leurs fabrications, les transducteurs présentent des moments dipolaires répartis de manière aléatoire provoquant ainsi des effets piézoélectriques non observables au niveau macroscopique. Une étape de polarisation est alors nécessaire pour orienter les moments dipolaires suivant une direction privilégiée. Pour ce faire, le composant est placé sur une plaque chauffante et soumis à un champ électrique (Figure 4).

Une première étape consiste à élever la température jusqu'à $200\text{ }^\circ\text{C}$, puis une différence de potentiel de 200 V est appliquée (soit un champ électrique 2 kV/mm) pendant 20 minutes. Après cette période de 20 minutes, le banc est refroidi à une température de $30\text{ }^\circ\text{C}$ et c'est après avoir atteint un équilibre thermique, que la tension est retirée laissant ainsi une polarisation rémanente. Le matériau est alors fonctionnel et peut-être caractérisé.

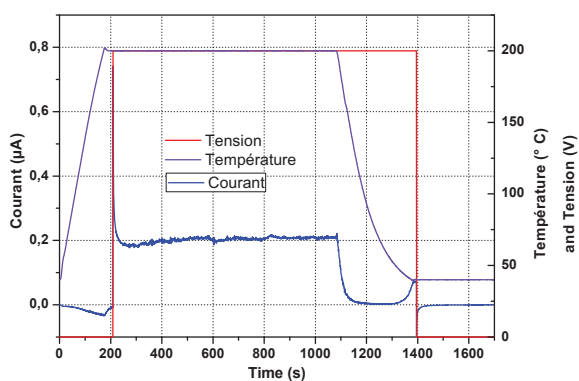


FIGURE 4 – Graphique montrant les étapes de polarisation des éléments piézoélectriques

3 Caractérisation des transducteurs

3.1 Rappel théorique

Les grandeurs mécaniques et électriques des éléments sont reliées par les formes tensorielles suivantes [4] :

$$D = \varepsilon^T E + dT \quad (3)$$

$$S = S^E T + d^t E \quad (4)$$

D représente le déplacement électrique, S la déformation élastique relative, E le champs électrique T la contrainte mécanique et ε la permittivité électrique. Le terme qui est intéressant est le coefficient d traduisant la proportionnalité entre la charge électrique et la contrainte mécanique à champ électrique constant ou nul. Elle est exprimée en pC/N . Plus particulièrement, le coefficient d_{33} qui traduit la transformation électro-mécanique sur la contrainte appliquée.

3.2 Analyse des paramètres électriques

Les paramètres électriques peuvent être mesurés avec différents systèmes. Par exemple on peut relever, à l'aide d'un piézomètre, la capacité du transducteur, les pertes tangentielles ainsi que le coefficient d_{33} . Les mesures sont réalisées à la fréquence de 110 Hz . Nous avons trouvé une valeur pour $d_{33} = 130pC/N$, pour $\tan\delta = 1.5\%$ et pour $C = 1600pF$. Les valeurs de d_{33} correspondent à celles de l'état de l'art [5]. Néanmoins en optimisant certaines phases de fabrication et de polarisation, nous pensons pouvoir améliorer ces caractéristiques.

3.3 Analyse spectrale

Une étude spectrale a été réalisée avec un analyseur de spectre (figure 5). Deux fréquences de résonance ont été identifiées à 4.2 MHz et 8.2 MHz . Ces fréquences de résonance ne correspondent pas uniquement à l'épaisseur à la couche de PZT, mais à tout l'empilement réalisé. Des modèles peuvent être alors mis en place permettant de comprendre l'influence de chaque couche de l'empilement sur les fréquences de résonance [6]. Cette technique est difficilement applicable ici de part la non planéité des dépôts.

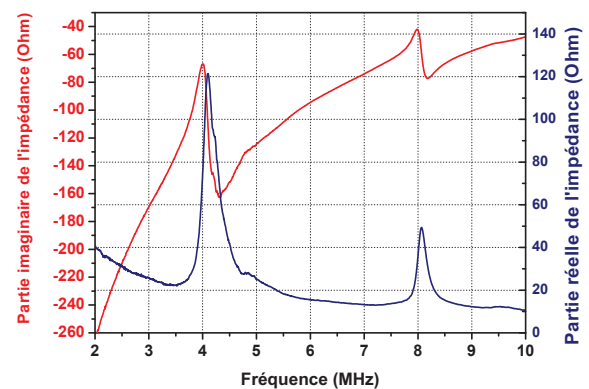


FIGURE 5 – Analyse des fréquences de résonance des transducteurs

3.4 Analyse morphologique

Une analyse au microscope à balayage électronique est effectuée permettant de voir comment se sont déroulés les dépôts et de visualiser des grains permettant ainsi d'analyser sur la qualité du matériau (Figure 6). La formation de cavités d'air dans les couches de PZT peut amener au claquage du composant lors de l'augmentation du champ électrique pendant la polarisation, mais aussi à l'augmentation des

perles tangentielles, une diminution du d_{33} , et à des émissions d'ondes dégradées. Comme on peut le voir sur la figure 6-b, des micro-cavités d'air sont observées, ceci pourrait être amélioré par une étape de densification (presse isostatique).

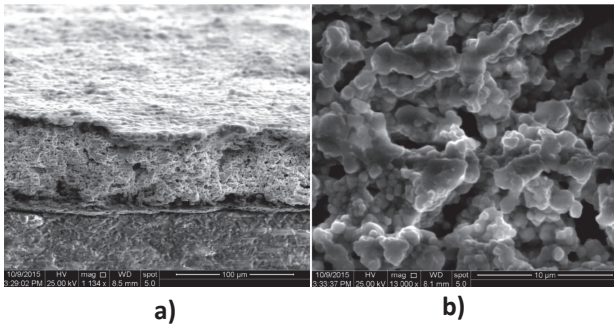


FIGURE 6 – a) Analyse au MEB des différentes couches du transducteur ; b) Analyse des grains du PZT

4 Mesures de polluants

4.1 Le banc expérimental

La figure 7 montre un banc expérimental permettant de faire la mesure du temps de vol en transmission dans différents liquides. Deux transducteurs piézoélectriques sont collés à une cuve en verre d'épaisseur 10 mm. Le collage des éléments pour ce prototype est effectué avec un gel coupleur afin d'adapter l'impédance acoustique. L'un des transducteurs sert d'émetteur d'ondes sonores, l'autre de récepteur. L'émetteur et le récepteur sont liés à un générateur

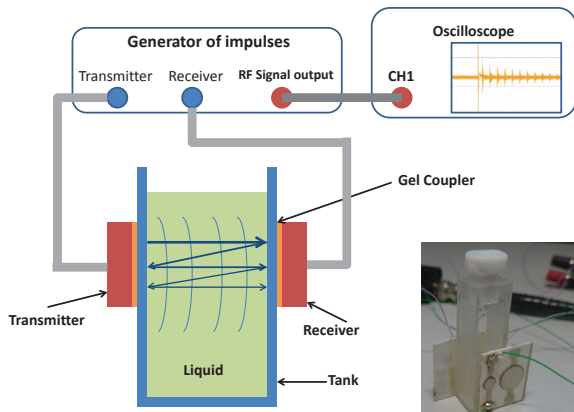


FIGURE 7 – Schéma du banc expérimental et photo du prototype

d'impulsions d'une tension pic de 120 V et d'une durée de 5 ns. Les signaux sont visualisés sur un oscilloscope permettant l'analyse temporelle des échos (Figure 8).

Le décalage temporel visualisé sur la figure montre une différence de vitesse ultrasonore entre les solutions. L'élargissement des échos est lié à l'apparition d'ondes stationnaires induites par les parois de la cuve.

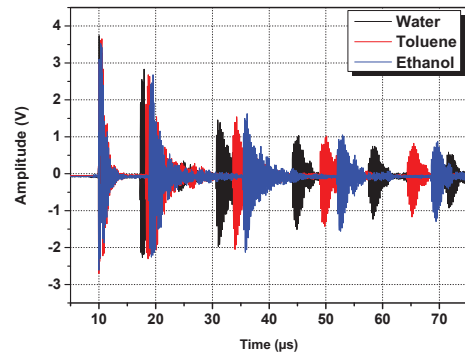


FIGURE 8 – Étude de la propagation des ondes dans différents liquides

4.2 Méthode temporelle pour la mesure de la vitesse ultrasonore

La méthode consiste à mesurer dans un premier temps la vitesse dans un liquide connu, V_0 tel que l'eau [7] déterminant ainsi la vitesse de référence. Il suffit alors de mesurer le décalage temporel Δ_t entre la solution à tester et la solution de référence (un exemple est donné sur la figure 9). La mesure de Δ_t nous permet de calculer la vitesse ultrasonore par la relation suivante :

$$V_{\text{solution}} = \frac{V_0}{1 - \frac{\Delta_t \times V_0}{e}} \quad (5)$$

e correspond à l'épaisseur de la cuve.

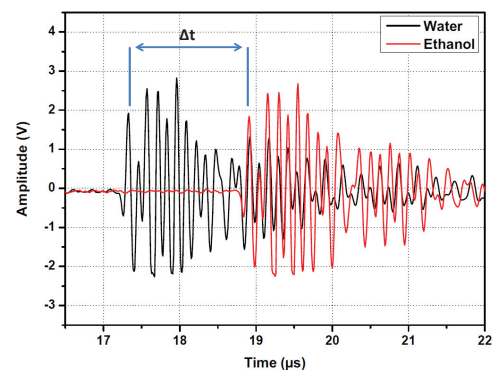


FIGURE 9 – Mesure du décalage temporel

4.3 Méthode fréquentielle pour la mesure de la vitesse ultrasonore

La méthode consiste à effectuer une transformée de Fourier des échos, un exemple est donné sur la figure 10. On retrouve les résonances de l'empilement à 4.2 MHz et 8.2 MHz. D'autres pics de résonances apparaissent autour de 5 MHz et 7.5 MHz ; ils correspondent à la traversée des ondes dans les parois de verre. Puis sur tout le spectre, on peut apercevoir une succession de pics de résonances (zoom figure 10) qui sont caractéristiques de la solution. Dans ce cas l'écart entre deux pics consécutifs donne la vitesse ultrasonore par la relation :

$$V = \Delta_f \times 2e \quad (6)$$

Une technique complémentaire peut être utilisée, elle consiste à réaliser une transformée de Fourier inverse après

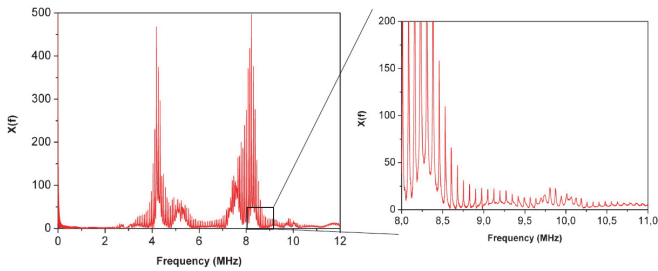


FIGURE 10 – Analyse fréquentiel de l'écho dans de l'eau

filtrage des spectres précédemment obtenus. Ceci, nous ramène à une étude temporelle, la vitesse ultrasonore est déduite de la position des pics obtenus, représentatifs du trajet des ondes dans la solution. Un exemple est donné sur la figure 11, à partir du pic T_1 , nous pouvons en déduire la vitesse par la relation :

$$V = \frac{2e}{T_1} \tag{7}$$

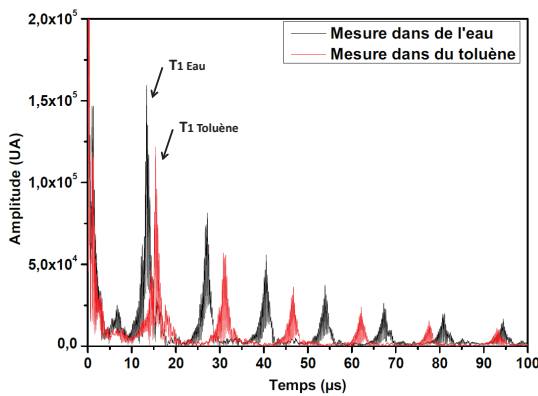


FIGURE 11 – Exemple de traitement par transformée inverse de Fourier dans différents liquides

4.4 Test dans de l'éthanol

Les deux méthodes de mesures de la vitesse ont été testées dans de l'eau et dans différentes solutions eau-éthanol. La figure 12 montre que les deux méthodes donnent des résultats semblables en accord avec les résultats publiés par Giacomini [8].

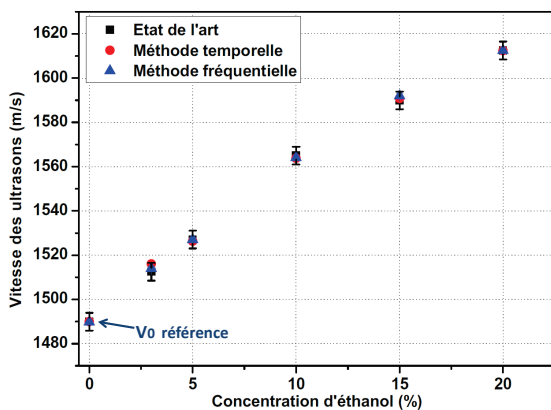


FIGURE 12 – Analyse de la vitesse des ultrasons en fonction de la concentration d'éthanol

4.5 Étude de la dispersion des mesures

Une étude statistique a été réalisée afin de caractériser la dispersion des mesures. Pour cela, une série de 30 mesures a été effectuée dans une solution composée de 30 % d'éthanol et 70 % d'eau à une température de 22 °C. La figure 13 présente l'histogramme des résultats. L'ajustement gaussien nous permet d'extraire une valeur de l'écart-type de 0.67 m/s. En se basant sur une incertitude de type 3σ , nous atteignons une précision de mesure de moins de 1% en laboratoire.

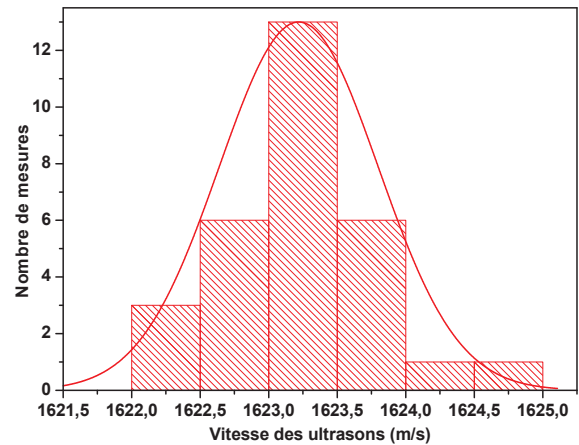


FIGURE 13 – Histogramme représentant 30 mesures dans une solution de 30 % d'éthanol et 70 % d'eau

4.6 Détermination de la vitesse ultrasonore dans le cas des liquides non miscibles à l'eau

L'étude précédente était une étude des ondes en transmission, applicable à des liquides miscibles. Dans le cas des liquides non miscibles à l'eau, une étude en réflexion est proposée. Pour cela, un transducteur est placé sous un bêcher contenant de l'eau et un liquide en suspension (toluène), le transducteur va émettre des ondes qui vont réfléchir à la surface de la solution. La figure 14 montre les résultats obtenus dans différentes solutions eau-toluène.

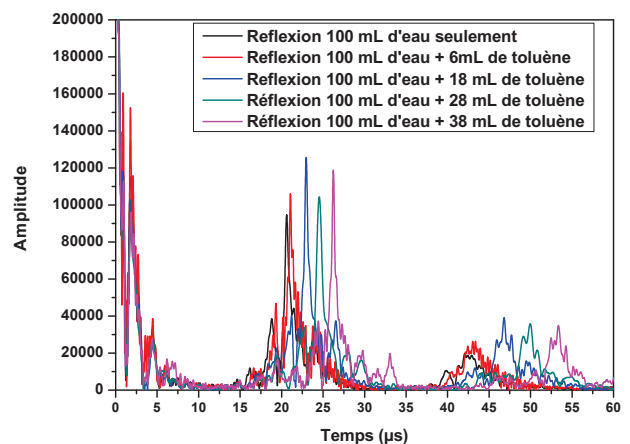


FIGURE 14 – Exemple de traitement par transformée inverse de Fourier dans différentes solutions eau-toluène

5 Intégration du système

5.1 Adaptation du système sur une carte électronique

Les transducteurs ont été connectés à un module électronique Texas Instrument (TDC1000-TDC7200). Ce module permet de fournir des impulsions électriques sur les transducteurs afin d'émettre des ondes et d'en mesurer le temps de vol. Le système peut travailler en transmission comme en réflexion. Après avoir paramétré la carte électronique (horloge, seuil de déclenchement, ...), des mesures d'étalonnage de ce système ont été réalisées dans de l'eau et des solutions eau-éthanol. Un exemple de mesure d'échos dans de l'eau est présenté sur la figure 15.

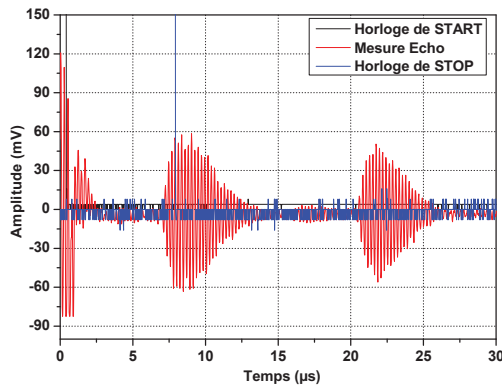


FIGURE 15 – Analyse des échos mesurés par la carte électronique et dans la cuve de 10 mm

La figure 16 compare les résultats de mesure de la vitesse ultrasonore (méthode temporelle), obtenus par le banc expérimental d'une part et le système intégré basé sur le module Texas Instrument d'autre part. L'écart entre les deux systèmes est relatif à un décalage du déclenchement stop de la carte électronique comme on peut le voir sur la figure 15.

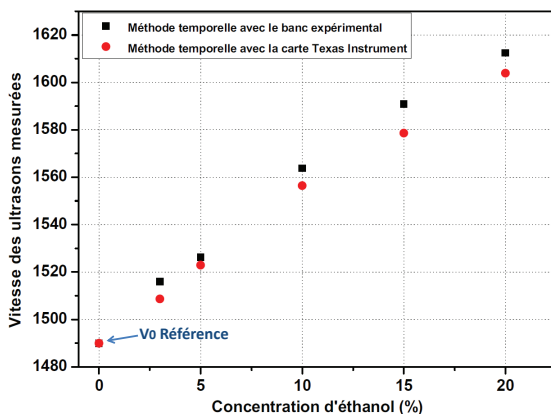


FIGURE 16 – Étude de la vitesse des ultrasons dans différentes solutions eau-éthanol par la méthode temporelle.

5.2 Étude de l'épaisseur de la cavité

Des analyses ont été faites en diminuant la cavité contenant le liquide d'étude. Cette cavité a été construite avec 4 lames de microscope, les transducteurs ont été collés

autour (Figure 17). L'épaisseur de cette nouvelle cavité est 3 mm.

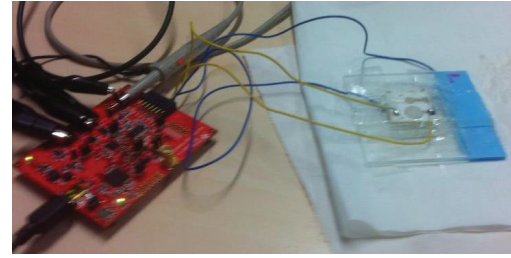


FIGURE 17 – Cavité de 3 mm et module Texas Instrument

La figure 18 présente les échos obtenus avec le système de mesure intégré (carte Texas Instrument) dans de l'eau.

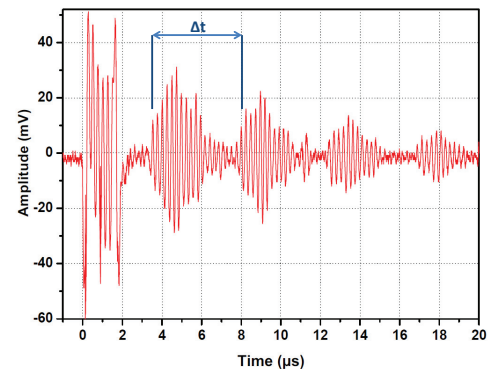


FIGURE 18 – Analyse des échos dans une cavité de 3 mm

Nous avons mesuré un décalage temporel entre deux échos successifs dans de l'eau, $\Delta T = 4.13 \mu s$, la vitesse mesurée est alors de $1452 m/s$. Cette valeur est légèrement différente de la référence mesurée dans l'eau. Ceci est dû à de l'impact du gel coupleur et des parois de verre des lames. Néanmoins ce décalage pourra être compensé à un étalonnage adapté.

6 Conclusion et perspectives

Dans ce papier, nous avons présenté toutes les étapes permettant la réalisation de transducteurs acoustiques à base de PZT en vue de faire de la détection de polluants. Nous avons ensuite caractérisé ces transducteurs afin d'étudier les propriétés piézoélectriques. Ensuite, nous avons mis en place un banc de test permettant de valider le principe de mesure du temps de vol dans différents liquides. L'utilisation du module Texas Instrument (TDC1000-TDC7200) nous a permis d'adapter les transducteurs à un système électronique intégrable et à faible coût pouvant répondre aux objectifs économiques du projet. Reste en suspens la prise en compte des conditions réelles d'utilisation, milieu hostile, de ces systèmes intégrés. Pour répondre à cette contrainte, nous envisageons une intégration en technologie LTCC (Low Temperature Cofired Ceramic). La technologie LTCC est un procédé multi-couches consistant à empiler des plaques de céramiques, préalablement munis de motifs conducteurs, résistances, capacités et de trous métalliques (vias) pour les connexion entre plaques. Après laminage, elles subissent un traitement thermique sous atmosphère permettant de créer un système robuste et compact contenant les transducteurs. A

la fin du processus, le routage et la soudure des composants sont réalisés. L'objectif final de notre projet sera d'intégrer les transducteurs acoustiques mais aussi un capteur de température directement dans les feuilles de céramiques. Le système électronique se positionnant au dessus du boîtier.

Remerciements

Les auteurs tiennent à remercier **Montpellier Méditerranée Métropole** pour son support financier.

Références

- [1] J.R. Emery, M. Tabellout. Mesure de l'atténuation et de la vitesse de propagation ultrasonore par une technique spectroscopique. *Revue de Physique Appliquée*, 1990, 25 (2), p.243-251.
- [2] D.Lapeine, F.Very, D.Laux, J-Y. Ferrandis, B.Charlot, F.Pascal, A.Giani, P.Combette, Fabrication, Characterization and Test of acoustic sensors for detection of pollutants in aquatic environments, 2015 Symposium on Design Test Integration and Packaging of MEMS and MOEMS. 10.1109/DTIP.2015.7161021.
- [3] W. Walter, P. Delobelle, P. Le Moal, E. Joseph, M. Collet, A piezo-mechanical characterization of PZT thick films screen-printed on alumina substrate, *Sensors and Actuators A : Physical* 96 2–3 (2002) p.157-166
- [4] W. Cook B. Jaffe and H. Jaffe. *Piezoelectric ceramics*. London : Academic Press, 1971. p.317.
- [5] L. Simon, S. Le Dren, P. Gonnard, PZT and PT screen-printed thick films, *Journal of the European Ceramic Society*, Volume 21, Issues 10–11, 2001, Pages 1441–1444
- [6] M.Brissaud. *Matériaux piézoélectriques. Caractérisation, modélisation et vibration*. [ed.] Presses Polytechniques et Universitaires Romandes (PPUR). 2007.
- [7] A.Briggs, O.Kolosov, *Acoustic Microscopy*, Second Edition, University Press, Oxford, 2010.
- [8] A. Giacomini, *Ultrasonic Velocity in Ethanol-Water Mixtures*, Istituto Nazionale di Electroacustica, Rome, Italy, *The Journal of the Acoustical Society of America*, Volume 19, Number 4, July 1947.