

## CFA/VISHNO 2016

**Composites particulaires métalliques pour la réalisation de dos de sondes ultrasonores dédiées aux mesures non destructives en milieux hostiles**

R. Boubenia<sup>a</sup>, E. Rosenkrantz<sup>a</sup>, F. Despetis<sup>b</sup>, P. Combette<sup>a</sup> et J.Y. Ferrandis<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Univ. Montpellier, IES, UMR 5214/ CNRS, IES, UMR 5214, Campus St Priest, Bat 5, 860 Rue Saint Priest, CC 05 003, 34095 Montpellier, France

<sup>b</sup>Univ. Montpellier, L2C, UMR 5221/ CNRS, L2C, UMR 5221, Place Eugène Bataillon - CC069, 34095 Montpellier, France  
redha.boubenia@ies.univ-montp2.fr



LE MANS

Dans le domaine des mesures UltraSonores (US) en milieux hostiles, il existe un besoin de sondes acoustiques capables de fonctionner en continu à des températures pouvant atteindre les 700°C. Actuellement, aucune sonde commerciale ne répond à ce besoin. L'objectif du travail se focalise en partie sur la réalisation et la caractérisation d'une partie primordiale de la sonde ultrasonore : la face arrière (dos des sondes ou backing).

La réalisation de sondes US dédiées aux mesures non destructives en milieux hostiles impose de trouver des matériaux et des procédés de fabrication et d'assemblage adéquats. Les dos sont généralement réalisés par l'adjonction de poudre métallique dans une matrice de polymère. Cette dernière limite le fonctionnement en température. Une des solutions envisagée est d'utiliser des composites particuliers obtenus à partir de poudres métalliques pressées uni-axialement à chaud. Ce type de matériaux étant intrinsèquement résistant aux températures élevées.

Pour établir le protocole de fabrication, on a réalisé la matrice avec de l'étain (pour sa grande ductilité) et les diffuseurs avec des inclusions de tungstène. Nous avons étudié l'influence de la température, de la force de pressage et son temps de maintien, sur la densification et la tenue mécanique de pastilles d'étain pur. Les matériaux composites sont caractérisés par spectroscopie ultrasonore. La fraction volumique et le diamètre des sphères de tungstène permettent de contrôler finement les propriétés acoustiques. La réalisation de dos à partir d'étain a montré la possibilité d'utiliser des composites particuliers métallique comme dos de sondes US dédiées aux mesures à haute température. L'utilisation d'autres métaux comme le nickel permettra d'augmenter la température d'utilisation limitée dans le cadre de l'étain à 230 °C.

## 1 Introduction

Actuellement, il n'existe pas des transducteurs acoustiques capables de fonctionner en permanence à des températures allant jusqu'à 700 ° C. Cependant, le besoin est réel dans de nombreux secteurs industriels (nucléaire, pétrolier, ...). L'Institut d'Electronique et des Systèmes (IES) de Montpellier travaille depuis de nombreuses années, sur le développement d'instrumentation acoustique en milieu hostile (haute température, sous flux neutronique).

La réalisation de transducteurs ultrasonores consacrés à la mesure non-destructive dans des environnements hostiles, exige de trouver des matériaux, des procédés de fabrication et d'assemblage adéquats. Les transducteurs ultrasonores sont composés de 3 éléments: un élément actif tel qu'un élément piézoélectrique, une couche d'adaptation sur la face avant, afin d'injecter un maximum de puissance acoustique dans le matériau étudié, et enfin, un dos. Le dos permet de contrôler la bande passante, la résolution temporelle et la sensibilité du capteur. Pour augmenter la largeur de bande, l'impédance acoustique  $Z$  du dos (qui est le produit de la vitesse du son par la densité) doit être égale à celle de l'élément actif, de plus le dos doit être fortement atténuant.

Les dos sont des composites particuliers réalisés par l'adjonction de diffuseurs avec une haute impédance acoustique dispersés dans une matrice avec une faible impédance acoustique. La quantité et le diamètre des diffuseurs contrôlent l'impédance acoustique, la vitesse et l'atténuation du dos.

Les dos tungstène/époxy sont les plus utilisés dans le domaine industriel. Ce mélange permet d'avoir des impédances acoustiques allant de 0.1 MRayls à 100 MRayls en fonction de la fraction volumique de tungstène introduite [1-2].

Toutefois, les dos à base de polymères, ne sont pas prévus pour être utilisés à des températures pouvant atteindre les 700°C. C'est pourquoi nous envisageons de réaliser des dos à partir de composites métalliques.

Pour obtenir un protocole de fabrication, nous avons débuté par l'étude des composites étain/tungstène. L'étain étant très ductile, il nous permettra de travailler à des températures et des pressions de pressage modérées. De plus, le protocole de fabrication utilisé pour la réalisation de

dos ayant une matrice en étain, peut être applicable à d'autres métaux ductiles ayant une plus grande température de fusion (zinc, cuivre). L'étude réalisée par Sayers [2] sur les composites métalliques sont purement théorique. Dans l'étude [3], l'auteur ne donne pas les résultats sur les atténuations et les densités. Ainsi, nous commencerons par faire une étude sur la densification des pastilles d'étain en fonction de la température et de la force de pressage puis, nous énoncerons le procédé de fabrication et la méthode de caractérisation des dos.

Trois dos seront réalisés et caractérisés. Nous présenterons pour chaque dos la vitesse de phase et l'atténuation acoustique en fonction de la fraction volumique de diffuseur.

## 2 Partie expérimentale

### 2.1 Réalisation des pastilles d'étain.

Les pastilles d'étain ont été réalisées à partir d'étain blanc à 99.5% de pureté, les particules ayant un diamètre moyen de 149 $\mu$ m (140-200  $\mu$ m) et une densité de 7.29g/cm<sup>3</sup>. Pour déterminer les conditions qui nous permettent d'avoir des échantillons avec une bonne tenue mécanique et une densité relative proche de celle de l'étain pur, nous avons étudié l'influence de la pression, de la température et de la vitesse de pressage sur les propriétés finales (densité relative et tenue mécanique) des pastilles d'étain.

Les pastilles d'étain et les dos ont été réalisés par pressage uni-axial à chaud [figure 1].

La presse utilisée est une presse uni-axiale de 250kN de charge maximale. Cette dernière est asservie en force grâce au logiciel Instron.

Un filament chauffant enroulé autour de la matrice [figure 1] assure la calorification de la matrice. La température est régulée à l'aide d'un PID. Un thermocouple permet la mesure de la température de consigne. Il est inséré dans un trou rempli de graisse thermique percé dans la matrice afin de mesurer une température sensiblement égale à celle du mélange de poudre. La quantité de poudre voulue est pesée puis introduite dans la matrice et pressée.

Cette quantité est fixée par le dimensionnement final souhaité pour les dos.

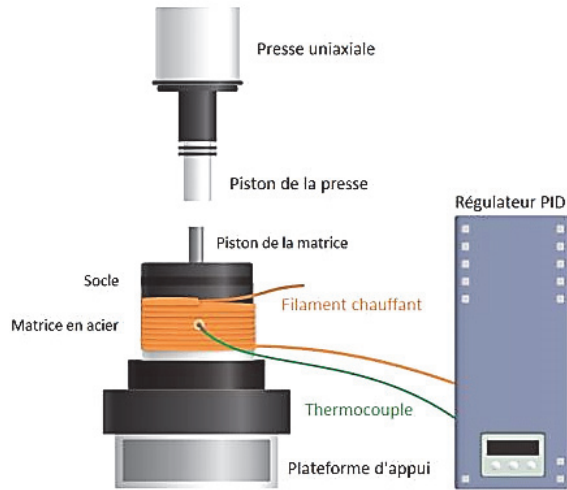


Figure 1: Dispositif de pressage uni-axiale.

Deux types d'essais sont réalisés :

- Deux essais isothermes à différentes vitesses de pressage (0,1mm/min et 1mm/min).
- Trois essais à vitesse de pressage constante et différentes températures de pressage (25°C, 50°C, 100°C).

## 2.2 Influence de la vitesse de pressage sur la densité relative des pastilles

Le pressage est uni-axial, simple action. A cause du fluage de la poudre et des frottements radiaux induit, la vitesse de pressage devient un paramètre important à prendre en considération. Pour ce faire, dans cette étude on presse deux échantillons d'étain à la même température et avec la même force de pressage à des vitesses de pressages différentes (0,1mm/min et 1mm/min).

On observe que pour les deux vitesses de pressages l'évolution de la densité relative en % en fonction de la force de pressage est la même [figure 3]. On peut donc conclure que la vitesse de pressage n'a pas d'influence sur la densification des échantillons d'étain pur. Cependant l'échantillon pressé à 1 mm/min présente une mauvaise tenue mécanique et se casse au démoulage [figure 2].



Figure 2: Pastille d'étain pur après démoulage. Les vitesses de pressage sont respectivement de 1mm/min à gauche et 0,1mm/min à droite.

Cette première étude montre qu'il est préférable de presser à 0,1mm/min pour avoir des échantillons qui ayant une bonne tenue mécanique peuvent être caractérisés par la suite.

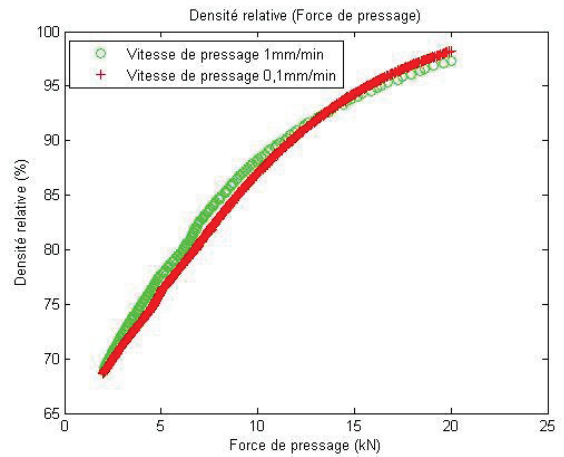


Figure 3 : Influence de la vitesse de pressage sur la densité relative des échantillons. Essais réalisés à température ambiante.

## 2.3 Influence de la température de pressage sur la densification des échantillons.

Quelques travaux montrent la dépendance de la densification sur la réalisation d'échantillon métallique [4-5].

Cependant les auteurs utilisent des presses isostatiques. Trois pastilles d'étain sont réalisées à différente température (25°C, 50°C, 100°C).

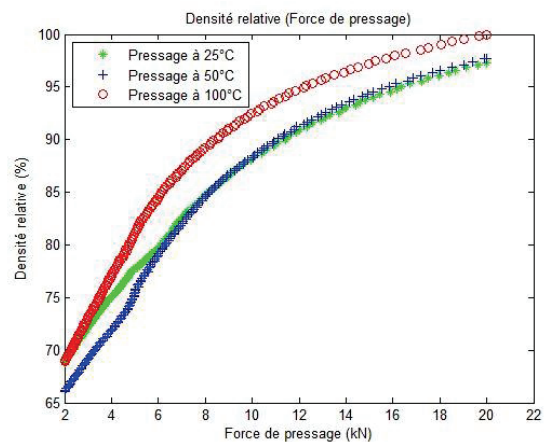


Figure 4 : Influence de la température sur la densité relative des échantillons. Essais réalisés à vitesse de pressage constante.

La figure 4 montre la dépendance de la densité relative en % en fonction de la force de pressage en kN. On observe une différence entre un pressage à température ambiante et un pressage à 100°C. La densité relative croit plus vite lors du pressage à 100°C et atteint les 99,9%. Il n'existe pas de différence entre le pressage à température ambiante et le pressage à 50°C.

Cependant il est préférable de presser à température ambiante car à cette température il n'existe pas de phénomène de délamination. En effet, l'étain étant ductile à haute température les frictions radiales augmente, ce qui provoque des différences de compaction et donc augmente le phénomène de délamination. Le protocole de fabrication suivant a été retenu:

1. Mise en forme à 20kN à température ambiante,
2. démoulage de l'échantillon qui est retourné puis pressé à nouveau à 20kN,
3. recuit à 100°C après démoulage.

Cette étude sur les pastilles d'étain, nous a permis de déterminer la pression, la température et la vitesse de pressage pour la réalisation des dos étain/tungstène.

### 3 Réalisation et caractérisation de dos de transducteur

#### 3.1 Réalisation de dos étain/tungstène

Les dos ayant des particules de tungstène (140-200 micromètres de diamètre) sont réalisés suivant le protocole retenu pour la réalisation de pastille d'étain pur :

#### 3.2 Estimation de la vitesse de phase et de l'atténuation

La méthode utilisée pour la caractérisation des dos, est la spectroscopie acoustique utilisant la méthode d'insertion/substitution [6]. Elle se compose de deux mesures, une de référence à travers un fluide et une à travers le matériau étudié. Cette méthode nécessite de connaître l'épaisseur " $d$ " et la masse volumique " $\rho_{ech}$ " du matériau soumis à la mesure ; ainsi que la température, la masse volumique " $\rho_w$ " et la vitesse du son " $c_w$ " de l'eau au cours de l'expérience.

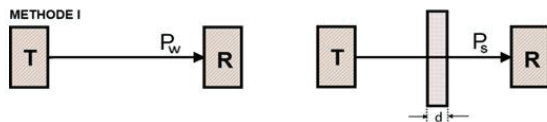


Figure 5: Principe de mesure.

### 4 Résultats et discussions

Pour la caractérisation des dos on utilise un couple de capteurs plan de 5MHz de fréquence centrale recouvrant la gamme fréquentielle 4MHz à 6MHz. Un générateur d'impulsion Olympus 5052 PR et un oscilloscope tektronik. La fréquence d'échantillonnage est de 1GHz. Les caractéristiques des trois dos est :

Tableau 1: Densités théoriques et expérimentales de 3 dos avec différentes fractions volumiques de tungstène.

	Densités théoriques [g/cm <sup>3</sup> ]	Densités expérimentales [g/cm <sup>3</sup> ]
Dos 1 (5%W)	7.91	7.76
Dos 2 (15%W)	9.11	8.98
Dos 3 (30%W)	10.91	10.77

Pour chaque échantillon, on réalise une mesure de référence et une mesure à travers l'échantillon. La vitesse

de phase et l'atténuation sont respectivement déduites de la phase et l'amplitude de la fonction de transfert.

Les figures 6, 7 compare les données expérimentales aux données théoriques des vitesses de phase et des atténuations en fonction de la fréquence de trois échantillons (5%W, 15%W et 30%W).

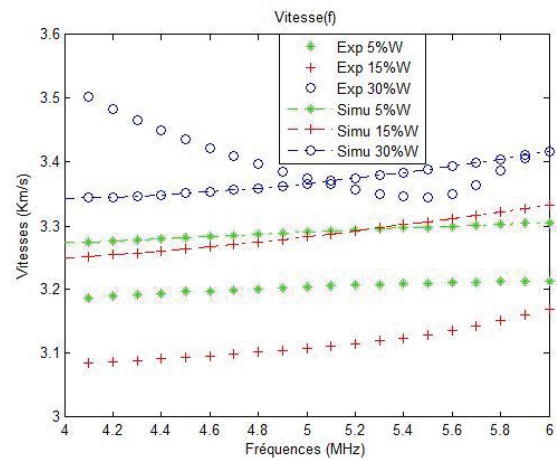


Figure 6 : Confrontation des données expérimentales et théoriques de vitesse de phase de 3 dos ayant des fractions volumiques de tungstène différentes (5%, 15%, 30%) sur la gamme fréquentielle 4 à 6MHz.

On constate que plus la fraction volumique de tungstène augmente plus la vitesse de phase augmente. Cependant le dos ayant une fraction volumique de tungstène de 30% a une vitesse de phase inférieure aux deux autres échantillons, ce qui est en accord avec la théorie [1-7]. L'erreur relative moyenne entre les valeurs expérimentales et les valeurs théoriques pour chaque dos est la suivante :

Tableau 2: Différence relative moyenne de la vitesse

	Différence relative moyenne [%]
Dos_1 (5%W)	2.94
Dos_2 (15%W)	4.20
Dos_3 (30%W)	2.22

Bien que la courbe théorique ne semble pas correctement ajustée aux données expérimentales, la différence relative est assez faible. La différence relative est plus importante pour le dos ayant une fraction volumique de tungstène de 15% est probablement due à une quantité de porosité plus importante que les deux autres dos.

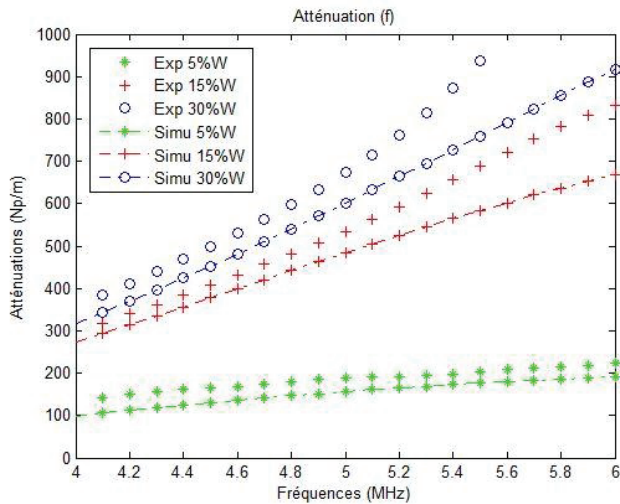


Figure 7 : Confrontation des données expérimentales et théoriques d'atténuation de 3 dos ayant des fractions volumiques de tungstène différentes (5%, 15%, 30%) sur la gamme fréquentielle 4 à 6 MHz.

En ce qui concerne le coefficient d'atténuation représenté sur la figure 7, on constate que plus la fraction volumique de tungstène augmente, plus l'atténuation augmente. Les différences relatives moyennes entre les mesures théoriques et les mesures expérimentales sont :

Tableau 3 : Différence relative moyenne de l'atténuation.

	Différence relative moyenne [%]
Dos_1 (5%W)	17.63
Dos_2 (15%W)	13.57
Dos_3 (30%W)	8.57

Les différences entre la simulation et l'expérience sont plus importantes pour l'atténuation que pour la vitesse de phase. Ces différences peuvent être dues à plusieurs paramètres : La présence d'une porosité qui réduit la valeur de la vitesse de phase dans la matrice.

Le diamètre expérimental du diffuseur est compris entre 140 et 200  $\mu\text{m}$ , alors que la simulation a été réalisée avec un seul diamètre de 170  $\mu\text{m}$  (moyenne de 140-200  $\mu\text{m}$ ).

En effet, lors de la simulation on a observé que les valeurs des coefficients d'atténuation changent avec les valeurs théoriques du diamètre des particules [figure 8].

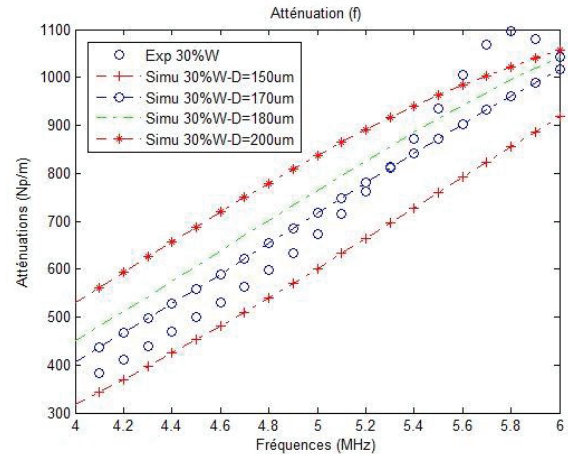


Figure 8 : Atténuation de dos ayant des tailles de diffuseurs (tungstène) différentes sur la gamme fréquentielle 4 à 6 MHz.

La simulation ne prend pas en compte l'atténuation dans la matrice d'étain qui réduit le coefficient d'atténuation du support. Il est constaté une différence relative moyenne importante 17,63 % pour l'atténuation dans le dos\_1 (5% W). En effet, le dos\_1 a la plus faible fraction volumique de tungstène. L'atténuation du dos 1 est proche de l'atténuation de la matrice d'étain et dans ce cas on ne peut pas négliger l'atténuation de la matrice d'étain. Pour la dos 3 (30 % W) la différence relative moyenne pour l'atténuation est de 8,57 %. Ce résultat est justifié par la forte concentration de tungstène et dans ce cas on peut négliger l'atténuation dans la matrice d'étain, car l'atténuation est une conséquence de la diffusion sur un obstacle sphérique (tungstène).

## 5 Conclusion

Nous avons étudié l'influence de la vitesse et de la température de pressage sur la fabrication de pastilles d'étain pur qui nous a permis d'en déduire un protocole. Il a été montré que, bien que la vitesse de pressage ne semble pas modifier la densification, il est important de presser lentement pour avoir une bonne résistance mécanique. Le métal est plus ductile à 100°C et le taux de densification importants sont atteints plus rapidement. Pourtant, il est préférable de presser à température ambiante et de recuire par la suite à 100°C après avoir pressé. Ceci réduit considérablement le délaminage.

La réalisation de supports par pressage uni-axial avec de la poudre permet d'augmenter la taille des particules et la fraction volumique du tungstène, parce qu'il n'y a pas de sédimentation. Nous avons réalisé plusieurs échantillons et par la suite nous les avons caractérisés par spectroscopie ultrasonore. Cette étude nous a permis de conclure quant à l'efficacité de la méthode de fabrication.

## Références

- [1] M.G. Grewe and T. R. Gururaja 1989 *IEEE Ultrasonics symposium Vol 173* Acoustic properties of particle/polymer composites for transducer backing applications

- [2] C.M .Sayers and C.E .TAIT 1984 *Ultrasonics*.**Vol 22** .p57-60 Ultrasonic properties of transducer backings
- [3] S. Rokhlin, S.Golan, and Y.Gefen 1981 *J. Acous. Soc. Am* **Vol 69** No 5 Acoustic properties of tungsten-tin composites
- [4] F.B Swinkels, D.S. Wilkinson. E.Arzt and M.F.Ashby 17 April 1983, *Acta metal.* **Vol 31**, No 11 pp 1829-1840 Mechanisms of hot-isostatic pressing
- [5] M.M. Caroll November 86-77 *Metallurgical transaction A*, **Vol 17 A** An Empirical model for hot isostatic pressing of metal powders
- [6] Ping He 3, may 1999 IEEE transactions on ultrasonics, ferroelectrics, and frequency control, **Vol. 46**, no3. Experimental Verification of Models for Determining Dispersion from Attenuation
- [7] D. G. Aggelis, S. V. Tsinopoulos, and D. Polyzos 2004 *J. Acous. Soc. Am.* **Vol 116** P3443-3452 An iterative effective medium approximation (IEMA) for wave dispersion and attenuation predictions in particulate composites, suspensions and emulsions