

ÉTUDE DE LA TRANSMISSION DES ULTRASONS À UNE INTERFACE SOLIDE - SODIUM LIQUIDE EN PRÉSENCE DE GAZ

STUDY OF THE TRANSMISSION OF ULTRASOUND AT A SOLID - LIQUID SODIUM INTERFACE IN THE PRESENCE OF GAS.

K. Paumel^{1,2}, J. Moysan², F. Baqué¹

1. CEA Cadarache, France.
2. LCND - Université de la Méditerranée, France.

Résumé

Pour l'inspection des réacteurs refroidis par du sodium liquide, les ultrasons sont intéressants car ils permettent de s'affranchir de l'opacité du sodium. Toutefois, un bon couplage acoustique entre le transducteur ou la structure à inspecter et le sodium est difficilement obtenu. En effet, la rugosité du solide peut piéger des poches de gaz microscopiques à l'interface avec le sodium liquide. Ce type d'interface, appelée interface composite, réduit fortement la transmission ultrasonore. Des mesures de la transmission à des interfaces composites ont été réalisées dans le domaine de Rayleigh. Les expériences en sodium étant très lourdes, l'étude s'est appuyée sur une expérience équivalente dans l'eau utilisant des échantillons en silicium dont la surface rugueuse est contrôlée et hydrophobe. La transmission en fonction de la fraction surfacique de gaz à l'interface a été mesurée avec deux transducteurs identiques large bande. Un modèle quasi-statique a été envisagé pour modéliser le coefficient de transmission.

Abstract

For the inspection of liquid sodium cooled reactors, ultrasonic techniques are interesting since they allow overcoming the opacity of sodium. However, a good acoustic coupling between the transducer or structure to be inspected and sodium is hardly obtained. Indeed, the solid surface roughness may trap microscopic gas pockets at the solid - liquid sodium interface. This type of interface, called composite interface decreases greatly the ultrasonic transmission. Measurements of the transmission at composite interfaces were conducted in the Rayleigh domain. The experiments in sodium being very complex, the study was based on a equivalent experiment in water using silicon substrates whose rough surface is controlled and hydrophobic. The transmission depending on the gas surface fraction at the interface was measured with two identical broadband transducers. A quasi-static model has been considered to model the transmission coefficient.

INTRODUCTION

Pour le développement de la quatrième génération de réacteurs nucléaires, un des caloporteurs envisagés est le sodium. Ce métal liquide, qui est opaque, est utilisé à haute température, jusqu'à 550°C. Ces contraintes compliquent la surveillance continue et les contrôles périodiques du réacteur.

Le contrôle non destructif par ultrasons convient à ce type d'applications. Il peut être utilisé, par exemple, pour localiser les diverses structures immergées en sodium en analysant les échos réfléchis par ces structures. Les techniques ultrasonores requièrent des transducteurs immergeables capables de supporter de hautes températures. De plus, il est essentiel d'obtenir un bon couplage acoustique entre le transducteur et le métal liquide, mais aussi (selon l'application) entre le métal liquide et la structure à inspecter. Le retour d'expérience

du CEA a montré que ce couplage acoustique est difficile à obtenir : les signaux ultrasonores transmis peuvent être faibles et instables. Un couplage acoustique durable peut être obtenu seulement en augmentant la température du métal liquide ou en revêtant la face active du transducteur d'une couche d'or, et ce même pour les développements les plus récents [1].

Les premières études portant sur le mouillage des aciers par les métaux liquides [2,3] ont démontré que le caractère non-mouillant de l'interface métal liquide/acier et la rugosité des surfaces solides provoquent le piégeage de poches de gaz microscopiques à l'interface. La présence conjointe des trois phases solide/liquide/gaz au niveau de cette interface, appelée composite, entraîne une diminution très importante de l'énergie ultrasonore transmise.

Afin d'éviter les contraintes liées à l'utilisation du sodium, une expérience équivalente en eau est menée. Lesueur et al. [4] ont vérifié l'équivalence entre l'eau et le plomb-bismuth, un alliage métallique liquide dont le comportement de mouillage est assez similaire à celui du sodium. Dans cette étude, il s'agit d'étudier l'influence de la fraction surfacique de gaz, présent à l'interface, sur la transmission ultrasonore. Pour cela, des échantillons en silicium sont utilisés de manière à pouvoir contrôler cette fraction surfacique de gaz (par élaboration de surfaces rugueuses modèles) mais aussi afin de réaliser un traitement hydrophobe permettant d'obtenir un système solide-eau non-mouillant. Les résultats obtenus sont issus d'une méthode par comparaison, en prenant pour référence la transmission observée à travers un échantillon comportant une interface purement solide-liquide.

L'expérience est tout d'abord décrite puis les résultats sont présentés et discutés. Une piste de modélisation théorique est ensuite proposée et les difficultés liées à son application sont exposées.

EXPERIENCE

Description des échantillons et de l'interface composite :

Huit échantillons en silicium sont utilisés : un échantillon de référence, lisse (sans rainure) et sept échantillons gravés. Les échantillons utilisés sont des wafers très lisses ($R_a < 1 \text{ nm}$) sur les deux faces et sont gravés uniquement sur une face. La face gravée est une surface rugueuse modèle. Cette rugosité contrôlée est formée d'un réseau régulier de rainures parallèles (Fig.1). Les rainures ont été choisies pour leur facilité d'élaboration. Les rainures sont de forme rectangulaire de largeur $2r = 20 \text{ }\mu\text{m}$ et de profondeur $z = 30 \text{ }\mu\text{m}$. Elles sont espacées d'une distance e différente pour chaque échantillon.

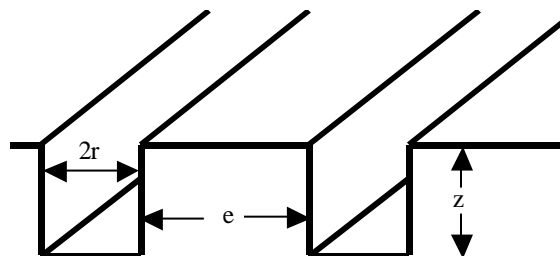


Fig.1: Perspective isométrique de la surface gravée de l'échantillon comportant un réseau régulier de rainures parallèles rectangulaires de largeur $2r$, profondeur z et séparée par une distance e .

Le système eau-silicium étant mouillant, $\theta_Y < 90^\circ$, l'interface eau-silicium est donc non composite. Pour obtenir une interface composite lorsque l'échantillon est immergé dans l'eau, c'est-à-dire que des poches de gaz soient piégées à l'interface, la surface des échantillons doit satisfaire deux conditions principales. Tout d'abord, elle doit être traitée chimiquement de façon à la rendre hydrophobe. Ensuite la largeur des rainures doit être beaucoup plus petite que la longueur capillaire de l'eau. Cette condition est satisfaite

puisque la longueur capillaire de l'eau est d'environ 2 mm à température et pression ambiante.

Dans une première partie, l'expérience sera faite avec les échantillons non traités (interface non composite) afin d'étudier l'influence de la rugosité seule sur la transmission des ultrasons. Dans la deuxième partie, la surface des échantillons est rendue hydrophobe. Dans ce cas, lors de l'immersion d'un échantillon gravé, l'eau ne peut pas pénétrer dans les rainures. En effet, entre les rainures l'interface est purement solide-liquide, mais au niveau des rainures l'eau est séparée du silicium par une poche de gaz.

Dans le cas d'une interface composite, la fraction surfacique d'interface purement solide/liquide τ est définie comme étant le rapport de l'aire de contact purement solide/liquide sur l'aire apparente totale de la surface de l'échantillon. Ainsi, pour l'échantillon de référence, $\tau = 1$. Les valeurs de τ pour tous les échantillons sont données dans le tableau 1. Ces valeurs sont directement liées à l'espacement entre les rainures e .

	e (μm)	τ
Échantillon de référence	-	1
Échantillon E1	200	0,90
Echantillon E2	90	0,82
Echantillon E3	53,33	0,72
Echantillon E4	35	0,64
Echantillon E5	24	0,54
Echantillon E6	16,66	0,45
Echantillon E7	11,42	0,36

Tableau 1: valeurs de e et τ des échantillons.

Fonction de transfert de l'interface :

La comparaison entre la transmission ultrasonore à travers une interface complètement solide-liquide (échantillon de référence) et celle à travers une interface composite est caractérisée par la fonction de transfert de l'interface en mode transmission, FTI_t , définie comme suit :

$$FTI_t = \frac{A(f)}{A_{\text{Ref}}(f)} \quad (1)$$

avec $A(f)$ le module de la transformée de Fourier du signal ultrasonore à la fréquence f transmis à travers l'échantillon étudié et $A_{\text{Ref}}(f)$ celui à travers l'échantillon de référence. FTI_t est déterminé dans la bande passante à -6 dB environ du transducteur émetteur : 0.5–1.3 MHz.

Dispositif expérimental :

Les échantillons sont immergés dans une cuve remplie d'eau à une température de 18°C environ. Ils sont soumis au champ ultrasonore en incidence normale d'un transducteur émetteur (Panametrics V303) de fréquence centrale 1MHz avec la face gravée face au transducteur émetteur. Le signal ultrasonore transmis à travers l'échantillon est enregistré par un transducteur identique à l'émetteur (fig. 2). Les signaux sont des impulsions de fréquence centrale 1MHz. Cette fréquence fait partie de la gamme de fréquences typiques utilisées pour l'inspection ultrasonore des réacteurs.

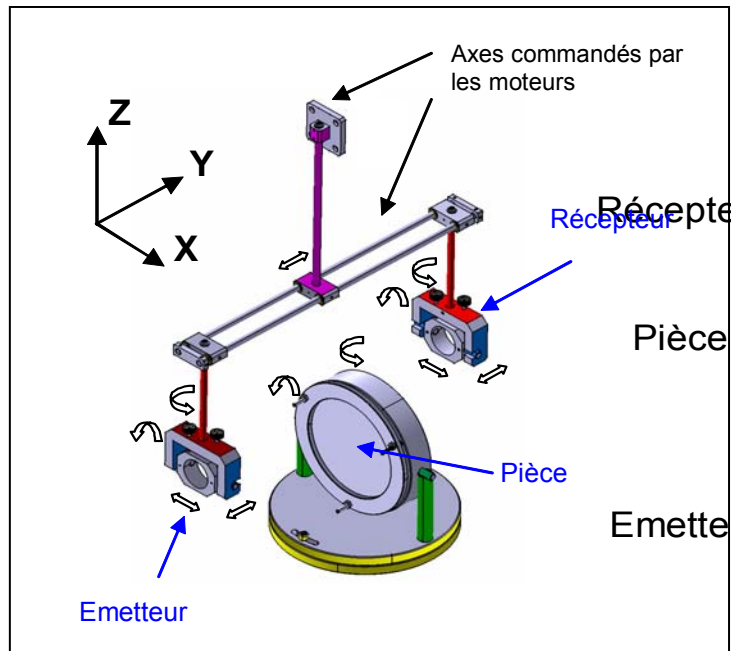


Fig.2 : Schéma du système mécanique (d'après [5]).

Résultats obtenus et discussion :

Les résultats obtenus avec les échantillons non hydrophobes montrent que FTI_t est très proche de 1 voire légèrement plus élevée. L'énergie transmise à travers une surface rugueuse non composite est donc du même ordre que celle transmise à travers une surface lisse. Les dimensions des rainures étant très inférieures à la longueur d'onde, la diffusion de l'onde par la rugosité est donc négligeable. Cet effet qui aurait tendance à rendre FTI_t inférieur à 1 s'oppose à un effet possible de légère "adaptation" de l'impédance due à l'interface rugueuse. En effet, une interface lisse entre le solide et l'eau crée une variation brutale d'impédance à l'interface. En revanche, au niveau de l'interface rugueuse, sur une épaisseur égale à la profondeur des rainures, l'onde "voit" un milieu équivalent fait de solide et d'eau dont l'impédance doit être comprise entre celle du solide et celle de l'eau. La variation d'impédance est donc légèrement moins brutale pour l'interface rugueuse. Les valeurs de FTI_t étant malgré tout très proches de 1, l'influence de la rugosité seule sur la transmission des ultrasons dans ce régime basse fréquence est considérée comme négligeable.

Dans une seconde partie de l'expérience, la surface des échantillons est traitée chimiquement afin de la rendre hydrophobe [6,7]. L'interface est alors composite. La figure 3 montre que pour la bande passante étudiée, 500-1300 kHz, l'évolution de FTI_t est similaire pour chaque échantillon et que les valeurs augmentent lorsque la fréquence augmente. Une légère ondulation des courbes en fonction de la fréquence est observée. De plus, la position relative des courbes est cohérente : plus la proportion d'interface liquide-solide τ est importante, plus FTI_t est élevée. Le principal phénomène observé est la forte diminution de FTI_t quand τ diminue. Par ailleurs, il est rappelé que la faible proportion d'énergie transmise ne peut pas être attribuée à la rugosité seule des substrats gravés.

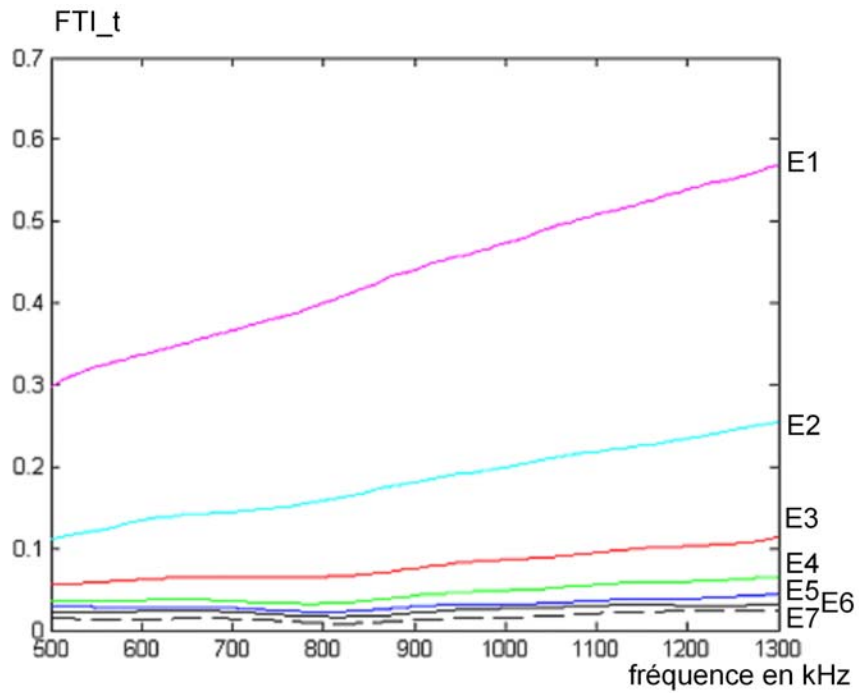


Fig.3 : Valeurs de FTI_t pour les 7 échantillons étudiés de 500 à 1300 kHz.

A partir de la figure 3, l'évolution de FTI_t en fonction de la proportion d'interface liquide-solide τ peut être représentée pour une fréquence donnée, comme le montre la figure 4 pour la fréquence 1 MHz.

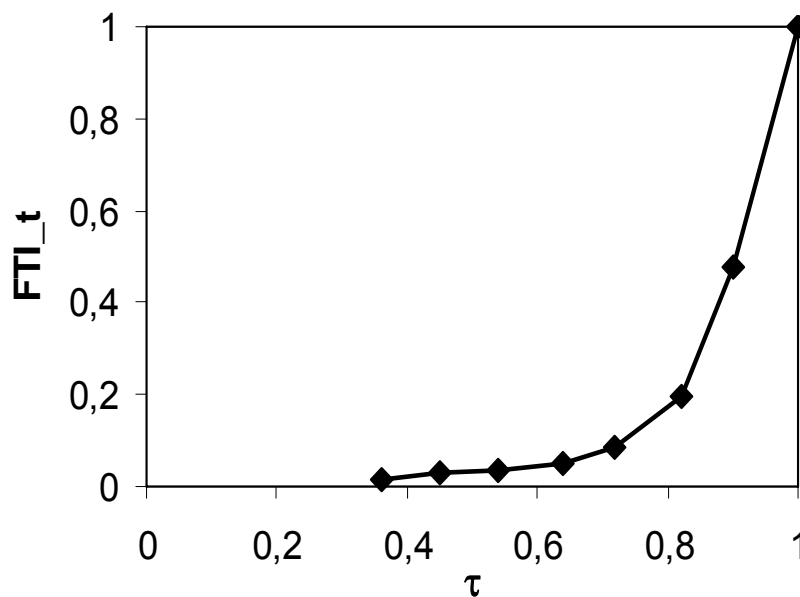


Figure 4 : Evolution de la FTI_t en fonction de τ à 1 MHz

Les résultats obtenus montrent une chute brutale de FTI_t lorsque τ commence à diminuer. Pour des valeurs de τ comprises entre 0,36 et 0,72, l'énergie transmise à travers l'interface est pratiquement négligeable.

Quand une onde incidente atteint une interface entre deux milieux 1 et 2 parfaitement liés (interface non composite), le coefficient de réflexion en pression, R_{12} , est donné par :

$$R_{12} = \frac{Z_2 - Z_1}{Z_1 + Z_2}, \quad (2)$$

où Z_1 et Z_2 sont les impédances caractéristiques respectives des milieux 1 et 2. Il est bien connu qu'à une interface solide-air le coefficient de réflexion est pratiquement égal à 1 et l'onde est presque totalement réfléchi à l'interface.

Une interface composite constitue un cas intermédiaire entre une interface purement solide-liquide et un film de gaz séparant le solide du liquide. Ainsi, l'interaction de l'onde ultrasonore avec l'interface devient plus complexe et le coefficient de réflexion ne plus être calculé en utilisant l'équation (2). Chaque cavité remplie de gaz (ici les rainures) séparant les contacts purement solide-liquide diffusera l'onde incidente et par conséquent, les champs acoustiques transmis et réfléchis seront le résultat de beaucoup d'interactions onde-diffuseur. La nature précise de ces interactions est gouvernée par le rapport de la longueur d'onde ultrasonore sur la taille des diffuseurs dans le plan de l'interface.

Si la longueur d'onde de l'onde ultrasonore est beaucoup plus petite que la taille des rainures alors l'amplitude du signal transmis est proportionnelle à l'aire réelle de contact purement solide-liquide. Ce n'est pas le cas de cette étude comme en témoigne la courbe de la figure 4. En effet, la diminution de FTI_t est beaucoup plus importante que la simple diminution provoquée par la surface réfléchissante que constituent les poches de gaz et qui correspondrait sur la figure 4 à la droite $FTI_t = \tau$.

Si la longueur d'onde est beaucoup plus grande que la taille des diffuseurs (domaine de Rayleigh), alors les proportions d'ondes transmises et réfléchies ne sont plus dépendantes de la forme exacte et de la taille de chaque cavité de gaz mais dépendent plutôt de la raideur de l'interface et dans une moindre mesure de la masse effective et de l'amortissement de l'interface [8]. Dans la partie suivante, cette hypothèse de régime basse fréquence est considérée afin d'envisager l'application d'un modèle quasi-statique.

MODELISATION

Cette étude présente certains points communs avec de nombreux travaux de recherche sur la modélisation de la transmission des ultrasons à une interface de contact partiel. La plupart de ces études utilisent l'approximation quasi-statique pour décrire l'interaction des ultrasons avec des interfaces imparfaites. Le concept de raideur de l'interface pour décrire le contact a été présenté par Tattersall [9]. Celui-ci modélise le contact imparfait comme un ressort distribué le long du plan de l'interface. La description d'interfaces imparfaites intéresse des domaines variés : l'étude des conditions de contact entre deux solides [8,10], la possible non-détection de fissures sous contraintes de compression [11], la liaison de joints adhésifs [12].

Deux surfaces solides rugueuses appuyées l'une contre l'autre sont en contact au niveau des sommets des aspérités. Le modèle quasi-statique à ressorts suppose que la longueur d'onde est beaucoup plus grande que la largeur des espaces entre les aspérités. Dans ce régime basse fréquence, Tattersall a montré que le coefficient de réflexion est alors obtenu à partir de l'expression :

$$|R| = \left| \frac{Z_1 - Z_2 + i\omega(Z_1 Z_2 / K)}{Z_1 + Z_2 + i\omega(Z_1 Z_2 / K)} \right| \quad (3)$$

où K est la raideur par unité d'aire de l'interface et relie la discontinuité de la composante de déplacement à la composante correspondante de la contrainte appliquée, Z_1 et Z_2 sont les impédances acoustiques des deux solides, ω est la fréquence angulaire de l'onde. Quand une compression, σ , est appliquée, les déplacements relatifs de deux points éloignés l'un de l'autre, et sur des côtés opposés de part et d'autre de l'interface, peuvent être écrits comme

la somme du déplacement, Δu_p , qui aurait existé si l'interface avait été "parfaite" (sans aucune discontinuité), plus le déplacement supplémentaire, Δu_i , dû à la déformation locale dans le voisinage de l'interface. La raideur de l'interface, K , peut être définie comme [13] :

$$K = \frac{\sigma}{\Delta u_i} \quad (4)$$

Elle peut être perçue comme la raideur du ressort distribué qui, s'il est utilisé pour joindre les deux demi-espaces solides, reproduirait le déplacement statique.

Le terme important lors de l'examen d'une éventuelle application de ce type d'approche pour décrire une interface composite est Δu_i . Dans le cas d'une interface entre deux surfaces solides rugueuses, il correspond à la variation de la distance séparant les lignes moyennes des deux surfaces rugueuses. La question est de savoir si une telle description peut s'appliquer à une interface composite. Dans ce dernier cas, il est difficile de quantifier un déplacement moyen équivalent et donc de raisonner en termes de raideur de l'interface. Il est donc impossible à l'heure actuelle d'appliquer directement un modèle de ce type pour expliquer les phénomènes observés. Cependant, une réflexion est menée actuellement afin de modéliser, au niveau d'une cavité, le déplacement de l'interface liquide-gaz engendrée par une variation de pression. Il s'agirait ainsi de calculer une raideur élémentaire de l'interface au niveau d'une cavité (rainure ou autre) puis d'en déduire la raideur globale de l'interface composite par l'intermédiaire de la fraction surfacique τ .

Une autre difficulté quant à l'application de ce modèle est le fait que dans le cas de cavités en forme de rainures, la longueur d'onde est beaucoup plus grande que la largeur et la profondeur des rainures mais elle est plus petite que leur longueur (orientée dans le plan de l'interface). Cette remarque remet en cause l'hypothèse de régime basse fréquence suivant la direction des rainures. Pour éliminer cette difficulté, une solution consisterait à étudier des échantillons comportant des cavités de longueur comparable à leur largeur et à leur épaisseur dans une gamme de dimensions toujours très inférieure à la longueur d'onde.

CONCLUSION

Une expérience a été conçue pour reproduire artificiellement dans l'eau des interfaces composites. Des mesures de la transmission ultrasonore à ces interfaces ont été réalisées dans le domaine de Rayleigh. La transmission a été mesurée en fonction de la fraction surfacique de gaz avec deux transducteurs identiques large bande. Les résultats obtenus montrent une chute brutale de la transmission dès que la fraction surfacique de gaz à l'interface devient non négligeable.

Un modèle quasi-statique a été envisagé pour modéliser le coefficient de transmission. Cette approche soulève plusieurs difficultés. Les prochaines études devront s'attacher notamment à modéliser le déplacement au niveau d'une interface composite, induit par une variation de pression; mais aussi à utiliser des échantillons comportant des cavités dont toutes les dimensions sont comprises dans une gamme très inférieure à la longueur d'onde ultrasonore. Une meilleure modélisation permettra aussi de valider les pistes étudiées pour éliminer le gaz de l'interface ou pour éviter l'existence d'une interface composite.

RÉFÉRENCES

- [1] H. Karasawa et al., Development of under-sodium three-dimensional visual inspection technique using matrix-arrayed ultrasonic transducer, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 37, N° 9, 769-779 (2000).
- [2] C. Lesueur, D. Chatain, C. Bergman et al., Analysis of the stability of native oxide films at liquid lead/metal interfaces, Journal de Physique IV 12 (PR8): 155-162 (2002).

- [3] D. Chatain, C. Lesueur, J.P. Baland, Wetting of Pb on oxidized micropatterned Si wafers, *Langmuir* 22 (9): 4230-4236 (2006).
- [4] C. Lesueur, J. Moysan, G. Corneloup, F. Baqué, Experimental study of ultrasound propagation at a liquid-solid composite interface for inspection of liquid-metal cooled nuclear reactors, *NDT&E International*, Vol. 41, 217-22 (2008).
- [5] J.F. Chaix, Caractérisation non destructive de l'endommagement thermique de bétons. Apport de la multidiffusion ultrasonore, Thèse de Doctorat, Université de la Méditerranée (2003).
- [6] J.B. Brzoska et al., Silinization of solid substrates: a step toward reproductibility, *Langmuir*, vol 10, 4367-4373 (1994).
- [7] S. Semal, M. Voue, M.J. de Ruitjer, J. Dehuit, J. de Coninck, Dynamics of Spontaneous Spreading on Heterogeneous Surfaces in a Partial Wetting Regime, *J. Phys. Chem. B*, 103, 4854-4861 (1999).
- [8] B.W. Drinkwater, R.S. Dwyer Joyce, P. Cawley, A study of the interaction between ultrasound and a partially contacting solid–solid interface, *Proc R Soc Lond Ser A: Math Phys Eng Sci*; 452(1955):2613–28 (1996).
- [9] H.G. Tattersall, The ultrasonic pulse-echo technique as applied to adhesion testing, *J. appl. Phys.* D6, 819-832.
- [10] A.M. Quinn, B.W. Drinkwater, R.S. Dwyer-Joyce, The measurement of contact pressure in machine elements using ultrasound, *Ultrasonics*, 39:495–502 (2002).
- [11] Y.C. Angel, J.D. Achenbach, Reflection and transmission of elastic waves by a periodic array of cracks, *J Appl Mech*, 52:33–41 (1985).
- [12] C.J. Brotherhood, B.W. Drinkwater, S. Dixon, The detectability of kissing bonds in adhesive joints using ultrasonic techniques. *Ultras*, 41:521–9 (2003).
- [13] J.-M. Baik, R.B. Thompson, Ultrasonic scattering from imperfect interfaces: a quasi-static model, *J Nondestr Eval*, 4:177–96 (1984).