

Thèse en cotutelle

Pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université Chouaib Doukkali d'El Jadida

Formation doctorale : Physique et Ingénierie

Spécialité: Physique - Énergétique

et

Docteur de l'Institut National des Sciences Appliquées de Lyon

École doctorale : Électronique, Électrotechnique, Automatismes

Spécialité: Énergie et Système

Présenté par

Adil EDDIAI

Sous le thème :

Caractérisation et modélisation des polymères électro-actifs : Application à la récupération d'énergie

Soutenue publiquement le 24 Mai 2013 devant la commission d'examen

Jury

M. Bouchta SAHRAOUI	Professeur, Univ. d Angers, France	Président
M. Abdezzahid ARBAOUI	Professeur, FS d'El Jadida, Maroc	Rapporteur
M. Denis REMIENS	Professeur, Univ. de Lille, France	Rapporteur
M. M'hammed MAZROUI	Professeur, FS Ben M'sik, Casablanca	Rapporteur
Mme. Kaori YUSE	Professeur, INSA de Lyon, France	Examinatrice
M. Daniel GUYOMAR	Professeur, INSA de Lyon, France	Directeur de thèse
M. Yahia BOUGHALEB	Professeur, FS d'El Jadida, Maroc	Directeur de thèse
M. Abdelwahed HAJJAJI	Professeur, ENSA d'El Jadida, Maroc	Co-directeur de thèse

INSA Direction de la Recherche - Ecoles Doctorales – Quinquennal 2011-2015

SIGLE	ECOLE DOCTORALE	NOM ET COORDONNEES DU RESPONSABLE
CHIMIE	CHIMIE DE LYON http://www.edchimie-lyon.fr Insa : R. GOURDON	M. Jean Marc LANCELIN Université de Lyon – Collège Doctoral Bât ESCPE 43 bd du 11 novembre 1918 69622 VILLEURBANNE Cedex Tél : 04.72.43 13 95 directeur@edchimie-lyon.fr
E.E.A.	ELECTRONIQUE, ELECTROTECHNIQUE, AUTOMATIQUE http://edeea.ec-lyon.fr Secrétariat : M.C. HAVGOUDOUKIAN eea@ec-lyon.fr	M. Gérard SCORLETTI Ecole Centrale de Lyon 36 avenue Guy de Collongue 69134 ECULLY Tél : 04.72.18 65 55 Fax : 04 78 43 37 17 Gerard.scorletti@ec-lyon.fr
E2M2	EVOLUTION, ECOSYSTEME, MICROBIOLOGIE, MODELISATION http://e2m2.universite-lyon.fr Insa : H. CHARLES	Mme Gudrun BORNETTE CNRS UMR 5023 LEHNA Université Claude Bernard Lyon 1 Bât Forel 43 bd du 11 novembre 1918 69622 VILLEURBANNE Cédex Tél : 06.07.53.89.13 e2m2@univ-lyon1.fr
EDISS	INTERDISCIPLINAIRE SCIENCES-SANTE http://www.ediss-lyon.fr Sec : Samia VUILLERMOZ Insa : M. LAGARDE	M. Didier REVEL Hôpital Louis Pradel Bâtiment Central 28 Avenue Doyen Lépine 69677 BRON Tél : 04.72.68.49.09 Fax : 04 72 68 49 16 Didier.revel@creatis.uni-lyon1.fr
INFOMATHS	INFORMATIQUE ET MATHEMATIQUES http://infomaths.univ-lyon1.fr Sec : Renée EL MELHEM	Mme Sylvie CALABRETTO Université Claude Bernard Lyon 1 INFOMATHS Bâtiment Braconnier 43 bd du 11 novembre 1918 69622 VILLEURBANNE Cedex Tél : 04.72. 44.82.94 Fax 04 72 43 16 87 infomaths@univ-lyon1.fr
Matériaux	MATERIAUX DE LYON http://ed34.universite-lyon.fr Secrétariat : M. LABOUNE PM : 71.70 –Fax : 87.12 Bat. Saint Exupéry Ed.materiaux@insa-lyon.fr	M. Jean-Yves BUFFIERE INSA de Lyon MATEIS Bâtiment Saint Exupéry 7 avenue Jean Capelle 69621 VILLEURBANNE Cedex Tél : 04.72.43 83 18 Fax 04 72 43 85 28 Jean-yves.buffiere@insa-lyon.fr
MEGA	MECANIQUE, ENERGETIQUE, GENIE CIVIL, ACOUSTIQUE http://mega.ec-lyon.fr Secrétariat : M. LABOUNE PM : 71.70 –Fax : 87.12 Bat. Saint Exupéry mega@insa-lyon.fr	M. Philippe BOISSE INSA de Lyon Laboratoire LAMCOS Bâtiment Jacquard 25 bis avenue Jean Capelle 69621 VILLEURBANNE Cedex Tél : 04.72 .43.71.70 Fax : 04 72 43 72 37 Philippe.boisse@insa-lyon.fr
ScSo	ScSo* http://recherche.univ-lyon2.fr/scso/ Sec : Viviane POLSINELLI Brigitte DUBOIS Insa : J.Y. TOUSSAINT	M. OBADIA Lionel Université Lyon 2 86 rue Pasteur 69365 LYON Cedex 07 Tél : 04.78.77.23.86 Fax : 04.37.28.04.48 Lionel.Obadia@univ-lyon2.fr

*ScSo : Histoire, Géographie, Aménagement, Urbanisme, Archéologie, Science politique, Sociologie, Anthropologie

Remerciement

Remerciement

Les travaux présentés dans ce mémoire de thèse ont été réalisés aux Laboratoires de Génie Electrique et Ferroélectricité de l'INSA de Lyon et Physique de la Matière Condensée de la Faculté des Sciences d'El Jadida dans le cadre d'une convention entre INSA de Lyon-France et Université Chouaib Doukkali d'El Jadida-Maroc.

Une thèse de doctorat est avant qu'elle soit une expérience professionnelle, c'est une expérience personnelle où différents états d'âme accompagnant la vie du doctorant : joie, stress, fierté, fatigue, incertitude, agacement, enthousiasme, excitation,...Il s'agit aussi de l'aboutissement d'un premier travail de recherche, et ce travail de thèse n'aurait jamais existé sans l'aide précieuse de mes encadrants, tous investigateurs de ces travaux. C'est pourquoi je commence par remercier chaleureusement Messieurs Daniel GUYOMAR, Yahia BOUGHALEB et Abdelwahed HAJJAJI, trois personnes exceptionnelles tant au niveau humain qu'au niveau scientifique. Je suis extrêmement reconnaissant de la confiance qu'ils ont bien voulu m'accorder, du temps sans limite consacré à échanger, me permettant ainsi d'approfondir mon travail et d'en apprendre tous les jours un peu plus. Enfin, je ne peux que souligner la qualité de leur encadrement, leur disponibilité permanente ainsi que leur éternelle bonne humeur qui contribue à l'excellente ambiance de travail.

Je voudrais remercier Monsieur Bouchta SAHRAOUI, Professeur à l'Université d'Angers, pour avoir accepté d'examiner ce travail et pour l'honneur qu'il me fait en présidant le jury de cette thèse. Je tiens également à le remercier pour ses conseils efficaces, pour ses encouragements et sa disponibilité à mon égard.

Je tiens aussi à remercier vivement Monsieur Denis REMIENS professeur à l'université de Lille, Monsieur Abdezzahid ARBAOUI professeur à la faculté des sciences d'El Jadida et Monsieur M'hammed MAZROUI professeur à la faculté des sciences Ben M'Sik de Casablanca de m'avoir fait l'honneur d'expertiser cette thèse. Leurs compétences dans le domaine et leurs conseils avisés ont permis de rendre ce manuscrit plus instructif.

Merci également à Madame Kaori YUSE d'avoir accepté de venir de Lyon pour examiner cette thèse. Ainsi que Monsieur Khalil BENKHOUSA pour ces encouragements constants et ces conseils judicieux.

Je remercie très chaleureusement Mr Reddad El Moznine qui a contribué à m'assurer de bonnes conditions de travail et de la rédaction de ma thèse. Je le remercie également pour ses remarques pertinentes et ses conseils précieux.

Je remercie aussi toutes les personnes qui ont répondu présentes lorsque j'en avais besoin, en particulier Monsieur Mounir MEDDAD, Madame Kaori YUSE et Monsieur David AUDIGIER pour tous les conseils, les discussions et les suggestions qui nous permettent de mieux aborder la thèse. Merci notamment à Madame Laurence SEVEYRAT pour la réalisation des nombreux films de polymère et Madame Véronique PERRIN pour la caractérisation des polymères. Je ne peux pas oublier Monsieur Benjamin Ducharne, Maître de Conférences au LGEF pour l'aide et les conseils sur la modélisation en Matlab.

J'adresse également mes plus vifs remerciements à Monsieur Frédéric DEFROMERIE pour la réalisation des bancs de test et qui a toujours fait preuve d'une grande sympathie et d'une grande

disponibilité à mon égard. Un grand merci également à Madame Evelyne DORIEUX pour sa gentillesse, sa disponibilité et son efficacité dans les tâches administratives.

Je tiens à exprimer le plaisir que j'ai eu à travailler au LPMC puis au LGEF. Merci à toutes les personnes qui m'ont aidé à réaliser ce travail dans de bonnes conditions en m'accueillant dans une ambiance très sympathique.

Je tiens finalement à remercier ma famille pour avoir toujours été là quand j'en avais besoin. Merci pour vos conseils et vos encouragements et pour m'avoir permis d'accomplir ce grand objectif.

J'exprime toutes mes excuses et mes sincères remerciements à tous ceux que j'aurais pu oublier s'il n'est guère aisé d'exprimer une reconnaissance à tous ceux qui ont fait que vous êtes là, il est encore plus difficile de trouver les bons mots pour remercier chacun autant qu'il le mériterait.

La prière est la forme d'énergie la plus puissante que l'on puisse susciter.

« Alexis Carrel »

À la mémoire de mes parents

À la mémoire de mon ami Rabii

À mes sœurs et mes frères

À tous, ceux qui me sont chers

La seule réalisation impérissable du travail et de l'énergie humaine, c'est l'art.

« Léon Blum »

Résumé

Résumé:

Le concept de la récupération d'énergie se rapporte généralement au processus d'utilisation de l'énergie ambiante, qui est converti, principalement (mais pas exclusivement) en énergie électrique pour faire fonctionner des dispositifs électroniques petites et autonomes. Les tendances récentes à la fois dans l'industrie et au domaine de la recherche ont mis l'accent sur les polymères électro-actifs pour la conversion d'énergie électromécanique. Cet intérêt s'explique par de nombreux avantages tels que la productivité élevée, la grande flexibilité, et la facilité de traitement. Le but de ce travail de recherche est d'explorer la potentialité des polymères électro-actifs pour une application de récupération d'énergie mécanique ambiante.

Dans la première partie, une synthèse des composites à base de polyuréthane (PU) et de P(VDF-TrFE-CFE) a été réalisée, suivie d'une caractérisation électrique et mécanique de ces polymères et composites afin d'évaluer leurs paramètres intrinsèques.

La seconde partie de ce travail de thèse concerne la caractérisation électromécanique de ces polymères. Un modèle analytique électromécanique est mise en place afin de déterminer finement le comportement physique des polymères électrostrictifs ainsi que les variations de leurs paramètres intrinsèques. Ce modèle analytique est validé par une série de tests à travers un banc d'essai.

La dernière partie de ce travail consiste à évaluer les performances électromécaniques des polymères électrostrictifs pour la récupération d'énergie mécanique. Deux nouvelles techniques sont testées afin de maximiser la densité d'énergie récupérée. Ainsi qu'une comparaison avec les méthodes classiques a été réalisée. Un excellent potentiel de ces techniques pour la récupération d'énergie a été démontré. Le deuxième point porte sur l'étude de l'efficacité de la conversion électromécanique pour la récupération d'énergie mécanique en utilisant l'analyse spectrale FFT. Il a été montré que cette méthode permet de prévoir le rendement énergétique de nos polymères en accord avec les prédictions théoriques. Le dernier point se focalise sur l'amélioration de cette efficacité de conversion électromécanique en utilisant des électrets de polypropylène cellulaire, afin d'assurer un meilleur rendement énergétique.

Mots-clés:

Polymère électro-actif, Polymère électrostrictif, Caractérisation électromécanique, Récupération d'énergie mécanique, Efficacité de conversion électromécanique.

Abstract:

The concept of energy harvesting generally relates to the process of using ambient energy, which is converted, primarily (but not exclusively) into electrical energy in order to power small and autonomous electronic devices. Recent trends in both industrial and research fields have focused on electro-active polymers for electromechanical energy conversion. This interest is explained by many advantages such as high productivity, high flexibility, and processability. The purpose of this research work is to explore the potential of electro-active polymers for application of mechanical energy harvesting.

At first, a synthesis of the composite based on polyurethane (PU) and P (VDF-TrFE-CFE) was performed, followed by electrical and mechanical characterization of these polymers and composites in order to evaluate their intrinsic parameters.

The second part of this thesis concerns electromechanical characterization of these polymers. An electromechanical analytic modeling is detailed in order to determine the physical behavior of electrostrictive polymers and the variations of intrinsic parameters. This modeling is validated by a series of tests using a test bench.

The last part of this work consists to evaluate the electromechanical performance of electrostrictive polymers for the mechanical energy harvesting. Two new techniques are tested in order to maximize the density of energy recovered. As well as a comparison against those classic has been performed. Excellent potential of these techniques for energy harvesting has been demonstrated. The second point is about the study of the electromechanical conversion efficiency for scavenging mechanical energy using spectral analysis FFT. It was shown that this method allows predicting the energy efficiency of our polymers, in accordance with the results predicted by the model. The last point focuses on improving the efficiency of electromechanical conversion by using cellular polypropylene electrets to ensure better energy efficiency.

Keywords:

Electro-active polymer, Electrostrictive polymer, Electromechanical characterization, Mechanical energy harvesting, Efficiency of electromechanical conversion.

Nomenclature et Acronymes

Nomenclature

Grandeurs et paramètres mécaniques

Symbole	Signification
S	Déformation
τ	Contrainte
U_{dc}	Déplacement statique
U_{ac}	Déplacement dynamique
ξ_{abs}	Coefficient d'absorption mécanique
s	Souplesse
Y	Module de Young
$\nabla \vec{p}$	Gradient de pression
ϑ	Coefficient du Poisson
Y^*	Module d'Young complexe
Y'	Module de conservation
Y''	Module de perte
τ_M	Contrainte de Maxwell
S_M	Déformation de Maxwell
K	Raideur
f_m	Fréquence mécanique
ω_m	Pulsation mécanique
c	Rigidité
F	Force
K_p	Perméabilité de Darcy
$\vec{\varphi}$	Flux

Grandeurs et paramètres électromécaniques

Symbole	Signification
Q	Coefficient d'électrostriction (P)
M	Coefficient d'électrostriction (E)
k	Coefficient de couplage électromécanique
d	Coefficient piézoélectrique
α	Coefficient de conversion

Grandeurs et paramètres électromagnétiques

Symbole	Signification
B	Champ magnétique
e	Force électromotrice.
Z_0	Résistance de radiation de l'espace libre

Grandeurs et paramètres électriques

Symbole	Signification
P	Polarisation
E	Champ électrique
E_{Sat}	Champ électrique de saturation
I	Courant électrique
D	Déplacement électrique
ϵ'	Permittivité
ϵ''	Indice de perte
ϵ_r	Permittivité relative
ϵ_0	Permittivité de vide
ϵ^*	Permittivité complexe
$\tan\delta$	Facteur de dissipation diélectrique
δ	Angle de perte
f_e	Fréquence électrique
σ	Conductivité
ρ	Résistivité
C_P	Capacité bloquée de polymère
C	Capacité
V	Tension
\vec{J}	Densité de courant
ω_e	Pulsation électrique
χ	Susceptibilité
q	Charge électrique
Y^*	Admittance complexe
R_C	Résistance de charge
κ	Conductivité ionique
ρ_∞	Résistivité limite à température infinie
α'	Polarisabilité de la charge électrique
α_c	Polarisabilité
α_d	Polarisabilité d'orientation

Grandeurs et paramètres thermodynamiques

Symbole	Signification
ζ	Densités volumiques d'énergie interne
\mathcal{F}	Densités volumiques d'énergie libre
\mathcal{S}	Densités volumiques d'énergie interne d'entropie
δQ	Quantité de chaleur
δW	Travail échangées
$d\Psi_m$	Incrément de dissipation
Φ	Potentiel thermodynamique
θ	Densité volumique de potentiel
G	Fonction élastique de Gibbs

Grandeurs et paramètres énergétiques

Symbole	Signification
---------	---------------

P_V	Puissance absorbée par unité de volume
$P_{récupérée}$	Puissance récupérée
$P_{Polarisation}$	Puissance de polarisation
η_{conv}	Rendement de conversion électromécanique
η_{ges}	Rendement de l'étage de gestion électrique
e_{abs}	Energie absorbée par le polymère
W	Densité d'énergie récupérée
$e_{compression}$	Energie compression
$e_{étirement}$	Energie étirement
$e_{méca}$	Energie mécanique apportée au polymère
e_{rec}	Energie électrique récupérée
e_{uti}	Energie électrique utile
e_{elec}	Energie électrique
$e_{générée}$	Energie générée
e_{pertes}	Energie des pertes
ξ	Densité volumique de potentiel d'élasticité
E_a	Energie d'activation
E_d	Energie dissipée (chargement/déchargement)

Grandeurs et paramètres thermiques

Symbole	Signification
T	Température
h	Coefficient d'échange thermique
P_S	Flux de chaleur
T_g	Température de transition vitreuse
T_m	Coefficient de conversion
T_{Corps}	Température du corps humain
T_{amb}	Température de l'air ambiant

Acronymes

Symbole	Signification
AC	Courant alternatif
DC	Courant direct ou continu
FFT	Transformée de Fourier rapide
MEMS	Micro-Electro-Mechanical Systems
PZT	Titano-Zirconate de Plomb
EAP	Electro-Active Polymère
IPMC	Ionic Polymer-Metal Composite
P(VDF-TrFE-CTFE)	Fluorure de Polyvinylidene de trifluoroéthylène chlorofluoroéthylène
PU	Polyuréthane
C	Noir de carbone
PP	Polypropylène
GBF	Générateur Basse Fréquence
RF	Radiofréquence

TABLE DES MATIERES :

INTRODUCTION GENERALE 2

CHAPITRE I: ETAT DE L'ART

I. GENERALITES SUR LES POLYMERES ELECTRO-ACTIFS "EAPS" 6

I.1 HISTORIQUE 6

I.2 DEFINITION..... 6

I.3 CLASSIFICATION DES EAPS 7

 I.3.1 Famille électronique 7

 I.3.2 Famille ionique 8

I.4 CARACTERISTIQUES DES DEUX FAMILLES 8

I.5 PROPRIETES EN MODE ACTIONNEUR 11

 I.5.1 Principe de fonctionnement des polymères piézoélectriques 11

 I.5.2 Principe de fonctionnement des polymères électrostrictifs 12

 I.5.3 Principe de fonctionnement des polymères diélectriques..... 13

 I.5.4 Les IMPC en actionneur 14

I.6 PROPRIETES EN MODE GENERATEUR..... 15

 I.6.1 Matériaux piézoélectriques 16

 I.6.2 Matériaux électrostrictifs 17

 I.6.3 Les polymères diélectriques 20

 I.6.4 Les polymères ioniques type IPMC 21

II. BILAN GENERAL DES SYSTEMES DE LA RECUPERATION D'ENERGIE 22

II.1 LES RESSOURCES ENERGETIQUES AMBIANTES 23

 II.1.1 Les ressources mécaniques 23

 II.1.2 Les ressources thermiques 32

 II.1.3 Les ressources électromagnétiques..... 33

II.2 SYNTHESE DU POTENTIEL DE RECUPERATION D'ENERGIE 36

III. CONCLUSION 37

REFERENCES..... 39

**CHAPITRE II: PREPARATION ET CARACTERISATION DES POLYMERES
ÉLECTRO-ACTIFS ET COMPOSITES**

**I. DESCRIPTION DES PARAMETRES INTRINSEQUES DES POLYMERES ELECTRO-ACTIFS..
..... 44**

I.1 LES PARAMETRES DIELECTRIQUES DES POLYMERES 44

 I.1.1 La permittivité diélectrique et Pertes diélectriques..... 44

 I.1.2 Phénomène de polarisation dans les polymères..... 46

I.2	LE COMPORTEMENT MECANIQUE DES POLYMERES	48
I.2.1	<i>Le comportement élastique</i>	49
I.2.2	<i>Le comportement viscoélastique</i>	52
II.	CHOIX DES MATERIAUX ET PROCEDURE DE PREPARATION.....	53
II.1	CHOIX DES MATRICES.....	54
II.1.1	<i>La matrice de polyuréthane (PU)</i>	54
II.1.2	<i>La matrice de terpolymère P(VDF-TrFE-CFE)</i>	56
II.2	CHOIX DES NANOPARTICULES ET PHENOMENE DE PERCOLATION.....	56
II.2.1	<i>Qu'est-ce qu'un nano-composite ?</i>	57
II.2.2	<i>Phénomène de percolation</i>	57
II.2.3	<i>Choix des nanoparticules</i>	59
II.3	PROCESSUS DE FABRICATION DES POLYMERES COMPOSITES.....	60
II.3.1	<i>Les différentes méthodes de dispersion des nanoparticules dans les systèmes polymères</i>	60
II.3.2	<i>Protocole d'élaboration des composites au LGEF</i>	62
III.	CARACTERISATION DES POLYMERES ELECTROSTRICTIFS ET COMPOSITES.....	65
III.1	CARACTERISATION DIELECTRIQUE	65
III.1.1	<i>Principe de mesure</i>	66
III.1.2	<i>Résultats expérimentaux</i>	67
III.2	CARACTERISATION MECANIQUE	72
III.2.1	<i>Principe de mesure</i>	73
III.2.2	<i>Etude théorique</i>	74
III.2.3	<i>Résultats expérimentaux et discussion</i>	77
III.3	SYNTHESE SUR LA CARACTERISATION	83
IV.	CONCLUSION.....	84
	RÉFÉRENCES.....	87

CHAPITRE III: ETUDE DES PROPRIETES ELECTROMECHANQUES DES POLYMERES ELECTROSTRICTIFS ET COMPOSITES

I.	DESCRIPTION DES PROPRIETES ELECTROMECHANIQUE DES EAPS.....	90
I.1	LES MECANISMES D'ACTIONNEMENT ELECTROMECHANQUES DES EAPS.....	90
I.1.1	<i>Phénomène d'Electrostriction</i>	91
I.1.2	<i>Effet de la contrainte de Maxwell</i>	95
I.2	LA SYMETRIE CRISTALLINE ET LE COEFFICIENT ELECTROSTICTIF	96
II.	CARACTERISATION ELECTROMECHANIQUE DES POLYMERES ELECTROSTRICTIFS	97
II.1	LE PRINCIPE EXPERIMENTAL.....	97
II.2	RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSIONS.....	99
II.2.1	<i>Effet de la fréquence sur la déformation électromécanique</i>	99

II.2.2	<i>Effet de l'épaisseur sur la déformation électromécanique</i>	100
II.2.3	<i>Effet des nanoparticules sur la déformation électromécanique</i>	102
II.2.4	<i>Effet de la précontrainte sur la déformation électromécanique</i>	104
III.	MODELISATION DU COMPORTEMENT ELECTROMECHANIQUE DES POLYMERES	105
III.1	MODELISATION DE LA POLARISATION	106
III.2	RELATION ENTRE LA DEFORMATION ET LA POLARISATION	107
IV.	CONTROLE ADAPTATIF DE LA RAIDEUR MECANIQUE PAR LES POLYMERES	
ELECTRO-ACTIFS		109
IV.1	MODELE THEORIQUE	110
IV.1.1	<i>Effet de la pré-force sur le changement de la raideur</i>	110
IV.1.2	<i>Effet de l'excitation électrique sur le changement de la raideur</i>	112
IV.2	PROTOCOLE DE MESURE	113
IV.3	RESULTATS ET DISCUSSION	114
IV.3.1	<i>Variation de la force de pré-étirage F_m</i>	114
IV.3.2	<i>Variation du champ électrique E_{dc}</i>	116
IV.3.3	<i>Variation de l'amplitude du champ électrique E_{amp}</i>	118
V.	CONCLUSION	121
RÉFÉRENCES		122

CHAPITRE IV: AMELIORATION DE LA RECUPERATION D'ENERGIE PAR DES NOUVELLES TECHNIQUES

I.	INTRODUCTION	125
II.	LA MAXIMISATION DE LA PUISSANCE RECUPEREE PAR UNE NOUVELLE TECHNIQUE.	127
II.1	MODELE ANALYTIQUE	127
II.2	PROTOCOLE DE MESURE ET MATERIELS	131
II.2.1	<i>Matériau polymère et préparation</i>	131
II.2.2	<i>Principe de mesure de la puissance récupérée</i>	131
II.3	RESULTATS ET DISCUSSIONS	132
II.4	CONCLUSION	135
III.	UN PROTOTYPE D'ADAPTATION POUR MAXIMISER LA PUISSANCE RECUPEREE	136
III.1	PRINCIPE	136
III.1.1	<i>Modélisation du courant de court-circuit récupéré</i>	136
III.1.2	<i>Modélisation de la puissance récupérée</i>	139
III.2	DESCRIPTION DE SETUP EXPERIMENTAL	142
III.3	RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSIONS	143
III.4	CONCLUSION	147

IV. CONCLUSION	147
RÉFÉRENCES	149

CHAPITRE V: ETUDE DE L'EFFICACITE DES POLYMERES ELECTROSTRICTIFS POUR LA RECUPERATION D'ENERGIE

I. INTRODUCTION	151
II. ETUDE DE L'EFFICACITE DES POLYMERES ELECTROSTRICTIFS PAR FFT	152
II.1 MODELISATION ET ANALYSE DES CAPACITES	152
II.2 RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSION.....	155
II.2.1 Effet de la fréquence mécanique f_m	156
II.2.2 Effet de l'amplitude de la déformation mécanique S_0	162
III. AMELIORATION DE L'EFFICACITE DES POLYMERES ELECTROSTRICTIFS PAR L'UTILISATION DES ELECTRETS	168
III.1 GENERALITES SUR LES ELECTRETS	168
III.1.1 Définition et historique.....	168
III.1.2 Les différents types d'électrets	169
III.2 PROCEDURE EXPERIMENTALE	170
III.2.1 Setup de préparation de la structure.....	170
III.2.2 Description de la méthode de décharge par effet Corona.....	171
III.2.3 Evaluation des propriétés diélectriques des films polymères.....	172
III.3 RESULTATS EXPERIMENTAUX	173
IV. CONCLUSION	177
RÉFÉRENCES :	178

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES DE RECHERCHE

I. CONCLUSION GENERALE.....	181
II. PERSPECTIVES DE RECHERCHE.....	183
LISTE DES TABLEAUX	185
LISTE DES FIGURES	185
LISTE DES PUBLICATIONS.....	190

Introduction générale

Introduction générale

L'énergie a toujours été omniprésente dans la vie de l'homme et indispensable à sa survie. Aujourd'hui plus que jamais, les besoins de l'humanité en énergie sont colossaux et en progression. Ainsi, la consommation d'énergie primaire dans le monde augmente régulièrement.

Les nouveaux enjeux énergétiques ont favorisé l'émergence d'un engouement collectif à la fois pour les énergies renouvelables et pour les moyens de production énergétiques durables. Le concept de source de production secondaire d'énergie est basé sur la possibilité de récupération de toute forme d'énergie potentielle afin de la transformer en source d'électricité exploitable. Cette notion, bien que très récente, est en plein essor. Il est de plus en plus courant de trouver des systèmes permettant de récupérer de l'énergie à partir de diverses ressources telles que mécaniques (vibratoires, mouvements...), thermiques (êtres vivants, machines...), photovoltaïques (lumière solaire ou artificielle) et électromagnétiques hautes fréquences (ondes ambiantes ou dédiées).

Ces dernières années, le développement de l'électronique de faible puissance, et le besoin grandissant en autonomie d'énergie des systèmes électroniques ont conduit à un regain des travaux de recherches sur la récupération de micro-énergie renouvelable. Les réseaux de capteurs sans fils (WSN:Wireless Sensor Nodes) sont un exemple de ces systèmes. Les WSN sont des systèmes de surveillance et de traitement de données distribués. Grâce à leurs caractéristiques, ils sont utilisés dans différents domaines. Par exemple, ils peuvent être utilisés pour surveiller la présence des personnes dans les locaux commerciaux, pour alerter des défauts ou des fatigues de structures dans les avions ou les navires, pour contrôler les caractéristiques des équipements comme la pression des pneus des voitures, voire des applications liées au domaine de la santé. La source d'énergie la plus simple à utiliser est la pile. Mais, l'utilisation de piles conventionnelles n'est pas toujours avantageuse parce que leur remplacement nécessite l'intervention humaine. Par conséquent, l'acquisition de la puissance électrique nécessaire pour faire fonctionner ces appareils est une préoccupation majeure.

Une source d'énergie alternative aux batteries conventionnelles doit être prise en considération. L'énergie électrique nécessaire pour faire fonctionner ces appareils peut être obtenue en piégeant les énergies disponibles dans le milieu ambiant (lumineuses, thermiques ou mécaniques). Ces sources peuvent être utilisées pour augmenter la durée de vie et la capacité des appareils soit en remplaçant ou augmentant l'utilisation de la batterie. Ce

processus permettrait de fournir de l'énergie illimitée pour la durée de vie du dispositif électronique. L'idée principale de notre travail, consiste à récupérer l'énergie mécanique et à la convertir par l'intermédiaire de matériaux actifs. Ainsi, nous envisageons d'utiliser cette énergie électrique convertie pour réaliser des micro-générateurs de très faible puissance, c'est-à-dire de quelques μW à quelques centaines de mW .

En raison de leur couplage électromécanique naturel, les matériaux piézoélectriques sont des candidats prometteurs pour permettre de tels dispositifs à récolter l'énergie à partir de sources mécaniques. Il y a eu de nombreuses investigations sur le comportement des matériaux piézoélectriques et leur application dans le développement de dispositifs piézoélectriques. Après avoir examiné plusieurs méthodes de récupération d'énergie, les chercheurs ont conclu que les générateurs piézo-électriques (convertisseurs d'énergie) sont très prometteurs en raison de leur rendement élevé. Toutefois, les limites inhérentes, y compris le vieillissement, la dépolarisation et une fragilité, rendent leur application difficile dans de nombreux domaines. Dans la conjoncture socio-économique actuelle aspirant à un développement durable, l'utilisation de polymères apporte un grand nombre d'avantages. Les polymères électrostrictifs ont des propriétés intéressantes par rapport aux matériaux inorganiques. Ils sont légers, peu coûteux, très flexibles, et facilement traitée et fabriquée. Ils peuvent être configurés dans des formes complexes et leurs propriétés peuvent être adaptées en fonction de la demande. La récupération d'énergie à l'aide de ce type de matériaux permet de constituer des systèmes, respectueux de l'environnement en exploitant une énergie renouvelable.

Les travaux développés dans ce mémoire de thèse se sont focalisés à l'évaluation des propriétés de la conversion électromécaniques des polymères électrostrictifs pour la récupération d'énergie mécanique vibratoire. Ce manuscrit se compose de cinq chapitres.

Le premier chapitre dresse l'état de l'art concernant les polymères électro-actifs avec une présentation des différents polymères, de leur principe de fonctionnement et de leurs principales caractéristiques. De même une description globale sur les différentes ressources et systèmes de récupération d'énergie ambiante, notamment dans l'environnement humain sera effectuée.

Au second chapitre, nous nous attarderons sur la caractérisation mécanique et électrique des films de polymère élaborés au laboratoire, afin d'acquérir les données nécessaires pour

une meilleure compréhension des phénomènes observés lors des essais en actionnement ou en récupération d'énergie. Le processus de préparation des films polymères sera aussi abordé.

Afin d'augmenter les propriétés diélectriques des polymères étudiés, l'incorporation des nanoparticules conductrices dans les matrices de polymères était nécessaire. Cela passera par une étude de la dispersion des particules dans la matrice dans le but d'avoir une homogénéisation des composites. Enfin, une modélisation du comportement mécanique des composites sera établie afin de comprendre le phénomène de non-linéarité observé.

Le troisième chapitre s'intéressera à l'étude des propriétés électromécanique des polymères électrostrictifs et composites. Dans un premier temps, une dépendance de leur déformation avec l'amplitude du champ électrique, de la fréquence, de l'épaisseur, et de la précontrainte mécanique appliquée sera traitée. Un modèle à l'aide de fonction tangente hyperbolique sera développé, qui permet de définir les lois de comportement électromécanique de nos polymères. Puis, nous présenterons une méthode innovante qui permet de contrôler la raideur des polymères électrostrictifs. Un modèle de contrôle adaptif de la raideur est mis en place. Ce modèle est validé par des résultats expérimentaux.

Dans le quatrième chapitre, nous proposerons deux nouvelles techniques qui permettent d'améliorer les performances électromécaniques des polymères électrostrictifs afin de démontrer le fort potentiel de ces composites pour la récupération d'énergie vibratoires. Pour cela un modèle analytique en mode générateur pour ce type de matériau est développé. La validation du modèle est assurée par sa confrontation avec l'expérience.

Le cinquième chapitre, qui conclura ce travail de thèse, concernera l'étude de l'efficacité de la conversion électromécanique des polymères électrostrictifs. Une étude par l'analyse spectrale FFT sera réalisée pour accéder au le rendement des polymères. Le modèle développé est de même validé par des résultats expérimentaux. Le second objectif du chapitre consiste à améliorer l'efficacité de conversion par l'utilisation d'une structure hybride, en exploitant l'effet des électrets de polypropylène (chargé par effet corona), afin d'améliorer le rendement énergétique.

Chapitre I

Etat de l'art

Ce chapitre est consacré au contexte technologique actuel dans lequel s'inscrit cette thèse. Tout d'abord, nous ferons une description générale sur les polymères électro-actifs (EAP) en termes de matériaux, de leurs capacités et de leurs potentiels à former des structures intelligentes. Puis un coup de projecteur sur leurs propriétés en mode actionneur et générateur.

Nous décrirons ensuite l'état de l'art en matière de récupération d'énergie. De plus il sera également abordé la mise en commun de cette thématique, par la présentation des dispositifs autonomes déjà réalisés. La problématique principale est la réduction de notre impact sur le système écologique, tout en améliorant notre qualité de vie.

I. Généralités sur les polymères électro-actifs "EAPs"

I.1 Historique

L'étude des EAPs a commencé dans les années 1880, lorsque Wilhelm Roentgen créa une expérience dans laquelle il testa l'effet d'un courant électrique sur les propriétés mécaniques d'un élastique. L'élastique était fixé à une extrémité, et il accrocha une masse sur l'autre extrémité. Un champ électrique fut appliqué sur l'élastique pour étudier la variation de sa longueur en fonction du courant électrique appliqué. Sacerdote approfondissait l'expérience de Roentgen en proposant une théorie sur la réponse de la contrainte de l'élastique en fonction du champ électrique appliqué, théorie formulée en 1899. Ce n'est qu'à partir des années 1925 que le premier polymère piézoélectrique fut découvert (Electret). L'électret fut formé en combinant de la cire de carnauba, de la colophane, de la cire d'abeille, et en refroidissant le mélange pendant qu'une tension électrique continue lui était appliquée afin de le polariser. Le matériau se solidifia en un polymère présentant des propriétés piézoélectriques.

Les polymères dont les propriétés varient selon d'autres excitations qu'un champ électrique font partie de ce domaine d'étude. En 1949, Katchalsky et al démontrèrent que des filaments de collagène plongés dans un acide ou dans une solution alcaline présentent un changement significatif de volume [Bar2004]. Les filaments de collagène se contractent en solution alcaline et se détendent en solution acide. D'autres stimuli (comme la variation de pH) ont été testés, cependant la recherche s'est plus portée sur les polymères électro actifs car ceux-ci sont les meilleurs prétendants à l'imitation de systèmes biologiques complexes.

Zhang et al. [Zha1998] ont développé des copolymères de PVDF dont la densité d'énergie était augmentée de façon significative.

Récemment, l'information sur un bon nombre de ces groupes et d'autres travaux de recherche sur les EAPs a été reportée par Bar-Cohen [Bar2002].

I.2 Définition

Les polymères électro-actifs, ou EAPS (*Electroactive polymers*) sont des polymères dont la forme ou la taille changent lorsqu'ils sont stimulés par un champ électrique. L'utilisation principale de ce type de matériau est la fabrication d'actionneurs et de capteurs. Une propriété intéressante des EAPs est qu'ils sont capables de grandes déformations, ainsi que de forces importantes. La plus grande partie des actionneurs actuels est fabriquée à partir de céramiques

piézo-électriques. Ces matériaux sont certes capables de produire des forces très élevées, cependant leur domaine de déformation n'excède pas quelques pourcents. Durant les dernières années, il a été démontré que certains EAPs sont capables d'une déformation de 380 % [Bar2001], ce qui est largement supérieur à n'importe quelle céramique utilisée actuellement. Une autre application des EAPs est dans le développement de la robotique et dans le développement de muscles artificiels.

I.3 Classification des EAPs

La dénomination « polymère électro-actif » est très générale et cette classification permet de visualiser les matériaux englobés sous ce terme. Deux grandes catégories se distinguent selon leur actionnement : la famille électronique et la famille ionique [Bar2001].

I.3.1 Famille électronique

Définis par Bar-Cohen [Bar2001] en anglais comme « Electronics EAP », les polymères de cette famille sont activés par un champ électrique extérieur.

Généralement, une structure à base de polymère électronique est composée du matériau électroactif pris en sandwich entre deux électrodes (figure I.1). Ces polymères ont des performances attractives au niveau de la conversion électromécanique. Le couplage peut être linéaire (piézoélectricité) ou non linéaire, telle une évolution au carré (électrostriction, force électrostatique type pression de Maxwell). Ainsi, la famille électronique est composée de sous familles ou classes, chacune se référant à un phénomène particulier d'activation due à des propriétés électriques intrinsèques (tableau I.1).

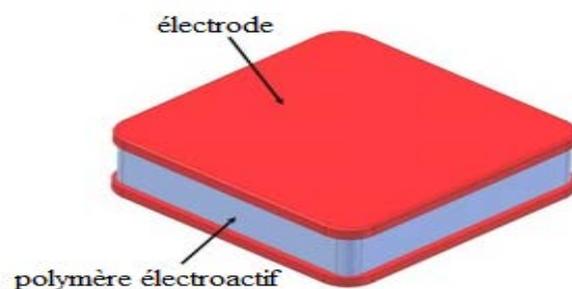


Figure I.1: Structure typique des « Electronics EAP »

I.3.2 Famille ionique

Appelés « Ionic EAP » en anglais, ces polymères se basent sur une diffusion d'ions ou de molécules au sein du matériau.

Une des contraintes de ces matériaux est qu'ils doivent fonctionner dans un état humide ou dans des électrolytes solides. Les EAPs ioniques produisent principalement l'actionnement de flexion avec des forces d'actionnement relativement inférieures à celles des EAPs électroniques. Souvent, l'opération dans des systèmes aqueux est marquée par l'hydrolyse de l'eau. En outre, les EAPs ioniques ont des caractéristiques de réponse lente par rapport aux EAPs électroniques. La figure I.2 donne un exemple de la structure physique d'un polymère ionique et nous ne ferons qu'évoquer cette classe de matériaux, qui sont très éloignés de notre sujet, qu'il s'agisse des mécanismes physicochimiques à l'origine de leur comportement, ou de leurs applications.

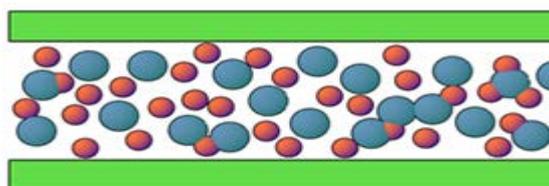


Figure I.2: structure physique d'un polymère ionique

Tableau I.1: Classification des polymères électro-actifs

<i>Famille électronique</i>	<i>Famille ionique</i>
<ul style="list-style-type: none"> • Elastomère diélectrique • Elastomère électrostrictif greffé • Papier électrostrictif • Elastomère électro-viscoélastique • Polymère ferroélectrique • Electrets 	<ul style="list-style-type: none"> • Gel ionique • Nanotubes de carbone • Polymers conducteur ionique (CP) • Composite ionique (IPMC) • Fluide électrorhéologique

I.4 Caractéristiques des deux familles

Le tableau I.2 illustre les avantages et les inconvénients des EAPs électroniques et ioniques tel que décrit par Bar Cohen [Bar2001].

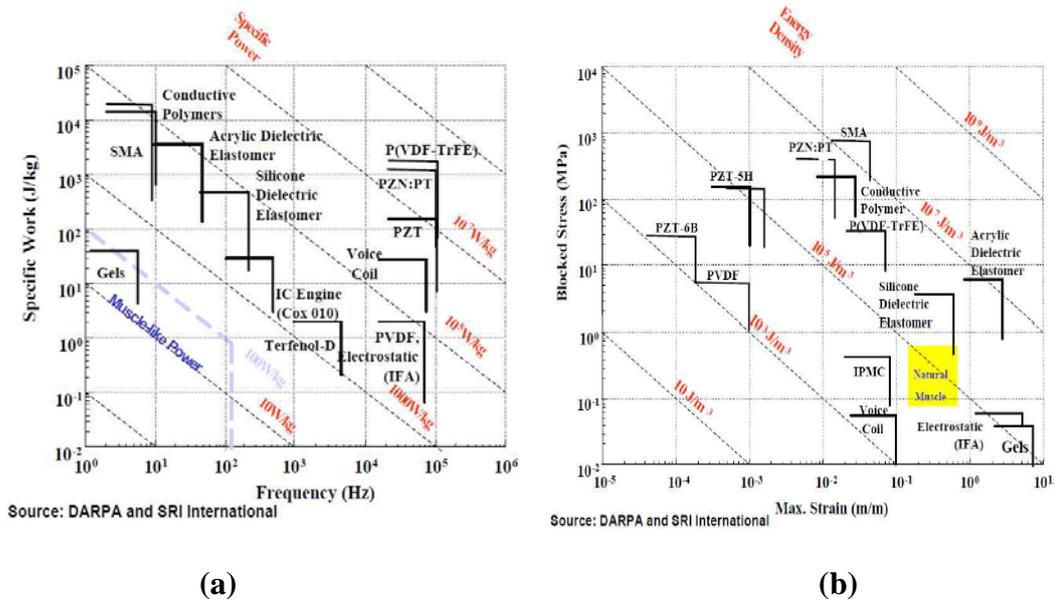
Tableau I.2: Principales caractéristiques des deux familles d'EAP

<i>EAPs</i>	<i>Avantages</i>	<i>Inconvénients</i>
<i>Electronique</i>	<ul style="list-style-type: none"> - Force générée importante - Temps de réponse court - Fonctionne dans des conditions ambiantes - Durée de vie importante 	<ul style="list-style-type: none"> - Champ électrique d'actionnement élevé (de 20 à 150 MV/m) - Sens de la déformation unique pour les couplages quadratiques - Le fonctionnement à basse température dépend de la température de transition vitreuse
<i>Ionique</i>	<ul style="list-style-type: none"> - Champ électrique d'alimentation faible (10kV/m) - Déplacements importants - sens de la déformation fonction de la polarité de la tension 	<ul style="list-style-type: none"> - Faible force générée - Couplage électromécanique faible - Temps de réponse lent - Condition d'utilisation particulière (milieux humides...)

Au vu de ce tableau, les polymères électroniques ont également une densité énergétique élevée ainsi que d'un temps de réponse rapide de l'ordre de quelques millisecondes. En général, ces matériaux ont une température de transition vitreuse insuffisante pour les applications à faible température d'actionnement. Par contre les polymères ioniques peuvent présenter de grandes déformations via des phénomènes de gonflement induits par la mobilité des ions et requièrent une tension d'alimentation faible. Mais ils sont plus lents et délicats à utiliser car basés sur une migration ionique.

Pour une première comparaison entre les deux familles, il apparaît qu'ils ont des domaines d'application distincts. L'utilisation des polymères électroniques sera évidente pour des applications qui nécessitent de hautes densités de force, tandis que la famille ionique est plus adaptée aux applications de faibles tensions.

Dans le domaine de la récupération d'énergie mécanique, il est nécessaire que le matériau utilisé possède une densité d'énergie importante pour une récupération maximale. Dans ce sens, il est alors nécessaire de classer les polymères électro-actifs selon des critères précis. Ainsi, la DARPA (Defense Advanced Research Projects Agency) [Wax1999] propose une classification qui compare les polymères électro-actifs avec les muscles naturels (natural muscle), les actionneurs magnétiques (voice-coil), les céramiques piézoélectriques (PZT) et les alliages à mémoires de forme (SMA: Shape Memory Alloys), tous en mode actionneur.



(a) Travail spécifique en fonction de la fréquence pour différents matériaux électro-actifs
 (b) Contrainte en fonction de la déformation pour différents matériaux électro-actifs
 [Wax1999]

Les deux figures ci-dessus (figures I.3a et I.3b) résument cette étude. La figure I.3a présente le travail spécifique par unité de masse en fonction de la fréquence de fonctionnement et renseigne sur les fréquences de fonctionnement des différents matériaux. La seconde figure (figure I.3b) donne les contraintes en fonction de la déformation pour les différentes familles, et inclut aussi la densité d'énergie. Notre objectif est de récupérer un maximum d'énergie mécanique ambiante, mais la principale contrainte est d'avoir une haute densité d'énergie pour des fréquences très basse (inférieure à 100Hz). Sachant qu'une haute densité d'énergie en mode actionneur peut conduire à une haute densité d'énergie en mode générateur, on peut sortir un nombre des matériaux aux faibles fréquences qui seront les meilleurs candidats proposé pour la récupération d'énergie :

- les polymères électrostrictifs
- les polymères diélectriques
- les polymères piézoélectriques
- les gels ioniques types IPMC

L'étude des propriétés en mode actionneur et mode générateur de ces candidats sera établi dans le prochain paragraphe.

I.5 Propriétés en mode actionneur

Dans ce paragraphe, un état de l'art sur les différentes classes de matériaux mentionné dans le dernier paragraphe a été réalisé en regroupant tous les travaux publiés sur ces matériaux électro-actifs [Bar2001] [Kof2001] [Sha2001] [Kim2003] [Pou2004] [Car2005].

Le tableau I.3 [Jea2008] résume les principales caractéristiques mécaniques et électriques des différentes classes de polymères. Cette synthèse nous permet de faire une comparaison lors des essais en actionneurs des composites développés au LGEF.

Tableau I.3: caractéristiques principales des quatre classes de polymères électro-actifs en fonctionnement actionneurs

<i>Matériaux Electro-actifs</i>	Déformation	Pression maximale en (MPa)	Module de Young en (GPa)	Densité d'énergie spécifique en (J/g)	Densité d'énergie en (J/cm ³)	Masse volumique	Utilisation	Fréquence d'utilisation	Avantages	Inconvénients
Piézoélectricité										
Céramique (PZT)	0.2	110	65	13.10 ⁻³	0.1	7.8	<ul style="list-style-type: none"> ▪ En dynamique et quasi statique ▪ Compression ou flexion 	< 100kHz	<ul style="list-style-type: none"> - Nombreux matériaux développés - Force utile élevée - Contrôle précis de la position 	<ul style="list-style-type: none"> - Si taille ↓, alors fréquence ↑ - Rendement faible - Très faible déformation - Prix élevé
Polymère(PVDF)	0.1	4.8	3	13.10 ⁻⁴	24.10 ⁻⁴	1.78				
Electrostriction										
P(VDF-TrFE) S ₁	3.5	20	1	0.35	0.67	1.9	<ul style="list-style-type: none"> ▪ En dynamique et quasi statique ▪ Compression ou flexion 	< 10kHz	- Faible hystérésis donc pertes faibles	<ul style="list-style-type: none"> - Haute tension d'alimentation - Prix élevé
P(VDF-TrFE) S ₃	5	35	03	0.27	0.5					
Polymère diélectrique										
Acrylique	380	7.2	2.10 ⁻³	3.4	3.4	1	<ul style="list-style-type: none"> ▪ En dynamique et quasi statique ▪ Compression ou flexion 	< 100Hz	<ul style="list-style-type: none"> - Déformation très importante - Très flexible, léger - Prix faible 	<ul style="list-style-type: none"> - Haute tension d'alimentation - Faible force utile - Difficulté à réaliser des électrodes très déformables
Silicone	63	3.0	<2.10 ⁻³	0.75	0.75					
IPMC	10	3 à 15	0.1 à 1	0.01	0.007	1.5	<ul style="list-style-type: none"> ▪ En dynamique et quasi statique ▪ Compression ou flexion 	< 100Hz'	<ul style="list-style-type: none"> - Très flexible - Large déplacement 	<ul style="list-style-type: none"> - Temps de réponse lent - Fonctionne mieux en milieu humide

I.5.1 Principe de fonctionnement des polymères piézoélectriques

La piézoélectricité (1880, Pierre et Paul-Jacques Curie) est la propriété que possèdent certains matériaux de se polariser électriquement sous l'action d'une sollicitation mécanique extérieure et, réciproquement, de se déformer lorsqu'on leur applique une tension électrique [Dre2000]. Ces phénomènes sont appelés respectivement l'effet piézoélectrique direct et l'effet piézoélectrique inverse (figure I.4).

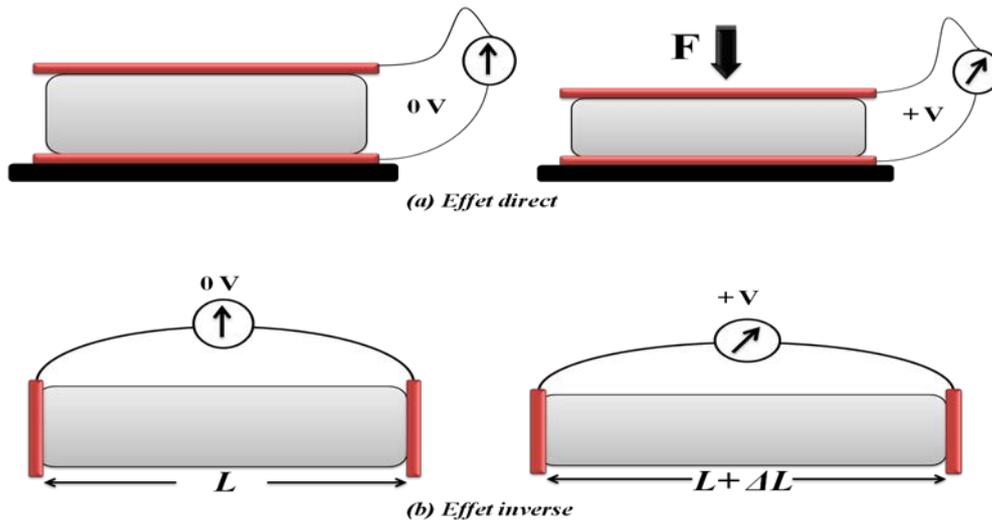


Figure I.4: Effet piézoélectrique

L'effet piézoélectrique est un phénomène propre à certains types de matériaux. Ce phénomène est expliqué par le déplacement d'un moment dipolaire à l'intérieur même de la maille du matériau, produisant une séparation du barycentre des charges positives et négatives, et engendrant pas conséquence une relation multiphysique entre la mécanique et l'électrique.

Après l'application d'une tension électrique, le matériau se déforme et la déformation produite est proportionnelle au champ électrique. Cependant quand la tension électrique devienne plus grande, la courbe de déformation dérive de cette tendance linéaire et un cycle d'hystérésis significatif apparaît, dû à la réorientation de la polarisation. Cette linéarité peut parfois limiter l'usage de ce matériau.

I.5.2 Principe de fonctionnement des polymères électrostrictifs

L'électrostriction est une propriété de tous les diélectriques due à la présence de domaines électriques répartis aléatoirement à l'intérieur du matériau. Lorsqu'un champ électrique est appliqué chaque domaine se polarise suivant l'axe du champ. Les côtés opposés des domaines se chargent de façon opposée et s'attirent mutuellement, provoquant une réduction de leur dimension dans la direction du champ électrique (et conjointement un allongement de leurs dimensions perpendiculaires au champ, dans les proportions du coefficient de Poisson). La déformation résultante S est proportionnelle au carré de la polarisation P [Sun1994]: on dit qu'il s'agit d'un effet du second ordre. Mathématiquement, l'électrostriction est représentée par un tenseur d'ordre 4 noté en général Q_{ijkl} . Il relie les composantes du tenseur des déformations (tenseur d'ordre 2) noté ici S_{ij} et deux composantes du tenseur polarisation (tenseur d'ordre 1) noté en général P_k . L'équation de l'électrostriction s'écrit alors :

$$S_{ij} = Q_{ijkl} P_k P_l \quad \text{I-1}$$

Or, comme les polymères électrostrictifs ont des propriétés diélectriques linéaires, pour des amplitudes du champ électrique faibles (inférieur à $10V/\mu m$), la polarisation électrique P est proportionnelle au champ électrique E .

$$P = (\varepsilon - \varepsilon_0)E \quad \text{I-2}$$

avec

ε permittivité du matériau en $F.m^{-1}$

ε_0 permittivité du vide ($8.85.10^{-12}F.m^{-1}$)

Ainsi, la déformation est une fonction quadratique du champ appliqué (I-3), et pour un faible champ électrique (inférieur à $10V/\mu m$).

$$S_{ij} = M_{ij}E^2 \quad \text{I-3}$$

avec M_{ij} coefficient d'électrostriction.

Le comportement électrostrictif existe dans les diélectriques (polymères ou céramiques) non symétriques (appelé 1^{er} forme) ou se retrouve au sein de polymères électrostrictifs à changement de phase (appelé 2nd forme). La seconde forme apparaît pour les dérivés du PVDF tel le co-polymère P(VDF-TrFE) ou le terpolymère P(VDF-TrFE-CTFE), polymères semi-cristallin dont les performances sont fonction des changements de phases (ferroélectrique- paraélectrique). Ce mode de fonctionnement en actionneurs sera discuté plus en détail dans les prochains paragraphes de ce manuscrit.

I.5.3 Principe de fonctionnement des polymères diélectriques

L'utilisation possible d'un polymère diélectrique (DP) comme un moyen d'actionnement a été initialement proposé par SRI International en 1998[Ron1998]. Les polymères diélectriques (élastomère en silicone ou acrylique par exemple HS3, commercialisé par la compagnie Dow Coming) fonctionnent sur le principe d'une capacité variable. Ils sont constitués d'une feuille d'élastomère revêtue sur ses deux faces d'une couche d'un matériau conducteur hautement élastique fonctionnant comme électrode. Lorsqu'une tension est appliquée, une pression électrostatique σ_m , appelée pression de Maxwell, apparaît aux bornes des électrodes. Cette pression électrostatique induit une pression mécanique sur les électrodes supérieure et inférieure, si bien que le polymère se contracte selon son épaisseur (3) et s'étend selon son aire (1, 2) (Figure I.5).

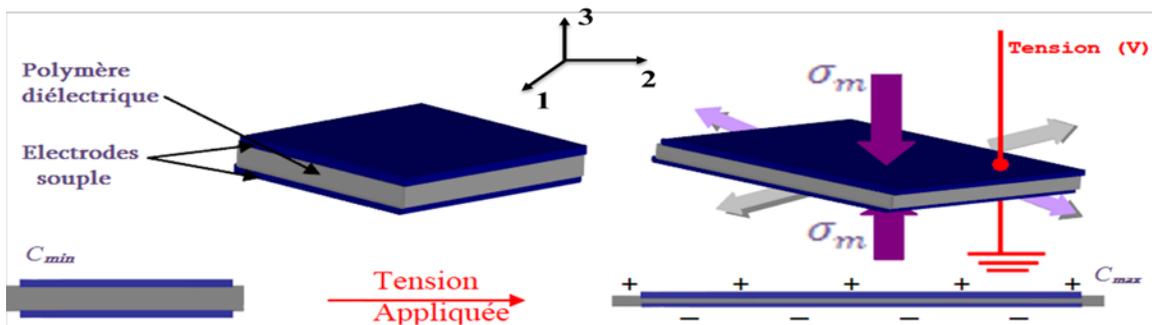


Figure I.5: Principe de fonctionnement en mode actionneur d'un polymère diélectrique

Une capacité variable impliquant un polymère diélectrique souple présente des changements de dimensions selon les trois directions (plan et épaisseur). Ces variations de dimensions induisent des variations de capacité (C_{max} et C_{min}) qui peuvent être plus importantes que celles générées par une capacité variable « classique », mettant en oeuvre des variations selon une seule direction (généralement l'épaisseur).

I.5.4 Les IMPC en actionneur

Depuis les dernières années, le composite métal-polymères ioniques (IPMC) ont donné lieu à un grand nombre de recherche [Sha2003] [Kon2004] [Sha2004a], et sont utilisés essentiellement pour des déplacements en fléchissements à des faibles valeurs en tension. Ces systèmes sont réalisés à partir de membranes organiques conductrices d'ions telles que le Nafion et le Flemion sur lesquelles sont déposées des électrodes. Le principe de fonctionnement est illustré dans la figure I.6.

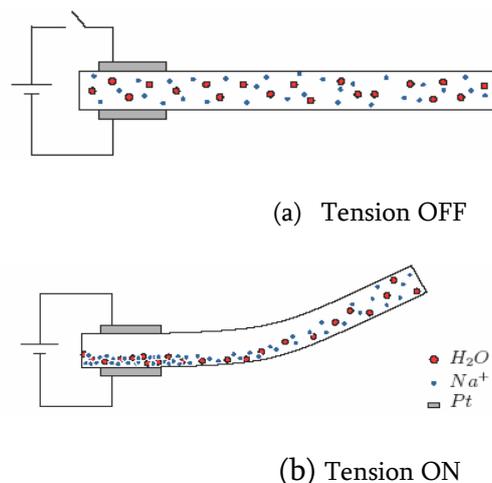


Figure I.6: Représentation schématique d'un actionneur IPMC

Le déplacement des IPMC est dû aux variations de volume liées à des forces électrostatiques générées par une migration ionique au sein de la membrane.

Un des inconvénients réside dans le fait que les IPMC nécessitent de l'eau pour un fonctionnement optimal. Un système fonctionnant dans l'air ambiant devrait être humidifié toutes les 3–5 minutes, à cause des pertes d'eau dans les électrodes et par évaporation. Enfin, le mouvement initial est très rapide, plus petit que 0.1s, mais pour atteindre des angles de déflexion élevés, le temps nécessaire pour arriver à la position final est nettement plus long, il varie avec la tension. Pourtant, les IPMC font l'objet d'études nombreuses tant dans l'élaboration de nouveaux procédés de fabrication, que pour leurs applications [Kim03], [Sha2004b], [Sha2005].

I.6 Propriétés en mode générateur

Après l'étude des polymères en mode d'actionnement, une étude en mode générateur est nécessaire pour une meilleure comparaison et compréhension des polymères électro-actifs sélectionnés. Avant de commencer cette étude, il convient de poser des hypothèses nécessaires pour fixer une base commune de comparaison. Pour cela il faut partir du rendement global d'un dispositif de récupération d'énergie présenté en figure I.7, inspiré de [Jea2008].

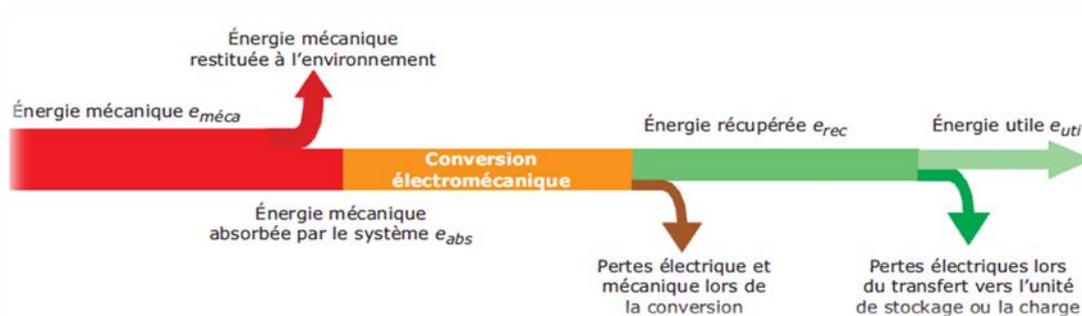


Figure I.7: Énergies mises en jeu lors du processus de récupération d'énergie [Jea2008]

Ce rendement tient compte de l'étage de gestion électrique, il est donné par l'équation (I-4) :

$$\eta_{total} = \eta \eta_{ges} \quad \text{I-4}$$

avec $\eta_{ges} = \frac{e_{uti}}{e_{rec}}$, le rendement de l'étage de gestion électrique

et $\eta = \xi_{abs} \eta_{conv}$, où ξ_{abs} et η_{conv} correspondent au rapport :

$$\xi_{abs} = \frac{e_{abs}}{e_{méca}}, \text{ le coefficient d'absorption mécanique}$$

$$\eta_{conv} = \frac{e_{rec}}{e_{abs}}, \text{ le rendement de conversion électromécanique}$$

où

e_{abs} énergie absorbée par le polymère

$e_{méca}$ énergie mécanique apportée au polymère

e_{rec} énergie électrique récupérée

e_{uti} énergie électrique utile

Si on suppose que le rendement de gestion électrique est sensiblement le même pour ces quatre polymères, la connaissance du rendement de conversion η permet de comparer et de classer ces types de matériaux. Ainsi les modèles établis au cours des prochains paragraphes ne tiennent compte que de l'étape de conversion électromécanique.

I.6.1 Matériaux piézoélectriques

Au vu de la définition de la piézoélectricité, ce matériau est dit actif : la conversion de l'énergie mécanique en électricité avec un matériau piézoélectrique est directe. Elle ne nécessite pas de source secondaire de polarisation externe. Le coefficient de couplage du matériau, qui donne le rapport entre l'énergie convertie et l'énergie totale (norme IEEE Std 176-1987 [ANS1987]), est un outil très utilisé et efficace pour analyser les propriétés des générateurs piézoélectriques.

On définit donc le coefficient de couplage électromécanique dont le carré est égal au rapport entre l'énergie électrique stockée dans le matériau piézoélectrique et l'énergie mécanique appliquée à ce matériau pour l'effet direct (équation I-6), et au rapport entre l'énergie mécanique stockée dans le matériau piézoélectrique et l'énergie électrique appliquée à ce matériau pour l'effet inverse (équation I-5) :

$$k = \sqrt{\frac{\text{Energie mécanique stockée}}{\text{Energie électrique appliquée}}} \quad \text{I-5}$$

ou

$$k = \sqrt{\frac{\text{Energie électrique stockée}}{\text{Energie mécanique appliquée}}} \quad \text{I-6}$$

A partir des différentes constantes propres du matériau, on peut alors exprimer les coefficients de couplage pour divers modes. Les formules (I-7) et (I-8) expriment les coefficients de couplage respectivement pour le mode longitudinal, et le mode transversal.

$$k_{33} = \frac{d_{33}}{\sqrt{\varepsilon_{33}^T s_{33}^E}} \quad \text{I-7}$$

$$k_{31} = \frac{d_{31}}{\sqrt{\varepsilon_{31}^T s_{11}^E}} \quad \text{I-8}$$

Les indices correspondent aux notations classiques, c'est-à-dire que les indices 1, 2 et 3 sont les axes principaux (avec par convention l'axe 3 correspondant à l'axe de polarisation).

Il est possible de calculer les densités maximales d'énergie électrique récupérable à partir de la définition du coefficient de couplage k (équation I-5 et I-6).

$$e_{elec} = k^2 e_{méca} = \frac{1}{2} k^2 Y S^2 \quad \text{I-9}$$

avec Y module de Young et S déformation maximale.

Au vu des calculs dans les travaux effectués par Claire Jean-Mistral [Jea2008], la classe de polymères piézoélectriques susceptibles de récupérer le plus d'énergie est celle des piézo-composites type MFC, avec une valeur de 30 mJ/cm^3 . Cette valeur de densité nous servira par la suite de référence pour comparer les différents polymères électro-actifs. Mais du point de vu du couplage électromécanique, les monocristaux sont les candidats qui produisent les meilleures performances [Seb2004] [Haj2007].

I.6.2 Matériaux électrostrictifs

Dans l'électrostriction, le matériau subit un seul effet contrairement à la piézoélectricité, c'est-à-dire qu'une contrainte n'entraîne pas de polarisation du matériau [Liu2004] [Liu2005]. Ce matériau est dit passif. Pour convertir de l'énergie mécanique en électricité, le polymère doit subir des cycles énergétiques. En d'autres termes, le polymère « ne doit pas suivre le même chemin » lors de son étirement (chemin A) et lors de sa contraction (chemin B), chemins représentés sur la Figure I.8.

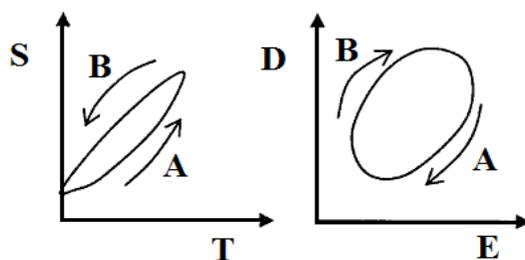


Figure I.8: Cycle à réaliser avec un matériau électrostrictif pour la récupération d'énergie [Liu2004]

L'énergie électrique récupérée est maximale pour une combinaison particulière de conditions aux limites lors de la réalisation de ce cycle (figure I.8). Ainsi, à partir des équations intrinsèques de l'électrostriction, le calcul des variations mécaniques et électriques sur les chemins A et B est possible, ce qui permet pour des conditions aux limites adéquates de calculer l'énergie électrique récupérée.

Comme pour la piézoélectricité, les équations intrinsèques de l'électrostriction s'obtiennent par dérivation d'un potentiel énergétique préalablement choisi. Ainsi, à température constante et sans phénomène d'hystérésis, les équations constitutives de l'électrostriction sont données par le système d'équation (I-10).

$$\begin{cases} S_{ij} = s_{ijkl}^E \tau_{ij} + M_{mnij} E_n E_m \\ D_m = \varepsilon_{mn} E_n + 2M_{mnij} E_n \tau_{ij} \end{cases} \quad \text{I-10}$$

Toutefois, sous un champ électrique fort, la polarisation P sature en fonction du champ électrique comme on le verra au chapitre 3. Il est alors plus correct d'utiliser la polarisation comme variable. Les équations constitutives fonction de la polarisation sont données par le système (I-11).

$$\begin{cases} E_m = \varepsilon_{mn}'^{\tau} P_n + 2Q_{klmn} \tau_{kl} P_m \\ S_{ij} = s_{ijkl}^P \tau_{kl} + Q_{ijmn} P_m P_n \end{cases} \quad \text{I-11}$$

avec $\varepsilon_{mn}'^T$ l'inverse de la permittivité.

Connaissant le principe de fonctionnement d'un cycle générateur et les équations constitutives. Nous pouvons donc maintenant choisir le meilleur cycle de génération d'électricité en spécifiant les conditions aux limites à imposer. Puis, nous pourrions calculer l'énergie électrique récupérée lors des cycles imposés.

Pour déterminer les conditions aux limites adéquates, il faut utiliser le coefficient de couplage k dont la définition est calée sur celle des matériaux piézoélectriques, elle est rappelée en (I-12).

$$k = \sqrt{\frac{W_1}{W_1 + W_2}} \quad \text{I-12}$$

où $W_1 + W_2$ est la densité d'énergie d'entrée mécanique, et W_1 représente la densité d'énergie électrique de sortie.

Le facteur de couplage est souvent associé à un ensemble spécifique de conditions aux limites électriques. Plus celui-ci est élevé, plus on récupère de l'énergie électrique. A partir des

travaux de Liu et al. [Liu2004] [Liu2005], il est possible d'étudier différentes conditions aux limites afin de déterminer le facteur de couplage optimal k défini selon l'équation I-12. La figure I.8 illustre le cycle ayant le coefficient de couplage le plus important qui est nommé par Les auteurs cycle à charge constante.

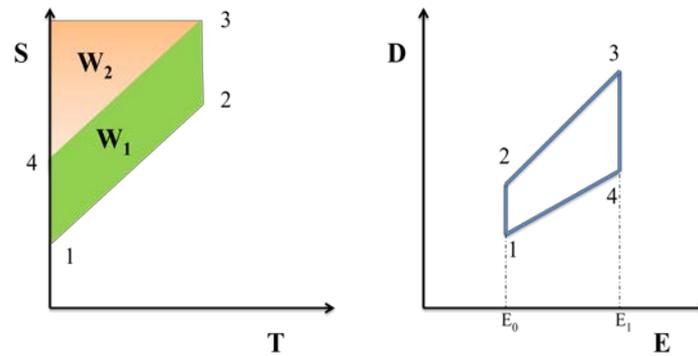


Figure I.9: Cycle de récupération d'énergie sous champ électrique constant lors des phases d'étirement et de compression [Liu2004]

En pratique, le polymère est au repos en phase 1 (contrainte τ nulle, déformation S constante). Un champ électrique constant E_0 est appliqué de la phase 1 à 2, le polymère est étiré mécaniquement et la contrainte passe à une valeur maximale τ_{max} . Puis sous cette valeur de la contrainte, le champ électrique passe d'une valeur E_0 à une valeur E_1 plus élevée : phase 2 à 3. Ensuite le champ électrique est maintenu constant (E_1) jusqu'à ce que le polymère se relaxe et retourne progressivement à un état sans contrainte ($\tau = 0$) : phase 3 à 4. Enfin, à contrainte nulle, le champ électrique revient à la valeur E_0 et le polymère peut retrouver ces dimensions initiales : phase 4 à 1. Dans la courbe mécanique contrainte/déformation, le chemin 1-4 et 2-3 ne sont pas parallèles, en raison de la dépendance de la contrainte à la constante diélectrique. L'énergie convertie peut être exprimé par l'équation (I-13) :

$$W_1 = \tau_{1max} M_{31} (E_1^2 - E_0^2) \quad \text{I-13}$$

La densité d'énergie mécanique apportée $W_2 = \frac{1}{2} S_1 \tau_{1max}^2$, et par conséquent, le facteur de couplage est donnée par l'équation (I-14):

$$k = \sqrt{\frac{M_{31}(E_1^2 - E_0^2)}{\frac{1}{2} S_1 \tau_{1max}^2 + M_{31}(E_1^2 - E_0^2)}} \quad \text{I-14}$$

Le maximum de la densité d'énergie récupérée et du couplage se produit lorsque E_0 est fixé à zéro et E_1 est fixé à E_{max} (champ de claquage).

Le tableau I.4 illustre les valeurs de la densité d'énergie récupérée, le coefficient de couplage pour deux types de polymères électrostrictifs couramment utilisés.

Tableau I.4: Maximum d'énergie récupérable pour deux types de polymères électrostrictifs (extrait [Cot2010])

Type de polymère	ϵ_{33}	M_{31} (m^2/V^2)	s_{11} (Pa^{-1})	E_{max} (kV/mm)	τ_{max} (MPa)	$W_{1,max}$ (J/cm^3)	k
P(VDF-TrFE-CFE)	$50 \epsilon_0$	2.10^{-18}	$2.5.10^{-9}$	150	20	0.9	0.483
Polyuréthane	$7.5 \epsilon_0$	$3.6.10^{-18}$	6.10^{-8}	175	2	0.221	0.807

I.6.3 Les polymères diélectriques

A partir de phénomène décrit dans le paragraphe I.5.3, il est possible de récupérer de l'énergie comme l'a démontré Jean-Mistral [Jea2008]. En effet, si on applique une tension électrique à un élastomère étiré, des charges électriques sont déposées au niveau des électrodes. Lorsqu'on relâche la contrainte mécanique, la contraction qui en découle (pression mécanique) travaille contre la pression électrostatique et génère ainsi de l'énergie électrique [Pel2001]. Figure I.10 illustre le mécanisme de base.

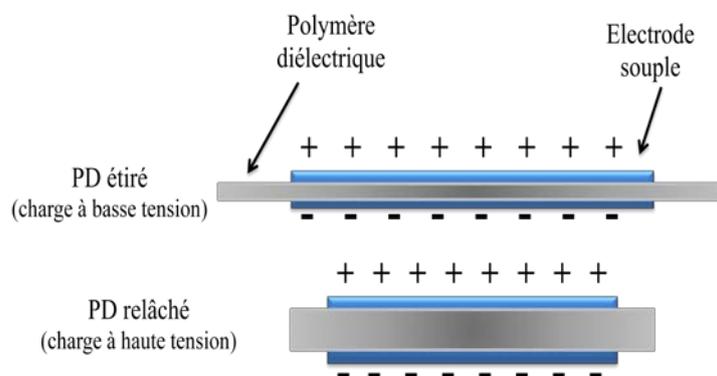


Figure I.10: le mécanisme de base du mode générateur d'un polymère diélectrique

Cette énergie générée durant la phase de compression, diminuée des pertes et de l'énergie nécessaire à l'étirement du polymère (équation I-15).

$$e_{générée} = e_{compression} - e_{pertes} - e_{étirement} \quad \text{I-15}$$

En négligeant les pertes, l'énergie générée s'écrit sous la forme donnée par l'équation I-16 :

$$e_{générée} = \frac{1}{2} v_{volume} \epsilon_0 \epsilon_r (E_{compression}^2 - E_{étirement}^2) \quad \text{I-16}$$

avec

ε_0 permittivité du vide

ε_r permittivité relative du polymère

v_{volume} le volume du polymère

E le champ électrique

Des calculs effectués par Pelrine et al. [Pel2001] sous champ électrique de claquage (pour $E_{compression}$), en négligeant les pertes et l'énergie nécessaires à l'étirement montrent que les polymères diélectriques possèdent une densité d'énergie récupérable élevée et fonctionnent à faible fréquence. Cette densité est dix fois supérieure à celles obtenues avec les polymères électrostrictifs. Mais, comme pour les polymères électrostrictifs, ce générateur requiert une source annexe pour charger le polymère.

I.6.4 Les polymères ioniques type IPMC

Pour le mode générateur des polymères ioniques type IPMC, l'effet inverse est appelé « flexoelectric effect » : une flexion, compression où une charge sur un polymère IPMC produit une tension électrique de sortie [Sha1995] [Gen2000] [Sha2002]:

- en régime quasi-statique : Il existe une relation linéaire entre la tension de sortie et le déplacement imposé au polymère.
- en régime dynamique : Outre les impacts qui génèrent des oscillations libres et amorties au sein du polymère, une sollicitation mécanique sinusoïdale engendre une tension de sortie sinusoïdale de même fréquence.

Les polymères ioniques type IPMC sont actifs comme les piézoélectriques. Ainsi, on peut déterminer des équations constitutives du matériau liant les grandeurs électriques de sortie en fonction des grandeurs mécaniques d'entrée.

De point de vue énergétique, il existe une variété de modèles que l'on peut classer en modèles moléculaires et modèles globaux [Sha2004a]. Au niveau moléculaire, un modèle macroscopique simple permet de remonter à la densité d'énergie disponible pour la récupération d'énergie. D'abord, on définit l'énergie électrique au sein du matériau qui est donnée par l'équation (I-17).

$$W = \frac{1}{2} CV^2 \tag{I-17}$$

avec C capacité du polymère IPMC mesurée expérimentalement ($>100\mu\text{F}$ aux faibles fréquences) et V tension générée aux bornes du composant.

Ce modèle a été proposé par P.G. De Gennes [Gen2000] pour modéliser l'effet direct et inverse (flexoelectric) au sein d'un polymère ionique type IPMC. Le système d'équations couplées est reporté au sein de l'équation (I-18).

$$\begin{cases} \vec{J} = \kappa \vec{E} - L_{12} \nabla \vec{p} \\ \vec{\varphi} = L_{12} \vec{E} - K_p \nabla \vec{p} \end{cases} \quad \text{I-18}$$

avec \vec{J} densité de courant, \vec{E} champ électrique, $\nabla \vec{p}$ gradient de pression, $\vec{\varphi}$ flux d'eau, κ conductivité ionique mesurée expérimentalement (de $2 \cdot 10^{-4}$ à $24 \cdot 10^{-4} \text{ S/cm}$), K_p perméabilité de Darcy et $L_{12} = L_{21} = L$ coefficient de section mesuré expérimentalement ($10^8 \text{ (m.s}^{-1}) / \text{(V.m}^{-1})$).

Finalement, par combinaison des équations (I-17) et (I-18), on obtient une densité d'énergie récupérable variant de $5 \mu\text{J.cm}^{-3}$ à $0,33 \text{ J.cm}^{-3}$. Cette plage de densité d'énergie est assez vaste à cause des valeurs que peuvent prendre les constantes (κ, L).

II. Bilan général des systèmes de la récupération d'énergie

Depuis quelques années, le développement des applications mobiles sans fil connaît un essor remarquable. Un défi, apparu dans les années 90, est de pouvoir alimenter ces dispositifs portables en exploitant les ressources présentes dans l'environnement humain. En parallèle, le développement des capteurs communicants (déconnectés du réseau d'énergie électrique) génère également ses propres problèmes d'alimentation, en particulier liés aux opérations de changement de piles. L'auto-alimentation de tous ces dispositifs devient envisageable grâce à la conjonction de la baisse des consommations des circuits électroniques, à la possibilité de réaliser des récupérateurs de ressources ambiantes suffisamment performants et aux progrès réalisés dans le stockage d'énergie électrique.

Dans cette partie, nous dressons un bilan des ressources énergétiques exploitables dans l'environnement, nous nous intéressons dans ce paragraphe aux différents principes de conversion d'énergie mécanique, thermique, photovoltaïque et électromagnétique haute fréquence, en énergie électrique exploitable. Pour illustrer ces différents principes de conversion, nous nous appuyons sur des systèmes décrits dans la littérature.

II.1 Les ressources énergétiques ambiantes

Une première source d'énergie provient de l'environnement entourant le système considéré.

En effet il existe un ensemble de phénomènes mécaniques, thermiques, électromagnétiques usuellement indésirables mais producteurs d'énergie (figure I-11). Ces différentes sources sont détaillées ci-après.



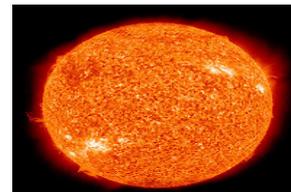
L'énergie mécanique

- Vibrations
- Déformations
- Chocs



L'énergie thermique

- Gradients de température
- Variations de température



L'énergie électromagnétique

- Lumière
- Rayonnements hyperfréquences

Figure I.11: Les sources d'énergies ambiantes

II.1.1 Les ressources mécaniques

Les ressources mécaniques peuvent provenir des mouvements du corps humain, naturels ou volontaires, mais également de vibrations ambiantes dues aux machines environnantes ou aux bruits acoustiques. Nous allons différencier ces deux types de ressources.

II.1.1.1 Les ressources du corps humain

Les puissances dissipées par le corps humain sont liées aux puissances consommées par le corps pour réaliser une action mécanique donnée que multiplie le rendement de conversion métabolique. En effet, au repos ou durant des activités quelconques, le corps humain convertit de l'énergie, parfois exprimée en calories par heure. Starner, dans [Sta1996], a répertorié la puissance calorifique consommée pour différentes activités comme dormir, être debout, jouer du piano, nager... A titre d'exemple, la puissance calorifique consommée est d'environ 160W lorsque l'on conduit une voiture, et de 580W lorsque l'on nage. Pour la production de travail mécanique, le rendement énergétique humain n'est pas unitaire, c'est-à-dire qu'il s'accompagne de pertes se traduisant par un dégagement de chaleur. Le rendement de conversion correspondant, évalué à 25% [Sta1996], nous permet donc d'estimer la puissance

récupérable. En reprenant les exemples précédents, pendant la conduite d'une voiture elle est de $40W$, et de $150W$ pour la nage.

II.1.1.2 Les vibrations ambiantes

Les vibrations mécaniques ambiantes sont de natures diverses : elles sont généralement dues aux machines tournantes, mais peuvent également être induites dans le sol et les murs par les véhicules ou la météo (vent, pluie...). Elles sont sujettes à de grandes variations de fréquence et d'amplitude. Il est donc possible de les quantifier lorsque l'on connaît toutes les caractéristiques des vibrations.

La plupart des applications des réseaux de capteurs sans fil concerne des environnements riches en vibrations mécaniques (milieu industriel, transports). L'exploitation de l'énergie vibratoire ambiante apparaît donc comme un excellent moyen de remplacer l'usage des batteries qui limite la durée de vie de ces réseaux. Dans ce but, plusieurs types de micro-générateurs ont été développés qui convertissent l'énergie mécanique en énergie électrique.

Il existe à ce jour trois moyens de convertir l'énergie vibratoire :

- par conversion magnétique,
- par conversion électrostatique,
- par conversion piézoélectrique.

Nous présentons par la suite ces différentes conversions de l'énergie vibratoire issues de l'état de l'art.

II.1.1.2.1 Conversion électromagnétique

L'induction électromagnétique, découverte par Faraday en 1831, consiste en la génération d'un courant électrique dans un conducteur placé dans un champ magnétique. Dans la plupart des cas, le conducteur est sous la forme d'une bobine et l'électricité est générée par le mouvement d'un aimant dans la bobine grâce à la variation du flux du champ magnétique (figure I-12). Le courant ainsi généré dépend de l'intensité du flux du champ magnétique, de la rapidité du déplacement de l'aimant et du nombre de tours de la bobine.

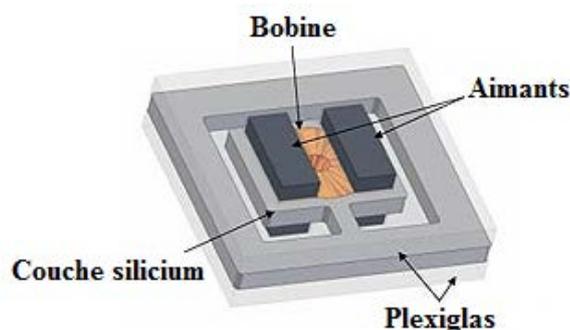


Figure I.12: Schéma du micro-générateur électromagnétique [Don2006]

La valeur de la tension générée est déterminée par la loi de Faraday, selon l'équation I.19

$$E = -n \frac{\partial B}{\partial t} \quad \text{I-19}$$

avec

E : force électromotrice.

n : nombre de tours de l'inducteur.

B : champ magnétique passant par l'inducteur

Il existe de nombreux systèmes qui utilisent la conversion électromagnétique et notamment des systèmes déjà commercialisés. Nous pouvons tout d'abord citer la montre Seiko. L'idée est d'utiliser les mouvements du poignet pour mettre en rotation un rotor excentré placé dans une montre. Ce système est largement suffisant pour alimenter une montre, néanmoins, la tension de sortie reste très faible (de l'ordre de 0,1 V) (figure I.13).

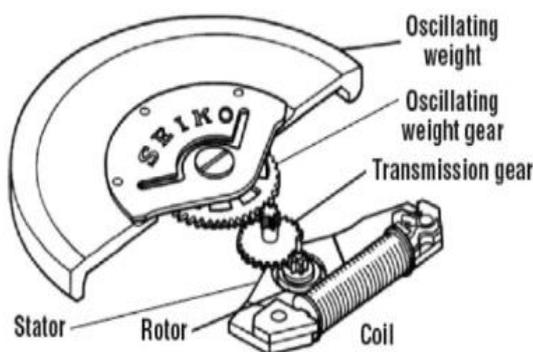


Figure I.13: Montre à rotor excentrée – Seiko

Nous pouvons également donner l'exemple des interrupteurs sans fil à convertisseurs électromagnétiques de EnOcean (figure I.14).



Figure I.14: Interrupteurs à convertisseurs électromagnétiques – EnOcean

Un grand nombre de travaux ont été réalisés sur ce sujet. Certaines réalisations concernent des puissances comprises entre $1 \mu W$ et $100 \mu W$ et correspondent à l'échelle des microsystèmes électromécaniques (micro-electromechanical system ou MEMS dans la littérature anglo-saxonne). D'autres réalisations, utilisant des structures plus grandes, atteignent des puissances de quelques centaines de μW .

Le dispositif développé par Li et al [Li2000], permet d'alimenter un émetteur infrarouge. Il occupe un espace de 1cm^3 environ et permet de fournir $70 \mu W$. Comme la puissance nécessaire pour émettre est de 3mW pendant 140ms , l'énergie est tout d'abord accumulée sur un condensateur jusqu'à ce qu'elle soit suffisante pour une émission. Des systèmes fournissant des puissances supérieures au mW ont également été réalisés, ainsi le dispositif d'El-Hami et al [Ham2001], qui permet de générer un peu plus de 1mW pour un volume de 240mm^3 ou celui de James et al [Jam2004], dont la puissance de sortie atteint 3mW .

II.1.1.2.2 Conversion électrostatique

Les générateurs électrostatiques sont constitués d'un condensateur, initialement chargé, dont les électrodes peuvent se mouvoir. Le mouvement des électrodes, généré par exemple par des vibrations ambiantes, a pour effet soit de diminuer, à tension constante, la capacité, dans ce cas des charges électriques sont générées, soit, à charge constante, d'augmenter la tension aux bornes de la capacité et donc l'énergie électrostatique (Figure I.15).

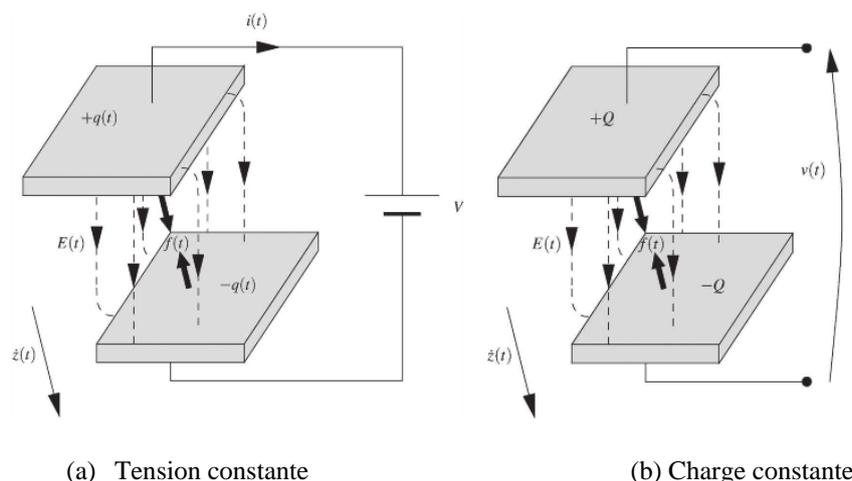


Figure I.15: Principe de fonctionnement d'un générateur électrostatique [Mit2008]

Les générateurs électrostatiques sont réalisés à l'aide d'étapes technologiques initialement développées pour les MEMS. Ainsi, les compétences pour la création de structures dans le plan (in-plane) et hors du plan (out-of-plane) sont déjà existantes. La densité d'énergie récupérée peut être augmentée en diminuant les entrefers des capacités, ce qui facilite leur miniaturisation. Ceci crée un compromis car la réduction des entrefers limite le mouvement de la structure et réduit la surface des capacités.

Malheureusement, les générateurs électrostatiques nécessitent une polarisation initiale, ceci pose un problème lors du démarrage de la charge d'une batterie. Il peut être résolu grâce à l'utilisation d'électrets [Mik2010], d'un générateur piézoélectrique [Khb2006], ou d'une pompe de charge MEMS [Bas2009]. L'impédance de sortie est souvent importante, rendant les générateurs électrostatiques peu adaptés à une utilisation en tant que générateur de courant. Les générateurs électrostatiques nécessitent un convertisseur et un système de gestion d'énergie pour contrôler la structure capacitive et garantir une récupération maximale d'énergie [Sal2006].

II.1.1.2.3 Conversion piézoélectrique

Les micro-générateurs piézoélectriques sont basés sur l'effet direct de la piézoélectricité, à savoir que l'application d'une contrainte sur un matériau piézoélectrique électrodé entraîne l'apparition d'une tension entre les électrodes. Ce type de convertisseur utilise les contraintes mécaniques en régime quasi-statique c'est à dire que la fréquence de fonctionnement est beaucoup plus faible que la fréquence de résonance propre du système de récupération. L'énergie délivrée par ces générateurs est proportionnelle à la fréquence de répétitions de

contraintes utilisées [Pou2004]. De plus, ce sont uniquement des contraintes de fortes valeurs qui peuvent être utilisées, comme le poids d'un homme en marche ou l'appui sur une touche.

Dans ce contexte, un groupe de recherche au sein du M.I.T (Massachusetts Institute of Technology, Cambridge) a réalisé, en collaboration avec la DERA, deux dispositifs de génération d'énergie électrique lors de la marche, puis une comparaison de ces deux dispositifs [She2001]. Le premier dispositif repose sur l'implantation d'une feuille de PVDF flexible dans la semelle et récupère l'énergie de mouvement de flexion de chaque pas (figure I.16). Une charge résistive de $250\text{ k}\Omega$ a été utilisée. Ceci a permis la récupération d'une puissance de $1,3\text{ mW}$.

Le deuxième dispositif formé de deux rubans précontraints et incurvés de céramique PZT « dimorphe » est placé dans le talon de la chaussure. Le choix d'utilisation de deux rubans est destiné à maximiser la contrainte et donc la puissance moyenne récupérée ($14,4\text{ mW}$ sur une charge résistive de $500\text{ k}\Omega$). Cette chaussure est équipée également d'un système électrique de conversion [She1999]. La commande des interrupteurs est réalisée de telle sorte que les charges apparues pour chaque cycle sont recueillies à chaque maximum ou minimum de déformation du dispositif mécanique. Ceci garantit un fonctionnement optimal. Pour une fréquence de marche égale à $0,8\text{ Hz}$, le rendement maximal obtenu est de 18% , équivalent à une puissance de $1,3\text{ mW}$.

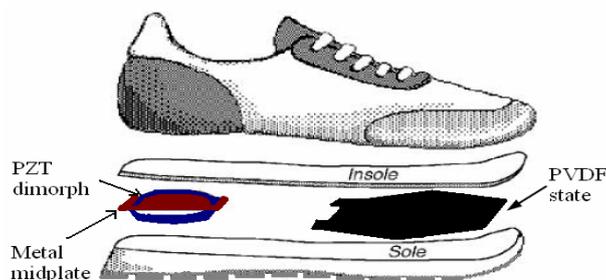


Figure I.16: Deux dispositifs de génération d'énergie intégrés dans une chaussure [She2001]

En régime dynamique, le système piézoélectrique est soumis à des sollicitations de fréquences proches de la résonance généralement imposées par le support sous l'effet d'une force extérieure. Notons que cette fréquence de résonance dépend fortement des conditions d'encastrement du matériau piézoélectrique sur le support. En outre, les pertes mécaniques à cet encastrement ont pour effet de diminuer le coefficient de qualité du matériau piézoélectrique [Vas2003]. D'autres pertes dues à des phénomènes thermodynamiques, de

rayonnement acoustique, des pertes structurales et la présence de l'air autour du système peuvent également réduire le rendement de la génératrice de courant [Nou2007].

Roundy et al [Rou2003] ont proposé une macrogénératrice piézoélectrique d'un cm^3 de volume (figure I.17). Ce dispositif est constitué d'un bimorphe en titane de zirconium avec une poutre centrale en acier. Une masse est également fixée sur l'extrémité libre du convertisseur. L'excitation du convertisseur est effectuée par un excitateur électromagnétique à la fréquence de 120 Hz et une accélération de 2.25 m^{-2} . Le coefficient de couplage piézoélectrique mesuré est égal à $0,12$. Ce générateur donne une puissance maximale de $65 \mu\text{W}$ pour une charge résistive de $200 \text{ k}\Omega$. La puissance récupérée peut atteindre $200 \mu\text{W}$ en utilisant une électronique de récupération mieux adaptée.

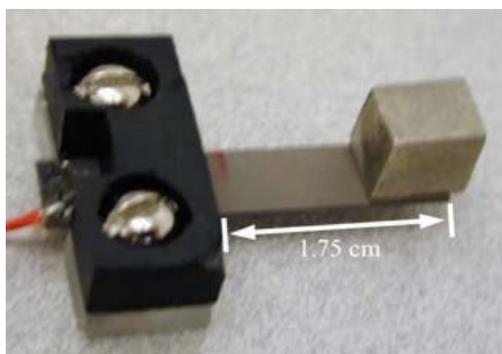


Figure I.17: Prototype du convertisseur piézoélectrique [Rou2003]

Dans le cadre de la thèse effectuée par M. Marzencki (projet VIBES) [Mar2006], un microgénérateur est fabriqué avec un volume de 2 mm^3 (figure I.18). L'épaisseur de la couche supérieure de silicium est de $5 \mu\text{m}$, sur laquelle une couche de PZT ou de nitrure d'aluminium (AlN) est déposée. Grâce à des simulations par éléments finis, il a été possible d'estimer la tension et l'énergie récupérable à l'aide de cette structure. Pour une excitation du microgénérateur avec une accélération de $5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-2}$ et une fréquence de 750 Hz , la puissance récupérée est d'environ 80 nW (utilisation d'une résistance de charge de $100 \text{ k}\Omega$). Comme on le constate, la valeur de la puissance électrique est relativement faible.

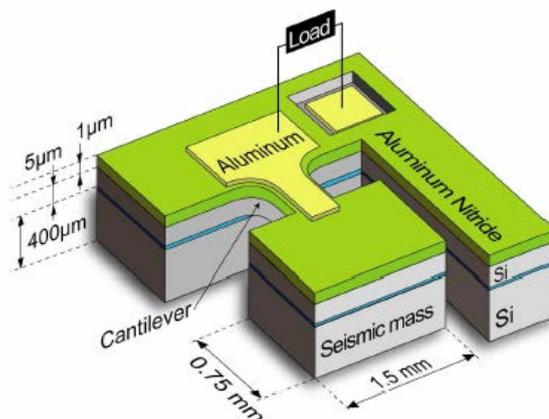


Figure I.18: Prototype du microconvertisseur piézoélectrique [Mar2006]

Finalement, Le choix de la catégorie de fonctionnement des systèmes piézoélectriques dépend de l'application visée et de la quantité d'énergie mécanique disponible dans cet environnement susceptible d'exciter le transducteur piézoélectrique.

II.1.1.2.4 Conversion magnétostrictive

Soumis à une induction magnétique B , certains matériaux ferromagnétiques se déforment. Réciproquement, lorsqu'ils subissent une déformation sous l'action de forces extérieures, ils sont le siège d'une variation d'induction. Ces couplages entre grandeurs magnétiques et mécaniques sont appelés effets Joule et Villari, de manière générale magnétostriction. Ce phénomène fut découvert pour la première fois par James Prescott Joule en 1847, qui démontra son existence en mesurant l'allongement d'un échantillon de fer soumis à un champ magnétique [Jou1847].

Un transducteur magnétostrictif est typiquement constitué d'un solénoïde traversé par un courant d'excitation servant à générer un champ magnétique variable, à l'intérieur duquel se trouve placé un barreau en matériau ferromagnétique, le tout étant enfermé dans un cylindre assurant la fermeture du circuit magnétique (figure I.19). Afin d'assurer des déplacements bidirectionnels, une magnétisation statique du matériau est obtenue soit au moyen d'un aimant permanent, soit en faisant circuler dans le solénoïde un courant continu qui vient se superposer au courant d'excitation variable. D'autre part, une précontrainte mécanique est généralement appliquée au barreau ferromagnétique au moyen d'un boulon, ceci afin de faire travailler le transducteur en compression et ainsi toujours garantir la transmission des efforts mécaniques à l'interface du transducteur et de la charge appliquée. Les matériaux ferromagnétiques employés peuvent être le fer, le nickel, ou des alliages aluminium-fer

(alfenol) ou nickel-cobalt, bien que le matériau le plus couramment utilisé soit le Terfenol-D, du fait de ses bonnes performances magnétostrictives.

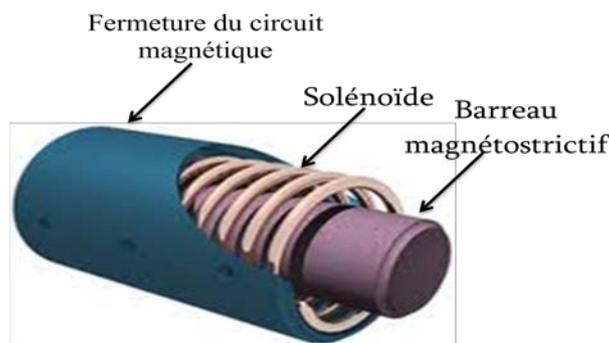


Figure I.19: Principe de fonctionnement d'un générateur magnétostrictif

Staley et Flatau ont tenté d'appliquer un alliage Terfenol-D dans la récupération d'énergie de vibration. La tige Terfenol-D a été exploitée en mode axial plutôt que le mode pliage à la flexion. La puissance de sortie maximale est de $45 \mu W$ à la fréquence de résonance de 45 Hz , et l'amplitude de la tension de sortie AC est inférieure à 0.35 V , qui n'était pas applicable à la rectification de tension [Sta2005].

Wang et Yuan ont d'abord proposé la possibilité d'utiliser le verre métallique amorphe (Metglas 2605SC) comme les matériaux magnétostrictifs (MsM) pour capter l'énergie des vibrations ambiantes. Ils ont introduit un modèle d'un circuit équivalent électrique-mécanique pour analyser les performances de sortie de la récolteuse, et optimisé la configuration des aimants de polarisation et de la performance de sortie [Wan2006]. La puissance de sortie max atteint $200 \mu W$. Récemment, ils ont terminé la conception d'intégration de systèmes et d'améliorer la performance de sortie en utilisant un traitement de recuit transversalement à Metglas [Wan2007].

Par rapport aux matériaux piézo-électriques, le Metglas 2605SC offre des avantages, y compris l'efficacité énergétique de conversion plus élevée, les cycles de vie plus longue, le manque de dépolarisation et une plus grande flexibilité pour survivre dans de fortes vibrations ambiantes. Pour améliorer le rendement de la conversion d'énergie et réduire la nécessité d'un champ magnétique de polarisation, les rubans Metglas sont transversalement recuits par un fort champ magnétique le long de leur direction en largeur. Selon les résultats expérimentaux, la puissance moyenne et la densité de puissance pendant le chargement du ultracondensateur peut atteindre $576 \mu W$ et $606 \mu W / \text{cm}^3$ (en ce qui concerne le volume du matériau actif) à

haute fréquence, qui sont en concurrence favorable avec les pêcheurs de vibration piézoélectrique [Wan2008].

En comparaison avec les récupérateurs piézoélectriques, les récupérateurs à base de Metglas ont une grande efficacité de couplage ($> 0,9$), une température de Curie plus élevée, une plus grande flexibilité pour être intégré avec des structures courbées, et aucun problème de dépolarisation. Cependant, il est de dimension relativement importante, qui est difficile à être intégré avec MEMS, en raison de la bobine exploratrice et des aimants permanents.

II.1.2 Les ressources thermiques

L'énergie thermique est l'autre forme d'énergie facilement présente dans l'environnement. Les dispositifs thermiques de récupération de l'énergie pourraient utiliser l'énergie thermique de différentes sources: les personnes et les sources de chaleur ambiante (les machines thermodynamiques, voitures,...etc.). Nous allons individualiser ces deux types de ressources.

II.1.2.1 La chaleur humaine

La chaleur produite par le corps humain pour se maintenir à une température proche de $T_{Corps} = 37^{\circ}C$ va se propager dans son environnement. Ainsi, si la température de l'air ambiant est plus faible, par exemple $T_{amb} = 20^{\circ}C$, un flux de chaleur, exprimé en $W.m^{-2}$, se crée de la source chaude vers la source froide tel que :

$$P_S = h(T_{Corps} - T_{amb}) \quad I-20$$

Le coefficient h est un coefficient d'échange thermique estimé à $8 W.m^{-2}.^{\circ}C$ dans l'air, au repos. En considérant un écart de température entre le corps et le milieu ambiant de $17^{\circ}C$, on en déduit approximativement que la peau nue dissipe environ $140 W.m^{-2}$ soit $14 mW.cm^{-2}$. Cependant, les vêtements limitent la puissance dissipée en réduisant sensiblement l'écart de température entre la peau et l'intérieur des vêtements et ainsi le coefficient d'échange équivalent avec l'extérieur. Quoiqu'il en soit, pour les zones où la peau est à l'air libre, les échanges thermiques dépendent directement de la température extérieure.

Parmi l'utilisation de chaleur produite par les corps humains, par exemple dans la Gare centrale de Stockholm, la plus importante de Suède. Environ 250 000 voyageurs la fréquentent chaque jour et font sans le savoir, du bien à l'environnement. Tous ces corps produisent de la chaleur, d'où l'idée de la récupérer pour faire des économies d'énergie. La

société publique, propriétaire des lieux, a installé un dispositif pour capter la chaleur en excès dans la gare et l'acheminer dans un bâtiment de l'autre côté de la rue. Ce qui permettrait de réduire la facture énergétique de ce second immeuble de 25 %.

II.1.2.2 Les sources de chaleur ambiante

De nombreux systèmes sont sujets à des pertes se traduisant par des émissions de chaleur, et peuvent donc être considérés comme des sources potentielles d'énergie. A titre d'exemples, les machines thermodynamiques, comme les réfrigérateurs, rejettent de la chaleur pendant leur cycle de fonctionnement, tout comme le pot d'échappement des voitures évacuant des gaz pouvant atteindre une température de 700 °C.

II.1.3 Les ressources électromagnétiques

Dans cette première section, nous nous intéressons aux systèmes électromagnétiques. En considérant l'étendue du spectre électromagnétique représentée dans la figure I.20 (fréquences et longueurs d'onde), nous pouvons classer les sources électromagnétiques en deux parties : celle correspondant à la lumière visible, et celles liées aux dispositifs de communication sans fil (téléphonie, WiFi, radar. . .).

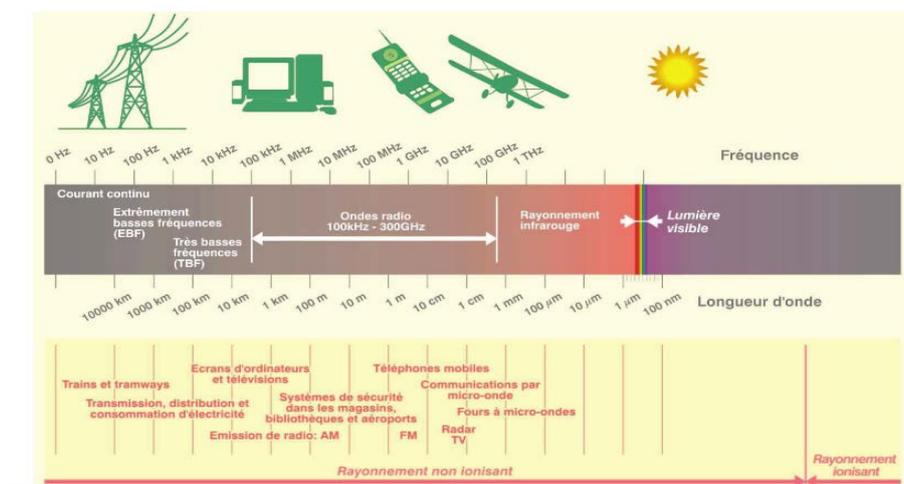


Figure I.20: Étendue du spectre électromagnétique [Ibg2007]

II.1.3.1 Source lumineuse

Le rayonnement naturel le plus énergétique est le rayonnement solaire. Il est largement utilisé pour satisfaire les besoins énergétiques des maisons isolées. Plusieurs systèmes de plus petite

taille sont alimentés par cette énorme source d'énergie (montres, calculatrices, des téléphones d'urgence sur les autoroutes, etc.).

La puissance maximale du rayonnement solaire reçu sur Terre vaut environ $1 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-2}$, ce qui correspond très approximativement à un éclairage de $100\,000 \text{ lux}$. Selon les conditions météorologiques (soleil voilé, ciel nuageux ...), la puissance devient plus faible. Par contre, pour les éclairages artificiels, elle varie globalement entre 1 à $15 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$, ce qui équivaut à un éclairage compris entre 100 et 1500 lux . A titre d'exemple, dans une voie de circulation intérieure, l'éclairage moyen est de 70 lux , dans un bureau de 350 lux , et dans un bloc opératoire de $10\,000 \text{ lux}$.

La récupération d'énergie issue du rayonnement solaire est possible grâce à l'utilisation de cellules photovoltaïques fabriquées à partir de wafers de silicium dans la majorité des cas. La figure I.21 présente les rendements de différentes cellules photovoltaïques de l'état de l'art. A noter que ce rendement dépend fortement de la technologie mise en jeu mais également de l'ensoleillement (figure I.22).

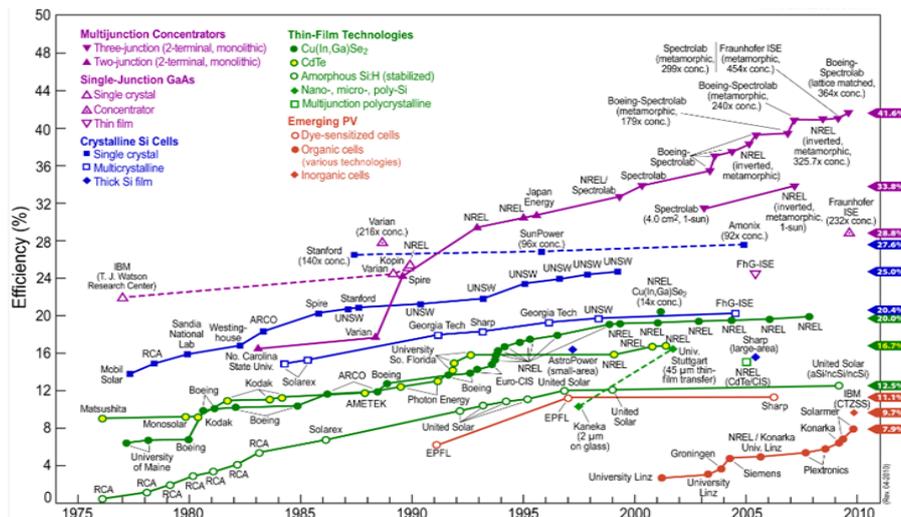


Figure I.21: Evolution du rendement de différents types de cellules photovoltaïques [NREL]

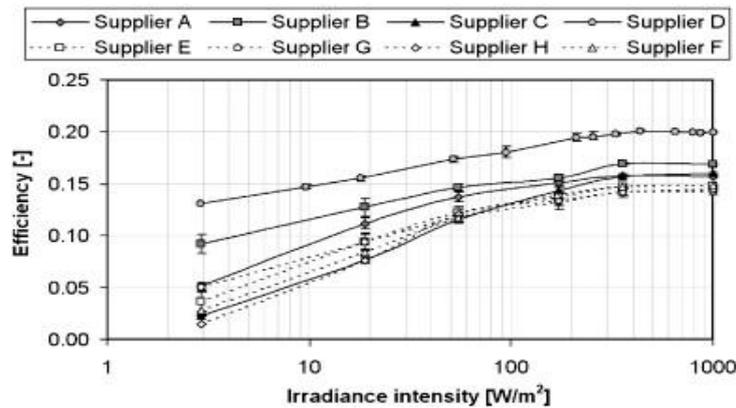


Figure I.22: Rendement des cellules photovoltaïques en fonction de l'ensoleillement [Rei2009]

Les panneaux photovoltaïques sont donc des solutions efficaces de récupération d'énergie particulièrement adaptées en zones lumineuses. Ces systèmes sont de plus au point technologiquement et nombre d'entre eux sont déjà commercialisés. Ils ont des applications en petites puissances (microsystèmes, capteurs,...) mais également en fortes puissances (production d'énergie), ce qui a fortement contribué à la baisse du coût des cellules photovoltaïques.

II.1.3.2 Source Radiofréquence

Les « radiofréquences » définissent une large gamme de fréquences, qui sont généralement utilisées comme réservoir d'énergie pour des applications mobiles. Les systèmes de récupération de l'énergie RF ambiante sont toutefois très limités en puissance et nécessitent soit une grande surface réceptrice, soit d'être placé à proximité de la source émettrice de RF (quelques mètres maximum car l'énergie disponible décroît en $1/r^2$). Yeatman [Yea2004] rappelle que la densité de puissance P_S reçue par cm^2 est reliée au champ électrique E et à la résistance de radiation de l'espace libre $Z_0 = 377\Omega$ par (I-21). Il montre ainsi qu'un champ électrique de 1 V/m , ne permet pas de récupérer plus de $0.26\ \mu\text{W}/\text{m}^2$ alors que le champ maximum près d'une source ne dépasse généralement pas quelques Volts par mètre.

$$P_S = \frac{E^2}{Z_0} \quad \text{I-21}$$

En effet, le champ électrique diminue en fonction de la distance comme le montre la figure I.23. On y observe le champ électrique d'une antenne WiFi de 2.45GHz en fonction de la distance à la source. Ainsi, à deux mètres de l'antenne, le champ ne vaut que 1 V/m .

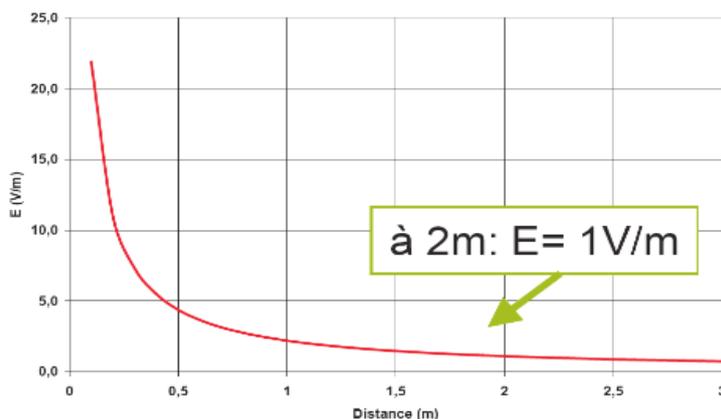


Figure I.23: Évolution du champ électrique généré par une antenne WiFi en fonction de la distance [Gal2009]

II.2 Synthèse du potentiel de récupération d'énergie

Les ressources énergétiques ambiantes, en particulier dans l'environnement humain, sont diverses. Ces ressources sont limitées mais peuvent être suffisantes pour différentes applications. Toutefois, à chaque environnement peut correspondre une ou plusieurs sources d'énergies telles la lumière, le vent, les gradients thermiques, les vibrations mécaniques...

De nombreux générateurs permettent de convertir l'énergie mécanique, thermique, photovoltaïque ou des ondes radiofréquences en énergie électrique. Des applications ne demandant que très peu d'énergie pour fonctionner ont déjà vu le jour et le marché est en pleine émergence. Le Tableau I.5 représente les ordres de grandeur du potentiel de récupération d'énergie ambiante ramenés à la surface de captation ou au volume.

Tableau I.5: Synthèse du potentiel de récupération d'énergie dans l'environnement humain

Type d'Énergie	Densité de Puissance Récupérée	
Mécanique	$qq \text{ mW/cm}^3$	
Thermique ($\Delta T_0 = 17 \text{ }^\circ\text{C}$)	$10 - 50 \text{ } \mu\text{W/cm}^2$	
Photovoltaïque	Lumière artificielle	Extérieure
	$qq \text{ } \mu\text{W/cm}^2$	10 mW/cm^2
Onde électromagnétique	$10 - 100 \text{ nW/cm}^2$	

Selon les données du Tableau au dessus, le rayonnement électromagnétique sur Terre dû à la lumière solaire est la source d'énergie la plus intense car elle atteint, en plein

soleil ($100\,000\text{ lux}$), la dizaine de $mW.cm^{-2}$. Elle est suivie par l'énergie mécanique issue des vibrations ambiantes ou des mouvements humains, qui dépendent fortement de leur fréquence et de leur amplitude et qui peut fournir des puissances allant du $\mu W.cm^{-3}$ au $mW.cm^{-3}$. Puis le gradient thermique basé sur la chaleur humaine, les puissances récupérables atteignent quelques dizaines de $\mu W.cm^{-2}$ pour une différence de température ΔT_0 d'environ 17 °C (ce qui équivaut à une température ambiante au alentour de 0 °C), avec l'objectif d'aller jusqu'à $100\ \mu W.cm^{-2}$. Et finalement, l'énergie produite à partir des ondes radiofréquences qui dépend du champ électrique environnant et de la distance à laquelle on se trouve de l'antenne émettrice, elle est faible et les seules applications existantes exploitent une antenne dédiée à l'émission des ondes et peuvent récupérer des puissances comprises entre la dizaine et la centaine de $nW.cm^{-2}$.

III. Conclusion

Au cours de cette étude bibliographique, nous avons présenté les différentes classes de polymères électro-actifs, leurs principales propriétés en mode actionneur et générateur et leur domaine d'application. Ainsi, dans la deuxième partie de ce chapitre et après un bref bilan des ressources énergétiques exploitables dans l'environnement, nous nous sommes intéressés aux différents principes de conversion d'énergie mécanique, thermique, et électromagnétique, en énergie électrique exploitable, et qui nous a convaincu qu'une architecture de micro convertisseur d'énergie mécanique vibratoire en énergie électrique fonctionnant en régime dynamique représente un bon choix. Cependant, ces derniers sont en pleine expansion depuis ces dernières années et suscitent un intérêt marqué dans la communauté scientifique.

En effet, il a été montré, que la majorité des structures récupératrices d'énergie, développées ces dernières années, utilisent des matériaux piézoélectriques à base de céramiques rigides. Le désintérêt pour ce type de matériaux vient sans doute du fait du peu de connaissances sur leur principe de fonctionnement, mais aussi de la nécessité pour certains d'avoir une alimentation supplémentaire. Malgré la faible densité d'énergie des polymères électro-actifs à celle des piles, elle peut être suffisante pour alimenter un microsystème. Ils présentent des avantages notables qui se manifestent dans leur durée de vie théoriquement infinie et leur aspect « écologique ».

Du point de vue actionnement, les polymères électro-actifs sont capables de faire des actions souples, suite à l'application d'un champ électrique. Ils ont des caractéristiques électro-

mécaniques semblables à celle d'un muscle naturel. Nous citons parmi ces polymères, les polymères électrostrictifs sur lesquels a porté notre choix pour mener des investigations sur ces deux modes de fonctionnement.

References

- [ANS1987] ANSI/IEEE. IEEE standard on piezoelectricity (std 176-1987), 1987.
- [Bar2004] Y. Bar-Cohen, Biologically inspired robots as artificial inspectors – science fiction and engineering reality, Proceedings of 16th WCNDT – World Conference on NDT (2004).
- [Bar2002] Y. Bar-Cohen, Electro-active polymers: current capabilities and challenges, Paper 4695-02, Proceedings of the SPIE Smart Structures and Materials Symposium, EAPAD Conference, San Diego, CA, March 18-21, 2002.
- [Bar2001] Y. Bar-Cohen, Electroactive polymer actuators as artificial muscles: reality, potential, and challenges, SPIE Press, Bellingham, Washington, USA, 2001.
- [Bas2009] Basset P., Galayko D., Mahmood Paracha A., Marty F., Dudka A., Bourouina TA, batch-fabricated and electret-free silicon electrostatic vibration energy harvester, INSTITUTE OF PHYSICS PUBLISHING, J. Micromech. Microeng. 19 (2009) 115025 (12pp). DOI: 10.1088/0960-1317/19/11/115025.
- [Car2005] F. Carpi, D. De Rossi, Electroactive polymer-based devices for e-textiles in biomedicine, University of Pisa, Italy IEEE-Transaction on information in biomedicine, volume 9 no3, sep 2005.
- [Cot2010] P-J. COTTINET, Actionnement et récupération d'énergie à l'aide de polymères électro-actifs. PhD thèse, INSA de Lyon, 2010.
- [Don2006] O'Donnell T., Saha C., Beeby S.P., Tudor M.J., Scaling effects for electromagnetic vibrational power generators, Symposium on Design, Test, integration and Packaging of MEMS/MOEMS (DTIP'06), Stresa Lagor Maggiore, Italy, 2006.
- [Dre2000] S. Le Dren. Elaboration de couches épaisses piézoélectriques déposées sur substrats pour des applications microtechniques. Thèse de l'INSA et de l'école Centrale de Lyon, INISTCNRS, Cote INIST : T 134119, soutenance en 2000.
- [Gal2009] Gallee F., Micro-ondes et économie d'énergie, in Proc. of Journée TIC et développement durable, 2009.
- [Gen2000] P.G. De Gennes, K. Okumura, M. Shahinpoor, K.J. Kim, Mechanoelectric effects in ionic gels, College de France, France and University of New Mexico, USA Europhysics Letters, vol 50, no 4, pp. 513-518, 2000.
- [Haj2007] A. Hajjaji. Caractérisation multi échelle et lois de comportement dans les matériaux ferroélectriques. PhD thèse, INSA de Lyon, 2007.
- [Ham2001] M. El-Hami, P. Glynne-Jones, N. M. White, M. Hill, S. Beeby, E. James, A. D. Brown, and J. N. Ross, Design and Fabrication of a New Vibration-based Electromechanical Power Generator, Sensors and Actuators A: Physical, vol. 92, pp. 335-342, 2001.
- [Ibg2007] IBGE, Limiter les sources de pollution intérieure : pollution électromagnétique, Tech. Rep., Institut Bruxellois pour la gestion de l'environnement, Novembre 2007.
- [Jam2004] E. P. James, M. J. Tudor, S. P. Beeby, N. R. Harris, P. Glynne-Jones, J. N. Ross, and N. M. White, An Investigation of Self-powered Systems for Condition Monitoring Applications, Sensors and Actuators A: Physical, vol. 110, pp. 171-176, 2004.
- [Jea2008] C. Jean-Mistral, Récupération d'énergie mécanique par polymères électroactifs pour microsystèmes autonomes communicants, PhD. thèses, Institut National Polytechnique de Grenoble, CEA, 2008.
- [Jou1847] Joule, J. On the effects of magnetism upon the dimensions of iron and steel bars. Philosophical Magazine, 30. (1847).

- [Khb2006] Khbeis M., Mcgee J., Richardson C., Ghodssi R., Energy Conversion Application, Berkeley, CA. Design of hybrid ambient low frequency, low intensity vibration energy scavenger, In Proc. 6th Int. Workshop Micro Nanotechnol. Power Generation, 2006, p. 287-290.
- [Kim2003] K. J Kim, M. Shahinpoor, "Ionic polymer-metal composites: II Manufacturing techniques" Artificial muscle research institut, University of New Mexico, USA Smart Materials and structures, 12, 65 - 79 (2003).
- [Kof2001] G. Kofod, "Dielectric elastomer actuator" Laboratoire RISØ, Technical University of Denmark, Denmark Phd-thesis, Septembre 2001.
- [Kon2004] M. Konyo, Y. Konishi, S. Tadokoro, T. Kishima, Development of velocity sensor using ionic polymer-metal composites. In Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2004 SPIE vol 5385, 2004.
- [Li2000] W. J. Li, T. C. H. Ho, G. M. H. Chan, P. H. W. Leong, and H. Y. Wong, Infrared signal transmission by a laser-micromachined, vibration-induced power generator, presented at Circuits and Systems, 2000. Proceedings of the 43rd IEEE Midwest Symposium on, 2000.
- [Liu2004] Y. Liu, K. Pen, F. Hofmann, Q. Zhang, Electrostrictive polymers for mechanical energy harvesting, Dep of Electrical Engineering, Penn State University, USA Conference on Electroactive polymer actuators and devices, San Diego, 2004 SPIE vol 5385.
- [Liu2005] Y. Liu, K. L. Ren, H. F. Hofmann and Q. Zhang, Investigation of electrostrictive polymers for energy harvesting" Pennsylvania State University, USA IEEE Transaction on Ultrasonics, ferroelectrics, and Frequency Control, vol. 52, n. 12, 2005.
- [Mar2006] M. Marzencki and S. Basrou, Enhanced Models For Power Output Prediction From Resonant Piezoelectric MicroPower Generators, Eurosensors XX, Göteborg, Sweden, 130- 131, September 17-20, 2006.
- [Mik2010] Miki D., Honzumi M., Suzuki Y., Kasagi N., Large-amplitude MEMS electret generator with nonlinear spring, Dept. of Mech. Eng., Univ. of Tokyo, Tokyo, Japan. IEEE 23rd International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS), Wanchai Hong Kong, 2010, p. 176-179.
ISSN: 1084-6999, E-ISBN: 978-1-4244-5763-2, Print ISBN: 978-1-4244-5761-8,
INSPEC Accession Number: 11229653, DOI: 10.1109/MEMSYS.2010.5442536.
- [Mit2008] Mitcheson, PD, Yeatman E.M., Rao G.K, Holmes A.S. and Green T.C., Energy Harvesting From Human and Machine Motion for Wireless Electronic Devices, Proceedings of the IEEE, vol. 96, no. 9 pp. 1457–1486, 2008.
- [Nou2007] H. Noura, E. Foltête, L. Hirsinger and S. Ballandras, Experimental and Modelling of Microsliding on Cantilever Quartz Beam, IEEE Ultrasonic Symposium, (2007) 195-199.
- [NREL] National Renewable Energy Laboratory
- [Pel2001] R. Pelrine, R. Kornbluh, J. Eckerle, P. Jeuck, S. OH, Q. Pei, S. Stanford, Dielectric elastomer : generator mode fundamentals and applications, SRI International, USA Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2001 SPIE vol 4329.
- [Pou2004] G. Poulin, Contribution au développement d'un générateur piezoelectrique pour applications nomades, Université Paris XI Orsay, France Doctorat, juin 2004.
- [Rei2009] N.H. Reich, W.G.J.H.M. van Sark, E.A. Alsema, R.W. Lof, R.E.I. Schropp, W.C. Sinke, W.C. Turkenburg, Crystalline silicon cell performance at low light intensities, Solar Energy Materials and Solar Cells 93, pp.1471-1481, 2009
- [Ron1998] Pelrine Ronald E., Kornbluh Roy D., Joseph Jose P., Electrostriction of polymer dielectrics with compliant electrodes as a means of actuation. Sensors and Actuators A 64, 77-85 (1998).
- [Rou2003] S. Roundy, P.K. Wright, and J.M. Rabaey, A study of low level vibrations as a power source for wireless sensor nodes, Computer Communications, 26 (2003) 1131-1144.

- [Sal2006] Salem M.S., Zekry A.A., Ragai H.F., Determining the Required Pulses for Controlling the Operation of Electrostatic MEMS Converters, IEEE the International Conference on MEMS, NANO and Smart Systems, 2006, p. 27-30. DOI : 10.1109/ICMENS.2006.348210.
- [Seb2004] G. Sebald. Nouveaux monocristaux à forte conversion piézoélectrique: croissance, modélisation et caractérisation. PhD thèse, INSA de Lyon, 2005.
- [Sha1995] M. Shahinpoor, A new effect in ionic polymeric gels: the ionic flexoelectric effect, Intelligent materials, structures and systems laboratory, University of New Mexico, USA SPIE Conference, 1995, vol 2441.
- [Sha2001] M. Shahinpoor, K. J Kim, "Ionic polymer-metal composites : I Fundamentals" Artificial muscle research institute, University of New Mexico, USA Smart Material sand structures, 2001.
- [Sha2002] M. Shahinpoor, M. Mojarrad, Ionic polymer sensors and actuators, brevet US 6,475,639, nov 2002.
- [Sha2004a] M. Shahinpoor, K. J. Kim. Ionic polymer-metal composites: III Modeling and simulation as biometric sensors, actuators, transducers, and artificial muscles. Smart Material sand structures, 2004.
- [Sha2004b] M. Shahinpoor, Smart thin sheet batteries made with ionic polymer metal composites (IPMC's), Proceedings of ASME-IMECE2 (2004).
- [Sha2005] M. Shahinpoor, K.J. Kim, Ionic polymer-metal composites: IV Industrial and medical applications, Smart materials and structures 14 (2005) 197–214.
- [Shc03] J.P. Szabo, J.A. Hiltz, and C.G. Cameron, Elastomeric composites with high dielectric constant for use in Maxwell stress actuator. Smart Structures and Materials 2003: Electroactive Polymer Actuators and Devices (EAPAD), Ed. Y. Bar-Cohen, Proc. SPIE, 5051, 180-190, 2003.
- [She1999] N.S. Shenck, A demonstration of useful electric energy generation from piezoceramics in a shoe, Thèse de doctorat, MIT, 1999.
- [She2001] N.S. Shenck and J.A. Paradiso, Energy scavenging with shoe-mounted piezoelectrics, IEEE Micro, 21 (2001) 30-42.
- [Sta1996] S Turner T., Human-powered wearable computing, IBM systems Journal, vol. 35, no. 3 pp. 618–629, 1996.
- [Sta2005] M. E. Staley and A. B. Flatau, Characterization of energy harvesting potential of Terfenol-D and Galfenol, Proceedings of SPIE, 5764, 630-40 (2005).
- [Sun1994] V. Sundar, R. E. Newnham, Anisotropy in electrostriction and elasticity, J. Mater. Sci. Lett, vol. 13, p. 799-801, 1994.
- [Vas2003] D. Vasic, Apports des matériaux piézoélectriques pour l'intégration hybride et monolithiquedes transformateurs, Thèse de Doctorat, Ecole Normale Supérieure de Cachan, (2003) 44.
- [Wan2006] L. Wang and F. G. Yuan, Structural vibration energy harvesting by magnetostrictive materials (MsM), The 4th China-Japan-US Symposium on Structural Control and Monitoring, Zhejiang University Press, Hangzhou, China,147-152 (2006).
- [Wan2007] L. Wang and F.G. Yuan, Energy harvesting by magnetostrictive material (MSM) for powering wireless sensors in SHM, SPIE Smart Structures and Materials & NDE and Health Monitoring, 14th International Symposium (SSN07), 18-22 March, 2007.
- [Wan2008] L. Wang and F G Yuan, Vibration energy harvesting by magnetostrictive material, Smart Mater. Struct.17, 045009 (14pp), 2008.
- [Wax1999] S. G. Wax, R. R. Sands, Electroactive polymer actuators and devices, DARPA Conference on Electroactive polymer actuators and devices, Newport Beach, California, mach 1999 SPIE vol 3669.
- [Yea2004] E. M. Yeatman, Advances in Power Sources for Wireless Sensor Nodes, Proceedings of the International Workshop Wearable and Implantable Body Sensor Networks, pp. 2021, 2004.

[Zha1998] Q. M. Zhang, Giant Electrostriction and Relaxor Ferroelectric Behavior in Electron-Irradiated Poly(vinylidene fluoridetrifluoroethylene) Copolymer, Science, 280, 2101-2104 (1998).

Chapitre II

Préparation et Caractérisation des Polymères Électro-actifs et Composites

Le but de ce chapitre est d'étudier les paramètres intrinsèques des polymères électro-actifs dans le but d'augmenter leurs propriétés électromécaniques. Le processus de fabrication des composites sera effectué par une technique couramment utilisée (vois solvant) qui garantisse une dispersion homogène. Elaborer un composite en incorporant des particules conductrices est une approche expérimentale permettant d'augmenter la constante diélectrique. Il faut se placer juste avant le seuil de percolation où la transition isolant-conducteur se produit. Néanmoins, le module d'Young est lui aussi légèrement augmenté par l'ajout de ces particules qui viennent renforcer mécaniquement la matrice souple. Puis une caractérisation des polymères et composites fabriqués d'un point de vue électrique et mécanique sera effectuée. L'analyse électrique consiste à étudier les paramètres électriques intrinsèques (la permittivité, conductivité,..) pour comprendre le rôle des particules incorporées sur les réponses observées. Pour les propriétés mécaniques une évaluation des courbes de contrainte-déformation est entreprise pour comprendre l'influence des particules sur cette réponse. Une modélisation sera réalisée permettant ainsi de comprendre le phénomène de non-linéarité observé qui traduit les pertes mécaniques dissipées, mais aussi leur dépendance avec la fréquence mécanique et l'amplitude de déplacement imposé.

I. Description des paramètres intrinsèques des polymères électro-actifs

Les propriétés intrinsèques des polymères électro-actifs (permittivité électrique, pertes électrique, module de Young,..) jouent un rôle crucial sur leurs performances dans le but d'améliorer la réponse en mode actionneur mais aussi sur la densité de puissance récupérable en mode générateur. L'objectif de cette partie est de donner un aperçu sur le comportement électrique et mécanique des polymères électro-actifs qui est basé sur la description des paramètres intrinsèque de chaque comportement.

I.1 Les paramètres diélectriques des polymères

I.1.1 La permittivité diélectrique et Pertes diélectriques

Un diélectrique parfait est un milieu non conducteur susceptible de se polariser sous l'effet d'un champ électrique extérieur [Fou1999]. Ces phénomènes se traduisent macroscopiquement par l'apparition des charges à la surface du polymère. Il résulte du déplacement des différentes entités présentes dans le milieu considéré (électrons, ions, dipôles...). Mais dans la plupart des cas il faut plus parler de diélectrique parfait, la polarisation est due à des mécanismes de déformation de la répartition des charges électriques sous l'influence d'un champ électrique. Cela se traduit par le fait que dans un champ électrique alternatif, la polarisation ne suit pas de façon instantanée. Cette relaxation induit une perte d'énergie. Dans le cas un condensateur ces pertes se traduisent par une résistance en parallèle avec une capacité. La description la plus simple des diélectriques « vrais » est abordée en introduisant le concept de permittivité complexe. En générale, elle s'écrit sous la forme suivante :

$$\varepsilon^*(\omega, T) = \varepsilon'(\omega, T) - i\varepsilon''(\omega, T) \quad \text{II-1}$$

ou ε' est la partie réelle de la constante diélectrique, ε'' est la partie imaginaire de la constante diélectrique complexe, ω est la fréquence angulaire et T est la température. Les deux parties sont fixées pour une fréquence et une température donnée. Le rapport de la partie imaginaire sur la partie réelle ($\varepsilon''/\varepsilon'$) est appelé facteur de dissipation diélectrique qui est représenté par $\tan\delta$, où $\frac{\pi}{2} - \delta$ est l'angle entre la tension et le courant de charge. L'angle δ est connue sous le nom "angle de perte".

En pratique, il n'est pas possible de s'affranchir des pertes par conduction; en régime harmonique:

$$\tan\delta = \frac{\varepsilon'' + (\sigma_c / \omega \cdot \varepsilon_0)}{\varepsilon'} \quad \text{II-2}$$

La signification pratique de ces grandeurs se comprend, en introduisant la puissance absorbée en régime harmonique par unité de volume de diélectrique $P_V (W/m^3)$ dans un champ électrique de valeur $E (V/m)$ de fréquence $f (Hz)$.

$$P_V = 2\pi\varepsilon_0 E^2 f \varepsilon'' \quad \text{II-3}$$

Pour des valeurs données de E et de f , l'indice de perte ε'' doit être maintenu aussi faible que possible pour éviter les pertes d'énergie. Cette perte d'énergie se traduit par un échauffement du polymère qui facilite le claquage.

À l'interface de deux matériaux diélectriques ayant une constante et/ou une conductivité diélectrique différente, les charges sont accumulées en fonction d'une excitation extérieure. Ainsi, une couche de dipôles induits par le champ électrique externe est formée à l'interface, ce qui entraîne une augmentation du champ de polarisation totale qui tend à augmenter la constante diélectrique. Ainsi, la conductivité ohmique est incluse dans la formule de la permittivité comme suit :

$$\varepsilon^*(\omega, T) = \varepsilon'(\omega, T) - i[\varepsilon''(\omega, T) + \sigma(T)/\varepsilon_0\omega] \quad \text{II-4}$$

La conductivité résultante du transport de charges est généralement indépendante de la fréquence angulaire. En augmentant la température, la conductivité augmente de façon exponentielle [Nal1995]. Expérimentalement, la conductivité σ et la résistivité ρ des polymères suivent la loi d'Arrhenius:

$$\rho = \rho_\infty \exp(E_a/RT) \quad \text{II-5}$$

avec

$\rho_\infty (W/cm)$: la résistivité limite à température infinie,

$E_a (J/mol)$: L'énergie d'activation du phénomène,

$T (K)$: La température thermodynamique,

$R (= 8.3147 J/K.mol)$: La constante des gaz parfaits.

I.1.2 Phénomène de polarisation dans les polymères

I.1.2.1 Polarisation sous champ statique

Si on soumet une charge à l'action d'un champ électrique, la force qui apparaît sur cette charge est :

$$F = qE \quad \text{II-6}$$

La force F tend à déplacer la charge électrique dans la direction du champ. Si la charge est libre, elle se déplace dans la direction du champ. Si la charge est contrainte, la force déplace la charge produisant un moment dipolaire qu'on appelle la polarisation diélectrique P :

$$\vec{P} = \chi \varepsilon_0 \vec{E} = (\varepsilon_r - 1) \varepsilon_0 \vec{E} = N_0 \alpha' \vec{E} \quad \text{II-7}$$

où ε_0 est la permittivité du vide qui vaut $8.854 \cdot 10^{-12} F \cdot m^{-1}$, ε_r est la permittivité relative (ou constante diélectrique) du matériau, N_0 est le nombre de dipôles par unité volumique, α' est la polarisabilité de la charge électrique.

Le terme $\varepsilon_0 \varepsilon_r E$ dans l'équation (II-7) est appelé déplacement électrique D dans le matériau.

L'équation (II-7) devient alors :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \varepsilon_r \vec{E} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \quad \text{II-8}$$

Cette équation montre que le déplacement électrique naît de la contribution géométrique ($\varepsilon_0 E$) et de la contribution de la polarisation du matériau (P).

I.1.2.2 Polarisation à l'échelle microscopique

La polarisation à l'échelle moléculaire dans un diélectrique est liée à la nature des espèces constituant ce matériau. Elle peut être de quatre types selon l'élément microscopique que l'on sollicite : polarisation électronique, atomique, dipolaire (orientation) ou interfaciale (charge d'espace). On parle dans chaque cas de polarisabilité qui est la réponse de l'entité considérée sous l'action du champ électrique.

Polarisation électronique : Le champ électrique provoque un léger déplacement des nuages électroniques vis-à-vis du noyau des atomes (figure II.1). Le temps d'établissement de cette polarisation est très court ($\sim 10^{-15} s$) et s'accompagne d'une émission de lumière. La valeur de cette polarisabilité peut être estimée en utilisant un modèle électrostatique simple. L'atome

est défini comme un noyau positif au centre d'une sphère négative chargée uniformément. On obtient une relation entre la polarisabilité α_c et le cube du rayon atomique r :

$$\alpha_c = 4\pi\epsilon_0 r^3 \quad \text{II-9}$$

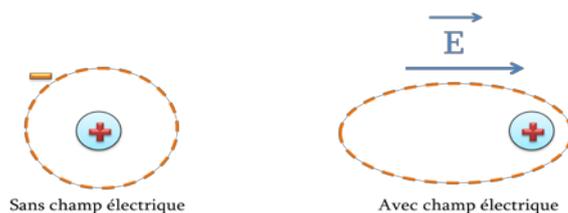


Figure II.1: Illustration de la polarisation électronique

Polarisation atomique ou ionique : elle s'obtient lorsque le champ appliqué produit un déplacement mutuel des ions constituant le milieu diélectrique (figure II.2). Les éléments mis en jeu étant plus lourds que pour la polarisation électronique, le temps d'établissement est moins rapide, entre 10^{-13} et 10^{-12} s.



Figure II.2: Illustration de la polarisation atomique

Polarisation d'orientation ou dipolaire : cette polarisation est l'orientation dans le sens du champ électrique des dipôles permanents présents dans le matériau (figure II.3). Ce sont des molécules, appelées polaires, dont la structure est asymétrique : le centre de gravité résultant de toutes ses charges positives ne coïncide pas avec celui de toutes ses charges négatives (la molécule est un dipôle électrique). Les molécules non polaires n'ont pas par définition de moment dipolaire permanent. Cette polarisation d'orientation mettant en jeu des groupes d'atomes, elle possède le temps d'établissement le plus lent, entre 10^{-11} et 10^{-9} s. Elle peut s'exprimer de façon simple pour une molécule par l'équation suivante :

$$\alpha_d = \frac{p^2}{3kT} \quad \text{II-10}$$

avec k la constante de Boltzmann ($1,3806 \cdot 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$), T la température et p le moment dipolaire de la molécule. La polarisation macroscopique résulte de la somme de ces contributions microscopiques pour un milieu diélectrique.

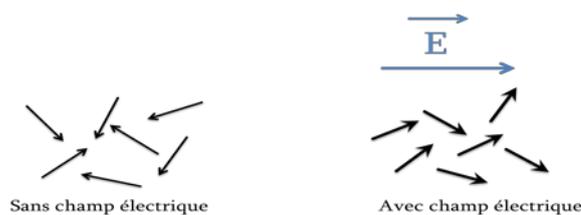


Figure II.3: Illustration de la polarisation d'orientation

Polarisation interfaciale : Ce type de polarisation apparaît dans les matériaux hétérogènes avec des temps de relaxation plus longs que la polarisation d'orientation [Frö1958]. Elle provient de l'accumulation des charges aux interfaces entre les différentes phases constituant les matériaux lorsque ces différentes phases ont des permittivités et des conductivités différentes.

L'application du champ électrique fait apparaître aux interfaces polymère-charge des charges électriques. Les polarisations décrites précédemment vont apparaître successivement selon le temps d'établissement. Les polarisations électronique et atomique ne sont pratiquement pas affectées par la température tandis que la polarisation d'orientation et la polarisation interfaciale dépendent de la température mais également d'autres paramètres comme l'humidité (en particulier pour les composites) [Pha2004].

Les travaux de Foulger [Fou1999] sur les polymères hypothétiques montrent que les quatre types de polarisations ont une influence sur la permittivité complexe (partie réelle, partie imaginaire). Une relaxation se traduit par une augmentation de la partie imaginaire (traduisant des pertes plus importantes) et une réduction de la partie réelle (traduisant une réduction de la capacité du matériau à se polariser).

I.2 Le comportement mécanique des polymères

Les polymères solides sont formés d'unités structurales liées entre elles par des liaisons intra- et intermoléculaires. Un tel polymère montre nécessairement un comportement à la fois élastique (qui est dominant aux basses températures et aux vitesses de sollicitation élevées) et visqueux (qui devient dominant dans les conditions inverses). Toutefois, les matériaux polymères combinent ces deux aspects. Cette dualité du comportement nommée viscoélasticité constitue l'un des avantages fondamentaux des matériaux polymères. En revanche, elle demande aussi une attention particulière étant donné la sensibilité du comportement des polymères à la température, de la vitesse de déformation ou de la fréquence de sollicitation.

Donc, il est nécessaire d'expliquer ces comportements dans le but de définir une loi de comportement macroscopique qui relie les grandeurs mécaniques (déformation et la contrainte).

I.2.1 Le comportement élastique

I.2.1.1 Définition

Un matériau est dit élastique s'il retrouve entièrement sa forme ou son volume après avoir subi un cycle de charge/décharge quelconque. Cette notion est implicitement liée à la réversibilité totale et au fait qu'au cours du chargement et du déchargement (i.e. au bilan pour tout le cycle) le matériau ne dissipe aucune énergie. On peut aussi dire que lors du chargement, le chemin suivi sera le même que lors de la décharge. L'état actuel du matériau ne dépend donc que des charges appliquées à l'instant considéré et non du chemin suivi. La figure II.4 illustre la réponse élastique d'une éprouvette cylindrique soumise à un essai mécanique en traction uni-axiale.

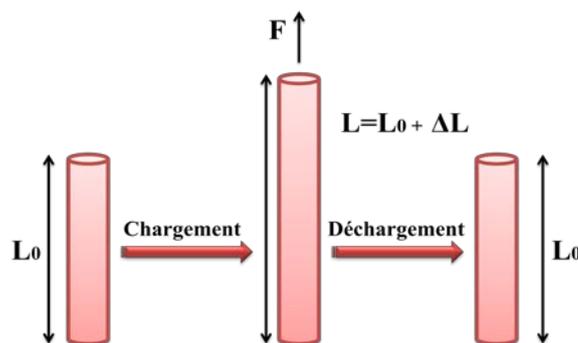


Figure II.4: Illustration d'une réponse élastique lors d'un essai en traction uni-axiale

D'une manière générale, la contrainte τ et la déformation S sont liées par une relation appelée équation constitutive du matériau. La partie linéaire de la courbe au dessous correspond à la courbe de Hooke qui décrit le comportement élastique linéaire pour lequel la déformation est parfaitement réversible (loi de Hooke).

La pente de cette droite définit le module de Young Y . Pour un matériau donné le module de Young se définit par :

$$Y = \tau / S$$

II-11

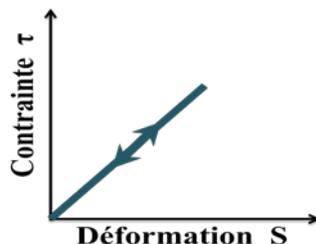


Figure II.5: Réponse du comportement élastique linéaire lors d'un essai en traction uni-axiale

I.2.1.2 Approche thermodynamique

L'approche thermodynamique permet de donner un premier éclairage sur le comportement mécanique des matériaux. En appelant ζ , \mathcal{F} et \mathcal{S} les densités volumiques d'énergie interne, d'énergie libre et d'entropie et T la température absolue, le premier principe de la thermodynamique appliqué à un élément de volume d'un matériau de volume totale V constant limité par une surface A indique que la variation infinitésimale d'énergie interne est égale à la différence entre la quantité de chaleur reçue et le travail des forces. Il s'écrit :

$$\int_V \delta\zeta dV = \int_V \delta Q dV - \delta \int_A \vec{q} \cdot \vec{n} dA + \int_V \delta W dV \quad \text{II-12}$$

δQ étant la densité volumique de quantité de chaleur reçue \vec{q} le flux de chaleur sortant. Compte tenu de $\int_A \vec{q} \cdot \vec{n} dA = \int_V \text{Div} \vec{q} dV$ lors d'une variation de déformation $\delta \bar{S}$, le premier principe implique la relation :

$$\delta\zeta = \text{Tr}(\bar{\tau} \cdot \delta \bar{S}) + \delta Q - \delta \text{Div} \vec{q} \quad \text{II-13}$$

avec \bar{S} tenseur de déformation et $\bar{\tau}$ tenseur de contrainte.

Le second principe s'écrit comme suit :

$$\int_V \delta \mathcal{S} dV - \int_V \frac{\delta Q}{T} dV + \delta \int_A \frac{\vec{q}}{T} \cdot \vec{n} dA \geq 0 \quad \text{II-14}$$

avec $\mathcal{F} = \zeta - T\mathcal{S}$, selon l'inégalité de Clausius-Duhem et compte tenu des deux principe, l'incrément de dissipation volumique intrinsèque s'écrit :

$$d\Psi_m = \text{Tr}(\bar{\tau} \cdot \delta \bar{S}) - (\delta \mathcal{F} + \mathcal{S} \delta T) \quad \text{II-15}$$

La réversibilité mécanique $d\Psi_m = 0$ définit l'élasticité parfaite : comportement d'un milieu capable de stocker sans pertes l'énergie fournie par les forces extérieures en se déformant et de la restituer en totalité lors de déchargement. Cette réversibilité implique $d\mathcal{F} = -\mathcal{S}dT + \text{Tr}(\bar{\tau} \cdot d\bar{S})$ conduisant aux relations :

$$\delta\zeta = TdS + Tr(\bar{\tau} \cdot \delta\bar{S}); \quad d\mathcal{F} = -SdT + Tr(\bar{\tau} \cdot \delta\bar{S}); \quad d\Phi = -SdT + Tr(\bar{S} \cdot d\bar{\tau}) \quad \text{II-16}$$

$$\bar{\tau} = \left. \frac{\delta\zeta}{\delta\bar{S}} \right|_S = \frac{\delta\xi}{\delta\bar{S}}; \quad \bar{\tau} = \left. \frac{\delta\mathcal{F}}{\delta\bar{S}} \right|_T = \frac{\delta\xi}{\delta\bar{S}}; \quad \delta\bar{S} = - \left. \frac{\delta\Phi}{\delta\bar{\tau}} \right|_T = \frac{\delta\theta}{\delta\bar{\tau}} \quad \text{II-17}$$

$\Phi = \mathcal{F} - Tr(\bar{S} \cdot \bar{\tau})$ étant le potentiel thermodynamique, ξ la densité volumique de potentiel d'élasticité définit par $d\xi = Tr(\bar{\tau} \cdot d\bar{S})$ et θ la densité volumique de potentiel complémentaire définit par $d\theta = Tr(\bar{S} \cdot d\bar{\tau})$.

Les matériaux présentent en deçà d'un certain seuil de chargement qui leur est propre un comportement élastique quasi réversible caractérisé par une densité volumique de potentiel élastique $\xi(\bar{S})$ qui s'identifie en régime isotherme $T = T_0$ à leur densité volumique d'énergie libre $\mathcal{F}(\bar{S})$. A l'incrément de déformation $d\bar{S}$ correspond à l'état de contrainte tel que :

$$\bar{\tau} = \left. \frac{\delta\xi}{\delta\bar{S}} \right|_T = \left. \frac{\delta\mathcal{F}}{\delta\bar{S}} \right|_T = \left. \frac{\delta\zeta}{\delta\bar{S}} \right|_T - T_0 \left. \frac{\delta S}{\delta\bar{S}} \right|_T \quad \text{II-18}$$

Cette expression montre que l'origine de l'élasticité est double : une contribution provient de la variation d'énergie interne associée à la déformation, l'autre provient de celle de l'entropie. Selon les classes de matériaux, ces deux contributions peuvent être d'ordres de grandeur très différents.

Pour les matériaux très déformables comme les élastomères, les conformations des chaînes macromoléculaires peuvent être considérablement modifiées par les déformations presque sans variation des distances interatomiques et le terme entropique, responsable de la haute élasticité caoutchoutique, devient prépondérant. Les déformations résultantes sont importantes et le comportement élastique est non linéaire du fait de l'évolution de résistance au changement de conformation des macromolécules, désenchevêtrement, étirement, alignement. La contrainte augmente bien avec la déformation puisque l'entropie diminue, la structure interne du matériau pelotes initialement désordonnée s'ordonnant par étirement des chaînes macromoléculaires.

La variation d'énergie interne est prépondérante pour les matériaux cristallins pour lesquels de légères variations des distances interatomiques associées à la déformation entraînent des variations considérables de l'énergie de cohésion alors que l'entropie n'est quasiment pas modifiée. Ce type de comportement élastique linéaire commun à la plupart des structures s'étudie généralement dans le cadre des petites déformations en élasticité linéaire.

I.2.2 Le comportement viscoélastique

La viscoélasticité est la propriété des matériaux qui présentent à la fois des caractéristiques visqueux et élastiques au moment de les déformés. Les polymères sont des matériaux typiquement viscoélastiques : ils comportent une composante élastique, réversible conservative, doublée d'une composante visqueuse, irréversible dissipative et la relation entre la contrainte et la déformation dépend du temps. De plus, un cycle d'hystérésis est observé dans la courbe contrainte/déformation lorsque le matériau viscoélastique soumis à une charge, puis retiré et qui caractérise l'énergie perdue pendant le cycle de chargement/déchargement.

L'énergie dissipée au cours d'un cycle d'hystérésis sous forme de chaleur traduit les propriétés d'amortissement du matériau. Dans le cas d'oscillations libres, cet aspect se traduit par une diminution de l'amplitude des vibrations au cours du temps. Pour caractériser l'amortissement d'une structure, on définit les notions fondamentales d'angle de perte et de module complexe. Considérons le cas où un système est soumis à des déformations sinusoïdales :

$$S(t) = S_0 \sin(\omega t) \quad \text{II-19}$$

où $\omega = 2\pi f$, avec f est la fréquence d'excitation.

Si on estime que la contrainte transmise répond de façon sinusoïdale avec un déphasage φ , appelé angle de perte, on peut écrire :

$$\tau(t) = \tau_0 \sin(\omega t + \varphi) \quad \text{II-20}$$

Dans ce cas, l'énergie dissipée au cours d'un cycle chargement/déchargement s'exprime comme suit :

$$E_d = \oint \tau(t) dS(t) = \omega \tau_0 S_0 \oint \cos(\omega t) \sin(\omega t + \varphi) dt = \pi \tau_0 S_0 \sin(\varphi) \quad \text{II-21}$$

A partir de la représentation complexe (par transformation de Fourier) des équations traduisant la contrainte et la déformation, on définit le module d'Young complexe Y^* :

$$Y^* = \frac{\tau}{S} = \frac{\tau_0}{S_0} e^{-i\varphi} = Y' + iY'' = Y'(1 + i \tan \varphi) \quad \text{II-22}$$

$$|Y^*| = \frac{\tau_0}{S_0} \quad \text{II-23}$$

ou $i^2 = -1$; $|Y^*|$ est le module dynamique ; τ_0 et S_0 sont l'amplitudes de contrainte et de déformation.

$Y' = |Y^*| \cos \varphi$, est la partie réelle du module dynamique. Cette grandeur caractérise la partie de la réponse en phase avec l'excitation. On l'appelle également module de conservation ou de stockage ("storage modulus").

$Y'' = |Y^*| \sin \varphi$, est la partie imaginaire du module dynamique. Cette grandeur caractérise la partie de la réponse en quadrature de phase avec l'excitation. On l'appelle également module de perte ("loss modulus")

Les équations (II-22) et (II-23) permettent de définir la tangente de l'angle de perte $\tan \varphi$:

$$\tan \varphi = \frac{\sin(\varphi)}{\cos(\varphi)} = \frac{Y''}{Y'} \quad \text{II-24}$$

En ce qui concerne l'élastomère, l'amortissement est principalement dû à un réarrangement moléculaire au niveau de la structure interne du matériau : Les chaînes moléculaires glissent les unes par rapport aux autres, entraînant un frottement générateur de perte d'énergie. Deux principaux types de mécanismes sont évoqués pour expliquer ces propriétés amortissantes [Aus1997]:

- Un mécanisme d'origine visqueux, reposant sur la résistance à la réorganisation des chaînes moléculaires. Celle-ci ne peut pas se produire instantanément, et génère ainsi une dépendance en temps de type viscoélastique.
- Le second mécanisme proposé est précisément dû aux charges. L'amortissement est d'autant plus important que le matériau est chargé : L'accroissement de l'amortissement serait alors dû à une résistance dans les interfaces élastomère /carbone et carbone/carbone.

Il faut aussi noter que toutes ces grandeurs caractéristiques (module d'Young E ou de Coulomb G complexes) peuvent avoir une dépendance non linéaire significative avec la température, la fréquence, ou encore l'amplitude de l'excitation imposée.

II. Choix des matériaux et procédure de préparation

Comme il est mentionné dans le chapitre I, les polymères électro-actifs présentent un intérêt remarquable, en raison de leur grande déformabilité sous l'action d'un champ électrique. Ils sont faciles à fabriquer à faible coût, très flexibles et de dimensions très facilement modulables. Néanmoins, la grande majorité des polymères électro-actifs présentent une faible activité électromécanique et les grandes déformations observées (2%) nécessitent des champs électriques élevés ($150 \text{ V}/\mu\text{m}$). Toutefois, il a été récemment démontré que sous champs

électriques moindres, de l'ordre de $20 V/\mu m$, les polymères électrostrictifs peuvent produire des déformations importantes ($> 10\%$) [Su1998] [Gui2006]. Pour cette raison, ils sont considérés comme de bons candidats pour l'actionnement [Bha1999].

En outre, il a été récemment montré que l'incorporation de nano-charges, comme les nanotubes de carbone dans une matrice polymère (PU) peut considérablement améliorer la déformation attendue en fonction du champ électrique [Par2008].

II.1 Choix des matrices

Nous avons choisi pour ces travaux de thèse des élastomères de type polyuréthane (TPU 58 888) et terpolymère P(VDF-TrFE-CFE) qui présente des caractéristiques intéressantes en vue de leurs intégration dans des systèmes micro électromécaniques (MEMS). Ainsi, l'étude de l'influence de l'incorporation de particules (nanoparticules de carbone) dans la matrice polymère, basée sur le principe des composites avec des particules dispersées aléatoirement, sur les performances électromécaniques et la récupération d'énergie.

II.1.1 La matrice de polyuréthane (PU)

Le polyuréthane (PU) est le nom général d'un polymère composé d'une chaîne d'unités organiques jointes par des liens d'uréthane.

Les polyuréthanes (PU) occupent une place à part dans l'industrie des matières plastiques en raison de leur grande diversité :

- diversité de structure : ils peuvent être linéaires, segmentés (ce sont les thermoplastiques) ou réticulés ;
- diversité de composition chimique : outre les groupements uréthane, ces polymères contiennent en quantité parfois importante des groupes ester, éther, urée, biuret, allophanate, etc...

Grâce à cette diversité, il est possible de préparer toute une gamme de polymères aux propriétés très différentes touchant de nombreuses industries (caoutchouc, peintures et vernis, matières plastiques) et pouvant être mis en œuvre par les principaux procédés pour les matières synthétiques ou par des procédés spécifiquement adaptés comme la technique R.I.M. (Reaction Injection Moulding).

Diverses transitions thermiques peuvent être mises en évidence dans les PU et proviennent de l'incompatibilité thermodynamique entre les segments souples et les segments rigides (qui constituent ces matériaux). Les blocs souples et rigides étant liés chimiquement, l'immiscibilité conduit à une microséparation de phases et à la formation de domaines riches en segments rigides (figure II.6). Ces domaines rigides sont généralement dispersés dans une matrice riche en segments souples à l'état caoutchoutique et peuvent s'organiser et éventuellement cristalliser. C'est ce phénomène, associé à une température de transition vitreuse de la phase souple inférieure à la température ambiante, qui confère leur nature élastomère à ces polyuréthanes. Si tous les réactifs sont linéaires, ces matériaux sont appelés polyuréthanes thermoplastiques (TPU). Si un réactif est trifonctionnel et en quantité suffisante, le matériau formé n'est plus linéaire mais devient un réseau covalent. La microséparation de phases conduit à des hétérogénéités de tailles différentes. La taille des domaines de la phase minoritaire est de l'ordre de 10 nm. Les PU possèdent donc une morphologie très complexe du fait de la distribution de taille des blocs souples et rigides, et de la composition variable des domaines.

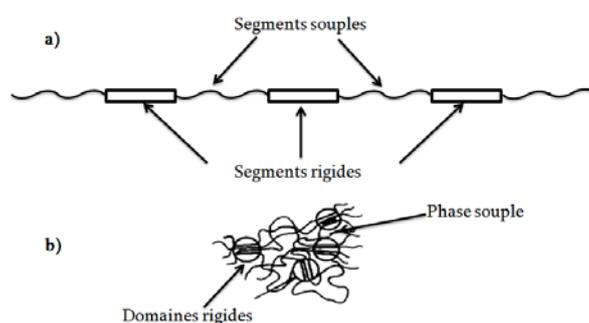


Figure II.6: Schéma représentant la structure d'une chaîne PU : (a) segmentée en copolymère à blocs, souple et rigide, (b) la séparation en deux domaines de phases dans la totalité du matériau polymère [Pet1991].

Les propriétés intrinsèques d'un polyuréthane dépendent de plusieurs facteurs notamment la composition individuelle et la longueur des segments [Eli2008], la séquence de la distribution de longueur de chaînes et la masse moléculaire du PU synthétisé, la nature chimique des unités composées [Che1983], les réticulations physiques entre chaînes et segments [Pai1975], la morphologie à l'état solide, le degré de cristallinité des deux segments [Li1996], mais également l'histoire thermique [Lai2006] et même la méthode de synthèse [Pri2009]. Des variations compositionnelles et les conditions opératoires sont connues pour affecter le degré de séparation de phases, en créant des domaines de différents types, et donc affectent les propriétés globales [Mil1985].

A température ambiante, au dessus de la température de transition vitreuse (T_g) des segments souples, ceux-ci bougent facilement et les PUs se comportent comme du caoutchouc avec des propriétés élastomères. Par contre, en dessous de T_g et de T_m (température de fusion des segments rigides), ces derniers assurent la stabilité dimensionnelle du PU. Au vu de cette structure particulière, l'ajout de nano-charge dans une matrice de polyuréthane semble très prometteur, car cela permet d'accroître les espaces de piègeages des charges.

II.1.2 La matrice de terpolymère P(VDF-TrFE-CFE)

Le polymère P(VDF-TrFE-CFE) a été trouvé en recherchant un matériau ayant des propriétés similaires à celles des matériaux ferroélectriques et qui présenterait une permittivité plus faible de façon à minimiser les pertes par réflexion. A cet effet, les polymères ferroélectriques tels que le PVDF sont de bons candidats mais leurs permittivités habituellement autour de 10 rend le potentiel d'agilité faible. Le terpolymère réalisé à l'institut Franco-allemand de recherches de St Louis (ISL), présente une constante diélectrique bien plus élevée puisque suivant la composition du matériau, elle varie entre 50 et 80 [Chu 2006].

La matrice de base du matériau est le polymère poly (vinylidene de fluor) (PVDF), associé au trifluoroéthylène (TrFE), dans lequel a été injecté des défauts de monomères de chlorofluoroéthylène (CFE). Les défauts entraînent des réponses améliorées du matériau [Bau 2004]. Les trois polymères ont copolymérisé pour donner le terpolymère P(VDF-TrFE-CFE). La copolymérisation du CFE avec le P(VDF-TrFE) a pour effet d'éliminer le cycle de polarisation hystérésis et de créer un polymère ferroélectrique relaxeur [Zha 1998]. De bonnes caractéristiques électromécaniques avec conservation des avantages de souplesse, de légèreté et de résistance mécanique élevée ont été observées.

II.2 Choix des nanoparticules et phénomène de percolation

L'intégration de charges dans les matériaux polymères dans l'objectif de leur conférer de nouvelles propriétés ou fonctions spécifiques est un sujet largement étudié. A travers l'histoire, des exemples de matériaux, qu'il est possible de considérer comme nano-composites, ont été développés.

II.2.1 Qu'est-ce qu'un nano-composite ?

Un nano-composite est un matériau renforcé par des particules dont la taille est inférieure à 100 nm au moins dans une dimension et il résulte de l'association de matériaux de nature différente qui, de ce fait, ne se mélangent pas (non miscibles) et constituent une structure hétérogène. Cet assemblage confère au matériau résultant des propriétés qu'aucun des matériaux de départ ne possède individuellement.

Les composites avec des renforts micrométriques ont montré certaines de leurs limites. Leurs propriétés résultent de compromis : l'amélioration de la résistance, par exemple, se fait au détriment de la plasticité ou de la transparence optique. Les nano-composites peuvent pallier à certaines de ces limites et présentent des avantages face aux composites classiques à renforts micrométriques :

- Une amélioration significative des propriétés mécaniques notamment de la résistance sans compromettre la ductilité du matériau car la faible taille des particules ne crée pas de larges concentrations de contraintes.
- Une augmentation de la conduction et de la polarisation interfaciale (la permittivité) et de diverses propriétés notamment optiques qui ne s'expliquent pas par les approches classiques des composants.

La diminution de la taille des renforts que l'on insère dans la matrice conduit à une très importante augmentation de la surface des interfaces dans le composite. Or, c'est précisément cette interface qui contrôle l'interaction entre la matrice et les renforts, expliquant une partie des propriétés singulières des nano-composites. A noter que l'ajout de particules nanométriques améliore, de manière notable, certaines propriétés avec des fractions volumiques beaucoup plus faibles que pour les particules micrométriques et que le seuil de percolation est atteint avec de très faibles taux de nanoparticules.

II.2.2 Phénomène de percolation

Les composites inorganique-organiques à matrice isolante contenant des particules conductrices dispersées aléatoirement présentent un phénomène de percolation.

Cette dispersion provoque une accumulation de charges à la frontière entre les deux milieux (matrice, particules). Ces charges libres présentes dans le polymère ne contribuent pas seulement à la conduction, mais elles augmentent la polarisation interfaciale, donc la

permittivité. Il s'agit d'un phénomène critique qui a lieu quand le pourcentage volumique de la partie conductrice est supérieur au seuil de percolation. Au voisinage du seuil de percolation, la conductivité électrique et la permittivité diélectrique du composite augmentent très fortement.

Afin d'estimer expérimentalement le seuil de percolation, on peut utiliser l'équation ci-dessous pour décrire la conductivité électrique à partir de la théorie statistique de percolation:

$$\sigma_f = \sigma_0 \left[\frac{f-f_c}{1-f_c} \right]^t ; \quad f > f_c \quad \text{II-25}$$

où σ_f et σ_0 sont la conductivité volumique de la matrice isolante et du composite, respectivement. Cette équation n'est valable que quand la fraction volumique f est supérieure au seuil de percolation f_c du système. L'exposant critique est en principe universel t . Généralement, l'exposant t dépend de la forme des particules conductrices, il est proche de 2 pour les particules sphériques et proche de 3 pour celles en forme de bâtonnets [Fla2000] [Dan2003]. t dépend des systèmes composites étudiés sans doute parce que le caractère aléatoire de la dispersion n'est pas totalement assuré lors de la mise en œuvre.

De la même façon, on peut écrire la constante diélectrique sous la forme suivante :

$$\varepsilon'_f = \varepsilon'_m \left[\frac{f_c-f}{f_c} \right]^{-q} ; \quad f < f_c \quad \text{II-26}$$

où ε'_m et ε'_f sont les constantes diélectriques (permittivités relatives) de la matrice isolante pure et du composite, respectivement. Cette équation n'est valable que quand la fraction volumique f est inférieure au seuil de percolation f_c du système. L'exposant critique q du système est trouvé expérimentalement vers 0,8 – 0,9 pour les composites à base de matrice élastomère [Zoi2001].

Avec la même loi de puissance, les pertes diélectriques du composite sont estimées par [Mam2002] :

$$\tan\delta_c = \tan\delta_p \cdot f^{-r} \quad \text{II-27}$$

où $\tan\delta_p$ est le facteur de perte diélectrique de la matrice polymère, $\tan\delta_c$ est le facteur de perte diélectrique du composite et r est l'exposant critique pouvant être relié aux exposants précédents par la relation suivante :

$$r = t - 2q \quad \text{II-28}$$

Malgré l'inconvénient que la permittivité augmente en parallèle avec la conduction donc les pertes, des résultats encourageants laissent supposer que cette méthode de charge est très prometteuse pour l'augmentation des propriétés électromécaniques des polymères électroactifs [Zhm2002].

II.2.3 Choix des nanoparticules

Les nanoparticules carbonées sont de plus en plus utilisées en tant qu'additif dans les matrices polymères pour améliorer les propriétés, mécaniques, électriques et thermiques. Les nanoparticules carbonées sont en général conductrices ou au moins semi-conductrices d'où leur potentiel pour des applications électriques, comme par exemple : effet antistatique, décharge ou dissipation électrostatique, dissipation électromagnétique, transformation conductrice et amélioration de la constante diélectrique.

Le carbone peut être utilisé sous diverses formes : poudre de noir de carbone (CB pour l'acronyme anglais Carbon Black) qui est la forme la plus simple, feuillets de graphène ou multicouches de graphite, nanofibres de carbone (CF), nanotubes de carbone mono-paroi (SWCNT) ou en multi-parois (MWCNT) (figure II.7). Comme ces particules vont être mélangées au sein de la matrice polymère, le paramètre le plus important et influant sur la globalité des propriétés est la compatibilité entre la matrice et la phase ajoutée, considérée en terme de dispersion, de distribution, d'interaction à l'interphase et de solubilité.

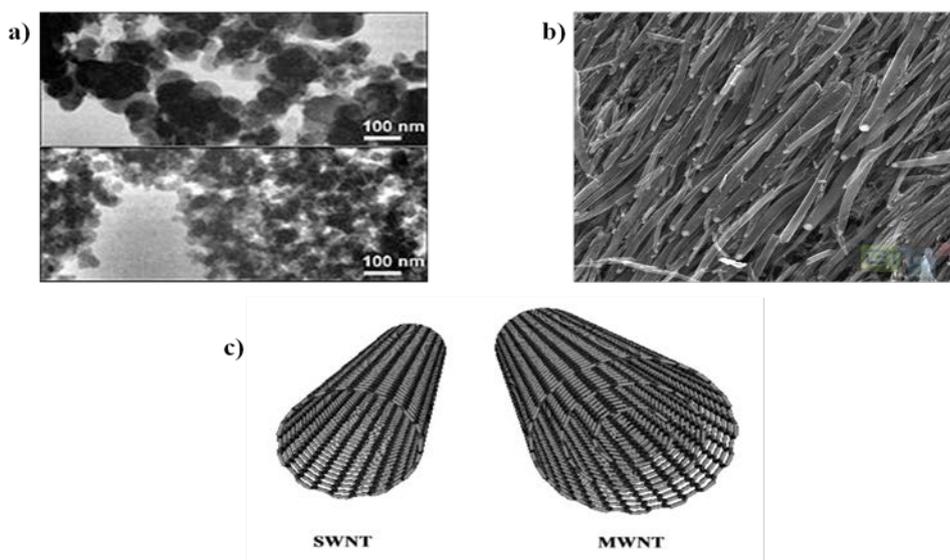


Figure II.7: Schémas des différentes formes de CB

- a) nano particules,
- b) nano fibres,

c) **nanotubes de carbone à mono-paroi SWCNT et à multi parois MWCNT**

Dans notre élaboration qu'on va détailler dans les prochaines paragraphes, nous nous intéresserons seulement par l'incorporation des nanoparticules de carbone dont la forme est sphérique et de diamètre inférieure à 100 nm .

II.3 Processus de fabrication des polymères composites

La problématique de l'élaboration de nano composites telle qu'elle apparaît dans la littérature est l'assurance d'une répartition homogène des nanoparticules au sein du matériau et l'amélioration de cette répartition par l'élimination de la formation d'agrégats au sein de la matrice pour que le matériau ne perde pas les avantages des tailles nanométriques.

Divers procédés de fabrication ont été mis au point pour les différents types de nano-composites afin d'obtenir une répartition idéale des nano-charges. Les techniques de fabrication varient selon la nature (métal, céramique ou polymère) de la matrice et selon celle des nano-renforts (particules, fibres, etc.). Aujourd'hui, les nano composites à matrice polymère sont les plus répandus car les procédés de fabrication sont les mieux maîtrisés.

II.3.1 Les différentes méthodes de dispersion des nanoparticules dans les systèmes polymères

Plusieurs voies mènent à la mise au point des nano composites polymère/charge. Toutefois, les modes de dispersion les plus amplement traités dans la littérature sont:

- La polymérisation par voie in situ
- La dispersion par voie solvant
- La dispersion par voie fondue

Dans chacune de ces méthodes, pour améliorer la dispersion ou l'adhésion polymère/charge, on utilise différents moyens : l'ajout d'un agent dispersant surfactant ou polymère, la fonctionnalisation des particules par des fonctions acides, amines ou des chaînes alkyles ou le greffage.

II.3.1.1 La polymérisation par voie in situ

La polymérisation par voie in situ consiste à disperser les particules dans une solution contenant le monomère ou une solution de monomères qui est ensuite polymérisée.

L'avantage de cette méthode est qu'elle peut être employée avec tous les polymères indépendamment de leur solubilité ou de leur dégradation thermique et elle permet aussi le greffage de chaînes polymères sur les nano-charges par liaison covalente obtenant ainsi une meilleure adhésion entre les nano charges et la matrice.

II.3.1.2 La dispersion par voie solvant

Cette méthode vise à introduire les particules ou particules/polymère dans un solvant organique du polymère. Ainsi, le nano composite est obtenu après récupération du solvant par évaporation. Les méthodes d'agitation utilisées sont : mécaniques avec pales ou barreau magnétique et les ultrasons. La plus utilisée, pour une meilleure dispersion, consiste à homogénéiser par l'utilisation des ultrasons. Les ultrasons induisent des défauts de différents types, dislocations, courbures, boucles, fractures conduisant à la formation de fragments de carbone [Lu1996]. La diminution de longueur a été mesurée au cours du temps par Badaire et al. [Bad2004] par diffusion dynamique de la lumière pour des dispersions aux ultrasons

Le choix du solvant est le plus souvent imposé par la nature du polymère constituant la matrice finale, indépendamment de ces qualités à disperser les particules. Un surfactant est alors employé pour faciliter la dispersion, celui-ci restant dans le composite final peut entraîner une diminution ou une modification des propriétés [Bry2005]. Par contre, l'utilisation d'un solvant permet de diminuer significativement la viscosité du composite et ainsi de préparer des composites à teneur élevée. L'étape d'évaporation lente peut entraîner une réagglomération des particules, c'est pourquoi d'autres méthodes ont été utilisées comme la précipitation ou le spin coating ou le drop-casting. Lors de la précipitation, les chaînes de polymères enrobent les charges et empêchent ainsi une agglomération.

II.3.1.3 La dispersion par voie fondue

La mise au point de nano composites charge/polymère par voie fondue en insérant directement les nanoparticules fondu au sein de la matrice polymère, est un des sujets de recherche les plus populaires ces dernières années. Cette dispersion est réalisée à haute température dans une extrudeuse ou un mélangeur interne induisant des forces de cisaillement permettant la dispersion des nano charges. En effet, la voie fondue est très intéressante d'un point de vue industriel vu la facilité de mise en œuvre et l'absence d'utilisation de solvants organiques [Fis1999].

L'inconvénient de la voie fondu est qu'elle conduit souvent à une plus mauvaise dispersion que la voie solvant. De plus, la teneur en nanotubes est limitée à cause de l'augmentation très importante de la viscosité. La dispersion peut être améliorée grâce à une augmentation de l'énergie de cisaillement soit en augmentant le temps de cisaillement soit en augmentant la vitesse de cisaillement, mais comme pour la voie solvant, le cisaillement imposé pour la dispersion entraîne une diminution de la longueur des particules.

Après l'étude des modes de dispersion, il a été choisi de réaliser des composites par le procédé ex-situ, en utilisant la méthode par voie solvant, pour des questions de facilité de mise en place et de polyvalence de cette technique.

II.3.2 Protocole d'élaboration des composites au LGEF

Le protocole d'élaboration présenté ci-dessous est décrit pour la préparation d'un composite à l'aide de polyuréthane (figure II.8). Mais il peut être généralisé à d'autres types de matrices. On peut résumer ce processus en trois grandes étapes :

- Dissolution des granules de PUs dans le solvant.
- Dispersion des nanoparticules conductrices dans le solvant.
- Mélange des deux solutions précédentes et évaporation du solvant jusqu'à obtenir une solution suffisamment visqueuse pour le dépôt des films.

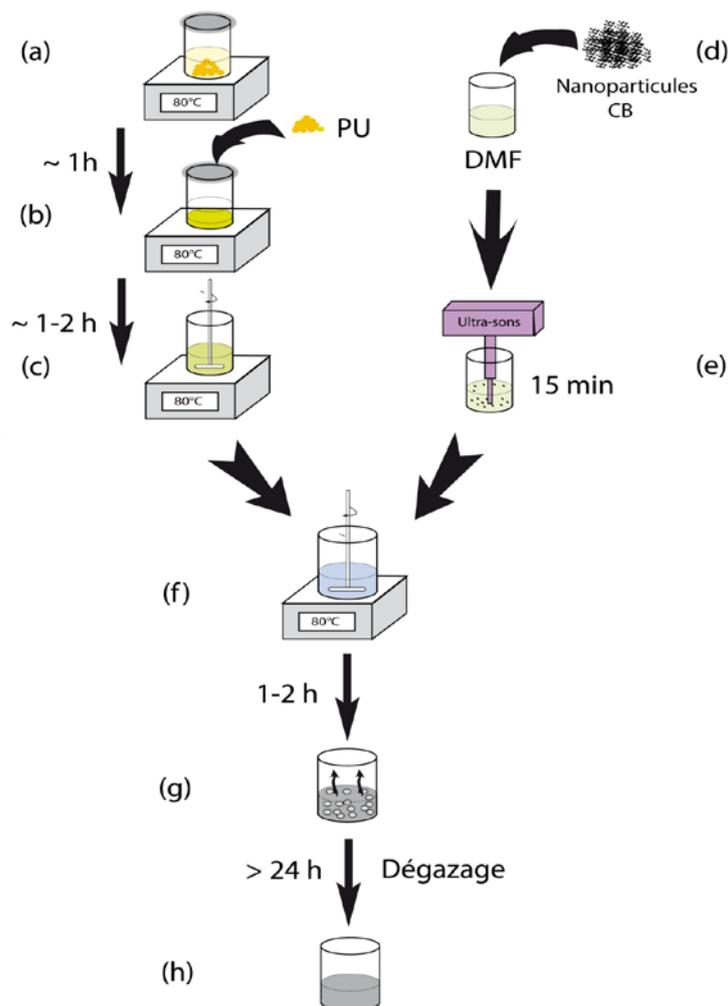


Figure II.8: Protocole d'élaboration des nano-composites

Nous avons utilisé le N,N-diméthylformamide (DMF) comme solvant polaire organique souvent utilisé pour dissoudre les élastomères [Iru1999] [Kor2006]. Il a une masse volumique de 0.949 g/cm^3 à 20 °C et une température d'ébullition de 153 °C .

- 1^{ière} étape

Avant de commencer l'élaboration de la solution, les granules de PUs sont séchés à 80 °C pendant 3 heures. Ensuite, on les dissout dans du DMF (N-N-DiMéthylFormamide, 99 %) à 80 °C , pendant plus d'une heure et demi. Afin de limiter l'évaporation du DMF et donc d'utiliser le moins de solvant possible, nous fermons le bécher par du parafilm comme le montre la figure II.8(a). Cette étape prolonge la durée de dissolution suffisamment longtemps pour que tous les granules soient bien gonflés puis dissouts dans le solvant (figure II.8(b)) avant l'agitation mécanique (figure II.8(c)). La solution obtenue est bien homogène avant l'ajout des nanoparticules.

La dissolution dans le bécher couvert a été ajoutée au protocole suite à des problèmes de mauvaise dissolution où les granules de PUs étaient ajoutées directement dans le solvant sous l'agitation mécanique, d'où une évaporation trop rapide du solvant et donc une dissolution incomplète des granules, à moins d'augmenter fortement les quantités de solvant utilisées.

- 2^{ème} étape

Cette étape consiste à disperser des nanoparticules (poudre) dans le solvant (figure II.8(d)). La dispersion est effectuée à l'aide d'une sonde à ultra-sons, UP400S (puissance maximale de 400 W) de Hielscher pour éviter la formation d'agrégat, pendant 20 minutes (cycle à 0.75 et l'amplitude 0.75 (75 % de puissance maximale)). Le bécher est placé dans un bac contenant des glaçons et fermé par du parafilm pour limiter l'évaporation du DMF et éviter les éventuels débordements (figure II.8(e)).

La quantité de charges à incorporer est calculée selon l'équation (II-29) avec m_C et m_{PU} respectivement, la masse des nano-charges et du PU, d_C et d_{PU} les densités respectives du carbone et du PU et x le pourcentage volumique des nano-charges pour la composition choisie.

$$m_C = \left(\frac{x}{100}\right) \cdot m_{PU} \cdot \left(\frac{d_C}{d_{PU}}\right) \quad \text{II-29}$$

- 3^{ème} étape

Le composite est homogénéisé sous agitation mécanique à l'aide d'une pale (type demi lune) avec une vitesse de rotation de 100 *trs/min* à une température de 80 °C pour disperser les nano-objets et évaporer le DMF (figure II.8(f)). Cette évaporation fait augmenter la concentration de la solution. Le contrôle du temps permet l'obtention d'une solution convenablement et suffisamment visqueuse pour le dépôt à l'aide de l'applicateur de film.

Juste après l'étape d'homogénéisation et d'évaporation, il reste des bulles d'air dans la solution surtout si elle est très visqueuse (figure II.8(g)). L'élimination des bulles peut se faire rapidement par un dégazage sous vide. Mais cette technique conduit à des problèmes de reproductibilité dans les propriétés électromécaniques car des microbulles de DMF se forment. Nous choisissons de laisser reposer lentement la solution pendant 1 à 2 jours afin que les bulles s'éliminent naturellement (figure II.8(h)). Toutefois il ne faut pas attendre trop longtemps avant le dépôt car il peut y avoir une ré-agglomération et une sédimentation des nanoparticules. En effet, la vitesse de sédimentation est déterminée par la compétition entre la

force gravitationnelle et la force hydrodynamique. Il faut signaler que les solutions de nano composites ne seront plus utilisées au-delà de 2 à 3 semaines.

Les films sont préparés selon la technique de solution-casting avec une lame inox réglable. Puis, ils sont déposés manuellement sur une plaque en verre avec un applicateur Elcometer, et séchés dans un four à 60 °C pendant une nuit. Ensuite, pour l'élimination complète du solvant, on les place dans une étuve à 125 °C pendant 3h, après les avoir décollés du support en verre. Pour les films à base de terpolymère, le traitement se fait en étuve sous vide à 85 °C pendant 6 h à 100 *mbar*. On compte au final une évaporation du solvant à 90 % de la solution déposée, ainsi pour obtenir un film de 50 μm on devrait utiliser une cale pour l'applicateur de 500 μm à la viscosité optimale. Car l'épaisseur du film après séchage est réduite d'un facteur proche de 10 par rapport à celle du film liquide (épaisseur de la cale d'ajustement) dans le cas d'une solution PU. On notera que plus la solution est visqueuse plus l'épaisseur de la cale de l'applicateur à utiliser est petite (inférieur à 500 pour un film d'une épaisseur de 50 μm).

Remarque : Certaines sous-étapes ont été ajoutées dans le protocole afin de bien homogénéiser les granules de PU et éliminer lentement les bulles d'air. La concentration du PU dans le DMF a été contrôlée (à la place de la viscosité de solution). Toutes ces étapes permettent l'obtention reproductible de films homogènes et d'épaisseur constante et contrôlable.

III. Caractérisation des polymères électrostrictifs et composites

L'objectif de cette partie consiste à présenter le principe de caractérisation des propriétés diélectrique et mécanique ainsi que l'interprétation des résultats expérimentaux effectués, afin d'analyser le rôle des nanoparticules de carbone et leur influence sur les performances des polymères électrostrictifs.

III.1 Caractérisation diélectrique

La caractérisation diélectrique à basse fréquence sera focalisée sur l'étude de grandeurs suivantes : la permittivité diélectrique, la conductivité, les pertes diélectriques et la phase.

III.1.1 Principe de mesure

Le principe est basé sur la mesure de la capacité du condensateur réalisé avec le matériau à étudier comme élément diélectrique (figure II.9). Ainsi, avant la caractérisation électrique, les deux surfaces des films doivent être couvertes d'une électrode d'or déposée par pulvérisation cathodique (Cressington 208 HR). Les propriétés diélectriques sont mesurées en utilisant l'interface diélectrique 1296 et l'analyseur d'impédances 1255 (Solartron).

Il consiste à appliquer une tension AC de $1V$ à l'aide d'un générateur de fonction (Agilent 33220A) sur le film polymère disposé entre deux électrodes en laiton à température ambiante, sur une bande de fréquence de 10^{-1} à $10^6 Hz$. L'admittance électrique, la capacité, la permittivité, le facteur de perte et la phase sont enregistrés pour calculer les propriétés diélectriques à partir de la surface d'électrode d'or et de l'épaisseur de l'échantillon. Ces mesures ont été menées au laboratoire MATEIS.

On peut calculer la conductivité électrique volumique complexe σ^* à partir de l'admittance complexe Y^* et des dimensions de l'échantillon, selon la relation ci-dessous :

$$\sigma^* = Y^* \frac{e}{A} \quad \text{II-30}$$

où e est l'épaisseur du film testé et A est sa surface.

A partir de la capacité complexe C^* et les dimensions de l'échantillon, on peut calculer la permittivité complexe ε^* , définie par ses parties réelle ε' et imaginaire ε'' ainsi le facteur dissipatif de la permittivité $\tan\delta$, selon les relations suivantes :

$$\varepsilon^* = C^* \frac{e}{A} = (C' - jC'') \frac{e}{A} = \varepsilon' - j \varepsilon'' \quad \text{II-31}$$

$$\varepsilon_r = \frac{\varepsilon'}{\varepsilon_0} \quad \text{II-32}$$

$$\tan\delta = \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'} \quad \text{II-33}$$

où ε_r est la permittivité relative, que l'on appelle également constante diélectrique réelle.

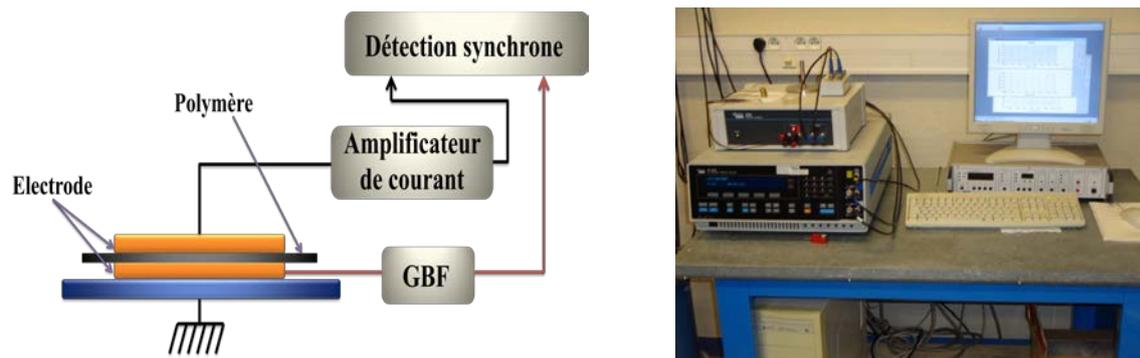


Figure II.9: Principe de mesure des caractéristiques diélectriques à basse fréquence

III.1.2 Résultats expérimentaux

Des études antérieures dans notre laboratoire ont notamment montré que les propriétés d'actionnement peuvent être considérablement améliorées par l'incorporation de noir de carbone nano poudres dans la matrice des polymères électrostrictifs de type polyuréthane (PU) ou terpolyimère (P(VDF-TrFE-CFE)) [Gui2006]. Il est possible que cette addition puisse également renforcer la capacité de récupération d'énergie des matériaux composites. Par conséquent, les propriétés diélectriques qui sont considérés comme un paramètre crucial pour la récupération d'énergie, seront présentés par la suite. Il faut noter que la gamme d'épaisseur des échantillons testés est entre $50 \mu\text{m}$ et $80 \mu\text{m}$.

III.1.2.1 Constante diélectrique et l'indice de pertes

La variation des constantes diélectriques et l'indice de perte pour les différents matériaux étudiés avec les composites à base de matrice de polyuréthane et à base de matrice de P(VDF-TrFE-CFE) en fonction de la fréquence est illustré dans les figures de II.10 à II.13. Selon cette variation, on peut distinguer deux zones de fonctionnement intéressantes, l'une inférieure à 1Hz et l'autre entre 10Hz et 10kHz . Pour les faibles fréquences (inférieures à 1Hz), une augmentation significative de la permittivité est observée pour les différents matériaux ainsi que les indices des pertes. Cet accroissement s'explique par la théorie des diélectriques détaillée dans le premier paragraphe de ce chapitre. Dans cette bande de fréquence, l'ensemble des phénomènes de polarisation interviennent, en plus de la polarisation interfaciale ou de Maxwell. L'amplitude élevée des pertes en basse fréquence s'explique par le phénomène de conduction dans les polymères.

Les mécanismes de polarisation sont dus aux charges liées localement dans les molécules. Lorsque les particules conductrices sont gênées dans leurs déplacements, ou immobilisés dans le polymère, il y a formation de charges d'espace et distorsion macroscopique du champ. Cette distorsion est perceptible par un accroissement de la capacité de l'échantillon.

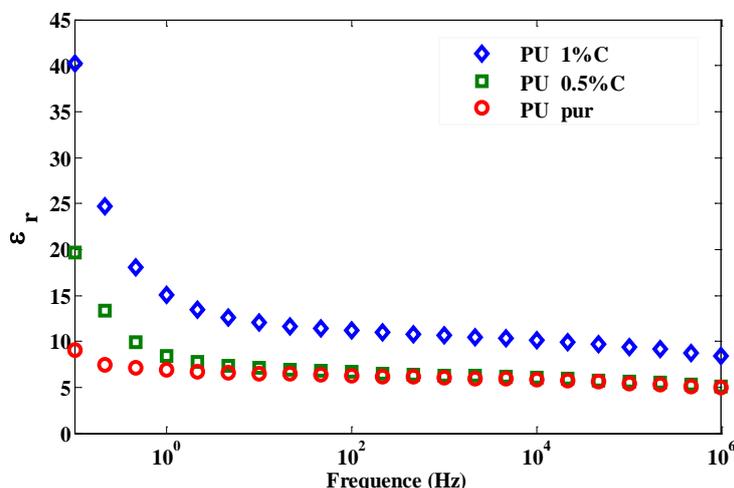


Figure II.10: Permittivité relative en fonction de la fréquence pour les composites à base de matrice polyuréthane

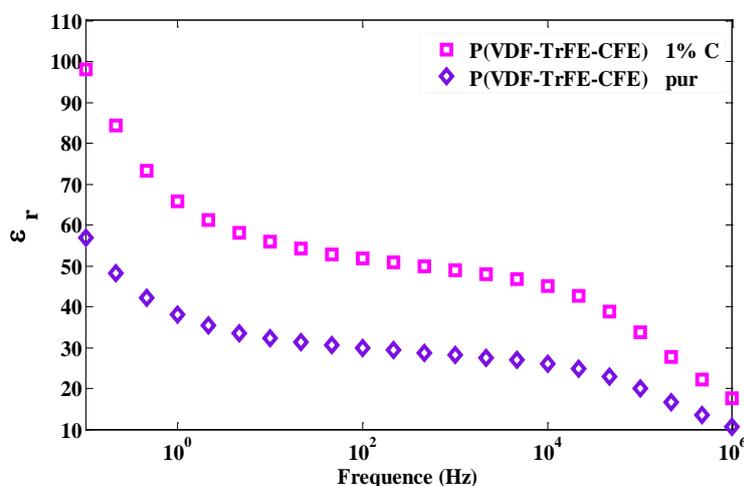


Figure II.11: Permittivité relative en fonction de la fréquence pour les composites à base de matrice de P(VDF-TrFE-CFE)

Pour la bande de fréquences comprises entre 10Hz et 10kHz, la permittivité relative du polymère est quasi constante. Cela correspond au plateau de la polarisation d'orientation. On peut expliquer ça par l'orientation des molécules qui possèdent un moment dipolaire permanent. La structure de ces molécules est asymétrique : le centre de gravité résultant de toutes les charges négatives d'une telle molécule ne coïncide pas avec celui de toutes ses charges positives, la molécule est un dipôle électrique.

Les permittivités relatives des composites sont supérieures par rapport à celles de matrice de départ (figures II.10 et II.11). Cette amélioration des paramètres diélectrique est due à l'ajout des nanoparticules de carbone qui permettent de créer de nouveaux dipôles. Par contre, il engendre aussi un déséquilibre dans la structure du polymère, d'où une favorisation de la polarisation d'orientation traduit par une augmentation de la permittivité.

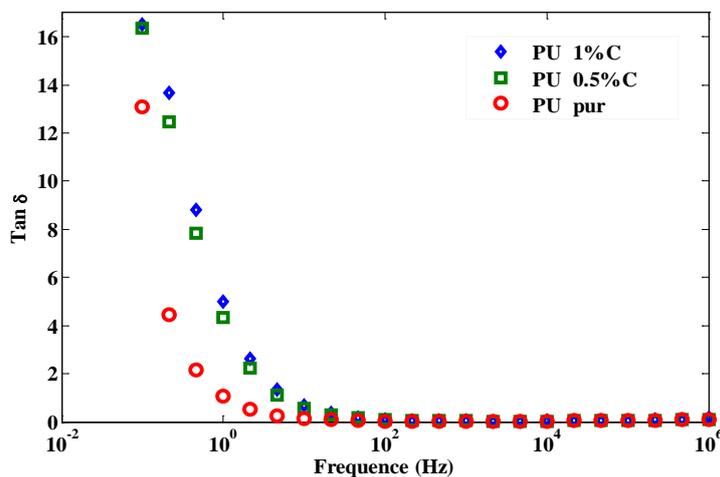


Figure II.12: Indice de perte en fonction de la fréquence pour les composites à base de polyuréthane

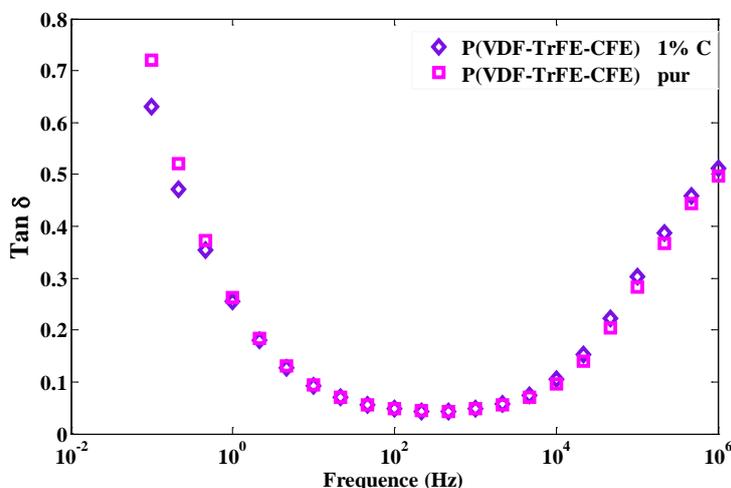


Figure II.13: Indice de perte en fonction de la fréquence pour les composites à base de P(VDF-TrFE-CFE)

Malgré l'inconvénient que la permittivité augmente en parallèle avec la conduction donc les pertes, des résultats encourageants laissent supposer que cette méthode de charge est très prometteuse pour l'augmentation des propriétés électromécaniques des polymères électroactifs. L'effet majeur de la présence de charges dans un diélectrique est la modification de la distribution interne du champ électrique, ce phénomène est largement amplifié lorsque des

particules conductrices sont dispersées dans la matrice diélectrique car elles sont équivalentes à des dipôles.

III.1.2.2 Conductivité et la phase

La conductivité électrique qui désigne l'inverse de la résistivité et la phase qui traduit le déphasage entre la tension et le courant pour les différents matériaux étudiés sont reportées en fonction de la fréquence à la température ambiante (25 °C) (figure II.14 à II.17).

La conductivité électrique d'un polymère dépend de la nature des ions présents dans la solution et de leurs concentrations qui sont au dessous du seuil de percolation pour notre cas.

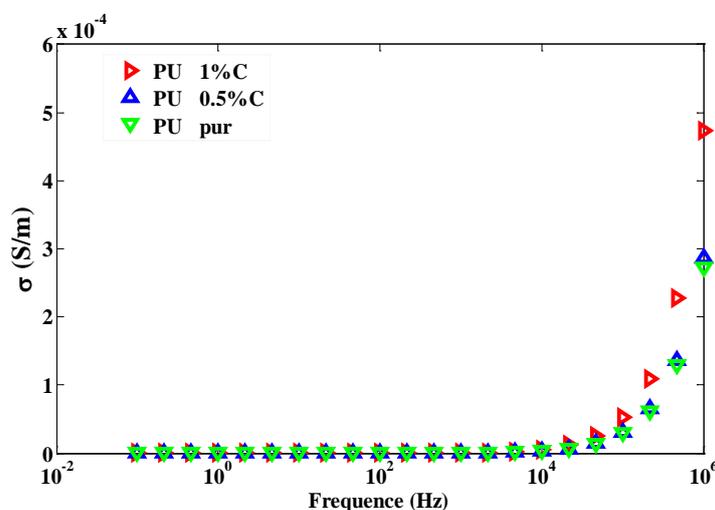


Figure II.14: Conductivité en fonction de la fréquence pour les composites à base de polyuréthane

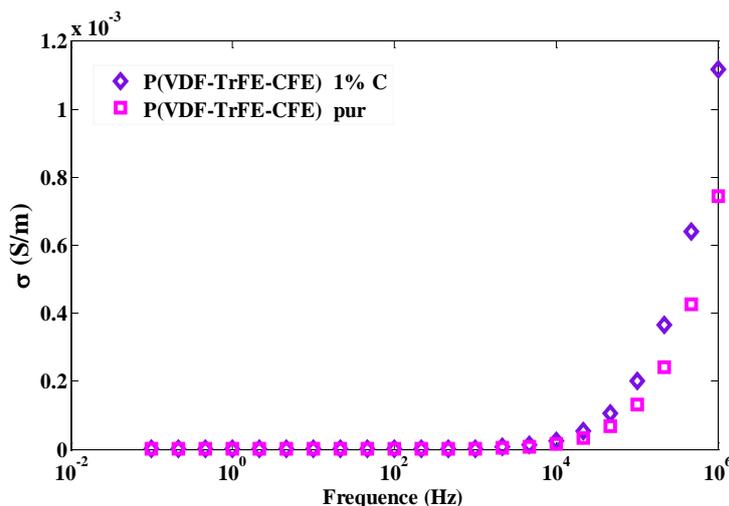


Figure II.15: Conductivité en fonction de la fréquence pour les composites à base de P(VDF-TrFE-CFE)

Dans les figures II.14 et II.15, nous observons que la conductivité électrique reste constante (nulle) jusqu'à la fréquence 10^4 Hz . Au-delà de cette valeur de fréquence, la conductivité électrique augmente, ce qui traduit qu'à haut fréquence notre matériau devient conducteur.

De plus, on peut noter que l'ajout de nanoparticules à la matrice de départ n'a aucune influence sur la conductivité dans la bande de fréquence au-dessous de 10^4 Hz pour les différents matériaux.

On constate également sur les courbes de conductivité que pour les fréquences qui sont inférieures à 10^4 Hz , la conduction par des charges est le mécanisme prépondérant alors que pour les fréquences supérieures à cette valeur, ce sont les pertes diélectriques qui prédominent. De même, on constate que le taux de nanoparticules de carbones ajouté (1% C) est très raisonnable dans le but d'améliorer les performances de nos films testés pour la récupération d'énergie dans une basse gamme de fréquences.

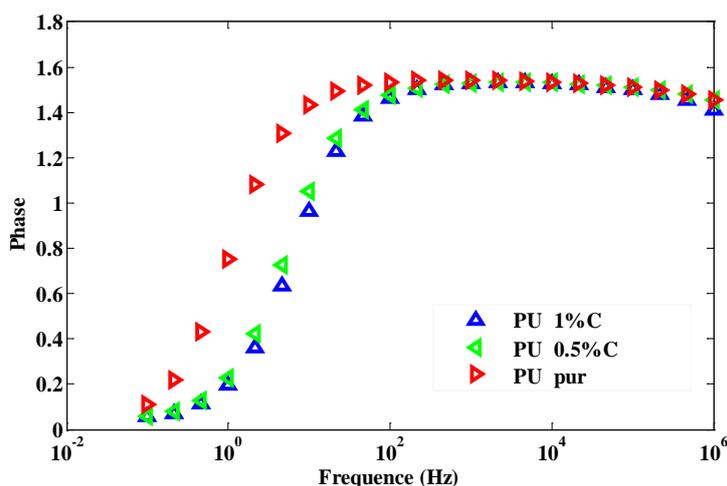


Figure II.16: La phase en fonction de la fréquence pour les composites à base de polyuréthane

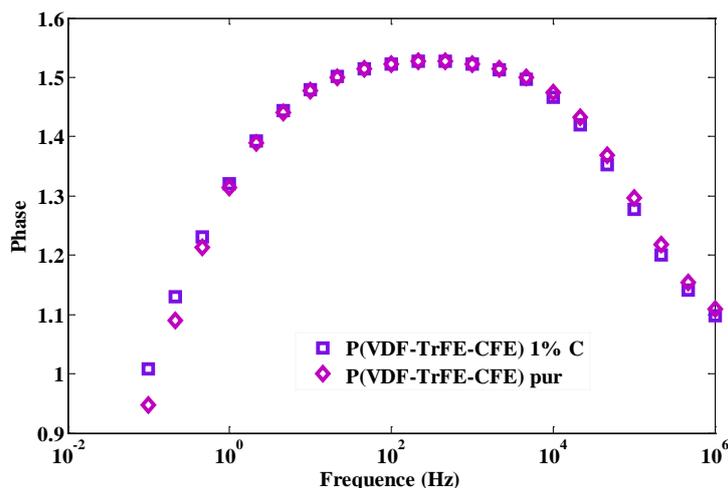


Figure II.17: La phase en fonction de la fréquence pour les composites à base de P(VDF-TrFE-CFE)

III.2 Caractérisation mécanique

L'étude des propriétés mécaniques des polymères se révèle complexe en raison de la diversité des comportements observés en fonction de la température, de la déformation ou de la fréquence de sollicitation. Notre intérêt se porte essentiellement sur la déformation et la fréquence d'excitation. Selon les équipements, différents modes de sollicitation peuvent être utilisés (traction, cisaillements, flexion simple...). Le pilotage peut être fait soit en fixant la force appliquée et en mesurant la déformation, soit en travaillant à déformation imposée et en mesurant la force. Dans notre cas les essais en traction ont été choisis pour la facilité de mise en place.

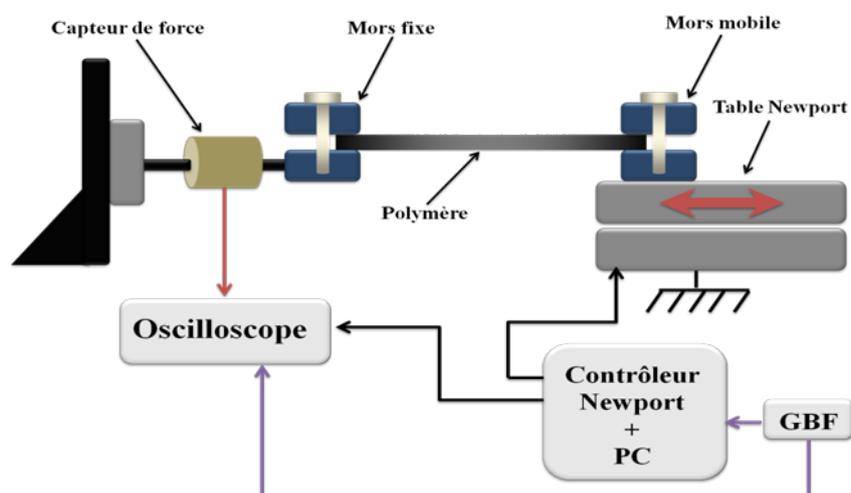
En traction à température ambiante, le module d'Young est caractéristique de la rigidité du matériau, plus ce paramètre est faible plus le composé est flexible. Il est défini par le rapport entre la contrainte et la déformation pour de petites elongations, inférieures à 10 % pour les élastomères. La démarche proposée consiste à mesurer le module d'Young pour les différents matériaux et composites étudiés à base de polyuréthane et le téropolymère (P(VDF-TrFE-CFE)) et voir l'influence de l'incorporation de noir de carbone dans la matrice de départ sur la variation du module élastique. Puis nous nous intéressons sur la caractérisation des pertes mécaniques dans nos échantillons dans le but de chercher un intervalle optimal de fonctionnement et de minimiser la dissipation d'énergie mécanique.

III.2.1 Principe de mesure

Le principe de mesure est réalisé à l'aide d'une table à un degré de liberté Newport. La figure II.18 illustre le principe de fonctionnement. Pour notre expérience, les échantillons à tester ont été coupés sous forme de rectangles de $9.5 \times 25 \text{ mm}^2$, puis montés en bloquant les deux bords du film tout en laissant une longueur utile de 20 mm entre deux mors, un dit mobile car relié à la table à un degré de liberté, l'autre fixe car relié au capteur de force. La table Newport est commandée à l'aide d'un générateur de fonction connecté au contrôleur.

Les signaux délivrés par le capteur de force et le déplacement sont ensuite visualisés sur un oscilloscope. Il est possible d'obtenir une large gamme de déformations sur une bande de fréquence importante.

La mesure en traction des films est effectuée à une amplitude de déformation entre 2.5% et 10 % et pour une gamme d'épaisseur de $50 \mu\text{m}$ jusqu'à $100 \mu\text{m}$. Les échantillons ont été soumis à des cycles de chargement-déchargement avec un taux de déformation réelle constante. La courbe du cycle contrainte réelle par rapport à la déformation réelle a été documentée pour chaque test.



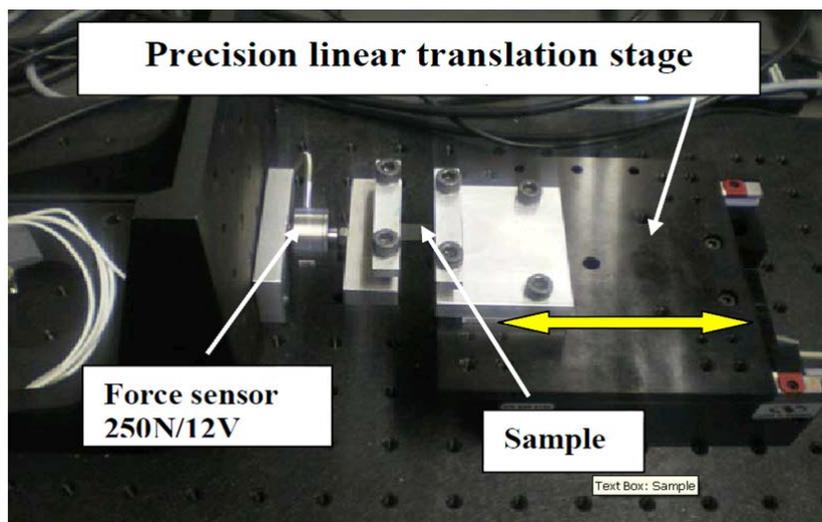


Figure II.18: Illustration schématique et photo du principe de fonctionnement du comportement mécanique (contrainte-déformation) des polymères.

III.2.2 Etude théorique

Les polymères électrostrictifs présentent des caractéristiques très attractives, et par conséquent, ils ont été largement étudiés, soit dans le but de comprendre le phénomène d'électrostriction [Yim1999] [Gui2003] [Su1998] ou en vue d'applications pratiques [Her1982] [Bar2001]. Le développement de nouveaux matériaux avec des résultats de grande déformation dans plusieurs applications qui mettent à profit des matériaux électrostrictifs comme les actionneurs ou comme transducteurs accordables [Cro1995] [Sun1996]. Des études antérieures effectuées par Eury et al. [Eur1999], Guillot et Balizer [Gui2003] ont montré que le coefficient d'électrostriction est proportionnel à la permittivité et le module de Young. Cette dépendance démontre clairement que l'accroissement de la permittivité du matériau entraîne une augmentation des performances de polymères électrostrictifs et les élastomères diélectrique.

Il est donc essentiel de développer des méthodes capables d'augmenter les propriétés diélectriques, tout en assurant un module de Young optimale pour maintenir les polymères flexibles avec un minimum des pertes mécaniques. Le phénomène réversible, qui se réfère à l'absence d'énergie dissipée au cours d'un cycle, se compose de chargement suivi par le même chemin de déchargement. En d'autres termes, l'énergie mécanique absorbée par le matériau élastique à déformer est entièrement stockée, puis restaurée lorsque la contrainte est supprimée.

De nombreux modèles ont été proposés pour reproduire le comportement mécanique complexe de l'EAP, comme l'hyper-élasticité [Att2004] [Arr1993] et viscoélasticité [Dro2003] [Wu2000] [Ber1998]. Tomita et al. a également proposé un modèle visco-hyper élastique d'un réseau de 8-chaîne qui intègre un amortisseur non linéaire avec ressorts Langevin.

Notre étude théorique nous permet de présenter un modèle de comportement hystérétique des polymères électrostrictifs dans le but de prendre en considération les pertes mécaniques existant dans le film, et qui sera responsable de la dissipation d'énergie mécanique. Le module d'Young suit une loi linéaire en fonction de la déformation et de la contrainte. Cependant, quand l'élongation devient plus élevée, la courbe de déformation dérive de cette tendance linéaire et un cycle d'hystérésis significatif apparait traduisant l'existence de pertes mécaniques.

Un grand nombre de tests au laboratoire (LGEF) sur des polymères électrostrictifs montre que les cycles contrainte-déformation sont fortement non linéaires et constituent un cycle d'hystérésis fermés. Les résultats de ces tests montrent que les propriétés d'amortissement sont de type hystérétique, à la différence du modèle de Kelvin-Voigt dont elles suivent un comportement non visqueux [Bra2002].

Le modèle de Hooke généralisée (aussi connu comme le modèle à ressort) est le modèle le plus simple pour décrire la variation de la déformation d'un échantillon avec la contrainte mécanique. Le modèle est linéaire, prédisant que le déplacement U appliquée à l'échantillon est proportionnelle à la force F détectée par le capteur de force. La représentation mathématique de ce problème est donnée par l'équation suivante:

$$\tau = Y.S \quad \text{II-34}$$

Cette équation (II-34) nous permet de proposer un modèle qui décrit la non-linéarité observée pour les courbes contrainte-déformation. Par analogie, notre matériau peut être équivalent à un ressort en parallèle avec un amortisseur comme le montre la figure II.19, la caractéristique d'élasticité du film polymère et de l'amortisseur permet de décrire les pertes mécaniques dans le film.

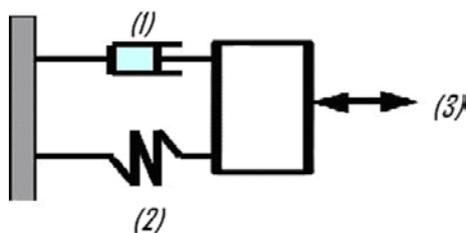


Figure II.19: Structure équivalent du polymère.

où (1) est de l'amortisseur, (2) est le ressort et (3) est la direction de déplacement longitudinal.

Le principe de base est d'introduire les pertes mécaniques à l'équation II-34 par la variation du module de Young en fonction du temps. L'expression de contrainte devient comme suit:

$$\tau(t) = Y_0 h(t) \otimes S(t) \quad \text{II-35}$$

Ici, \otimes correspond à l'opération de convolution.

Où Y_0 est le module d'Young du polymère électrostrictif et $h(t)$ est une fonction qui introduit les pertes mécaniques par un temps caractéristique mécanique $\zeta_{méc}$, et elle est exprimée par :

$$h(t) = e^{\left(-\frac{t}{\zeta_{méc}}\right)} \quad \text{II-36}$$

avec

$$\tau(t) = \frac{F(t)}{eL} \quad \text{II-37}$$

et

$$S(t) = \frac{U(t)}{l} \quad \text{II-37}$$

où e , l et L sont l'épaisseur, la longueur et la largeur d'échantillon respectivement.

Donc l'équation finale de la force résultante en fonction du déplacement imposé est sous la forme suivante:

$$F(t) = \left(\frac{eLY_0}{l}\right) \left(e^{\left(-\frac{t}{\zeta_{méc}}\right)} \otimes U(t)\right) \quad \text{II-38}$$

Dans cet essai en traction à température ambiante, un déplacement sinusoïdal est imposé, puis un signal sinusoïdal de la force est récupéré (fig. II.20). Ce déplacement dynamique imposé est donnée par l'équation ci-dessous :

$$U(t) = U_{dc} + U_{ac} \sin(\omega t) \quad \text{II-39}$$

où U_{dc} , ω et U_{ac} correspondent respectivement au déplacement statique, la pulsation de l'excitation mécanique et l'amplitude de déplacement.

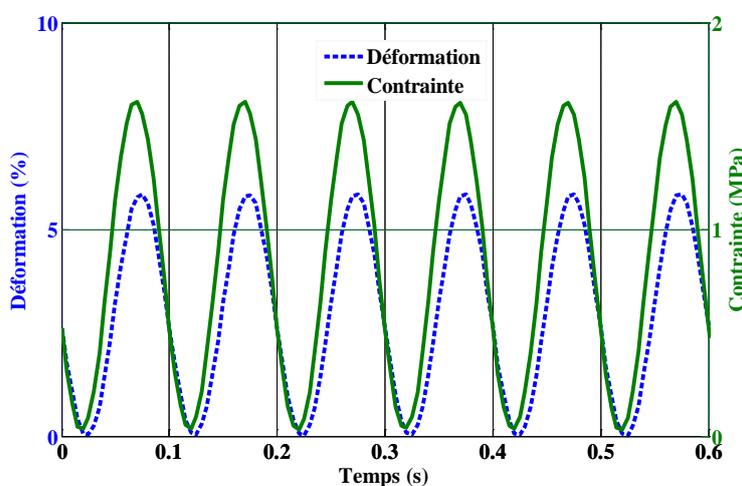


Figure II.20: La déformation et la contrainte en fonction du temps pour un film de P(VDF-TrFE-CFE) 1% C

La figure ci-dessus montre le signal de la déformation et celle de la contrainte mécanique d'un film de P(VDF-TrFE-CFE) 1% C d'une épaisseur de $78 \mu m$ pour une amplitude de déformation de $S = 6.8\%$ et une fréquence de 10 Hz . Cependant, la déformation et la contrainte ne sont pas en phase confirmant ainsi l'existence des pertes mécaniques.

III.2.3 Résultats expérimentaux et discussion

Le comportement mécanique contrainte-déformation de polyuréthane, P (VDF-TrFE-CFE) et composites, a été étudiée en utilisant la technique décrite dans le paragraphe III.2.1. Les échantillons ont été étirés à différentes amplitude de déplacement ($35, 70$ et 100 mVpp) et dans une gamme de fréquence quasi-statique (0.1 Hz à 10 Hz).

Pour vérifier la validité du modèle proposé, la figure II.21 donne une comparaison entre le modèle théorique et les résultats expérimentaux pour un échantillon de type PU 1% C, d'épaisseur de $57 \mu m$ avec une amplitude de déplacement de 100 mVpp et à une fréquence de 10 Hz . Un excellent accord a été trouvé entre la modélisation proposée et les données expérimentales mesurées pour les polymères électrostrictifs. Par conséquent, Le comportement du matériau est un comportement d'hystérésis. Cela laisse supposer que le caractère non linéaire de la déformation avec la contrainte est dû à l'existence de pertes mécaniques dans le matériau.

Ces pertes devenues une forme d'énergie dissipée dans le matériau, donc l'utilisant de ce modèle, nous permet de réduire ces pertes en réduisant la surface de l'hystérésis contrainte-déformation par l'étude de l'influence de l'amplitude de déformation appliquée ainsi que la fréquence mécanique, dans le but d'optimiser l'intervalle de fonctionnement par la minimisation de cette énergie dissipée dans le polymère.

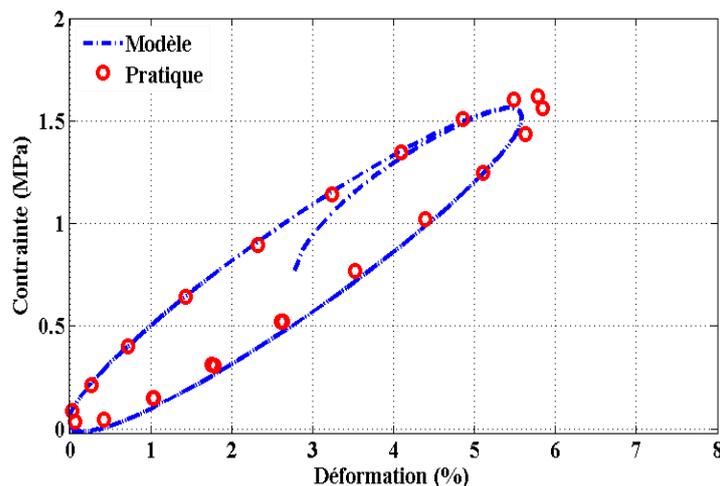


Figure II.21: Comparaison entre le modèle et la pratique sur un échantillon de PU 1% C à 10 Hz

La prochaine démarche proposée consiste à examiner l'influence des nanoparticules de carbones insérés dans l'élastomère de départ, de l'amplitude de déplacement imposée et de la fréquence sur l'amplitude de module d'Young (relevée par la pente de la courbe contrainte-déformation) et sur la variation des pertes mécaniques dans le polymère qui sont décrites par la surface de l'hystérésis contrainte-déformation pour les deux types de polymères étudiés (PU et P(VDF-TrFE-CFE)) à la température ambiante.

III.2.3.1 Influence des nanoparticules

Les courbes contraintes-déformations d'un PU pur et du même type chargé à l'aide des nano renforts de carbone à différent pourcentage, ainsi que celle obtenue pour une matrice de P(VDF-TrFE-CFE) sont présentées dans les Fig. II.22 et II.23. Les résultats obtenus montrent clairement que l'ajoute des nanoparticules dans les matrices de départ a une faible influence sur le module de Young et sur la surface qui décrit les pertes mécaniques. Cette légère augmentation permet de garder la flexibilité des élastomères pour une bonne performance en actionnement et de profiter sur l'élévation de la permittivité relative par l'incorporation des particules conductrices pour la récupération d'énergie.

Dans le cas d'un polymère électrostrictif, des études antérieures menées par Eury [Eur1999] puis par Guillot [Gui2002] ont démontré que le coefficient d'électrostriction M_{ij} qui définit la relation entre la déformation et le champ électrique pour des faibles amplitudes de champ électrique est proportionnel à la permittivité et au module d'Young (équation II-40), cette dépendance empirique sera de nouveau observée dans les prochains chapitres.

$$M_{ij} \propto \frac{\varepsilon_0(\varepsilon_r-1)^2}{Y.\varepsilon_r} \quad \text{II-40}$$

Cette équation démontre bien qu'un renforcement de la permittivité des matériaux engendre une augmentation des performances des polymères électrostrictifs et élastomères diélectriques. Suite aux résultats obtenus par la méthode développée dans le paragraphe III, les propriétés diélectriques sont améliorées tout en garantissant un module Young faible pour conserver le caractère souple des polymères.

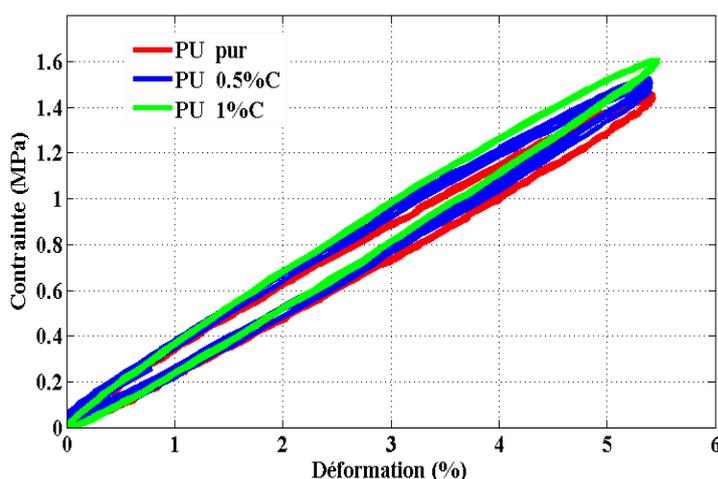


Figure II.22: Courbes contrainte-déformation des matériaux à base de matrice de PU pour une amplitude de $S = 5.8 \%$ à 1 Hz

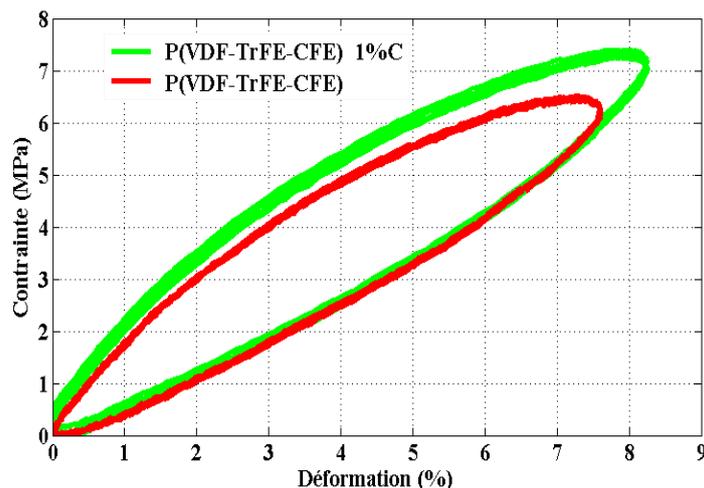


Figure II.23: Courbes contrainte-déformation des matériaux à base de matrice de (P(VDF-TrFE-CFE)) pour une amplitude de $S = 8.5 \%$ à 0.1 Hz

III.2.3.2 Influence de l'amplitude de déplacement

La figure II.24 montre la traction axiale du comportement contrainte-déformation pour des différentes amplitudes de déplacement imposé d'un échantillon de PU 1%C avec une épaisseur de $90 \mu\text{m}$ et pour une fréquence de 1 Hz (figure II.24 (a)), ainsi que celle obtenue pour un échantillon de P (VDF-TrFE-CFE) 1%C avec une épaisseur de $78 \mu\text{m}$ et une fréquence $0,1 \text{ Hz}$ (figure II.24 (b)). Ces résultats montrent clairement que les pertes mécaniques (i.e. variation du module de Young par rapport au temps) croissent avec l'augmentation de l'amplitude de déplacement pour les deux types de polymères, cela signifie que le mécanisme de perte introduit par la variation de l'amplitude de déplacement devient aussi plus important.

D'autre part, la variation du module de Young (donné par la pente des courbes) dépend du type de matériau. Pour PU 1%C, cette variation est inchangé par rapport à l'augmentation de cycle d'hystérésis. Donc, le module de Young reste pratiquement inchangé comme le montre le tableau II.1, et l'augmentation du cycle d'hystérésis est du à l'énergie dissipée dans le polymère.

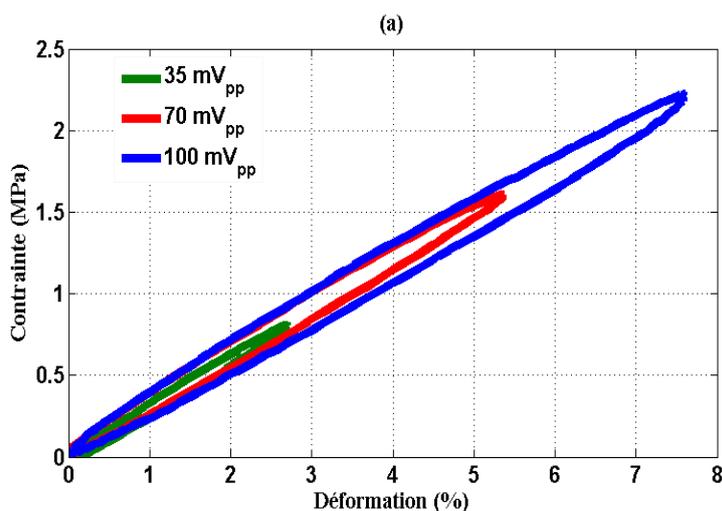
Par contre dans le cas de P (VDF-TrFE-CFE) 1%C, on a observé que l'augmentation du cycle d'hystérésis avec la variation de l'amplitude de déplacement, entraîne une diminution de l'amplitude de module de Young (Tableau II.1), cela peut être expliqué par la nature de notre polymère (thermoplastique), ce type de matériau possède une vitesse de déformation élevée pour obtenir un pic (contrainte maximale) qui coïncide avec l'étranglement; localement dans une bande, la déformation peut atteindre une valeur élevée (100%) et un ramollissement

notable du polymère produit. En conséquence, la contrainte nécessaire pour maintenir la vitesse de déformation constante diminue (plasticité).

Tableau II.1: Amplitude de module de Young à différentes amplitude de déplacement

Materials	Amplitude of Young's modulus (MPa)	
	PU 1%C at 1Hz	P(VDF-TrFE-CFE)1%C at 0.1Hz
35 mV _{pp}	30.02	156
70 mV _{pp}	30.18	148
100 mV _{pp}	29.22	121

Selon les données du tableau ci-dessus, Le P(VDF-TrFE-CFE)1%C est plus rigide que le polyuréthane, mais il présente aussi une plus grande permittivité; étant donné que la performance en actionnement est contrôlée par le rapport ϵ_r/Y , les deux matrices pourront être envisagées.



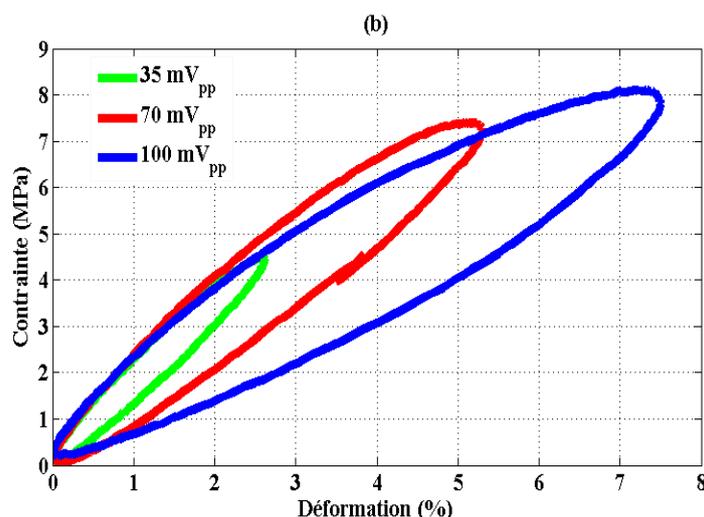


Figure II.24: Courbes contrainte-déformation pour différentes amplitudes de déformation

- (a) PU 1% C
 (b) P(VDF-TrFE-CFE) 1% C

III.2.3.3 Influence de la fréquence

La figure II.25 présente l'évolution du cycle contrainte-déformation pour une basse gamme de fréquence (0.1Hz à 10Hz) et avec une valeur d'amplitude de déplacement $100mV_{PP}$. Les deux échantillons testés sont le P (VDF-TrFE-CFE) 1%C avec une épaisseur de $49\mu m$ (figure II.25 (a)) et le PU 1%C ayant une épaisseur de $100\mu m$ (figure II.25 (b)). Cette figure montre l'indépendance de la surface du cycle d'hystérésis par rapport à la gamme de fréquence utilisée (quasi-statique), par conséquent, l'augmentation de la fréquence entraîne un changement de la pente, ce qui traduit une augmentation de l'amplitude du module de Young.

Pour les fréquences inférieures à 20 Hz , il est intéressant de noter que les pertes mécaniques dans les polymères sont faibles. Par contre celles-ci deviennent plus importantes plus tard avec une augmentation du module de Young. Ces données sont capitales car elles permettent de définir la plage de fonctionnement optimal, dans laquelle il est possible d'utiliser les polymères pour la récupération d'énergie et l'actionnement à une température donnée. En effet, pour la bande de fréquence où le maximum de perte aura lieu, l'efficacité de nos polymères ne sera pas optimale. Une grande partie de l'énergie mécanique sera dissipée sous forme de pertes (chaleur).

Ce maximum se produisant dans les hautes fréquences, cela n'est pas une contrainte primordiale pour les applications visées : la plupart des vibrations mécaniques ont lieu pour des fréquences inférieures à 20 Hz .

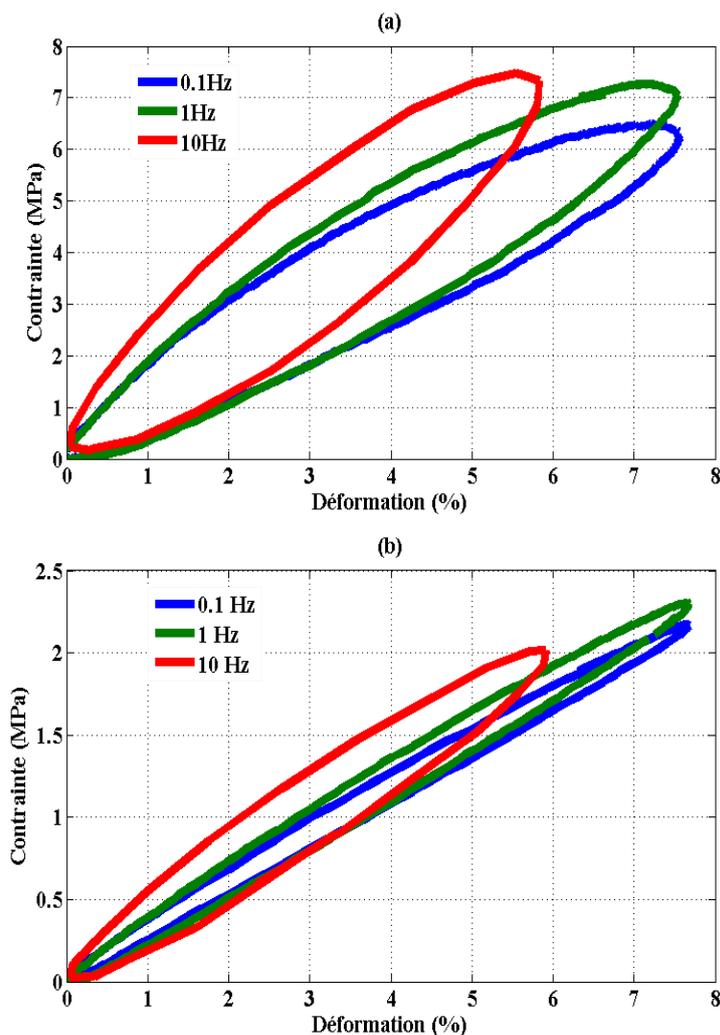


Figure II.25: Courbes contrainte-déformation pour différentes fréquences

- (a) P(VDF-TrFE-CFE) 1% C
 (b) PU 1% C

En vue des résultats obtenus, l'utilisant de ce modèle nous a permis de voir plus précisément la dépendance des pertes mécaniques avec la variation de l'amplitude déformation et de la fréquence mécanique. Ainsi que le contrôle de l'énergie mécanique dissipée dans les polymères électro-actifs dans le but d'optimiser la plage de fonctionnement de ces polymères pour l'actionnement et la récupération d'énergie

III.3 Synthèse sur la caractérisation

Le tableau ci-dessous résume les principaux résultats obtenus lors de la caractérisation électrique et mécanique pour les différents polymères et composites élaborés au LGEF. Cette synthèse nous permet de connaître l'influence des nanoparticules injectées dans la matrice de départ sur les paramètres intrinsèques des polymères. Elle nous a aussi permis d'examiner la dépendance de ces paramètres avec l'amplitude de déplacement mécanique (caractérisation

mécanique pour une amplitude de $35 mV_{PP}$) et de la fréquence mécanique (basse fréquence). Cette synthèse a été effectuée dans le but d'optimiser l'intervalle de fonctionnement pour une meilleure application dans le domaine d'actionnement et récupération d'énergie. Pour finaliser cette description, le prochain chapitre sera focalisé sur la caractérisation électromécanique des polymères étudiés, afin d'améliorer les performances électromécanique de ces polymères.

Tableau II.2: Synthèse des résultats obtenus lors de la caractérisation des polymères et composites étudiés pour une épaisseur de $(85 \pm 4) \mu m$.

	<i>Matériaux</i>	<i>Y (MPa)</i>	ϵ_r	$\sigma_c (S/m)$	<i>Tanδ</i>	<i>Phase</i>
100 mHz	PU pur	32	9	$3.96 \cdot 10^{-10}$	13	0.11
	PU 0.5% C	34	19.7	$3.98 \cdot 10^{-10}$	16.3	0.57
	PU 1% C	37	40.2	$3.99 \cdot 10^{-10}$	16.4	0.58
	P(VDF-TrFE-CFE)) pur	192	56.8	$4.387 \cdot 10^{-10}$	0.6	0.95
	P(VDF-TrFE-CFE)) 1% C	197	98.2	$4.392 \cdot 10^{-10}$	0.72	1.01
1 Hz	PU pur	35	6.95	$5.5 \cdot 10^{-10}$	1.066	0.76
	PU 0.5% C	36	8.4	$5.51 \cdot 10^{-10}$	4.35	0.23
	PU 1% C	38	15	$5.54 \cdot 10^{-10}$	4.99	0.2
	P(VDF-TrFE-CFE)) pur	232	38	$2.463 \cdot 10^{-9}$	0.26	1.3
	P(VDF-TrFE-CFE)) 1% C	240	65.9	$2.465 \cdot 10^{-9}$	0.27	1.32
10 Hz	PU pur	36	6.5	$3.578 \cdot 10^{-9}$	0.14	1.43
	PU 0.5% C	39	7.2	$3.579 \cdot 10^{-9}$	0.56	1.05
	PU 1% C	43	12	$3.582 \cdot 10^{-9}$	0.57	0.97
	P(VDF-TrFE-CFE)) pur	246	32.3	$2.031 \cdot 10^{-8}$	0.094	1.47
	P(VDF-TrFE-CFE)) 1% C	259	56	$2.033 \cdot 10^{-8}$	0.095	1.48

IV. Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons focalisé notre étude sur l'élaboration et la caractérisation des polymères électrostrictifs dans le but d'identifier leurs propriétés intrinsèques qui jouent

un rôle crucial sur les performances en améliorant la réponse en mode actionneur, et la densité de puissance récupérable en mode générateur. Dans ce cadre, plusieurs points ont été traités :

Afin d'avoir les outils nécessaires pour l'amélioration des performances en mode actionneur et pour la récupération d'énergie, une étude bibliographique basée sur la description des principaux paramètres diélectriques et mécaniques des polymères électro-actifs a été entreprise dans une première étape.

La deuxième partie est consacré à présenter

- les matrices choisis pour réaliser nos polymères électro-actifs à base de polyuréthane (PU) ou le terpolymère semi cristallin comprenant du fluorure de vinylidène (VDF), trifluoroéthylène (TrFE), et 1, 1 chlorofluoroethylene (CFE), (P(VDF-TrFE-CFE)).

-Les nano-charges utilisées pour augmenter les caractéristiques des nanocomposites développés au laboratoire (LGEF), à savoir des nanoparticules de noir de carbone (C).

-le processus de fabrication, parmi toutes les méthodes de dispersion explorées dans la littérature. Le choix d'une dispersion par voie solvant, à l'aide de DMF a été développée. Selon une étude effectuée au LGEF sur la dispersion à deux échelles différentes (microscopique et macroscopique), cette méthode montre une dispersion homogène des charges dans les différentes matrices de polymères étudiés.

La dernière partie a été consacrée à l'analyse des résultats expérimentaux réalisés lors de la caractérisation électrique puis mécanique des polymères. Pour cela, un banc de test pour chaque caractérisation avec les protocoles de mesures a été mis en place afin d'assurer une bonne connaissance du comportement électrique ainsi que mécanique des polymères. L'étude des propriétés électriques de nos polymères a révélé plusieurs phénomènes intéressantes, comme l'augmentation de la permittivité lors de l'ajout des nanoparticules dû au phénomène de polarisation interfaciale à basse fréquence et de polarisation d'orientation pour la bande de fréquence (10Hz à 10^5Hz). Concernant les propriétés mécaniques, nous avons proposé un modèle qui permet de comprendre le phénomène de la non-linéarité observée contrainte-déformation. Ce phénomène est traduit par l'existence des pertes mécaniques au sein des polymères et leur dépendance avec la fréquence mécanique ainsi que l'amplitude de déplacement imposé, afin d'optimiser cette énergie dissipée pour un meilleur fonctionnement de ces polymères en mode actionneur et générateur. L'ensemble de ces caractéristiques laisse pressentir une augmentation de l'activité électromécanique au sein de nos polymères. En effet comme cela a été décrit au paragraphe III.2.3.1 (Eq. II-40), il est primordial de réaliser des

composites dotés d'une très grande permittivité diélectrique et d'un module de Young faible afin d'accroître le coefficient d'électrostriction.

Références

- [Arr1993] E. M. Arruda and M. C. Boyce, *J. Mech. Phys. Solids* 41, 389 (1993).
- [Att2004] M. M. Attard and G. W. Hunt, *Int. J. Solids Struct.* 41, 5327 (2004).
- [Aus1997] P. E. Austrell, *Modeling of Elasticity & Damping for Filled Elastomers*, PhD thesis, Lund University, 1997.
- [Bad2004] S. Badaire, P. Poulin, M. Maugey, C. Zakri, *In Situ Measurements of Nanotube Dimensions in Suspensions by Depolarized Dynamic Light Scattering* *Langmuir*, 2004; 20: 1036710370.
- [Bar2001] Y. Bar-Cohen, in *Proceedings of the 42nd A.I.A.A Structures, Structural Dynamics and Material Conference (SDM)*, (2001), 350, 1.
- [Bau2004] F. Bauer, E. Fousson, Q.M. Zhang, L.M. Lee, *Ferroelectric copolymers and terpolymers for electrostrictors: synthesis and properties*, *IEEE Trans. on Dielec. and Elec. Insul.*, Vol.20, 2004: 293297.
- [Ber1998] J. S. Bergström and M. C. Boyce, *J. Mech. Phys. Solids* 46, 931 (1998).
- [Bha1999] V. Bharti, Z. Y. Cheng, S. Gross, T. B. Xu, and Q. M. Zhang, *High electrostrictive strain under high mechanical stress in electronirradiated poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene) copolymer*, *Appl. Phys. Lett.* 75, 2653 (1999).
- [Bra2002] D. Bratosin and T. Sireteanu, *Proc. Rom. Acad., Ser. A* 3 (2002).
- [Bry2005] M. B. Bryning, D. E. Milkie, M. F. Islam, J. M. Kikkawa, A.G. Yodh. *Thermal conductivity and interfacial resistance in single-wall carbon nanotube epoxy composites*. *Applied Physics Letters* 2005; 87: 161909.
- [Che1983] C. H. Y. Chen, R. M. Briber, E. L. Thomas, M. Xu, and M. J. MacKnight, *Structure and morphology of segmented polyurethanes: 2. Influence of reactant incompatibility*, *Polymer*, vol. 24, p. 1333-1340, 1983.
- [Chu2006] B. Chu, X. Zhou, K. Ren, B. Neese, M. Lin, Q. Wang, F. Bauer, Q.M. Zhang, *A Dielectric Polymer with High Electric Energy Density and Fast Discharge Speed*, *Science*, Vol.313, 2006: 334-336.
- [Cro1995] L. E. Cross, *J. Appl. Phys.* 34, 2525 (1995).
- [Dan2003] Z.M. Dang, L.Z. Fan, Y. Shen, C.W. Nan, *Dielectric behavior of novel three-phase MWNTs/BaTiO₃/PVDF composites*, *Mater. Sci. & Eng. B*, vol. 103(2), p. 140-144, 2003.
- [Dro2003] A. D. Drozdov and A. Dorfmann, *Arch. Appl. Mech.* 72, 651 (2003).
- [Eli2008] A. El Idrissi, O. Krim, and S. Ousslimane, *Effect of sequence concentrations on segmented polyurethanes properties*, *Pigment & Resin Technology*, vol. 37(2), p. 73-79, 2008.
- [Eur1999] S. Eury, R. Yimnirun, V. Sundar, P.J. Moses, S.-J. Jang, R.E. Newnham, *Converse electrostriction in polymers and composites*, *Materials chemistry and physics*. vol. 61, n 1, pp. 18-23, 1999.
- [Fis1999] H.R. Fischer, L.H. Gielgens and T.P.M. Koster, *Nanocomposites from polymers and layered minerals*, *Acta Polym.* 50, 122-126 (1999).
- [Fla2000] L. Flandin, G. Bidan, Y. Brechet, J.-Y. Cavaillé, *New nanocomposite materials made of an insulating matrix and conducting fillers: processing and properties*, *Polym Compos*, vol. 21(2), p. 165-174, 2000.
- [Fou1999] S.H. Foulger, *Electrical properties of composite in the vicinity of the percolation threshold*, *J. Appl. Polym. Sci.*, 72, 1573, 1999.
- [Frö1958] H. Fröhlich, *Theory of dielectrics; dielectric constant and dielectric loss*, second edition, Oxford Science Publications, 1958.
- [Gui2006] B. Guiffard, L. Seveyrat, G. Sebald, and D. Guyomar, *Enhanced electric field-induced strain in non-percolative carbon nanopowder/polyurethane composites*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 39, 3053 (2006).
- [Gui2002] F. M. Guillot and E. Balizer, *Electrostrictive effect in polyurethanes*. *Journal of Applied Polymer Science*, Volume 89 issue 2, pp 399-404, 2002
- [Gui2003] F. M. Guillot and E. Balizer, *J. Appl. Polym. Sci.* 89, 399 (2003).
- [Her1982] J. M. Herbert, *Ferroelectr. Transducers Sens.* 3, 437 (1982).

- [Iru1999] L. Irusta and M. J. Fernandez-Berridi, Photooxidative behaviour of segmented aliphatic polyurethanes, *Polym. Deg. & Stab.*, vol. 63, p. 113-119, 1999.
- [Kor2006] L. T. J. Korley, B. D. Pate, E. L. Thomas and P. T. Hammond, Effect of the degree of soft and hard segment ordering on the morphology and mechanical behavior of semi crystalline segmented polyurethanes, *Polymer*, vol. 47, p. 3073-3082, 2006.
- [Lai2006] P. R. Laity, J. E. Taylor, S. S. Wong, P. Khunkamchoo, K. Norris, M. Cable, G. T. Andrews, A. F. Johnson, and R. E. Cameron, Morphological Changes in Thermoplastic Polyurethanes during Heating, *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 100, p. 779-790, 2006.
- [Li1996] F. Li, J. Hou, W. Zhu, X. Zhang, M. Xu, X. Luo, D. Ma, and B. K. Kim, Crystallinity and Morphology of Segmented Polyurethanes with Different Soft-Segment Length, *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 62, p. 631-638, 1996.
- [Lu1996] K. L. Lu, R. Lago, Y. K. Chen, MLH Green, PJF Harris, SC Tsang, Mechanical damage of carbon nanotubes by ultrasound, *Carbon* 1996; 34: 814-816.
- [Mil1985] J. A. Miller, S.B. Lin, K.K.S. Hwang, K.S. Wu, P.E. Gibson and S.L. Cooper, Properties of polyether-polyurethane block copolymers: effects of hard segment length distribution, *Macromolecules*, vol. 18, p. 32-44, 1985.
- [Nal1995] Hari Singh Nalwa, *Ferroelectric polymers chemistry, physics and Applications*, (Marcel Dekker, Inc. 1995).
- [Pai1975] C. S. Paik Sung and N. S. Schneider, Infrared studies of hydrogen bonding in toluene diisocyanate based polyurethanes, *ACS Polym. Prep.*, vol. 15(1), 625, 1974; also *Macromolecules*, vol. 8(1), 68, 1975.
- [Par2008] C. Park, J. H. Kang, J. S. Harrison, R. C. Costen, and S. E. Lowther, Actuating Single Wall Carbon Nanotube_Polymer Composites: Intrinsic Unimorphs, *Adv. Mater.* 20, 2074 (2008).
- [Pet1991] Z. S. Petrovic and J. Ferguson, Polyurethane elastomers, *Prog. Polym. Sci.*, vol. 16, p. 695-836, 1991.
- [Pha2004] H T. Pham, O. Lesaint and P. Gonon, Anisotropy of the dielectric properties of laminated epoxy insulation subjected to water absorption, 2004 Annual Report on Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP), October 17-20, 2004, Colorado, USA.
- [Pri2009] C. Prisacariu, E. Scortanu, and V. A. Prisacariu, Optimising Performance of Polyurethane Elastomer Products Via Control of Chemical Structure, *Proceeding of the World Congress on Engineering 2009*, vol. 2, 2009.
- [Su1998] J. Su, Q. M. Zhang, P. Wang, A. G. Macdiarmid, and K. J. Wynne, Preparation and Characterization of electrostrictive Polyurethane Films with conductive Polymer Electrodes, *Polym. Adv. Technol.* 9, 317 (1998).
- [Sun1996] V. Sundar and R. E. Newnham, *Mater. Res. Bull.* 31, 545 (1996).
- [Wu2000] J. D. Wu and M. L. Kenneth, *Mech. Time-Depend. Mater.* 4, 293 (2000).
- [Yim1999] R. Yimmirun, S. Eury, V. Sundar, P. J. Moses, and R. E. Newnham, in *IEEE Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (1999)*, 1, 338.
- [Zha1998] Q.M. Zhang, V. Bharti, X. Zhao. «Giant electrostriction and relaxor ferroelectric behavior in electronirradiated Poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylen) copolymer.» *Science*, Vol.280, 1998: 2101-2104.
- [Zhm2002] Q. M. Zhang, L. Hengfeng, P. Martin, An all-organic composite actuator material with a high dielectric constant. *Nature*, 419, 284-287, 2002.
- [Zoi2001] H. Zois, L. Apekis, M. Omastova, Electrical Properties of Carbon Black-filled Polymer Composites, *Macromol. Symp.*, vol. 170, p. 249-256, 2001.

Chapitre III

Etude des Propriétés Electromécaniques des Polymères Electrostrictifs et Composites

Au cours ce chapitre, une caractérisation électromécanique des polymères électrostrictifs sera réalisée. Elle consistera à déterminer la dépendance de leur déformation avec l'amplitude du champ électrique, de la fréquence, de l'épaisseur, et de la précontrainte mécanique appliquée. Pour l'amélioration de l'activité électromécanique de nos polymères, nous étudierons l'effet des nano particules sur leurs performances électromécaniques. Une modélisation à l'aide de fonction tangente hyperbolique sera réalisée permettant ainsi de définir les lois de comportement. Une méthode innovante pour contrôler la raideur des polymères électrostrictifs sera présentée, puis une étude de l'influence de la force de pré-étirage, de la composante statique et dynamique de champ électrique appliqué sur le changement de la raideur sera réalisée. Un modèle de contrôle adaptif de la raideur sera détaillé. Cette modélisation analytique sera complétée et validée par une série de résultats expérimentaux.

I. Description des propriétés électromécanique des EAPs

Créer des muscles artificiels est une ambition qui n'est pas nouvelle. Depuis plus de vingt ans, les céramiques piézo-électriques et les alliages métalliques à mémoire de forme ont déjà stimulé cette recherche. Mais ceux-ci souffrent d'un grand nombre d'inconvénients comme des faibles amplitudes de déformation pour les céramiques, et un temps de réponse très long pour les alliages à mémoire de forme. Le développement de nouveaux matériaux avec la possibilité de larges déformations dans plusieurs applications, tirent avantage des matériaux électrostrictifs comme actionneur ou comme transducteur accordable. [Cro1995] [Sun 1996] Les polymères électro-actifs pourraient apporter une solution au problème grâce à leurs propriétés électromécaniques. Pour cette raison, une caractérisation de ces propriétés sera effectuée dans le prochain paragraphe.

I.1 Les mécanismes d'actionnement électromécaniques des EAPs

Le mécanisme d'actionnement électromécanique est le processus physique par lequel un système mécanique est actionné par l'électricité. Deux mécanismes, l'électrostriction et effet de la contrainte de Maxwell sont considérés comme ceux qui contribuent le plus à la grande déformation induite par le champ électrique manifestée par les EAPs électroniques. Les contraintes et déformations résultantes concernant les deux mécanismes présentent une dépendance quadratique sur un faible champ électrique appliqué.

Su et al indiquent que la déformation élevée en élastomère diélectrique a été obtenue par des charges d'espace. Les charges d'espace sont généralement distribuées de façon hétérogène dans l'échantillon et entraînent une distribution de champ non uniforme [Su1997] [Wat2003] [Gui2006]. La réponse en déformation d'un élastomère peut être apportée soit par l'élastomère diélectrique ou par l'élastomère greffé.

Les élastomères électrostrictifs greffés sont des polymères constitués de deux composantes, un squelette macromolécule flexible et un polymère greffé, et peuvent être produits sous une forme cristalline. Ces polymères présentent une grande déformation induite par champ électrique (~ 5%) avec une force relativement importante et une vitesse de la réponse dans la zone de millisecondes grâce à l'électrostriction [Cro2004].

Kim et al ont présenté un papier électrostrictif qui se comporte comme un actionneur. Le papier électrostrictif est composé d'un grand nombre de particules discrètes, qui sont

essentiellement de nature fibreuse formant une structure en réseau [Kim2000]. Par exemple, le papier d'argent laminé, de sorte que deux pièces de papier d'argent laminé avec des électrodes d'argent sont placées sur les surfaces extérieures, montre un mouvement de flexion lors de l'application d'une tension électrique aux électrodes et sa performance dépend de la stimulation par le champ électrique, du type d'adhésif et du papier d'accueil. Ces matériaux trouvent des applications dans les haut-parleurs flexibles et dans les dispositifs intelligents de contrôle de forme. Ils sont aussi utilisés comme matériaux pour l'isolation sonore.

I.1.1 Phénomène d'Electrostriction

I.1.1.1 Principe de fonctionnement

Le fonctionnement des polymères électrostrictifs est similaire à celui d'un DEA (actionneurs élastomère diélectrique), dont le polymère est pris en sandwich entre deux électrodes (Fig. III.1). Par ailleurs, la contrainte et la réponse correspondante à la déformation induite de ces polymères est généralement proportionnelle au carré de champ électrique appliqué, comme le montre la Fig. III.2.

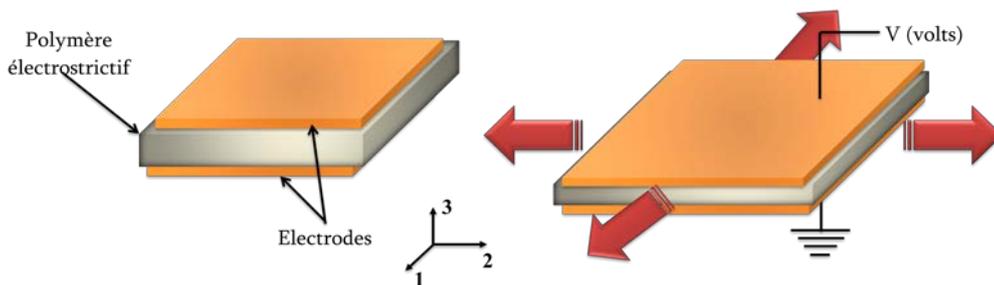


Figure III.1 : Représentation schématique du fonctionnement d'un polymère électrostrictif

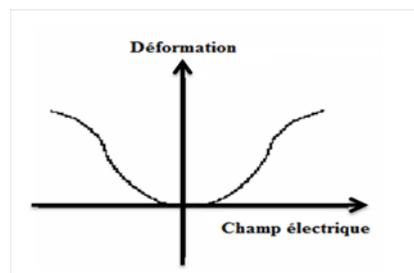


Figure III.2: Déformation en fonction du champ électrique pour un matériau électrostrictif

I.1.1.2 Description phénoménologique

L'électrostriction est une contribution électromécanique qui se manifeste dans tous les matériaux diélectriques et correspond notamment à une déformation induite par un champ

électrique. Les matériaux électrostrictifs ont été largement utilisés dans les actionneurs, les capteurs et les dispositifs électromécaniques [Her1982] [Sun199]. Le comportement des matériaux est le plus souvent caractérisé en termes de relations constitutives qui détaillent l'interaction couplée des propriétés électriques et élastiques du matériau. Comme pour la piézoélectricité, les équations intrinsèques s'obtiennent par dérivation d'un potentiel énergétique préalablement choisi. Pour cela la théorie proposée par Devonshire sera utilisée pour réaliser la description phénoménologique. A partir de ce formalisme thermodynamique, la fonction élastique de Gibbs G pour l'énergie libre du matériau a pu être exprimée comme [Uch2000] [New1997]:

$$G = \frac{1}{2}\beta_{mn}P_mP_n - \frac{1}{2}s_{ijkl}\tau_{ij}\tau_{kl} - Q_{ijmn}\tau_{ij}P_mP_n + \dots \quad \text{III-1}$$

ou τ_{ij} et P_m sont la contrainte et la polarisation, respectivement, et s_{ijkl} et Q_{ijmn} sont appelés la souplesse élastique et le coefficient électrostrictif, respectivement. Les indices $i, j, m = 1, 2, 3$ se réfèrent aux axes orthogonaux. A partir de cette équation, on peut représenter la déformation S_{ij} et le champ électrique E_m par l'équation III-2 et III-3 :

$$S_{ij} = -\left(\frac{\partial G}{\partial \tau_{ij}}\right) = s_{ijkl}\tau_{ij} + Q_{mnij}P_m^2 \quad \text{III-2}$$

et

$$E_m = -\left(\frac{\partial G}{\partial P_m}\right) = \beta_{mn}P_m - 2Q_{ijmn}P_m\tau_{ij} \quad \text{III-3}$$

Des propriétés liées aux dérivées des variables telles que S_{ij} et E_m aux variables d'état fixes comme τ_{ij} et P_m sont obtenus en effectuant la dérivée seconde de cette fonction d'énergie libre. Par exemple, les termes du premier ordre pour l'inverse de la susceptibilité diélectrique β_{mn} et de la souplesse élastique s_{ijkl} peuvent être exprimés comme suit:

$$\beta_{mn} = \left(\frac{dE_m}{dP_n}\right)_{\tau, T} = \left(\frac{d^2G}{dP_m dP_n}\right)_{\tau, T} \quad \text{III-4}$$

et

$$s_{ijkl} = \left(\frac{dS_{ij}}{d\tau_{kl}}\right)_{P, T} = \left(\frac{d^2G}{d\tau_{kl} d\tau_{kl}}\right)_{P, T} \quad \text{III-5}$$

Les propriétés du couplage croisé peuvent être dérivées en changeant la variable de différentiation pour la dérivée seconde. Les propriétés qui introduisent des contraintes dans un matériau sont obtenues en différenciant la fonction élastique de Gibbs par rapport au

contrainte. Les propriétés qui introduisent des déformations dans un matériau sont obtenues en différenciant la fonction élastique de Gibbs par rapport à la contrainte. Les propriétés tensorielles associées à ces effets sont des constantes élastiques, la dilatation thermique linéaire et non linéaire, des constantes piézoélectriques linéaires (d_{ijm} et g_{ijm}) et des constantes d'électrostriction quadratiques (M_{ijmn} et Q_{ijmn}). Ces interactions électromécaniques peuvent être exprimées en séries de puissances de deuxième ordre (τ et P fixes) comme :

$$S_{ij} = g_{ijm}P_m + Q_{ijmn}P_mP_n + \dots \quad \text{III-6}$$

et

$$S_{ij} = d_{ijm}E_m + M_{ijmn}E_mE_n + \dots \quad \text{III-7}$$

Considérant le couplage entre les propriétés diélectriques et élastiques des solides, l'électrostriction est une propriété du tenseur de rang 4 reliant la déformation mécanique S , au champ électrique E , ou à la polarisation P . Elle est exprimée par les relations suivantes [Yim1999]:

$$S_{ij} = s_{ijkl}^E \tau_{kl} + M_{ijmn}E_mE_n \quad \text{III-8}$$

$$\tau_{ij} = c_{ijkl}^E S_{kl} + m_{ijmn}E_mE_n \quad \text{III-9}$$

ou s_{ijkl}^E et c_{ijkl}^E est la souplesse élastique et le tenseur de rigidité sous des conditions aux limites appropriées à champ électrique constante, et M_{ijmn} et m_{ijmn} sont les coefficients d'électrostriction. Si la polarisation est utilisée comme une variable électrique indépendante, les équations deviennent

$$S_{ij} = s_{ijkl}^P \tau_{kl} + Q_{ijmn}P_mP_n \quad \text{III-10}$$

$$\tau_{ij} = c_{ijkl}^P S_{kl} + q_{ijmn}P_mP_n \quad \text{III-11}$$

A partir des équations constitutives énumérées ci-dessus, on voit qu'il y a quatre coefficients électrostrictifs; M , m , Q et q . Ils ne sont pas tous indépendants, ce qui donne $M = -sm$, ou $m = -cM$ en combinant les équations (III.8) et (III.9). De même, à partir des équations (III.10) et (III.11), $Q = -sq$, ou $q = -cQ$.

Dans le cas d'une contrainte nulle, l'électrostriction peut être ainsi définie comme le couplage quadratique entre la déformation et le champ électrique, ou entre la déformation et la polarisation. Donc la déformation électromécanique s'écrit pour les deux cas comme :

$$S_{ij} = M_{ijmn} E_m E_n \quad \text{III-12}$$

et

$$S_{ij} = Q_{ijmn} P_m P_n \quad \text{III-13}$$

Ici M_{ijmn} sont des éléments du champ électrique du quatrième rang liés au tenseur d'électrostriction et Q_{ijmn} sont des éléments de la polarisation du quatrième rang liés au tenseur d'électrostriction. Les coefficients M et Q sont équivalentes et forment la base dans la plupart des travaux qu'on trouve dans la littérature. La relation champ polarisation est utilisée pour altérer entre les deux coefficients [Yim1999].

$$P_n = \chi_{nm} E_m \quad \text{III-14}$$

où χ_{nm} est le tenseur de susceptibilité diélectrique. Puisque la permittivité diélectrique est généralement utilisée comme variable au lieu de la susceptibilité diélectrique, χ_{nm} est exprimée par :

$$\chi_{nm} = \varepsilon_{nm} - \varepsilon_0 = [(\varepsilon_r)_{nm} - 1] \varepsilon_0 \quad \text{III-15}$$

et par remplacement dans les équations constitutives, la relation entre les coefficients M et Q devient comme :

$$M_{mnij} = \chi_{im} \chi_{jn} Q_{mnij} = \varepsilon_0^2 [(\varepsilon_r)_{im} - 1] [(\varepsilon_r)_{jn} - 1] Q_{mnij} \quad \text{III-16}$$

Les valeurs de Q pour les élastomères souples vont jusqu'à $10^6 \text{ m}^4/\text{C}^2$ alors qu'elles sont seulement de $10^{-2} \text{ m}^4/\text{C}^2$ pour les relaxeurs ferroélectriques. Une relation empirique entre le coefficient électrostrictif Q , la constante diélectrique, et la résistance mécanique a été établie par Eury et al. [Eur1999] pour différents matériaux diélectriques : verres, céramiques, monocristaux, et polymères. Ils ont trouvé une relation linéaire entre le coefficient électrostrictif Q et l'inverse du produit de la constante diélectrique ε par le module d'Young Y :

$$Q \propto \frac{1}{\varepsilon_0 \varepsilon_r Y} \quad \text{III-17}$$

La déformation S_{ij} est reliée à la polarisation carrée $P_m P_n$ (équation III.13) et au coefficient de déformation électromécanique M_{ijmn} :

$$Q_{ijmn} = ((\varepsilon_r)_{mn} - \varepsilon_0)^{-2} M_{ijmn} \quad \text{III-18}$$

Il en découle la relation suivante, expérimentalement trouvée par Guillot et Balizer [Gui2003] dans le cas de plusieurs PUs commerciaux :

$$M_{33} = \varepsilon_0^2 (\varepsilon_r - 1)^2 Q_{33} \quad \text{III-19}$$

Cette expression est bien en accord avec les observations expérimentales d'Eury et al. Le coefficient de déformation électromécanique est bien proportionnel à la constante diélectrique et au module de Young :

$$M_{33} \propto \frac{\varepsilon_0 (\varepsilon_r - 1)^2}{Y_3 \varepsilon_r} \quad \text{III-20}$$

où Y_3 est le module d'Young selon la direction 3 (ou z) du matériau.

I.1.2 Effet de la contrainte de Maxwell

Si la réponse est dominée par la réorientation induite par le champ électrique d'une structure cristalline ou semi-cristalline à l'intérieur du polymère, ce phénomène est dit électrostrictifs, tandis que si la réponse est dominée par l'interaction des charges électrostatiques sur les électrodes, il est appelé 'contrainte de Maxwell. Il s'agit des forces de Coulomb à l'origine de l'attraction des électrodes qui encapsulent l'élastomère. Ces forces sont extrinsèques au matériau et s'additionnent éventuellement aux autres effets décrits ci-dessus. La force entre les deux électrodes est donnée par l'équation III.21:

$$F_M = - \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r E^2 (1+2\vartheta) A}{2} \quad \text{III-21}$$

où ϑ est le coefficient du Poisson, et A la surface du matériau. La contrainte de Maxwell (τ_M) sur une surface ou la pression d'actionnement est :

$$\tau_M = - \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r E^2 (1+2\vartheta)}{2} \quad \text{III-22}$$

La déformation S_M , résultant de la contrainte de Maxwell, est donnée par l'équation (III-23). [Kra 1999]. Si tous les champs et les déformations sont dans la même direction, il est possible de simplifier l'expression en supprimant la notation tensorielle.

$$S_M = - \frac{1}{2Y} \varepsilon_0 \varepsilon_r E^2 (1 + 2\vartheta) \quad \text{III-23}$$

On fait l'hypothèse que le matériau est incompressible. La déformation S_M devienne sous la forme suivante [Pel1998] :

$$S_M = - \frac{1}{Y} \varepsilon_0 \varepsilon_r E^2 \quad \text{III-24}$$

Cette hypothèse est valable pour les liquides et pour les élastomères très souples de module d'Young inférieur à 1 MPa en général avec un coefficient de Poisson très proche de 0,5 [Pel2000] [Kor2008].

I.2 La symétrie cristalline et le coefficient électrostrictif

Même si les coefficients électrostrictifs sont des tenseurs de quatrième rang, leur symétrie signifie qu'ils peuvent être décrits en utilisant la notation matricielle réduite. Il ya trois groupes de symétrie: les monocristaux cubiques au point du groupe $m\bar{3}m$, de monocristaux d'alumine au point du groupe $\bar{3}m$, et des matériaux isotropes, en céramiques, verres et polymères. Les formes matricielles des tenseurs d'électrostriction $M_{mni j}$ de ces trois groupes sont représentées ici. Le premier et les deux derniers indices sont combinés en un seul, selon la convention décrite par les règles. [Nye 1985] Les notations complètes sont raccourcies en utilisant les formes abrégées : 11 \rightarrow 1, 22 \rightarrow 2, 33 \rightarrow 3, 23 et 32 \rightarrow 4, 13 et 31 \rightarrow 5, 12 et 21 \rightarrow 6. L'élément de matrice $M_{mni j}$ est obtenue à partir de la composante tensorielle de $M_{mni j}$. Pour le tenseur d'électrostriction,

$$M_{mn} = M_{mni j}, \text{ lorsque } n \text{ et } m=1, 2, 3$$

$$M_{mn} = 2M_{mni j}, \text{ lorsque } n \text{ ou } m=4, 5, 6$$

$$M_{mn} = 4M_{mni j}, \text{ lorsque } n \text{ et } m=4, 5, 6$$

Par ces conventions, les matrices d'électrostriction complètes pour les trois groupes de ces matériaux sont écrites comme suit:

- Monocristaux cubiques au point du groupe $m\bar{3}m$

$$\begin{array}{cccccc} M_{11} & M_{13} & M_{13} & 0 & 0 & 0 \\ M_{13} & M_{11} & M_{13} & 0 & 0 & 0 \\ M_{13} & M_{13} & M_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & M_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & M_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & M_{44} \end{array}$$

- Monocristaux Trigonaux au point du groupe $\bar{3}m$

$$\begin{array}{cccccc} M_{11} & M_{12} & M_{13} & M_{14} & 0 & 0 \\ M_{12} & M_{11} & M_{13} & -M_{14} & 0 & 0 \\ M_{13} & M_{13} & M_{33} & 0 & 0 & 0 \\ M_{14} & -M_{14} & 0 & M_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & M_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & M_{14} & 2(M_{11} - M_{12}) \end{array}$$

- Matériaux isotropes et des groupes de Curie $\alpha\alpha m$ et $\alpha\alpha$

M_{33}	M_{13}	M_{13}	0	0	0
M_{13}	M_{33}	M_{13}	0	0	0
M_{13}	M_{13}	M_{33}	0	0	0
0	0	0	$2(M_{33}- M_{12})$	0	0
0	0	0	0	$2(M_{33}- M_{12})$	0
0	0	0	0	0	$2(M_{33}- M_{12})$

Ainsi, trois coefficients électrostrictifs indépendants (M_{11} , M_{13} et M_{44}) sont nécessaires pour décrire les effets dans les monocristaux cubiques au point du groupe $m\bar{3}m$, alors qu'il ya cinq coefficients indépendants (M_{11} , M_{12} , M_{13} , M_{14} et M_{44}) pour la description des coefficients électrostrictifs des cristaux trigonaux au point du groupe $\bar{3}m$. D'autre part, seulement deux (M_{33} et M_{13}) sont nécessaires pour les matériaux isotropes

II. Caractérisation électromécanique des polymères électrostrictifs

Les polymères étudiés par la suite sont de type électrostrictif. Ce paragraphe sera consacré dans un premier temps à la description du protocole de mesure, et à l'interprétation des résultats obtenus lors de ces essais. L'étude du comportement électromécanique de ces polymères sera effectuée, afin de déterminer la dépendance de leur déformation avec l'amplitude du champ électrique, de la fréquence, et de la précontrainte mécanique appliquée.

II.1 Le principe expérimental

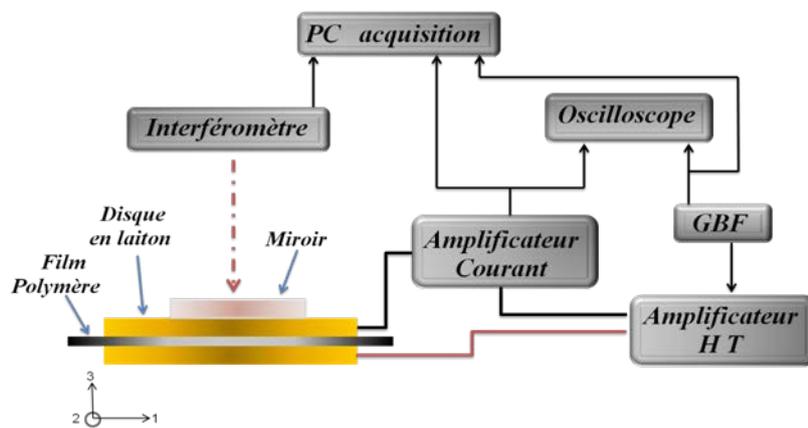
L'objectif est de mesurer les déplacements jusqu'à des fréquences de l'ordre de la centaine d'hertz. Aussi, plusieurs alternatives (accéléromètre laser, capteur à jauges, vibromètre à fibres optiques,...) permettent de suivre les mouvements d'une surface. Dans notre cas, nous sommes orientés vers l'interférométrie laser pouvant capter des déplacements de 10nm.

L'interféromètre laser Agilent 5519A est utilisé pour mesurer la déformation longitudinale sous champ électrique des films minces à basse fréquence et à température ambiante. Le laser utilisé a une longueur d'onde de $633nm$ avec une résolution de mesure précise de $\pm 5 nm$. Le montage expérimental est illustré dans la figure III.3. Le film de polymère (disque de $25mm$ de diamètre) est placé horizontalement entre deux disques de laiton jouant le rôle d'électrode, afin d'éviter de mesurer des mouvements de flexion du film.

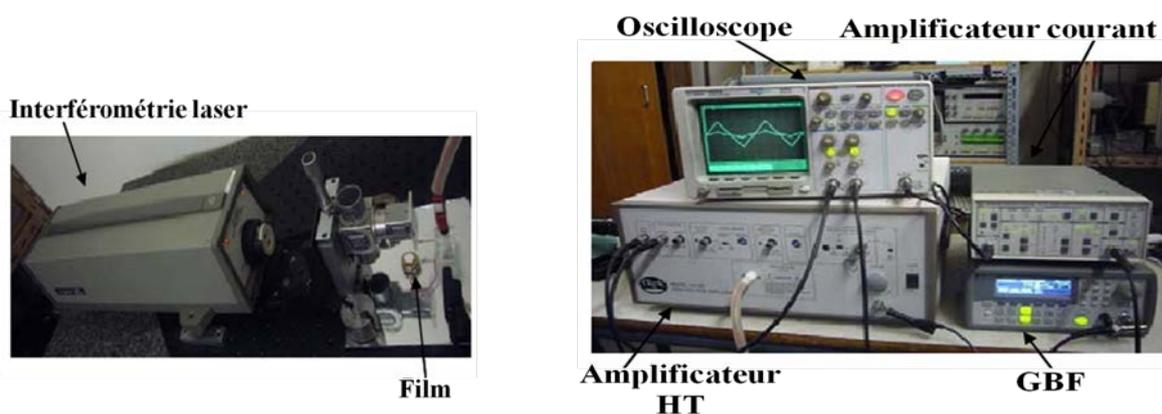
Les premières expériences effectuées au LGEF ont utilisé des films recouverts d'électrodes d'or [Gui2006]. Il s'est avéré que le déplacement mesuré était inférieur au déplacement attendu ; il a été montré en réduisant progressivement la taille de l'électrode que l'or bridait

l'échantillon et donc bloquait sa déformation. La mesure s'effectue maintenant en plaçant l'échantillon directement entre des électrodes en laiton. Le champ électrique AC est appliqué au polymère sous forme d'un signal triangulaire pendant 2 cycles à l'aide d'un amplificateur haute tension (Trek 10/10B) commandé par un générateur de fonction (Agilent 33250A). Le courant fourni au polymère pour fonctionner est mesuré à l'aide d'un amplificateur de courant (Keithley 428) pour pouvoir remonter à la polarisation. Il est contrôlé avec un courant maximum de 10 mA. Si le courant est supérieur à 10 mA, la tension est coupée.

Il faut signaler que le montage à vide (électrode supérieur + miroir) pèse 5g, ce qui signifie qu'au minimum une charge d'environ 0.05N est appliquée sur l'échantillon (soit une contrainte appliquée minimale d'environ 169 Pa). La déformation est obtenue à partir de la mesure du déplacement divisé par l'épaisseur initiale.



(a)



(b)

Figure III.3: Dispositif expérimental pour la mesure de la déformation sous champ électrique :

- (a) Schéma de l'installation expérimentale
- (b) Image de l'installation expérimentale

II.2 Résultats expérimentaux et discussions

II.2.1 Effet de la fréquence sur la déformation électromécanique

Le dispositif expérimental décrit au paragraphe précédent, nous permet de mesurer la polarisation ainsi que la déformation due à l'application du champ électrique, en fonction de l'amplitude du champ électrique dynamique variant de 0 à $20 \text{ V}/\mu\text{m}$ pour différentes fréquences. Dans le chapitre précédent une étude en quasi-statique de la caractérisation électrique et mécanique a été réalisée. Pour compléter l'évaluation des nos polymère, une étude électromécanique est nécessaire afin de juger de leur application potentielle ainsi que des phénomènes physiques à l'origine de leur déformation. Pour cela une étude de la dépendance de la déformation avec la fréquence est entreprise dans ce paragraphe. La figure III.4 illustre l'évolution de la déformation en fonction du champ électrique et pour des fréquences différentes (0,1 à 10 Hz) de film de PU 1%C. Les mêmes mesures ont été réalisées pour un échantillon de P(VDF-TrFE) 1%C avec différentes fréquences, les résultats sont représentés dans la figure III.5.

Les résultats montrent une forte dépendance de la déformation avec la fréquence pour les deux types de polymères étudiés. La déformation électromécanique diminue en augmentant la fréquence, cette diminution est due à la polarisation interfaciale ou Maxwell qui joue un rôle prépondérant à basses fréquences avec les charges d'espaces. Cette dépendance laisse sous-entendre un phénomène de frottement sec, entre le film de polymère et les électrodes en laiton. Des études ont été effectuées au laboratoire LGEF sur l'effet du frottement sec laissant donc supposer que les frottements entre les disques en laiton et le polymère peuvent être négligés.

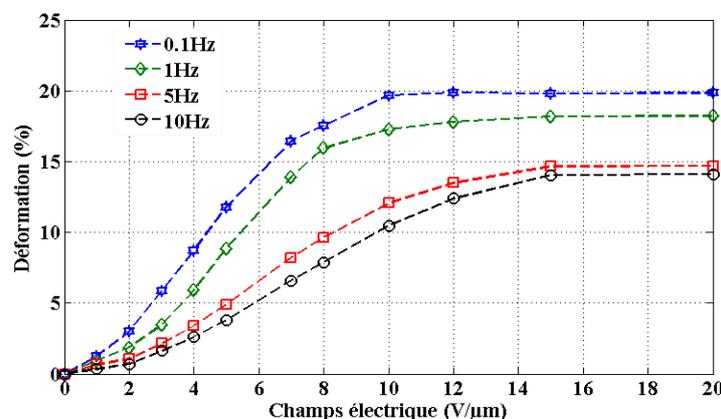


Figure III.4: Déformation en fonction du champ électrique pour différente fréquences pour un échantillon de PU 1%C d'une épaisseur de $57 \mu\text{m}$

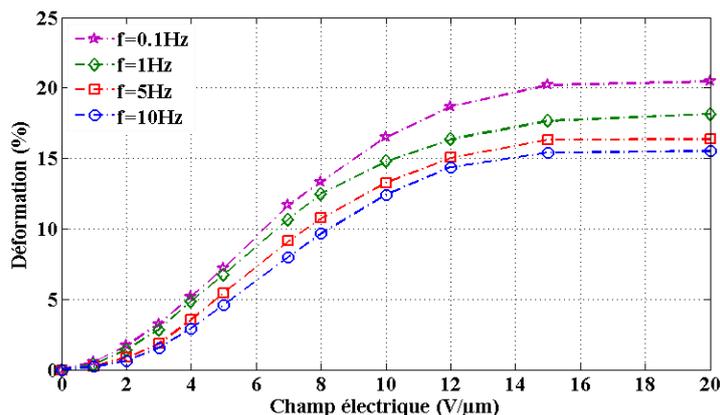


Figure III.5: Déformation en fonction du champ électrique pour différentes fréquences pour un échantillon de P(VDF-TrFE-CFE) 1%C d'une épaisseur de 46 μm

II.2.2 Effet de l'épaisseur sur la déformation électromécanique

Dans cette partie, nous étudions l'effet de l'épaisseur sur l'activité électromécanique du PU 1%C et du P(VDF-TrFE-CFE) 1%C pour une fréquence de 1Hz. Les figures III.6 et III.7 illustrent l'évolution de la déformation électromécanique en fonction du champ et pour différentes épaisseurs de films à base de PU et P(VDF-TrFE-CFE), respectivement.

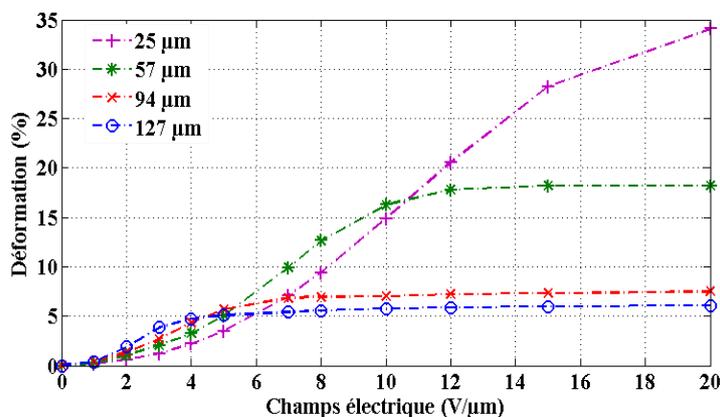


Figure III.6: Déformation en fonction du champ électrique pour un échantillon de PU 1%C à 1Hz et pour différentes épaisseurs

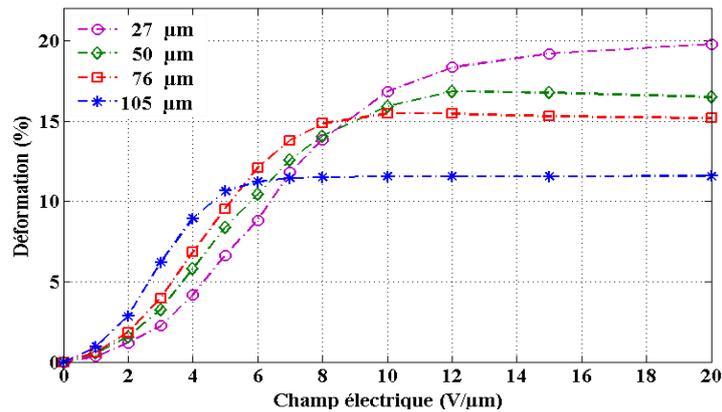


Figure III.7: Déformation en fonction du champ électrique pour un échantillon de P(VDF-TrFE-CFE) 1%C à 1Hz et pour différentes épaisseurs

Selon les résultats obtenus, on peut distinguer deux régions. La première concernant les faibles amplitudes de champ électrique (inférieur de $5 V/\mu m$), et dans laquelle une dépendance quadratique entre la déformation et le champ électrique est observée. Par contre dans la deuxième (supérieur de $5 V/\mu m$), les échantillons montrent une saturation de leur déformation électromécanique. On peut expliquer ce phénomène par le caractère hyperélastique des polymères ou par la non-linéarité entre la polarisation et le champ électrique.

Ces résultats permettent de visualiser une autre caractéristique très importante, la forte dépendance qui existe entre la déformation, l'épaisseur du film étudié et le champ électrique. La figure III.8 montre clairement cette dépendance avec différentes amplitudes du champ électrique. L'évolution de la déformation électromécanique avec l'épaisseur s'explique par la structure des polymères et la distribution non-uniforme du champ électrique.

D'après cette figure, pour des valeurs élevées du champ électrique (10 et $15 V/\mu m$), les films minces ont tendance à mieux se déformer et cette déformation diminue progressivement en augmentant l'épaisseur du film. Cela provient de l'homogénéité de la structure du polymère

Par contre, ce phénomène est inversement produit pour des valeurs faibles du champ électrique ($4 V/\mu m$), c.-à-d. la déformation électromécanique croît avec l'augmentation de l'épaisseur. Cela peut être expliqué par la structure des polymères (segments durs et doux).

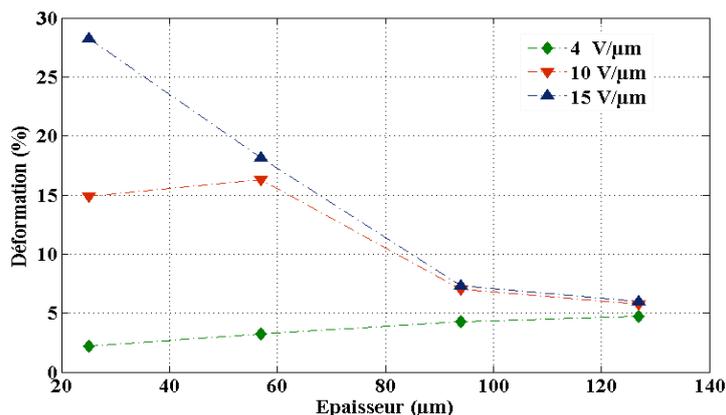


Figure III.8: Variation de la déformation avec l'épaisseur pour un échantillon de PU 1%C à 1Hz et pour différentes amplitudes du champ électrique

II.2.3 Effet des nanoparticules sur la déformation électromécanique

La figure III.9 présente la déformation électromécanique en fonction du champ électrique pour différent pourcentage de nanoparticules de noir de carbone d'un film de PU avec une fréquence de 1 Hz. Les mêmes mesures ont été réalisées pour la matrice de P(VDF-TrFE-CFE) avec une fréquence de 100 mHz, les résultats sont illustrés dans la figure III.10.

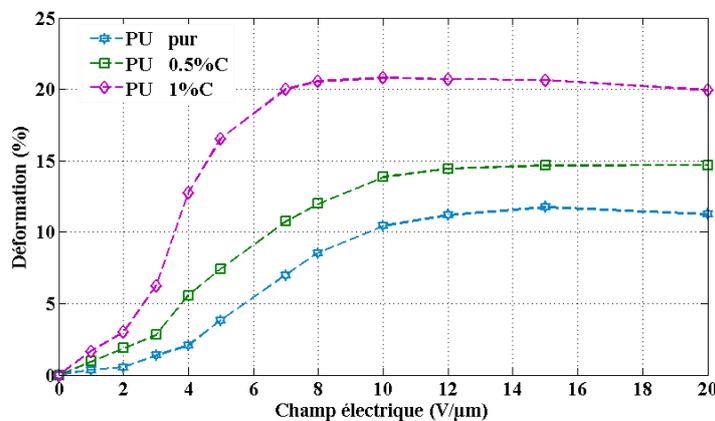


Figure III.9: Déformation en fonction du champ électrique à 1Hz pour une épaisseur de 46 μm

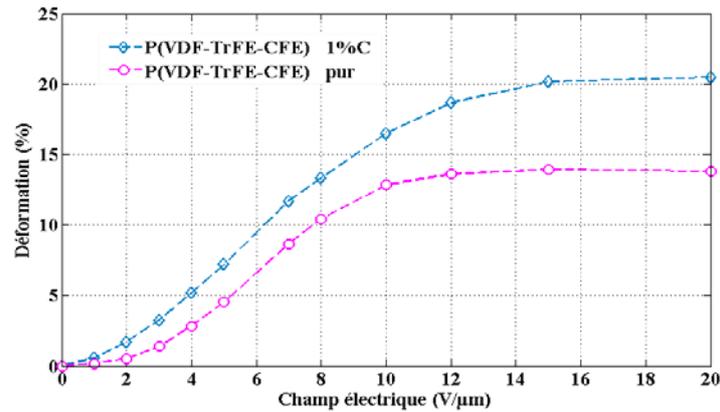


Figure III.10: Déformation en fonction du champ électrique à 0.1Hz pour une épaisseur de 48 μm

Ces mesures ont permis de mettre en évidence l'avantage d'utiliser des charges conductrices (noir de carbone) pour l'amélioration des propriétés de conversion électromécanique des polymères électro-actifs. Avec l'application des faibles amplitudes du champ électrique (inférieur à $5 V/\mu m$), on observe une dépendance quadratique de la déformation avec le champ électrique. Et au-delà de cette valeur du champ électrique (supérieur à $5 V/\mu m$), une saturation est clairement visible dans tous les types de films étudiés.

La réponse électromécanique des composites chargés à l'aide de particules conductrice est supérieure à celle des matrices de départ. Dans le cas du PU par exemple, pour une même valeur du champ électrique ($7 V/\mu m$), la déformation produite par le PU 1%C est de 20% au lieu de 7% pour un PU pur, ça nous permet d'augmenter la conversion électromécanique d'un facteur de 3. Mais pour le P(VDF-TrFE-CFE) l'activité électromécanique est améliorée d'un facteur de 1.4. Ces résultats ne prouvent pas seulement l'avantage de l'incorporation de nanoparticules pour l'amélioration du couplage électromécanique au sein des polymères, mais aussi un abaissement significatif de la tension d'activation des films qui reste actuellement le verrou technologique majeur des films de polymère électro-actifs pour le développement d'applications.

La réponse en déformation de tous les films de polymères étudiés suit l'équation quadratique $S_3 = -M_{33}E_3$ à un champ électrique faible. Le coefficient d'électrostriction M_{33} peut être calculé à partir de la pente par rapport au champ électrique faible (inférieur de $5 V/\mu m$). Le tableau ci-dessous récapitule les différentes valeurs du coefficient d'électrostriction ainsi que la déformation maximale S_{3max} pour différentes fréquences.

Tableau III.1: Le coefficient d'électrostriction et la déformation maximale à différentes fréquences

Type	Epaisseur (μm)	M_{33} (m^2/V^2)	$S_{3\text{max}}$ (%)	
PU pur	46	$1.1 \cdot 10^{-15}$	9.2	0.1 Hz
PU 0.5%C	60	$2.4 \cdot 10^{-15}$	13.63	
PU 1%C	57	$4.5 \cdot 10^{-15}$	21.9	
P(VDF-TrFE-CFE)	48	$1.27 \cdot 10^{-15}$	13.6	
P(VDF-TrFE-CFE) 1%C	46	$2.39 \cdot 10^{-15}$	20.5	
PU pur	46	$0.81 \cdot 10^{-15}$	6.8	1 Hz
PU 0.5%C	60	$1.9 \cdot 10^{-15}$	10.76	
PU 1%C	57	$3.1 \cdot 10^{-15}$	14.7	
P(VDF-TrFE-CFE)	48	$1.12 \cdot 10^{-15}$	11.2	
P(VDF-TrFE-CFE) 1%C	46	$1.88 \cdot 10^{-15}$	16.46	
PU pur	46	$0.73 \cdot 10^{-15}$	5.3	10 Hz
PU 0.5%C	60	$0.82 \cdot 10^{-15}$	6.42	
PU 1%C	57	$1.37 \cdot 10^{-15}$	10.1	
P(VDF-TrFE-CFE)	48	$1.06 \cdot 10^{-15}$	9.1	
P(VDF-TrFE-CFE) 1%C	46	$0.95 \cdot 10^{-15}$	13.2	

II.2.4 Effet de la précontrainte sur la déformation électromécanique

Le but de ce paragraphe consiste à étudier la capacité de ces polymères lors de l'application des différentes précontraintes et de déterminer la force qu'ils peuvent générer, afin de mettre nos matériaux dans des conditions réelles d'application.

La déformation électromécanique qui se présente sous forme d'ailes de papillon en fonction du champ électrique pour différentes précontraintes pour un échantillon PU 1%C d'épaisseur $50 \mu\text{m}$ à 0.1 Hz, est illustrée en figure III.11. Selon les courbes obtenues, on peut observer une forte dépendance de la déformation avec la contrainte statique, par exemple à vide pour un champ électrique de $5 \text{ V}/\mu\text{m}$ la déformation est de -17.84% tandis que pour une contrainte statique de -22.55 kPa , elle chute à -2.95% . Cette diminution tend vers l'abaissement des propriétés en actionnement des nos polymères. Ainsi, l'application de cette contrainte statique empêche le développement du volume polaire sous champ électrique.

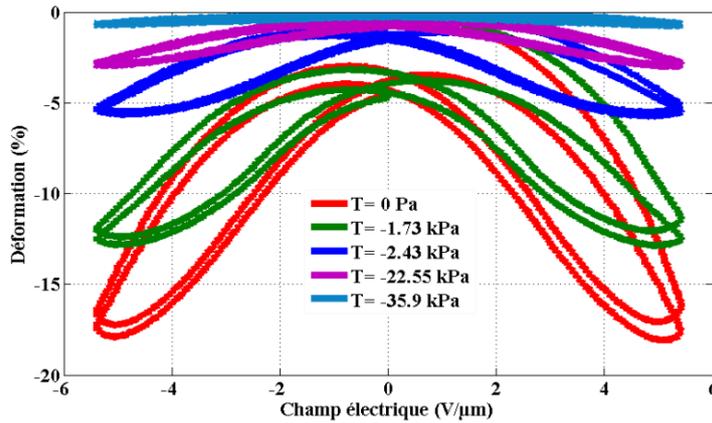


Figure III.11: Déformation en fonction du champ électrique pour différentes précontraintes et une épaisseur de $50 \mu m$ à $100 mHz$

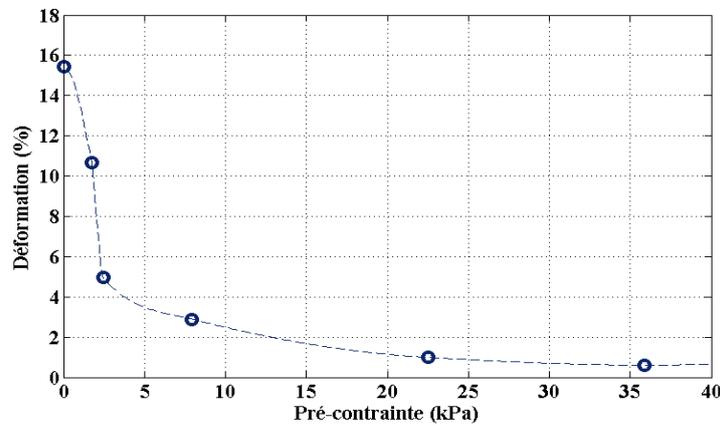


Figure III.12: Déformation en fonction du précontrainte pour un champ électrique de $5 V/\mu m$ à $100 mHz$ sur un film de PU $1\%C$

La figure III.12 présente la déformation électromécanique en fonction du contrainte statique pour un échantillon PU $1\%C$ sous un champ de $5 V/\mu m$ pour une fréquence de $0.1 Hz$. Pour des valeurs de pré-contraintes faibles (inférieur à $5 V/\mu m$), une diminution significative est observée, qu'on peut expliquer par l'augmentation de la rigidité du polymère. Lorsque la précontrainte devient plus importante, la rigidité que possède les polymères devient plus grande, d'où une diminution des propriétés électromécaniques. Quand la déformation devient nulle pour une précontrainte donnée, il est alors possible d'accéder à la force de blocage.

III. Modélisation du comportement électromécanique des polymères

Selon les réponses électromécaniques obtenues dans le paragraphe précédent, un phénomène de saturation entre la déformation électromécanique et le champ électrique appliqué est observé. Ce phénomène est lié à une saturation de la polarisation électrique en fonction du

champ électrique induit $P(E)$. Pour cela une modélisation de la réponse électromécanique de nos polymères sera réalisée.

III.1 Modélisation de la polarisation

L'approche proposée pour modéliser le comportement de polarisation dans le film de polymère est basée sur une modélisation en fonction hyperbolique, afin de déterminer la saturation de la polarisation avec le champ électrique. La polarisation peut s'écrire sous la forme suivante [Guy2010]:

$$P(E) = \varepsilon_0 \varepsilon_r E_{Sat} th\left(\frac{E}{E_{Sat}}\right) \quad \text{III-25}$$

ou ε_0 est la permittivité de vide, ε_r est la permittivité relative et E_{Sat} correspond au champ électrique de saturation. P et E indiquent respectivement la polarisation et le champ électrique. La fonction hyperbolique a été choisie pour modéliser le comportement non linéaire des polymères. Pour des faibles champs électriques, le comportement linéaire entre la polarisation et le champ électrique est obtenu car $th\left(\frac{E}{E_{Sat}}\right) \approx \frac{E}{E_{Sat}}$ et la polarisation devient $P(E) = \varepsilon_0 \varepsilon_r E$. Par contre, au-delà de la valeur du champ électrique E_{Sat} une saturation de la polarisation apparaît.

Le courant mesuré pour ces essais pratiques sert à remonter à la polarisation. Les figures III.13 et III.14, tracent l'évolution de la polarisation obtenue à partir des mesures de courant, en fonction du champ électrique à 1Hz, pour un échantillon de PU 1%C et à 0.1Hz pour P(VDF-TrFE-CFE) 1%C. La première observation concerne l'élargissement de la surface des cycles lorsque l'amplitude du champ dynamique augmente. Cela provient sans doute des pertes dans les polymères qui ont un caractère non-linéaire pour des niveaux de champ électrique élevé. La deuxième concerne l'apparition de la saturation, il n'est pas possible d'observer une saturation de la polarisation car celle-ci est masquée par les pertes électriques.

Ce phénomène est visible sur les courbes de déformation en fonction du champ électrique et qui seront traitées dans le prochain paragraphe.

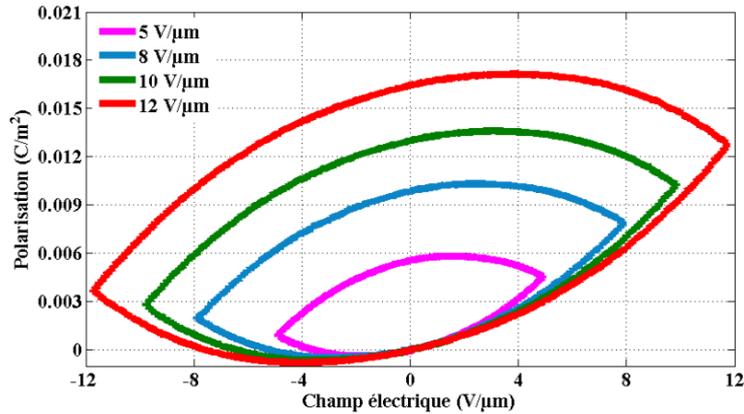


Figure III.13: Polarisation en fonction du champ électrique à 1Hz sur un film de PU 1%C

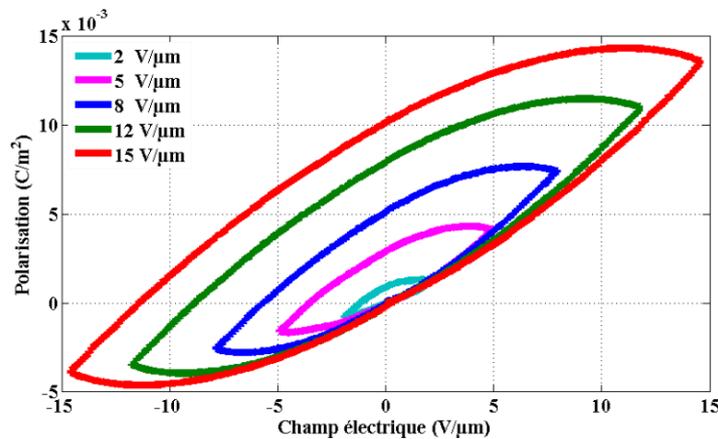


Figure III.14: Polarisation en fonction du champ électrique à 0.1 Hz sur un film de P(VDF-TrFE-CFE) 1%C

III.2 Relation entre la déformation et la polarisation

A partir de l'équation mécanique constitutive du matériau électrostrictif, $\tau(E) = cS(E) + \alpha P(E)^2$ et dans le cas d'une contrainte nulle, on peut retirer l'expression de la déformation par rapport à la polarisation. L'équation devient alors :

$$S_3(E) = Q_{33}P_3^2(E) \tag{III-26}$$

La déformation électrostrictive, S_3 , est toujours négative le long de la direction du champ électrique appliqué. On remplaçant l'expression de la polarisation (équation II-25) dans la formule de la déformation, on obtient l'équation de S_3 en fonction du champ appliqué :

$$S_3(E) = Q_{33} \left(\epsilon_0 \epsilon_r E_{Sat} th \left(\frac{E_3}{E_{Sat}} \right) \right)^2 \tag{III-27}$$

Avec cette équation, la non-linéarité de la déformation dans un champ électrique élevé serait bien exprimée, la comparaison entre l'expérience et la théorie est représentée dans la figure III.15, pour un échantillon de PU 1%C d'épaisseur $57 \mu\text{m}$ à 1Hz .

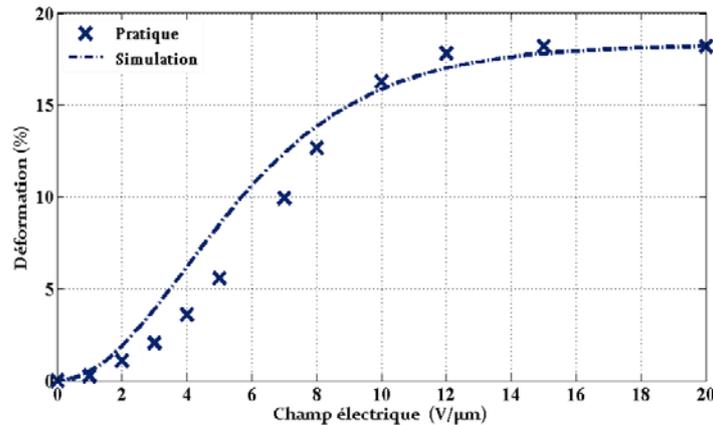


Figure III.15: Comparaison entre la simulation et l'expérience sur un film de PU 1%C à 1 Hz

Les résultats obtenus montrent une bonne corrélation entre la théorie et la pratique, une saturation de la déformation transversale est bien présente dans les deux cas. Cela laisse supposer que le caractère non linéaire de la déformation avec le champ électrique est dû à la saturation de la polarisation avec celui-ci.

Dans notre étude sur la réponse électromécanique, tous les polymères étudiés (chargés ou pas) présentent des allures de déformation de S_3 identiques. Afin de ne pas alourdir le manuscrit seules les mesures sur les échantillons de polyuréthane 1%C et P(VDF-TrFE-CFE) 1%C seront présentées. Les figures III.16 et III.17 illustrent la déformation électromécanique en fonction du champ appliqué pour différentes amplitudes du champ électrique, d'un échantillon de PU 1%C d'épaisseur $60 \mu\text{m}$ à 1Hz et de P(VDF-TrFE-CFE) 1%C d'épaisseur $50 \mu\text{m}$ à 1Hz , respectivement. Ces différentes mesures ont permis de mettre les matériaux fabriqués au laboratoire dans une condition réelle d'utilisation.

Dans la limite du champ appliqué faible, la déformation est proportionnelle au carré du champ électrique. Par contre, pour des niveaux élevés du champ électrique, le phénomène de saturation est observé dans les deux types de polymères étudiés. On peut conclure que le PU 1%C ayant une bonne activité électromécanique par rapport à celle obtenue par le P(VDF-TrFE-CFE) 1%C malgré une permittivité relative importante dans le cas des films de P(VDF-TrFE-CFE). Cela s'explique par le fait que les constantes élastiques entre les deux types de matrice sont très grandes.

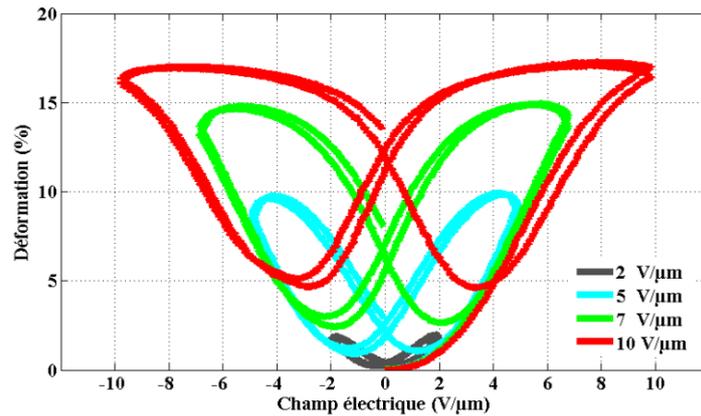


Figure III.16: Déformation en fonction du champ électrique pour un échantillon de PU 1%C d'épaisseur $60 \mu m$ à 1 Hz et à différents niveaux de champ électrique.

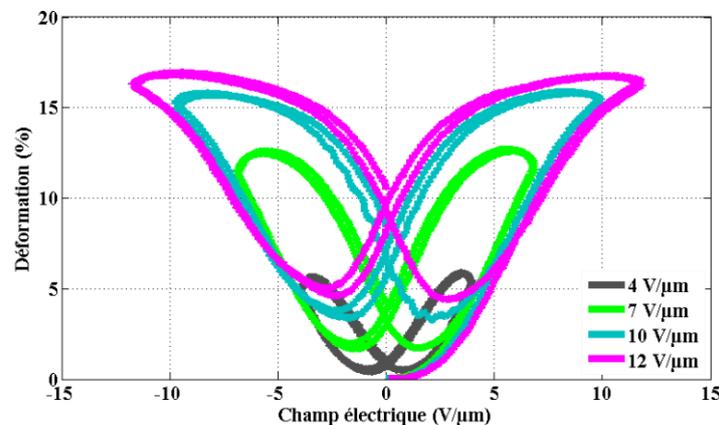


Figure III.17: Déformation en fonction du champ électrique pour un échantillon de P(VDF-TrFE-CFE) 1%C d'épaisseur $50 \mu m$ à 1 Hz et à différents niveaux de champ électrique.

IV. Contrôle adaptatif de la raideur mécanique par les polymères électro-actifs

Pour les applications concernant la suspension du véhicule ou les membranes des haut-parleurs acoustiques, une méthode de contrôle de la raideur conventionnelle est à la fois utile et souhaitée. Cependant, sans remplacement total de la matière elle-même ou sa structure, la modification de la raideur n'est pas chose facile. En général, il n'y a que deux façons de modifier la raideur, un changement total de la matière ou de sa structure. Par exemple, la raideur d'un pneu de véhicule peut être modifiée par un traitement de surface avec un pulvérisateur adhésif. Cela existe dans le commerce et il s'appelle entraînement de contrôle de la raideur. C'est une méthode simple et raisonnable par rapport à un cas où la totalité du matériau doit être remplacé. Le changement inverse n'est cependant pas pris en compte.

Selon les résultats de recherches sur le contrôle de la raideur adaptative, il existe une méthode qui fixe la limitation de la déformation d'un ressort [Mah1995]. Si un ressort est recouvert par un fluide ER, une induction magnétique est suffisante pour limiter la déformation maximale, et ainsi la raideur. Il s'agit d'une méthode de contrôle adaptatif tout à fait classique. Son utilisation est toutefois limitée puisque la structure doit être entièrement recouverte par le liquide. En outre, l'application de cette technique à un autre type de structure est difficile. Sur la base de ces points, la raideur adaptative est une question ouverte et intéressante.

Les polymères électro-actifs (EAPs) ont attiré beaucoup d'attention au cours des dernières décennies en tant que capteur de conversion électrique / mécanique et matériaux actionneurs. Non seulement la grande simplicité de fabrication et de plus moins coûteuse, ce qui donne plusieurs variantes de matériaux, mais un avantage spécifique réside dans leur niveau de déformation électrostrictif élevé. Par exemple, le polyuréthane (PU), l'un des élastomères diélectriques, réalise plus de 30% de déformation sous un champ électrique modéré (inférieur à $20 \text{ V} / \mu\text{m}$), et les films composites de PU avec le noir de carbone (CB) peuvent créer plus de 50% dans les mêmes conditions électriques (E inférieur à $20 \text{ V} / \mu\text{m}$), selon une étude réalisée dans notre laboratoire [Yus2011] [Guy2011a].

Une méthode innovante sera proposée dans cette partie pour contrôler de manière adaptative la raideur du matériau en utilisant des polymères electrostrictifs. Elle démontre qu'il est possible de modifier la raideur d'un film pré-étiré PU par de simples stimuli électriques. La théorie sera détaillée et les résultats de la simulation seront confrontés à ceux obtenus expérimentalement.

IV.1 Modèle théorique

Cette partie est consacrée à la mise en place d'un modèle analytique à base de polymères electrostrictifs pour contrôler la raideur induite par un champ électrique. Ainsi qu'à l'étude de l'effet des excitations mécaniques et électriques sur le changement de la raideur.

IV.1.1 Effet de la pré-force sur le changement de la raideur

D'un point de vue mécanique, et quand un film mince de PU est étiré dans la direction 1 (suivant la longueur du film), la contrainte correspondante crée un allongement qui peut être écrit sous la forme suivante $\tau_{mech} = cS$. Ici, c et S sont des facteurs mécaniques correspondant à la compliance élastique et la déformation dans la direction 1, respectivement.

Lorsque le champ électrique est appliqué selon la direction 3 (suivant l'épaisseur du film), un allongement dans la direction 1 se produit puisque le coefficient électrostrictif de PU est négatif. Dans les conditions naturelles, et sans fixation, ces deux élongations ont la même direction.

Dans notre cas, nous considérons que le film polymère est fixé aux deux extrémités, et est étiré dans la direction 1. Puis on applique un champ électrique selon la direction 3. Après la fixation du film par une déformation statique S_0 , aucun allongement ne pourrait se produire, et une autre contrainte dans la direction 1 due à l'excitation électrique se produit selon l'équation

$\tau_{ele} = \alpha P^2$. Ici, α et P sont des facteurs électriques, à savoir le coefficient électrique et la polarisation créée par l'induction électrique, respectivement. Les deux paramètres α et P^2 sont des valeurs positives.

Alors, dans ces conditions la contrainte totale τ_t peut être exprimée à partir des équations constitutives électrostrictives bien connues de la manière suivante:

$$\tau_t = \tau_{mec} + \tau_{ele} = cS_0 + \alpha P^2 \quad \text{III-28}$$

Ici, les extrémités du polymère sont fixées avant l'induction électrique. La contrainte mécanique et la contrainte causée par l'excitation électrique, ont des directions opposées, et la contrainte totale devient sous la forme suivante :

$$\tau_t = cS_0 - \alpha P^2 \quad \text{III-29}$$

Multipliant cette équation par la surface A , l'équation de la force F est obtenue avec la raideur $K = cA/l$ comme suit :

$$F_t = cAu_0/l - \alpha AP^2 = Ku_0 - \alpha AP^2 \quad \text{III-30}$$

où l est la longueur de l'échantillon et u_0 le déplacement initiale dû à la pré-déformation $U_0 = S_0 l$.

En outre, la contrainte électrique induite peut également s'écrire comme $\tau_{ele} = c'S_{ele}$

La compliance élastique n'est plus le coefficient constant c , mais le coefficient variable c' parce que la déformation, S_{ele} , est fixée à la pré-déformation, $S_{ele} = S_0$, sous la contrainte variable causée par l'induction électrique τ_{ele} . Le second terme de l'équation (III-30) devient alors :

$$\alpha AP^2 = c' AS_{ele} = K' u_{ele} \quad \text{III-31}$$

Pour bien le différencier de la raideur de l'échantillon sans l'induction électrique, $K = F / u_0$ la raideur variée a été exprimée en K' ici. Elle dépend uniquement de l'induction électrique, de sorte que $K' = f(E)$. Avec cette raideur variable, la force totale dans l'équation (III-30) est réécrite sous la forme :

$$F_t = Ku_0 - K' u_{ele} \quad \text{III-32}$$

Puisque la condition expérimentale comporte deux extrémités fixes $u_0 = u_{ele}$. On obtient ainsi

$$F_t = u_0(K - K') \quad \text{III-33}$$

Maintenant, selon l'équation III-33, nous pouvons tout simplement déduire la raideur totale variée sous l'induction électrique et après un pré-étirage,

$$K_t = K - K' \quad \text{III-34}$$

La comparaison de la raideur avec et sans induction électrique peut être simplement effectuée en comparant la force totale et la force de la pré-déformation F_m comme suit,

$$K_t/K = (F_t/u_0)/(F_m/u_0) = F_t/F_m \quad \text{III-35}$$

IV.1.2 Effet de l'excitation électrique sur le changement de la raideur

Dans le paragraphe précédant, il a été mentionné que la raideur variable peut être exprimés uniquement par l'équation du champ électrique, $K' = f(E)$. Donc la raideur totale, sous sollicitations mécaniques et électriques, K_t peut être donnée aussi en fonction du champ électrique $K_t = f(E)$.

Combinant l'équation (III-25) et (III-34), la comparaison de la raideur avec et sans induction électrique, déjà exprimée dans l'équation (III-35), K_t/K , et on peut la réécrire en fonction de l'excitation électrique sous la forme suivante .:

$$K_t/K = F_t/F_m = 1 - F_e/F_m = 1 - A\tau_{ele}/F_m = 1 - A\alpha P^2/F_m \quad \text{III-36}$$

Finalement, on obtient le rapport de la raideur en fonction du champ électrique appliqué,

$$K_t/K = 1 - (A\alpha / F_m) * \left(\varepsilon_0 \varepsilon_r E_{Sat} \tanh\left(\frac{E}{E_{Sat}}\right) \right)^2 \quad \text{III-37}$$

A partir de cette équation, nous pouvons facilement contrôler la raideur par l'effet des deux excitations (mécanique et électrique). Les résultats qui seront présentés dans la dernière partie, seront consacrés à l'étude de l'effet de la force de pré-étirage F_m , du champ statique E_{dc} , ainsi que l'amplitude du champ dynamique E_{amp} .

IV.2 Protocole de mesure

Les échantillons utilisés dans ces essais sont de type polyuréthane pur, préparés par la méthode décrite dans le chapitre précédant. Ils ont été coupés sous forme d'un rectangle de dimension $40 * 16 \text{ mm}^2$. Des électrodes ont été pulvérisées sur les deux côtés du film dont l'épaisseur est de l'ordre de quelque nm. Le film de polymère est mis en mouvement par le more mobile de la table dans la direction 1et qui génère une force sinusoïdale. Cette force est mesurée à l'aide d'un capteur de force de la Compagnie de FGP, sa précision est de l'ordre de $0,05 \text{ N}$.

Le dispositif expérimental construit au laboratoire LGEF, comme le montre la figure III.18, rend possibles les déterminations sensibles de la constante diélectrique, le module d'Young et les coefficients électrostrictifs de films polymères à électrodes. Les détails ont déjà été signalés ailleurs [Guy2011b].

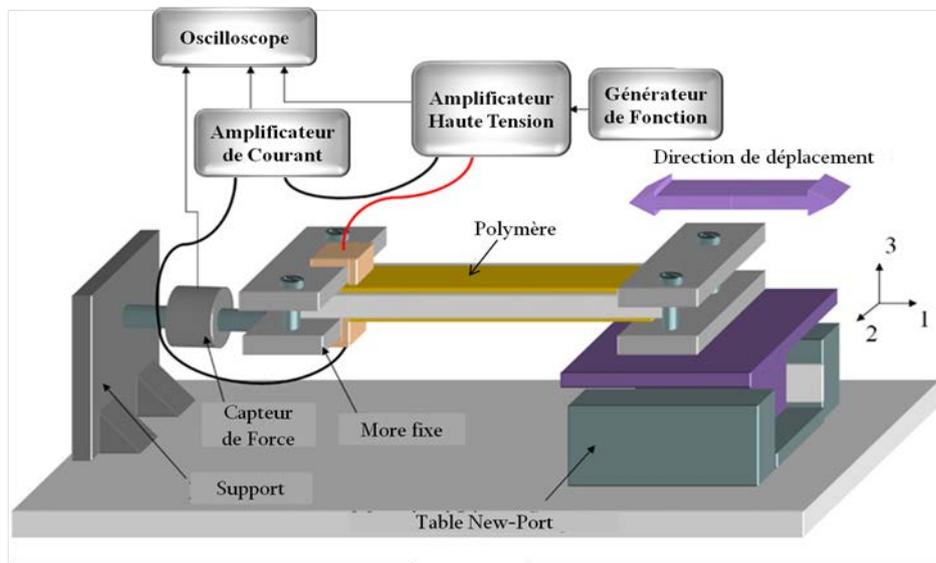


Figure III.18: Principe de fonctionnement

Un champ électrique sinusoïdal $E = E_{dc} + E_{amp} \cos(\omega t)$, avec une fréquence de 1 Hz, a été appliqué avec une variation de la composante continue E_{dc} et dynamique E_{amp} d'un amplificateur haute tension (Treck mode 10/10B). Ici, ω correspond à la pulsation de

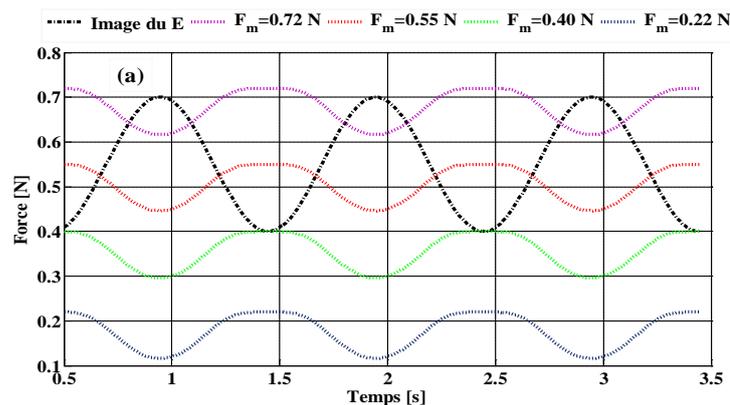
l'excitation électrique et t est le temps. L'ensemble des données sont visualisées sur un oscilloscope (Agilent DS0 6054A Mega zoom).

IV.3 Résultats et discussion

Les résultats expérimentaux seront présentés et comparés avec ceux obtenus par la simulation. Trois coefficients seront variés, la force de pré-étirage F_m , le champ électrique continu E_{dc} et l'amplitude électrique E_{amp} . Une image du champ électrique appliqué sera visualisée dans toutes les courbes qui seront présentées dans cette partie.

IV.3.1 Variation de la force de pré-étirage F_m

Le film de polymère a été étiré dans la direction 1 avec quatre niveaux de la déformation statique, créant ainsi une force de pré-étirage F_m de 0,72, 0,55, 0,40 et 0,22 N. Le champ électrique sinusoïdal est alors appliqué dans la direction 3 avec un champ bias de $E_{dc} = 16 V / \mu m$ et d'une amplitude de $E_{amp} = 16 V / \mu m$. Dans ces conditions, le champ électrique jamais descendu en dessous de zéro, mais il est resté positif. La figure III.19 illustre la variation de la force totale théorique (a) expérimentale (b). Les paliers supérieurs de courbes quasi-sinusoïdales correspondent à chaque niveau de la force de pré-étirage. L'influence de la taille de la force de pré-étirage n'est pas visible à ce niveau de l'excitation électrique.



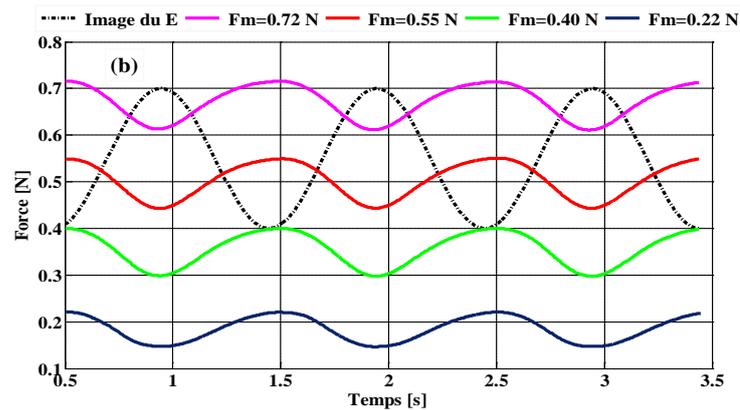
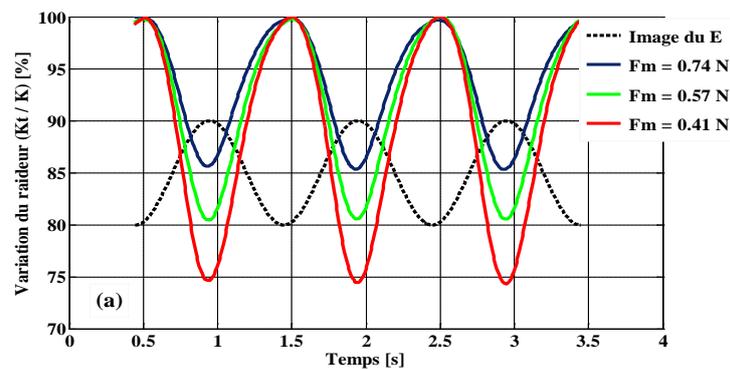


Figure III.19: Comparaison de la force en variant la force de pré-étirage F_m
 (a) résultats simulés
 (b) résultats expérimentaux

Avec les paramètres utilisés ci-dessus, un changement de la raideur a été obtenu et les résultats expérimentaux ainsi que ceux obtenus par simulation sont illustrés dans la figure III.20(a) et III.20(b), respectivement. Il est clairement visible que la raideur varie avec le niveau de la force de pré-étirage. Lorsque le film a été étiré à un très faible niveau de pré-déformation, le changement de la raideur par les mêmes excitations électriques devient dramatique. Ici, une réduction de plus de 30% a été obtenue facilement avec le niveau de l'induction électrique mentionné ci-dessus ($< 32 V / \mu m$).



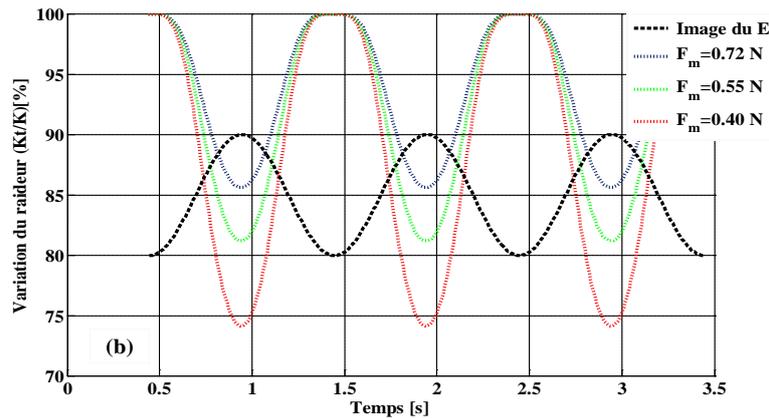


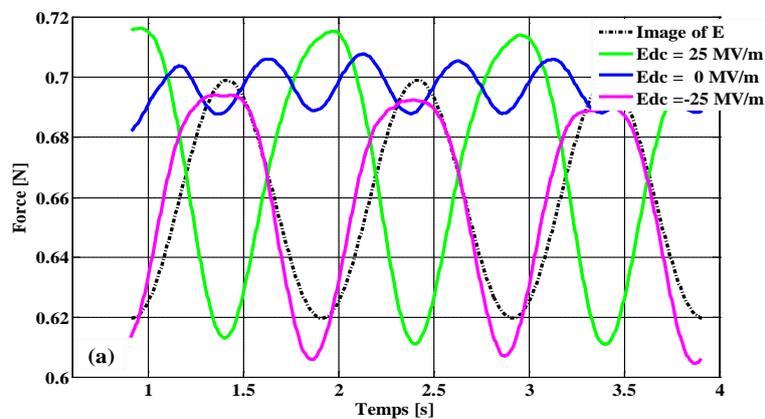
Figure III.20: Comparaison de la raideur en variant la force de pré-étirage F_m

- (a) résultats expérimentaux
(b) résultats simulés

IV.3.2 Variation du champ électrique E_{dc}

Dans cette partie, la force statique appliquée sur le film est de l'ordre $0,74 \text{ N}$ et l'amplitude du champ électrique est fixé à $16 \text{ V} / \mu\text{m}$. Puis on fait varier la composante DC pour trois valeurs, -25 , 0 et 25 MV/m . La figure III.21 présente les résultats expérimentaux (a) et les résultats de la simulation (b).

Par rapport au champ électrique, indiqué sur la figure par une ligne pointillée pour référence, la totalité du champ électrique a le même signe lorsque $E_{dc} = -16 \text{ V} / \mu\text{m}$. Ceci est exprimé par la ligne rose dans la figure III.21 (a). En revanche, lorsque $E_{dc} = 16 \text{ V} / \mu\text{m}$, ce qui correspond à la ligne verte de la figure, il y avait un retard de phase de π entre eux et la force totale a une tendance opposée. La fréquence double est clairement visible à la suite pour un $E_{dc} = 0 \text{ V} / \mu\text{m}$.



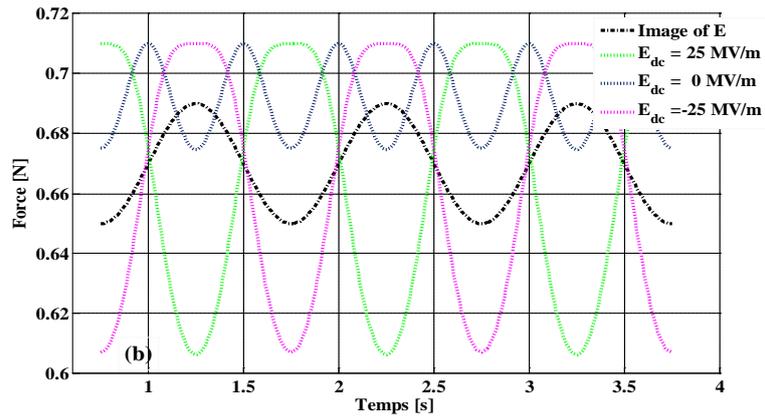
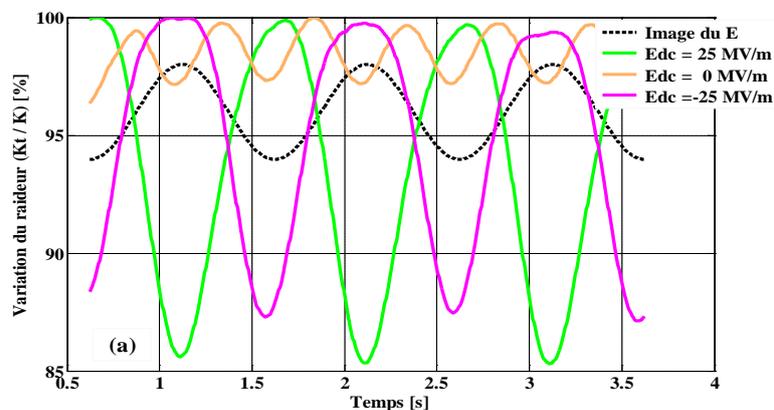


Figure III.21: Comparaison de la force en variant le champ bias E_{dc}

- (a) résultats expérimentaux
(b) résultats simulés

Par ailleurs, les niveaux supérieurs des courbes sinusoïdales n'étaient pas toujours égaux en raison de la force de pré-étirage et sont difficiles à fixer avec précision. La simulation a pris ces légères différences en compte.

Comme on peut le visualiser sur la figure III.22, le changement de raideur a donné lieu à des phénomènes similaires. Une double fréquence de changement de raideur est également apparue avec la valeur de $E_{dc} = 0 \text{ V} / \mu\text{m}$.



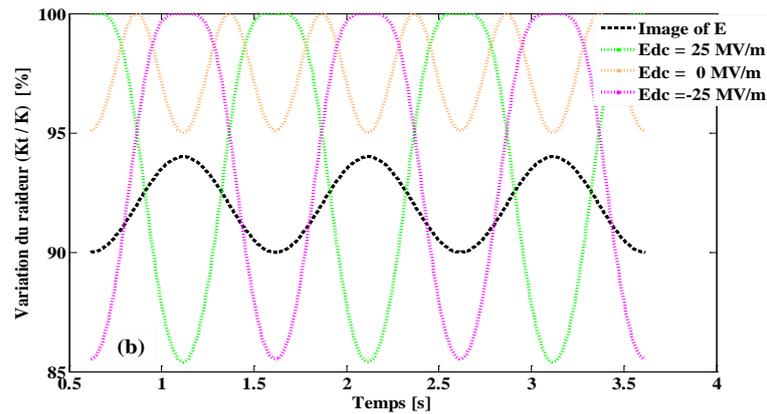
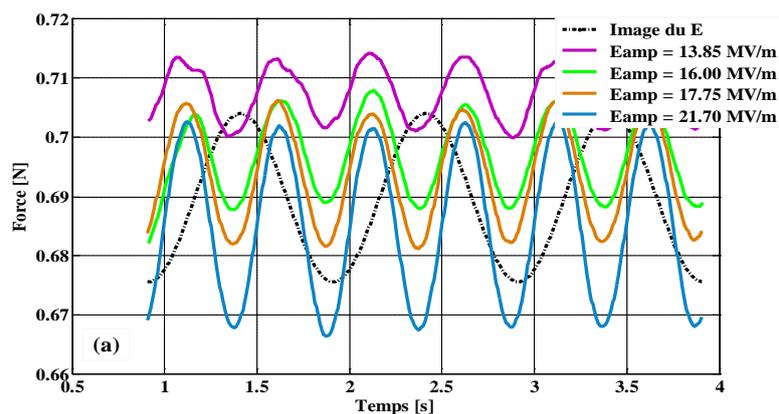


Figure III.22: Comparaison de la raideur en variant le champ bias E_{dc}

- (a) résultats expérimentaux
(b) résultats simulés

IV.3.3 Variation de l'amplitude du champ électrique E_{amp}

Le film polymère a été étiré avec un pré-étirage de $F_m = 0,74 N$ et avec un champ statique nul $E_{dc} = 0 V / \mu m$. L'amplitude champ dynamique a été varié d'une valeur de 13.85 jusqu'à $21.70 V / \mu m$. Les figures III.23 (a) et (b) montrent les résultats expérimentaux et ceux obtenus par la simulation. On peut observer que toutes les courbes présentent une double fréquence et que les pics inférieurs augmentent avec l'amplitude du champ électrique appliquée. Les phénomènes sont bien reproduits dans la simulation qui confirme une bonne corrélation entre les résultats expérimentaux et les résultats obtenus par simulation.



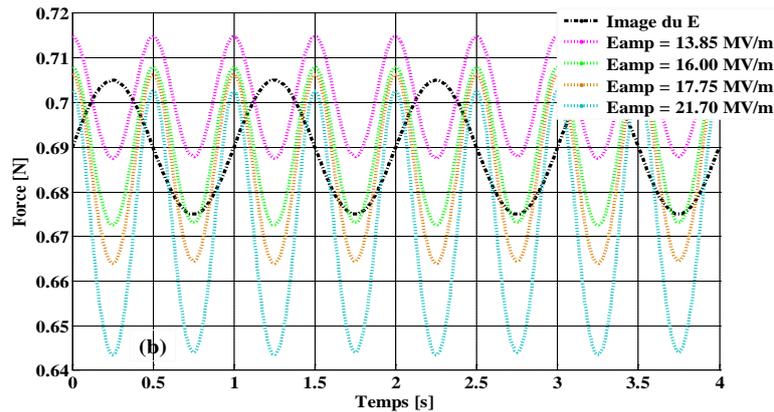


Figure III.23: Comparaison de la force en variant l'amplitude du champ E_{amp}

- (a) résultats expérimentaux
(b) résultats simulés

La figure III.24 montre l'évolution de la raideur en fonction du temps. Bien que les variations de la raideur ne soient pas tout à fait remarquables avec l'augmentation de l'amplitude du champ dynamique, le phénomène de la double fréquence est clairement visible.

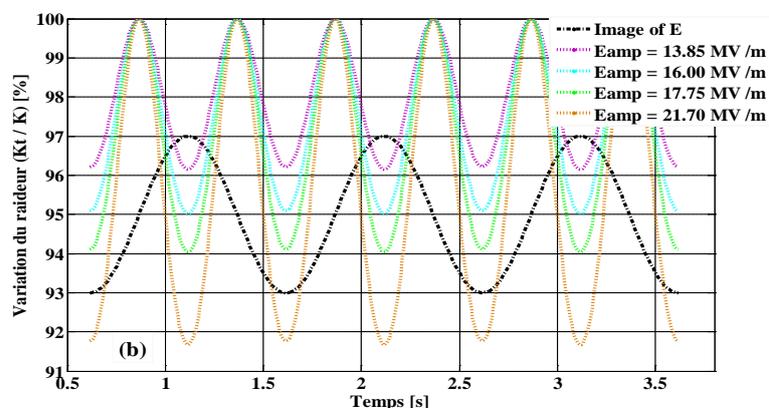
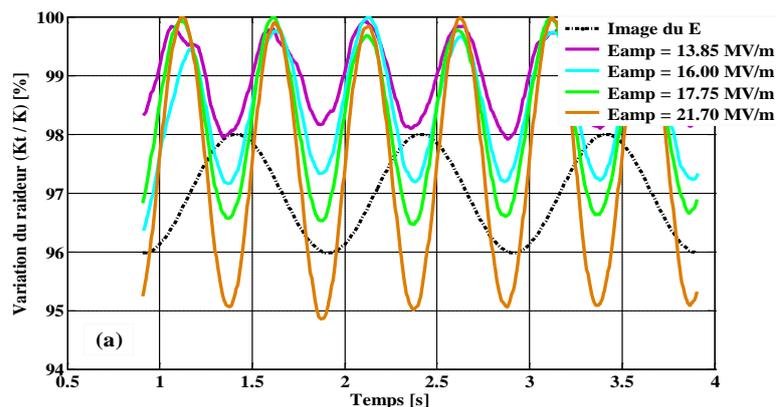


Figure III.24: Comparaison de la raideur en variant l'amplitude du champ E_{amp}

- (a) résultats expérimentaux
(b) résultats simulés

L'évolution de la raideur en fonction de la force de pré-étirage et en fonction de l'amplitude du champ dynamique pour un champ électrique statique E_d donnée, est présentée dans les figure III.25 (a) et III.25 (b), respectivement. Et une comparaison entre les résultats théoriques et expérimentaux est effectuée. Nous voyons que la force de pré-étirage F_m jouer un rôle plus important que l'amplitude électrique dynamique E_{amp} .

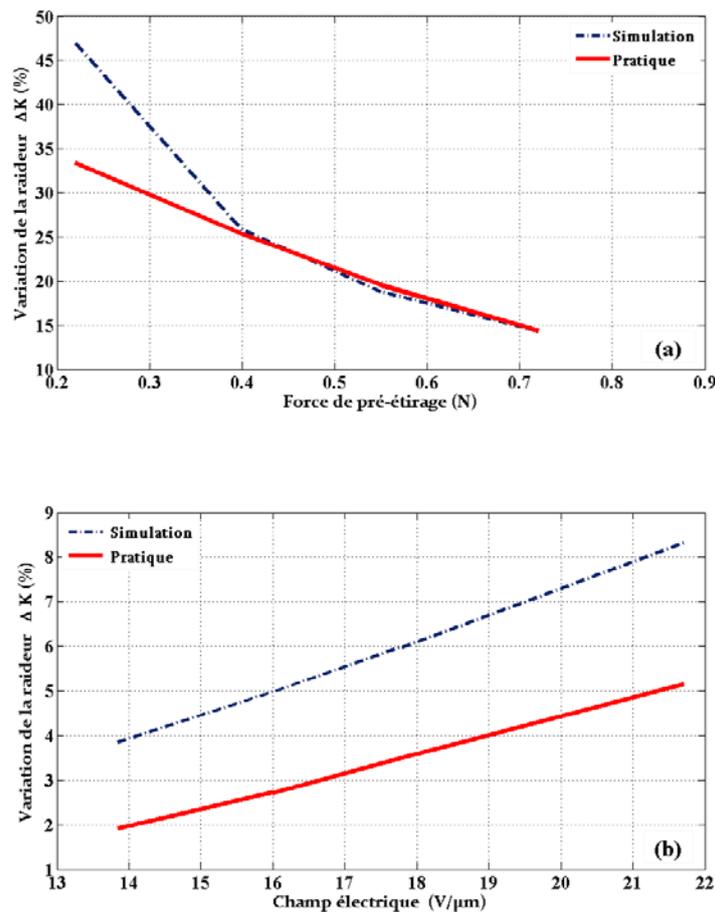


Figure III.25: Variation de la raideur en fonction de :

- (a) Force de pré-étirage F_m
- (b) Amplitude du champ E_{amp}

De plus, la saturation électrique démontrée par l'équation III-37, a été vue très peu dans la figure III.19, mais pas sur les autres résultats, car le niveau de l'excitation électrique appliquée n'est pas très élevé. Finalement, on peut constater que la méthode présentée ne nécessite qu'une induction électrique et représente donc une technique tout à fait conventionnelle et adaptative pour modifier la raideur d'un matériau polymère.

V. Conclusion

Dans la première partie de ce chapitre, les propriétés électromécaniques des polymères électrostrictifs ont été mises en évidence. Les effets de l'épaisseur, de la fréquence, des nano particules conductrices et de la précontrainte ont été étudiés. Les résultats obtenus lors des essais de la déformation électromécanique sous champ électrique ont démontré l'intérêt d'incorporer des charges conductrices, où une amélioration d'un facteur deux des performances électromécaniques a été observée pour une même valeur du champ électrique appliqué. Puis nous avons traité le comportement de la polarisation ainsi que la déformation sous des sollicitations électriques, afin de modéliser le phénomène de saturation observé lors des essais effectués. Une bonne cohérence a été obtenue entre la théorie et la pratique. Selon cette étude électromécanique, les polymères à base de la matrice polyuréthane seront notre choix pour la récupération d'énergie mécanique.

La deuxième partie a été consacrée à l'étude de la modification de la raideur d'un matériau polymère par une méthode conventionnelle et adaptative. L'influence de la force de pré-étirage, de la composante statique et dynamique de champ électrique appliqué ont été présentées. De bons accords ont été trouvés entre la simulation et les résultats expérimentaux, validant ainsi le modèle. Selon les résultats obtenus, nous avons constaté qu'une induction d'un champ électrique modéré, $< 32 V/\mu m$ est suffisante pour modifier la raideur de plus 30%. Nous avons vu aussi que pour une composante statique nulle, la raideur peut être variée avec une fréquence double par rapport au champ électrique et que l'effet de la force de pré-étirage sur l'évolution de la raideur est plus important que celui de l'amplitude électrique.

Le prochain chapitre sera consacré à l'étude des polymères électrostrictifs pour la récupération d'énergie mécanique par des nouvelles techniques, afin d'améliorer la puissance récupérée.

Références

- [Cro1995] L.E. Cross, *Ferroelectric Materials for Electromechanical Transducer Applications*, Jpn. J. Appl. Phys. Part I, 34(5B), 2525 (1995).
- [Cro2004] L.E. Cross and W. Ma, An electromechanical investigation of electromechanical response in a dielectric acrylic elastomer, *A* 78:1201–1204 (2004).
- [Eur1999] S. Eury, R. Yimnirun, V. Sundar, P. J. Moses, S.-J. Jang, R. E. Newnham, Converse electrostriction in polymers and composites, *Mat. Chem. And Phys.*, vol. 61, p. 18-23, 1999.
- [Gui2006] B. Guiffard, L. Seveyrat, G. Sebaid and D. Guyomar, Enhanced electric field-induced strain in non-percolative carbon nanopowder/polyurethane composites, *J. Phys. D*, 39 (2006) 3053-3057.
- [Gui2003] F. M. Guillot and E. Balizer, Electrostrictive Effect in Polyurethanes, *J. Appl. Polym. Sci.* 89, 399-404 (2003).
- [Guy2011a] D. Guyomar, K. Yuse, M. Kanda, Thickness effect on electrostrictive polyurethane strain performances: a three-layer model, *Sensors & Actuators: A. Physical*, Vol. 168, Issue 2, pp. 307-312 (2011).
- [Guy2010] D. Guyomar, K. Yuse, P.-J. Cottinet, M. Kanda and L. Lebrun, Focus on the electrical field-induced strain of electroactive polymers and the observed saturation, *Journal of Applied Physics*, 108 (2010) 114910.
- [Guy2011b] D. Guyomar, P.-J. Cottinet, L. Lebrun, G. Sebald, Characterization of an electroactive polymer simultaneously driven by an electrical field and a mechanical excitation: An easy means of measuring the dielectric constant, the Young modulus and the electrostrictive coefficients, *Physics Letters A*, Volume 375, Issue 16, p. 1699-1702 (2011).
- [Her1982] J. M. Herbert, *Ferroelectric Transducers and Sensors* (Gordon and Breach, New York, 1982).
- [Kim2000] J. Kim, J.-Y. Kim and S.-J. Choe, *Electro-Active Papers: Its Possibility as Actuators*, Y. Bar-Cohen Y., (Ed.), *Proceedings of the SPIE's EAPAD Conf.*, part of the 7th Annual International Symposium on Smart Structures and Materials. 3987, 203-209 (2000). ISBN 0-8194-3605-4.
- [Kor2008] R. Kornbluh and R. Pelrine, High-performance acrylic and silicone elastomers, *Dielectric Elastomers as Electromechanical Transducers*, Chp. 4, p. 33-42, 2008
- [Kra1999] I. Krakovsky, T. Romijn, and A. Posthuma de Boer, A few remarks on the electrostriction of elastomers, *J. of applied physics*, 85 (1), 628 (1999)
- [Mah1995] M.J. Mahjoob, H.R. Martin, F. Ismail, Identification of damping and stiffness of smart structures incorporating ER fluids, *App. Acoustics*, vol 45, pp. 211-226 (1995)
- [New1997] R. E. Newnham, V. Sundar, R. Yimnirun, J. Su, and Q. M. Zhang, Electrostriction: Nonlinear Electromechanical Coupling in Solid Dielectrics, *J. Phys. Chem. B*, 101 (48), 10141–10150 (1997).
- [Nye1985] J. F. Nye, *Physical properties of crystals*, (Oxford university press, 1985).
- [Pel2000] R. Pelrine, R. Kornbluh, J. Joseph, R. Heydt, Q. Pei, S. Chiba, High-field deformation of elastomeric dielectrics for actuators, *Mat. Sci. & Eng. C*, vol. 11, p. 89-100, 2000.
- [Pel1998] R. E. Pelrine, R. D. Kornbluh, and J. P. Joseph, Electrostriction of polymer dielectrics with compliant electrodes as a means of actuation, *Sens. Act. A Phys.*, vol. 64(1), p. 77-85, 1998.
- [Su1997] J. Su, Q. M. Zhang and R. Y. Ting, Space-charge-enhanced electromechanical response in thin-film polyurethane elastomers, *Appl. Phys. Lett.*, 71 (1997) 386-388.
- [Sun1996] V. Sundar and R.E. Newnham, Converse method measurements of electrostriction coefficients in low-K dielectrics, *Materials Research Bulletin* 31(5), 545 (1996).
- [Uch2000] K. Uchino, *Ferroelectric devices*, (Marcel Dekker, Inc., New York, 2000).
- [Wat2003] M. Watanabe, N. Wakimoto, H. Shirai, and T. Hirai, Bending electrostriction and space-charge distribution in polyurethane films, *J. Appl. Phys.*, 94 (2003) 24942497.
- [Yim1999] R. Yimnirun, S. Eury, V. Sundar, P. J. Moses, and R. E. Newnham, for Measuring Converse Electrostriction Compressometer Based Method in Polymers, *IEEE Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena*, 338 (1999).

[Yus2011] K. Yuse, D. Guyomar, M. Kanda, L. Seveyrat, B. Guiffard, Development of large-strain and low-powered electro-active polymers (EAPs) using conductive fillers, Sensors and Actuators A, vol 165, pp. 147-154 (2011)

Chapitre IV

Amélioration de la Récupération d'Énergie par des Nouvelles Techniques

Le but principal de ce chapitre consiste à proposer des nouvelles techniques qui permettent d'améliorer les performances électromécaniques des polymères électrostrictifs pour la récupération d'énergie à partir de mouvements vibratoires. La récupération d'énergie dépend étroitement du comportement mécanique du dispositif ainsi que du coefficient de couplage électromécanique du polymère. Dans la première partie de ce chapitre, nous présenterons une technique basée sur l'inversion de polarisation en demi-période dans le but d'augmenter la puissance récupérée. Un déphasage entre les excitations électrique et mécanique sera pris en considération, afin de maximiser la densité d'énergie récupérée. Le modèle analytique sera confronté à la pratique.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous proposerons un nouveau prototype pour la conversion électromécanique des polymères électrostrictifs, afin de démontrer une modification de la réponse du système mécanique pour une augmentation du courant récupéré et une récupération d'énergie par un doubleur de fréquence mécanique. Une comparaison entre la nouvelle configuration et celle classique sera effectuée dans le but de démontrer l'excellent potentiel de cette structure pour la récupération d'énergie. De même, nous avons obtenu une bonne corrélation entre les résultats théoriques et expérimentaux.

I. Introduction

La récupération d'énergie à partir des environnements ambiants est une technologie émergente intéressante pour de nombreuses applications, allant des appareils électriques portatifs ou fixes à énergie renouvelable et qui peuvent être communicants, dans un souci de les rendre autonomes énergétiquement. Par conséquent, l'acquisition de la puissance électrique nécessaire pour faire fonctionner ces appareils est une préoccupation majeure. Une source d'énergie alternative aux batteries conventionnelles doit être prise en considération. Cette auto-alimentation est d'autant plus envisageable que les nouvelles technologies électroniques disponibles sont de plus en plus sobres en énergie. L'énergie électrique nécessaire pour faire fonctionner ces appareils peut être obtenue en captant les énergies lumineuses, thermiques ou mécaniques disponibles dans le milieu ambiant. Ce processus permettrait de fournir de l'énergie illimitée pour la durée de vie du dispositif électronique.

Une forte demande vis à vis de ce type de systèmes surgit actuellement par de nombreux secteurs (domotique, transport, médical, militaire, industriel ...). Par exemple, il sera possible de communiquer directement avec des cellules du corps in-vivo afin d'accroître l'efficacité des médicaments en délivrant des doses aux moments adéquats [Bur2009]. On pourra ainsi directement contre ré-actionner le corps humain pour éviter la survenue d'une crise en limitant ainsi les chutes et les séquelles associées.

Les développements dans ce domaine peuvent s'appuyer sur la convergence d'une large demande de la part des industriels, des pouvoirs publics et des personnes. Ainsi, par exemple, d'après la liste BUSINESS 2.0 [Pes2003], les capteurs autonomes font partie des six technologies qui vont modifier profondément le monde d'aujourd'hui. Pour donner une vision globale des apports des microsystèmes autonomes voici quelques applications décrites dans le livre « Smart Dust : sensor network applications, architecture, and design » [Ily2006]. L'application qui sera la plus répandue sera celle du contrôle de la voiture. Les mesures des capteurs autonomes permettront d'améliorer les performances du véhicule ainsi que la sécurité et le confort au sein de l'habitacle (figure IV.1).

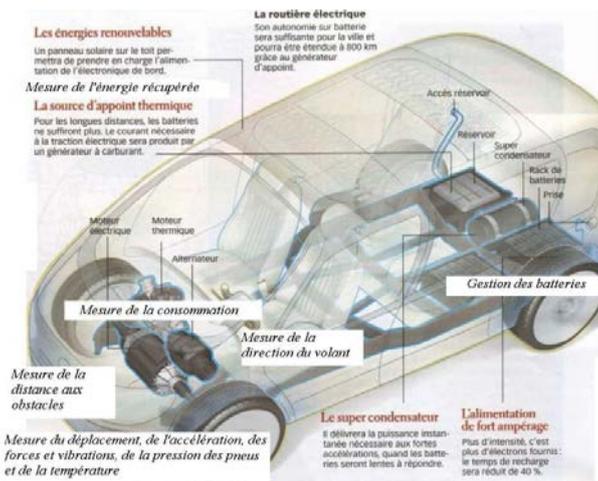


Figure IV.1 : Les capteurs sans fil dans l'automobile [Sci2009].

Le LGEF depuis les dix dernières années a orienté ses efforts vers le développement de micro-générateurs d'énergie électrique exploitant la conversion piézoélectrique car ils sont facilement intégrables, de faible masse et d'encombrement réduit [Kim2005], [Hon2006]. Cependant, la quantité d'énergie extraite reste généralement faible avec les techniques classiques développées jusqu'à présent, notamment dans le cas de structures peu couplées et/ou vibrant hors résonance.

Après avoir examiné plusieurs méthodes de récupération d'énergie, Roundy et al. [Rou203], [Rou204] a conclu que les générateurs piézo-électriques (convertisseurs d'énergie) sont très prometteurs en raison de leur rendement élevé. Toutefois, les limites inhérentes, y compris le vieillissement, la dépolarisation et une fragilité, rendent leur application difficile dans de nombreux domaines. Les polymères électroactifs ont des propriétés intéressantes par rapport aux matériaux inorganiques. Ils sont légers, peu coûteux, la rupture de tolérance, souple et facilement traités et fabriqués. Ils peuvent être configurés dans des formes complexes et leurs propriétés peuvent être adaptées en fonction de la demande. Ils sont généralement utilisés comme actionneurs pour des muscles artificiels en robotique ou la mécatronique. Jusqu'à présent, peu de structures impliquent l'utilisation de ces matériaux dans la récupération d'énergie mécanique [Bar2001] [Pla2006] [Pel2001] [Ren2007].

L'objectif des travaux entrepris consiste à proposer des générateurs performants, basés sur une technologie innovante (polymères électro-actifs) et alternative aux solutions classiques connues, afin de réaliser des micro-générateurs de très faible puissance, c'est-à-dire de quelques μW à quelques centaines de mW . Ces micro-générateurs répondent à un besoin croissant lié à la prolifération des capteurs, micro-actionneurs et autres dispositifs

électroniques embarqués. L'idée principale est d'évaluer les propriétés des polymères électrostrictifs pour la récupération d'énergie. Les tendances récentes dans la recherche de conversion électromécanique ont démontré les avantages de l'utilisation de ces polymères. Ces micro-générateurs peuvent être constitués d'un système mécanique présentant une fréquence de résonance qui couple le micro-générateur aux vibrations ambiantes, ou bien les éléments électrostrictifs peuvent être directement sollicités.

La première partie de ce chapitre sera consacrée à l'étude d'une nouvelle technique dans le but d'améliorer la puissance récupérée par les polymères électrostrictifs. La proposition d'un modèle analytique et sa validation à l'aide d'expérimentation sera effectuée. Dans la deuxième partie, nous présentons la conversion obtenue à l'aide d'un dispositif mécanique et les prototypes de générateurs que nous avons réalisés. Nous soulignons et nous justifions les choix technologiques effectués à chaque étape de la conception.

II. La maximisation de la puissance récupérée par une nouvelle technique.

La méthode proposée dans cette partie consiste à maximiser la puissance récupérée à l'aide des polymères électrostrictifs en utilisant un nouveau signal du champ bias appliqué. Un déphasage entre les excitations électrique et mécanique sera pris en considération, afin de maximiser la densité d'énergie récupérée.

II.1 Modèle analytique

Cette section vise à exposer un calcul théorique de la puissance de sortie maximale qui peut être obtenue en utilisant des matériaux électrostrictifs. Le courant généré par le polymère a été utilisée pour mesurer la puissance récoltée. L'approche pour la modélisation du courant a été décrite par l'équation complète constitutive d'un matériau électrostrictif (voir chapitre III, paragraphe I.1.1.2). Les équations d'électrostriction peuvent être exprimées par les équations suivantes :

$$\begin{cases} E_m = \varepsilon_{mn}^T P_n + 2Q_{klmn} \tau_{kl} P_n \\ S_{ij} = s_{ijkl}^P \tau_{kl} + Q_{klmn} P_m P_n \end{cases} \quad \text{IV-1}$$

De même les équations représentant la déformation et la polarisation peuvent être données par les relations suivantes :

$$\begin{cases} S_{ij} = M_{ijkl}E_kE_l + s_{ijkl}^E\tau_{kl} \\ P_i = \varepsilon_{ik}^TE_k + 2M_{ijkl}E_l\tau_{kl} \end{cases} \quad \text{IV-2}$$

En tenant compte de la saturation de la polarisation obtenue lors des essais expérimentaux, et à partir de l'équation IV-1 et IV-2, on pourra écrire l'équation suivante :

$$\begin{cases} \tau_{ij} = Y_{ijkl}^PS_{kl} + \alpha_{ijmn}P_mP_n \\ P_n = \varepsilon_{mn}^SE_{sat}th\left(\frac{E_m}{E_{sat}}\right) + 2\alpha_{klmn}\varepsilon_{mn}^SP_nS_{kl} \end{cases} \quad \text{IV-3}$$

où Y_{ijkl}^P est le module élastique sous polarisation constante, ε_{mn}^S est la constante diélectrique sous déformation constante, E est le champ électrique, E_{sat} est le champ de saturation, P_m est la polarisation, M_{ijkl} , Q_{klmn} sont les coefficients d'électrostrictions, τ_{ij} est la contrainte mécanique. Le paramètre α_{klmn} peut se mettre sous la forme $\alpha_{klmn} = Q_{ijkl}Y_{klmn}$.

Selon les directions des deux excitations (électrique et mécanique), l'équation IV-3 peut se réécrire sous la forme suivante :

$$\begin{cases} \tau_1 = Y_{11}S_1 + \alpha_{31}P_3^2 \\ P_3 = \varepsilon_{33}E_{sat}th\left(\frac{E_3}{E_{sat}}\right) + 2\alpha_{31}\varepsilon_{33}P_3S_1 \end{cases} \quad \text{IV-4}$$

En supposant que la déformation et le champ électrique sont uniformes sur l'échantillon, le courant induit par la vibration transversale est mesurée comme :

$$I = A \frac{\partial P}{\partial t} \quad \text{IV-5}$$

où A est la surface active du polymère. A partir des équations précédentes on peut facilement déduire l'équation suivante :

$$\frac{\partial P_3}{\partial t} = \varepsilon_{33} \left(1 - \left(th\left(\frac{E_3}{E_{sat}}\right) \right)^2 \right) \frac{\partial E_3}{\partial t} + 2\alpha_{31}\varepsilon_{33}P_3 \frac{\partial S_1}{\partial t} + 2\alpha_{31}\varepsilon_{33}S_1 \frac{\partial P_3}{\partial t} \quad \text{IV-6}$$

Puis

$$\frac{\partial P_3}{\partial t} = \frac{\varepsilon_{33} \left(1 - \left(th\left(\frac{E_3}{E_{sat}}\right) \right)^2 \right) \frac{\partial E_3}{\partial t} + 2\alpha_{31}\varepsilon_{33}P_3 \frac{\partial S_1}{\partial t}}{1 - 2\alpha_{31}\varepsilon_{33}S_1} \quad \text{IV-7}$$

Le courant produit par le polymère peut ainsi être lié à la déformation et au champ électrique par :

$$I = A \frac{\partial P_3}{\partial t} = A \left[\frac{\varepsilon_{33} \left(1 - \left(th \left(\frac{E_3}{E_{sat}} \right) \right)^2 \right) \frac{\partial E_3}{\partial t}}{1 - 2\alpha_{31} \varepsilon_{33} S_1} + \frac{2\alpha_{31} \varepsilon_{33}^2 E_{sat} th \left(\frac{E_3}{E_{sat}} \right) \frac{\partial S_1}{\partial t}}{(1 - 2\alpha_{31} \varepsilon_{33} S_1)^2} \right] \quad \text{IV-8}$$

Le champ électrique total appliqué est égal à la somme du champ statique E_{dc} et du champ électrique alternatif E_{ac} aux bornes de la résistance R ; $E_3 = E_{dc} + E_{ac}$.

L'expression du courant devient alors :

$$I = A \frac{\partial P_3}{\partial t} = A \left[\frac{\varepsilon_{33} \left(1 - \left(th \left(\frac{E_{dc} + E_{ac}}{E_{sat}} \right) \right)^2 \right) \frac{\partial (E_{dc} + E_{ac})}{\partial t}}{1 - 2\alpha_{31} \varepsilon_{33} S_1} + \frac{2\alpha_{31} \varepsilon_{33}^2 E_{sat} th \left(\frac{E_{dc} + E_{ac}}{E_{sat}} \right) \frac{\partial S_1}{\partial t}}{(1 - 2\alpha_{31} \varepsilon_{33} S_1)^2} \right] \quad \text{IV-9}$$

Le champ électrique alternatif E_{ac} produit par la résistance, peut être donné par la relation :

$$E_{ac} = \frac{V_{ac}}{e} = \frac{RI}{e} \quad \text{IV-10}$$

où e est l'épaisseur de l'échantillon, l'expression IV-9 devient sous la forme :

$$I = A \left[\frac{\varepsilon_{33} \left(1 - \left(th \left(\frac{E_{dc} + E_{ac}}{E_{sat}} \right) \right)^2 \right) \left(\frac{R}{e} \frac{\partial I}{\partial t} \right)}{1 - 2\alpha_{31} \varepsilon_{33} S_1} + \frac{2\alpha_{31} \varepsilon_{33}^2 E_{sat} th \left(\frac{E_{dc} + E_{ac}}{E_{sat}} \right) \frac{\partial S_1}{\partial t}}{(1 - 2\alpha_{31} \varepsilon_{33} S_1)^2} \right] \quad \text{IV-11}$$

Concernant la partie expérimentale, une déformation S_1 et un champ électrique E_3 sinusoïdaux ont été utilisés et peuvent être facilement représentés par les équations ci-dessous :

$$E_3 = E_{dc} + E_0 \sin(\omega t) \quad \text{IV-12}$$

$$S_1 = S_{dc} + S_0 \sin(\omega t + \varphi) \quad \text{IV-13}$$

Où $\omega = 2\pi f$ est la fréquence angulaire, S_0 désigne l'amplitude de la déformation dynamique et φ est le de déphasage entre l'excitation électrique et l'excitation mécanique.

Le courant de court-circuit peut être calculé à partir de l'expression (IV.5). Dans notre cas la composante dynamique du champ électrique est faible et on peut la négliger devant la composante statique ($E_{dc} \gg E_{ac}$). L'équation IV.11 peut donc se simplifier comme suit :

$$I = A \frac{\partial P_3}{\partial t} = A \left[\frac{2\alpha_{31} \varepsilon_{33}^2 E_{sat} th \left(\frac{E_{dc}}{E_{sat}} \right) \frac{\partial S_1}{\partial t}}{(1 - 2\alpha_{31} \varepsilon_{33} S_1)^2} \right] \quad \text{IV-14}$$

La relation IV-14 montre clairement que si on inverse la polarité dans la demi-période avec l'application d'un décalage de phase entre les deux excitations, on peut gagner plus d'énergie

électrique par rapport à un système classique qui se base sur l'application d'un champ statique E_{dc} .

L'impédance électrique d'un polymère qui vibre à une fréquence donnée peut être modélisée par un circuit électrique équivalent. La figure IV.2 montre la forme la plus couramment adoptée d'un schéma électrique [Cot2010], où C_p est la capacité du polymère et $R_p(\omega)$ est une résistance représentant les pertes diélectriques et de conduction (pertes statiques à fréquence nulle). La troisième branche est celle du mouvement, représentée par une source de courant I_{ac} qui modélise le courant récolté des vibrations. Cette source traduit le couplage mécano-électrique effectué par le polymère.

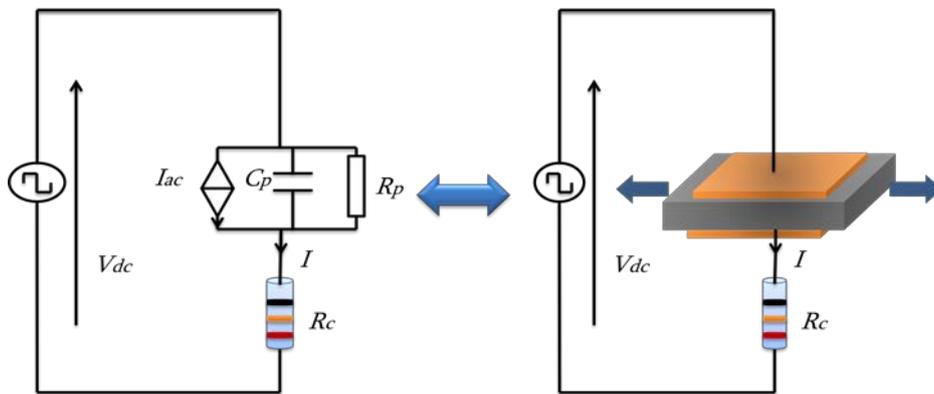


Figure IV.2 : Le schéma électrique équivalent d'un polymère électrostrictif en mode pseudo-piézoélectrique

Conformément à la configuration de la figure IV.2 qui décrit la connexion de l'échantillon, la densité d'énergie récupérée pendant une période de l'excitation sinusoïdale est donnée par [Kai2007]:

$$W = \int_0^T E_3 I dt \quad \text{IV-15}$$

Remplaçant la formule du courant dans l'équation IV.15, la densité d'énergie récupérée devient comme suit :

$$W = \int_0^T E_3 \left[\frac{\varepsilon_{33} \left(1 - \left(\text{th} \left(\frac{E_3}{E_{sat}} \right) \right)^2 \right) \left(\frac{\partial E_3}{\partial t} \right)}{1 - 2\alpha_{31} \varepsilon_{33} S_1} + \frac{2\alpha_{31} \varepsilon_{33}^2 E_{sat} \text{th} \left(\frac{E_3}{E_{sat}} \right) \frac{\partial S_1}{\partial t}}{(1 - 2\alpha_{31} \varepsilon_{33} S_1)^2} \right] dt \quad \text{IV16}$$

Prenons en considération les conditions expérimentales, la formule finale de la densité d'énergie s'exprime en fonction de déphasage par l'équation ci-dessous :

$$W \approx 2\pi\alpha_{31}\varepsilon_{33}^2 A E_{sat} \text{th} \left(\frac{E_{dc}}{E_{sat}} \right) E_{dc} S_0 \sin(\varphi) \quad \text{IV17}$$

D'après cette équation, on peut constater que la densité maximale d'énergie récupérée est obtenue pour un $\sin(\varphi) = 1$, c.-à-d. un déphasage de $\varphi = \frac{\pi}{2}$.

II.2 Protocole de mesure et matériels

II.2.1 Matériau polymère et préparation

L'échantillon utilisé dans ces essais est de type *PU 1 wt% C*, préparé par la méthode décrite dans le chapitre II. Il a été découpé sous la forme d'un rectangle d'une largeur de 16 mm et d'une longueur de 40 mm. L'épaisseur sélectionnée pour cette étude était 50 μm . Pour la caractérisation électromécanique, des électrodes en or (6 mm de diamètre et d'environ 20 nm d'épaisseur) ont été pulvérisés sur les deux surfaces, comme le montre la figure IV.3.

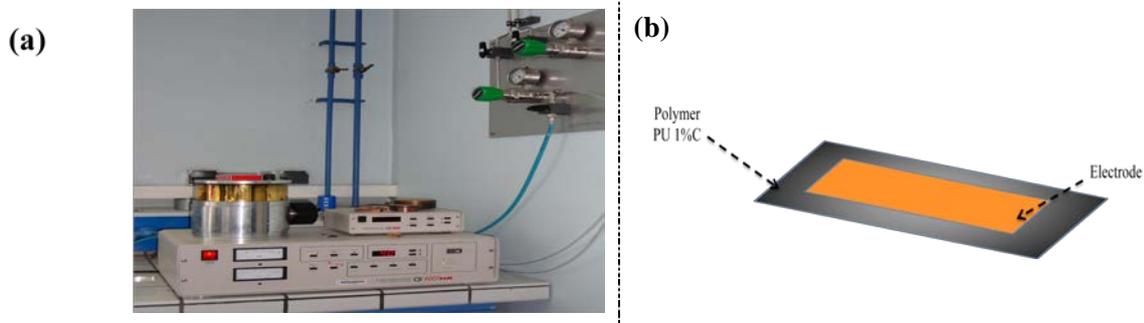


Figure IV.3 : (a) Photo de l'installation expérimentale pour la pulvérisation des films, (b) Dimension du film polymère

Avant d'utiliser le film polymère dans les essais de la récupération d'énergie, une caractérisation diélectrique et mécanique de celui a été effectuée à la température ambiante. Les paramètres du film obtenus lors de cette caractérisation sont récapitulés dans le tableau 1 :

Tableau IV.1: Paramètres du film polymère (PU 1 wt% C) à 15 Hz

ϵ_r	Y (MPa)	Q (M^4/C^2)	A (cm^2)	e (μm)
12	34	4×10^4	4×1.6	50

II.2.2 Principe de mesure de la puissance récupérée

Le dispositif expérimental pour caractériser la puissance récupérée est le même que celui utilisé dans le paragraphe IV.2 du chapitre III. Le film polymère est monté dans un support d'échantillon constitué de deux parties: l'une fixe et une seconde pouvant se déplacer dans le

sens 1-à l'aide d'un moteur linéaire XM550. En conséquence, le film est étiré avec un profil de déformation donné le long de la 1-direction. Le polymère électrostrictif a été soumis à un champ électrique statique E_{dc} inversé en demi-période, produit par un générateur de fonction et amplifié par un amplificateur de puissance à haute tension (Modèle 10/10, Trek Inc, Medina, NY).

L'échantillon a été connecté à une charge électrique R , et le courant généré a été surveillé par un amplificateur de courant (SR570, Stanford Research Systems Inc, Sunnyvale, CA). La puissance récupérée sur la charge a été ensuite extraite à partir de la relation $P = RI^2$, où I est le courant mesuré par l'amplificateur de courant. La figure IV.4 illustre l'emplacement de la charge purement résistive pour les mesures de la récupération d'énergie [Lal2010].

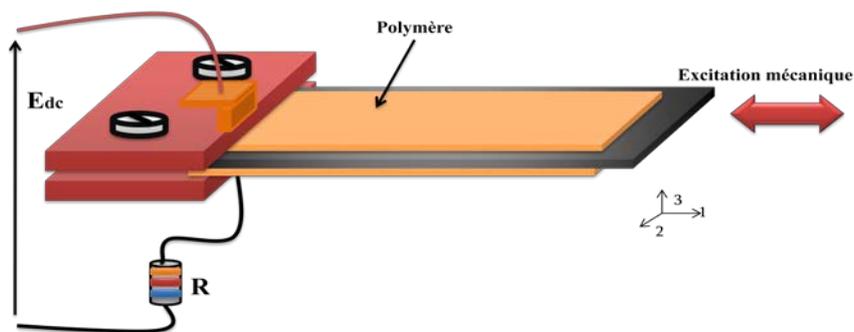


Figure IV.4 : Illustration de la connexion au circuit électrique.

Les mesures expérimentales ainsi la validité du modèle seront présentés et analysés dans le prochain paragraphe. Puis une comparaison entre la nouvelle technique et la méthode classique sera effectuée en vue de démontrer l'excellent potentiel de cette technique pour l'amélioration des performances de la conversion électromécanique des polymères électrostrictif pour la récupération d'énergie.

II.3 Résultats et discussions

Le film polymère est étiré avec une amplitude de déformation de 0.5% à 15 Hz et est soumis à une amplitude du champ électrique de $10V/\mu m$. Pour confirmer l'effet de déphasage sur la maximisation de la densité énergétique (équation IV 17), différents angles de déphasages sont considérés entre la composante alternative du champ électrique et celle du déplacement mécanique. La figure IV.5 illustre les résultats expérimentaux de l'amplitude du courant récupéré par rapport à l'angle de déphasage. On peut observer clairement que le courant

récupéré par le polymère atteint une valeur maximale pour un angle de déphasage entre les deux excitations de $\frac{\pi}{2}$.

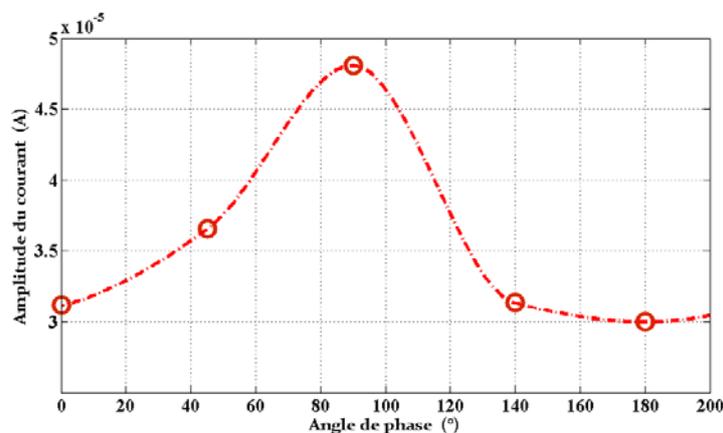


Figure IV.5 : Amplitude du courant récupéré en fonction de l'angle de déphasage entre la déformation et le champ électrique

La figure IV.6 donne la forme des signaux appliqués pour les deux excitations. Le signal proposé du champ électrique appliqué dans cet essai est délivré par un GBF programmable puis amplifié par un amplificateur de tension, il a la forme d'un signal créneaux avec une légère pente afin de protéger les matériels et d'éliminer le pic obtenu lors du passage d'un niveau à un autre plus bas. Le signal sinusoïdale de déformation mécanique avec une amplitude 0.5% est aussi représenté.

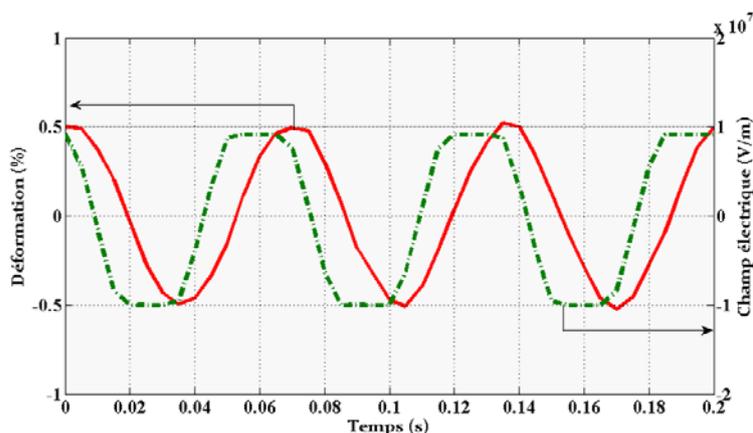


Figure IV.6 : Variation du champ électrique et de la déformation en fonction du temps

Comme prévu par le modèle, une dépendance quadratique entre la puissance récupérée et la forme du signal de champ électrique appliqué, avec les conditions décrites ci-dessus a été observée. La figure IV.7 représente les résultats obtenus en faisant varier la résistance, tout en

conservant les mêmes excitations électrique et mécanique ($E = 10V/\mu m$, $S = 0.5\%$, $f = 15Hz$).

Les résultats expérimentaux montrent une bonne corrélation avec ceux du modèle théorique pour l'évaluation de la puissance récupérée. Au-delà de la résistance optimale (transfert de puissance maximal), on remarque une petite divergence entre les résultats expérimentaux et théoriques. La raison possible de cette anomalie est due aux pertes électriques et mécaniques qui existent dans le polymère électrostrictif et qui n'ont pas été prises en compte dans la modélisation.

Ces données expérimentales montrent bien l'existence d'une résistance optimale de charge $R = 7M\Omega$ et la puissance récupérée atteint une valeur maximale de $2.7\mu W$.

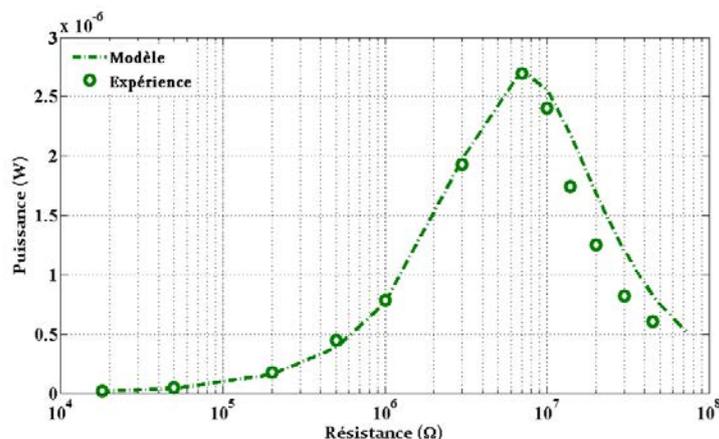


Figure IV.7 : Puissance en fonction de la résistance, pour une déformation de 0.5% à 15Hz et un champ électrique de $10V/\mu m$.

La figure IV.8 donne une comparaison de la puissance récupérée pour deux signaux du champ électrique appliqué, le signal proposé (signal trapézoïdale) et un signal bias, pour différentes charges pour une déformation et un champ électrique constant de 0.5% à 15Hz et $10V/\mu m$ respectivement. Cette technique nous permet d'améliorer la puissance récupérée par un facteur 7 par rapport à la technique classique, en passant d'une valeur de $11.56 \mu W/cm^3$ à $84.4 \mu W/cm^3$.

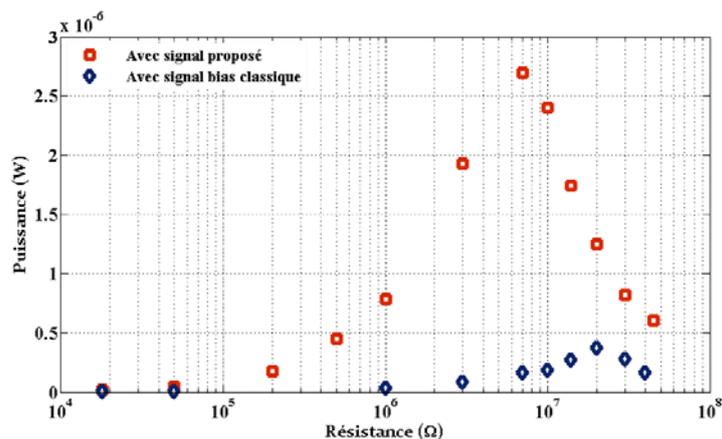


Figure IV.8 : Puissance en fonction de la résistance pour différents signaux de polarisation, d'amplitude $10V/\mu m$ à $15 Hz$ et une déformation de 0.5%

Les capacités de la conversion électromécanique des matériaux électro-actifs peuvent être obtenues à partir de la surface qui caractérise la relation entre le champ électrique et le courant récupéré pour une charge optimale. La figure IV.9 montre, la comparaison de l'énergie convertie dans les mêmes conditions pour les deux signaux de polarisation, continu et périodique. Selon les résultats obtenus, on voit clairement que le rapport de la conversion électromécanique est plus élevé avec l'application d'un signal de forme trapézoïdale.

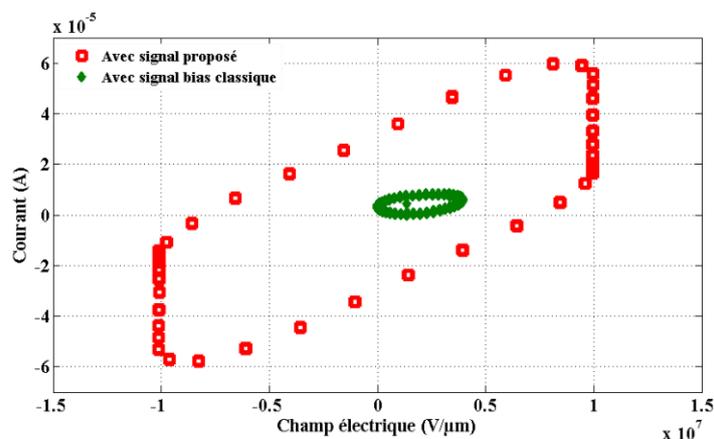


Figure IV.9 : Courant en fonction du champ électrique pour différents signaux de polarisation

II.4 Conclusion

Au court de cette partie, nous avons présenté une nouvelle technique pour la maximisation de la puissance récupérée des polymères électrostrictifs, basée sur l'application d'un signal de forme trapézoïdale en introduisant un déphasage entre l'excitation mécanique et électrique. La première étape a consisté à valider le modèle proposé par les résultats expérimentaux obtenus.

Dans une seconde étape, la technique de l'inversion de polarisation en demi-période a été réalisée. Une augmentation de la puissance récupérée d'un facteur 7 a été observée.

III. Un prototype d'adaptation pour maximiser la puissance récupérée

De manière générale, un micro générateur à base d'un polymère électrostrictif est constitué d'un dispositif mécanique capable de transmettre une sollicitation mécanique à un film électrostrictif. Celui-ci est relié à un circuit électrique constituant le récepteur d'énergie. La différence de potentiel entre les électrodes terminales du film dépend essentiellement de la sollicitation mécanique et du comportement de la charge électrique. Le transfert énergétique dépend étroitement du comportement mécanique du dispositif ainsi que du coefficient de couplage électromécanique. De nombreuses recherches ont été effectuées sur les polymères électrostrictifs pour prédire leurs capacités de récupération d'énergie en augmentant la permittivité ou en incorporant des nanoparticules conductrices [Put2011] [Cot2011a]. D'autres études, telles que celles effectuées par Ren et al. [Kai2007] et Cottinet et al. [Cot2011b], montrent l'effet de la fréquence de sollicitation sur le courant généré par le polymère dans le but d'augmenter la puissance récupérée.

Les polymères électrostrictifs sont généralement capables de supporter des déformations beaucoup plus grandes que celle des céramiques piézoélectriques. Ils ont des facteurs de forme flexible et peuvent répondre à une plus large gamme de fréquences. En outre, ces matériaux ont une très haute densité d'énergie théorique et une efficacité de couplage. Dans cette partie de ce chapitre, nous présenterons la conversion obtenue à l'aide d'un dispositif mécanique et les prototypes de générateurs que nous avons réalisés, afin de démontrer la faisabilité des changements dans la réponse du système pour une augmentation du courant et une récupération d'énergie par un doubleur de fréquence. Nous justifions les choix technologiques effectués à chaque étape de la conception.

III.1 Principe

III.1.1 Modélisation du courant de court-circuit récupéré

L'électrostriction est généralement définie comme un couplage quadratique entre la déformation et la polarisation. Ici, le polymère électrostrictif est soumis à un champ électrique de polarisation continue. Cela est nécessaire afin d'obtenir un comportement pseudo piézo-

électrique du polymère qui n'est pas naturellement piézoélectrique. Pour modéliser le courant, nous partons l'équation constitutive d'un matériau électrostrictif :

$$\begin{cases} S_1 = M_{31}E_3^2 + s_{11}^E\tau_1 \\ D_3 = \varepsilon_{33}^\tau E_3 + 2M_{31}E_3\tau_1 \end{cases} \quad \text{IV-18}$$

Le déplacement D_3 électrique circulant à travers le film de polymère peut être calculé à partir de l'équation. IV-18 et des expressions de S_1 et E_3 en remplaçant τ_1 , avec $\tau_1 = \frac{(S_1 - M_{31}E_3^2)}{s_{11}^E}$:

$$D_3 = \varepsilon_{33}^\tau E_3 + \frac{2M_{31}}{s_{11}^E} E_3 S_1 - 2 \frac{M_{31}^2 E_3^3}{s_{11}^E} \quad \text{IV-19}$$

Le courant induit par la vibration de la configuration est donnée par la relation suivante :

$$I = \int_A \frac{\partial D_3}{\partial t} dA \quad \text{IV-20}$$

Où A correspond à la surface du polymère. Le courant induit dans le polymère composite peut ainsi être liée à la déformation et le champ électrique par l'équation IV-21:

$$I = \int_A \left[\frac{\partial E_3}{\partial t} \left(\varepsilon_{33}^\tau + \frac{2M_{31}S_1 - 6M_{31}^2 E_3^2}{s_{11}^E} \right) + \frac{2M_{31}}{s_{11}^E} \frac{\partial S_1}{\partial t} E_3 \right] dA \quad \text{IV-21}$$

où $\frac{\partial E_3}{\partial t}$ et $\frac{\partial S_1}{\partial t}$ sont les dérivées temporelles du champ électrique et de la déformation.

Puisque un champ électrique continu (E_{dc}) a été appliqué sur l'échantillon de telle sorte que $\frac{\partial E_3}{\partial t} = 0$, l'expression du courant se simplifie comme suit :

$$I = 2M_{31}^* Y E_{dc} \int_A \frac{\partial S_1}{\partial t} dA \quad \text{IV-22}$$

avec $\frac{1}{s_{11}^E} = Y$, et Y est le module de Young du polymère.

Ici, M_{31}^* est le coefficient électrostrictif apparent utilisé pour décrire la fonction expérimentale de la réponse du courant du matériau par une déformation et champ électrique appliqué. En effet, lorsqu'un champ électrique est appliqué à toute matière, il détermine le déplacement de la charge qui conduit à des champs de déformations induits. En supposant une déformation constante (S_1), la relation entre le déplacement mesuré et la déformation dans le polymère peut être exprimée en fonction de l'équation suivante:

$$S_1 = \frac{\Delta l}{l_0} \quad \text{IV-23}$$

Deux configurations d'un système mécanique sont présentées dans la figure IV.10. La configuration (b), représente en fait la configuration classique dans laquelle l'excitation mécanique et l'étirement du polymère vibrent à la même fréquence f_m . Par conséquent, lorsque le polymère est excité électriquement, le courant récupéré est liée à f_m (équation IV-22). Pour la configuration proposée (a), la partie principale est une structure métallique sur laquelle le film polymère a été attaché. Par conséquent, l'excitation mécanique suite à un cycle a donnée lieu à deux cycles de déformation du polymère avec une fréquence de $2f_m$. L'avantage principal de cette configuration réside dans le fait et la simplicité d'augmenter les capacités de conversion des matériaux électrostrictifs.

Dans les systèmes de conversion électromécanique deux cas d'excitation mécanique vibratoire de la structure peuvent être considérés. Dans le premier cas, le système à couplage direct où les éléments actifs sont couplés à la structure vibrante. Ils convertissent alors directement les ondes mécaniques présentes dans la structure en énergie électrique. Ce type de générateur est particulièrement adapté aux structures se déformant en flexion. L'énergie récupérée dépend dans ce cas directement du champ de contrainte et de la déformation imposé par la structure sur l'élément actif (figure IV.10(b)). Par contre dans le deuxième cas, les éléments actifs sont couplés à un oscillateur mécanique. Ils convertissent alors sous forme d'énergie électrique les vibrations de cet oscillateur. Ces oscillations sont induites par couplage mécanique à la structure (figure IV.10(a)).

La puissance récupérée par les polymères peut être exprimées par la relation suivante:

$$P_{récup} \propto RI^2 \quad \text{IV-24}$$

D'après l'équation IV-22., on constate que le courant généré dans la configuration classique dépend de la fréquence f_m , alors que dans le cas de la configuration proposée, où la poutre est excitée par un seul cycle d'excitation mécanique, le courant généré est proportionnel à $2f_m$ suite aux deux étirements. Par conséquent, la puissance récupérée par la configuration classique ($P_{récup_1}$) peut être calculée comme suit :

$$P_{max} = \frac{(\alpha^2 E_{dc}^2 S_0^2)}{4C_P} f_m \quad \text{IV-25}$$

avec $\alpha = \frac{2M_{31}A}{s_{11}}$ Pour la deuxième configuration proposée, la puissance récupérée est déterminée par l'équation IV-26 :

$$P_{récup_2} \propto R 4M_{31}^*{}^2 Y^2 E_{dc}{}^2 \left[\int_A \frac{\partial S_1}{\partial t} dA \right]^2 \propto R \alpha^2 E_{dc}^2 S_0^2 (2f_m) \quad \text{IV-26}$$

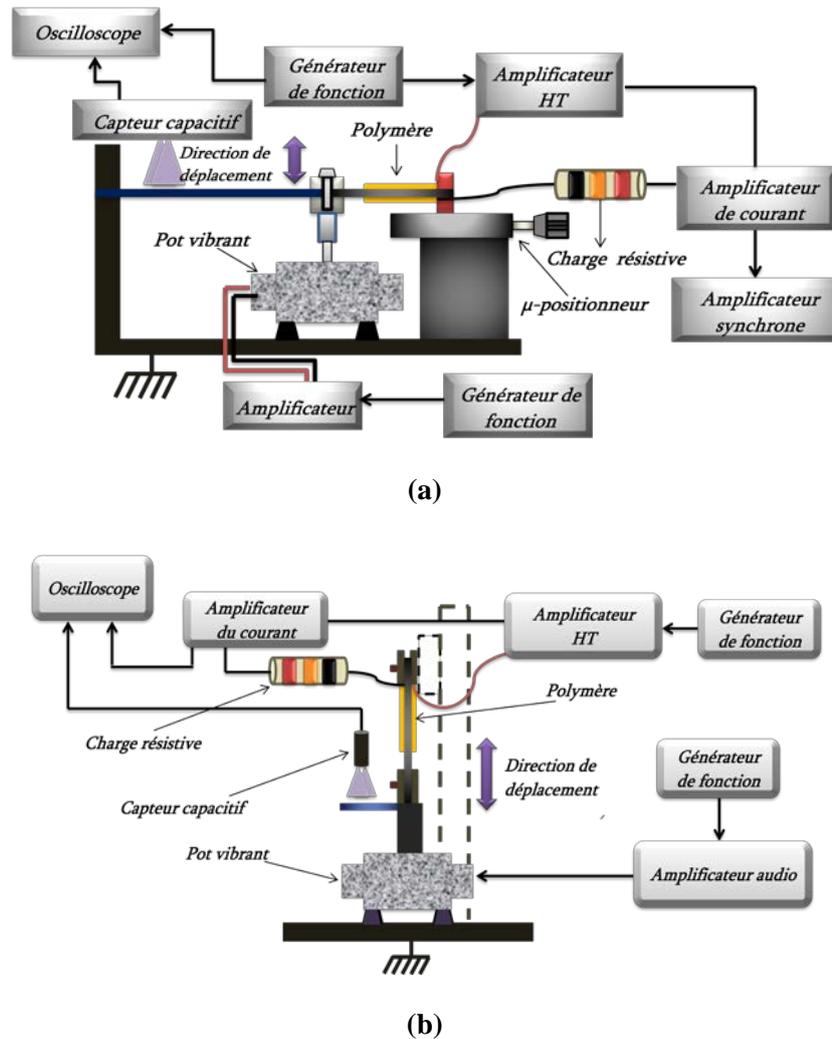


Figure IV.10 : Schéma du circuit prototype
 (a) l'approche proposée
 (b) l'approche classique

III.1.2 Modélisation de la puissance récupérée

Il est clair à partir des équations IV-25 et IV-26 que la puissance récupérée dans la configuration proposée a été doublée par rapport à celle de la configuration classique. Le mouvement du système mécanique est représenté à la figure IV.11 dans lequel le film de polymère a été fixé à une extrémité au métal et l'autre extrémité est attachée à la partie fixe du support de base. Avec l'application d'un mécanisme d'excitation par un vibromètre, l'échantillon de polymère a été étiré dans les deux directions.

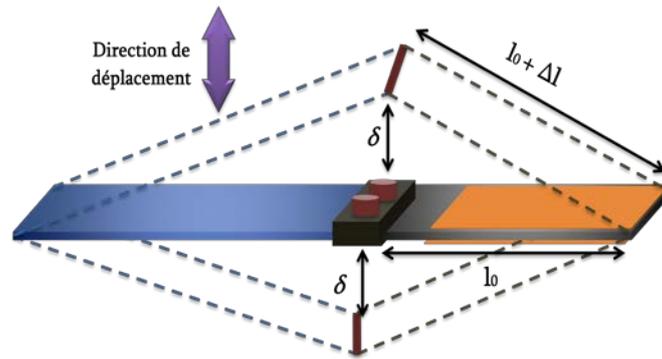


Figure IV.11 : Schéma de la configuration proposée du système mécanique.

Le schéma électrique équivalent est représenté sur la figure IV.12, dans lequel R est la charge électrique. La charge purement résistive directement reliée aux éléments électrostrictifs [Cot2011a] montre que, lorsque le mode de fonctionnement d'un polymère est pseudo-piézo-électrique, la composante alternative du champ induit par la charge résistive peut être négligée par rapport au champ électrique de polarisation à courant continu:

$$I = \alpha E_{dc} \frac{\partial S_1}{\partial t} - C_p \frac{\partial V}{\partial t} \quad \text{IV-27}$$

La tension dynamique sur l'élément électrostrictif peut être exprimée dans le domaine fréquentiel comme suit :

$$\tilde{V} = \frac{\alpha E_{dc} R}{1 + jRC_p 2\pi f} j2\pi f \tilde{S}_1 \quad \text{IV-28}$$

Où j est l'indice de la partie imaginaire, et f est la fréquence de vibration. La puissance récupérée peut être écrite en fonction de l'amplitude de déformation S_0 .

$$P_{récup} = \frac{\alpha^2 E_{dc}^2 R (2\pi f)^2 S_0^2}{1 + (RC_p 2\pi f)^2} \quad \text{IV-29}$$

A partir de cette équation (IV-29), il est clair qu'il existe une forte relation entre la puissance récoltée et la fréquence de fonctionnement. La puissance est optimale pour une charge donnée et se démontre en dérivant l'expression de la puissance par rapport à R :

$$\frac{\partial P_{écup}}{\partial R} = \frac{1 - (RC_p 2\pi f)^2}{(1 + (RC_p 2\pi f)^2)^2} \frac{\alpha^2 E_{dc}^2 (2\pi f)^2 S_0^2}{2} \quad \text{IV-30}$$

Par annulation de la dérivée de cette expression (IV-30) par rapport à R , nous avons, par conséquent, obtenu la charge optimale. La charge adaptée est alors égale à :

$$R_{opt} = \frac{1}{C_p (2\pi f)} \quad \text{IV-31}$$

Ainsi, pour la charge adaptée, la puissance maximale récupérée est égale à :

$$P_{\text{récupérée_max}} = \frac{(\alpha^2 E_{dc}^2 S_0^2)}{4C_p} f \quad \text{IV-32}$$

En posant $\varrho = \frac{(\alpha^2 E_{dc}^2 S_0^2)}{4C_p}$, l'expression précédente de la puissance peut s'exprimer comme :

$$P_{\text{récupérée_max}} = \varrho f \quad \text{IV-33}$$

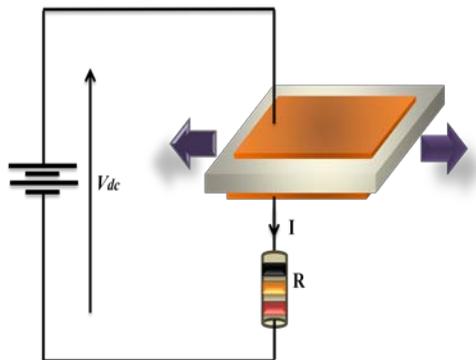


Figure IV.12 : Schéma électrique équivalent simplifié

D'après l'équation IV-32, nous pouvons démontrer facilement que la puissance maximale ne dépend pas seulement des propriétés intrinsèques des matériaux, mais aussi de l'état extérieur et des dimensions géométriques de notre polymère (surface, épaisseur, E_{dc} , S_0 et f). D'après la figure IV.13 qui illustre la variation de la permittivité diélectrique en fonction de la fréquence, on peut déduire que ce paramètre est presque constant dans une large plage de fréquence. En outre, dans les deux configurations mentionnées ci-dessus et avec des conditions extérieures constantes, nous pouvons conclure que la fréquence de fonctionnement f est le seul paramètre qui intervient dans la variation de la puissance récupérée.

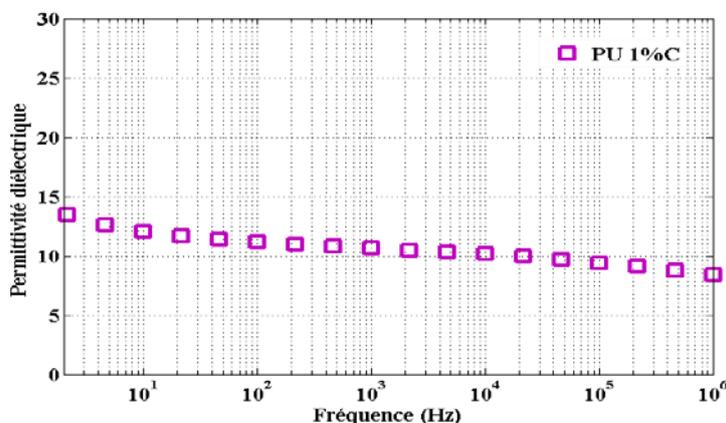
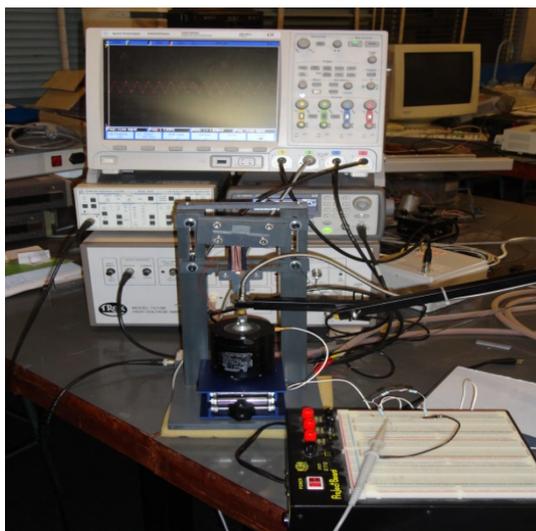


Figure IV.13 : La permittivité diélectrique en fonction de la fréquence pour un échantillon PU 1%C d'épaisseur 56µm

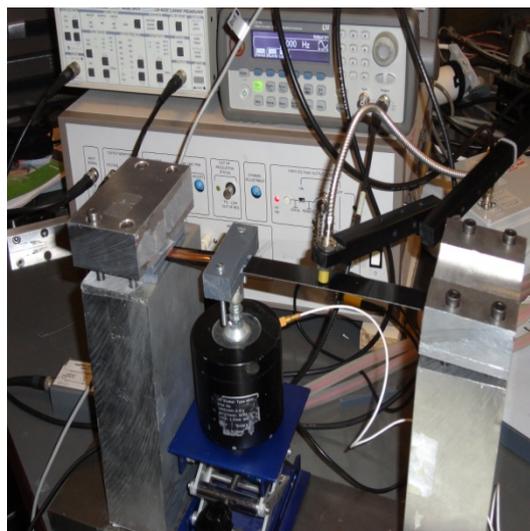
III.2 Description de setup expérimental

Le but cette partie consiste à présenter les bancs d'essais réalisés pour les deux configurations pour la mesure du courant récupéré et de la caractérisation de puissance récupérée. Pour la configuration classique, le dispositif, développé pour mesurer la puissance récupérée, est basé sur la structure par couplage direct réalisé pour la caractérisation du courant de court-circuit. L'ensemble est présenté en figure IV.14 (a). Une déformation longitudinale avec une amplitude de déformation maximale de 0,5% a été imposée au polymère, par l'intermédiaire d'un pot vibrant en forme sinusoïdale. Le déplacement de la partie mobile est mesuré à l'aide d'un capteur capacitif (MC FOGALE 940) afin de connaître la déformation subie par le polymère. Le champ électrique continu, nécessaire pour fonctionner en mode pseudo piézoélectrique, est obtenu à l'aide d'un amplificateur haute tension. Une résistance de charge est ajoutée en série avec le polymère, et le courant est mesuré afin de déterminer la puissance récupérée.

Dans la seconde configuration, représentée sur la figure IV.14 (b), le film polymère a été fixé à une extrémité sur le métal, son autre extrémité est fixée à la matière solide (fixe) de base. La poutre en porte a été excitée par l'agitateur, entraîné par un générateur de fonction 33120A et un amplificateur de puissance (Pro-Acoustique CT600). Le film subit le même déplacement que la poutre. Le polymère électrostrictif a été soumis à un champ électrique continu de polarisation, produit par un générateur de fonction et amplifié par l'intermédiaire d'un ampli haute tension (Treck mode 10/10B). Le polymère électrostrictif est excité électriquement et mécaniquement, en vue de son expansion et de contraction pour induire un courant mesuré par un amplificateur de courant (Keithley 617). Le déplacement de l'extrémité de la poutre liée au film polymère est mesuré à l'aide d'un capteur de déplacement capacitif. L'ensemble des données sont visualisées sur un oscilloscope (Agilent DS0 6054A Mega zoom).



(a)



(b)

Figure IV.14 : Dispositif expérimental(a) **Configuration classique [Lal2010]**(b) **Configuration proposée**

Pour les deux structures de récupération d'énergies étudiées, le film polymère a été excité électriquement par un champ statique de $10V/\mu m$ et mécaniquement par une amplitude de déformation maximum de 0.5% avec une fréquence de 3Hz.

Les paramètres de film polymère testé dans cette expérience sont disponibles sur le tableau IV.1.

Tableau IV.1: Caractéristiques du film polymère

Polymère	Permittivité relative ϵ_r	Module de Young Y (MPa)	Surface A (cm ²)	Épaisseur e (μm)
PU 1 wt % C	13	35	4 * 1.6	56

III.3 Résultats expérimentaux et discussions

Le but de cette partie est de présenter les principaux résultats obtenus lors de cette expérience où une comparaison entre les deux structures a été effectuée, afin de démontrer l'avantage de prototype proposé sur les performances des polymères électrostrictifs pour la récupération d'énergie. La variation du courant récupéré et le déplacement en fonction de temps pour les deux configurations sont données dans les figures IV.15 et IV.16. Comme on peut le voir dans l'analyse de ce courant récupéré, la courbe du courant dans la première configuration (figure IV.15) est en phase avec le déplacement (même fréquence). Par contre dans la seconde

configuration (figure IV.16), une augmentation du courant récupéré avec un doublement de la fréquence par rapport à celle du déplacement a été observée.

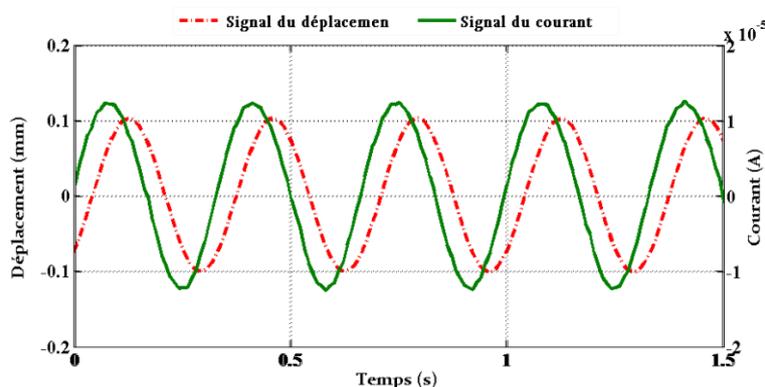


Figure IV.15 : Déplacement et Courant en fonction du temps pour la configuration classique

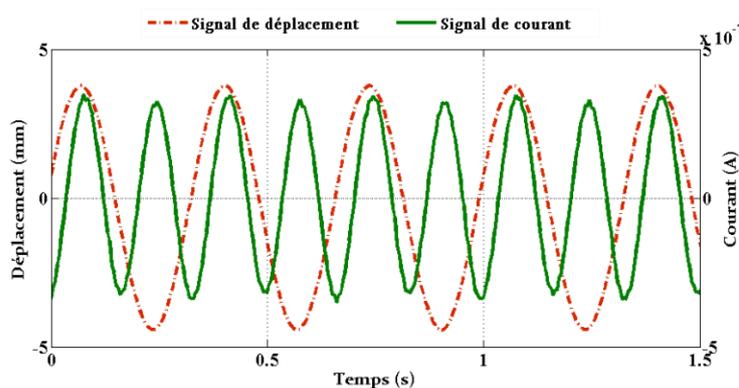


Figure IV.16 : Déplacement et Courant en fonction du temps pour la configuration proposée

Pour améliorer les performances des polymères électrostrictifs pour la récupération d'énergie, plusieurs paramètres peuvent intervenir. On peut citer par exemple, la géométrie du film polymère (surface, épaisseur,...), les conditions extérieures (champ électrique de polarisation, la déformation, la fréquence,...). Ce dernier paramètre est un facteur important dans la conversion électromécanique. Nous avons démontré dans l'équation IV-22 que le courant récupéré a une dépendance linéaire avec le champ électrique statique, la déformation et la fréquence mécanique. Les figures IV.17 et IV.18 donnent l'évolution du courant récupéré en fonction du champ statique pour une déformation de 0.5 % et de la déformation pour un champ statique de $10 \text{ V}/\mu\text{m}$. Les résultats obtenus pour la configuration proposée montrent clairement que le courant délivré par le film polymère est bien multiplié par un facteur deux par rapport au cas classique comme le laisse présager la théorie, puisque le produit des deux

paramètres $M_{31}^* Y \approx \varepsilon_r$ est maintenu constant dans l'intervalle de fonctionnement comme montre la figure IV.13. Cela laisse confirmer que le courant qu'il sera possible de récupérer sera d'autant plus grand que la fréquence de l'excitation mécanique augmente.

Afin de valider le modèle développé au paragraphe III.1.2, Il est intéressant d'étudier la variation de la puissance récupérée en fonction de la charge. De même, nous avons effectué une comparaison de la puissance récupérée pour les deux structures.

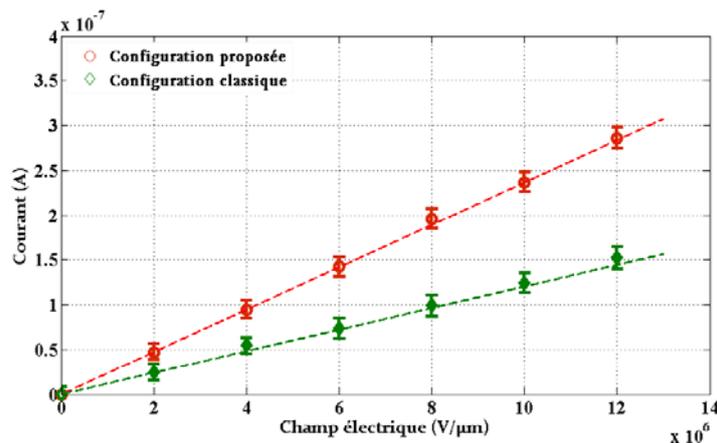


Figure IV.17 : Courant récupérée en fonction du champ électrique statique pour les deux configurations et pour une déformation constante 0.5%

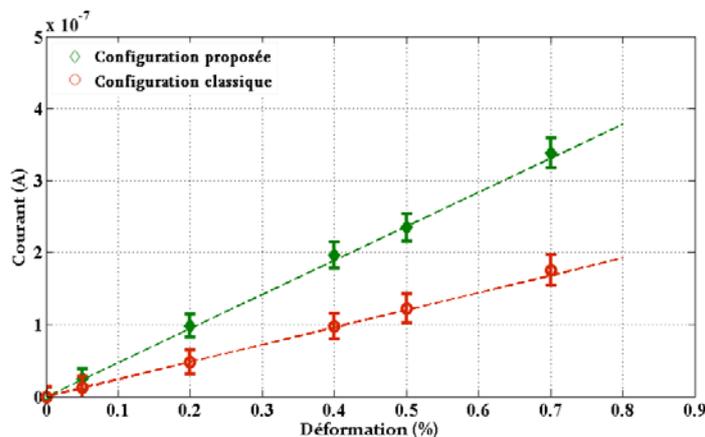


Figure IV.18 : Courant récupérée en fonction de la déformation pour les deux configurations et pour un champ électrique statique de 10 V/μm

Les Figures IV.19 et IV.20 représentent les résultats obtenus lors des mesures de la puissance récupérée en faisant varier la charge électrique et la fréquence mécanique, tout en conservant les mêmes excitations électrique et mécanique ($E_{dc} = 10 \text{ V}/\mu\text{m}$, $S_1 = 0.5\%$). Une comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux obtenus par le modèle théorique a été réalisée. Une bonne cohérence entre la théorie et la pratique pour les deux configurations, est

notée. Ces données montrent clairement que le transfert de puissance est maximal ($0.29 \mu W$) pour une résistance égale à $39 M\Omega$ dans le cas de la configuration classique.

En revanche, pour la configuration proposée, la puissance maximale récupérée atteint une valeur de $0.58 \mu W$ avec une résistance optimale de $20 M\Omega$. La diminution de la charge électrique par l'augmentation de la fréquence est prévue théoriquement par l'équation IV-31 pour les deux configurations.

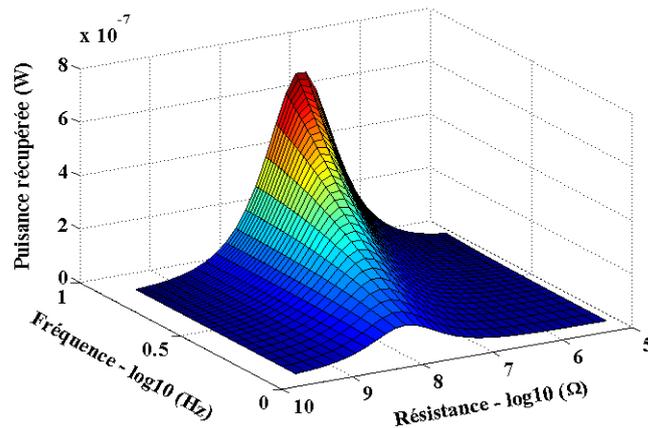


Figure IV.19 : Puissance récupérée en fonction de la fréquence et la résistance pour un champ électrique statique de $10 V/\mu m$ et une déformation constante 0.5%

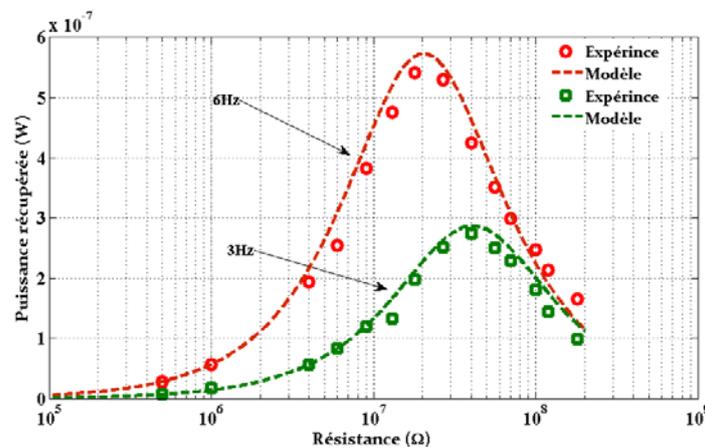


Figure IV.20 : Puissance récupérée en fonction de la résistance dans les deux configurations pour un champ électrique statique de $10 V/\mu m$ et une déformation constante 0.5%

Parmi les avantages de cette structure proposée, c'est qu'elle permet d'augmenter la puissance récupérée de 80 % par rapport à la structure classique, sans utilisation d'un circuit électronique. D'autre part, elle permet de diminuer la résistance optimale au fur et à mesure.

Ces essais semblent bien contribuer au développement d'une technologie de récupération innovatrice qui met à profit les vibrations basse fréquence de l'environnement pour les convertir en électricité à fréquence plus élevée.

III.4 Conclusion

Dans cette partie, nous avons proposé une nouvelle configuration dans le but d'améliorer les capacités de la conversion électromécanique des polymères électrostrictifs. Cette technique est basée sur un mécanisme qui permet d'augmenter le courant récupéré délivré par le film polymère à travers un doublement de la fréquence mécanique. Un bon accord entre le modèle et les données expérimentales a été trouvé. Selon les résultats expérimentaux obtenus, il a été constaté que la puissance de sortie maximale pourrait atteindre $0.56 \mu W$, soit 80% de plus que dans les techniques classiques. Cette valeur a démontré l'excellent potentiel de cette technique pour la récupération d'énergie.

La structure proposée dans cette partie représente donc un bon outil pour estimer les potentiels candidats de récupération d'énergie pour les technologies qui recueillent les vibrations de l'environnement et de les convertir en électricité pour alimenter une variété de capteurs. Les exemples incluent des applications avec vibrations à basse fréquence (textiles intelligents), en récupérant l'énergie du mouvement humain.

IV. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons proposé deux nouvelles techniques dans le but d'améliorer les performances de la conversion électromécaniques des polymères électrostrictifs pour la récupération d'énergie vibratoire. La première technique est basée sur l'étude de l'effet d'inverser la polarité en demi-période (période de déformation) avec l'application d'un déphasage entre l'excitation électrique et mécanique pour augmenter considérablement les capacités de polymères électrostrictifs dans chaque cas. Une bonne corrélation entre le modèle théorique présenté et les résultats expérimentaux obtenus a été trouvée. Cette technique a permis de multiplier par un facteur 7 la puissance de sortie maximale qui pourrait atteindre $2.7 \mu w$, pour une déformation transversale de 0,5% et un champ électrique statique de $10V/\mu m$ avec une fréquence de $15 Hz$.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous avons présenté une nouvelle configuration mécanique, afin d'augmenter les capacités de conversion des polymères électrostrictifs sans

utilisation d'un circuit électronique. Cette structure est basée sur un mécanisme mécanique qui permet d'améliorer le courant récupéré délivré par le film polymère à travers un doublement de la fréquence mécanique et ainsi la puissance récupérée. Une comparaison entre la configuration proposée et celle classique, a été effectuée, dans le but de démontrer l'efficacité de la première pour la récupération d'énergie vibratoire. Un bon accord entre le modèle théorique et le pratique a été trouvé, une puissance récupérée de l'ordre de $0.56 \mu W$ pour un champ électrique statique de $10 V/\mu m$ et une déformation de 0.5 % a été réalisée. De plus, une amélioration de 80 % par rapport à la technique classique a été observée. Ces résultats obtenus ont démontré clairement l'excellent potentiel de cette configuration dans le domaine de la conversion électromécanique à partir des polymères électrostrictifs pour la récupération d'énergie vibratoire.

Finalement, les polymères électrostrictifs sont donc des candidats prometteurs pour remplacer les matériaux piézoélectriques (PZT) pour l'augmentation du courant récupéré ainsi que la puissance récoltée. Les techniques développées dans ce chapitre pourraient être adoptées pour estimer les capacités de la récupération d'énergie à l'avenir.

Références

- [Bar2001] Y. Bar-Cohen, *Electroactive Polymer (EAP) Actuator as Artificial Muscles*. Washington, dc: SPIE Press, 2001.
- [Bur2009] P. Burke, C. Rtherglen, Towards a single-chip, implantable RFID system: is a single-cell radio possible, *Biomed Microdevices*, 2010, vol. 12, p. 589–596. DOI : 10.1007/s10544-008-9266-4.
- [Cot2010] Cottinet, P.-J., Guyomar, D., Guiffard, B., Putson, C., and Lebrun, L., Modeling and Experimentation on an Electrostrictive Polymer Composite for Energy Harvesting, *IEEE Transactions on ultrasonics, ferroelectrics, and frequency control*, Vol. 57, No. 4, pp., 0885-3010 (2010).
- [Cot2011a] P.-J. Cottinet, D. Guyomar, B. Guiffard, L. Lebrun and C. Putson, Electrostrictive polymer composite for energy harvesters, *J. Polym. Eng.* 31, 133 (2011).
- [Cot2011b] P.-J. Cottinet, D. Guyomar, M. Lallart, B. Guiffard, and L. Seveyrat, *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* 58, 1842 (2011).
- [Hon2006] E. Hong, S. Troler-McKinstry, R. Smith, S. V. Krishnaswamy, and C. B. Freidhoff, Vibration of micromachined circular piezoelectric diaphragms, *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control*, vol. 53, no. 4, pp. 697–706, 2006.
- [Ily2006] M. Ilyas, I. Mahgoub, *Smart dust; sensor network applications, architecture, and design*, CRC / Taylor & Francis, 2006.
- [Kai2007] K. Ren, Y. liu, H. Hofmann and Q.M. Zhang, An active energy harvesting scheme with an electroactive polymer, *Applied physics letters*, 610,132910 (2007).
- [Kim2005] S. Kim, W. W. Clark, and q. M. Wang, Piezoelectric energy harvesting with a clamped circular plate analysis, *J. Intell. Mater. Syst. Struct.*, vol. 16, no. 10, pp. 847–854, 2005.
- [Lal2010] M. Lallart, P.-J. Cottinet, L. Lebrun, B. Guiffard and D. Guyomar, Evaluation of energy harvesting performance of electrostrictive polymer and carbon-filled terpolymer composites, *J. Appl. Phys.*, vol. 108, art. no. 034901, aug. 2010.
- [Pel2001] R. Pelriner, R. Kornbluh, J. Eckerle, P. Jeuck, S. oh, Q. Pei, S. Stanford., dielectric elastomers: Generator mode fundamentals and application, In *Proc. SPIE*, vol. 4329, pp. 148–156, 2001.
- [Pes2003] D. Pescovitz, Six technologies that will change the world, *Business 2.0*, May 2003 Linking RFIDs and Sensors for Logistical Applications.
- [Pla2006] J. S. Plante, dielectric elastomer actuators for binary robotics mechatronics, Ph.d. thesis, Massachusetts Institute of Technology, cambridge, MA, 2006.
- [Put2011] C. Putson, L. Lebrun, D. Guyomar, N. Muensit, P.-J. Cottinet, L. Seveyrat and B. Guiffard, *J. Appl. Phys.* 109, 024104 (2011).
- [Ren2007] K. Ren, Y. Liu, H. F. Hofmann, and Q. M. Zhang, “an active energy Harvesting scheme with an electroactive polymer,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 91, no. 13, art. no. 132910, 2007.
- [Rou2004] S. Roundy and P. K. Wright, a piezoelectric vibration based generator For wireless electronics, *Smart Mater. Struct.*, vol. 13, no. 5, pp. 1131–1142, 2004.
- [Rou203] S. Roundy, P. K. Wright, and J. Rabaey, a study of low level vibrations as a power source for wireless sensor nodes, *Comput. Commun.*, vol. 26, no. 11, pp. 1131–1144, 2003.
- [Sci2009] *Science & Vie*, Edition de janvier 2009.

Chapitre V

Etude de l'efficacité des polymères électrostrictifs pour la récupération d'énergie

Dans le chapitre précédent, nous avons proposé des nouvelles techniques pour améliorer la puissance récupérée par les polymères électrostrictifs; celui-ci consiste à étudier l'efficacité de la conversion électromécanique pour la récupération d'énergie vibratoire en utilisant l'analyse spectrale FFT. Un modèle analytique sera développé et les résultats théorique seront confrontés aux ceux obtenus par la pratique. Puis une amélioration de l'efficacité de la conversion électromécanique basée sur une structure hybride sera réalisée. Le but de cette technique est de diminuer la polarisation injectée par l'utilisation des électrets de polypropylène cellulaire, afin d'obtenir un meilleur rendement énergétique des polymères électrostrictifs. On va commencer par une analyse du courant de court-circuit en comparant la structure proposée à celle classique (sans électrets), puis une étude de la puissance récupérée ainsi que l'efficacité de conversion sera effectuée.

I. Introduction

La diminution croissante de la consommation et de la taille des systèmes électroniques permet aujourd'hui d'ajouter toujours plus de fonctionnalités pour un même budget énergétique. En parallèle, de nombreux travaux ont permis d'améliorer les sources de récupération d'énergie et en particulier leur densité de puissance. La convergence de ces deux domaines nous a permis d'envisager la création d'un système autonome alimenté à partir de la récupération de l'énergie de l'environnement. Avec le développement de systèmes micro-électromécaniques (MEMS) au cours de la dernière décennie, la demande pour les appareils électroniques portables et de détecteurs sans fil est devenue de plus en plus importante.

Avec les grandes avancées dans le domaine des réseaux de capteurs sans fil, certaines applications nécessitent des nœuds de capteurs pour avoir une longue durée de vie. L'utilisation de piles conventionnelles n'est pas toujours avantageuse, car leur remplacement nécessite l'intervention humaine. Par conséquent, l'acquisition de la puissance électrique nécessaire pour faire fonctionner ces appareils est une préoccupation majeure et une source d'énergie alternative aux batteries conventionnelles doivent être prise en considération. L'énergie électrique nécessaire au fonctionnement de ces appareils peut être obtenue en piégeant les énergies lumineuses, thermiques ou mécaniques disponibles dans le milieu ambiant. Un tel processus permettrait de fournir de l'énergie illimitée pour la durée de vie du dispositif électronique. Ces sources peuvent être utilisées pour augmenter la durée de vie ainsi que la capacité de ces appareils [Ami1997] [Kan2004] [Men2001] [Rah2003].

Les dispositifs alimentés par des capteurs d'énergie peuvent, lorsqu'ils sont placés dans des endroits inaccessibles, être utilisés pour fournir des informations vitales sur les circonstances opérationnelles et structurelles [Lal2010]. Ainsi, les scientifiques ont été forcés de chercher de nouveaux moyens capables de récupérer l'énergie de l'environnement [Par2005] [Ren2007]. A titre d'exemple, les polymères électrostrictifs offrent des propriétés uniques pour la technologie de transducteur électromécanique par rapport aux techniques classiques telles que celles basées sur les piézoélectriques ou les systèmes électromagnétiques [Gui2003] [Liu1998]. Les piézoélectriques sont limités en termes de déformations qu'ils peuvent supporter, mais ils sont capables de fonctionner à des fréquences élevées. D'autre part, les polymères électrostrictifs sont généralement capables de maintenir des déformations beaucoup plus grandes et ont des facteurs de forme flexibles et sont plus appropriés pour des

applications de basse fréquence. En outre, ces matériaux sont caractérisés par de très hautes densités d'énergie et présentent de bonnes efficacités de couplage [Per2000].

Afin d'atteindre l'objectif susmentionné, de nombreuses études ont été réalisées sur des polymères électrostrictifs pour prédire et améliorer leurs capacités de récupération d'énergie en augmentant la permittivité par l'incorporation des nanoparticules conductrices [Leb2009] [Cott2011]. D'autres investigations, comme celles effectuées par Liu et al. [Liu2004] et Ren et al. [Ren2007], ont mis l'accent sur l'optimisation du processus de transfert d'énergie par l'utilisation d'interfaces appropriées. Guyomar et al [Guy2011a] ont proposé une méthode simple mais originale qui permet la mesure de la constante diélectrique, le module d'Young et le coefficient électrostrictif d'un film polymère. Cette méthode est basée sur l'analyse du courant circulant à travers l'échantillon par la transformation de Fourier rapide (FFT), lorsque celui-ci a été entraîné simultanément par un champ électrique et une excitation mécanique.

Ce chapitre s'articule autour de deux parties, la première se focalise sur une étude des analyses spectrales FFT de l'efficacité des polymères électrostrictifs pour la récupération d'énergie, afin d'augmenter leurs capacités de conversion électromécanique. La seconde partie concerne l'utilisation des électrets (Polypropylène) pour palier au problème lié au champ statique nécessaire à la polarisation du film polymère, afin d'améliorer l'efficacité de la conversion électromécanique des polymères électrostrictifs.

II. Etude de l'efficacité des polymères électrostrictifs par FFT

Dans cette partie, une évaluation de la récupération d'énergie par les analyses spectrales FFT sera effectuée dans le but d'augmenter les capacités de conversion de polymères électrostrictifs. L'effet des paramètres mécaniques (amplitude de déformation, fréquence mécanique) sur l'efficacité de conversion sera étudié. Le modèle analytique sera confronté à la pratique et une bonne corrélation entre les deux approches sera démontrée. Afin d'obtenir un bon rendement de conversion, une optimisation des paramètres mécaniques sera entreprise.

II.1 Modélisation et analyse des capacités

Comme nous avons vu dans les chapitres précédents, le phénomène d'électrostriction est défini comme un couplage quadratique entre la contrainte mécanique et le champ électrique. Supposons qu'il y a une relation linéaire entre la polarisation et le champ électrique, la déformation S_{ij} et la densité de flux électrique D_m sont exprimées en fonction des variables

indépendantes de l'intensité du champ électrique E_m , E_n et de la contrainte mécanique τ_{ij} par les relations constitutives d'électrostriction suivantes [Liu2005]:

$$\begin{cases} S_{ij} = M_{ijkl}E_kE_l + s_{ijkl}^E\tau_{kl} \\ D_i = \varepsilon_{ijkl}^T E_k + 2M_{ijkl}E_l\tau_{kl} \end{cases} \quad \text{V-1}$$

Le film électrostrictif isotrope se contracte le long de la direction d'épaisseur et se détend le long de la direction du film quand un champ électrique a été appliqué à travers l'épaisseur. En supposant que seule la contrainte non nulle soit appliquée le long de la longueur du film, les relations constitutives se simplifient comme suit:

$$\begin{cases} S_1 = M_{31}E_3^2 + s_{11}^E\tau_1 \\ D_3 = \varepsilon_{33}^T E_3 + 2M_{31}E_3\tau_1 \end{cases} \quad \text{V-2}$$

Le déplacement électrique D_3 traversant le film de polymère peut être calculé à partir de l'équation V-3 :

$$D_3 = \varepsilon_{33}^T E_3 + \frac{2M_{31}}{s_{11}^E} E_3 S_1 - 2 \frac{M_{31}^2 E_3^3}{s_{11}^E} \quad \text{V-3}$$

En passant au domaine fréquentiel, le déplacement électrique D_3 sur l'élément d'électrostriction peut être exprimé comme suit :

$$\tilde{D}_3 = \varepsilon_{33}^T \tilde{E}_3 + \frac{2M_{31}}{s_{11}^E} [\tilde{E}_3 * \tilde{S}_1] - 2 \frac{M_{31}^2 [\tilde{E}_3 * \tilde{E}_3 * \tilde{E}_3]}{s_{11}^E} \quad \text{V-4}$$

Ici, (*) correspond au produit de convolution. et (~) correspond au domaine fréquentiel.

D'autre part, les expressions de E_3 et S_1 dans le domaine fréquentiel sont données respectivement par les équations suivantes :

$$\tilde{E}_3 = E_{dc}\delta(\omega) + \frac{E_0}{2} [\delta(\omega + \omega_e) + \delta(\omega - \omega_e)] \quad \text{V-5}$$

et

$$\tilde{S}_1 = \frac{S_0}{2} [\delta(\omega + \omega_m) + \delta(\omega - \omega_m)] \quad \text{V-6}$$

où δ représente la fonction de Dirac delta.

Puisque le courant I généré par le film polymère peut être calculé à partir de la dérivation de la formule de déplacement électrique D_3 (équation V-4), l'expression du courant dans le domaine fréquentiel est donnée par l'équation V-7 [Guy2011a] :

$$I = A[B_1\delta(\omega + \omega_e) + B_2\delta(\omega + 2\omega_e) + B_3\delta(\omega + 3\omega_e) + \dots + B_4\delta(\omega + \omega_m) + B_5\delta\omega + \omega_m + \omega_e + \dots + B_6\delta\omega + \omega_m - \omega_e] \quad V-7$$

Les expressions des coefficients B_i sont représentées dans le tableau V.1 :

Tableau V.1 : Synthèse des valeurs de B_i calculées à partir de l'équation V.7

B_i	Amplitude
B_1	$E_0\omega_e[\varepsilon_{33}^\tau - \frac{3M_{31}^2}{S_{11}^E}(E_{dc}^2 + \frac{E_0^2}{4})]$
B_2	$\frac{3M_{31}^2}{S_{11}^E}E_{dc}E_0^2\omega_e$
B_3	$\frac{1}{4}\frac{M_{31}^2}{S_{11}^E}E_0^3\omega_e$
B_4	$\frac{2M_{31}}{S_{11}^E}E_{dc}S_0\omega_m$
B_5	$\frac{M_{31}}{S_{11}^E}E_0S_0(\omega_m + \omega_e)$
B_6	$\frac{M_{31}}{S_{11}^E}E_0S_0(\omega_m - \omega_e)$

La contribution des pertes électriques au courant ne peut pas être négligée pour le polymère étudié [Fuj2007], contrairement à la contribution de perte mécanique. Les pertes électriques ont été ajoutées à l'expression du courant I par $E_{dc}/(R_{dc}t)$ pour la composante DC , où R_{dc} est la résistance du film polymère et elle est mesurée à l'aide d'un électromètre Keithley 6517A. Avec les nouvelles expressions de B_i , il devient alors possible de calculer les différents paramètres du polymère électrostrictif.

$$M_{31} = \frac{1}{3} \left[\frac{B_2 - \frac{E_{dc}t}{R_{dc}}}{B_6 - \frac{E_{dc}t}{R_{dc}}} \right] \left(\frac{S_0(\omega_m - \omega_e)}{E_{dc}E_0\omega_e} \right) \quad V-8$$

$$S_{11}^E = \left[\frac{B_2 - \frac{E_{dc}t}{R_{dc}}}{(B_5 - \frac{E_{dc}t}{R_{dc}})^2} \right] \left(\frac{S_0^2(\omega_m + \omega_e)^2}{3E_{dc}\omega_e} \right) \quad V-9$$

$$\varepsilon_{33}^\tau = \left[\frac{(B_1 - \frac{E_{dc}t}{R_{dc}})}{E_0\omega_e} - \frac{3M_{31}^2}{S_{11}^E} \left(E_{dc}^2 + \frac{E_0^2}{4} \right) \right] \quad V-10$$

Ces coefficients sont déterminés en mesurant B_1 , B_2 , B_5 et B_6 qui sont respectivement l'amplitude des composantes du courant aux fréquences ω_m , ω_e , $2\omega_e$, $\omega_e + \omega_m$ et $\omega_m - \omega_e$. S_0 est l'amplitude de la déformation imposée et E_{dc} est la composante DC du champ électrique.

Pour le système de récupération d'énergie actif étudié dans le cadre de cette étude, il faut tenir compte de l'énergie électrique consommée par la polarisation du polymère. Aucune mesure directe de la quantité d'énergie électrique consommée n'a été effectuée. Sur la base des résultats de R_p et le schéma électrique équivalent de la configuration décrit dans le chapitre précédent, il est possible d'estimer l'efficacité de la conversion. La puissance $P_{réc}$ récupérée pourrait être calculée à partir du courant récupéré (Equation V-11):

$$P_{réc} = R_C I^2 \quad \text{V-11}$$

où R_C est la charge adaptée. Dans ce cas, R_C est égal à $\left(\frac{1}{\omega C_P}\right)$, où C_P représente la capacité du polymère composite et ω la pulsation de l'excitation mécanique. Cette capacité C_P pourrait être calculée en fonction des dimensions du film polymère (l : longueur, L : largeur, et e : épaisseur) et sa permittivité selon la formule suivante: $(\epsilon_0 \epsilon_r l L / e)$ [Put2011] [Guy2009]. La puissance nécessaire pour induire une polarisation est donnée par l'équation suivante:

$$P_{Polar} = R_C \left(\frac{V_{dc}}{R_p(\omega) + R_C} \right)^2 \quad \text{V-12}$$

avec $R_p(\omega) \gg R_C$, la puissance de polarisation devient comme suit:

$$P_{Polar} = R_C \left(\frac{V_{dc}}{R_p(\omega)} \right)^2 \quad \text{V-13}$$

La puissance demandée pour polariser le film polymère est proportionnelle à l'inverse de $R_p(\omega)$, donc il serait intéressant d'utiliser un composite avec une grande valeur de R_p pour diminuer la polarisation injectée et améliorer ainsi l'efficacité du film pour la récupération d'énergie vibratoire. Dans le prochain paragraphe, nous présentons et comparons les résultats expérimentaux et théoriques. Une bonne corrélation entre ces différents résultats a été mise en évidence.

II.2 Résultats expérimentaux et discussion

Cette partie sera articulée sur l'étude de l'effet des paramètres mécaniques (fréquence et amplitude de déformation) dans le but d'augmenter le courant généré par le film polymère

ainsi que la puissance récupérée. L'optimisation de ces paramètres sera effectuée, afin d'assurer un bon rendement des polymères électrostrictifs pour la récupération d'énergie. Les résultats expérimentaux seront présentés et comparés à ceux obtenus par la théorie, afin de vérifier la validité du modèle développé au paragraphe II.1.

II.2.1 Effet de la fréquence mécanique f_m

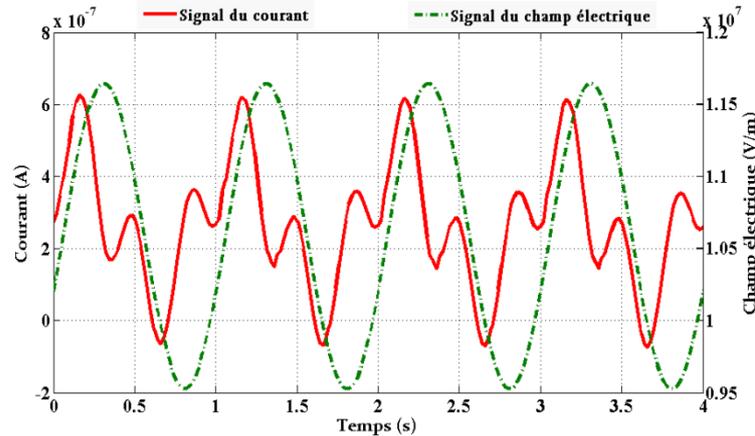
Le film polymère de type PU 0.5%C a été utilisé pour caractériser le courant et la puissance récupérée. Le film a été étiré avec une amplitude de déformation maximale de 5% avec une fréquence mécanique de 3Hz et 6 Hz. Un champ de polarisation DC de 10 V/ μm avec une faible composante alternative AC pour une fréquence 1 Hz, a été appliqué, afin d'assurer le fonctionnement en mode pseudo piézoélectrique du polymère électrostrictif. Les différents paramètres du film polymère sont disponibles au tableau V.2.

Tableau V.2 : Propriétés de PU composites à 1 Hz

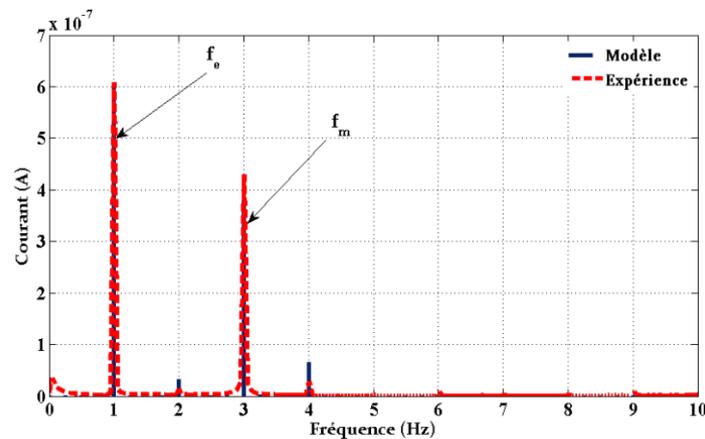
Polymère	Permittivité relative ϵ_r	Module de Young Y (MPa)	Epaisseur e (μm)
PU 0.5%C	34	8.5	56

La première partie de ces essais consiste à mesurer le courant de court-circuit. La figure V.1 (a) représente le courant électrique mesuré et le champ de polarisation appliqué en fonction du temps, et la figure V.1 (b) présente la FFT du courant récupéré pour $f_e = 1 \text{ Hz}$ et $f_m = 3 \text{ Hz}$. Selon les résultats de la figure V.1 (b), on constate que l'amplitude du courant de polarisation ($B_2 = 6.07 \cdot 10^{-7}$) est supérieure à celle obtenue par le courant généré par la conversion électromécanique ($B_1 = 4.297 \cdot 10^{-7}$). Ceci montre clairement que sous ces conditions, la puissance consommée par la polarisation est plus grande que celle récupérée, ce qui conduit à un rendement négatif du film polymère.

Les figures V.2 (a) et V.2 (b), représentent respectivement le courant électrique mesuré et le champ de polarisation en fonction du temps ainsi que la FFT des courants récupérés. Le film de polymère a été étiré avec une même amplitude de déformation de 5 % à $f_m = 6 \text{ Hz}$ pour les mêmes conditions électriques ($E_{dc} = 10 \text{ V}/\mu\text{m}$, $f_e = 1 \text{ Hz}$).



(a)

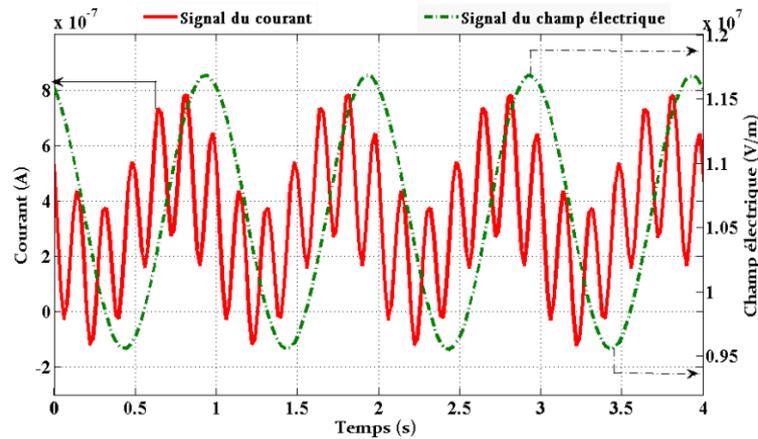


(b)

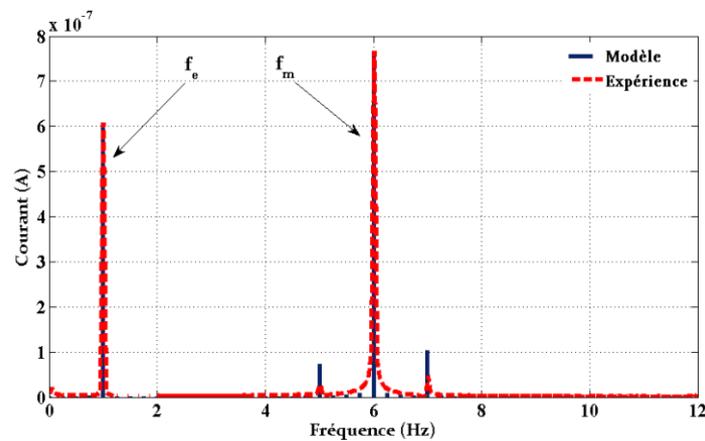
Figure V.1 : (a) Courant et champ électrique en fonction du temps; (b) FFT du courant de court-circuit à $f_m = 3 \text{ Hz}$.

Cependant, expérimentalement l'amplitude du coefficient B_2 est restée constante et devient beaucoup plus petite que celle de B_1 qui a atteint une valeur de $7.677 \cdot 10^{-7} \text{ A}$ comme indiqué la figure V.2 (b). Une bonne corrélation entre la pratique et l'expérience a été observée.

Il a été montré dans des travaux antérieurs que la permittivité était un coefficient crucial dans la conversion électromécanique [Eur1999] [Gal2007] [Guy2011b]. Il est très important de trouver un mode de fonctionnement qui correspond à une permittivité diélectrique élevée avec des pertes électriques faibles. Dans ce cas, on peut constater d'après le tableau V.1, pour une augmentation de la fréquence mécanique f_m et avec un rapport $\left(\frac{M_{31}}{s_{11}^E}\right)$ constant, que l'augmentation du coefficient B_1 est due à celle de la permittivité diélectrique.



(a)

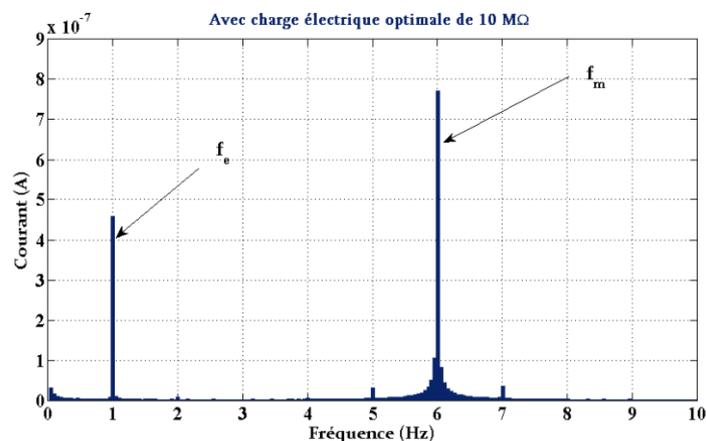


(b)

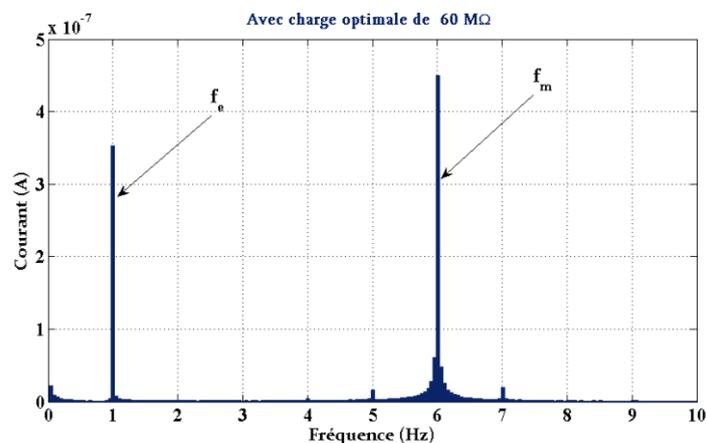
Figure V.2 : (a) Courant et champ électrique en fonction du temps; (b) FFT du courant de court-circuit à $f_m = 6 \text{ Hz}$.

Les mesures réalisées au cours de ce paragraphe ont permis de démontrer la validité du modèle du courant de court-circuit. Pour la prochaine étude, des essais en charge seront effectués dans le but d'identifier les paramètres de la conversion à optimiser pour la récupération de l'énergie. Pour cela la FFT du courant délivré par le polymère pour différentes valeurs de la charge électrique est représentée dans la figure V.3. On peut visualiser que l'amplitude des raies du courant mesuré décroît avec l'augmentation de la résistance électrique. Cependant, pour les résistances de $10 \text{ M}\Omega$ et $60 \text{ M}\Omega$ (figure V.3(a) et V.3(b)), l'amplitude correspondant à la fréquence f_m est supérieure à celle correspondant à la fréquence f_e , ce qui indique que la puissance mécanique délivrée par le polymère est plus élevée que celle de la polarisation injectée. Par contre, au dessus de $60 \text{ M}\Omega$, un effet inverse de l'amplitude est observée, c.-à-d. que l'amplitude correspondant à f_m est devenue inférieure

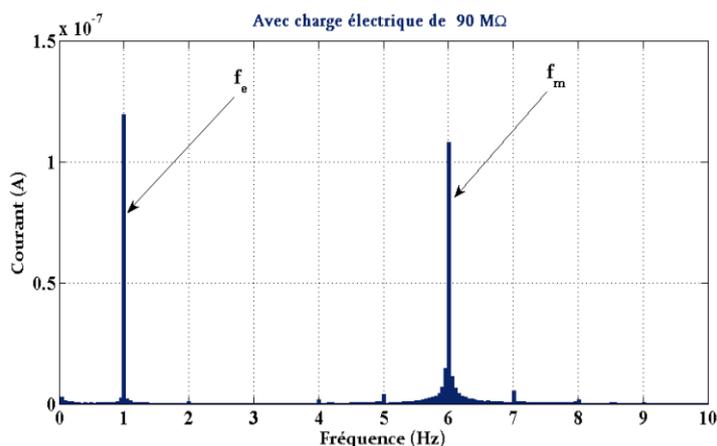
à celle correspondant à f_e . Ces résultats montrent clairement qu'il y avait une plage de fonctionnement optimale pour une meilleure récupération d'énergie.



(a)



(b)



(c)

Figure V.3 : FFT du courant mesuré pour différentes charges électriques

(a) $R_C = 10 \text{ M}\Omega$

(b) $R_C = 60 \text{ M}\Omega$

(c) $R_C = 90 \text{ M}\Omega$.

Le tableau V.3 donne les valeurs de l'amplitude des raies du courant mesuré obtenus lors de cette expérience.

Tableau V.3 : Evaluation de l'amplitude des raies du courant mesuré à différentes résistances pour $f_m = 6\text{ Hz}$ et $f_e = 1\text{ Hz}$

Résistance R_C ($M\Omega$)	f_m (6 Hz)	f_e (1 Hz)	$f_m - f_e$ (5 Hz)	$f_m + f_e$ (7 Hz)
10	$7.71 \cdot 10^{-7} \text{ A}$	$4.75 \cdot 10^{-7} \text{ A}$	$3.14 \cdot 10^{-8} \text{ A}$	$3.16 \cdot 10^{-8} \text{ A}$
60	$4.49 \cdot 10^{-7} \text{ A}$	$3.53 \cdot 10^{-7} \text{ A}$	$1.58 \cdot 10^{-8} \text{ A}$	$1.97 \cdot 10^{-8} \text{ A}$
90	$1.08 \cdot 10^{-7} \text{ A}$	$1.19 \cdot 10^{-7} \text{ A}$	$3.87 \cdot 10^{-9} \text{ A}$	$5.31 \cdot 10^{-9} \text{ A}$

L'étude de la puissance récupérée par rapport à la charge électrique et pour différents régimes de fonctionnement, sera présentée et plusieurs mesures ont été effectuées afin de valider la modélisation de la puissance.

La figure V.4 donne les résultats obtenus de la puissance en faisant varier la charge électrique pour deux valeurs de la fréquence mécanique (3 Hz, 6 Hz) une amplitude de la déformation de $S = 5\%$, tout en conservant la même excitation électrique ($E_{dc} = 10 \text{ V}/\mu\text{m}$, $E_0 = 2 \text{ V}/\mu\text{m}$ et $f_e = 1 \text{ Hz}$). Ces données ont montré qu'il existe un transfert optimal de la puissance récupérée pour une résistance électrique optimale de $R = 60 \text{ M}\Omega$ comme prévu à la figure V.3 (b). De plus une bonne cohérence, entre les données expérimentales et la théorie, est notée. La puissance récupérée à l'aide d'une excitation mécanique à 3 Hz est plus faible que celle obtenue à 6 Hz. En outre, le modèle et l'analyse FFT confirme que la récupération d'énergie est proportionnelle à la fréquence de l'excitation mécanique.

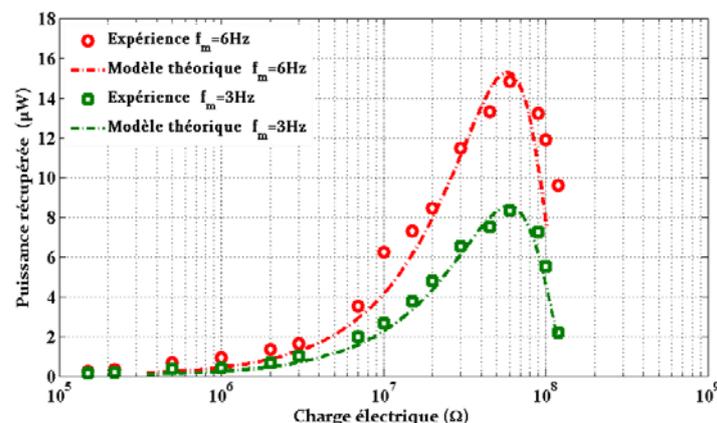


Figure V.4 : Puissance récupérée en fonction de la résistance pour un champ électrique de $10\text{ V}/\mu\text{m}$ à $f_e = 1 \text{ Hz}$ et une déformation de 5% à différentes valeurs de f_m

Selon les valeurs de la puissance récupérée obtenues par un système qui fonctionne avec $f_m = 3 \text{ Hz}$ ($8.498 \mu\text{W}$) et celui qui fonctionne à $f_m = 6 \text{ Hz}$ ($14.83 \mu\text{W}$), une différence importante a été observée et qui est due aux caractéristiques intrinsèques du matériau polymère. D'après le calcul des constantes B_1, B_2, B_5 et B_6 données par le tableau V.1, nous avons constaté que le rapport M_{31}/s_{11}^E est resté à peu près constant pour les deux fréquences de l'excitation mécanique ($\frac{M_{31}}{s_{11}^E} = 7.257 \cdot 10^{-8}$ pour $f_m = 3 \text{ Hz}$ et $\frac{M_{31}}{s_{11}^E} = 7.284 \cdot 10^{-8}$ pour $f_m = 6 \text{ Hz}$). L'augmentation de l'amplitude de B_1 du à l'accroissement de la fréquence mécanique conduit à un changement notable de la permittivité diélectrique qui peut être considérée comme un paramètre essentiel pour améliorer la puissance récupérée.

Le point le plus important qu'on peut extraire de cette étude expérimentale est l'obtention d'une image sur l'efficacité de la conversion électromécanique des polymères électrostrictifs par une comparaison entre la puissance récupérée et celle de polarisation. Cependant, avec des charges électriques supérieures à $60 \text{ M}\Omega$, la puissance consommée est devenue plus grande que celle récupérée et qui conduit à un rendement négatif. Ceci confirme qu'il y a un régime de fonctionnement optimal dans le but d'avoir un rendement positif, qui relie les trois paramètres S_0, f_m et f_e .

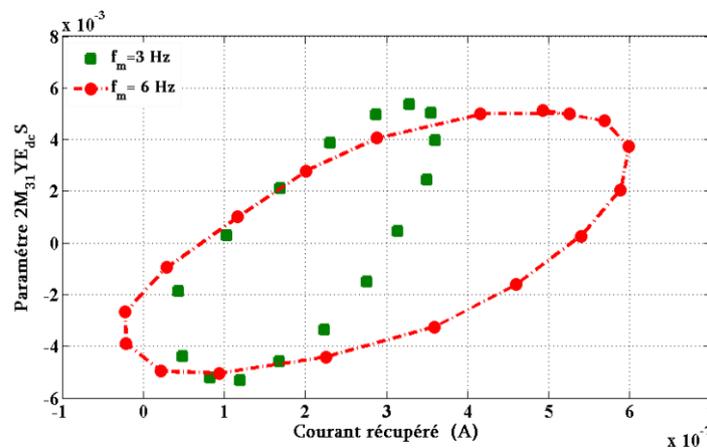


Figure V.5 : Comparaison des cycles de la conversion électromécanique pour deux fréquences mécaniques : $f_m = 3 \text{ Hz}$ et $f_m = 6 \text{ Hz}$

Dans des études antérieures, il a été prouvé que la densité énergétique totale dW_{conv} convertie par un polymère électrostrictif est donnée par la relation suivante $dW_{conv} \approx M_{31} Y E_{dc} E_0 dS$ [Guy2011b]. Par conséquent, les performances de la conversion électromécanique des polymères électrostrictifs peuvent être obtenues à partir de la surface Champ électrique/Déformation. Une comparaison de la densité d'énergie convertie entre les deux

régimes de fonctionnement ($f_m = 3 \text{ Hz}$ et $f_m = 6 \text{ Hz}$), est donnée par la figure V.5. Cette figure montre que les deux surfaces différentes considérablement dans ces conditions. Cependant, grâce à l'augmentation du couplage électromécanique des polymères électrostrictifs, la surface correspondant à $f_m = 6 \text{ Hz}$ a dépassé celle du cas $f_m = 3 \text{ Hz}$. Dans le cas de 6 Hz , nous avons obtenu une densité de puissance de $43,7 \text{ mW/cm}^3$, ce qui est comparable aux valeurs obtenues par la plupart des matériaux piézoélectrique. Par exemple, Kim et al. [Kim2008] ont réalisé un dispositif qui est capable de générer une puissance de $301,3 \text{ mW/cm}^3$ à 870 Hz . La densité de puissance obtenue à partir de ce travail a démontré l'excellent potentiel des polymères électrostrictifs pour la récupération d'énergie.

Dans le prochain paragraphe, une étude de courant par FFT ainsi que la puissance récupérée pour différentes amplitudes de déformations S_0 en fixant les autres paramètres (f_m , f_e , E_{dc} , E_0), sera effectuée afin d'évaluer précisément les capacités des polymères électrostrictifs pour la récupération d'énergie vibratoire.

II.2.2 Effet de l'amplitude de la déformation mécanique S_0

Le but de ce paragraphe est d'étudier l'effet de l'amplitude de déformation d'un film polymère entraîné simultanément par un champ électrique et par une excitation mécanique afin de déterminer la plage optimale de fonctionnement pour obtenir une bonne efficacité de conversion électromécanique des polymères électrostrictifs.

Les matières organiques, contrairement aux céramiques piézoélectriques, sont plus souples, par conséquent, l'énergie mécanique d'entrée est considérablement plus élevée sous une force mécanique identique. Malheureusement, les polymères piézo-électriques, tels que le PVDF, ont un coefficient de piézo-électrique beaucoup plus faible par rapport aux matériaux céramiques piézoélectriques. Une étude a montré que la récupération d'énergie est plus faible pour ces matériaux par rapport aux céramiques piézoélectriques [Liu2004]. Une étude récente a montré que le polyuréthane, qui est un polymère électrostrictif, est capable de générer des déformations de plus de 10%, sous un champ électrique modéré ($20 \text{ V}/\mu\text{m}$). Ce matériau peut par conséquent être considéré comme un candidat potentiel pour les actionneurs. En outre, la densité d'énergie mécanique est comparable à celle des monocristaux piézoélectriques [Zha2004].

La figure V.6 montre le résultat typique du comportement de chaque déformation S en fonction du temps avec différentes valeurs du champ électrique E . Chaque champ a

commencé à partir de zéro et le maximum passe de 2, 4 à 7, 10 et 15 $V/\mu m$ pour une fréquence de 1 Hz. On note que la déformation augmente avec le champ électrique. Une saturation de 10% est observée pour des champs élevés.

La figure V.7 montre la déformation maximale en fonction de la valeur maximale du champ électrique appliqué à 1Hz pour un échantillon PU à différents pourcentages de nanoparticules de carbones (1 et 0,5 wt.% C et pur). On peut remarquer que le PU 1wt %C a une déformation électromécanique plus élevée par rapport aux autres, c'est donc pour cette raison, que nous l'utilisons dans l'étude qui va suivre.

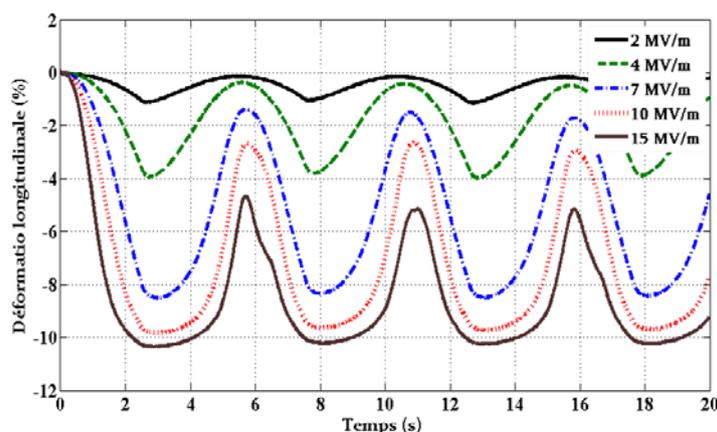


Figure V.6 : Déformation en fonction du temps pour un film de PU 1%C pour différents niveaux de champ électrique à 1Hz

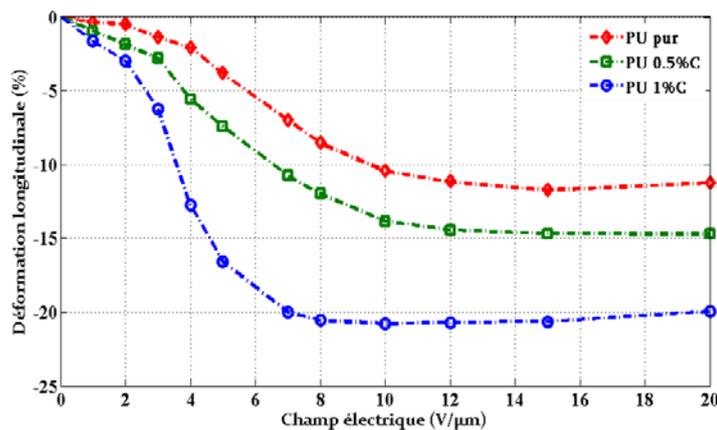


Figure V.7 : Déformation maximale par rapport à la valeur maximale du champ électrique appliqué

Les paramètres représentatifs de polyuréthane chargé avec des nanoparticules de carbone à 1Hz, sont présentés dans le tableau V.4.

Tableau V.4 : Paramètres du polymère électrostrictif à 1Hz

Polymère	ϵ_{33}	M_{31} $(V/m)^{-2}, 10^{-15}$	S_{11} $(Pa)^{-1}, 10^{-8}$	$\frac{\epsilon_0(\epsilon_r - 1)^2}{\epsilon_r S_{11}}, 10^{-18}$
PU 1 %C	$17\epsilon_0$	4.081	1.35	2.03

Le film polymère a été étiré avec différentes amplitudes de déformations (2%, 4% et 6,5%) à $f_m = 6 \text{ Hz}$ sous un champ électrique de polarisation continu de $13 \text{ V}/\mu\text{m}$ à $f_e = 1 \text{ Hz}$.

La mesure du courant en cas de court-circuit a été effectuée sous ces conditions et les résultats obtenus seront comparés aux résultats théoriques, afin de valider le modèle théorique à un niveau macroscopique. Des mesures préliminaires pour la détermination de la puissance théorique récupérée ont été effectuées pour évaluer la valeur de court-circuit.

La figure V.8 montre l'analyse harmonique de ce courant et affiche toutes les fréquences prédites (f_e , f_m , f_m+f_e et f_m-f_e). L'argument qui correspond à f_e est supérieur à celui qui correspond à f_m , ils ont comme valeur $0.35\mu\text{A}$ et $0.2\mu\text{A}$, respectivement. Ceci montre que le courant nécessaire pour induire une polarisation stable à l'aide du champ électrique est plus grand à celui produit par la conversion électromécanique et sous ces conditions la puissance consommée par la polarisation est plus importante que celle récupérée.

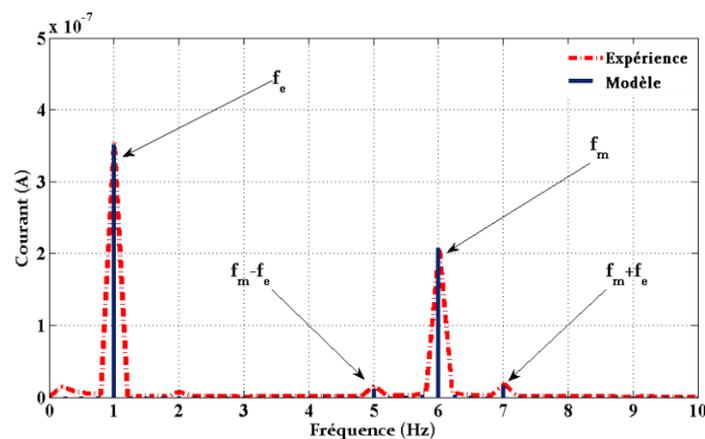


Figure V.8 : FFT du courant de court-circuit pour une déformation de $S_0 = 2 \%$.

L'évolution du courant récupéré par l'analyse spectrale pour une déformation de $S_0 = 4 \%$ est affichée dans la figure V.9. Dans ce cas, on voit clairement qu'il y'a une augmentation importante de l'argument qui correspond à f_m , par contre, une légère variation de l'argument associé à f_e a été observée. Ce résultat montre que le courant récolté est proportionnel à l'amplitude de déformation et que cette relation se traduit par un doublement du courant

récupéré en passant d'une valeur de 2% à 4%. Pour ce cas, la puissance électrique consommée par la polarisation peut être estimée égale à la puissance récupérée.

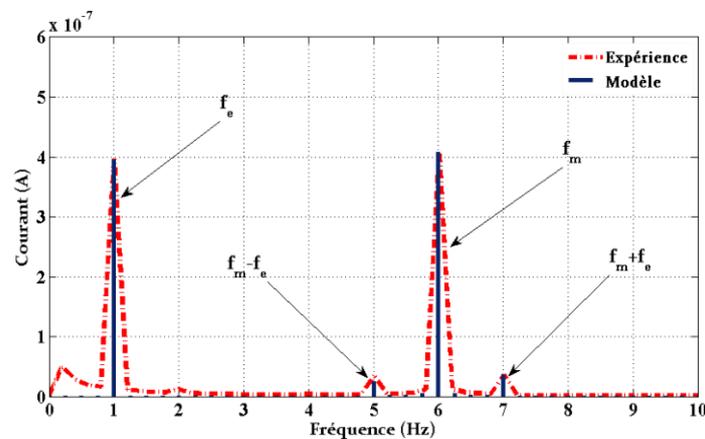


Figure V.9 : FFT du courant de court-circuit pour une déformation de $S_0 = 4\%$.

Le point le plus important dans cette étude expérimentale consistait à déterminer les conditions physiques avec lesquelles nous obtenons une efficacité de conversion électromécanique positive. Cependant, au-delà d'une charge optimale, la puissance de polarisation est devenue supérieure à celle récoltée. Cela montre qu'il y a un régime de fonctionnement optimal pour une meilleure performance, qui relie les trois paramètres, S_0 , f_m et f_e . La figure V.10, donne les résultats pratiques et théoriques du courant de court-circuit par la FFT pour une déformation de $S_0 = 6.5\%$. Un bon accord entre la théorie et la pratique est noté pour les trois cas de déformation. Une augmentation du courant correspond à l'argument mécanique ($6.89 \mu A$) est observée, et que la valeur de l'argument électrique reste presque inchangée ($4.09 \mu A$). Ces valeurs sont très intéressantes et significatives pour un meilleur rendement de la conversion électromécanique.

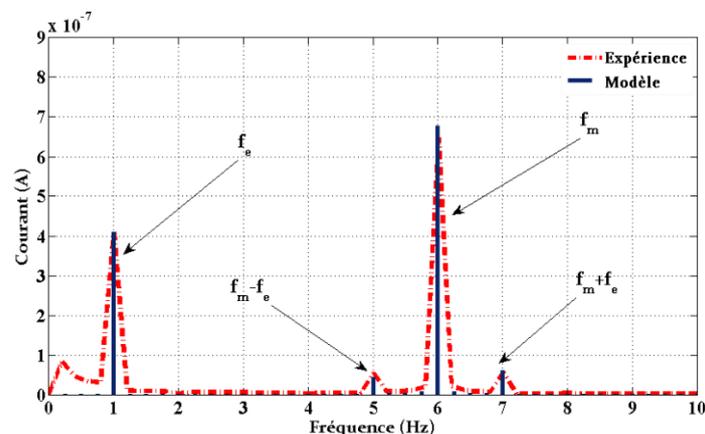


Figure V.10 : FFT du courant de court-circuit pour une déformation de $S_0 = 6.5\%$.

Afin de valider complètement le modèle développé, une évolution de la puissance récupérée en fonction de la charge électrique pour un champ électrique de $13 \text{ V}/\mu\text{m}$ et différentes valeurs de déformations (2%, 4% et 6.5%) est réalisée et présentée dans la figure V.11. Ces données expérimentales ont montré que le transfert de la puissance est optimale pour une résistance égale à $75 \text{ M}\Omega$ et qu'il existe une forte relation entre la puissance récupérée et l'amplitude de déformation en passant d'une valeur de $22.28 \mu\text{W}$ pour 2% à une autre de $33.94 \mu\text{W}$ pour 6.5%. Donc l'amplitude mécanique est un paramètre très important à optimiser pour améliorer la récupération d'énergie vibratoire à l'aide des polymères électrostrictifs

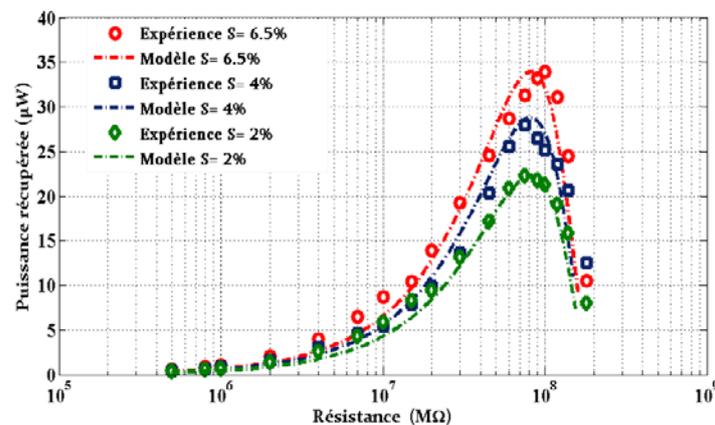


Figure V.11 : Puissance récupérée en fonction de la résistance pour différentes déformations à $f_m = 6 \text{ Hz}$ et pour un champ électrique de $13 \text{ V}/\mu\text{m}$ à $f_e = 1 \text{ Hz}$.

Le tableau V.5 donne les valeurs de la puissance nécessaire pour la polarisation donnée par l'équation V-13, et la puissance récupérée décrite par l'équation V-11. La dernière colonne du tableau montre les valeurs de l'efficacité de conversion d'énergie, afin d'avoir une image sur rendement énergétique des polymères électrostrictifs. Dans ces conditions, nous pouvons clairement déduire qu'au delà de la valeur d'une déformation de 4%, une bonne efficacité de conversion est obtenue.

Tableau V.5 : Étude de l'efficacité du polymère pour différentes valeurs de déformation

Déformation (%)	P_{Polar} (μW)	$P_{\text{réc}}$ (μW)	Efficacité de conversion (%)
$S = 2\%$	37.4	22.6	37.6
$S = 4\%$	28.3	28.5	50.1
$S = 6.5\%$	30.7	34.8	53.3

L'efficacité du générateur peut être estimée à partir du coefficient de couplage k_{31} donné par l'équation suivante:

$$k_{31} = \frac{d_{31}}{\sqrt{\varepsilon_0 \varepsilon_r s_{11}}} = \frac{2M_{31}E_{dc}}{\sqrt{\varepsilon_0 \varepsilon_r s_{11}}} \quad \text{V-14}$$

où $d_{31} = 2M_{31}E_{dc}$ est le coefficient piézoélectrique équivalent.

Le tableau V.6 résume les valeurs du coefficient électrostrictif M_{31} , la souplesse mécaniques s_{11} et le coefficient de couplage k_{31} pour un champ électrique constant de $13 \text{ V}/\mu\text{m}$ et pour différentes valeurs de déformation (2%, 4% et 6.5%). Par ailleurs, le coefficient de couplage montre que le rapport $\left(\frac{M_{31}}{s_{11}}\right)$ est un facteur important dans la conversion électromécanique.

Tableau V.6 : Évolution des paramètres du film en fonction de la déformation à $f_m = 6 \text{ Hz}$ pour un champ électrique de $13 \text{ V}/\mu\text{m}$ à $f_e = 1 \text{ Hz}$.

Déformation (%)	M_{31} $(\text{V}/\text{m})^{-2}, 10^{-18}$	s_{11} $(\text{Pa})^{-1}, 10^{-8}$	k_{31}
S = 2%	1.508	1.41	0.0209
S = 4%	3.001	1.764	0.0411
S = 6.5%	4.882	2.378	0.0576

Dans notre cas, si l'on augmente la déformation de 2% à 6,5%, ce rapport croit de $1,0695 \text{ N}/\text{V}^2$ à $2,053 \text{ N}/\text{V}^2$. Donc, l'augmentation de ce rapport entraîne à un accroissement du coefficient de couplage électromécanique et qui tend vers une amélioration des performances de la conversion pour une meilleure récupération d'énergie. Il serait donc possible d'améliorer la récupération d'énergie en augmentant l'amplitude de déformation, ce qui ne peut se produire que jusqu'à une certaine limite, car la déformation dépend de la capacité du film en domaine d'élasticité.

Selon cette étude, on peut déduire que l'amélioration de l'efficacité des polymères électrostrictifs est réduite par la valeur élevée de la polarisation injectée à l'aide du champ électrique appliqué. Pour palier à ce problème, une nouvelle structure hybride basée sur l'effet des électrets de polypropylène sera présentée dans cette dernière partie de ce chapitre et qui permet d'augmenter aussi l'efficacité de la conversion électromécanique des polymères électrostrictifs.

III. Amélioration de l'efficacité des polymères électrostrictifs par l'utilisation des électrets

Dans cette section, nous nous intéressons au système hybride qui relie les polymères électrostrictifs avec les électrets à base de polypropylène chargé par effet corona, afin de réduire l'énergie de polarisation injectée au film et d'augmenter par conséquent l'efficacité des polymères pour la récupération d'énergie. Dans un premier temps, une généralité sur les électrets sera présentée, puis une description de la procédure expérimentale ainsi que l'effet corona seront détaillées. Pour finir cette partie, les résultats expérimentaux effectués seront discutés. Afin de démontrer le potentiel de cette structure, une comparaison du courant de court circuit avec et sans électrets sera réalisée.

III.1 Généralités sur les électrets

III.1.1 Définition et historique

Un électret est un matériau diélectrique qui présente la propriété d'être dans un état de polarisation électrique quasi-permanent. Le terme d'«électret» a été choisi par Heaviside en 1892 à cause de la ressemblance de ces matériaux avec les aimants (magnets): l'électret peut en effet être considéré comme l'analogie de l'aimant mais dans le domaine électrostatique.

Bien que le terme d'électret soit apparu dès 1892, le premier électret ne fut fabriqué qu'en 1919 par Wentachi. En 1925, Eguchi développe une méthode permettant de fabriquer des électrets [Egu1925] à partir d'un mélange de 45% de cire de carnauba, 45% de résine de colophane et 10% de cire d'abeille. Le tout fut porté à la température de fusion (130°C) avant d'être refroidi en présence d'un fort champ électrique. Lorsque le mélange est liquide, les molécules sont libres de se déplacer et donc de s'orienter selon la direction du champ électrique. Le champ est retiré lorsque le mélange a refroidi et les molécules polaires gardent leur orientation permettant d'obtenir une polarisation rémanente de l'ordre de 0.01 à 0.1 mC/m^2 et ceci pendant plusieurs années.

Dès 1928, les électrets vont être utilisés dans les microphones. En 1937, Nadjakov remplace la source de chaleur par une source lumineuse et donne le nom de photoélectrets (par opposition aux thermoélectrets) aux nouveaux électrets obtenus. En 1962, et à la suite du développement des polymères, Sessler et West proposent de fabriquer des électrets à partir de polymères (Téflons, Polypropylène (PP),...). Aujourd'hui, la recherche sur les électrets est

encore très active et de nombreux matériaux ont été testés comme électrets et les résultats se sont révélés encourageants.

III.1.2 Les différents types d'électrets

Il existe trois catégories d'électrets dont les caractéristiques dépendent de la technique d'implantation des charges [Mic1987]:

III.1.2.1 Electrets dipolaires neutres

Les électrets sont électriquement neutres. Ils sont obtenus par application d'un champ électrique intense lorsque le matériau est à la température de fusion, de façon à orienter les dipôles.

III.1.2.2 Electrets neutres à charges d'espace

On peut distinguer deux types de charges d'espace:

Les homo-charges : elles proviennent de l'implantation ou de l'injection directe de charges dans le matériau à partir des électrodes lors de l'application d'un champ électrique, et ceux qui sont accumulées aux bords du matériau, ayant le même signe que les charges des électrodes.

Les hétéro-charges ou charges séparées qui résultent d'un phénomène interne de répulsion et de migration des charges vers les électrodes du diélectrique. Elles sont présentes dans le matériau mais avec une répartition aléatoire conduisant à une charge d'espace nulle. En apportant de l'énergie, par exemple thermique, les charges deviennent libres. En appliquant un champ électrique, elles se déplacent et viennent former des dipôles. Les charges accumulées sont de signes opposés aux charges des électrodes

III.1.2.3 Electrets à excès de charge

La dernière possibilité pour polariser le matériau est de créer un excès de charge soit par décharge Corona, soit par implantation électronique ou ionique, d'autres techniques moins standards comme le contact humide [Ike 1981] existent également :

- Décharge corona

Cette méthode est la plus utilisée actuellement dans l'industrie du fait de sa simplicité de mise en œuvre. Elle sera utilisée dans notre étude et détaillée dans le prochain paragraphe.

- Implantation électronique

L'utilisation d'un canon accélérateur (à ions ou à électrons) pour accélérer des particules chargées (ions ou électrons) vers la surface d'un échantillon de diélectrique permet également de fabriquer des électrets. Les électrons viennent se placer à une profondeur donnée de la surface en fonction de leur énergie cinétique.

III.2 Procédure expérimentale

III.2.1 Setup de préparation de la structure

La procédure de préparation de la structure hybride à base de polyuréthane chargé et des électrets de polypropylène est schématiquement illustrée dans la figure V.12. La première étape consiste à métalliser le film polymère (PU 1%C) qui est sous forme d'un rectangle de surface ($55 \times 22 \text{ mm}^2$) par la méthode de pulvérisation décrite dans les chapitres précédents, et la surface métallisée est de ($40 \times 16 \text{ mm}^2$). L'échantillon de polypropylène cellulaire, notée PQ50, dont l'épaisseur et la densité était de $50 \mu\text{m}$ et 600 kg/m^3 , respectivement, a été fournis par la société Sodinor (France). Puis dans la deuxième étape, les deux films ont été collés par une colle conductrice afin d'obtenir un bon raccordement électrique. La dernière étape de préparation consiste à mettre la structure obtenue (PU 1%C + PP) sous pression à température ambiante pendant 24 h.

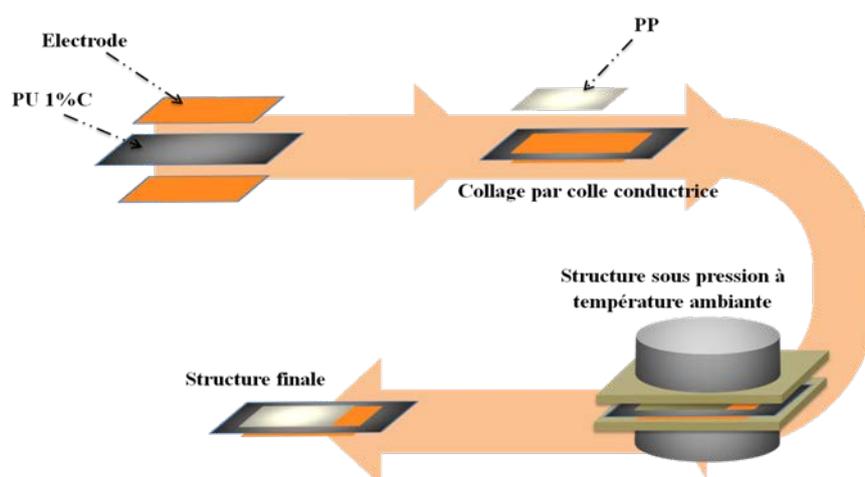


Figure V.12 : Processus de fabrication de la nouvelle structure (PU 1%C+PP)

Le tableau V.7 récapitule les résultats de mesure des paramètres intrinsèques des deux films pour une fréquence de 1Hz. La permittivité diélectrique a été mesurée à travers un Solartron 1255 et le module de Young des films a été évalué à l'aide d'une table de Newport.

Tableau V.7 : Propriétés des polymères utilisés (PU 1%C ; PP)

Matériaux	Permittivité	Module de Young	Epaisseur	Surface
	ϵ_r	Y (MPa)	e (μm)	A (cm^2)
Polyuréthane 1%C	15	40	52	6.4
Polypropylene (PP)	2.1	10 ³	50	4.8

L'étape de polarisation de la structure obtenue est effectuée par la méthode de décharge par effet corona qui sera décrite dans le prochain paragraphe.

III.2.2 Description de la méthode de décharge par effet Corona

L'effet corona, appelé aussi effet Couronne, désigne l'ensemble des phénomènes liés à l'apparition d'une conductivité d'un gaz dans l'environnement d'un conducteur porté à haute tension. Cette conductivité est due au phénomène d'ionisation de l'air elle-même due aux charges électriques de l'air (paires ions positifs - électrons libres, créés par rayonnement cosmique ou par radioactivité naturelle). Lorsque ces électrons sont soumis à un champ électrique, ils sont accélérés. Si le champ est assez intense, l'énergie qu'ils acquièrent devient suffisante pour provoquer l'ionisation des molécules neutres qu'ils heurtent (ionisation par choc). L'électron avec une masse, beaucoup plus faible que celle de l'ion, est fortement accéléré, et entre en collision avec des atomes neutres. Ce qui tend à créer de nouvelles paires électrons/ions positifs, qui suivront le même processus. On parle d'effet d'avalanche. Il se crée de nouveaux électrons libres, lesquels, soumis au même champ, vont également ioniser des molécules et ainsi de suite. Le processus prend une allure d'avalanche. Pour qu'une telle avalanche puisse se maintenir, il faut qu'elle atteigne une taille critique, et que le champ électrique ait une valeur suffisante. Dans les conditions normales de l'air cette valeur est voisine de 30 kV/cm et le phénomène évolue jusqu'au claquage de l'intervalle entre les électrodes. Selon la polarité de l'électrode, l'effet corona est dit positif si la polarité est positive, et est dit négatif si cette polarité est négative [Bel2009].

La figure V.13 présente la schématisation de l'effet corona avec laquelle la structure est polarisée. Avec une triode corona, les charges électriques sont injectées pendant une durée de

10 min à travers la surface non métallisée de la structure qui a été mise sous une grille inoxydable (la taille du tamis à mailles est de $150\ \mu\text{m}$) afin de maintenir un potentiel de surface uniforme. Dans le but d'enquêter sur les performances de stockage de charge et son influence sur les caractéristiques électrostrictifs de la structure, la tension corona a été maintenue à $-30\ \text{kV}$ et une tension de grille de $-4\ \text{kV}$ a été employée.

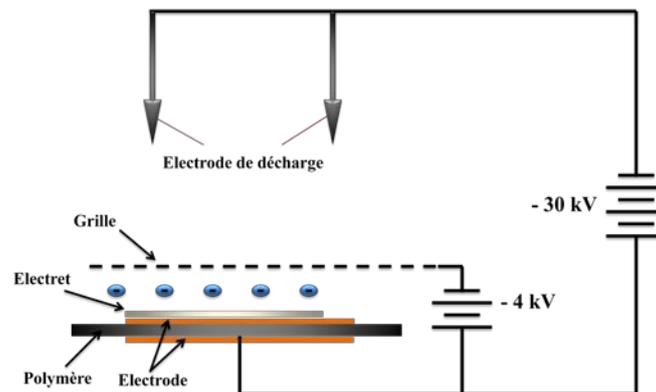


Figure V.13 : Principe de polarisation avec effet corona

III.2.3 Evaluation des propriétés diélectriques des films polymères

Les figures V.14 et V.15 présentent la variation de la permittivité diélectrique et les pertes diélectriques pour les types polymères (PU 1%*C* et PP), respectivement. La constante diélectrique des films polymères a été calculée à partir de la capacité et mesurée à l'aide d'un LCR-mètre (HP 4284A). La capacité de ces films a été mesurée sur la gamme de fréquences de $0,1\ \text{Hz}$ à $1\ \text{MHz}$. Une forte diminution de la constante diélectrique a été observée autour de $10\ \text{Hz}$ pour le PU 1%*C* lorsque la fréquence augmente. Cette décroissance est due aux pertes des charges d'espace induisant la polarisation interfaciale (voir le chapitre II). En outre, la contribution de la charge d'espace peut être négligée pour des fréquences supérieures à quelques dizaines de Hertz. Pour le polypropylène cellulaire, la permittivité diélectrique est restée constante dans la gamme de fréquences considérée.

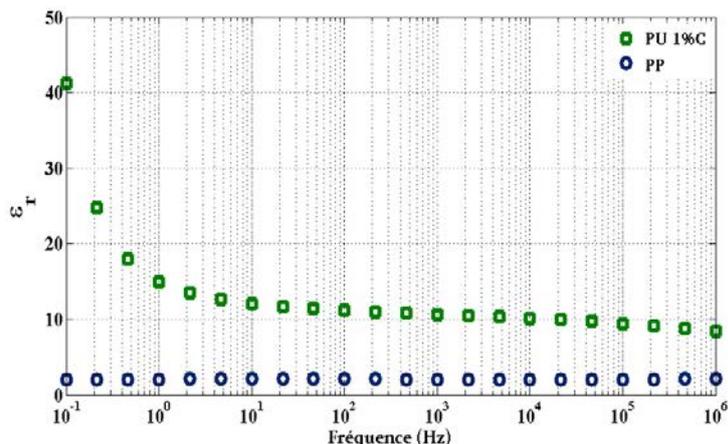


Figure V.14 : Permittivité diélectrique en fonction de la fréquence pour un polyuréthane chargé (PU 1%C) et de polypropylène (PP)

La dépendance en fréquence des pertes diélectriques pour le polyuréthane chargé (PU1% C) et de polypropylène cellulaire (PP) est représenté sur la figure V.15. Pour le PU 1% C, le minimum de la perte effective a été observée lorsque la fréquence est augmentée, à partir des valeurs très élevées à la plus basse fréquence (0,1 Hz). Par contre pour le PP, la valeur des pertes diélectriques est relativement faible et constante. Pour la gamme de fréquences considérées (entre 10 Hz et 20 Hz), les pertes sont très faibles et inchangées pour les deux types de polymères (0.003).

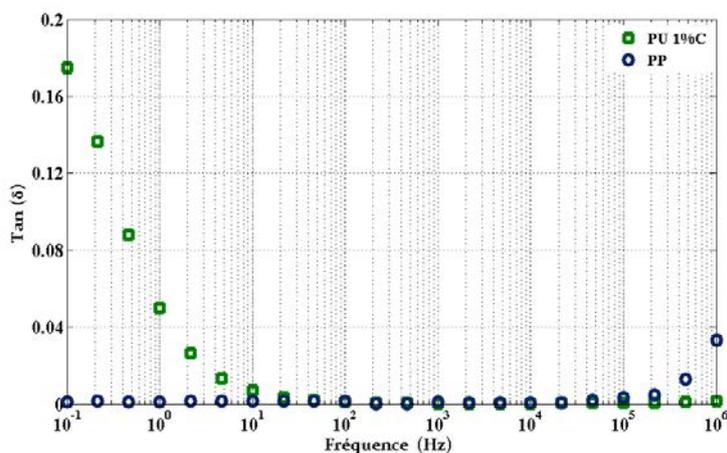


Figure V.15 : Pertes diélectriques en fonction de la fréquence pour un polyuréthane chargé (PU 1%C) et de polypropylène (PP)

III.3 Résultats expérimentaux

Dans cette partie, nous présenterons les résultats expérimentaux obtenus du courant de court circuit et de la puissance récupérée ainsi qu'une comparaison entre les deux structures avec et sans électrets de PP, afin de démontrer le potentiel de la nouvelle structure (PU 1%C + PP)

pour l'amélioration de l'efficacité des polymères électrostrictifs dans le domaine de la récupération d'énergie vibratoire.

La figure V.16 (a et b) montre la variation de la déformation et le courant récupéré en fonction du temps pour un système hybride constitué d'un film polyuréthane PU 1%*C* avec une épaisseur de 52 μm et d'un film de polypropylène (PP) ayant 50 μm comme épaisseur. Le champ électrique de polarisation E_{dc} , la déformation mécanique S_1 et la fréquence mécanique ont été fixés à 0.4 $\text{V}/\mu\text{m}$, 3% et 15 Hz , respectivement.

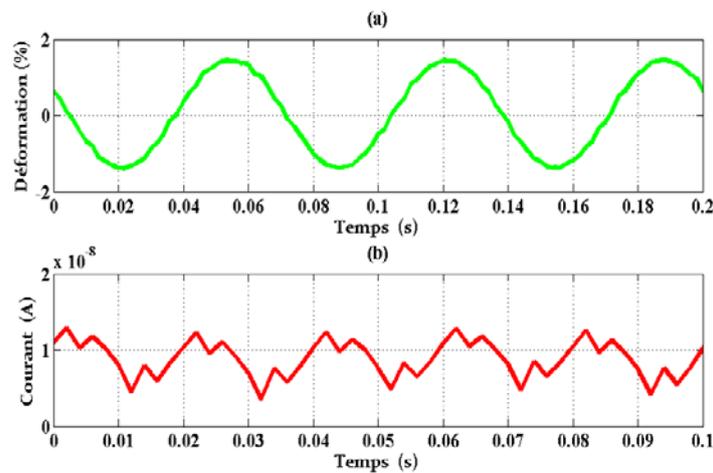


Figure V.16 : (a) Déformation (S_1) en fonction du temps; (b) Courant de court-circuit I_{cc} en fonction du temps

La théorie que nous avons détaillée dans le chapitre précédant a démontré qu'il y avait une dépendance linéaire du courant récupéré I_{cc} par rapport au champ électrique statique E_{dc} et à la déformation S_1 (Equation IV-22). Pour valider cette théorie par la nouvelle structure, les mesures du courant de court-circuit en fonction du champ électrique statique et de la déformation ont été réalisées, et les résultats sont présentés dans les figures V.17 et V.18, respectivement. De plus, une comparaison entre la nouvelle structure (PU1%*C* + PP) et l'ancienne (PU1%*C*) a été effectuée afin de montrer l'efficacité de cette structure dans la récupération d'énergie. En effet, nous pouvons bien constater que par la nouvelle structure, le courant récupéré est augmenté par un facteur sept par rapport à celui de la structure classique. Par exemple, pour obtenir une valeur du courant récupéré de 1.09 nA , il faut appliquer un champ statique de 1.4 $\text{V}/\mu\text{m}$ dans le cas de la structure sans électrets, par contre, pour la nouvelle structure, il suffit d'appliquer seulement un champ statique de 0.2 $\text{V}/\mu\text{m}$ (figure V.17). De même, pour une déformation de $S = 3\%$, nous pouvons obtenir un courant de 10.8 nA par la nouvelle structure au lieu de 1.6 nA par la voie classique. Ces résultats

montrent clairement que l'utilisation des électrets représente une des meilleures solutions pour améliorer la conversion électromécanique des polymères d'électrostriction.

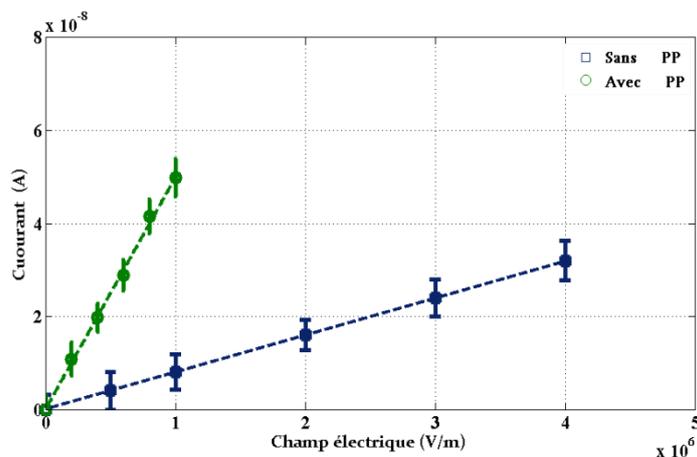


Figure V.17 : Courant de court-circuit en fonction du champ E_{dc} à une déformation constante $S_1 = 3\%$ à $15Hz$.

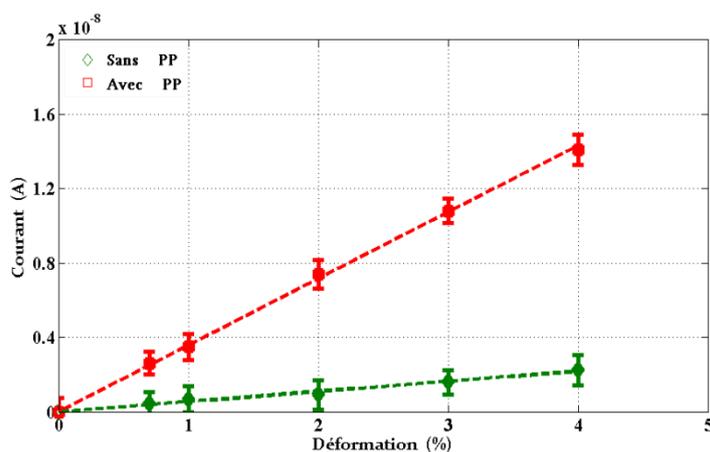


Figure V.18 : Courant de court-circuit en fonction de la déformation à $15Hz$ pour un champ électrique de $E_{dc} = 0.4 V/\mu m$

Le prochain essai sera focalisé sur l'étude de la puissance récupérée en fonction de la charge électrique ainsi que la puissance de polarisation dans le but de prévoir le rendement énergétique du film polymère. La figure V.19 donne la variation de la puissance récupérée en fonction de la charge électrique pour un champ électrique statique de $0.4 V/\mu m$ et une déformation de 3% à $15 Hz$. La courbe de la puissance récupérée de la structure hybride montre que le transfert de la puissance est maximal pour une résistance adaptée de $60 M\Omega$ avec une valeur de $13.8 nW$. Ce résultat a permis de constater que la structure proposée (PU $1\%C + PP$) contribue à l'augmentation de la puissance de sortie, et donc une amélioration de la conversion électromécanique de polymères électrostrictifs.

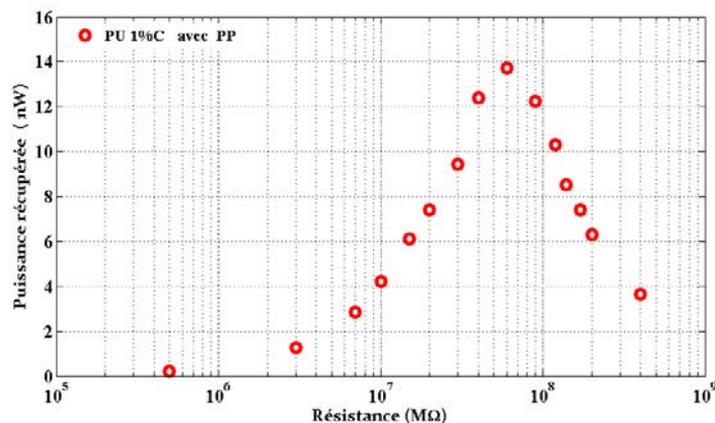


Figure V.19 : Puissance récupérée en fonction de la résistance électrique pour un champ électrique statique $E_{dc} = 0.4 V/\mu m$ et une déformation transversale $S_1 = 3\%$ à $15 Hz$.

Dans ces conditions ($E_{dc} = 0.4 V/\mu m$, $S_1 = 3\%$ et $f = 15 Hz$), il est possible de connaître le rendement énergétique de la structure hybride étudiée afin de démontrer le potentiel de celle-ci dans la récupération d'énergie. Le tableau V.8 récapitule les valeurs calculées de la puissance de polarisation, la puissance récupérée ainsi que l'efficacité de la conversion.

Tableau V.8 : Bilan énergétique de la structure hybride

Matériau	P_{Polar} (nW)	P_{rec} (nW)	Efficacité de conversion (%)
PU 1%C + PP	3.84	13.92	78.14

Les données du tableau montre que l'efficacité de la conversion est positive (78,14%) ce qui traduit que la puissance récoltée est supérieure à celle consommée en travaillant en mode pseudo-piézoélectrique. Cependant, avec la structure classique (PU 1%C) et pour les mêmes valeurs de champ électrique statique ($0,4 V/\mu m$), de la déformation (3%) et de la fréquence mécanique (15 Hz), la puissance consommée serait supérieure à celle récupérée, ce qui rend l'efficacité de la conversion négative. Finalement, cette structure hybride permet de diminuer le cout de la polarisation (faible champ électrique injecté) conduisant ainsi à une amélioration du rendement des polymères électrostrictifs pour la récupération d'énergie mécanique vibratoire.

IV. Conclusion

Dans ce chapitre, une étude de l'efficacité des polymères électrostrictifs par l'analyse spectrale FFT ainsi que l'amélioration du rendement de la conversion électromécanique par l'utilisation d'une structure hybride à base des électrets de polypropylène ont été réalisées. La première partie consiste à évaluer les capacités de conversion des polymères d'électrostriction par l'application de la méthode des analyses spectrales FFT. Cette étude a permis d'optimiser les paramètres mécaniques (fréquence mécanique et l'amplitude de déformation) en gardant les paramètres électriques fixes afin d'avoir une meilleure conversion électromécanique des polymères électrostrictifs. Un modèle analytique a été présenté. Une bonne corrélation entre les résultats expérimentaux et les prédictions théoriques pour chaque essai a été trouvée. Cette étude a montré effectivement l'excellent potentiel de cette technique pour la récupération de l'énergie mécanique ambiante.

Concernant la deuxième partie, une structure hybride basée sur le polyuréthane chargé (PU 1%C) et le polypropylène cellulaire (PP) a été proposée afin d'améliorer l'efficacité de la conversion électromécanique des polymères électrostrictifs pour la récupération d'énergie. Les résultats expérimentaux par la structure hybride ont montré qu'il est possible d'obtenir un courant dynamique plus élevé par un champ électrique statique plus faible par comparaison avec la structure classique. La valeur de l'efficacité de conversion obtenue (de l'ordre de 80%) a montré l'excellent potentiel de ces matériaux hybrides pour la récupération de l'énergie électrique à partir des vibrations ambiantes en vue d'alimenter des systèmes portables en autres.

Références :

- [Ami1997] R. Amirtharajah and AP. Chandrakasan, Self-powered low power signal processing, In: IEEE symposium VLSI circuits, digest of technical papers, Kyoto, Japan, 13–15 June, pp. 25–26(1997).
- [Bel2009] R. Belouadah, Automatisation du banc de polarisation des films PVDF et caractérisation du Matériau obtenu. Thèse INSA de Lyon, Laboratoire LGEF, 2009.
- [Cott2011] P-J Cottinet, D. Guyomar, B. Guiffard and al., Electrostrictive polymer composite for energy harvesters and actuators, *Journal of Polymer Engineering* 31: 133–141(2011).
- [Egu1925] M. Eguchi, On the Permanent Electret, *Philosophical Magazine*, vol. 49, pp.178, 1925.
- [Eur1999] S. Eury, R. Yimnirun, V. Sundar , P-J. Moses, S-J. Jang and R.E. Newnhan, Converse electrostriction in polymers and composites, *Mater. Chem. Phys*, vol.61, no.1, pp18-23, (sep.1999).
- [Fuj2007] S. Fujisaki, H. Ishiwara and Y. Fujisaki, Low-voltage operation of ferroelectric polyvinylidene fluoridetrifluoroethylene copolymer capacitors and metal-ferroelectricinsulator- semiconductor diodes, *Appl. Phys. Lett.* 90, 162902 (2007).
- [Gal2007] G. Gallone, F. Carpi, D. De Rossi, G. Levita, and A. Marchetti, Dielectric constant enhancement in a silicon elastomer filled with lead magnesium niobate-lead titanate, *Mater. Sci .Eng. C*, vol.27 ,no.1, pp110-116, Jan.2007.
- [Gui2003] F.M. Guillot and E. Balizer, Electrostrictive effect in Polyurethanes, *Journal of Applied Polymer Science* 89: 399–404(2003).
- [Guy2009] D. Guyomar, L. Lebrun, C. Putson, P.-J. Cottinet, B. Guiffard, S. Muensit, *J. Appl. Phys.* 106 (2009) 014910.
- [Guy2011a] D. Guyomar, P-J. Cottinet, L. Lebrun and al., Characterization of an electroactive polymer simultaneously driven by an electrical field and a mechanical excitation: an easy means of measuring the dielectric constant, the Young modulus and the electrostrictive coefficients, *Physics Letters A* 375: 1699–1702(2011).
- [Guy2011b] D. Guyomar, M. Lallart, P-J. Cottinet, Electrostrictive conversion enhancement of polymer composites using a nonlinear Approach, *Physics Letters A*, Volume 375, Issue 3, 17 January 2011.
- [Ike1981] K. Ikezaki, M. Miki et J.-i. Tamura, Thermally Stimulated Currents from Ion-Injected Teflon-FEP Film Electrets, *Japanese Journal of Applied Physics*, 20, pp.1741-1747, 1981.
- [Kan2004] A. Kansal, D. Potter and MB. Srivastava, Performance aware tasking for environmentally powered sensor networks, In: *Proceeding measurement and modeling of computer systems in joint international conference*, vol. 32. pp. 223–234(2004).
- [Kim2008] H. Kim, V. Bedekar, R. Adnan-Islam and al., Lasermachined piezoelectric cantilevers for mechanical energy harvesting, *IEEE Transactions on Ultrasonics Ferroelectrics and Frequency Control* 55: 1900–1905(2008).
- [Lal2010] M. Lallart, T. Monnier, D. Guyomar, *Structural Health Monitoring*, 9 (1) 87–98(2010).
- [Leb2009] S. Lebrun, D. Guyomar, B. Guiffard and al., The characterization of the harvesting capabilities of an electrostrictive polymer composite, *Sensors and Actuators A-Physical* 153: 251–257(2009).
- [Liu2004] Y. Liu, K. Ren, H.F. Hofmann and al., Electrostrictive polymer for mechanical energy harvesting, In: *Proceedings SPIE, International Society for Optics and Photonics*, vol. 5385. pp. 17–28 (2004).
- [Liu2005] Y. Liu, K. Ren, H.F. Hofmann and al., Investigation of electrostrictive polymers for energy harvesting, *IEEE Transactions on Ultrasonics Ferroelectrics and Frequency Control* 52: 2411–2417 (2005).
- [Liu1998] R. Liu, Q. Zhang and L.E. Cross, Experimental investigation of electrostrictive polarization biased direct apparent piezoelectric properties in polyurethane elastomer under quasistatic conditions, *Journal of Applied Polymer Science* 73: 2603–2609(1998).
- [Men2001] S. Meninger, J. Mur-Miranda, J. Lang and al., Vibration to electric energy conversion, *IEEE Transactions on Very Large Scale Integration VLSI Systems* 9: 64–76(2001).
- [Mic1987] F. Micheron, *Electrets, Techniques de l'ingénieur*, 1987.

[Par2005] J.A. Paradiso and T. Starner, Energy scavenging for mobile and wireless electronics, IEEE Computer Society 4: 18–27(2005).

[Per2000] R. Pelrine, R. Kornbluh, Q. Pei and al., High-speed electrically actuated elastomers with strain greater than 100%, Science 287: 836–839(2000).

[Put2011] C. Putson, L. Lebrun, D. Guyomar, N. Muensit, P.-J. Cottinet, L. Seveyrat, B. Guiffard, J. Appl. Phys. 109 (2011) 024104.

[Rah2003] M. Rahimi, H. Shah, GS. Sukhatme and al., Studying the feasibility of energy harvesting in a mobile sensor network, In: Proceeding IEEE international conference robotics and automation, Taipei, Taiwan, 14–19 September, pp. 19–24(2003).

[Ren2007] K. Ren , Y. Liu, H.F. Hofmann and al., An active energy harvesting scheme with an electroactive polymer, Applied Physics Letter 91: 132910(2007).

[Zha2004] Q. M. Zhang, J. Scheinbeim, In Electroactive Polymer [EAP] Actuators as Artificial Muscles, Bar-Cohen Y, Ed., SPIE press: Bellingham, (2004) 95–100.

Conclusion générale et perspectives de recherche

I. Conclusion générale

Les travaux présentés dans cette thèse concernaient la modélisation et la caractérisation des composites à base de polymères électrostrictifs et leurs applications dans le domaine de la récupération d'énergie à partir de sources mécaniques ambiantes. Ainsi que l'amélioration des performances de la conversion électromécanique à base de ces polymères à travers des nouvelles techniques. Après un état de l'art complet sur les différentes familles de polymères électro-actifs et leurs principales propriétés en mode actionneur et générateur, une présentation globale sur les différentes ressources énergétiques exploitables dans l'environnement et les principes de conversion d'énergie ont été réalisés.

La première partie de cette thèse a été consacrée au processus d'élaboration et de la caractérisation des polymères électrostrictifs afin d'identifier leurs propriétés intrinsèques en actionnement et en récupération d'énergie. Dans un premier temps, un choix de matrices polymères (Polyuréthane et Ter-polymère) et de type de charges (noire de carbone) pour développer des nano-composites a été réalisé. Les particules conductrices sont ressorties comme des candidates à fort potentiel comparées à celles à grande permittivité, grâce à une modification significative de leur caractéristique pour de faibles concentrations. La caractérisation électrique et mécanique a été effectuée à l'aide d'un banc d'essais. Ces caractérisations nous ont permis de comprendre le fonctionnement de tels polymères mais aussi d'appréhender les variations possibles de ses constantes intrinsèques en fonction de paramètres extérieurs tels la fréquence, la déformation, le champ électrique. Les analyses des résultats obtenus ont été réalisées pour différentes composites (PU 0.5%C, PU 1%C et P(VDF-TrFE-CFE) 1%C). Une augmentation de la permittivité diélectrique par un facteur de deux avec faibles pertes diélectrique a été observée, laissant donc présager une augmentation significative des performances électromécaniques. Concernant les propriétés mécaniques, un modèle théorique a été développé pour caractériser les pertes mécaniques dans les films polymères afin d'optimiser cette énergie dissipée pour un meilleur fonctionnement en mode actionneur et générateur. Leurs dépendances avec la fréquence mécanique, l'amplitude de déplacement imposé et la concentration des nanoparticules de carbone ont été étudiées. Un bon accord a été trouvé entre la simulation et l'expérience, confirmant ainsi le modèle théorique.

Pour compléter l'étude des propriétés des composites élaborés, une caractérisation électromécanique qui fait l'objet de la deuxième partie a été réalisée par la mesure de la déformation électromécanique sous l'effet des différents paramètres (épaisseur, fréquence, précontraintes et nanoparticules). Les résultats obtenus ont démontré une amélioration au niveau des performances électromécaniques des polymères dopés due essentiellement à une permittivité relative élevée et un faible module de Young. Puis le comportement de la polarisation et de la déformation électromécanique sous champs électrique ont été examinés, afin de modéliser le phénomène de saturation observé. De même, une méthode conventionnelle et adaptative pour étudier la variation de la raideur des polymères électrostrictifs a été présentée. L'effet de la force de pré-étirage, de la composante statique et dynamique de champ électrique appliqué a été traité. Les résultats obtenus ont montré que la modification de la raideur est plus importante sous l'effet d'une force de pré-étirage et qu'un doublement de fréquence a été obtenu pour un champ électrique statique nul. La confrontation des résultats expérimentaux avec le modèle théorique a été satisfaisante.

L'étude entreprise dans la troisième partie a porté sur l'amélioration des propriétés des composites à base de polymères électrostrictifs pour la récupération d'énergie à partir de sources vibratoires. Dans un premier temps, une technique basée sur l'effet de l'inversion de polarisation en demi-période (période de déformation) avec l'application d'un déphasage entre l'excitation électrique et mécanique a été proposée, afin d'augmenter la puissance récupérée. Un modèle analytique a été proposé en mode générateur, à partir du principe de fonctionnement des polymères électrostrictifs. Les résultats expérimentaux ont été confrontés à la théorie, ou une bonne corrélation a été trouvée. Une comparaison entre la technique classique et celle proposée a été effectuée, et une amélioration un facteur de 7 de la puissance récupérée a été visualisée.

Dans un second temps, un nouveau prototype mécanique a été réalisé afin d'augmenter les capacités de conversion électromécanique des polymères électrostrictifs. Cette configuration a permis d'améliorer le courant récupéré délivré par le film polymère à partir d'un doublement de la fréquence mécanique, ce résultat est très intéressant au niveau de la puissance récupérée car la théorie a montré qu'il existe une relation linéaire entre la fréquence mécanique et la puissance récupérée pour des conditions mécaniques et électriques données. Une amélioration de 80 % a été observée. Les nouvelles techniques ont donc

montré, selon les résultats obtenus, un excellent potentiel dans le domaine de la récupération d'énergie vibratoire.

La dernière partie a été consacrée à l'étude de l'amélioration de l'efficacité des polymères électrostrictifs pour une meilleure conversion électromécanique. Une méthode innovante basée sur l'analyse spectrale FFT du courant récupéré pour une bonne prévision du rendement énergétique a été développée. Ainsi, les paramètres mécaniques de fonctionnement (fréquence mécanique et l'amplitude de déformation) peuvent être optimisés pour des conditions électriques données. Un bon accord a été trouvé entre les résultats expérimentaux et la théorie. Enfin, une structure hybride à base des électrets de polypropylène a été proposée pour surmonter le problème de polarisation injectée aux films afin d'améliorer l'efficacité de conversion. La valeur obtenue au niveau de l'efficacité (78,14%) a justifiée l'excellent potentiel de cette configuration hybride pour la récupération de l'énergie vibratoire.

Notre étude a montré que les polymères électrostrictifs présentent des caractéristiques avantageuses comme une productivité élevée, une grande flexibilité et une facilité de traitement, et qui pourrait en faire de bons candidats pour la récupération d'énergie et d'actionnement pour des applications futures. Ainsi dans le domaine des systèmes micro-électromécanique (MEMS), ils peuvent offrir de bonnes performances et remplacer les céramiques piézo-électriques classiquement utilisées.

II. Perspectives de recherche

Les travaux futurs consisteront à améliorer et optimiser les performances de nos polymères pour l'actionnement et pour la récupération d'énergie. De nombreuses voies sont envisageables de par la nouveauté de cette technologie.

Dans un premier temps, le travail à venir consistera à réaliser des nouveaux prototypes mécaniques qui permettent d'améliorer l'effort mécanique exercé sur le film polymère afin d'augmenter la conversion électromécanique, de même qu'ils peuvent fonctionner avec des fréquences plus élevés.

En tenant compte des défis énergétiques actuels, les systèmes hybrides présentent un atout intéressant en vue d'une meilleure maîtrise de l'énergie, en particulier lors de l'usage de sources d'énergie renouvelables. Ces systèmes permettent de diversifier les sources

(thermiques, magnétique,..) afin de bénéficier de chacune d'entre elles en respectant leurs propres caractéristiques et qui permet de récolter plus d'énergie. Par conséquent, la réalisation des nouvelles configurations alimentées par plusieurs sources d'énergie sera une nécessité afin d'obtenir un meilleur bilan énergétique.

D'autre part, selon le caractère émergent des polymères électro-actifs, la recherche de nouveaux types de matrices ainsi que des nanoparticules à incorporer seront envisagés tout en respectant leurs compatibilités dans le but d'améliorer les propriétés de conversion électromécanique de nos matériaux. Par ailleurs, le problème d'électrode reste un point crucial au développement de structure à grande déformation et la réalisation des électrodes compliantes sera une solution permettant de prouver clairement le potentiel des matériaux

Liste des Tableaux

Tableau I. 1: Classification des polymères électroactifs	8
Tableau I. 2: Principales caractéristiques des deux familles d'EAP	9
Tableau I. 3: caractéristiques principales des quatre classes de polymères électro-actifs en fonctionnement actionneurs	11
Tableau I. 4: Maximum d'énergie récupérable pour deux types de polymères <i>électrostrictifs</i>	20
Tableau I. 5: Synthèse du potentiel de récupération d'énergie dans l'environnement humain	36
Tableau II. 1: Amplitude de module de Young à différentes amplitude de déplacement	81
Tableau II. 2: Synthèse des résultats obtenus lors de la caractérisation des polymères et composites étudiés pour une épaisseur de $(85 \pm 4) \mu\text{m}$	84
Tableau III. 1 : Le coefficient d'électrostriction et la déformation maximale à différentes fréquences	104
Tableau IV. 1: Caractéristiques du film polymère	143
Tableau V.1 : Synthèse des valeurs de Bi calculées à partir de l'équation V.7.....	154
Tableau V.2 : Propriétés de PU composites à 1 Hz.....	156
Tableau V.3 : Evaluation de l'amplitude des raies du courant mesuré à différentes résistances pour $f_m = 6\text{Hz}$ et $f_e = 1\text{Hz}$	160
Tableau V.4 : Paramètres du polymère électrostrictif à 1Hz.....	164
Tableau V.5 : Étude de l'efficacité du polymère pour différentes valeurs de déformation.....	166
Tableau V.6 : Évolution des paramètres du film en fonction de la déformation à $f_m = 6\text{Hz}$ pour un champ électrique de $13\text{V}/\mu\text{m}$ à $f_e = 1\text{Hz}$	167
Tableau V.7 : Propriétés des polymères utilisés (PU 1%C ; PP)	171
Tableau V.8 : Bilan énergétique de la structure hybride	176

Liste des figures

Figure I. 1: Structure typique des « Electronics EAP ».....	7
Figure I. 2: structure physique d'un polymère ionique	8
Figure I. 3: (a) Travail spécifique en fonction de la fréquence pour différents matériaux électroactifs (b) Contrainte en fonction de la déformation pour différents matériaux électro-actifs	10
Figure I. 4: Effet piézoélectrique	12
Figure I. 5: Principe de fonctionnement en mode actionneur d'un polymère diélectrique.....	14
Figure I. 6: Représentation schématique d'un actuateur IPMC.....	14
Figure I. 7: Énergies mises en jeu lors du processus de récupération d'énergie	15
Figure I. 8: Cycle à réaliser avec un matériau électrostrictif pour la récupération d'énergie	17
Figure I. 9: Cycle de récupération d'énergie sous champ électrique constant lors des phases d'étirement et de compression	19
Figure I. 10: le mécanisme de base du mode générateur d'un polymère diélectrique.....	20
Figure I. 11: Les sources d'énergies ambiantes	23

Figure I. 12: Schéma du microgénérateur électromagnétique	25
Figure I. 13: Montre à rotor excentrée – Seiko	25
Figure I. 14: Interrupteurs à convertisseurs électromagnétiques – EnOcean	26
Figure I. 15: Principe de fonctionnement d'un générateur électrostatique	27
Figure I. 16: Deux dispositifs de génération d'énergie intégrés dans une chaussure	28
Figure I. 17: Prototypage du convertisseur piézoélectrique	29
Figure I. 18: Prototypage du microconvertisseur piézoélectrique	30
Figure I. 19: Principe de fonctionnement d'un générateur magnétostrictif	31
Figure I. 20: Étendue du spectre électromagnétique	33
Figure I. 21: Evolution du rendement de différents types de cellules photovoltaïques	34
Figure I. 22: Rendement des cellules photovoltaïques en fonction de l'ensoleillement	35
Figure I. 23: Évolution du champ électrique généré par une antenne WiFi en fonction de la distance	36
Figure II. 1: Illustration de la polarisation électronique	47
Figure II. 2: Illustration de la polarisation atomique	47
Figure II. 3: Illustration de la polarisation d'orientation	48
Figure II. 4: Illustration d'une réponse élastique lors d'un essai en traction uni-axiale	49
Figure II. 5: Réponse du comportement élastique linéaire lors d'un essai en traction uni-axiale	50
Figure II. 6: Schéma représentant la structure d'une chaîne PU : (a) segmentée en copolymère à blocs, souple et rigide, (b) la séparation en deux domaines de phases dans la totalité du matériau polymère [Pet1991].	55
Figure II. 7: Schémas des différentes formes de CB	59
Figure II. 8: Protocole d'élaboration des nano-composites	63
Figure II. 9: Principe de mesure des caractéristiques diélectriques à basse fréquence	67
Figure II. 10: Permittivité relative en fonction de la fréquence pour les composites à base de matrice polyuréthane	68
Figure II. 11: Permittivité relative en fonction de la fréquence pour les composites à base de matrice de P(VDF-TrFE-CFE)	68
Figure II. 12: Indice de perte en fonction de la fréquence pour les composites à base de polyuréthane	69
Figure II. 13: Indice de perte en fonction de la fréquence pour les composites à base de P(VDF-TrFE-CFE)	69
Figure II. 14: Conductivité en fonction de la fréquence pour les composites à base de polyuréthane	70
Figure II. 15: Conductivité en fonction de la fréquence pour les composites à base de P(VDF-TrFE-CFE)	70
Figure II. 16: La phase en fonction de la fréquence pour les composites à base de polyuréthane	71
Figure II. 17: La phase en fonction de la fréquence pour les composites à base de P(VDF-TrFE-CFE)	72
Figure II. 18: Illustration schématique et photo du principe de fonctionnement du comportement mécanique (contrainte-déformation) des polymères.	74
Figure II. 19: Structure équivalent du polymère.	76
Figure II. 20: La déformation et la contrainte en fonction du temps pour un film de (P(VDF-TrFE-CFE)) 1% C	77
Figure II. 21: Comparaison entre le modèle et la pratique sur un échantillon de PU 1% C à 10 Hz	78
Figure II. 22: Courbes contrainte-déformation des matériaux à base de matrice de PU pour une amplitude de $S = 5.8\%$ à 1 Hz	79

Figure II. 23: Courbes contrainte-déformation des matériaux à base de matrice de (P(VDF-TrFE-CFE)) pour une amplitude de $S = 8.5 \%$ à 0.1 Hz	80
Figure II. 24: Courbes contrainte-déformation pour différentes amplitudes de déformation.....	82
Figure II. 25: Courbes contrainte-déformation pour différentes fréquences	83
Figure III. 1 : Représentation schématique du fonctionnement d'un polymère électrostrictif.....	91
Figure III. 2: Typique déformation-champ électrique pour un matériau électrostrictif.....	91
Figure III. 3: Dispositif expérimental pour la mesure de la déformation sous champ électrique : (a) Schéma de l'installation expérimentale, (b) Image de l'installation expérimentale	98
Figure III. 4: Déformation en fonction du champ électrique pour différentes fréquences pour un échantillon de PU 1%C d'une épaisseur de $57 \mu\text{m}$	99
Figure III. 5: Déformation en fonction du champ électrique pour différentes fréquences pour un échantillon de P(VDF-TrFE-CFE)1%C d'une épaisseur de $46 \mu\text{m}$	100
Figure III. 6: Déformation en fonction du champ électrique pour un échantillon de PU 1%C à 1Hz et pour différentes épaisseurs	100
Figure III. 7: Déformation en fonction du champ électrique pour un échantillon de P(VDF-TrFE-CFE)1%C à 1Hz et pour différentes épaisseurs	101
Figure III. 8: Variation de la déformation avec l'épaisseur pour un échantillon de PU 1%C à 1Hz et pour différentes amplitudes du champ électrique.....	102
Figure III. 9: Déformation en fonction du champ électrique à 1Hz pour une épaisseur de $46 \mu\text{m}$	102
Figure III. 10: Déformation en fonction du champ électrique à 0.1Hz pour une épaisseur de $48 \mu\text{m}$	103
Figure III. 11: Déformation en fonction du champ électrique pour différentes précontraintes et une épaisseur de $50 \mu\text{m}$ à 100 mHz	105
Figure III. 12: Déformation en fonction du précontrainte pour un champ électrique de $5 \text{ V}/\mu\text{m}$ à 100 mHz sur un film de PU 1%C	105
Figure III. 13: Polarisation en fonction du champ électrique à 1 Hz sur un film de PU 1%C	107
Figure III. 14: Polarisation en fonction du champ électrique à 0.1 Hz sur un film de P(VDF-TrFE-CFE) 1%C	107
Figure III. 15: Comparaison entre la simulation et le pratique sur un film de PU 1%C à 1 Hz	108
Figure III. 16: Déformation en fonction du champ électrique pour un échantillon de PU 1%C d'épaisseur $60 \mu\text{m}$ à 1 Hz et à différents niveau de champ électrique.....	109
Figure III. 17: Déformation en fonction du champ électrique pour un échantillon de P(VDF-TrFE-CFE) 1%C d'épaisseur $50 \mu\text{m}$ à 1 Hz et à différents niveau de champ électrique.	109
Figure III. 18: Principe de fonctionnement	113
Figure III. 19: Comparaison de la force en variant la force de pré-étirage F_m : (a) résultats simulés, (b) résultats expérimentaux.....	115
Figure III. 20: Comparaison de la raideur en variant la force de pré-étirage F_m : (a) résultats expérimentaux, (b) résultats simulés	116
Figure III. 21: Comparaison de la force en variant le champ bias E_{dc} ; (a) résultats expérimentaux, (b) résultats simulés	117
Figure III. 22: Comparaison de la raideur en variant le champ bias E_{dc} ; (a) résultats expérimentaux, (b) résultats simulés	118
Figure III. 23: Comparaison de la force en variant l'amplitude du champ E_{amp} ; (a) résultats expérimentaux, (b) résultats simulés	119
Figure III. 24: Comparaison de la raideur en variant l'amplitude du champ E_{amp} ; (a) résultats expérimentaux, (b) résultats simulés	119

Figure III. 25: Variation de la raideur en fonction de : (a) Force de pré-étirage F_m , b) Amplitude du champ E_{amp}	120
Figure IV.1 : Les capteurs sans fil dans l'automobile [Sci2009].	126
Figure IV.2 : Le schéma électrique équivalent d'un polymère électrostrictif en mode pseudo-piézoélectrique	130
Figure IV.3 : (a) Photo de l'installation expérimentale pour la pulvérisation des films, (b) Dimension du film polymère.....	131
Figure IV.4 : Illustration de la connexion au circuit électrique.	132
Figure IV.5 : Amplitude du courant récupéré en fonction de l'angle de déphasage entre la déformation et le champ électrique	133
Figure IV.6 : Variation du champ électrique et de la déformation en fonction du temps.....	133
Figure IV.7 : Puissance en fonction de la résistance, pour une déformation de 0.5% à 15Hz et un champ électrique de 10V/μm	134
Figure IV.8 : Puissance en fonction de la résistance pour différent signaux de polarisation, d'amplitude 10V/μm à 15 Hz et une déformation de 0.5%	135
Figure IV.9 : Courant en fonction du champ électrique pour différents signaux de polarisation	135
Figure IV.10 : Schéma du circuit prototype	139
Figure IV.11 : Schéma de la configuration proposée du système mécanique.....	140
Figure IV.12 : Schéma électrique équivalent simplifié.....	141
Figure IV.13 : La permittivité diélectrique en fonction de la fréquence pour un échantillon PU 1%C d'épaisseur 56μm	141
Figure IV.14 : Dispositif expérimental	143
Figure IV.15 : Déplacement et Courant en fonction du temps pour la configuration classique	144
Figure IV.16 : Déplacement et Courant en fonction du temps pour la configuration proposée	144
Figure IV.17 : Courant récupérée en fonction du champ électrique statique pour les deux configurations et pour une déformation constante 0.5%	145

Figure IV.18 : Courant récupérée en fonction de la déformation pour les deux configurations et pour un champ électrique statique de $10 \text{ V}/\mu\text{m}$ 145

Figure IV.19 : Puissance récupérée en fonction de la fréquence et la résistance pour un champ électrique statique de $10 \text{ V}/\mu\text{m}$ et une déformation constante 0.5% 146

Figure IV.20 : Puissance récupérée en fonction de la résistance dans les deux configurations pour un champ électrique statique de $10 \text{ V}/\mu\text{m}$ et une déformation constante 0.5% 146

Liste des publications

1. **A. Eddiai**, M. Meddad, S. Touhtouh, A. Hajjaji, Y. Boughaleb, D. Guyomar, S. Belkhiat, B. Sahraoui, '*The Mechanical Characterization an Electrostrictive Polymer for Actuation and Energy Harvesting*', **Journal of Applied Physics**, 111, 124115 (2012).
2. M. Meddad, **A. Eddiai**, D. Guyomar, S. Belkhiat, A. Hajjaji, A. Cherif, Y. Boughaleb, '*Study of the Behaviour of Electrostrictive Polymers for Energy Harvesting with FFT Analysis*', **Journal of Optoelectronics and Advanced Materials**, Vol. 14, pp. 55-60 (2012).
3. **A. Eddiai**, M. Meddad, A. Hajjaji, Y. Boughaleb, D. Guyomar, K.Yuse, B. Sahraoui, '*Enhancement of Electrostrictive Polymer Efficiency for Energy Harvesting with Cellular Polypropylene Electrets*', **Synthetic Metal**, Vol. 162, pp. 1948–1953 (2012).
4. M. Meddad, **A. Eddiai**, D. Guyomar, S. Belkhiat, A. Cherif, K.Yuse, A. Hajjaji, '*An Adaptive Prototype Design to Maximize Power Harvesting Using Electrostrictive Polymers*', **Journal of Applied Physics**, 112, 054109 (2012).
5. **A. Eddiai**, M. Meddad, A. Hajjaji, D. Guyomar, Y. Boughaleb, B. Sahraoui, '*Mechanical Effect on the Performance of Electrostrictive Polymers for Energy Harvesting*', 10.1109/**ICTON**. 2012.6253823, **Xplore. IEEE.org** (2012).
6. M. Meddad, **A. Eddiai**, D. Guyomar, S. Belkhiat, A. Hajjaji, K.Yuse, Y. Boughaleb, '*Evaluation by Fast Fourier Transforms Analysis of Energy Harvesting in Electrostrictive Polymers Driven by an Electrical Field and a Mechanical Excitation*', **Journal of Intelligent Material Systems and Structures**, 24(4) 411-420 (2012).
7. K. Yuse, D. Guyomar, D. Audigier, **A. Eddiai**, M Meddad, Y. Boughaleb, '*Adaptive Control of Stiffness by Electroactive Polyurethane*', **Journal of Sensors and Actuators: A. Physical**, Vol. 189, pp. 80-85 (2013).
8. **A. Eddiai**, M. Meddad, K. Sbiaai, Y. Boughaleb, A. Hajjaji, D. Guyomar, '*A New Technique for Maximize the Energy Harvested Using Electrostrictive Polymer Composite*', **Optical Materials** (Accepted 2013).
9. M. Meddad, **A. Eddiai**, A. Hajjaji, D. Guyomar, S. Belkhiat, Y. Boughaleb, A. Chérif, '*Lowest of AC-DC Power Output for Electrostrictive Polymers Energy Harvesting Systems*', **Optical Materials** (Accepted 2013).
10. M. Meddad, **A. Eddiai**, S. Belkhiat, A. Chérif, A. Hajjaji, S. Benahdoug, Z. Sassi, S. Touhtouh, '*Analysis of Micro Power Generator Autonomous PZT with Use of Sliding Mode Control*', **Journal of Optoelectronics and Advanced Materials** (Accepted 2013).

11. A. Chérif, C. Richard, D. Guyomar, S. Belkhiat, M. Meddad, **A. Eddiai**, A. Hajjaji, '*Modal SSDI-Max Technique of a Smart Beam Structure: Broadband Excitation*', **Journal of Optoelectronics and Advanced Materials** (Accepted 2013).
12. A. Chérif, C. Richard, D. Guyomar, S. Belkhiat, M. Meddad, **A. Eddiai**, A. Hajjaji, '*Optimization of the Piezoelectric Transformer by the Non-Linear Methods*', **Optical and Quantum Electronics** (Accepted 2013).
13. **A. Eddiai**, M. Meddad, A. Hajjaji, D. Guyomar, Y. Boughaleb, A. Cherif, '*Modeling and Experimentation of Strain Amplitude Effect on an Electrostrictive Polymer for Energy Harvesting*', **Journal of Polymer Engineering & Science** (Submitted 2013).
14. M. Meddad, **A. Eddiai**, A. Hajjaji, Y. Boughaleb, D. Guyomar, M Fliyou, '*The Optimization of the Energy Harvested by the Effect of Strain and Frequency on an Electrostrictive Polymer Composite*', **Physica B** (Submitted 2013).
15. A. Chérif, C. Richard, D. Guyomar, S. Belkhiat, M. Meddad, **A. Eddiai**, A. Hajjaji, '*Multimodal Vibration Damping of a Smart Beam Structure Using Modal SSDI-Max Technique*', **Journal of Applied Physics** (Submitted 2013).