Contribution à la conception de générateurs électroactifs souples

Cong Thanh Vu

▶ **To cite this version:**

Cong Thanh Vu. Contribution à la conception de générateurs électroactifs souples. Autre. Université de Grenoble, 2013. Français. NNT : 2013GRENT068 . tel-00925790v2

HAL Id: tel-00925790

https://theses.hal.science/tel-00925790v2

Submitted on 28 Feb 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : **Génie Electrique**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

Cong Thanh VU

Thèse dirigée par **Alain SYLVESTRE**
co-encadrée par **Claire JEAN-MISTRAL**

préparée au sein du **Laboratoire de Génie Electrique de Grenoble (G2Elab)**
dans **l'École Doctorale d'Electronique, Electrotechnique, Automatique & Traitement du Signal (EEATS)**

Contribution à la conception de générateurs électroactifs souples

Thèse soutenue publiquement le **01 octobre 2013**,
devant le jury composé de :

M. Bernard MULTON
Professeur, ENS Cachan – antenne Bretagne, Bruz, Président
M. Henri CAMON
Directeur de Recherche, CNRS, Toulouse, Rapporteur
M. Elie LEFEUVRE
Professeur, U-PSUD, Orsay, Rapporteur
M. Skandar BASROUR
Professeur, UJF, Grenoble, Examinateur
M. Stéphane MONFRAY
Ingénieur de recherche, ST Microelectronics, Crolles, Examinateur
Mme. Claire JEAN-MISTRAL
Maître de conférences, INSA Lyon, Lyon, Co-encadrante
M. Alain SYLVESTRE
Professeur, UJF, Grenoble, Directeur de thèse

Université Joseph Fourier / Université Pierre Mendès France / Université Stendhal / Université de Savoie / Grenoble INP

Résumé

Récupérer l'énergie mécanique ambiante est une alternative prometteuse afin d'assurer l'autonomie énergétique d'appareils nomades. Le développement des générateurs électrostatiques souples reste toutefois à ce jour anecdotique du fait des hautes tensions de polarisation employées, de la nécessité de grandes déformations mécaniques mais aussi de l'utilisation de matériaux peu conventionnels et mal caractérisés. Le but de cette thèse est d'apporter des avancées scientifiques et des solutions aux verrous technologiques précités.

Tout d'abord, une caractérisation rigoureuse des propriétés électriques et mécaniques de deux matériaux communément utilisés pour ces applications (polyacrylate VHB 4910 et silicone Polypower) nous a donné accès aux propriétés physiques dans un fonctionnement réel de ces élastomères : influence de la précontrainte, de la nature des électrodes... Ces données ont permis d'élaborer des lois analytiques fiables que nous avons ensuite insérées dans un modèle thermodynamique permettant de définir avec précision les puissances et densités d'énergie récupérables pour ces générateurs. Des pistes d'amélioration des matériaux utilisés dans les applications générateurs peuvent être dégagées de notre modèle.

Le second verrou à lever concerne la source haute tension de polarisation nécessaire à ces générateurs électrostatiques. Pour cela, nous avons proposé une solution innovante couplant l'élastomère diélectrique à un électret. Différentes configurations de générateurs hybrides dans des géométries $2D$ et $3D$ ont été évaluées. Enfin, nous avons réalisé un prototype qui a délivré une puissance de l'ordre de $35\mu W$ sachant qu'une optimisation de ce prototype est réalisable et que des puissances récupérées de plusieurs centaines de µW sont tout à fait réalistes.

Mots clés : élastomères diélectriques, électrets, générateurs à base d'élastomère diélectrique, générateurs souples, hybridation.

Abstract

Scavenging mechanical ambient energy is a promising solution to ensure the autonomy of wearable transducers. Nevertheless, the development of soft electrostatic generator (DEG) is up to now slow down due to the use of high bias voltage, high strain and mischaracterized materials. The aim of this PhD thesis is to propose innovative solutions to these technological barriers.

Firstly, a complete characterization of the electrical and mechanical properties of two commonly used dielectric polymer (polyacrylate VHB 4910 and silicone Polypower) has revealed the true physical properties of these elastomers and especially the influence of the pre-stress and the nature of the electrode used. Thanks to these data, reliable analytic laws have been proposed and inserted into our thermodynamic model in order to predict the output power and scavenged energy density for the DEG. Moreover, our model allow us to propose improvements for the materials used in these applications.

The second challenge is to propose an alternative to the high bias voltage needed for these soft generators. We have proposed an innovative solution combining an electret and a dielectric elastomer. Various configurations of hybrid generators in $2D$ or $3D$ geometry have been modelled and evaluated. Finally, a prototype has been designed allowing scavenging $35\mu W$. With an appropriate optimization of our prototype, hundreds of µW can be scavenged.

Keywords: dielectric elastomer, electrets, dielectric elastomer generator, soft generators, hybridization.

Remerciements

Cette thèse a été réalisée au Laboratoire de Génie Électrique de Grenoble (G2Elab - UMR 5269). Je tiens tout d'abord à remercier M. James ROUDET, directeur du laboratoire, Mme. Nelly BONIFACI, M. Pascal RAIN, responsables de l'équipe Matériaux Diélectriques et Electrostatique (MDE), pour m'avoir accueilli dans leur laboratoire et m'avoir permis de travailler dans d'excellentes conditions et dans une ambiance toujours sympathique.

Je tiens à remercier tous les membres du jury pour le temps et l'intérêt porté à ces travaux : M. Bernard MULTON (Professeur à l'ENS Cachan), qui m'a fait l'honneur de présider ce jury ; M. Henri CAMON (Directeur de recherche, LAAS, CNRS Toulouse) et M. Elie LEFEUVRE (Professeur de l'Université de Paris Sud), d'avoir été rapporteurs de cette thèse et pour m'avoir donné plusieurs suggestions afin d'améliorer ces travaux ; M. Skandar BASROUR (Professeur à l'UJF) et M. Stéphane MONFRAY (ST Microelectronics) d'avoir accepté de participer à ce jury.

Je remercie tout chaleureusement mon directeur de thèse M. Alain SYLVESTRE (Professeur à l'UJF) et mon encadrante Mme Claire JEAN-MISTRAL (Maître de Conférences à l'INSA Lyon) pour leurs implications durant cette thèse et leurs soutiens permanents. Merci pour toutes les connaissances que vous m'avez transmises. Merci de m'avoir transmis la passion pour la recherche scientifique. Merci également des conseils que vous m'avez apportés, non seulement dans le domaine scientifique mais aussi dans la vie quotidienne.

Je remercie aussi toutes les personnes de l'équipe MDE qui m'ont aidé au cours de ces trois années, en particulier M. Olivier LESAINT, M. Olivier GALLOT-LAVALLEE, M. Pascal RAIN pour leurs initiations, leurs explications sur les mesures de haute tension. Merci également à M. Jean-Paul BAROUX, M. Alain TISSERAND, M. Jean-Luc PALENZUELA, M. Daniel OGIER, M. Sebastien FLURY pour leur disponibilité dans la réalisation et le dépannage des dispositifs expérimentaux, et Mme. Geneviève TEISSEDRE pour sa disponibilité et son efficacité dans les travaux administratifs.

Je tiens à remercier l'équipe des stagiaires, des doctorants, des post-docs à MDE : You XIA, Laetitia ZAVATTONI, Abdelkader KAHOULI, Pierre QUENNEHEN, Ahlem ROUAHI, Sheng-Hong YAO, Thi-Hai-Van NGUYEN, Hong-Hai PHAM, Thi-Ngoc NGUYEN, Thi-Anh-Tho VU, Ngoc-Minh NGUYEN, ... pour leur présence amicale et l'ambiance très chaleureuse durant mes trois années de thèse.

Merci à toute l'équipe « Bolygone » : Thu-Nhi TRAN-THI, Thanh-Long PHAN, Manh-Hung CHU, Duy-Thong NGUYEN, Van-Dai NGUYEN, Ba-Doan NGUYEN, Manh-Duy NGUYEN, Van-Chi VO, Quoc-Huy LE ... pour les repas de midi animés et conviviaux, pour les moments de « chém gió » inoubliables.

Je remercie chaleureusement mes amis Vietnamiens AEEE de Grenoble et d'ailleurs : Manh-Hung TRAN, Trung-Hieu TRINH, Quang-Phuong PHAM, Xuan-Hoa NGUYEN, The-Van NGUYEN, Thanh-Trung NGUYEN, Trung-Son NGUYEN, Van-Sang NGUYEN, Tinh-Minh LE-THI, Ngoc-Duc TO, Van-Linh LE, Thanh-Long LE, Van-Vinh LE, Nhat-Hoang TRAN LE ... ; mes camarades de promotion K49 de l'Institut Polytechnique de Hanoï : Thanh-Hai PHUNG, Trong-Trung LE, Tien-Phu HO, Hoang-Anh DANG, Ngoc-Anh NGUYEN, ... pour tous les moments agréables passés ensemble.

Enfin et pas des moindres, je remercie ma famille, mes grands-parents, mes parents, ma petite sœur et mes oncles pour leur soutien, confiance et intérêt tout au long de mes études en France.

Une pensée toute particulière pour Alain TISSERAND qui vient de nous quitter.

Table des matières

Résumé i

Abstract iii

Remerciements v

Table des matières vii

Liste des symboles xv

Introduction 1

0.1 Cadre général et objectifs 1

0.1.1 Cadre général 1

0.1.2 Objectifs de l'étude 5

0.2 Organisation de la thèse 6

1 Etat de l'art et modélisation des générateurs à base d'élastomère diélectrique 7

1.1 Définition des polymères électroactifs 8

1.2 Classification 9

1.3 Élastomère diélectrique et ses applications comme générateurs 11

1.3.1 Définition 11

1.3.2 Générateurs à base d'élastomères diélectriques 12

1.3.2.1 Principe de fonctionnement et performances 12

1.3.2.2 Dispositifs existants 14
1.3.2.2.1 Générateurs de dimension modérée (à petite échelle) 14
1.3.2.2.2 Générateurs de grande dimension (à grande échelle) 17
1.4 Modélisation des DEGs 21
1.4.1 Définition des conditions de fonctionnement 21
1.4.2 Équations d'état en terme de grandeurs lagrangiennes 22
1.4.3 Équations d'état en terme de grandeurs eulériennes 24
1.4.4 Modèle thermodynamique pour l'élastomère diélectrique idéal . . . 25
1.4.5 Instabilités des DEGs et zone de fonctionnement 27
1.4.5.1 Instabilités des DEGs 27
1.4.5.2 Zone de fonctionnement des DEGs 30
1.4.5.3 Chaîne de conversion d'énergie 30
1.4.6 Facteurs influençant les performances des DEGs - Justification des objectifs de ce travail de thèse 33
1.4.6.1 Au niveau des élastomères diélectriques 33
1.4.6.2 Au niveau des circuits électroniques de puissance et de commande 34
1.4.6.3 Tentatives d'optimisation des DEGs dans le cadre de cette thèse 35
1.5 Conclusion 35

2 Propriétés mécaniques et diélectriques des élastomères diélectriques 37

2.1 Matériaux étudiés 37
2.1.1 Élastomères diélectriques 37
2.1.2 Électrodes utilisées 39

2.2 Propriétés mécaniques 42
2.2.1 Modèle analytique 43
2.2.1.1 Hyperélasticité et viscoélasticité 43
2.2.1.1.1 Hyperélasticité 43
2.2.1.1.2 Viscoélasticité 45
2.2.1.2 Essais mécaniques et lois de comportement 45
2.2.2 Résultats et discussions 47
2.2.2.1 Comportement hyperélastique 47
2.2.2.2 Pertes mécaniques 49
2.2.2.3 Conclusion sur les propriétés mécaniques 49
2.3 Propriétés diélectriques 50
2.3.1 Préparation des échantillons et dispositifs de mesures 50
2.3.1.1 Préparation des échantillons 50
2.3.1.2 Dispositifs de mesures 51
2.3.1.2.1 Spectroscopie diélectrique 51
2.3.1.2.2 Mesure de la rigidité diélectrique (champ de claquage) 52
2.3.2 Résultats expérimentaux et discussions 52
2.3.2.1 Élastomère diélectrique VHB 4910 52
2.3.2.1.1 Électrodes en Or 52
2.3.2.1.2 Effet de la nature de l'électrode 55
2.3.2.1.3 Effet de la précontrainte 61
2.3.2.1.4 Pertes diélectriques 66
2.3.2.1.5 Rigidité diélectrique 67
2.3.2.2 Élastomère diélectrique Polypower 68
2.3.2.2.1 Électrodes en métal et électrodes en graisse . . . 68

2.3.2.2.2 Effet de la précontrainte 71
2.3.2.2.3 Pertes diélectriques 72
2.3.2.2.4 Rigidité diélectrique 72
2.3.3 Bilan des caractérisations expérimentales 73
2.3.3.1 Comportement mécanique 74
2.3.3.2 Comportement diélectrique 75
2.3.3.2.1 Constante diélectrique 75
2.3.3.2.2 Facteur de pertes 78
2.3.3.2.3 Rigidité diélectrique 79
2.4 Conclusion 81

3 Évaluation des performances des générateurs à base d'élastomères diélectriques 83

3.1 Modèles analytiques 83
3.1.1 Modèles thermodynamiques des générateurs à base d'un élastomère diélectrique non-idéal 84
3.1.1.1 Mode de déformation biaxiale 88
3.1.1.2 Mode de déformation pure-shear 89
3.2 Performances des élastomères VHB et Polypower 90
3.2.1 Élastomère diélectrique VHB 90
3.2.1.1 Déformation biaxiale 90
3.2.1.1.1 Zone d'opération et densité d'énergie récupérable du VHB à température ambiante (20°C) et sous déformation maximale 94
3.2.1.1.2 Effet de la température et du niveau de déformation 96
3.2.1.1.3 Effet des pertes mécaniques et électriques 98
3.2.1.1.4 Effet de la précontrainte 100

3.2.1.2 Déformation pure-shear . . . 103

3.2.1.2.1 Effet de la précontrainte . . . 105

3.2.2 Élastomère diélectrique Polypower . . . 106

3.2.2.0.2 Effet de la précontrainte . . . 108

3.2.3 Conclusion sur les performances du VHB et du Polypower . . . 110

3.3 Amélioration des performances des élastomères diélectriques . . . 110

3.3.1 Introduction . . . 110

3.3.2 Techniques pour augmenter la constante diélectrique du silicone . . 111

3.3.3 Modélisation de la variation du comportement mécanique et électrique des composites siliconés . . . 116

3.3.4 Performances des composites siliconés pour une application générateur à température ambiante . . . 120

3.3.4.1 Composite idéal . . . 120

3.3.4.2 Composite réel avec introduction des pertes diélectriques . 123

3.3.4.3 Performances des composites fonctionnant sous un champ électrique prédéfini . . . 124

3.3.4.4 Conclusion sur les performances des composites siliconés en mode générateur . . . 126

3.4 Conclusion . . . 127

4 Générateur diélectrique et structure hybride 129

4.1 Circuits électriques et électroniques de commande . . . 129

4.2 Électret . . . 134

4.2.1 Définition et technique de réalisation . . . 134

4.2.2 Théorie principale de la mesure du déclin du potentiel de surface (DPS) . . . 136

4.2.3 Propriétés du matériau électret . . . 137

4.2.3.1 Matériau étudié . . . 137

4.2.3.2 Propriétés d'électret du Téflon FEP 138
4.3 Hybridation avec l'électret 140
4.3.1 Mode diélectrique 142
4.3.1.1 Polarisation directe : structure 3D 142
4.3.1.1.1 Conception 142
4.3.1.1.2 Modélisation de la structure 144
4.3.1.1.3 Résultats de simulation 147
4.3.1.2 Polarisation par effet de bords : structure plan 2D 149
4.3.1.2.1 Conception 149
4.3.1.2.2 Modélisation de la structure 149
4.3.1.2.3 Résultats de simulation 151
4.3.2 Mode électret 154
4.3.2.1 Conception 154
4.3.2.2 Modélisation de la structure 156
4.3.2.2.1 Équation décrivant le couplage 156
4.3.2.2.2 Estimation de la capacité équivalente 157
4.3.2.3 Résultats de simulation 160
4.3.3 Comparaison des structures hybrides 161
4.4 Prototype 162
4.4.1 Choix et conception 162
4.4.2 Optimisation de la forme des serpentins 163
4.4.3 Optimisation du nombre de serpentins pour une dimension prédéfinie de la structure 167
4.4.4 Structure finale 169
4.4.5 Résultats expérimentaux 171
4.4.5.1 Charge résistive 171

4.4.5.2 Chaîne de conversion d'énergie complète 174

4.4.6 Amélioration de notre prototype : Impact de la fréquence de fonctionnement, du potentiel de l'électret et du multi-couches 175

4.4.6.1 Impact de la fréquence de fonctionnement 175

4.4.6.2 Impact du potentiel de l'électret 176

4.4.6.3 Impact du multi-couches 177

4.5 Conclusion 178

Conclusion et perspectives **181**

Liste des publications **187**

Annexes **189**

A Spectroscopie diélectrique **191**

A.1 Principe de mesure 191

A.2 Dispositif expérimental 192

B Rigidité diélectrique **195**

C Mesure du déclin de potentiel de surface (DPS) **197**

C.1 Sonde électrostatique 197

C.2 Dispositif de mesure 198

D Réalisation du DEG en mode électret **201**

Bibliographie **205**

Liste des symboles

Abbréviations

CB	Carbon Black ou Noir de carbone
CNT	Carbon Nanotube ou NanoTube de Carbone
DEG	Dielectric elastomer generator ou Générateur à base d'élastomère diélectrique
EAP	ElectroActivePolymer ou polymère électroactif
EMI	ElectroMechanical Instability ou Instabilité ElectroMécanique
IPMC	Ionic Polymer–Metal Composite ou Composite Métal-Polymère Ionique
P(VDF-TrFE)	Poly[(VinyliDeneFluoride-co-TrifFuoroEthylene]
P(VDF-TrFE-CTFE)	Poly[(VinyliDeneFluoride-co-TrifFuoroEthylene-co-ChloroTriFluoro Ethylene]
PA 6	PolyAmide - Nylon 6
PANI	PolyANilIne
PDMS	PolyDiMethylSiloxane ou PolyDiMéthylSiloxane
PE	PolyEthylene ou PolyEthylène
PEEK	PolyEther Ether Ketone ou PolyEther EtherCétone
PEG	PolyEthylene Glycol ou PolyEthylèneGlycol
PHT	PolyHexiThiophene
PI	PolyImide
PMN	Lead Magnesium Niobate ou Niobate de Plomb Magnésium
PP	PolyPropylene ou PolyPropylène
PTFE	PolyTetraFluoroEthylene ou PolyTétraFluoroEthylène
PU	PolyUrethane ou PolyUréthane
PVDF	PolyVinyliDene Fluoride ou Poly(Fluorure De Vinylidène)

PZN-PT	Pb(Zn(1/3)Nb(2/3))O(3-x)PbTiO(3)
PZT	Lead Zirconate Titanate ou Titano-Zirconate de Plomb
Téflon FEP	Copolymer Fluorinated Ethylene Propylene ou Copolymère d'Ethylène Propylène Fluoré

Symboles grecs

$\delta_{méc}$ et $\delta_{diélec}$	Angle de pertes mécaniques et Angle de pertes diélectriques
λ_i	Coefficient d'extension ou Déformation suivant la direction i
σ_i	Contrainte nominale suivant la direction i
ε_0	Constante diélectrique du vide
$\varepsilon_r^{'}$	Constante diélectrique du matériau

Symboles mathématiques

I_i	Invariants du tenseur de Finger B
J_m	Limite de déformation
L_i et l_i	Dimension de référence et dimension réelle suivant la direction i
P_i	Force mécanique suivant la direction i
T_i	Contrainte réelle suivant la direction i
B	Tenseur de Finger
C	Capacité
D et $\tilde{D}$	Vecteur de déplacement électrique et Vecteur de déplacement électrique nominal
E et $\tilde{E}$	Champ électrique et Champ électrique nominal
F	Energie libre
Q	Charge électrique
W, w et $\tilde{w}$	Energie, Densité d'énergie et densité d'énergie nominale
Y	Module de Young

Introduction

Rien ne se perd, rien ne se crée,
tout se transforme ...

(Antoine Lavoisier)

0.1 Cadre général et objectifs

0.1.1 Cadre général

La demande d'énergie devrait s'accroître considérablement dans les années à venir du fait de l'augmentation de la population et du développement économique. La grande majorité de l'énergie mondiale provient actuellement de sources non renouvelables, en particulier du pétrole, du charbon et du gaz. Ces sources d'énergie non renouvelables sont en partie la cause du changement climatique et provoquent l'effet de serre. Afin d'assurer un développement durable, les chercheurs, les industriels et les gouvernements se tournent vers les énergies renouvelables. L'énergie renouvelable consiste à produire de l'énergie électrique à partir de sources qui se renouvèleraient « indéfiniment »comme l'énergie hydroélectrique, solaire, éolienne, ou produite de façon durable à partir de la biomasse. Le but est d'augmenter la contribution du secteur de l'énergie renouvelable sur la part totale de l'énergie produite. Par exemple, l'objectif de l'Union Européenne en 2020 est d'augmenter de 20% l'efficacité énergétique, de réduire de 20% les émissions de CO_2 et d'atteindre 20% d'énergies renouvelables dans la production d'énergie.

En dehors de l'énergie géothermique, la biomasse et l'énergie solaire, les autres sources d'énergie sont des sources d'énergie mécanique, provenant du vent, de l'océan, ou bien du débit d'eau des rivières. Pour réaliser une conversion électromécanique, il existe trois approches classique :

1. Conversion électrostatique
2. Conversion électromagnétique
3. Conversion piézoélectrique

Ces trois approches de conversion d'énergie peuvent être utilisées pour des sources à grande échelle comme l'énergie des océans, l'éolien, l'hydraulique ou bien pour des sources à petite échelle comme l'énergie des mouvements du corps humain. Soulignons que ces sources d'énergie mécanique sont des sources d'énergie de déformation caractérisées par la présence de parties mécaniques en mouvement relatif direct, contrairement aux vibrations où le mouvement relatif est créé artificiellement par une masse sismique. L'énergie récupérée est alors le produit de la force par le déplacement. Suivant des études réalisées par [McKay 10a, Roundy 03], la densité d'énergie récupérable par ces trois technologies peut être calculée théoriquement. Les résultats sont présentés dans le tableau 0.1.1.

TAB. 0.1.1: Densité d'énergie calculée théoriquement pour les structures à capacité variable (électrostatique), électromagnétique et piézoélectrique [Roundy 03, McKay 10a]. E : champ électrique appliqué, B : champ magnétique appliqué, σ : contrainte appliquée, ε_0 : permittivité du vide, $\varepsilon_r^{'}$: constante diélectrique, μ_0 : perméabilité du vide, d : coefficient piézoélectrique.

Technologie	Équation de base	Conditions	Densité d'énergie ($mJ.cm^{-3}$)
Capacité variable classique	$w = \frac{\varepsilon_0 E^2}{2}$	$E = 100MV.m^{-1}$, $\varepsilon_0 = 8,854pF.m^{-1}$	$w = 44$
Élastomère diélectrique	$w = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r^{'} E^2}{2}$	$E = 150MV.m^{-1}$, $\varepsilon_0 = 8,854pF.m^{-1}$, $\varepsilon_r^{'} = 4$	$w = 398$
Électromagnétique	$w = \frac{B^2}{2\mu_0}$	$B = 1T$, $\mu_0 = 1,26\mu H.m^{-1}$	$w = 397$
Piézoélectrique céramique (PZN-PT)	$w = \frac{\sigma^2 d^2}{2\varepsilon_0 \varepsilon_r^{'}}$	$\sigma = 83MPa$, $d = 2nm.V^{-1}$, $\varepsilon_0 = 8,854pF.m^{-1}$, $\varepsilon_r^{'} = 4500$	$w = 346$
Polymère piézoélectrique (PVDF)	$w = \frac{\sigma^2 d^2}{2\varepsilon_0 \varepsilon_r^{'}}$	$\sigma = 52MPa$, $d = 30nm.V^{-1}$, $\varepsilon_0 = 8,854pF.m^{-1}$, $\varepsilon_r^{'} = 12$	$w = 11,5$

Les générateurs électromagnétiques sont très efficaces, leur rendement peut atteindre 99% dans des conditions idéales de fonctionnement. Pourtant, ils ont besoin d'un système de transmission mécanique assez complexe de par leur gamme de fréquence étroite. En effet, ils ne maintiennent pas leur haut rendement sur une large gamme de fréquence de fonctionnement car leur principe de conversion d'énergie est lié à la vitesse de variation du flux magnétique.

La conversion piézoélectrique est adaptée particulièrement pour les petites échelles. Ils existe de nombreux dispositifs de test ou commerciaux utilisant cette technologie. Toutefois, les générateurs piézoélectriques sont des structures rigides et résonnantes présentant une fréquence de fonctionnement souvent élevée. C'est pour cela qu'ils sont généralement utilisés pour convertir l'énergie des vibrations des machines et d'infrastructures comme des routes et des ponts. Pour des sources à grande échelle comme les vagues, le vent ou bien encore les mouvements biomécaniques, ils ne sont pas bien adaptés car ils sont trop chers à réaliser, ils ne supportent pas de larges déformations et ils fonctionnent moins efficacement aux faibles fréquences.

La conversion électrostatique utilise le principe de variation de capacité sous un champ électrique. Les deux électrodes de la capacité sont souvent séparées par un gap d'air. Si

on remplace le gap d'air par un diélectrique déformable, par exemple un élastomère diélectrique, l'énergie récupérable est multipliée par ε_r, qui est la constante diélectrique du matériau. Le générateur électrostatique classique devient donc un générateur à base d'élastomère diélectrique (« DEG » en anglais) et ce type de générateur montre un fort potentiel pour récupérer l'énergie de sources renouvelables [Bauer 11, Kornbluh 11a, Kornbluh 12a]. En effet, il possède une densité d'énergie élevée (voir tableau 0.1.1). Notons que la densité reportée dans le tableau 0.1.1 pour les DEGs correspond au seuil bas. Il existe des études théoriques démontrant que la densité d'énergie récupérable par un DEG peut atteindre $6 J.g^{-1}$ [Koh 09], ce qui est plus élevé que toutes les technologies concurrentes. De plus, les DEGs peuvent fonctionner sous de très grandes déformations, allant jusqu'à 500% [Pelrine 00a]. Enfin, ils peuvent travailler sur une large gamme de fréquences sans diminution remarquable de leur rendement [Pelrine 01] et ils peuvent être réalisés à très grande échelle et à faible coût [Carpi 08b, Chiba 11].

Parmi les technologies présentées, il apparaît donc clairement que les DEGs sont bien adaptés aux sources environnementales de large amplitude et faibles fréquences comme l'énergie des vagues, du vent ou l'énergie biomécanique.

Pour convertir l'énergie mécanique de déformation en énergie électrique par les DEGs, il faut réaliser des cycles énergétiques (figure 0.1.1). L'élastomère diélectrique étant pris en sandwich entre deux électrodes souples, on commence par l'étirer mécaniquement (état A à B). Le matériau est alors alimenté par une source électrique extérieure et des charges électriques sont stockées sur les électrodes souples de la structure à l'état de déformation maximale (état B à C). Ensuite, la contrainte mécanique est éliminée, le matériau retourne à sa position initiale (état D) et l'énergie électrique stockée dans le matériau est amplifiée. La tension aux bornes de la structures augmente : l'énergie mécanique est convertie partiellement en électricité.

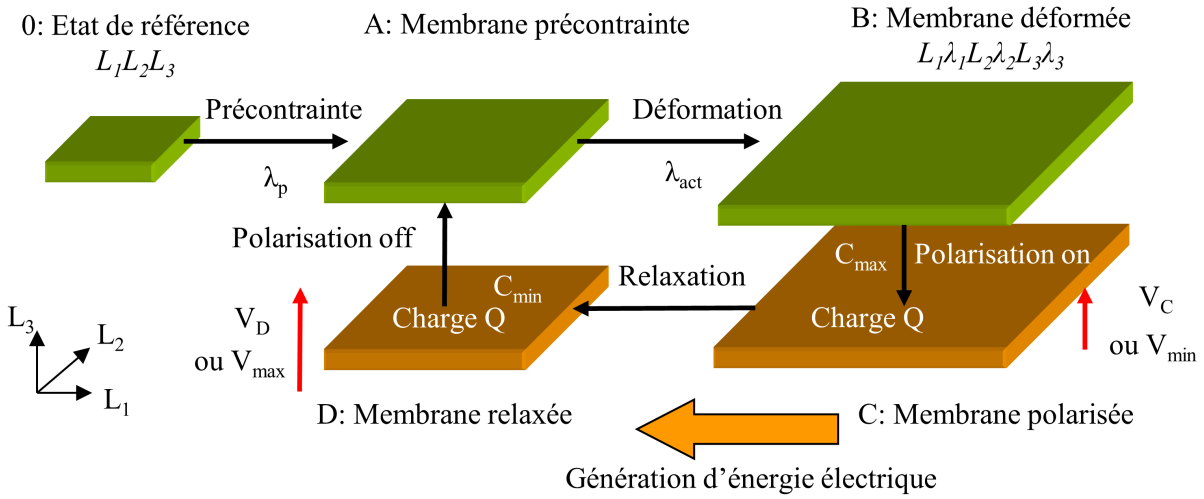


FIG. 0.1.1: Cycle énergétique pour un DEG.

Il existe différentes applications de DEGs dans la littérature, à grande échelle (m) et à petite échelle (cm). Aux grandes échelles, citons l'énergie des vagues qui est une source

d'énergie importante et qui peut être utilisée pour la production d'électricité [Chiba 11, Ahnert 11, Jean 12, Vertechy 13]. D'autres types de source d'énergie ont été étudiées comme l'énergie du vent [Brochu 09, Lin 11], ou l'énergie hydraulique [Chiba 08, Maas 12]. Tous ces dispositifs de récupération d'énergie exploitent la forte densité d'énergie récupérable, la simplicité de transmission mécanique et le faible coût d'investissement des DEGs.En analysant les dispositifs dits à petite échelle, les DEGs montrent également un fort potentiel d'applications. L'énergie du mouvement du corps humain (ou biomécanique) est le sujet le plus intéressant pour les DEGs. Par exemple, ils peuvent être insérés dans un talon de chaussures [Kornbluh 11b, McKay 13], ou au niveau d'un genou [Jean-Mistral 08b, Jean-Mistral 10a]. Dans ces applications, leur forte densité d'énergie, leur faible poids et leur souplesse constituent les paramètres attractifs. La figure 0.1.2 présente la chaîne de conversion d'énergie pour un DEG.

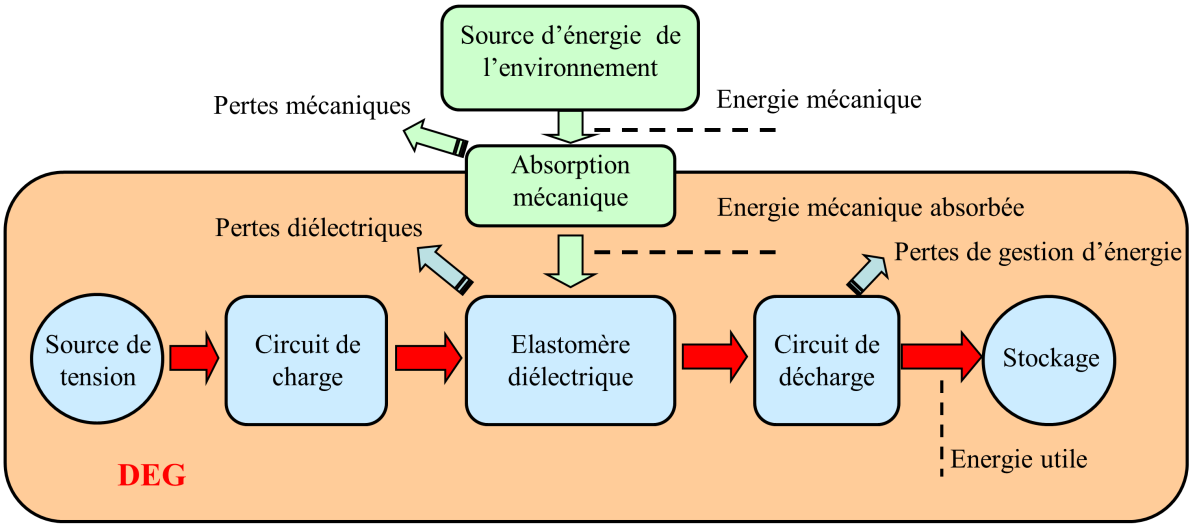


FIG. 0.1.2: Chaîne de conversion d'énergie pour un DEG.

Bien que toutes ces études aient démontrées les potentialités des DEGs à exploiter l'énergie des sources environnementales ou biomécaniques, il existe encore des décalages forts entre les performances théoriques démontrées et les performances expérimentales obtenues. Tout d'abord, les DEGs fonctionnent à base d'élastomères diélectriques (figure 0.1.2) dont les caractéristiques vont influencer le fonctionnement et les performances finales de la structure. Des caractérisations approfondies des propriétés mécaniques et électriques des élastomères diélectriques dans des conditions de contrainte rencontrées dans le fonctionnement des DEGs, doivent être entreprises pour mieux appréhender le dimensionnement de ces structures et estimer précisément les performances attendues.

Ensuite, comme indiqué sur la figure 0.1.1 et figure 0.1.2, les DEGs nécessitent une source de polarisation pour réaliser des cycles énergétiques. Cette source de polarisation peut être une source haute-tension ou bien un système de recharge à l'aide d'une batterie/capacité de stockage et d'un circuit d'électronique de puissance. C'est-à-dire que les DEGs ne sont pas complètement autonomes. Pour les applications à grande échelle, quand l'énergie récupérable est le premier critère, ce dernier point n'est pas un grand inconvénient mais

pour les applications à petite échelle, cela constitue un inconvénient majeur . En effet, la forte densité d'énergie, la flexibilité, la portabilité et la simplicité des DEGs présentées précédemment sont compromises par les électroniques relativement rigides, encombrantes et lourdes nécessaire au fonctionnement en générateur.

Cette thèse vise à dépasser ces deux problèmes à travers des caractérisations fines du comportement des élastomères les plus utilisés pour les applications de récupération d'énergie et par le biais de structures hybrides innovantes simplifiant l'électronique de gestion. Notre objectif est ainsi de concevoir et de développer une structure de récupération d'énergie autonome, à faible encombrement, à faible coût et destinée en particulier à la récupération d'énergie à partir des mouvements du corps humain.

0.1.2 Objectifs de l'étude

L'objectif principal de ce travail est de proposer une technologie alternative et innovante pour réaliser des générateurs souples et déformables pour la récupération d'énergie à partir de sources environnementales ou biomécaniques. Notre motivation consiste à faire progresser la technologie des DEGs afin qu'ils soient en mesure de démontrer pleinement leur potentiel dans des applications visant l'amélioration de notre quotidien.

Nous cherchons à contribuer à une meilleure compréhension de la technologie des DEGs à travers l'analyse expérimentale des comportements du matériau, et le développement de modèles fiables permettant de décrire précisément le fonctionnement et d'évaluer les performances des DEGs. Nous essayons également de répondre à la question de la dépendance des DEGs à une source de polarisation externe qui limite l'utilisation de ces derniers pour des applications portables.

Nous visons donc à répondre aux objectifs suivants :

1. Caractériser finement les comportements mécaniques et diélectriques des élastomères diélectriques et proposer des modèles fiables afin d'évaluer leurs performances.

2. Suggérer des pistes pour la conception et le développement de nouveaux matériaux pour les DEGs.

3. Proposer des solutions innovantes et pertinentes pour remplacer les sources de polarisation des DEGs, notamment pour les applications portables.

0.2 Organisation de la thèse

Cette thèse se divise en quatre parties.

Le premier chapitre présente les polymères électroactifs et leurs classification. Nous nous intéressons en particulier aux élastomères diélectriques et leurs applications comme générateurs. Nous décrivons les principaux prototypes de DEGs existant dans la littérature, leur principe de fonctionnement et aussi leurs performances. Les modèles analytiques thermodynamiques, indispensables pour définir le fonctionnement et évaluer les performances des DEGs, sont ensuite présentés. Ce premier chapitre met en avant les verrous à lever pour accentuer le déploiement de ces générateurs, ce qui nous amène à terminer ce chapitre par la présentation des objectifs que nous souhaitons poursuivre dans le cadre de cette thèse.

Le second chapitre est consacré à la caractérisation mécanique et diélectrique des élastomères diélectriques de type polyacrylates et silicones qui sont les plus utilisés aujourd'hui dans ce domaine de recherche. Nous proposons des lois analytiques permettant de décrire les comportements mécaniques et diélectriques de ces matériaux et nous utilisons nos résultats expérimentaux dans le troisième chapitre pour évaluer les performances réelles de ces matériaux mais aussi la sélectivité des matériaux les mieux adaptés à un cahier des charges donné pour un DEG.

Le quatrième chapitre s'intéresse au problème de la dépendance des DEGs à une source de polarisation externe. Nous proposons des solutions hybrides utilisant des électrets pour remplacer la source de polarisation externe. Les DEGs deviennent des dispositifs autonomes et donc potentiellement adaptables à des applications portables. Nous terminons ce chapitre par la présentation d'un prototype que nous avons réalisé.

Chapitre 1

Etat de l'art et modélisation des générateurs à base d'élastomère diélectrique

> Si vous ne pouvez expliquer un concept à un enfant de six ans, c'est que vous ne le comprenez pas complètement ...
>
> *(Albert Einstein)*

Les « smart materials », que l'on peut traduire par matériaux intelligents ou adaptatifs sont des matériaux qui présentent un changement rapide, reproductible, réversible et important dans au moins une de leurs propriétés physiques, en réponse à un stimulus externe. Les polymères électroactifs font partie de ces matériaux dits intelligents et développent des propriétés physiques uniques : ils sont souples et flexibles. Depuis ces quinze dernières années, le domaine de recherche et l'exploitation des polymères électroactifs sont en pleine expansion et de nombreuses applications innovantes ont vu le jour (figure 1.0.1).

L'objectif de ce premier chapitre est tout d'abord de définir les différentes familles de polymères électroactifs. Un intérêt particulier est porté aux élastomères diélectriques qui constituent une famille de matériaux parmi les plus prometteurs du fait de leur densité d'énergie élevée et de leur capacité à supporter de grandes déformations. Le positionnement des élastomères diélectriques comme générateurs est ensuite présenté à travers quelques illustrations dans des applications innovantes. Le principe de fonctionnement, les cycles énergétiques, et la modélisation de ces générateurs sont ainsi abordés. A travers ce panorama d'applications et de modèles décrivant le comportement de ces dispositifs, nous mettons en évidence les manques ou imprécisions des travaux de recherche freinant le développement d'applications à base de générateurs souples. Une partie de ces manques à combler constitue l'objet de ce travail de thèse résumé dans la dernière partie de ce premier chapitre.

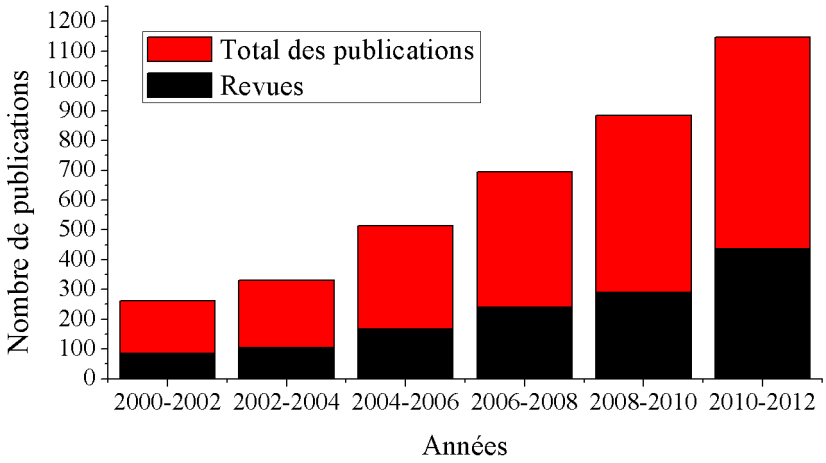


FIG. 1.0.1: Nombre de publications en cherchant les mots clés « electroactive polymers » et « dielectric elastomer » sur le site ISI Web of Knowledge - Thomson Reuters.

1.1 Définition des polymères électroactifs

Les polymères électroactifs (EAPs pour « ElectroActive Polymers ») sont des matériaux dont la forme et/ou la taille changent lorsqu'ils sont stimulés par un champ électrique (figure 1.1.1).

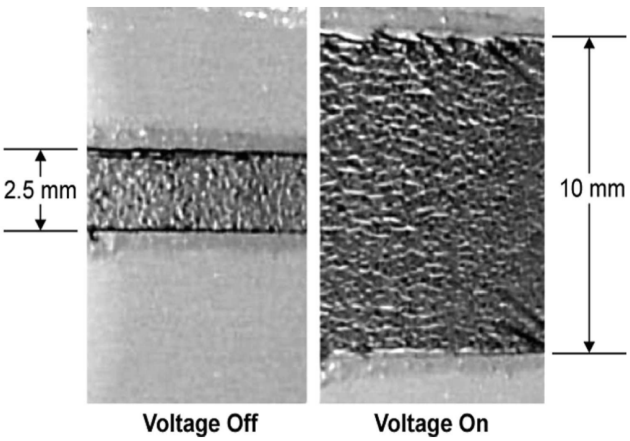


FIG. 1.1.1: Film en élastomère polyacrylate. La déformation relative peut atteindre 300% sous excitation électrique de quelques kV [Kornbluh 00].

Le tout premier test sur les polymères électroactifs datant de 1880, a été réalisé par Rœntgen. Dans son expérience, il a observé qu'un film en caoutchouc naturel pouvait changer de forme en pulvérisant des charges électriques sur sa surface par décharge Corona.

Un siècle après cette première expérimentation, en 2000, Perrine *et al* [Pelrine 00b] ont développé un actionneur à très large déformation en élastomère diélectrique. Ces travaux ont relancé une dynamique sur ces matériaux qui n'a cessé de s'accroître ces treize dernières années et les recherches liées à cette thématiques sont en pleine expansion. Le nombre et le genre de polymères électroactifs ainsi que les applications potentielles ont considérablement augmenté. Il existe actuellement une grande variété de polymères, allant des nanotubes de carbone rigides aux élastomères diélectriques souples. Bar-Cohen [Bar-Cohen 04] a donné une classification de ces polymères électroactifs qui a été adoptée ensuite par la communauté scientifique (tableau 1.1.1).

1.2 Classification

Le terme de polymère électroactif est générique et ces matériaux sont classés en deux grandes familles : les polymères électroniques et les polymères ioniques (tableau 1.1.1).

Le principe d'actionnement de ces deux familles est très différent. Les polymères électroniques sont activés par l'application d'un champ électrique tandis que pour les polymères ioniques, leur actionnement est basé sur une diffusion d'ions ou de molécules au sein du matériau. Les avantages et les inconvénients de chaque famille d'EAPs sont résumés dans le tableau 1.2.1.

En fonction de l'application envisagée, le choix du matériau à utiliser est réalisé. La famille électronique est utilisée pour des applications à haute densité d'énergie ou haute densité de force alors que la famille ionique est plus adaptée pour des applications où une faible tension d'activation est nécessaire.

Dans le cadre de cette thèse, nous souhaitons développer une application de récupération d'énergie mécanique ambiante à une haute densité d'énergie et faible fréquence de fonctionnement (inférieure à $100Hz$). Suite à la comparaison réalisée par [Jean-Mistral 08a], les élastomères diélectriques (issus de la famille électronique) apparaissent comme les meilleurs candidats pour notre application. Nos travaux seront donc centrés sur ces matériaux.

TAB. 1.1.1: Classification des polymères électroactifs [Bar-Cohen 04].

	Nom	Principe physique	Exemple de matériau
Famille électronique	Polymère ferroélectrique	Matériau qui possède un moment dipolaire permanent, à l'échelle des domaines élémentaires.	- piézoélectrique : PZT, PVDF - électrostriction : P(VDF-TrFE), P(VDF-TrFE-CTFE)
	Electret	Matériau ayant une polarisation électrique quasi permanente après exposition à un fort champ électrique ou après injection de charges.	- PP ou PTFE et ses copolymères chargés
	Élastomère diélectrique	Matériau fonctionnant sur le principe d'une capacité variable : effet électrostatique.	- polyacrylate - silicone
	Elastomère électrostrictif greffé	Matériau ferroélectrique type électrostrictif qui a la particularité d'être composé d'une matrice flexible et d'un polymère greffé sous forme cristalline.	- matrice : copolymère du chlorotrifluoroéthylène ou trifluoroéthylène - grèffe : P(VDF-TrFE)
	Papier électroactif	Matériau de type papier composé d'une multitude de particules (fibre naturelle) formant un réseau et combinant des propriétés piézoélectriques à une migration ionique.	- cellulose prise en sandwich entre deux électrodes métalliques : or, platine
Famille ionique	Gel ionique	Matériau qui devient dense (concentration) ou gonflé (étirement) lors du passage d'un environnement acide à un environnement alcalin.	- polyacrylonitryle
	Composite ionique (IPMC)	Matériau qui se courbe en réponse à un champ électrique par migration ionique au sein d'une membrane sélective d'ions .	- membrane sélective : Nafion ou Flemion - électrode : or, platine
	Polymère conducteur ionique (CP)	Matériau sujet à des réactions d'oxydoréduction qui induisent des variations de volume.	-CP : polypyrrone, polyaniline
	Nanotubes de carbone (CB)	Matériau dont la balance électronique entre nanotubes et électrolyte est modifiée par injection de charges, ce qui induit des changements de dimensions.	
	Fluide électrorhéologique	Matériau sujet à des migrations de particules qui fait varier les propriétés rhéologiques du fluide comme la viscosité	- LID 3554 de ER Fluid developments Ltd

TAB. 1.2.1: Avantages et inconvénients de chaque famille de polymères électroactifs [Jean-Mistral 08a].

Famille	Avantages	Inconvénients
Électronique	Force générée importante Temps de réponse court Fonctionne aux conditions ambiantes Durée de vie assez importante	Champ d'actionnement élevé (20 à $150 MV.m^{-1}$) Sens de déformation unique pour les couplages quadratiques
Ionique	Déplacements importants Champ d'actionnement faible ($10 MV.m^{-1}$) Sens de déformation en fonction de la polarité de l'alimentation	Temps de réponse lent Faible force générée Conditions de fonctionnement particulières (humide ...) Couplage électromécanique faible

1.3 Élastomère diélectrique et ses applications comme générateurs

1.3.1 Définition

Les élastomères diélectriques sont des polymères présentant des propriétés « élastiques », obtenues après réticulation. Ils supportent de très grandes déformations avant rupture et ils fonctionnent sur le principe d'une capacité variable. Ils peuvent convertir de l'énergie électrique en énergie mécanique et vice versa. Lorsque l'on applique une tension au matériau, sous l'action de la pression électrostatique dite de Maxwell, le matériau se déforme : mode d'opération actionneur [Pelrine 00b]. Ce processus est réversible, c'est à dire que ce type de matériau peut aussi convertir l'énergie mécanique (énergie de déformation) en énergie électrique : mode d'opération capteur ou générateur [Kornbluh 11b, Kornbluh 12a].

Ce type de matériau a été étudié en profondeur afin d'en améliorer ses propriétés et de développer des applications innovantes [Carpi 08b, Brochu 10]. C'est aujourd'hui un domaine de recherches qui attire l'attention des chercheurs mais également des industriels qui veulent participer au développement des transducteurs du futur. En effet, cette technologie est avantageuse par rapport aux autres par le faible coût de fabrication et la faible consommation d'énergie. Les sections suivantes détaillent les applications existantes en mode générateur, leurs avantages et les verrous qu'il reste à ouvrir.

1.3.2 Générateurs à base d'élastomères diélectriques

1.3.2.1 Principe de fonctionnement et performances

Les élastomères diélectriques se déforment sous l'action d'un champ électrique. Comme pour de nombreuses technologies, le processus est réversible et les élastomères diélectriques peuvent être utilisés en mode générateur (figure 1.3.1). Dans ce mode de fonctionnement, si on applique une tension électrique à un élastomère étiré, des charges électriques sont déposées au niveau des électrodes (phase B $\rightarrow$ C). Lorsque l'on relâche la contrainte mécanique, le film en élastomère se relaxe (phase $C \rightarrow D$), la contraction mécanique travaille contre la pression électrostatique. L'énergie électrique initialement stockée est alors amplifiée par cette énergie mécanique [Jean-Mistral 08a, Pelrine 01]. Plusieurs cycles énergétiques sont réalisables en fonction des conditions aux limites imposées : charge constante, tension constante ou champ électrique constant. Une phase de précontrainte ($0 \rightarrow A$) peut être ajoutée une fois avant tout cycle énergétique pour augmenter les performances du générateur ou s'éloigner d'une zone d'instabilité électromécanique [Kofod 08, Li 11a].

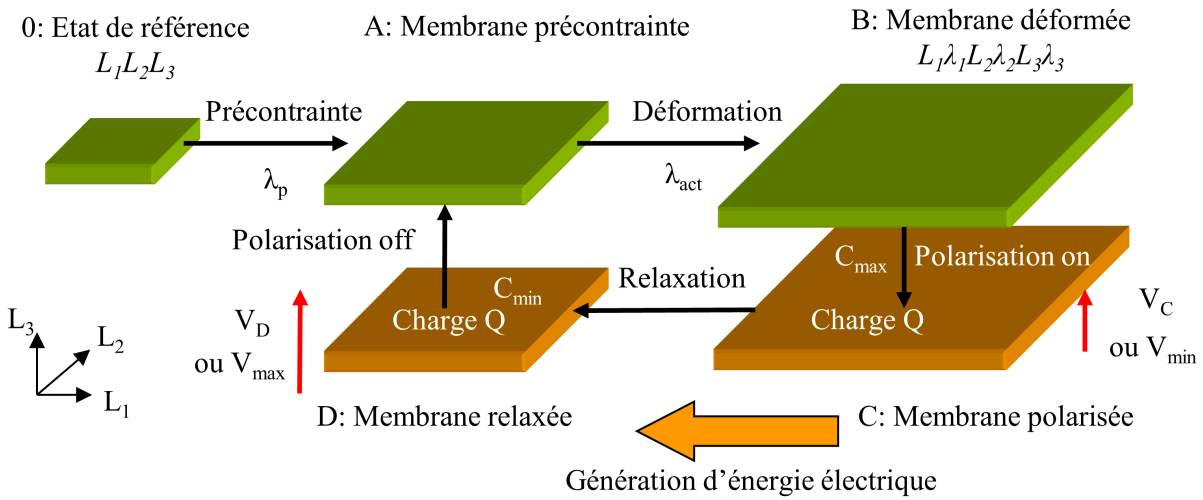


FIG. 1.3.1: Cycle énergétique d'un générateur à base d'élastomère diélectrique.

Une étude théorique présentée par [Koh 09] a montré une densité d'énergie récupérable d'environ $6,3 J.g^{-1}$ obtenue avec un générateur utilisant un élastomère diélectrique de type acrylate (VHB 3M), soit 100 fois plus qu'un polymère piézoélectrique.

Les générateurs à base d'élastomères diélectriques (nous adopterons par la suite le terme « DEGs » communément choisi par la communauté scientifique pour décrire ces générateurs) sont développés à la fois à petite échelle [Jean-Mistral 08b, McKay 10c] et à grande échelle [Chiba 08, Lin 11, Ahnert 11]. Nous pouvons citer quelques avantages :

1. Forte densité d'énergie, faible masse et encombrement réduit. Ces générateurs sont faciles d'utilisation en raison de transmissions mécaniques directes.
2. Très bon rendement sur une large gamme de fréquence. Ce type de générateur est particulièrement adapté aux applications à faibles fréquences, large déplacement (comme convertir l'énergie à partir des mouvements du corps humain, l'énergie des vagues, du vent...).
3. Grande surface de film élastomère réalisable à faible coût sans la présence de matières toxiques. Ce critère est un point très important afin de développer un générateur non polluant comme alternative aux technologies actuelles (nucléaires, solaires, ...).

Les avantages des DEGs et la comparaison avec d'autres technologies sont récapitulés au sein du tableau 1.3.1 [Kornbluh 12b].

TAB. 1.3.1: Comparaison entre un générateur réalisé en élastomère diélectrique et les autres technologies [Jean-Mistral 08a, Kornbluh 12b, Pelrine 01, Roundy 03].

Technologie	Module de Young	Densité d'énergie spécifique maximale $J.g^{-1}$	Rendement électromécanique maximal %	Commentaires
Élastomère diélectrique (Électrostatique)	$0,1-1$ MPa	0,4 (0,05 pour un fonctionnement à long termes) [Pelrine 01]	>50	- peu cher - faible module de Young - facile à modeler à petite ou grande échelle
Électromagnétique	-	0,004 [Roundy 03]	<20	- faible densité d'énergie - rendement très faible si on travaille sur une large gamme de fréquence
Polymère piézoélectrique	$3-10$ MPa	0,01 [Jean-Mistral 08a, Roundy 03]	>50	- structure complexe - matériau cher et toxique - non adaptable à grande échelle et aux grandes déformations

Néanmoins, les DEGs nécessitent une tension de polarisation souvent élevée afin de réaliser des cycles énergétiques. En effet, l'énergie électrique récupérée est fonction du carré de la tension de polarisation et varie linéairement avec la variation de la capacité de la structure. Ces générateurs sont donc optimaux pour de grandes déformations et sous haute tension de polarisation.

Il y a un grand nombre d'applications potentielles qui peuvent profiter des avantages des DEGs. Ces applications peuvent être classées suivant différents axes tels que : la taille, l'énergie produite, la configuration demandée et l'encombrement du générateur, la transmission mécanique. Mais la plus importante distinction reste l'application finale : la

récupération d'énergie (par exemple pour alimenter des capteurs) ou la production d'énergie électrique. Le tableau 1.3.2 met en évidence les avantages potentiels des élastomères diélectriques pour plusieurs catégories de sources d'énergie mécanique [Kornbluh 12b].

TAB. 1.3.2: Avantages des DEGs pour différentes sources mécaniques [Kornbluh 12b].

Application	Technologies	DEGs : avantages potentiels	DEGs : défis potentiels
Activité humaine	Électromagnétique, piézoélectrique	- haute densité d'énergie, - module de Young faible permettant de très bien se modeler à différentes sources et d'éviter des structures complexes	- électronique de commande plus complexe - nécessité de polariser la structure
Sources environnementales	Électromagnétique	- bien adapté aux différentes sources mécaniques - fabrication peu chère permettant de réaliser ces dispositifs à grande échelle	- la durée de vie est limitée pour des applications à grandes échelles - électronique de commande complexe
Sources combustibles	Électromagnétique	- forte densité d'énergie - peu cher - grande performance à faible fréquence et à haute température	- durée de vie limitée - électronique de commande complexe
Vibrations	Électromagnétique, piézoélectrique	- utilisable pour quelques sources d'énergie, permet de réaliser des structures simples, peu cher	- électronique de commande complexe

1.3.2.2 Dispositifs existants

Il existes plusieurs dispositifs de DEGs décrits dans la littérature, de petite échelle à grande échelle de conversion d'énergie. Nous présentons maintenant les prototypes existants.

1.3.2.2.1 Générateurs de dimension modérée (à petite échelle)

Les propriétés de légèreté, modularité, flexibilité des élastomères diélectriques en font des candidats potentiels pour des applications portables, nomades ou embarqués. L'institut de Recherche de Stanford (SRI International) a ainsi développé un DEG intégré dans le talon d'une chaussure [Pelrine 01].

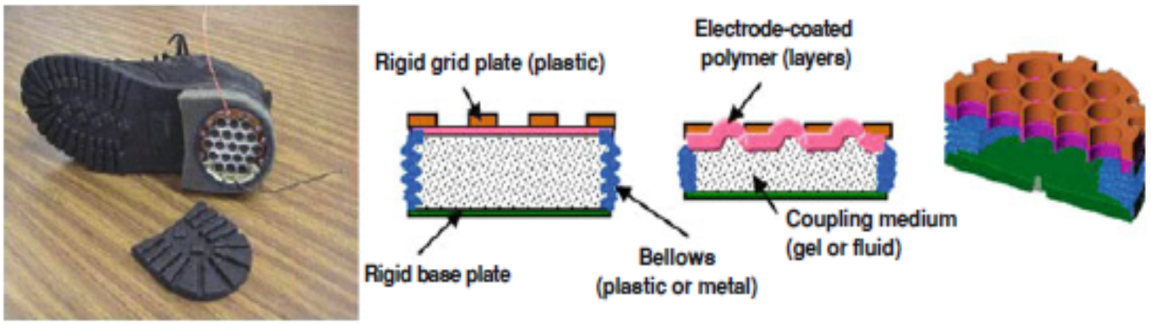


FIG. 1.3.2: DEG intégré dans le talon d'une chaussure : conception et localisation [Pelrine 01].

La compression au niveau du talon lors de la marche humaine permet de récupérer de l'énergie mécanique et ceci de façon transparente pour l'utilisateur. Le générateur est réalisé sous la forme d'un diaphragme couplé avec un fluide (ou gel) afin de transformer la compression du talon en déflexion de la membrane en élastomère diélectrique. Les diaphragmes dans ce dispositif sont constitués de 20 couches de film en élastomère diélectrique VHB 4910 (polyacrylate) précontraint. Ce dispositif, représenté sur la figure 1.3.2, est capable de produire $0,8J$ par pas sous une tension de polarisation de $2,5kV$, soit environ $1W$ en marche. Ce dispositif a démontré une densité d'énergie maximale d'environ $0,3J.g^{-1}$ en expérience. Soulignons qu'un réglage approprié de la quantité d'énergie mécanique absorbée au niveau du talon pourrait augmenter le confort (ou l'efficacité) lors de la marche de l'utilisateur en absorbant et en retournant une quantité optimale d'énergie par pas.

Une équipe néo-zélandaise a également développé un générateur souple installé au niveau du talon des chaussures mais en utilisant un élastomère silicone [McKay 13]. Le générateur est constitué de N couches de silicone (configuration stack) qui se compriment selon leurs épaisseurs sous l'action du talon du marcheur. Un circuit type pompe de charges [McKay 10b] composé de diodes et condensateurs en série et en parallèle a été utilisé afin d'amplifier et d'atteindre la haute tension utilisée comme source de polarisation pour le générateur. La tension de charge initiale peut donc être une batterie de quelque volts. Une densité d'énergie de $10mJ.g^{-1}$ et un rendement de 12% a été atteint par leur dispositif (figure 1.3.3).

En 2008, Jean-Mistral *et al* [Jean-Mistral 08b] ont présenté un DEG utilisant le VHB 4910 en précontrainte et localisé au niveau du genou (figure 1.3.4).

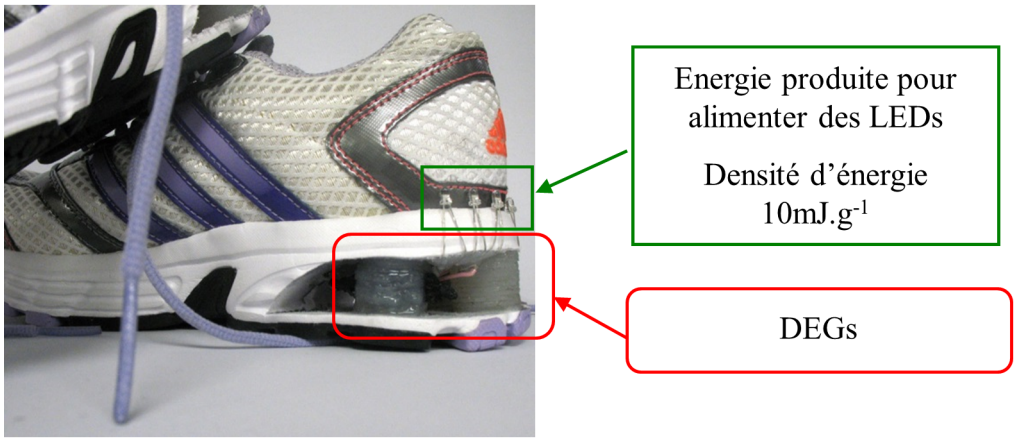


FIG. 1.3.3: DEG installé au niveau du talon d'une chaussure. Le circuit de pompe de charges est aussi intégré dans la chaussure [McKay 13].

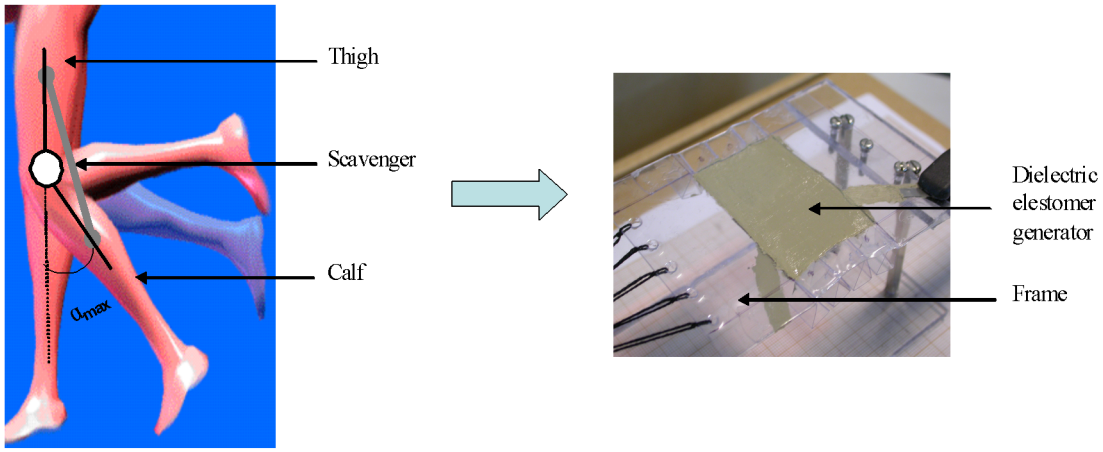


FIG. 1.3.4: Structure de récupération d'énergie à partir du mouvement du corps humain - Localisation et Forme [Jean-Mistral 08b].

Cette structure a une zone active de $5cm$x$3cm$ et une épaisseur de $31\mu m$ et est composé d'une seule couche de cet élastomère acrylate. Elle est compacte, légère et n'ajoute aucune charge lors de la marche (les forces mises en jeu étant volontairement faibles). Les auteurs ont choisi de développer un DEG utilisant une faible tension de polarisation ($< 300V$) favorisant ainsi les applications sur le corps humain. Ce générateur est capable de générer $0,1mJ$ pendant $1s$ sous une tension de polarisation de seulement $170V$, équivalent à une densité d'énergie spécifique de $2,1mJ.g^{-1}$. Sous une tension plus élevée ($1000V$), ce générateur récupère, fort logiquement, une puissance plus importante ($1,74mW$).

1.3.2.2.2 Générateurs de grande dimension (à grande échelle)

Nous avons précédemment montré que les élastomères diélectriques peuvent fonctionner sur une large gamme de fréquence, qu'ils ont la capacité de se coupler avec les sources mécaniques de type faible force et grande déformation telle que l'activité humaine. Ils montrent aussi une facilité de fabrication à grande échelle pour un faible coût [Kornbluh 11a]. Pour toutes ces raisons, des DEGs de grandes tailles ont vu le jour et exploitent principalement l'énergie des vagues, du vent ou les flux hydrauliques [Chiba 08, Kornbluh 11b, Lin 11, Maas 12].

Énergie des vagues

L'équipe du SRI International a développé un DEG permettant de convertir l'énergie des vagues [Chiba 08, Kornbluh 11b].

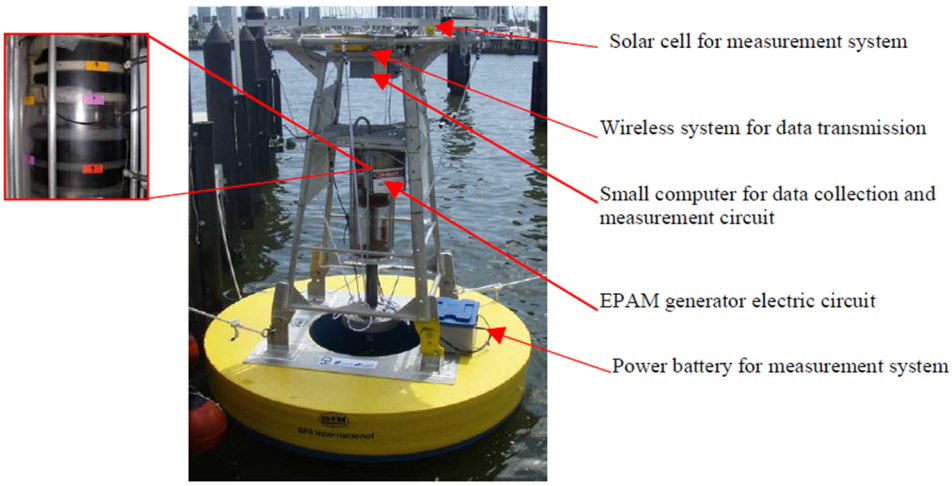


FIG. 1.3.5: DEG utilisant les vagues comme source mécanique d'entrée [Chiba 08].

La figure 1.3.5 représente une preuve de concept du système qui est basé sur l'utilisation directe de l'énergie hydrodynamique pour étirer mécaniquement et contracter la structure en élastomère diélectrique [Chiba 08]. Le mouvement oscillatoire des vagues induit le mouvement vertical d'une masse attachée au pied du générateur. Le générateur est composé de N modules sous forme tubulaire s'allongeant au grès des mouvements de la masse mobile. En laboratoire, le dispositif produit une énergie de sortie de plus de $25J$ sous une tension de polarisation de $2kV$. Environ $220g$ de matériau actif ont été nécessaire à la conception de ce système ce qui entraîne une densité d'énergie récupérée de plus de $0,1J.g^{-1}$. Ce système a été testé dans l'océan Pacifique près de Santa Cruz, en Californie,

USA et il a produit à peu près la moitié de cette densité d'énergie. Le rendement des circuits électroniques utilisés dans cet essai en mer était de 78%.

Une société localisée à Monaco (SBM Offshore) travaille aussi sur la thématique de la récupération d'énergie des vagues par élastomères diélectriques. Elle a développé un générateur ressemblant à un serpent posé sur l'eau [Jean 12] (figure 1.3.6). Cette structure a des périodes naturelles entre 0 et 15s compatibles avec les fréquences des ondes de la mer, de sorte qu'elle peut récupérer efficacement l'énergie des vagues sans contrôles actifs complexes.

FIG. 1.3.6: Générateur à base d'élastomère diélectrique installé sur l'océan, développé par SBM Offshore [Jean 12].

La structure est constituée d'un tube en élastomère diélectrique long fermé aux deux extrémités et rempli d'eau de mer, légèrement sous pression. Il n'y a pas d'air à l'intérieur du tube. Le tube flotte juste sous la surface, où l'énergie des vagues est la plus élevée. La pression statique à l'intérieur du tube est supérieure à la pression externe, de sorte que la paroi du tube en élastomère a une pré-déformation statique. Le tube peut se dilater ou se contracter selon son diamètre alors que sa longueur de 10m est maintenue constante à l'aide de renforts de fibres axiales. Lorsque les vagues passent au-dessus de la structure, elles appliquent une pression variant dans le temps sur la paroi du tube ce qui induit des changements locaux de diamètre. Les vagues de l'océan peuvent également déplacer le tube de haut en bas ce qui change sa pression interne. De la combinaison de ces deux phénomènes résulte une différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur du tube ce qui entraîne une déformation des films en élastomères diélectriques. L'énergie des vagues est alors récupérée et convertie en énergie électrique. Soulignons que le tube est segmenté en N dispositifs pour palier toute rupture potentielle de l'un d'eux. Un pic de puissance d'environ 2W a été observé pour cette structure, avec une tension de polarisation de

$2200V$ et une hauteur des vagues de $20cm$. Une puissance de $100W$ a été estimée pour cette structure sous ces mêmes conditions environnementales mais avec un élastomère diélectrique possédant une permittivité relative de 10 et fonctionnant sous un champ électrique de $60MV.m^{-1}$.

Énergie des flux hydrauliques

La figure 1.3.7 dévoile un dispositif de type « moulin à eau » avec un diamètre de $30cm$ qui tourne au grès des courants. Via le système de bielle manivelle et un bras de levier, la rotation du moulin est transformée en translation. Une force mécanique tire et comprime le générateur diélectrique (EPAM unit) qui n'est autre qu'un empilement de N couches d'élastomères polyacrylates (configuration stack). Cette structure est issue de la coopération entre SRI International et la société HYPER DRIVER Corp (Japon) [Chiba 11].

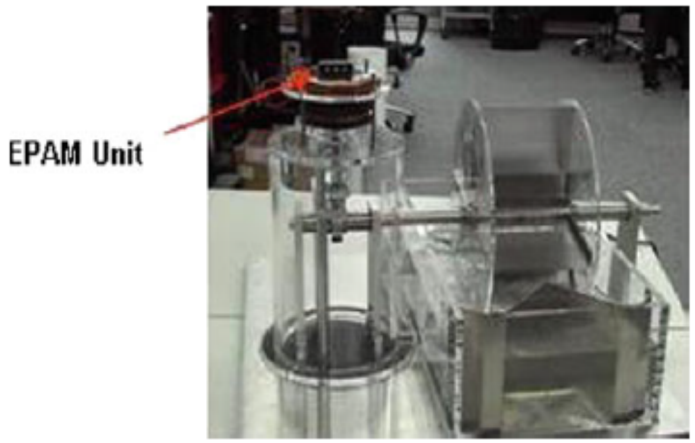


FIG. 1.3.7: DEG de type « moulin à eau » [Chiba 11].

Cette conception particulière repose sur une roue rotative classique, et permet de récupérer $35mJ$ par tour de roue, sous un petit débit de $280ml.s^{-1}$. Si le diamètre du moulin à eau augmente jusqu'à $80cm$, une énergie d'environ $5,4J$ à $6J$ par tour peut être récupérée.

Outre les flux de surface, des flux internes aux rivières ou océans peuvent également être exploités en utilisant la structure proposée par [Maas 12] (figure 1.3.8).

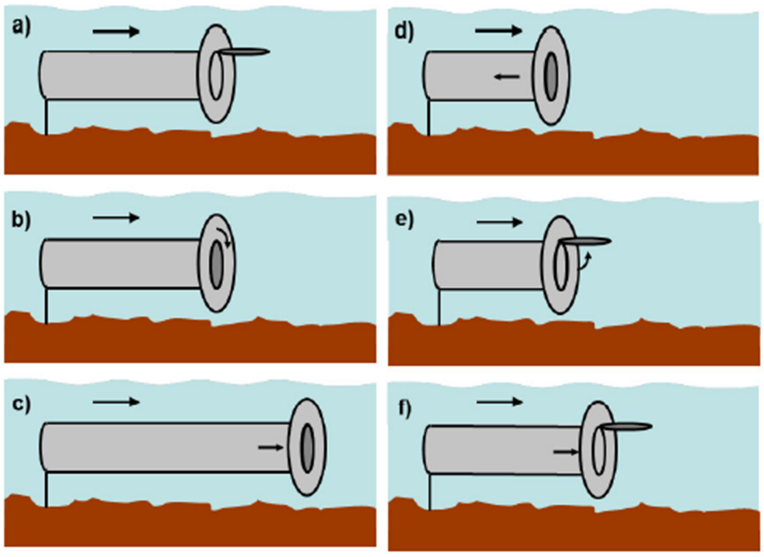


FIG. 1.3.8: Conception d'un DEG installé sous l'eau et profitant de l'énergie des flux de l'eau [Maas 12].

Le DEG se présente sous la forme d'un tube en élastomère diélectrique. Au début du cycle (figure 1.3.8.a), le générateur est ouvert et l'eau circule à travers lui dans la direction indiquée. En raison des forces mécaniques exercées par la bague extérieure rigide, le tube est pré-étiré. Tout d'abord, un mécanisme de connexion ferme la sortie du tube (figure 1.3.8.b). Par cette fermeture soudaine, une onde de choc est générée à l'intérieur du tube, ce qui augmente la pression de l'eau de façon significative. Par conséquent, le matériau élastique du tube s'étend selon la direction de l'écoulement. A l'état d'allongement maximal (figure 1.3.8c), l'élastomère diélectrique est chargé électriquement. En raison de la réflexion de l'onde de choc, le tube se contracte et retourne à sa longueur initiale (figure 1.3.8d). À la longueur minimale, le générateur est déchargé et le mécanisme d'action ouvre à nouveau le tube (figure 1.3.8.e). En conséquence, la structure est à son état initial (figure 1.3.8.f) et le cycle de récupération d'énergie peut recommencer.

Aux vues des applications présentées dans cette section, l'intérêt d'utiliser des élastomères diélectriques pour réaliser des générateurs électrostatiques convertissant l'énergie mécanique a été largement démontré. Le transducteur peut s'intégrer sur le corps humain grâce à sa bio-compatibilité et son faible poids , servant par exemple à alimenter des capteurs. Il peut également être installé sur ou dans les rivières, sur ou dans l'océan afin de récupérer l'énergie hydraulique, ou l'énergie des vagues et peut contribuer en partie à la production d'énergie électrique. Soulignons que des DEGs déformés par le vent ont aussi fait leur apparition mais pour l'instant à l'état de concept seulement [Lin 11].

1.4 Modélisation des DEGs

Les DEGs possèdent des performances non négligeables en comparaison aux technologies concurrentes (piézoélectrique ou électromagnétique). Il a ainsi clairement été montré que la densité d'énergie convertie par un générateur en élastomère diélectrique est importante et très prometteuse justifiant le développement de nouvelles structures innovantes. Afin de mieux concevoir et optimiser de telles structures, des modèles précis et complets doivent être mis en en place.

Il existe différentes méthodes pour modéliser des DEGs : une approche classique ou une approche thermodynamique. Le point commun entre toutes les modélisations est l'estimation de l'énergie récupérable qui n'est autre que la différence d'énergie électrostatique stockée dans la structure entre deux états : l'état de déformation maximale et l'état de repos [Pelrine 01, Jean-Mistral 08a] (figure 1.3.1).

$$W_{rec} = \frac{1}{2}\left(C_{min}V_{max}^2 - C_{max}V_{min}^2\right) \tag{1.4.1}$$

Notons que cette énergie est l'énergie maximale récupérable, calculée théoriquement et que cette formule simplifiée n'est pas applicable à tous les cas de figure (cycle à E constant par exemple). En pratique, l'énergie récupérable est calculée et optimisée pour un cycle de conversion d'énergie : charge constante (Q constant), tension constante (V constant) et champ électrique constant (E constant) [Graf 10a, Graf 10b]. De plus, les pertes d'origine mécaniques, diélectriques ou liées au circuit électronique de commande doivent être prise en compte pour obtenir des résultats précis [Jean-Mistral 10b]. Le modèle thermodynamique basé sur une approche énergétique permet de rendre compte le plus fidèlement possible des phénomènes mécaniques et électriques survenant au sein de l'élastomère diélectrique. Les modèles basés sur la mécanique classique atteignent leur limites dans le traitement des zones d'instabilités et ruptures qui peuvent endommager le matériau. Ainsi, Dorfmann *et al* sont partis d'une situation statique et ont présenté les équations thermodynamiques qui gouvernent un film d'élastomère capable de se déformer sous l'action électrostatique [Dorfmann 06]. Puis, la modélisation de type thermodynamique a été reprise et développée par [Suo 10, Zhao 07, Zhao 10]. Elle prend en compte en même temps l'effet des contraintes mécaniques et électrostatiques imposées sur le matériau et permet d'écrire toutes les ruptures auxquelles le matériau est soumis. Ce type de modélisation permet d'évaluer les performances, d'estimer l'énergie récupérable maximale et le rendement de conversion électromécanique d'un DEG.

1.4.1 Définition des conditions de fonctionnement

Dans un premier temps, nous considérons un système avec un matériau idéal, fonctionnant sous un champ électrique homogène et nous présentons le modèle thermodynamique

suggéré par [Dorfmann 06] et [Suo 10]. Afin d'écrire des équations simples, on considère une membrane en élastomère diélectrique, prise en sandwich entre deux électrodes souples et déformables. A l'état de référence, les dimensions du diélectrique sont $L_1L_2L_3$. A l'état actuel (i.e. état de fonctionnement déformé mécaniquement et sous champ électrique), le matériau subit des forces mécaniques P_1, P_2, P_3 et une tension V est imposée aux électrodes. Les dimensions actuelles sont $l_1l_2l_3$. Des charges $\pm Q$ sont accumulées sur les deux électrodes. L'énergie libre dite de Helmholtz de la structure est notée F (figure 1.4.1).

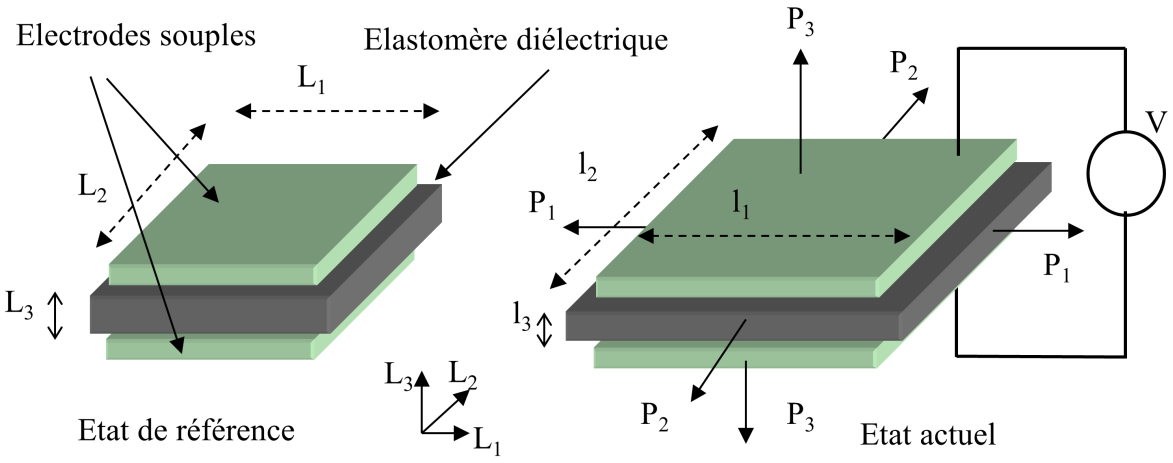


FIG. 1.4.1: État de référence et état actuel.

En fonctionnement pour une déformation infinitésimale, le travail des forces mécaniques est donné par $P_1\partial l_1 + P_2\partial l_2 + P_3\partial l_3$. Si les charges accumulées au niveau des électrodes varient d'une petite quantité ∂Q, le travail électrique associé est donné par $V\partial Q$. La variation de l'énergie libre du transducteur ∂F est égale aux variations des travaux mécaniques et électriques et est donnée par :

$$\partial F = P_1\partial l_1 + P_2\partial l_2 + P_3\partial l_3 + V\partial Q \tag{1.4.2}$$

avec $\partial l_1, \partial l_2, \partial l_3$: les variations de dimensions suivant les directions L_1, L_2, L_3 et δQ est la variation de charge.

1.4.2 Équations d'état en terme de grandeurs lagrangiennes

Le tableau 1.4.1 regroupe les définitions des grandeurs lagrangiennes électriques et mécaniques communément utilisées. Ces grandeurs sont définis par rapport à l'état de référence (figure 1.4.1).

TAB. 1.4.1: Définitions des grandeurs lagrangiennes.

Grandeurs lagrangiennes	Formule
Densité d'énergie libre	$\tilde{w} = \frac{F}{L_1 L_2 L_3}$
Contraintes	$\sigma_1 = \frac{P_1}{L_2 L_3}$, $\sigma_2 = \frac{P_2}{L_1 L_3}$, $\sigma_3 = \frac{P_3}{L_1 L_2}$
Coefficients d'extension	$\lambda_1 = \frac{l_1}{L_1}$, $\lambda_2 = \frac{l_2}{L_2}$,$\lambda_3 = \frac{l_3}{L_3}$.
Champ électrique nominal	$\tilde{E} = \frac{V}{L_3}$
Vecteur de déplacement électrique nominal	$\tilde{D} = \frac{Q}{L_1 L_2}$

L'équation 1.4.2 peut être écrite sous forme nominale en la divisant par $L_1 L_2 L_3$:

$$\partial \tilde{w} = \sigma_1 \partial \lambda_1 + \sigma_2 \partial \lambda_2 + \sigma_3 \partial \lambda_3 + \tilde{E} \partial \tilde{D} \tag{1.4.3}$$

Pour un matériau, la densité d'énergie nominale d'Helmholtz est une fonction de quatre variables indépendantes (équation 1.4.4) :

$$\tilde{w} = \tilde{w}(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \tilde{D}) \tag{1.4.4}$$

En insérant l'équation 1.4.4 dans l'équation 1.4.3, on obtient :

$$\left(\frac{\partial \tilde{w}}{\partial \lambda_1} - \sigma_1\right) \partial \lambda_1 + \left(\frac{\partial \tilde{w}}{\partial \lambda_2} - \sigma_2\right) \partial \lambda_2 + \left(\frac{\partial \tilde{w}}{\partial \lambda_3} - \sigma_3\right) \partial \lambda_3 + \left(\frac{\partial \tilde{w}}{\partial \tilde{D}} - E\right) \partial \tilde{D} = 0 \tag{1.4.5}$$

Cette condition d'équilibre est toujours valide pour toutes les petites variations de $\partial\lambda_1$, $\partial\lambda_2$, $\partial\lambda_3$ et $\partial\tilde{D}$. Chaque état du transducteur en élastomère diélectrique doit donc satisfaire la condition présentée dans l'équation 1.4.5. On peut alors en déduire les équations suivantes :

$$\sigma_1 = \frac{\partial \tilde{w}(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \tilde{D})}{\partial \lambda_1} \tag{1.4.6}$$

$$\sigma_2 = \frac{\partial \tilde{w}(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \tilde{D})}{\partial \lambda_2} \tag{1.4.7}$$

$$\sigma_3 = \frac{\partial \tilde{w}(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \tilde{D})}{\partial \lambda_3} \tag{1.4.8}$$

$$\tilde{E} = \frac{\partial \tilde{w}(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \tilde{D})}{\partial \tilde{D}} \tag{1.4.9}$$

L'ensemble d'équations (1.4.6 - 1.4.9) définit l'état du transducteur et nous permet d'estimer la valeur des contraintes principales et la valeur du champ électrique afin d'équilibrer la structure à l'état (λ_1,λ_2,λ_3,$\tilde{D}$) lorsque la densité d'énergie $\tilde{w}(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \tilde{D})$ du matériau est définie.

1.4.3 Équations d'état en terme de grandeurs eulériennes

On présente maintenant les équations d'état avec les quantités eulériennes (quantités actuelles ou "trues quantities" en anglais). L'équation de l'équilibre est toujours l'équation 1.4.2 mais les variables sont différentes. Le tableau 1.4.2 regroupe les définitions des grandeurs eulériennes électriques et mécaniques communément utilisées.

TAB. 1.4.2: Définitions des grandeurs eulériennes.

Grandeurs eulériennes	Formule
Densité d'énergie libre	$w = \frac{F}{l_1 l_2 l_3}$
Contraintes	$T_1 = \frac{P_1}{l_2 l_3}$, $T_2 = \frac{P_2}{l_1 l_3}$, $T_3 = \frac{P_3}{l_1 l_2}$
Champ électrique	$E = \frac{V}{l_3}$
Vecteur de déplacement électrique	$D = \frac{Q}{l_1 l_2}$

Lors du fonctionnement du transducteur en élastomère diélectrique, les paramètres Q, l_1, l_2 varient. On en déduit alors la variation de charges accumulées au niveau des électrodes :

$$\partial Q = D l_2 \partial \lambda_1 + D l_1 \partial \lambda_2 + l_1 l_2 \partial D \tag{1.4.10}$$

En remplaçant l'équation 1.4.10 dans l'équation 1.4.2, et en divisant l'ensemble de l'équation par $l_1 l_2 l_3$ on obtient :

$$\partial w = \left(\frac{T_1}{\lambda_1} + DE\lambda_2\lambda_3 \right) \partial \lambda_1 + \left(\frac{T_2}{\lambda_2} + DE\lambda_1\lambda_3 \right) \partial \lambda_2 + \frac{T_3}{\lambda_3} \partial \lambda_3 + E \partial D \tag{1.4.11}$$

Comme remarqué dans la section précédente, la densité d'énergie libre de Helmholtz est une fonction de quatre variables :

$$w = w(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, D) \tag{1.4.12}$$

En insérant l'équation 1.4.12 dans l'équation 1.4.11 on obtient :

$$\left[\frac{\partial w}{\partial \lambda_1} - \left(\frac{T_1}{\lambda_1} + DE\lambda_2\lambda_3\right)\right]\partial\lambda_1 + \left[\frac{\partial w}{\partial \lambda_2} - \left(\frac{T_2}{\lambda_2} + DE\lambda_1\lambda_3\right)\right]\partial\lambda_2 + \left[\frac{\partial w}{\partial \lambda_3} - \frac{T_3}{\lambda_3}\right]\partial\lambda_3 + \left(\frac{\partial w}{\delta D} - E\right)\partial D = 0 \quad (1.4.13)$$

Cette condition d'équilibre est toujours valide pour toutes les petites variations de $\partial\lambda_1$, $\partial\lambda_2$, $\partial\lambda_3$ et ∂D. Chaque état du transducteur en élastomère diélectrique doit satisfaire la condition présentée dans l'équation 1.4.13, on peut alors en déduire les équations suivantes.

$$T_1 = \lambda_1 \frac{\partial w(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, D)}{\partial \lambda_1} - ED\lambda_1\lambda_2\lambda_3 \quad (1.4.14)$$

$$T_2 = \lambda_2 \frac{\partial w(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, D)}{\partial \lambda_2} - ED\lambda_1\lambda_2\lambda_3 \quad (1.4.15)$$

$$T_3 = \lambda_3 \frac{\partial w(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, D)}{\partial \lambda_3} \quad (1.4.16)$$

$$E = \frac{\partial w(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, D)}{\partial D} \quad (1.4.17)$$

L'ensemble des équations (1.4.14 - 1.4.17) nous permet d'estimer la valeur des contraintes actuelles et la valeur du champ électrique appliqué au transducteur.

Il faut noter que le couplage entre les propriétés mécaniques et électriques du matériau est représenté par la fonction $\tilde{w}(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \tilde{D})$ ou $w(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, D)$.

1.4.4 Modèle thermodynamique pour l'élastomère diélectrique idéal

La première considération est que l'élastomère diélectrique travaille à volume constant, ce qui se traduit par :

$$L_1L_2L_3 = l_1l_2l_3 \rightarrow \lambda_1\lambda_2\lambda_3 = 1 \quad (1.4.18)$$

La loi 1.4.18 nous permet de relier entre eux les coefficients d'extensions principaux λ_i. Dans ce cas, si on considère que λ_1 et λ_2 sont des variables indépendantes, on déduit :

$$\lambda_3 = \frac{1}{\lambda_1\lambda_2} \quad (1.4.19)$$

et

$$\partial\lambda_3 = -\frac{\partial\lambda_1}{\lambda_1^2\lambda_2} - \frac{\partial\lambda_2}{\lambda_1\lambda_2^2} \tag{1.4.20}$$

En remplaçant l'équation 1.4.20 dans l'équation 1.4.11, on obtient :

$$\partial w = \frac{T_1 - T_3 + DE}{\lambda_1}\partial\lambda_1 + \frac{T_2 - T_3 + DE}{\lambda_2}\partial\lambda_2 + E\partial D \tag{1.4.21}$$

Pour un élastomère diélectrique idéal, on peut considérer que la constante diélectrique est indépendante de la déformation. La relation entre le vecteur de déplacement et le champ électrique peut être écrite comme :

$$E = \frac{D}{\varepsilon_0\varepsilon_r^{'}} \tag{1.4.22}$$

où ε_0 est le permittivité du vide et $\varepsilon_r^{'}$ est la permittivité relative du matériau.

La densité d'énergie libre w, en formulation eulérienne correspond à l'énergie de déformation et l'énergie électrostatique, est donnée par l'équation :

$$w(\lambda_1, \lambda_2, D) = w_S(\lambda_1, \lambda_2) + \frac{D^2}{2\varepsilon_0\varepsilon_r^{'}} \tag{1.4.23}$$

Dans cette équation, $w_S(\lambda_1, \lambda_2)$ est liée à la densité d'énergie de déformation de l'élastomère. L'équation 1.4.23 représente le modèle du comportement de l'élastomère diélectrique idéal. Dans ce modèle, la déformation de l'élastomère et la source de polarisation contribuent indépendamment à l'énergie libre totale du transducteur. En remplaçant l'équation 1.4.22 dans l'équation 1.4.21, on obtient :

$$T_1 - T_3 = \lambda_1\frac{\partial w_S(\lambda_1, \lambda_2)}{\delta\lambda_1} - \varepsilon_0\varepsilon_r^{'}E^2 \tag{1.4.24}$$

$$T_2 - T_3 = \lambda_2\frac{\partial w_S(\lambda_1, \lambda_2)}{\delta\lambda_2} - \varepsilon_0\varepsilon_r^{'}E^2 \tag{1.4.25}$$

L'ensemble des équation 1.4.18, 1.4.22, 1.4.23 - 1.4.25 représente les équations d'état pour un transducteur en élastomère diélectrique idéal, travaillant à volume constant, où l'énergie de déformation $w_S(\lambda_1, \lambda_2)$ et la constante diélectrique $\varepsilon_r^{'}$ sont déterminées.

1.4.5 Instabilités des DEGs et zone de fonctionnement

1.4.5.1 Instabilités des DEGs

Notre étude se concentre sur les élastomères diélectriques, dont la déformation varie de 10% jusqu'à 300% ou 500% pour certains. Durant son activité, des dysfonctionnements du DEG peuvent apparaître. Différents types d'instabilités (défaillances) du DEG en élastomère diélectrique sont présentés ci-dessous[Plante 06, Koh 11b].

– **Claquage électrique (EB pour « Electrical Breakdown »)**

Lors de son fonctionnement, l'élastomère diélectrique est soumis à une tension de polarisation. Si cette tension de polarisation dépasse la limite de tension de claquage du matériau, un canal de conduction peut être généré et un arc électrique est formé (figure 1.4.2).

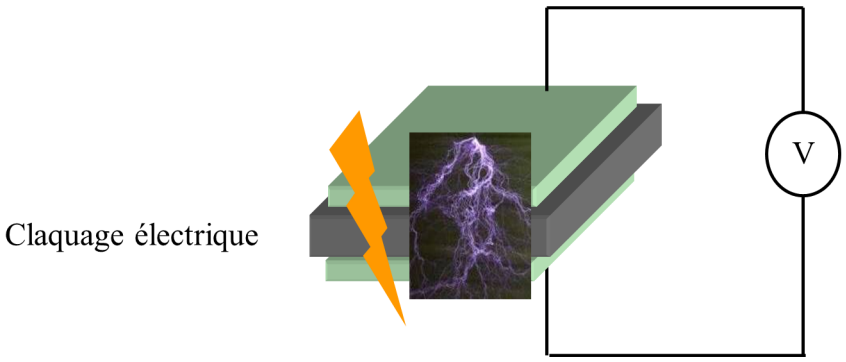


FIG. 1.4.2: Phénomène de claquage électrique au sein d'un élastomère diélectrique.

Cette condition de fonctionnement est déterminée par :

$$E \leq E_{claquage} \tag{1.4.26}$$

– **Instabilité électromécanique (EMI pour « ElectroMechanical Instability »)**

Le phénomène d'instabilité électromécanique (aussi appelé "pull-in") apparait quand la force d'attraction de type Coulombienne (contrainte de Maxwell) imposée à l'élastomère diélectrique par la source de polarisation est supérieure à la force élastique du matériau. Dans ce cas là, le matériau claque à un champ électrique bien inférieur à son champ de claquage. Ce phénomène est observé pour la première fois par [Stark 55] qui ont ensuite développé un modèle permettant de prédire la limite du champ de claquage d'un film d'élastomère associé à ce type d'instabilité.

Physiquement, l'instabilité électromécanique est la réaction entre l'augmentation du champ électrique et la diminution de l'épaisseur du matériau qui conduit à une réduction dramatique de son épaisseur. Ce phénomène constitue un paramètre important qui limite les très larges déformations et le fonctionnement de transducteurs en élastomère diélectrique. Largement étudié dans la littérature [Zhao 07, Leng 09, Zhao 10, Xu 10, Li 11c, Koh 11a], de nombreux paramètres peuvent influencer ce type d'instabilité tels que la température [Li 11a, Sheng 12], la variation de la permittivité relative, la variation du comportement mécanique du matériau.

La figure 1.4.3 représente l'instabilité électromécanique pour un transducteur utilisant un élastomère diélectrique.

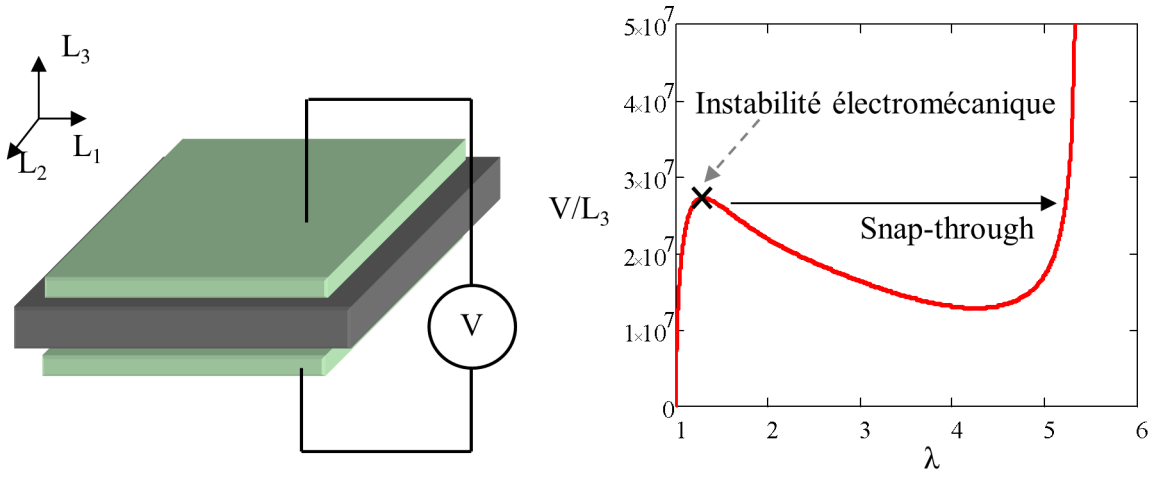


FIG. 1.4.3: Instabilité électromécanique et allure de la courbe « champ électrique nominal - déformation » d'un transducteur en élastomère diélectrique. Après l'instabilité électromécanique, un autre type d'instabilité peut avoir lieu : le "snap-through" ou flambage.

Lorsque la force appliquée au matériau est maintenue constante, la tension V est une fonction de la déformation λ. Le pic de la fonction $V(\lambda)$ correspond à la condition d'EMI (équation 1.4.27) [Zhao 07]. Si le matériau réussit à franchir l'EMI, il peut alors se stabiliser à un état où son épaisseur est beaucoup plus petite, ce qui conduit un autre type d'instabilité appelée "snap-through" [Zhao 10, Li 11a] (figure 1.4.3).

$$\frac{\partial V}{\partial \lambda} = 0 \tag{1.4.27}$$

– **Perte de tenue (LT pour « Loss of Tension »)**

En fonctionnement, le matériau doit être maintenu sous contrainte (soit mécanique, soit électrique). Si une contrainte de compression dans le plan apparaît, il y aura des zones dans le matériau qui vont se déformer hors du plan (vaguelettes ou rides), favorisant ainsi le « pull-in » ou le claquage électrique [Plante 06] (figure 1.4.4).

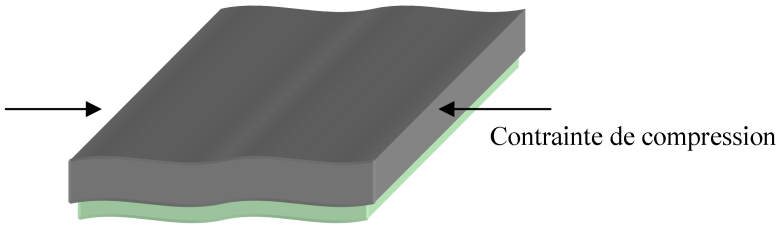


FIG. 1.4.4: Élastomère diélectrique sous l'effet d'une contrainte de compression.

La condition de l'instabilité de perte de tenue peut être déterminée par :

$$T_i \geq 0 \tag{1.4.28}$$

avec i direction suivant les contraintes principales ($i = 1, 2$)

– **Rupture mécanique**

Un élastomère est constitué de longues chaînes moléculaires, appelées macromolécules, qui sont repliées sur elles-mêmes au repos : c'est la pelote statistique. Les interactions entre les chaînes sont faibles (faible cohésion). Sous l'action d'une contrainte externe, les chaînes possèdent de très nombreuses possibilités conformationnelles (par rotation autour des liaisons carbone-carbone). Ces chaînes macromoléculaires repliées sur elles-mêmes s'enchevêtrent avec leurs voisines et définissent un matériau élastique sous faible contrainte.

Lorsque l'on applique une forte contrainte, les chaînes vont se déployer, glisser et finir par se désolidariser les unes par rapport aux autres. L'élastomère est alors capable de supporter de très grandes déformations sans se rompre et il peut atteindre des allongements de rupture largement supérieurs à 100%, tout en possédant une résistance à la rupture relativement élevée. La condition de non rupture mécanique est déterminée par un coefficient d'extension inférieur à celui de la rupture.

$$\lambda \leq \lambda_{lim} \tag{1.4.29}$$

1.4.5.2 Zone de fonctionnement des DEGs

Grâce au système d'équations d'état, le fonctionnement d'un DEG peut être illustré dans deux plans conjugués : plan mécanique $\sigma - \lambda$ ou plan électrique $V - Q$. Chaque point dans l'un ou l'autre de ces deux plans correspond à un état du transducteur. Une courbe dans un plan ou l'autre représente un trajet de fonctionnement, un contour fermé constitue un cycle de fonctionnement, et l'aire déterminée par le contour représente l'énergie de conversion par cycle. Un cycle de fonctionnement théorique, limité par les différents modes de défaillances décrits précédemment, permet d'estimer l'énergie électrique récupérable maximale [Kaltseis 11, Koh 09, Liu 10]. Par exemple, la figure 1.4.5 illustre la zone de fonctionnement d'un polyacrylate(VHB 4910 - 3M) en déformation biaxiale [Koh 09]. Les différents modes de défaillances y sont reportés et la zone de fonctionnement pour ce diélectrique est représentée par l'aire grisée. Le cycle énergétique du générateur (figure 1.3.1) doit être inclus dans cette zone grisée. Un cycle est défini dans le sens horaire dans le plan mécanique $\left(\frac{\sigma}{Y} - \lambda\right)$, et antihoraire dans le plan électrique $\left(\frac{\tilde{E}}{\sqrt{Y/\varepsilon_r'}} - \frac{\tilde{D}}{\sqrt{Y\varepsilon_r'}}\right)$: points 1 - 2 - 3 - 4 de la figure 1.4.5. En supposant un cycle énergétique qui suit parfaitement les limites de la zone de fonctionnement, le DEG réalisé en polyacrylate VHB 4910 de 3M peut récupérer $6,3 J.g^{-1}$ au maximum en théorie.

Le modèle présenté ici était idéal et ne tenait pas compte des variations des comportements mécaniques et électriques du matériau ni des pertes au sein du matériau. Il est donc nécessaire de proposer un modèle plus fiable et réaliste intégrant les différentes pertes du matériau mais aussi les couplages électromécaniques entre les paramètres ou les phénomènes physiques jusque là négligés.

1.4.5.3 Chaîne de conversion d'énergie

En considérant toutes les pertes, la chaîne de conversion peut être représentée suivant la figure 1.4.6.

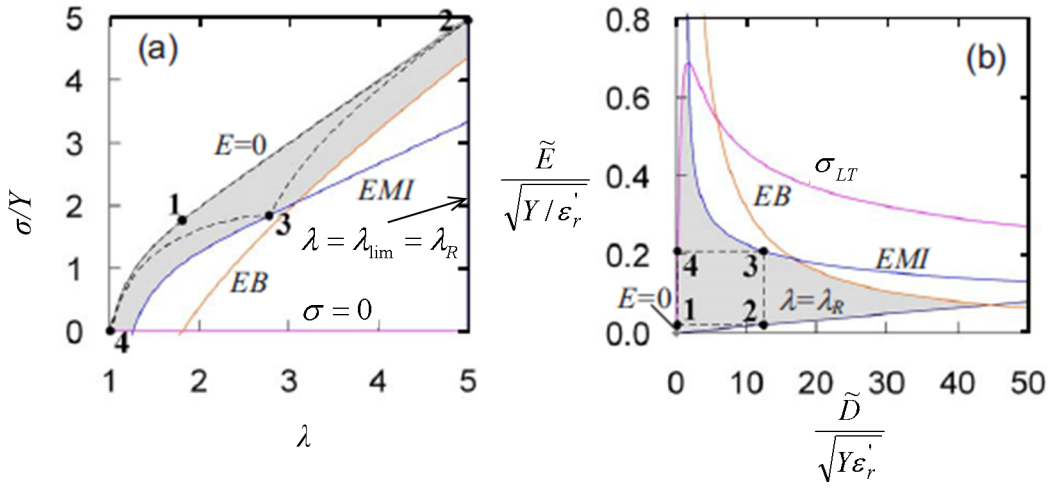


FIG. 1.4.5: Différents modes de défaillances d'un générateur à base d'élastomère diélectrique VHB : plan mécanique (a) et plan électrique (b) [Koh 09]. Y est le module de Young du matériau.

Le rendement total d'un générateur est donné par l'équation :

$$\eta_t = \eta_{abs}\eta_{conv}\eta_{ges} = \frac{W_S}{W_{méc}}\frac{W_{réc}}{W_S}\frac{W_{utile}}{W_{réc}} = \frac{w_S}{w_{méc}}\frac{w_{réc}}{w_S}\frac{w_{utile}}{w_{réc}} \tag{1.4.30}$$

Les définitions des grandeurs dans l'équation 1.4.30 sont reportées dans le tableau 1.4.3. Notons que la densité d'énergie w est obtenue par le rapport entre l'énergie W et le volume du matériau actif.

TAB. 1.4.3: Définitions des rendements et des énergies dans la chaîne de conversion d'énergie par un DEG.

Grandeurs	Symboles
Rendement d'absorption mécanique	η_{abs}
Rendement de la conversion électromécanique	η_{conv}
Rendement de l'ensemble des circuits électriques et électronique associés	η_{ges}
Énergie ou densité d'énergie mécanique absorbée par l'élastomère diélectrique	W_S ou w_S
Énergie ou densité d'énergie mécanique ambiante imposée à l'élastomère diélectrique	$W_{méc}$ ou $w_{méc}$
Énergie ou densité d'énergie récupérable	$W_{réc}$ ou $w_{réc}$
Énergie ou densité d'énergie utilisable	W_{utile} ou w_{utile}

Nous ne développons pas de circuits de commande dans cette thèse et nous supposerons un rendement optimisé pour ces derniers. Nous ne regardons donc que les rendements d'absorption mécanique et le rendement de conversion électromécanique. Le rendement d'absorption mécanique est donné par l'équation 1.4.31 :

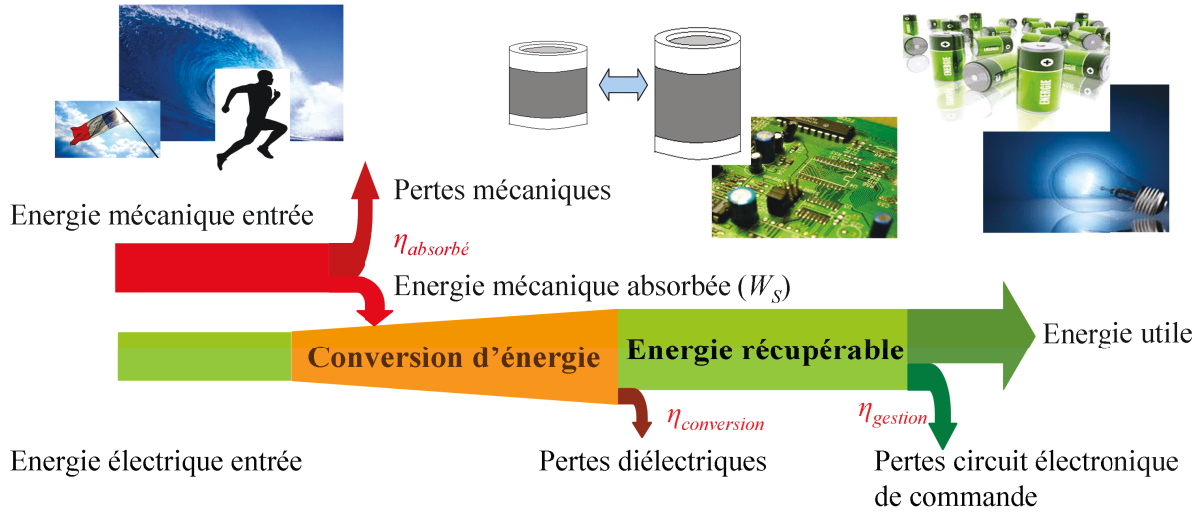


FIG. 1.4.6: Chaîne de conversion d'énergie électromécanique.

$$\eta_{abs} = \frac{W_S}{W_{méc}} = \frac{W_S}{W_S + \Delta W_{Sd}} = \frac{w_S}{w_S + \Delta w_{Sd}} \tag{1.4.31}$$

avec ΔW_{Sd} et Δw_{Sd} : pertes et densité de pertes mécaniques du matériau.

Le rendement électromécanique est défini par le rapport entre l'énergie récupérable et l'énergie mécanique absorbée par le matériau :

$$\eta_{conv} = \frac{W_{réc-max} - \Delta W_{dielec}}{W_S} = \frac{w_{réc-max} - \Delta w_{dielec}}{w_S} \tag{1.4.32}$$

avec $\Delta W_{diélec}$ et $\Delta w_{diélec}$: pertes et densité de pertes diélectriques du matériau. $W_{réc-max}$ et $w_{réc-max}$: énergie et densité d'énergie récupérable maximale.

Dans le cas idéal où le matériau ne développe aucunes pertes diélectriques, le rendement de conversion électromécanique idéal vaut :

$$\eta_{conv-i} = \frac{W_{réc-max}}{W_S} = \frac{w_{réc-max}}{w_S} \tag{1.4.33}$$

avec $W_{réc-max}$: énergie récupérable maximale et ΔW_{dielec} : pertes diélectriques au sein du matériau (équation 2.3.4).

La conversion globale de l'élastomère diélectrique est définie par le rapport entre l'énergie récupérable et l'énergie mécanique imposée :

$$\eta_{mat} = \eta_{abs}\eta_{conv} = \frac{w_S}{w_S + \Delta w_{Sd}} \frac{w_{réc-max} - \Delta w_{dielec}}{w_S} = \frac{w_{réc-max} - \Delta w_{dielec}}{w_S + \Delta w_{Sd}} \tag{1.4.34}$$

A l'aide du système d'équations (1.4.30 - 1.4.34), les performances d'un élastomère diélectrique peuvent être évaluées via les énergies ou densités d'énergie récupérables et les rendements d'absorption, de conversion électromécaniques et globaux du matériau.

1.4.6 Facteurs influençant les performances des DEGs - Justification des objectifs de ce travail de thèse

1.4.6.1 Au niveau des élastomères diélectriques

Nous avons présenté le mécanisme de conversion d'énergie pour les élastomères diélectriques et leur modélisation par le principe thermodynamique. La modélisation thermodynamique permet de coupler ensemble les comportements mécaniques et électriques du matériau afin de déterminer la zone de fonctionnement, d'évaluer les performances (en terme de densité d'énergie, de puissance et de rendement) et de réaliser ainsi des optimisations pour le fonctionnement du dispositif. Les caractéristiques mécaniques et électriques du matériau influencent profondément les performances des DEGs. En considérant acquis (ce qui n'est pas le cas aujourd'hui) les modèles pour optimiser et dimensionner les DEGs, il n'en resterait pas moins vrai que les paramètres physiques du matériau à injecter dans ces modèles ne sont pas encore bien établis, et ceci est particulièrement vrai pour les matériaux les plus utilisés comme les élastomères silicones et acrylates. Par exemple, la constante diélectrique du polyacrylate VHB 4910 est une fonction de différents paramètres tels que la fréquence, la température mais aussi la déformation et le type d'électrode accolé à l'élastomère [Jean-Mistral 10c, Kofod 03, McKay 09]. Toutes ces dépendances doivent être clairement mesurées et analysées pour pouvoir obtenir des lois d'évolution des paramètres du matériau plus justes amenant ainsi à une amélioration des modèles utilisés par la communauté scientifique.

Les élastomères diélectriques pour des applications en mode actionneur constituent un axe de recherche développé au niveau international, en particulier du fait des applications nombreuses et à fort potentiel de développement industriel comme les muscles artificiels et tous types de capteur. Concernant le développement de nouveaux matériaux pour les DEGs, il y a très peu de recherches consacrées à l'élaboration d'élastomères spécifiques pour les générateurs. Les matériaux optimisés pour des applications en mode actionneur ne sont pas optimaux dès lors que l'on s'intéresse à un fonctionnement en mode générateur. Le matériau idéal pour un DEG doit avoir peu de pertes mécaniques, une constante diélectrique élevée, peu de pertes diélectriques, un fort champ de claquage, et une forte densité d'énergie récupérable ... Il est nécessaire également que le matériau ne soit pas sujet à l'instabilité électromécanique et de plus il doit supporter un très grand nombre de cycles de fonctionnement. Ce matériau idéal que nous décrivons n'existe malheureusement pas. Différentes stratégies d'amélioration de l'élastomère diélectrique ont été proposées dans la littérature pour améliorer sa constante diélectrique comme : le mélange de particules

isolantes [Liu 12, Molberg 10] ou conductrices [Stoyanov 09, Zhang 04] dans la matrice polymère ou encore la greffe de dipôles dans une matrice d'élastomère [Carpi 08a, Risse 12]. Pour chaque stratégie envisagée, les caractéristiques mécaniques et électriques varient fortement. Il faut donc bien comprendre les liens existants entre les différents paramètres physiques du matériau et les compromis à adopter afin de proposer une ou des stratégies de développement de matériaux particulièrement adaptés au fonctionnement optimisé des DEGs.

1.4.6.2 Au niveau des circuits électroniques de puissance et de commande

Les DEGs fonctionnent comme des générateurs électrostatiques et une source de tension de polarisation extérieure est nécessaire afin de réaliser des cycles énergétiques. Le circuit le plus élémentaire nécessite une source haute tension, deux interrupteurs et une charge (figure 1.4.7).

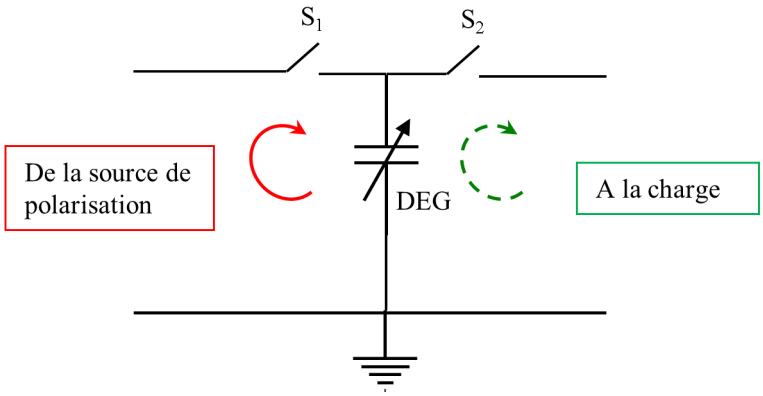


FIG. 1.4.7: Circuit de base pour un DEG. Une tension de polarisation est appliquée au DEG à l'aide de l'interrupteur S_1 quand la valeur de la capacité du DEG est maximale. Une fois que le matériau est relaxé, l'interrupteur S_2 est fermé et l'énergie est transférée à la charge.

Les circuits électroniques de puissance et de commande doivent assurer au moins deux fonctions : charger et décharger le DEG aux moments opportuns. Il existe différents circuits, du plus simple qui se compose de diodes au plus complexe avec des interrupteurs commandables et des éléments de stockage intermédiaire de l'énergie. Un circuit de puissance et de gestion plus complexe augmente le rendement des générateurs diélectriques et permet donc de récupérer plus d'énergie. Mais un tel système exige cependant, un circuit de commande plus complexe. Cette complexité des circuits entraîne un coût et des besoins en énergie supplémentaire sans compter un risque de dysfonctionnement accru. Enfin, ces circuits sont rigides et le DEG devient plus lourd et encombrant Il existe donc un vrai challenge à trouver des solutions innovantes et/ou alternatives à ces circuits d'alimentation et de commande.

1.4.6.3 Tentatives d'optimisation des DEGs dans le cadre de cette thèse

Comme on vient de le présenter dans les deux sous-paragraphes précédents, deux voies principales et complémentaires apparaissent pour réussir le développement et l'extension des générateurs à base d'élastomères diélectriques souples :

1. La première voie consiste à se concentrer sur l'élastomère diélectrique. A ce niveau de préoccupation, les améliorations sur lesquelles nous nous sommes penchées peuvent se décliner selon deux axes. Le premier axe a consisté à approfondir et étendre les caractérisations mécaniques et électriques (propriétés diélectriques et rigidité diélectrique) sur les deux élastomères parmi les plus utilisés pour ces applications (un élastomère silicone et un polyacrylate). Pour cela, des caractérisations ont été menées sur de larges plages de fréquence et de température pour lesquelles des résultats parcellaires étaient donnés dans la littérature. Un point particulièrement important aura consisté à mener l'ensemble de ces caractérisations suivant différentes élongations du matériau ce qui aura permis de clarifier les résultats dispersés observés dans la littérature. Ces travaux feront l'objet du chapitre 2 et les résultats obtenus permettront de compléter les modèles thermodynamiques existants soulignant ainsi de nouvelles limites de fonctionnement des DEGs que nous décrivons dans le chapitre 3 et qui font l'objet du second axe.
2. La seconde voie concerne la question de la dépendance de l'élastomère à une source externe de polarisation haute-tension et par voie de conséquence le souci de l'encombrement de la structure. Ces contraintes constituent une des premières limitations au développement et à l'intégration de DEGs. Le chapitre 4 aborde en détail les circuits de puissance et l'électronique de gestion associés au fonctionnement des DEGs et nous proposons une solution hybride innovante pour remplacer le générateur haute-tension.

1.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les différentes classes de polymères électroactifs. Un intérêt particulier a été porté aux élastomères diélectriques. Un état de l'art complet a souligné le fort développement d'applications utilisant les élastomères diélectriques en mode générateur et fonctionnant aux fréquences ambiantes ($f < 100Hz$).

Ces systèmes sont bien adaptés pour des applications en interaction avec l'homme ou impliquant des fluides. La structure optimale devant être légère, souple et modulable, les élastomères diélectriques sont un choix naturel pour développer des générateurs embarqués sur le corps humain ou immergés dans l'océan. Ces matériaux prometteurs ont attiré l'attention de plusieurs équipes mais aussi d'industriels dans le monde entier. L'engouement ne cesse de croître ces dernières années et le nombre de publications sur le sujet est là pour en témoigner. Toutefois, cette recherche étant encore jeune et datant de moins

de quinze ans, de nombreux verrous scientifiques et technologies sont à dépasser avant que les DEGs n'envahissent notre quotidien. Rappelons les trois principaux verrous : la nécessité de grande déformation, la nécessité d'une source de polarisation haute tension et l'utilisation de matériaux non conventionnels ou mal caractérisés.

Dans le but de lever ces verrous, l'appui d'une modélisation des performances des DEGs à partir d'un modèle thermodynamique s'impose. Afin de disposer d'un modèle précis et le plus complet possible, nous avons mis l'accent sur le manque de données expérimentales concernant la dérive des propriétés mécaniques et diélectriques du comportement des élastomères. Nous avons aussi montré que l'électronique de puissance et de commande environnant l'élastomère diélectrique constituait un frein au développement de ces générateurs souples. Tous ces aspects sont considérés dans la suite de ce travail et les résultats des chapitres à suivre s'inscrivent dans ce souci d'optimisation du fonctionnement des DEGs et de leur déploiement pour améliorer notre quotidien.

Points clés

Positionnement

- ❑ Plusieurs prototypes de DEG dans la littérature.
- ❑ Besoins de modélisations plus précises des DEGs.
- ❑ Nécessité d'approfondir les caractérisations mécaniques et diélectriques des élastomères diélectriques.
- ❑ Nécessité de supprimer la dépendance à la source de polarisation pour les DEGs.

Chapitre 2

Propriétés mécaniques et diélectriques des élastomères diélectriques

> Le commencement de toutes les sciences, c'est l'étonnement de ce que les choses sont ce qu'elles sont....
>
> *(Aristote)*

Les performances des DEGs dépendent directement des propriétés mécaniques et électriques des élastomères diélectriques utilisés : silicones, thermodurcissables souples ou thermoplastiques.

Le but de ce chapitre est de mettre en évidence les propriétés mécaniques et diélectriques de deux élastomères diélectriques largement utilisés dans des applications de récupération d'énergie : le VHB 4910 de 3M et le Polypower de Danfoss. Ces propriétés sont étudiées et analysées en profondeur afin de proposer des explications physiques valables des phénomènes constatés mais aussi des lois de comportement fiables décrivant ces élastomères. Ces lois de comportements physiques seront alors insérées dans un modèle thermodynamique des DEGs pour obtenir une prédiction fiable des performances de ces derniers.

2.1 Matériaux étudiés

2.1.1 Élastomères diélectriques

Parmi tous les matériaux diélectriques utilisables pour créer des transducteurs [Carpi 08b, Jean-Mistral 08a], l'acrylate et le silicone semblent des candidats très intéressants de par leurs performances spécifiques : grandes déformations, haute densité d'énergie (tableau 2.1.1).

TAB. 2.1.1: Performances des silicones et acrylates [Carpi 08b, Jean-Mistral 08a].

Paramètres	Acrylates	Silicones	Remarques
Déformation relative maximale (%)	380	120	
Densité d'énergie spécifique maximale ($J.g^{-1}$)	$3,4$	$0,75$	Densité d'énergie la plus élevée de tous les matériaux actifs
Fréquence d'utilisation maximale (Hz)	> 50000	> 50000	Mesures réalisées sous faibles déformations. La fréquence d'utilisation est dépendante de la déformation et de la taille du système. La réponse fréquentielle des acrylates est beaucoup plus faible à cause de la viscosité ($100Hz$).
Champ électrique maximal ($MV.m^{-1}$)	440	350	Mesures réalisées sur des films uniformes. La valeur maximale a été obtenue avec un film en état précontrainte.
Constante diélectrique relative (à $1kHz$)	$4,5 - 4,8$	$2,5 - 3,5$	Constante diélectrique chute aux hautes fréquences.
Facteur de pertes diélectrique (à $1kHz$)	$0,005$	$< 0,005$	
Module de Young (MPa)	$0,1 - 2$	$0,1 - 3$	Mesures réalisées à faible déformation. Ces élastomères développent un comportement hyperélastique.
Facteur de pertes mécanique	$0,18$	$0,05$	Facteur de pertes de l'acrylate varie beaucoup en fonction de la déformation et des paramètres extérieurs.
Rendement global maximal (%)	> 80	> 80	Rendement de conversion électromécanique.
Température de fonctionnement (°C)	-10 à 90	-100 à 260	A court terme seulement.
Durabilité (cycles)	$>10^6$	$>10^6$	Durabilité dépend de la géométrie de la structure, de la déformation et de la tension imposée de fonctionnement.

Déterminer quel élastomère « standard » est le meilleur candidat pour réaliser des structures de récupération d'énergie, constitue une tâche difficile voire impossible sauf si un matériau sur mesure est réalisé. En effet, pour une application en mode générateur, l'énergie récupérable dépend de la variation de la capacité et la tension imposée. Or, cette variation de capacité est fonction de la sollicitation imposée (% de déformation) mais aussi du matériau utilisé (constante diélectrique, facteur de pertes diélectrique et mécanique). Par exemple, les acrylates possèdent une constante diélectrique, une rigidité diélectrique, une déformation maximale plus importantes que les silicones, pourtant les silicones développent des pertes mécaniques et diélectriques plus faibles. Soulignons que un des intérêts

des silicones par rapport aux acrylates est la possibilité de modifier leur matrice, afin d'obtenir un composite avec le comportement désiré. Le matériau idéal est un compromis entre les différentes valeurs des paramètres du matériau et les pertes tolérées. Bien maîtriser les propriétés mécaniques et diélectriques des élastomères permet de proposer des lois fiables, de calculer les énergies théoriques maximales récupérables mais aussi de donner des pistes pour réaliser de nouveaux composites aux propriétés améliorées.

A travers tous les élastomères diélectriques commerciaux disponibles sur le marché, nous avons choisi deux matériaux à caractériser en profondeur dans cette thèse :

1. Polyacrylate VHB 4910 de 3M (USA)
2. Silicone PDMS Polypower de Danfoss (Danemark)

Ces matériaux sont disponibles en grandes quantités, à faible coût et possèdent des propriétés intéressantes telles qu'une constante diélectrique et une rigidité diélectrique relativement haute. Ils sont de plus transparents et largement utilisés par la communauté scientifique depuis les premiers travaux de Pelrine dans les années 2000 [Pelrine 00b]. Le VHB est disponible sous forme de ruban adhésif double faces de différentes largeurs et épaisseurs. Le Polypower est disponible sous la forme d'un film mince : épaisseur de l'ordre de 40µm pour le film sans électrode et 80µm pour le film avec. La surface du film est ondulée (serpentins de taille nanométrique) afin d'assurer la déformation de l'électrode en métal utilisée.

Le tableau 2.1.2 répertorie les élastomères diélectriques étudiés dans cette thèse.

TAB. 2.1.2: Élastomères diélectriques étudiés.

Nom commercial	Matrice de base	Épaisseur (µm)		Notation
Danfoss Polypower	Silicone PDMS (RT 625 - Wacker)	Avec électrode	80	Polypower_M
		Sans électrode	40	Polypower
3M VHB 4910	Acrylate		1000	VHB

Pour appuyer nos hypothèses dans les mesures diélectriques, un second silicone est utilisé comme référence : le Sylgard 186 (Dow Corning), bien commenté dans la littérature scientifique. Ce silicone a été réalisé par spin-coating au laboratoire.

Les propriétés mécaniques et diélectriques combinées à l'effet de la température seront mises en évidence et nous permettront d'établir des modélisations fines de nos DEGs.

2.1.2 Électrodes utilisées

Les élastomères diélectriques fonctionnent généralement sous de grandes déformations (>10% voire 100%) alors que les autres polymères électroactifs de type piézoélectriques

fonctionnent sous de faibles déformations (quelques %). A ce titre, les électrodes utilisées pour réaliser des DEGs doivent être les plus souples possibles afin de suivre correctement les mouvements du matériau diélectrique sans le contraindre ou réduire son potentiel de déformation. De plus, les électrodes doivent pouvoir supporter de grandes déformations tout en gardant une conductivité élevée dans la gamme de fonctionnement. Ces contraintes assurent le bon fonctionnement du générateur tout en minimisant les pertes d'origine électrique [Pelrine 98].

Différentes techniques peuvent être mises en place pour réaliser des électrodes souples [Rosset 12]. Les poudres en graphites ou noir de carbone, les graisses conductrices aux particules d'argent ou de carbone, ou bien les composites silicone/poudre de carbone [Huang 02, Lotz 11, O'Brien 07] sont une première catégorie d'électrodes utilisées, et ceci en raison de leur faible rigidité mécanique et leur capacité à suivre de grandes déformations sans perdre drastiquement leur conductivité (figure 2.1.1).

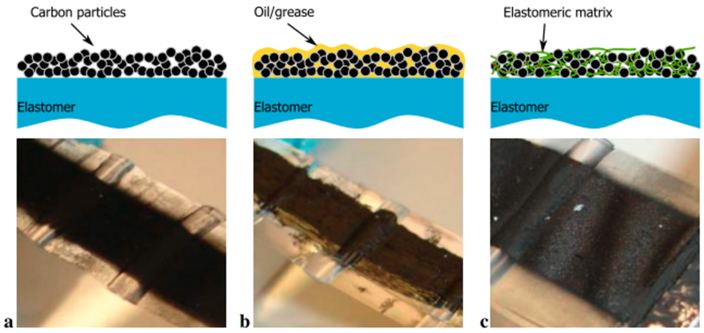


FIG. 2.1.1: Électrodes souples réalisées en poudre de carbone (a) , graisse de carbone (b) et matrice d'élastomère mélangée avec de la poudre de carbone (c) [O'Brien 07].

Une seconde catégorie regroupe les électrodes métalliques qui sont souvent limitées par leur rigidité beaucoup plus importante que celle du silicone. En effet, les électrodes en métal ne supportent pas de grandes déformations sans craquer, se fissurer. Malgré cette limitation, certains groupes de recherche ont proposé et testé l'utilisation de films minces métalliques comme électrodes souples. Ces méthodes, présentées dans la figure 2.1.2, comprennent entre autres l'utilisation d'électrodes métalliques à motifs (figure 2.1.2.a), l'utilisation d'électrodes hors plan déposées lors de la phase étirée du film élastomère (figure 2.1.2.b), ou l'utilisation de membranes ondulées sur lesquelles un métal est simplement évaporé (figure 2.1.3.c). Toutes ces méthodes sont basées sur le changement de forme des électrodes lorsque l'élastomère se déforme.

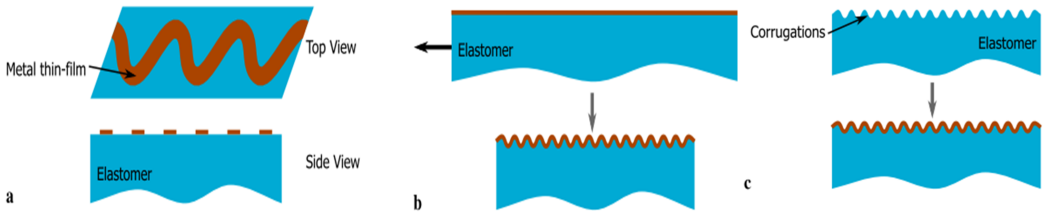


FIG. 2.1.2: Différentes méthodes pour réaliser des électrodes métalliques déformables [Rosset 12].

En plus des deux catégories d'électrodes souples présentées ci-dessus, certains groupes de recherche ont continué à développer de nouveaux types d'électrodes déformables pour les applications EAPs [Niklaus 09]. Ces dernières sont réalisées par implémentation de nanoparticules métalliques. Les nanoparticules sont créées, accélérées et implémentées dans les élastomères diélectriques sous l'effet de champ électrique (figure 2.1.3) [Rosset 09]. La structure avec les électrodes réalisées par implémentation de nanoparticules assure une déformation relative de 100% sans perte de conductivité.

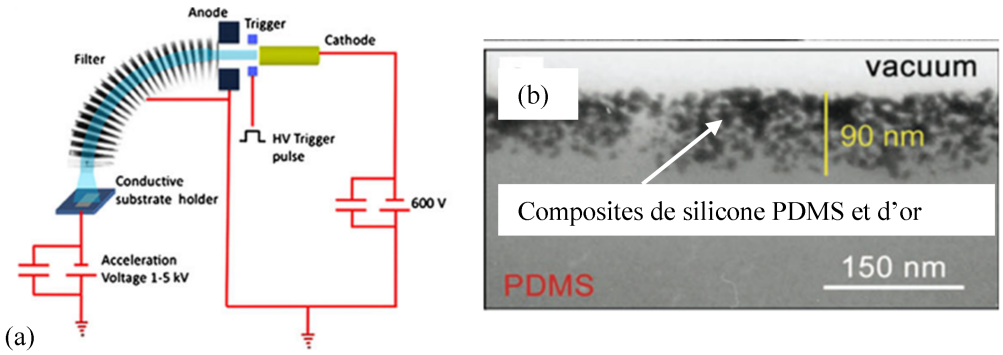


FIG. 2.1.3: Processus d'implémentation de nanoparticules métalliques (a) Composite siliconé et particules d'or (b) [Niklaus 09].

Citons aussi l'apparition, pour des applications spécifiques, d'électrodes souples de type photo-structurables [Urdaneta 07] sensibles à la lumière, ou de type auto-réparatrices survivant à un certain niveau de claquage électrique local [Michel 12, Yuan 13] ou encore transparentes [Shian 12] . Toutes ces électrodes ouvrent une nouvelle gamme d'applications potentielles, telles que les écrans souples avec retour haptique ou l'optique adaptative.

Chacune des électrodes présentées possède des avantages mais également des inconvénients. Dans le cadre de cette thèse, nous ne développons pas de techniques de réalisation d'électrodes déformables. Nous choisissons des électrodes assurant de très grandes déformations (100%) sans perte importante de conductivité. Pour cela, nous avons choisi des électrodes en graisses conductrices :

1. Graisse d'argent : CW7100 de CircuitWorks.
2. Graisse de carbone : MG Chemical 846 de MG Chemicals ou Nyogel 756 de Nye Lubricants.
3. Graisse de carbone préparée au laboratoire : mélange de noir de carbone dans une matrice de base acrylate.

Ces électrodes nous assurent une faible résistance de surface, et sont très faciles à déposer par sérigraphie manuelle.

Un autre type d'électrode est également considéré : les électrodes métalliques déposées par processus PVD (dépôt physique en phase vapeur). Des électrodes en or sont ainsi déposées sur les matériaux afin d'obtenir les caractéristiques de référence des élastomères testés. De plus, un des matériaux choisi (le Polypower de Danfoss) possède une version avec des électrodes en argent (Polypower_M) déjà déposées sur le silicone (RT 625 de Wacker)

La table 2.1.3 résume les différentes électrodes utilisées dans cette thèse.

TAB. 2.1.3: Électrodes utilisées.

Électrode	Matrice de base	Particules conductrices /Métallique	Dépôt	Fournisseur	Notation
Graisse	silicone	argent	sérigraphie	CircuitWorks	CW7100
		carbone	sérigraphie	MG Chemicals /Nye Lubricants	MG Chemical
	acrylate	carbone	sérigraphie	préparé au laboratoire	Carbone_acrylique
Métal	-	or	vaporisation	préparé au laboratoire	Or
		argent	vaporisation	Danfoss Polypower	lettre « _M »

2.2 Propriétés mécaniques

Au regard des modèles thermodynamiques présentés et résumés par le système d'équations (1.4.5 - 1.4.9) du chapitre 1, le comportement mécanique du matériau diélectrique joue un rôle important lors du fonctionnement des DEGs. Le but de cette partie est d'identifier la loi de comportement du matériau, ces constantes mécaniques et leurs variations possibles en fonction des paramètres extérieurs, tels que la vitesse de sollicitation, la température et la précontrainte. Les pertes d'origine mécanique sont aussi abordées au sein de cette section.

2.2.1 Modèle analytique

2.2.1.1 Hyperélasticité et viscoélasticité

2.2.1.1.1 Hyperélasticité

Les élastomères diélectriques sont des composés synthétiques travaillant sous de grandes déformations. Ils ne peuvent donc être modélisés mécaniquement par un simple modèle linéaire utilisant le module de Young (ce qui est valable en dessous de 10% de déformation). Ces matériaux nécessitent une loi de comportement hyperélastique plus complexe, valide pour de très grandes déformations (centaine de %) [Arruda 93, Kofod 03, Kofod 05, Lochmatter 07, Wissler 05].

En hyperélasticité, le comportement mécanique d'un matériau est caractérisé par une loi découlant de la densité d'énergie de déformation w_S. Cette densité d'énergie w_S est liée au tenseur des dilatations qui traduit le passage de la configuration de référence vers la configuration actuelle.

$$w_S = w_S(B) \tag{2.2.1}$$

avec B : tenseur de Cauchy Green gauche ou tenseur de Finger, tel que $B = F.F^T$ avec F gradient de la transformation.

Les élastomères étudiés étant considérés comme isotrope et incompressible, le densité d'énergie w_S peut alors s'écrire comme une fonction scalaire des invariants du tenseur B :

$$w_S = w_S(I_1, I_2, I_3) \tag{2.2.2}$$

$$I_1 = Tr(B) = \lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 \tag{2.2.3}$$

$$I_2 = \frac{1}{2}\left[Tr\,(B)^2 - Tr(B^2)\right] = \lambda_1^2\lambda_2^2 + \lambda_2^2\lambda_3^2 + \lambda_3^2\lambda_1^2 \tag{2.2.4}$$

$$I_3 = det(B) = \lambda_1\lambda_2\lambda_3 \tag{2.2.5}$$

où λ_1, λ_2, λ_3 sont les coefficients d'extension selon les axes principaux L_1, L_2, L_3.

Or l'incompressibilité du matériau se traduit par $I_3 = det(B) = 1$ soit $w_S = w_S(I_1, I_2)$.

Il existe de nombreux modèles permettent de décrire la densité d'énergie de déformation w_S tels que le modèle de Mooney-Rivlin (équation 2.2.6) [Mooney 40], le modèle de Yeoh (équation 2.2.7) [Yeoh 90], le modèle d'Odgen (équation 2.2.8) [Ogden 72] ou celui de Gent (équation 2.2.9) [Gent 96]. De manière générale, plus le modèle choisi pour la densité d'énergie de déformation w_S possède un grand nombre de degrés de libertés (Rivlin généralisé), c'est-à-dire un grand nombre de coefficients C_i, plus il est facile de faire corréler les courbes analytiques avec les données expérimentales.

$$w_{Mooney-Rivlin} = C_1(I_1 - 3) + C_2(I_2 - 3) \tag{2.2.6}$$

avec C_1 et C_2 : constantes propres au matériau. I_1, I_2 : premier et deuxième invariants du tenseur de Finger B.

$$w_{Yeoh} = C_1(I_1 - 3) + C_2(I_1 - 3)^2 + C_3(I_1 - 3)^3 \tag{2.2.7}$$

avec C_1, C_2, C_3 : constantes propres au matériau.

$$w_{Odgen} = \sum_k \mu_k \frac{\lambda_1^{\alpha_k} + \lambda_2^{\alpha_k} + \lambda_3^{\alpha_k} - 3}{\alpha_k} \tag{2.2.8}$$

avec μ_k, α_k : constantes propres au matériau.

$$w_{Gent} = \frac{YJ_m}{6} ln\left(1 - \frac{I_1 - 3}{J_m}\right) \tag{2.2.9}$$

avec Y : module de Young et $J_m = I_m - 3$: facteur limitant la déformation de la matrice d'élastomère. I_m : limite du premier invariant.

Le tenseur des contraintes nominales principales ou tenseur des contraintes lagrangiennes σ_i (force divisée par la section initiale) peut être déterminé par la dérivée de la densité d'énergie de déformation w_S (équation 2.2.10).

$$\sigma_i = \frac{\partial w_S}{\partial \lambda_i} - \frac{1}{\lambda_i} p \tag{2.2.10}$$

Le tenseur des contraintes actuelles principales ou bien tenseur des contraintes eulériennes (force divisée par la section actuelle) est donné par l'équation :

$$T_i = \lambda_i \frac{\partial w_S}{\partial \lambda_i} - p \tag{2.2.11}$$

avec $\lambda_i (i = 1, 2, 3)$: coefficient d'extension selon les directions principales et p : pression hydrostatique inconnue et définie par les conditions aux limites.

A partir de ces expressions de contraintes, les lois de comportement du matériau, soit les relations entre contrainte et déformation, peuvent être exprimées.

2.2.1.1.2 Viscoélasticité

Les élastomères étudiés développent un comportement visqueux se traduisant par des phénomènes type relaxation, fluage, et pertes d'énergie lors d'un cycle de déformation.

Traditionnellement, le comportement viscoélastique est décrit par des approches phénoménologiques, en employant le modèle de Maxwell généralisé ou celui de Voigt généralisé. Ces modèles permettent de décrire la réponse viscoélastique d'un matériau et servent à corréler les résultats expérimentaux et théoriques [Jean-Mistral 08a, Wissler 07]. En pratique, il est souvent commode de décrire ces expériences de relaxation par un modèle de Maxwell généralisé .

Dans cette thèse, nous choisissons de décrire le matériau par une loi hyperélastique et d'y associer les pertes mécaniques d'origine visqueuse. En effet, les matériaux étudiés sont viscoélastiques quasi-linéaires dans le sens où l'effet des grandes déformations et l'effet du temps peuvent être décorrélés [Wissler 07].

L'approche thermodynamique a été plébiscitée dans cette thèse pour modéliser les élastomères diélectriques. D'un point de vue énergétique, le comportement viscoélastique des élastomères diélectriques se traduit par des pertes mécaniques au sein du matériau. En effet, l'énergie mécanique absorbée par le matériau se divise en deux parties : une énergie élastique stockée W_S (ou une densité d'énergie élastique w_S) et une énergie mécanique dissipée ΔW_{Sd} (ou bien densité d'énergie mécanique dissipée Δw_{Sd}).

La relation entre l'énergie élastique stockée et l'énergie mécanique dissipée est donnée par l'expression 2.2.12 :

$$\frac{\Delta W_{Sd}}{W_S} = \frac{\Delta w_{Sd}}{w_S} = 2\pi tan\delta_{méc} \tag{2.2.12}$$

avec $tan\delta_{méc}$: tangente de l'angle de pertes mécaniques.

2.2.1.2 Essais mécaniques et lois de comportement

Pour une membrane sous sollicitation, il existe trois types de déformation, dite de bases ou principales :

– Déformation uniaxiale
– Déformation biaxiale
– Déformation « pure-shear »

Chaque déformation engendre des mouvements particuliers décrits dans la figure 2.2.1.

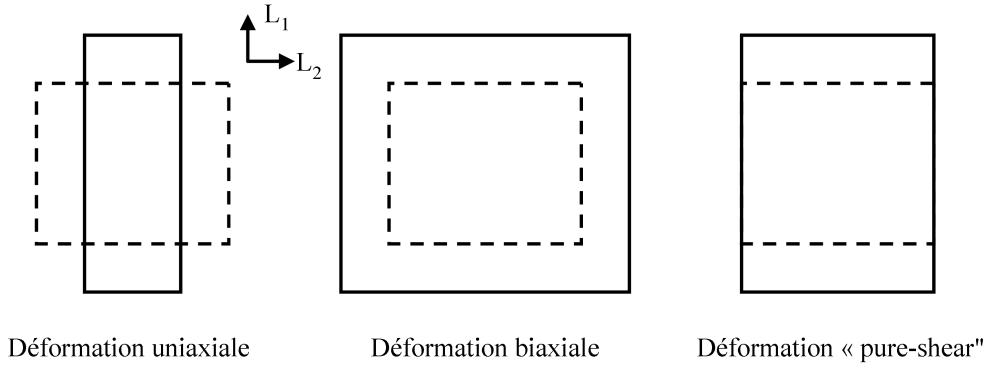


FIG. 2.2.1: Trois types de déformation de base pour une membrane plane.

En pointillés est représenté l'état initial et en trait plein l'état final. Pour chacune de ces trois déformations de base, le tenseur de déformations F, le tenseur de Finger B et les invariants I_1, I_2 du tenseur de Finger sont calculés au regard des définitions données précédemment (équations 2.2.3, 2.2.4). Les déformations biaxiales sont prises symétriques ($\lambda_1 = \lambda_2 = \lambda$) et les élastomères diélectriques travaillent à volume constant [Kofod 03, Pelrine 00b].

TAB. 2.2.1: Grandeurs caractéristiques de chacun des trois modes de déformation de base [Jean-Mistral 08a].

	Tenseur de déformation	Tenseur de Finger	Invariants
	F	B	I_1 et I_2
Déformations uniaxiales	$\begin{bmatrix} \lambda & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{\sqrt{\lambda}} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{\sqrt{\lambda}} \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} \lambda^2 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{\lambda} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{\lambda} \end{bmatrix}$	$I_1 = \lambda^2 + \frac{2}{\lambda^2}$ et $I_2 = \frac{1}{\lambda^2} + 2\lambda^2$
Déformations biaxiales	$\begin{bmatrix} \lambda & 0 & 0 \\ 0 & \lambda & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{\lambda^2} \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} \lambda^2 & 0 & 0 \\ 0 & \lambda^2 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{\lambda^4} \end{bmatrix}$	$I_1 = 2\lambda^2 + \frac{1}{\lambda^4}$ et $I_2 = \frac{2}{\lambda^2} + \lambda^4$
Déformations « pure-shear »	$\begin{bmatrix} \lambda & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{\lambda} \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} \lambda^2 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{\lambda^2} \end{bmatrix}$	$I_1 = \lambda^2 + \frac{1}{\lambda^2}$ et $I_2 = \frac{1}{\lambda^2} + \lambda^2$

Pour chaque mode de déformation, on peut déterminer la densité d'énergie de déformation w_S et la contrainte développée au sein des élastomères diélectriques. Pour chacune des quatre formes choisies de l'énergie de déformation w_S, la contrainte nominale selon l'axe L_1 en déformation uniaxiale est exprimée en fonction du coefficient d'extension selon le même axe ($\lambda_1 = \lambda$).

$$\sigma_{1,Mooney-Rivlin} = 2\left(C_1 + \frac{C_2}{\lambda}\right)\left(\lambda - \frac{1}{\lambda^2}\right) \tag{2.2.13}$$

$$\sigma_{1,Yeoh} = 2\left(\lambda - \frac{1}{\lambda^2}\right)\left(C_1 + C_2\left(I_1 - 3\right) + C_3\left(I_1 - 3\right)^2\right) \tag{2.2.14}$$

$$\sigma_{1,Odgen} = \mu_1\left(\lambda^{\alpha_1 - 1} - \lambda^{-\frac{1}{2}\alpha_1 - 1}\right) \tag{2.2.15}$$

$$\sigma_{1,Gent} = \frac{Y}{3}\left(\frac{\lambda - \frac{1}{\lambda^2}}{1 - \frac{I_1 - 3}{J_m}}\right) \tag{2.2.16}$$

Afin de trouver les constantes mécaniques C_i des élastomères diélectriques, un test de traction uniaxiale doit être mis en place. Il permettra d'obtenir les courbes de contraintes en fonction du coefficient d'extension. A partir des données expérimentales, un recalage des modèles analytiques est réalisé pour ajuster au mieux les coefficients C_i du matériau.

2.2.2 Résultats et discussions

2.2.2.1 Comportement hyperélastique

Les contraintes uniaxiales pour les deux élastomères diélectriques étudiés (le VHB et le Polypower) sous une vitesse de sollicitation moyenne sont présentées dans la figure 2.2.2. Les essai sont réalisés par vidéo-extensométrie sur plusieurs échantillons de taille standard (40mm x 20mm). L'erreur de mesure reste faible (<6%) et une série de donnée proche de la valeur médiane, est utilisée pour les corrélations.

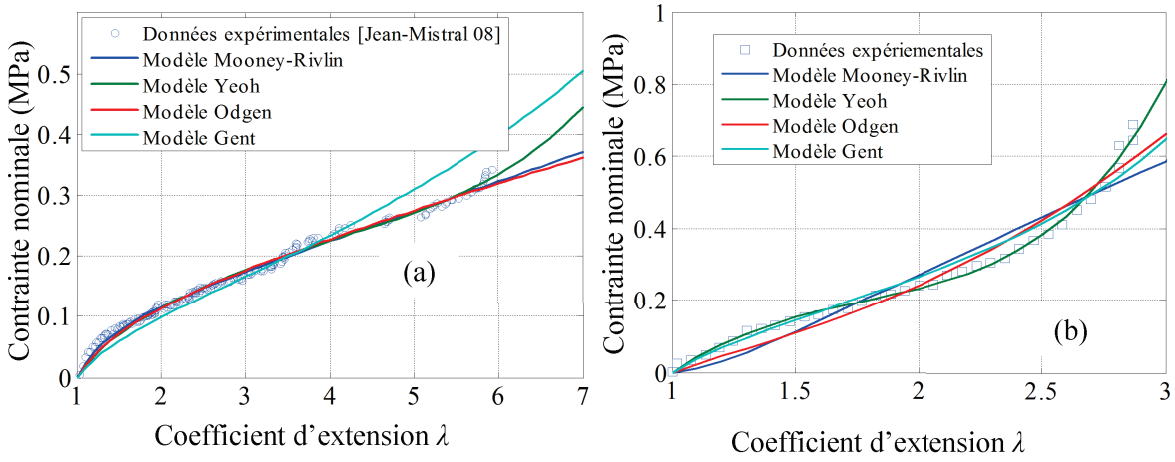


FIG. 2.2.2: Loi de comportement mécanique du VHB (a) et du Polypower (b) pour une vitesse de sollicitation moyenne à température ambiante. Corrélation entre courbes expérimentales et théoriques. Le Polypower a été caractérisé au laboratoire LaMCoS (INSA Lyon).

Lors de ces essais en traction uniaxiale, le diélectrique VHB se déforme jusqu'à 500% ($\lambda = 6$) sans rupture sous une vitesse de sollicitation de $0,34s^{-1}$, et le silicone Polypower est déformé jusqu'à 200% ($\lambda = 3$) sans rupture sous une vitesse de sollicitation de $0,1s^{-1}$. Pour les applications finales de taille centimétrique que nous souhaitons développer, le matériau sera sollicité à basse fréquence ($0,1Hz$ à $10Hz$). Ces contraintes en terme d'encombrement et de fréquences correspondent à des vitesses de sollicitations de $0,1s^{-1}$ à $0,5s^{-1}$. Nous avons donc choisi de caractériser le polyacrylate sous une vitesse de sollicitation moyenne ($0,34s^{-1}$) et le silicone sous une vitesse basse vu que le comportement du silicone est indépendant de la vitesse de sollicitation choisie. En effet, ces élastomères ne sont pas parfaitement hyperélastiques, ils développent également un comportement visqueux, qui se traduit par un changement de leur réponse mécanique en fonction de la vitesse de sollicitation imposée. Si on diminue la vitesse de sollicitation, la contrainte mesurée pour une déformation donnée chute également. En effet, plus la vitesse de sollicitation chute, plus le matériau a le temps de se relaxer et plus les effets viscoélastiques interviennent. A l'inverse plus l'élastomère est sollicité rapidement, moins de temps il possède pour se relaxer donc plus son comportement se rapproche d'un comportement hyperélastique pur [Jean-Mistral 08a, Plante 06, Wissler 05, Wissler 07].

Nous soulignons également qu'il existe des modèles analytiques dans les études récentes qui permettent de prendre en compte l'effet de la vitesse de sollicitation [Foo 12, Wei 11].

A partir des données expérimentales (figure 2.2.2) et des modèles analytiques présentés aux équations 2.2.6 - 2.2.9, les paramètres de la loi de comportement mécanique de l'élastomère pour une vitesse de sollicitation moyenne peuvent être déterminés. Le tableau 2.2.2 récapitule les valeurs des coefficients hyperélastiques des différents modèles ainsi que le degré de corrélation du modèle avec les données (« curve fitting » avec le logiciel Matlab).

TAB. 2.2.2: Coefficients des modèles hyperélastiques pour le VHB et pour le Polypower.

Paramètres	Unité	VHB				Polypower			
		Mooney-Rivlin	Yeoh	Odgen	Gent	Mooney-Rivlin	Yeoh	Odgen	Gent
C_1	MPa	$0,0241$	$0,03348$			$0,1497$	$0,0782$		
C_2	MPa	$0,0183$	$-0,0004954$			$-0,1441$	$-0,01224$		
C_3	MPa		$9,945.10^{-6}$				$0,003211$		
μ_1	MPa			$0,07777$				$0,04683$	
α_1				$1,793$				$3,413$	
μ ou Y	MPa				$0,16$				$0,4$
J_m					200				$16,5$
$R-square$		$0,9904$	$0,9863$	$0,9876$	$0,9$	$0,9464$	$0,9957$	$0,9725$	$0,9756$

Au regard du tableau 2.2.2 et de la figure 1.5, les modèles analytiques présentés permettent tous d'obtenir une bonne corrélation avec les résultats expérimentaux. Toutefois, pour ces deux matériaux, le modèle de Yeoh (équation 2.2.7) permet d'atteindre une meilleure corrélation que les autres, suivi par le modèle de Gent qui reste un modèle très simple avec seulement deux paramètres.

2.2.2.2 Pertes mécaniques

Nous reportons au sein de la figure 2.2.3 la tangente de l'angle de pertes mécaniques pour deux matériaux : le VHB [Wang 13] et le Polypower [Polypower].

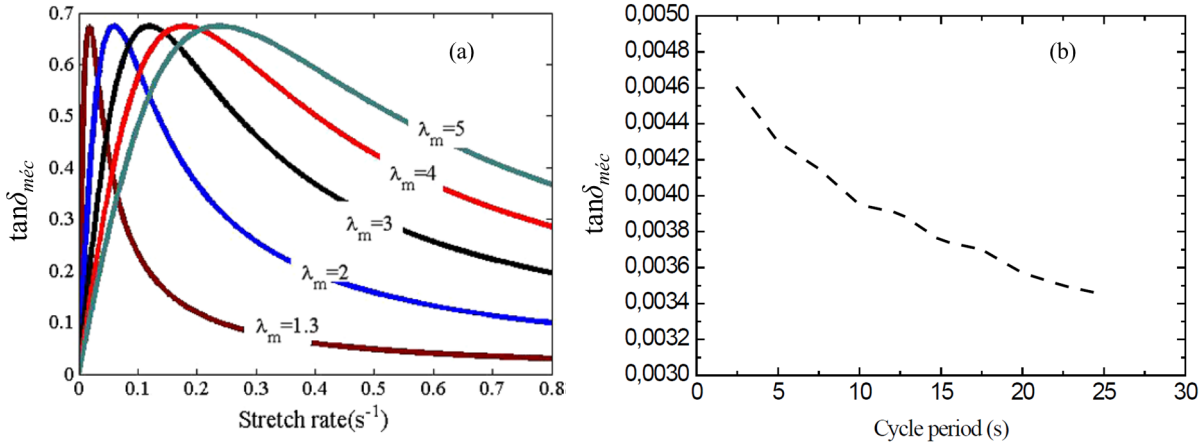


FIG. 2.2.3: Facteur de pertes $tan\delta_{méc}$ pour le VHB [Wang 13] (a) et pour le Polypower [Polypower] (b).

Au vu de la figure 2.2.3, le facteur de pertes du Polypower est cent fois plus faible que celui du VHB, ce qui signifie que le silicone est moins visqueux. L'énergie mécanique dissipée dans le silicone Polypower est plus faible que celle dissipée par le VHB . En connaissant le facteur de pertes $tan\delta_{méc}$, on peut facilement déterminer l'énergie mécanique dissipée au sein du matériau pour chaque cycle d'opération.

L'énergie mécanique imposée à l'élastomère diélectrique est alors :

$$W_{méc} = W_S + \Delta W_{Sd} = W_S\,(1 + 2\pi tan\delta_{méc}) \tag{2.2.17}$$

2.2.2.3 Conclusion sur les propriétés mécaniques

Les élastomères diélectriques (le VHB et le Polypower) développent un comportement viscoélastique. Avec les paramètres identifiés dans cette partie, nous pouvons déduire la contrainte, l'énergie élastique stockée et les pertes au sein de ces élastomères diélectriques. Le modèle de Yeoh et le modèle de Gent peuvent donc être utilisés pour décrire fidèlement le comportement hyperélastique du VHB et du Polypower pour des vitesses de sollicitation moyenne.

Des essais avec l'élastomère diélectrique pris en sandwich entre deux électrodes en graisse montrent que le comportement mécanique de cette structure est quasi similaire à celui du matériau seul. Les électrodes ne contraignent pas le matériau. En ce qui concerne l'effet

de la précontrainte, nous nous basons sur les mesures réalisées par [Jean-Mistral 08a] durant sa thèse pour déduire les lois de comportement des matériaux précontraints à partir de celles obtenues pour les matériaux sans précontrainte. De même pour l'effet de la température.

2.3 Propriétés diélectriques

Quelques travaux ont été menés par la communauté scientifique pour caractériser le comportement diélectrique des élastomères VHB et Polypower. Toutefois, ces études ne sont pas complètes. En effet, il manque des informations concernant par exemple l'influence de la précontrainte imposée au matériau ou l'effet de la nature de l'électrode. En outre, les résultats disponibles dans la littérature sont parfois contradictoires et en particulier ceux concernant l'effet de la précontrainte [Kofod 03, Jean-Mistral 10c, McKay 09, Qiang 12]. Nous présentons dans cette partie une étude complète sur le comportement diélectrique de ces deux matériaux : polyacrylate VHB et silicone Polypower.

Les mesures qui sont l'objet de cette étude sont récapitulées dans le tableau 2.3.1.

TAB. 2.3.1: Propriétés diélectriques étudiées.

Mesures	Caractéristiques	Commentaires
Spectroscopie diélectrique	$\varepsilon_r^{'}$ et $\varepsilon_r^{"}$	- Expliquer la diversité des résultats de la littérature. - Déterminer avec une bonne précision la constante diélectrique et le facteur de pertes en fonction de la fréquence, de la température et de la déformation.
Rigidité diélectrique	$E_{claquage}$	- Déterminer la tension et le champ de claquage en fonction de la déformation et de la température.

2.3.1 Préparation des échantillons et dispositifs de mesures

2.3.1.1 Préparation des échantillons

Les élastomères ont été pris en sandwich entre deux électrodes rondes de diamètre $16mm$ afin d'éviter tout effet de bord. Pour étudier l'influence de la nature des électrodes, différents types d'électrode ont été utilisés : de l'or, de l'argent, de la graisse conductrice d'argent (Circuit Work 7100), de la graisse conductrice de carbone (MG Chemical) et de la graisse d'acrylate préparée au laboratoire.

On peut souligner que les élastomères diélectriques fonctionnent généralement sous déformation. La variation de la permittivité en fonction de la déformation doit être étudiée pour les deux élastomères. Le VHB est ainsi étiré bi-axialement et symétriquement, grâce à un banc de test spécifique (figure 2.3.1). Le silicone est quant à lui étiré en mode pure-shear (largeur constante) en raison de sa rupture mécanique plus basse. Pour ces deux matériaux , le processus d'étirement a été effectué sous une vitesse de sollicitation lente afin d'obtenir une contrainte quasi-uniforme au sein de l'échantillon et d'éviter toute instabilité locale ou anisotropie. Comme les élastomères travaillent à volume constant, l'épaisseur peut être estimée en calculant la variation de surface. Cependant, pour une meilleure précision de mesure, cette épaisseur est contrôlée par un palmer de type Mitutoyo. Une fois que l'élastomère a été étiré et que toutes les relaxations mécaniques se sont produites (attente d'environ 1 heure), il est pris en sandwich entre deux cadres en plastique pour maintenir la contrainte puis retiré du dispositif de précontrainte. Les électrodes sont ensuite déposées sur l'échantillon.

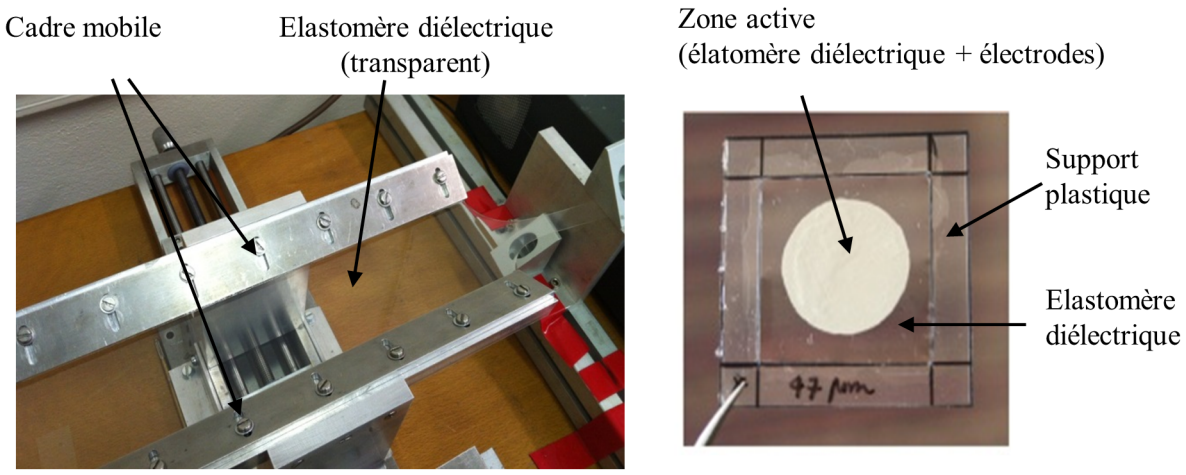


FIG. 2.3.1: Dispositif de pré-étirement du matériau et échantillon pré-étiré.

2.3.1.2 Dispositifs de mesures

2.3.1.2.1 Spectroscopie diélectrique

Les mesures de spectroscopie diélectrique ont été réalisées à l'aide d'un Novocontrol BDS 20 GmbH. L'échantillon est placé sur une plaque à l'intérieur d'une chambre hermétique afin d'éliminer toute interférence électromagnétique ambiante. La température de la plaque est contrôlée par un système Linkam TMS 94. Les mesures sont effectuées sous atmosphère d'azote pour éviter toute oxydation à haute température ou gel à basse température. Une tension alternative ($1V_{rms}$) est appliquée à l'échantillon et le courant généré

est mesuré en termes d'amplitude et de déphasage entre courant et tension. Les paramètres diélectriques (constante diélectrique et facteur de pertes) sont extraits respectivement à partir des parties réelle et imaginaire de l'impédance mesurée. Les dispositifs sont étudiés dans une gamme de fréquences allant de $10^{-1}Hz$ à $10^{5}Hz$ et pour des températures variant entre -100°C et 100°C (Voir annexe A pour plus de détail sur le dispositif de mesure). Pour chaque configuration, les tests ont été effectués sur au moins trois échantillons similaires. Les mesures sont reproductibles avec une erreur relative maximale de 5% en raison de l'imprécision du dispositif de mesure et de la géométries de l'échantillon. Toutes les courbes présentées sont les valeurs expérimentales liées à un échantillon, valeur très proches de la courbe médiane de toutes les valeurs mesurées.

2.3.1.2.2 Mesure de la rigidité diélectrique (champ de claquage)

La rigidité diélectrique (champ de claquage électrique) est mesurée sur des échantillons non précontraints et sur des échantillons précontraints pour les deux matériaux étudiés. Une haute tension est imposée à l'échantillon via un générateur de tension (Spellman). Cette tension est augmentée graduellement via une rampe de $200V.s^{-1}$ jusqu'au moment où le matériau subit un claquage diélectrique, détecté par un pic de courant (Voir annexe B pour plus de détail). Comme la mesure de claquage est une mesure statistique, au moins trois échantillons ont été testés pour chaque condition et la valeur présentée est la valeur moyenne. Les barres d'erreur associées à chaque point de mesure représentent les valeurs extrêmes.

2.3.2 Résultats expérimentaux et discussions

2.3.2.1 Élastomère diélectrique VHB 4910

2.3.2.1.1 Électrodes en Or

Nous rappelons tout d'abord que les élastomères diélectriques fonctionnent sous haute tension (kV) pour nos applications. Le comportement diélectrique du matériau pourrait être modifié par le champ électrique appliqué au matériau (champ d'opération). Pour vérifier ce point, [Di Lillo 12] ont sollicité le VHB sous différents champs électriques et ont démontré que le champ d'opération n'a pas d'influence notable sur la valeur de la constante diélectrique. Nous pouvons donc utiliser la spectroscopie diélectrique à basse tension pour caractériser le matériau même si ce dernier est utilisé sous haute tension.

La figure 2.3.2 présente la constante diélectrique et le facteur de pertes du polyacrylate VHB avec des électrodes en or pour différentes températures. Les valeurs mesurées avec les électrodes en or très conductrices sont considérées comme les valeurs de référence.

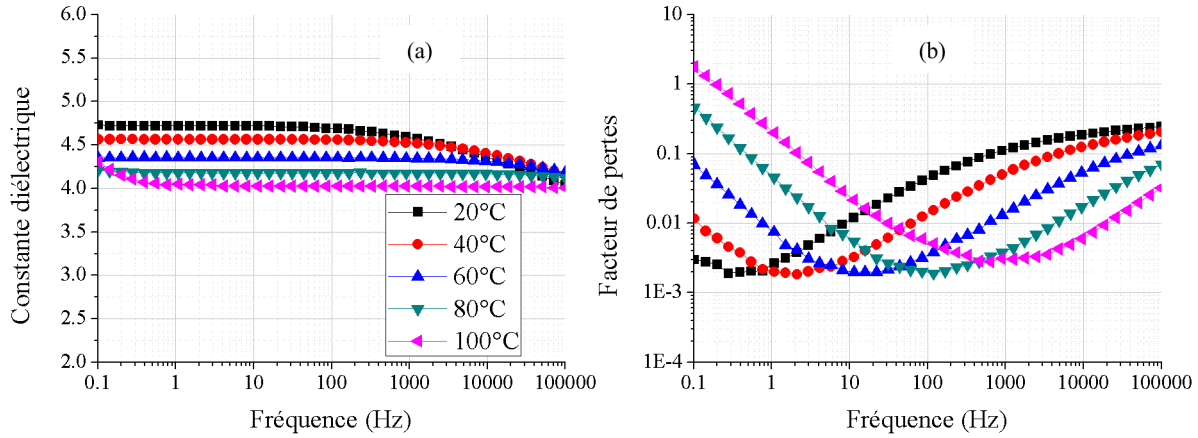


FIG. 2.3.2: Constante diélectrique (a) et le facteur de pertes (b) pour le VHB avec des électrodes en or.

En ce qui concerne la constante diélectrique (figure 2.3.2.a), on observe qu'à température ambiante, la constante diélectrique aux faibles fréquences est quasi constante et vaut 4, 72. Cette valeur est en accord avec la littérature [Kofod 03, Jean-Mistral 10c]. Un changement important en fonction de la fréquence et de la température est observé pour la constante diélectrique et le facteur de pertes. Ce changement a été clairement expliqué par la polarisation d'orientation (en particulier la β-relaxation) [Kofod 03, Jean-Mistral 10c, Wissler 07]. Cette relaxation est associée aux mouvements des chaînes secondaires courtes au sein du VHB. Par ailleurs, la forte augmentation des pertes lorsque l'on s'approche des basses fréquences ou des hautes températures est principalement due à la conductivité électrique du matériau (figure 2.3.2.b).

Effet de la fréquence

Pour concevoir correctement une application à partir de l'élastomère VHB, sa constante diélectrique doit être parfaitement connue quelque soit les conditions de fonctionnement. Pour une température donnée, la variation de la constante diélectrique complexe en fonction de la fréquence peut être modélisée par le modèle de Havriliak - Negami.

$$\varepsilon_r^* = \varepsilon_r^{'} - j\varepsilon_r^{"} = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_S - \varepsilon_\infty}{[(1+j\omega\tau)^\beta]^\gamma} = \varepsilon_\infty + \frac{\Delta\varepsilon}{[(1+j\omega\tau)^\beta]^\gamma} \tag{2.3.1}$$

avec $0 \leq \beta \leq 1$ et $0 \leq \gamma \leq 1$. ε_∞ est la constante diélectrique à très haute fréquence, ε_S est la constante diélectrique sous champ électrique statique, τ est le temps de relaxation lié au phénomène de relaxation et $\Delta\varepsilon$ est la contribution du processus de relaxation.

En appliquant ce modèle (équation 2.3.1) à nos valeurs expérimentales, par exemple à 20°C, on obtient les paramètres du modèle présentés dans le tableau suivant.

TAB. 2.3.2: Les paramètres du modèle de Havriliak - Negami pour le VHB avec des électrodes en or à température ambiante.

ε_∞	$\Delta\varepsilon$	β	γ	τ
$2,17$	$2,56$	$0,56$	$0,15$	$6,1.10^{-5}$

A partir de ce modèle, on peut estimer que la constante diélectrique à très hautes fréquences pour le VHB est de $2,17$ et que le temps de relaxation est de $6,1.10^{-5}s$.

Effet de la température

Sur la figure 2.3.2.a, la constante diélectrique du VHB augmente quand la fréquence d'opération diminue : β-relaxation. En considérant la constante diélectrique à relativement basse fréquence $[1Hz - 100Hz]$ où elle est indépendante de la fréquence, c'est à dire lorsque la β-relaxation a déjà opéré dans le matériau, la constante diélectrique du VHB chute quand la température augmente (figure 2.3.3).

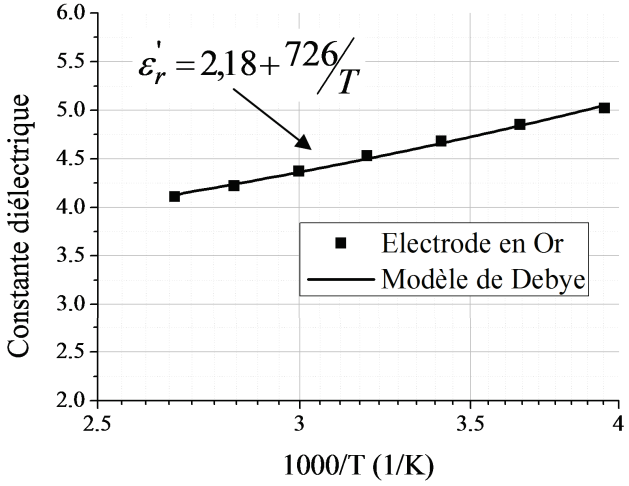


FIG. 2.3.3: Constante diélectrique du VHB en fonction de la température aux basses fréquences. Les valeurs de la constante diélectrique sont relevées sur le plateau où elles sont indépendantes de la fréquence.

Cette chute peut être décrite simplement par une loi de type Debye :

$$\varepsilon_r = \varepsilon_\infty + \frac{N\mu^2}{3\varepsilon_0 k_b T} \tag{2.3.2}$$

où ε_∞ est la constante diélectrique à très haute fréquence ; ε_0 est la permittivité du vide, k_b la constante de Boltzmann, N la densité de dipôle et μ le moment dipolaire.

L'utilisation du modèle de Debye (équation 2.3.2) suppose que les moments dipolaires μ n'ont aucune interaction avec leurs voisins proches. Cette hypothèse peut être validée en vérifiant que l'énergie d'interaction entre dipôles ou énergie d'activation $E_a = \frac{N\mu^2}{4\pi\varepsilon_0}$ est inférieure à l'énergie de fluctuation thermique $\frac{k_b T}{q} \simeq 25meV$. L'équation 2.3.2 nous permet d'estimer l'énergie d'activation qui vaut $5,91meV$ et nous confirme que cette approximation est valable pour le VHB. Les paramètres du modèle de Debye sont décrits sur la figure 2.3.3.

Le VHB présente une β-relaxation dans notre gamme d'étude. Sa constante diélectrique est de $4,72$ à température ambiante, aux faibles fréquences et avec des électrodes en or. La variation de la constante diélectrique du VHB en fonction de la fréquence peut être décrite par une loi de type Havriliak-Negami ; celle en température par une loi de type Debye.

2.3.2.1.2 Effet de la nature de l'électrode

A température ambiante

Pour la plupart des applications réelles utilisant des élastomères diélectriques, les électrodes en graisse sont souvent utilisées car elles peuvent suivre parfaitement les grandes déformations du matériau. Le comportement diélectrique du matériau peut toutefois évoluer quand on change d'électrode . En effet, la figure 2.3.4 reporte la constante diélectrique et le facteur de pertes pour le VHB pour différents types d'électrodes. Quatre types d'électrodes différentes ont été testés : une en or, deux en graisses à base de silicone (CW7100 et MG Chemical) et une en graisse à base d'acrylate (Carbone_acrylique).

Nous n'allons pas reconsidérer les comportements généraux discutés précédemment, c'est à dire la dépendance de la constante diélectrique à la fréquence et que l'on observe à nouveau ici. En effet, la constante diélectrique et le facteur de pertes du VHB pour différents types d'électrode ont la même allure que lorsque des électrodes en or sont utilisées, sauf que les valeurs diffèrent.

Les valeurs de la constante diélectrique obtenues pour les électrodes en graisse CW7100 et MG Chemical sont nettement plus importantes que pour les autres types d'électrodes.

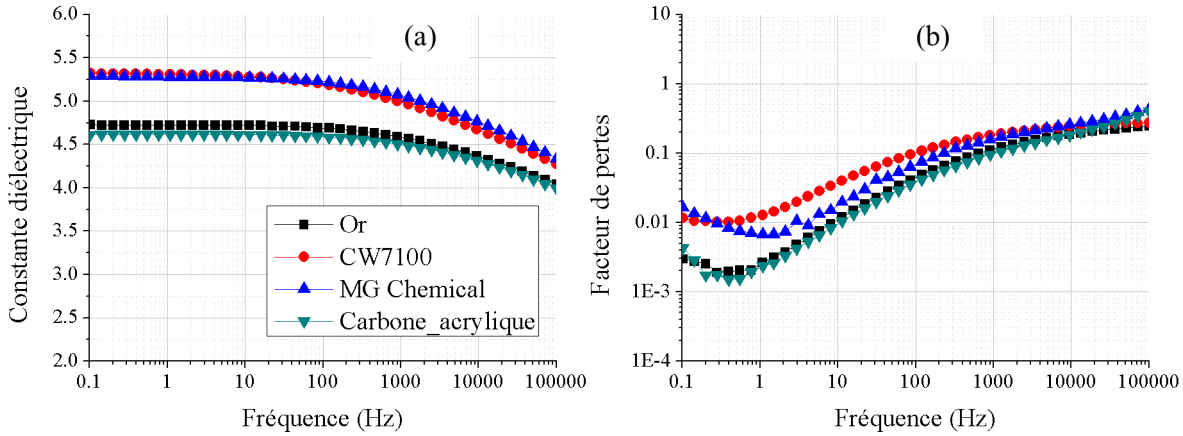


FIG. 2.3.4: Constante diélectrique (a) et facteur de pertes (b) du VHB pour différentes électrodes.

Ainsi, la constante diélectrique aux faibles fréquences du VHB augmente de $4,72$ pour une électrode en or à $5,3$ pour les électrodes en CW7100 et en MG Chemical soit une augmentation d'environ 12%. Nous rappelons que la matrice polymère utilisée pour fabriquer les électrodes CW 7100 et MG Chemical est à base de silicone (voir tableau 2.1.3). Dans le sens inverse, lorsque la nature de la matrice utilisée pour la réalisation des électrodes est la même que la nature de l'élastomère diélectrique utilisé pour l'application, aucun changement dans la constante diélectrique n'est noté (comparé avec les électrodes en or). De plus, la nature des particules métalliques conductrices mélangées à la matrice en silicone pour former les électrodes ne semble pas influencer la constante diélectrique : les électrodes CW 7100 et MG donnent les mêmes résultats.

Une hypothèse est alors mise en place pour expliquer ce phénomène : la modification de la polarisation interfaciale entre le VHB et l'électrode. L'origine exacte de cet effet semble compliquée à analyser. Des analyses physico-chimiques pourraient éventuellement donner quelques pistes d'interprétation. Toutefois, nous nous écarterions trop de notre cadre de travail et nous n'avons donc pas poussé cette analyse. Nous pouvons cependant envisager des causes possibles à ce phénomène comme la probable migration des oligomères (chaînes de faible poids moléculaires) à l'intérieur du silicone pour expliquer, au moins partiellement, ce changement de comportement diélectrique. En effet, de nombreuses études ont montré que les oligomères migrent du volume à la surface du silicone lorsque la surface de l'élastomère est modifiée par des agents extérieurs [Hillborg 01, Nguyen 04]. Cet effet est particulièrement bien connu pour l'isolation extérieure haute tension des silicones et est à l'origine d'une perte temporaire d'hydrophobicité du matériau [Sandelin 01]. Une réorganisation des chaînes courtes soutenant les groupes polaires peut donc engendrer une augmentation de la constante diélectrique.

Nous considérons maintenant le facteur des pertes. Aucun changement important n'est observé au niveau de l'allure des courbes pour différentes électrodes, seul les valeurs sont

décalées (figure 2.3.4.b).

Ces résultats (la constante diélectrique et le facteur des pertes) semblent donc confirmer que l'interface entre les électrodes et l'élastomère diélectrique est à l'origine du changement de comportement diélectrique du VHB.

Afin de confirmer cette hypothèse, nous inversons les configurations, c'est à dire des électrodes en graisse à base d'acrylate sont déposées sur un élastomère silicone. Les résultats sont regroupés sur la figure 2.3.5.

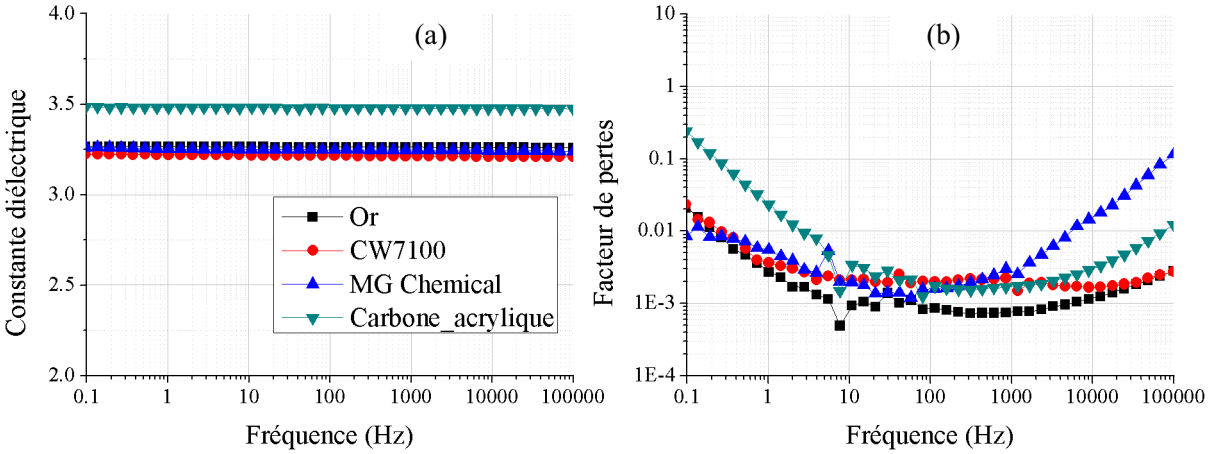


FIG. 2.3.5: Constante diélectrique (a) et facteur de pertes (b) du silicone Sylgard 186 (Dow Corning) pour différentes électrodes.

Pour le silicone Sylgard 186 (Dow Corning), une augmentation de la constante diélectrique d'environ 9% est observée quand les électrodes utilisées sont à base d'acrylate par rapport à des électrodes en silicone ou en or. La constante diélectrique du Sylgard 186 reste la même si l'électrode en graisse d'argent ou graisse de carbone est utilisée. Ces résultats nous permettent de renforcer notre hypothèse sur le changement de la constante diélectrique quand la nature de l'électrode souple utilisée est différente de celle de l'élastomère diélectrique. Cette information doit être intégrée dans les modèles afin de mieux estimer les performances des dispositifs.

Regardons maintenant le modèle de Havriliak - Negami (équation 2.3.1) pour déterminer la dépendance de la constante diélectrique en fonction de la fréquence pour le VHB selon l'électrode utilisée. Les résultats sont résumés dans le tableau 2.3.3.

Aux vues des tableaux 2.3.2 et 2.3.3, on note que la constante diélectrique du VHB aux très hautes fréquences est la même quelque soit le type d'électrode utilisée. En effet, en changeant le type d'électrode utilisée, c'est la contribution du processus de relaxation qui change. Revenons aux tableaux 2.3.2 et 2.3.3 et observons $\Delta\varepsilon$, nous notons que la valeur de ce terme est supérieure à 3 pour les électrodes souples à base de silicone et de l'ordre de $2,5$ pour les autres électrodes. Ce paramètre est représentatif de la quantité

TAB. 2.3.3: Paramètres du modèle de Havriliak - Negami pour le VHB avec différents types d'électrode à température ambiante.

Type d'électrode	ε_∞	$\Delta\varepsilon$	β	γ	τ
CW7100	$2,1$	$3,13$	$0,169$	$0,483$	$4,3.10^{-5}$
MG Chemical	$2,13$	$3,04$	$0,166$	$0,514$	$5,7.10^{-5}$
Carbone_acrylique	$2,07$	$2,54$	$0,138$	$0,552$	$4,69.10^{-5}$

de dipôles participant au phénomène de polarisation. Ce résultat semble cohérent avec notre hypothèse expliquant les changements de la constante diélectrique suivant la nature des matériaux utilisés pour les électrodes et l'élastomère diélectrique. La figure 2.3.6 récapitule ces observations pour toutes les configurations possibles du couple « élastomère diélectrique - électrode ».

La nature de l'électrode souple a une influence non négligeable sur la valeur de la constante diélectrique du VHB. Cette constante augmente de $4,7$ *avec une électrode en or à* $5,3$ *avec une électrode en graisse d'argent ou en graisse de carbone. Cette variation de la constante diélectrique peut être expliquée par la modification de la polarisation à l'interface entre l'élastomère diélectrique et l'électrode souple, phénomène lié à la* β*-relaxation globale s'opérant au sein du matériau.*

Effet combiné du type d'électrode et de la température

Dans la section précédente, l'effet de la nature de l'électrode sur la constante diélectrique de l'élastomère diélectrique a été étudié dans un environnement isotherme. Cependant, la température a une influence significative sur les propriétés diélectriques et affecte par conséquent les performances des DEGs. Par exemple, Liu *et al* [Liu 11] ont analysé les propriétés thermo-électro-mécaniques du VHB et ils ont démontré que la température améliore le champ critique lié à l'instabilité électromécanique du système. Sheng *et al* ont suggéré que l'augmentation de la température entraîne une augmentation de la stabilité de la structure [Sheng 11]. Figure 2.3.7 présente la constante diélectrique, le facteur de pertes et la conductivité du VHB à différentes températures pour des électrodes en graisse de carbone.

Au vu de la figure 2.3.7, les mêmes phénomènes physiques liés à la nature de l'élastomère apparaissent : β-relaxation et conductivité directe à haute température et faibles fréquences. L'allure des courbes est semblable à celle obtenue avec les électrodes en or. En effet, il n'y a pas de décalage en fréquence entre la configuration avec les électrodes en or et celle avec les électrodes en graisse. Seules les valeurs de permittivité sont plus importantes avec les électrodes en graisse et ceci pour toutes les températures. Concernant le facteur de pertes, il n'y a pas de grande différence entre celui obtenu avec l'électrode en or et celui mesuré avec l'électrode en graisse sauf à hautes fréquences ($f > 1000Hz$).

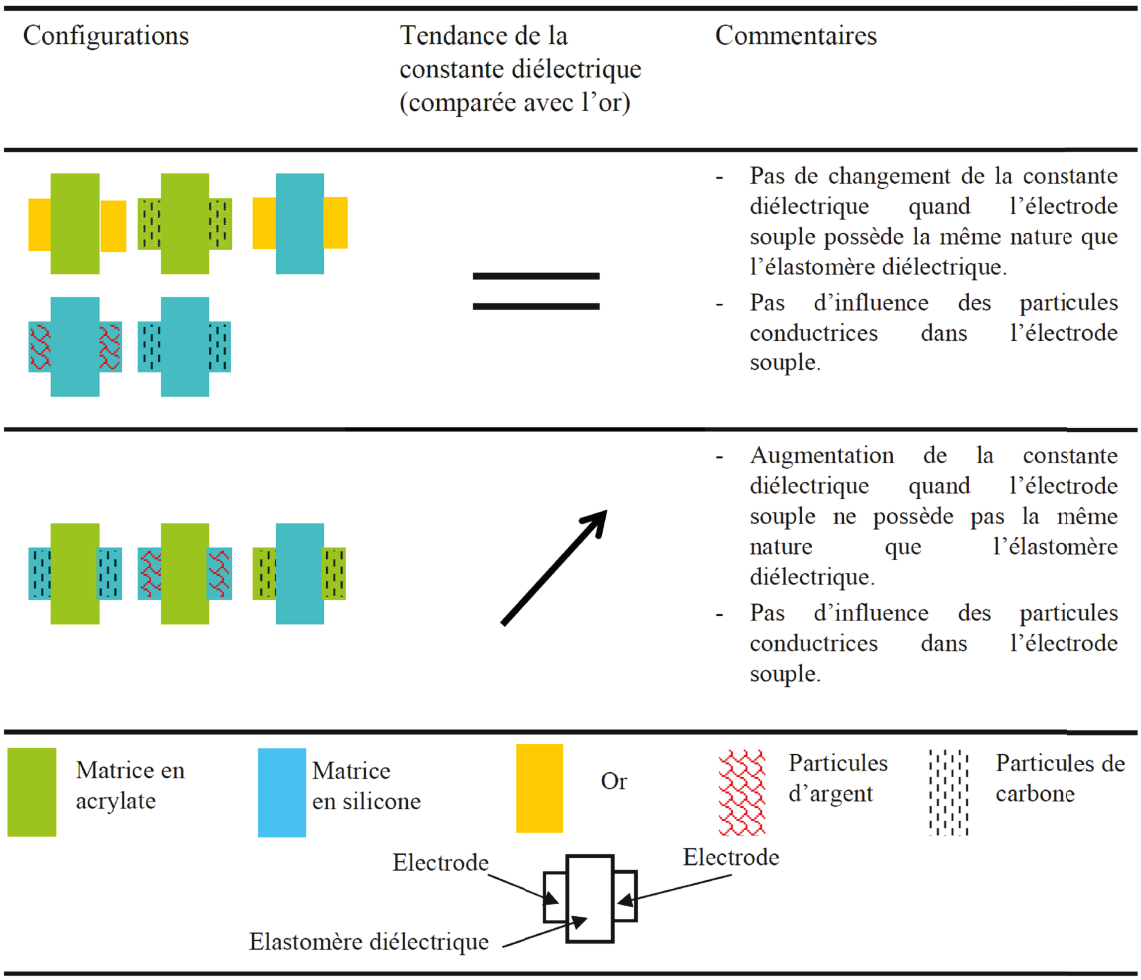


FIG. 2.3.6: Résumé des configurations possibles du couple « élastomère diélectrique - électrode souple » et leur impact sur la constante diélectrique.

Concernant la conductivité, l'élastomère diélectrique VHB perd de sa résistance électrique quand la température augmente mais il reste un bon isolant même à haute température. Sa conductivité vaut $5.10^{-14} S.cm^{-1}$ à $100°C$.

L'influence de la température combinée avec l'effet de la nature de l'électrode est visible sur la figure 2.3.8. Les valeurs de la constante diélectrique sont reportées aux faibles fréquences $[1Hz - 100Hz]$ et pour des températures supérieures à 0°C où la β-relaxation n'est plus présente. La variation de la constante diélectrique du VHB en fonction de la température et de la nature des électrodes peut être modélisée par l'équation de Debye (équation 2.3.2) avec les paramètres présentés sur la figure 2.3.8.

En regardant le tableau 2.3.2, le tableau 2.3.3, la figure 2.3.3 et la figure 2.3.8, on observe que la valeur ε_∞ pour le VHB est presque toujours la même, quelque soit l'électrode utilisée et quelque soit le modèle utilisé (Havriliak - Negami ou Debye). Cette observation souligne l'intérêt du modèle de Havriliak - Negami pour estimer la variation de la constante diélectrique en fonction de la température et ceci à partir d'un seul essai à tem-

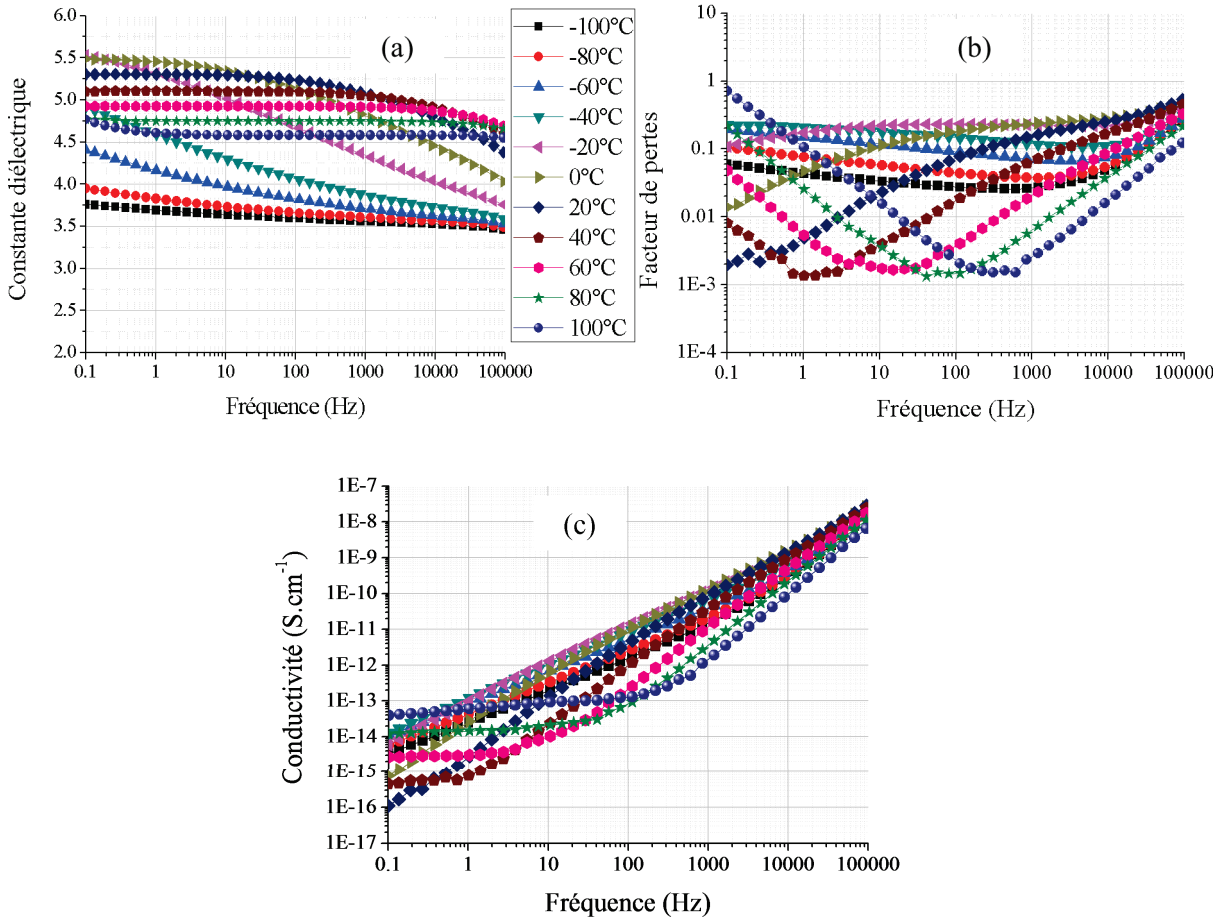


FIG. 2.3.7: Constante diélectrique (a), facteur de pertes (b) et conductivité (c) du VHB avec des électrodes en graisse de carbone à différentes températures : de -100°C à 100°C.

pérature ambiante. En effet, en reportant la valeur de la constante diélectrique mesurée à température ambiante $\varepsilon_r^{'}$ et celle calculée à partir du modèle de Havriliak - Negami aux hautes fréquences ε_∞, on obtient la dépendance de la constante diélectrique en fonction de la température qui est très proche de celle obtenue par le modèle de Debye qui lui nécessite plusieurs mesures en températures.

Finalement, le fait que la constante diélectrique aux hautes fréquences soit toujours environ $2,1$, quelque soit la nature de l'électrode utilisée, permet de valider encore une fois notre hypothèse que la nature de l'électrode joue un rôle dans la β-relaxation globale de l'élastomère VHB et fait varier la valeur de la constante diélectrique $\varepsilon_r^{'}$.

La constante diélectrique à très haute fréquence du VHB est $\varepsilon_\infty = 2,1$ pour tous types d'électrodes utilisées. La nature de l'électrode influence seulement la β-relaxation (polarisation interfaciale). La variation de la constante diélectrique en fonction de la

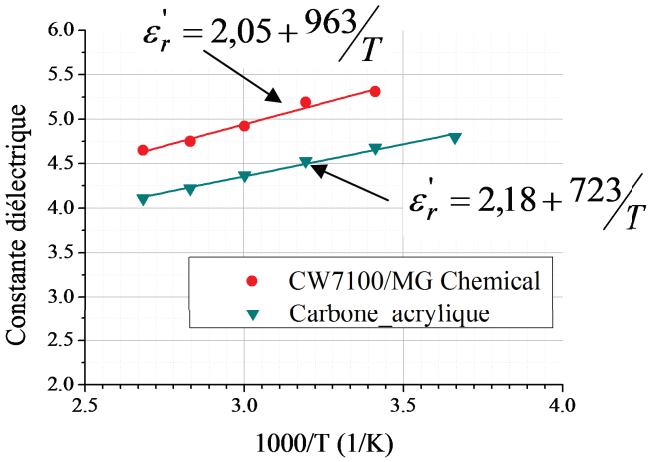


FIG. 2.3.8: Constante diélectrique du VHB mesurée pour différentes températures et différents type d'électrodes.

température peut être simplement décrite par une loi de Debye quelque soit le type d'électrode utilisée.

2.3.2.1.3 Effet de la précontrainte

La précontrainte imposée à un élastomère diélectrique permet d'améliorer les performances de ce dernier en augmentant la rigidité diélectrique du film. En conséquence, l'élastomère diélectrique peut subir de plus grandes déformations et récupérer plus d'énergie [Kofod 08, Li 11a]. Toutefois, concernant la constante diélectrique et le facteur de pertes du matériau en fonction de la précontrainte, des évolutions disparates sont relevées dans la littérature. Cette dépendance est encore mal comprise à ce jour et semble être fortement dépendant du protocole de mesure. Nous avons essayé d'approfondir les analyses sur ces aspects.

A température ambiante

Dans cette section, nous nous concentrons sur l'influence de la pré-contrainte sur le comportement diélectrique du VHB. L'élastomère VHB est pré-étiré avec un coefficient d'extension en surface variant de 1 à 16. Le matériau est pré-étiré symétriquement dans les deux directions avec le même coefficient d'extension λ, le coeffIKicient de précontrainte en surface est alors λ^2. Les valeurs de la constante diélectrique en fonction de la pré-contrainte sont représentées sur la figure 2.3.9 à température ambiante (20°C) et à $1Hz$.

D'après la figure 2.3.9, la constante diélectrique décroît lorsque le coefficient de précontrainte en surface imposé au matériau augmente, ce qui est en accord avec la littérature. L'origine de cette diminution est très complexe à identifier et obéit probable-

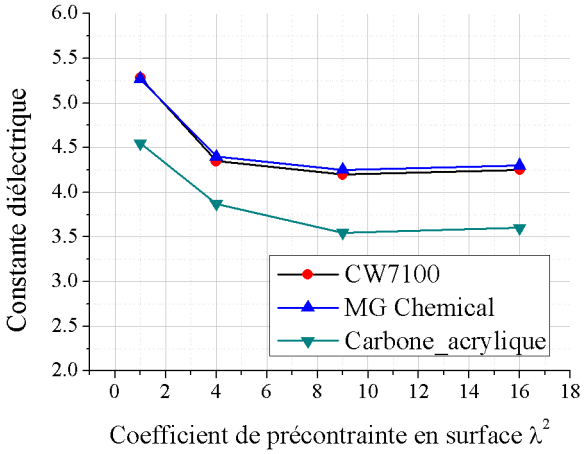


FIG. 2.3.9: Variation de la constante diélectrique du VHB en fonction de la précontrainte pour différents types d'électrode (valeurs relevées à $1Hz$).

ment à divers facteurs antagonistes. Ces origines variées combinées aux différents protocoles de mesure utilisés expliquent la diversité des valeurs obtenus dans la littérature lorsque l'on reporte la constante diélectrique du VHB en fonction de la pré-contrainte [Choi 05, Jean-Mistral 10c, Kofod 03, Li 11a, McKay 09, Qiang 12, Wissler 07] (figure 2.3.10).

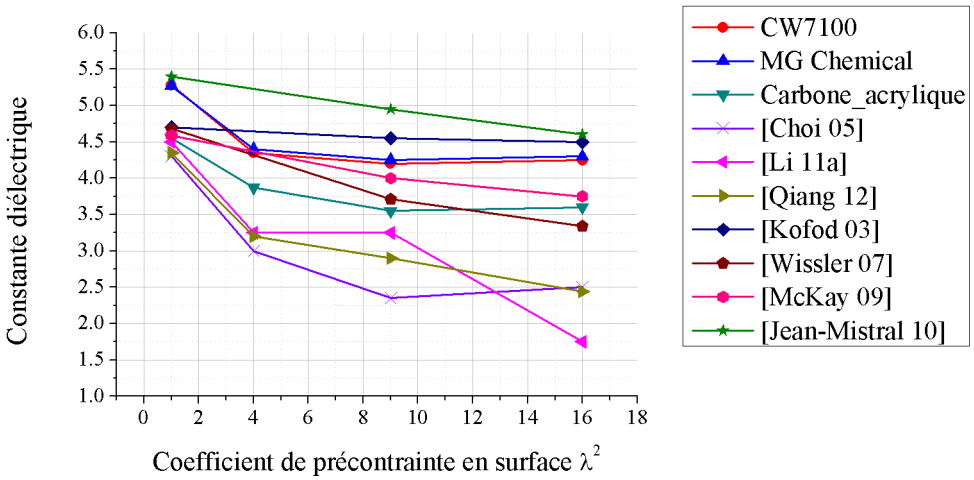


FIG. 2.3.10: Constante diélectrique du VHB en fonction du coefficient de précontrainte. Positionnement de notre travail par rapport à la littérature.

Nous pouvons toutefois formuler quelques suggestions pour expliquer cette tendance. Dans les isolants, la constante diélectrique macroscopique représente l'orientation des dipôles microscopiques selon le champ électrique appliqué. Munch *et al* ont démontré que l'étirement imposé au matériau provoque une orientation notable des chaînes de polymères dans les directions de l'étirement [Munch 06]. Par conséquent, la capacité des dipôles à suivre le champ électrique qui est perpendiculaire aux directions d'étirement, diminue avec l'augmentation de la pré-contrainte imposée au matériau, induisant une diminution

de la constante diélectrique. Li *et al* y font aussi référence sous le nom de «polarisation conditionnelle» [Li 11b]. D'autres phénomènes peuvent se produire dans le matériau et participer à cette baisse de la constante diélectrique telle que la cristallisation sous contrainte [Ikeda 07] ou la réponse électrostrictive du matériau [Zhao 08].

Nous nous concentrons maintenant sur l'influence de la nature de l'électrode. Il est intéressant de noter que la diminution de la constante diélectrique en fonction du coefficient d'extension semble indépendante de la nature de l'électrode souple utilisée (figure 2.3.9). En effet, l'allure des courbes de la variation de la constante diélectrique en fonction de la précontrainte est identique quelque soit l'électrode employée. Cette dernière induit seulement un décalage, comme observé précédemment (section 2.3.2.1.2). La précontrainte a donc bien un effet de volume et les électrodes n'ont pas d'impact sur le changement de la constante diélectrique en fonction de l'étirement du matériau. Cela renforce l'idée que la nature de l'électrode impacte la polarisation à l'interface entre les électrodes et le matériau.

Afin d'introduire la variation de la constante diélectrique du VHB en fonction de la précontrainte dans les modèles estimant les performances des DEGs, nous proposons une loi polynomiale décrivant cette variation à température ambiante, comme suggérée par [Zhao 08] :

$$\varepsilon_r^{'}(\lambda_1, \lambda_2) = \varepsilon_{ri}^{'} \left(1 + a(\lambda_1 + \lambda_2 - 2) + b(\lambda_1 + \lambda_2 - 2)^2 + c(\lambda_1 + \lambda_2 - 2)^3\right) \tag{2.3.3}$$

$\varepsilon_{ri}^{'}$ est la constante diélectrique à l'état initial, λ_1, λ_2 les coefficients d'extension suivant les directions L_1 et L_2. a, b, c sont les paramètres à corréler.

En s'appuyant sur nos résultats expérimentaux, nous obtenons les paramètres suivants pour le cas où l'électrode en graisse de carbone est utilisée (tableau 2.3.4).

TAB. 2.3.4: Variation de la constante diélectrique en fonction des coefficients d'extension.

$\varepsilon_{ri}^{'}$	a	b	c
5.31	$-0,0871$	$0,0121$	$-6,285.10^{-4}$

Nous avons également étudié l'effet d'une précontrainte asymétrique et remarqué qu'il y a très peu de changement sur la valeur de la constante diélectrique par rapport au cas symétrique (variations inférieures au pourcentage d'erreur de notre protocole de mesure). Toutefois, [Qiang 12] ont montré que la constante diélectrique du VHB diffère vers une valeur plus basse quand la précontrainte asymétrique est utilisée : $\varepsilon_r^{'}$ chute de $3,2$ à $2,9$ et à $2,6$ pour la précontrainte de 3x3, 4x2,25 et 6x1,5 respectivement. D'autres tests sont donc nécessaires pour répondre à cette question et déterminer quelle est l'évolution réelle de la constante diélectrique pour un matériau sous précontrainte asymétrique.

Effet combiné de la précontrainte et de la température

Comme déjà mentionné dans les sections de ce début de chapitre, les applications réelles utilisent rarement l'élastomère diélectrique dans un environnement isotherme. La température peut varier de plusieurs dizaine de degrés, il est donc impératif de connaître parfaitement les propriétés du matériau et leurs variations en fonction de la température. Ainsi, nous avons réalisé des mesures de spectroscopie diélectrique sur le VHB précontraint sous différentes températures pour une électrode en graisse de carbone. La figure 2.3.11 présente la constante diélectrique et le facteur de pertes pour le VHB pour différentes températures et coefficients d'extension en surface.

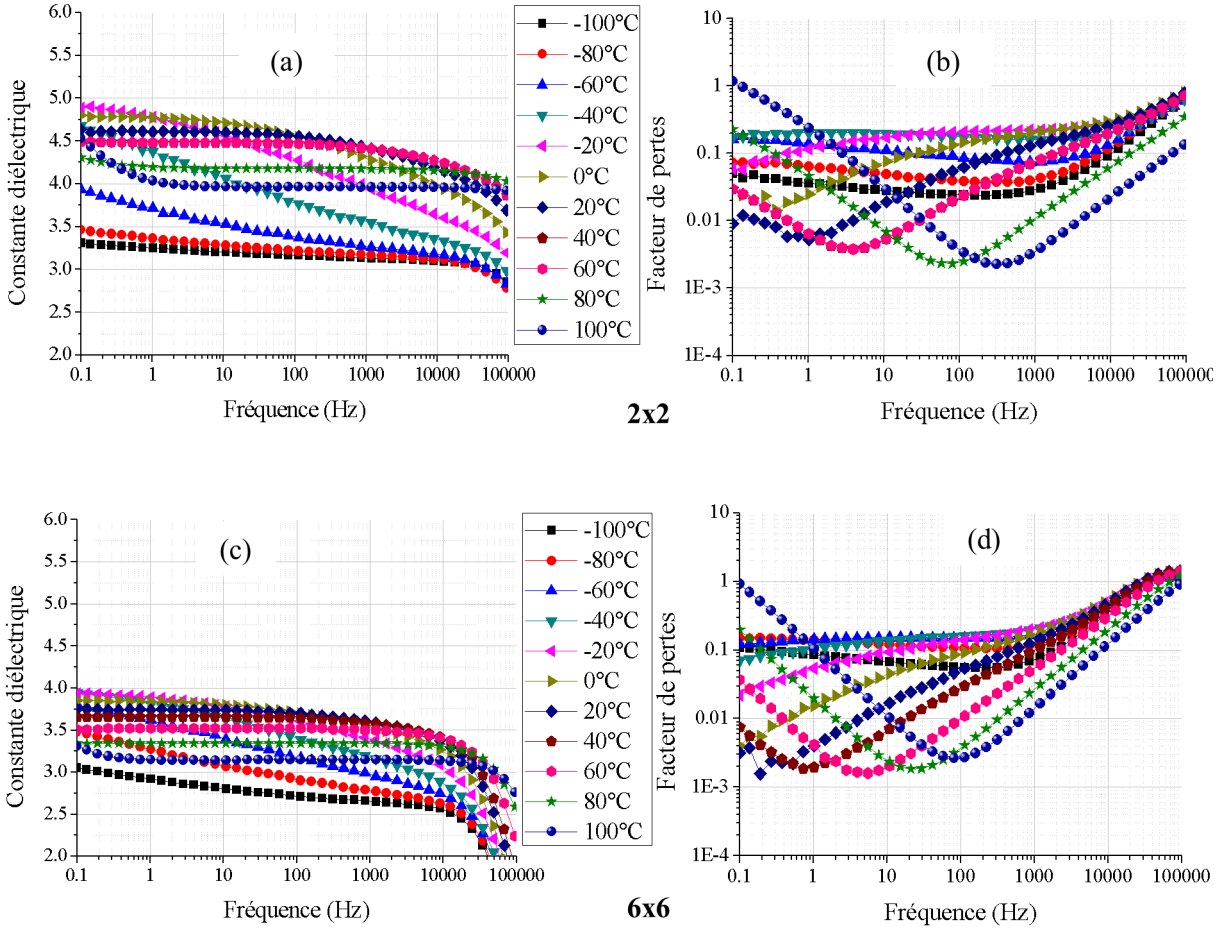


FIG. 2.3.11: Constante diélectrique (a), facteur de pertes (b) pour le VHB pré-étiré de 2x2, et constante diélectrique (c), facteur de pertes (d) pour le VHB pré-étiré de 6x6 avec une électrode en graisse de carbone.

Sur la figure 2.3.11, on observe toujours la contribution de la β-relaxation sur le comportement diélectrique du VHB : augmentation de la constante diélectrique quand la fréquence diminue. Pour un échantillon précontraint de 4 en surface (cas 2x2), la constante diélectrique aux faibles fréquences (stabilisée sur le plateau soit à $1Hz$) varie entre $3,25$ et $4,9$ en fonction de la température, soit une variation de $1,65$. Cette variation n'est plus que

de 1 pour un échantillon précontraint de 36 en surface (cas 6x6). Pour l'échantillon initial, cette variation est de 1, 75. Plus une précontrainte est imposée au VHB, plus la variation de sa constante diélectrique en fonction de la température diminue. La précontrainte combinée à la température agissent clairement sur le processus de β-relaxation identifié au sein du matériau : variation du paramètre $\Delta\varepsilon$ (équation 2.3.1).

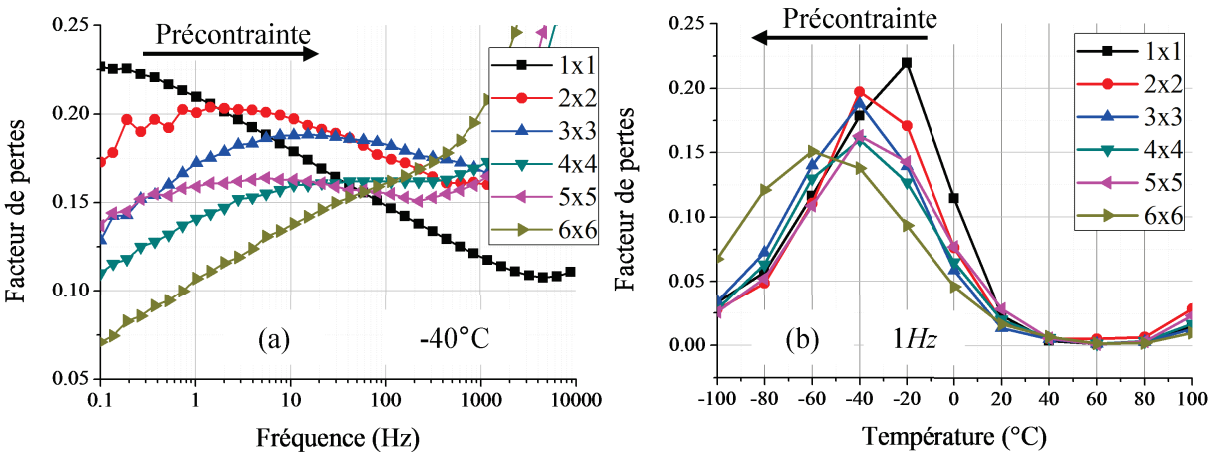


FIG. 2.3.12: Variation du facteur de pertes du VHB en fonction de la fréquence à $-40°C$ (a) et en fonction de la température à $1Hz$ (b) pour différentes précontraintes.

Regardons à présent le facteur de pertes. Sur la figure 2.3.12, le pic caractéristique de la β-relaxation observé sur les courbes du facteur de pertes du VHB se décale vers les hautes fréquences à température fixe lorsque la précontrainte imposée au matériau augmente. L'effet dual est observé à fréquence fixe en fonction de la température : le pic se décale vers les basses températures lorsque la précontrainte augmente. [Runt 97] a montré que la cristallisation agit en sens opposé de nos observations dans les polymères amorphes : décalages du pic vers les basses fréquences à température imposée ou décalage du pic vers les hautes températures à fréquence imposée et la largeur du pic est plus grande. Nous pouvons donc éliminer l'hypothèse que la cristallisation contribue à la diminution de la constante diélectrique du VHB avec l'augmentation de la contrainte. De plus, on note que l'intensité du pic de facteur de pertes, qui représente globalement la contribution de la β-relaxation, soit le nombre de dipôles participant à cette relaxation, diminue avec l'augmentation de la précontrainte. Cela renforce notre hypothèse que la précontrainte réduit la capacité d'orientation des dipôles du VHB.

La constante diélectrique du VHB chute avec l'augmentation de la précontrainte. Cet effet est un effet de volume, qui peut se combiner à l'effet de la nature des électrodes, qui est un effet d'interface entre l'élastomère diélectrique et les électrodes. Cette chute de la constante diélectrique semble être expliquée par la diminution de la capacité d'orientation des dipôles sous contrainte.

2.3.2.1.4 Pertes diélectriques

Comme il n'existe pas de matériaux diélectriques parfaits, une partie de l'énergie électrique stockée au sein du diélectrique est dissipée sous forme de chaleur. Afin de mettre en place des modèles fiables, la densité des pertes diélectrique Δw_{dielec} doit être prise en compte.

$$\Delta w_{dielec} = 2\pi\varepsilon_0 E^2 \varepsilon_r^{"} \tag{2.3.4}$$

avec E le champ électrique imposé et $\varepsilon_r^{"}$ le facteur de pertes du matériau.

Pour une application donnée, si le champ électrique appliqué E est connu, les pertes diélectriques qui sont liées par nature à la conduction et à la diffusion dans le matériau peuvent être déterminées.

Pour la plupart des applications, les élastomères diélectriques opèrent à faibles fréquences (inférieure à $100Hz$). Dans cette plage de fréquence, le facteur de pertes est relativement faible sauf aux fréquences inférieures à $1Hz$ où la conduction joue un rôle important. Nous relevons le facteur de pertes pour le VHB en fonction de la température et du coefficient d'extension à la fréquence de $1Hz$ (figure 2.3.13). Le coefficient d'extension n'est rien d'autre que le coefficient de précontrainte imposé au matériau (mesure statique).

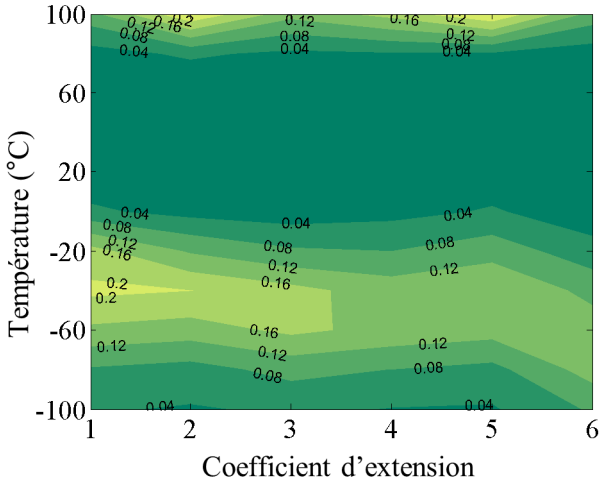


FIG. 2.3.13: Facteur de pertes du VHB à différentes températures et différents coefficients d'extension. Les valeurs sont relevées à $1Hz$.

Au vu de la figure 2.3.13, le facteur de pertes est quasiment indépendant du coefficient d'extension imposé au matériau mais il dépend fortement de la température. Le facteur de pertes du VHB est toujours inférieur à $0,04$ indépendamment du coefficient d'extension imposé dans la gamme de température [0°C - 70°C] et il augmente jusqu'à $0,2$ à 100°C.

Il faut noter également que les électrodes souples utilisées pour les DEGs ne sont pas parfaitement conductrices, leurs résistivités varient de $0,01\Omega.cm$ à $300\Omega.cm$ à l'état initial

et ces valeurs augmentent avec l'augmentation du niveau de déformation λ. Toutefois, les pertes ohmiques associées à ces résistances d'électrodes souples sont très petites par rapport aux pertes diélectriques générées par l'élastomère diélectrique lui même. Elle peuvent en première approximation être négligées.

2.3.2.1.5 Rigidité diélectrique

A température ambiante

Les mesure de la rigidité diélectrique du VHB précontraint biaxialement et symmétriquement (coefficient d'extension λ suivant deux directions L_1 et L_2) ont été effectuées et sont reportées sur la figure 2.3.14.

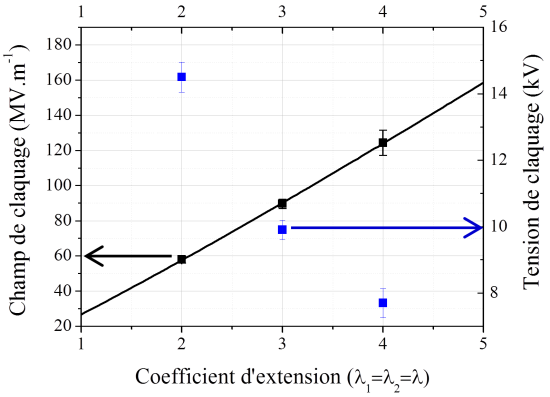


FIG. 2.3.14: Rigidité diélectrique du VHB en fonction de différents coefficients d'extension.

Nous n'avons pas pu effectuer des mesures sur des échantillons non-précontraint car la tension maximale générée par notre dispositif de test haute tension est de $20kV$ ce qui n'est pas suffisamment élevé pour que le matériau claque. En augmentant le coefficient d'extension (diminution de l'épaisseur), la tension de claquage diminue tandis que la rigidité diélectrique augmente (figure 2.3.14), ce qui est en accord avec les résultats de la littérature [Huang 12, Kofod 03, Plante 06]. La dépendance de la rigidité diélectrique du VHB en fonction du coefficient d'extension peut s'exprimer par une loi en puissance [Huang 12, Koh 11a] :

$$E_{claquage} = E_0 \left(\lambda_1 \lambda_2\right)^{\alpha} \tag{2.3.5}$$

avec λ_1, λ_2 les coefficients d'extension suivant les directions L_1 et L_2 ; E_0, α sont les paramètres de corrélation.

Comme illustré sur la figure 2.3.14, cette loi décrit bien la variation de la rigidité diélectrique du VHB en fonction de l'étirement. On peut par interpolation estimer la rigidité

diélectrique à l'état initial $E_0 = 27MV.m^{-1}$ ainsi que le facteur de puissance α qui vaut $0,55$.

Effet de la température

La dépendance de la rigidité diélectrique du VHB à la température est reportée sur la figure 2.3.15. Les mesures ont été faites sur un échantillon précontraint de 4x4.

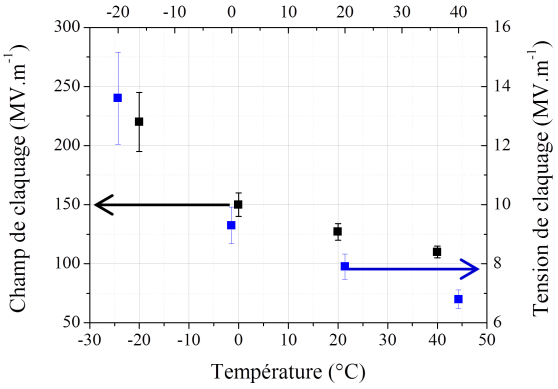


FIG. 2.3.15: Rigidité diélectrique du VHB en fonction de la température.

Au vue de la figure 2.3.15, la rigidité diélectrique dépend fortement de la température à laquelle le matériau travaille. En effet, plus la température est haute, plus les mouvements des chaînes moléculaires sont favorisés facilitant ainsi la conduction électrique, ce qui occasionnera un claquage plus précoce.

La rigidité diélectrique du VHB est une fonction de puissance des variables 'précontrainte' et 'température'. Elle vaut environ $27MV.m^{-1}$ à température ambiante pour un échantillon non précontraint. La rigidité diélectrique chute quand la température augmente, et, a contrario, elle augmente avec la précontrainte.

2.3.2.2 Élastomère diélectrique Polypower

Dans cette section, nous présentons le comportement diélectrique du silicone Polypower qui est commercialisé par la société Danfoss.

2.3.2.2.1 Électrodes en métal et électrodes en graisse

Électrodes en métal

Comme exposé à la section 2.1.1, le film en silicone Polypower de Danfoss est fourni sous deux formes : une avec des électrodes en argent et une sans électrode. La figure 2.3.16

présente la constante diélectrique et le facteur de pertes du Polypower avec les électrodes en argent (métal) pour différentes températures (Polypower_M).

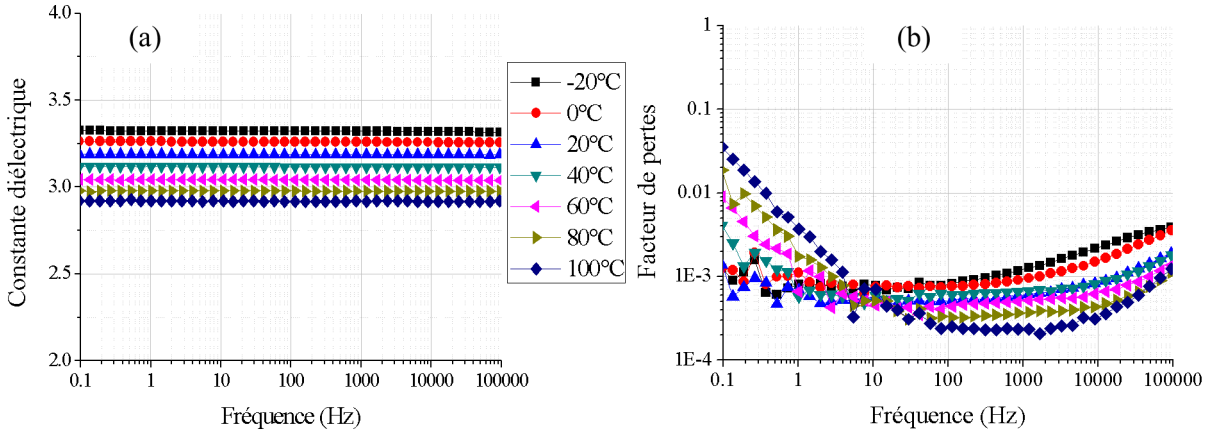


FIG. 2.3.16: Constante diélectrique (a) et facteur des pertes (b) du film en silicone Polypower avec des électrodes en argent pour différentes températures.

En analysant la constante diélectrique, on note que la fréquence n'a pas d'influence significative sur cette dernière. La constante diélectrique est quasi la même dans toute la gamme de mesure $[0,1Hz - 10^5 Hz]$. Par contre, ce paramètre varie avec la température. A température ambiante, la constante diélectrique du Polypower_M est de $3,19$, ce qui est en accord avec les études reportées dans la littérature [Polypower , Jordi 11]. A $-20°C$, elle vaut $3,3$ et à $100°C$ elle est de $2,8$.

Soulignons que le facteur de pertes du Polypower_M est relativement faible dans toute la gamme de mesure $[0,1Hz - 10^5 Hz]$ et $[-20^oC - 100^oC]$. Il est inférieur à $0,01$ sauf aux faibles fréquences ($< 1Hz$) et hautes températures (> 80°C) du fait de la contribution de la conduction qui devient de plus en plus importante dans cette gamme de mesure.

Électrodes en graisse de carbone

Comme démontré et reportée sur la figure 2.3.6, la nature de l'électrode peut avoir un impact non négligeable sur la constante diélectrique. La figure 2.3.17 reporte la constante diélectrique et le facteur de pertes du Polypower avec une électrode en graisse de carbone.

On n'observe aucun changement de la valeur de la constante diélectrique vu que l'électrode en graisse de carbone possède la même nature chimique que le diélectrique utilisé soit du silicone (figure 2.3.16 et 2.3.17). Cette valeur vaut $3,1$ à température ambiante dans toute la gamme de fréquence étudiée. Cette conclusion est en adéquation avec les remarques reportées sur la figure 2.3.6.

Le modèle de Debye (équation 2.3.2) permet toujours de modéliser la dépendance de la constante diélectrique du Polypower en fonction de la température (figure 1.24).

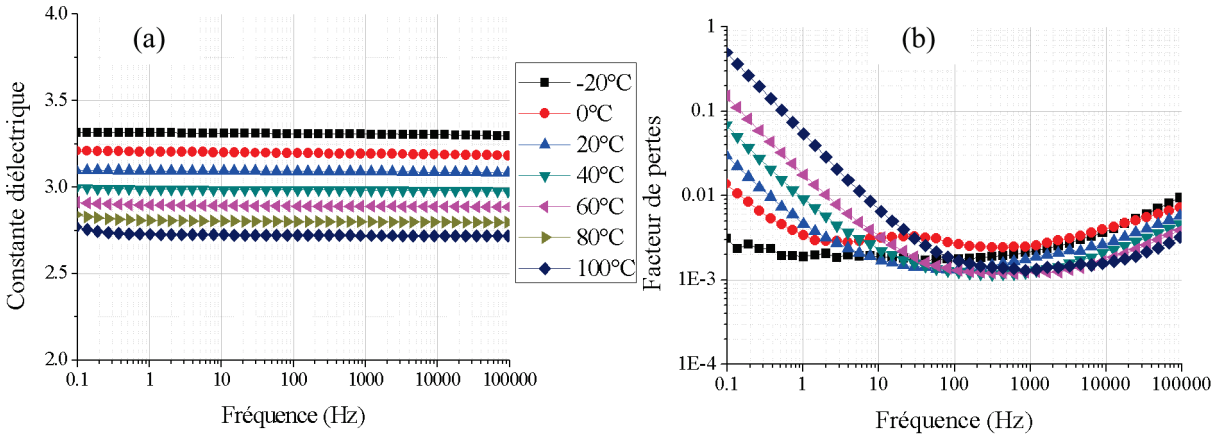


FIG. 2.3.17: Constante diélectrique (a) et facteur de pertes (b) à différentes températures du Polypower pour une électrode en graisse de carbone.

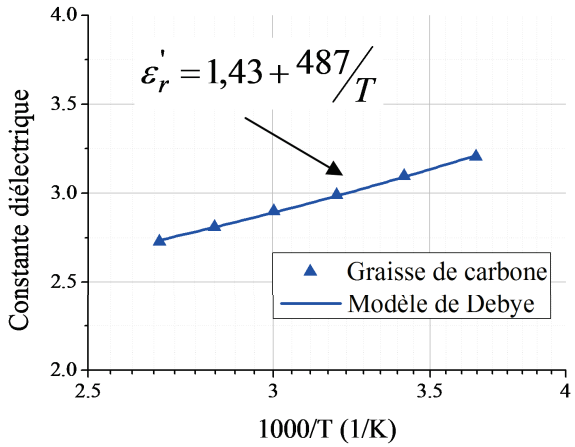


FIG. 2.3.18: Constante diélectrique du film en silicone Polypower en fonction de la température avec des électrodes en graisse de carbone.

La constante diélectrique du Polypower à haute fréquence ε_∞ vaut $1,43$ et l'énergie d'activation pour ce matériau E_a est de $10meV$, toujours inférieure à l'énergie de fluctuation thermique, validant l'utilisation du modèle de Debye.

Nous n'observons aucune relaxation pour le Polypower dans la gamme d'étude. La constante diélectrique de ce matériau vaut $3,1$ *à température ambiante pour des électrodes en argent ou en graisse de carbone. La dépendance de sa constante diélectrique à la température peut être décrite par une loi linéaire de type Debye.*

2.3.2.2.2 Effet de la précontrainte

L'élastomère Polypower (le film en silicone sans électrodes) est pré-étiré en mode pure-shear (largeur constante) avec un coefficient d'extension λ variant de 1 à 2. Des électrodes en graisse de carbone sont ensuite déposées sur le film. La figure 2.3.19 illustre la variation de $\varepsilon_r^{'}$ en fonction de cette précontrainte.

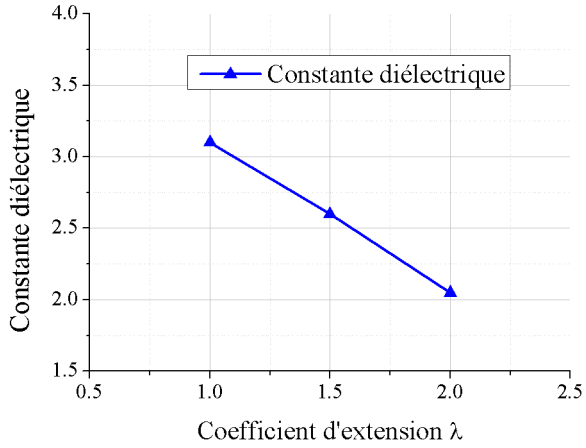


FIG. 2.3.19: Constante diélectrique du Polypower pour différents coefficients d'extension (valeurs relevées à la température ambiante et à $1Hz$).

La constante diélectrique du Polypower vaut $2,6$ pour un coefficient d'extension de $1,5$ ($\lambda = 1,5$) et $2,05$ à $\lambda = 2$. Ces valeurs sont en accord avec les études réalisées par [Jordi 11]. Comme dans le cas du VHB, la chute de la valeur de la constante diélectrique peut être expliquée par différents phénomènes physiques tels que la diminution de la capacité d'orientation des dipôles [Munch 06], la cristallisation sous contrainte [Ikeda 07] ou bien la réponse électrostrictive [Zhao 08]. Des tests supplémentaires permettraient d'affiner notre connaissance des phénomènes physiques mis en jeu au sein du matériau.

La variation de la constante diélectrique du Polypower en fonction du coefficient d'extension à température ambiante peut être modélisée par une loi linéaire :

$$\varepsilon_r^{'} = \varepsilon_{ri}^{'}\left(1 + a(\lambda_1 + \lambda_2 - 2)\right) \tag{2.3.6}$$

$\varepsilon_{ri}^{'}$, a sont les paramètres de corrélation.

Comme nous avons testé les échantillons précontraint en mode pure-shear, c'est-à-dire que $\lambda_2 = 1$ et $\lambda_1 = \lambda$, nous trouvons les paramètres du modèle : $\varepsilon_{ri}^{'} = 3,11$ et $a = -0,338$.

La constante diélectrique du Polypower diminue quand la précontrainte imposée au matériau augmente. Elle vaut $3,1$, $2,6$ *et* $2,05$ *à l'état initial, en précontrainte de* $1,5$ *et en précontrainte de* 2 *respectivement.*

2.3.2.2.3 Pertes diélectriques

Comme pour le VHB, le facteur de pertes du Polypower ne varie pas avec le coefficient d'extension imposé au matériau mais il y a une forte dépendance de ce paramètre à la température (figure 2.3.20).

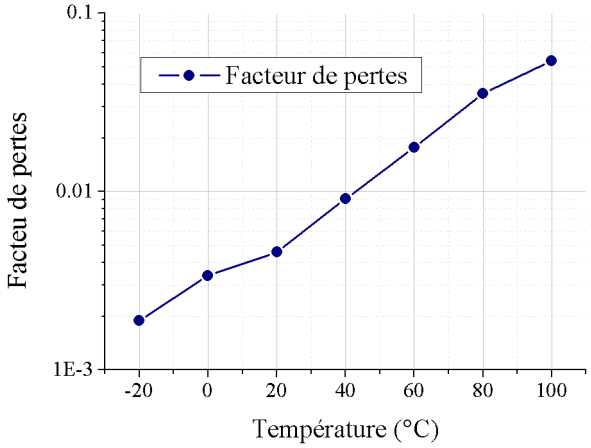


FIG. 2.3.20: Facteur de pertes ($\varepsilon_r^{"}$) du Polypower pour différentes températures. Les valeurs sont relevées à $1Hz$.

La densité d'énergie électrique dissipée par le Polypower peut être calculée par l'équation 2.3.4. En fonction de l'application envisagée, les conditions de fonctionnements sont déterminées et les pertes diélectriques au sein du matériau peuvent être estimées.

2.3.2.2.4 Rigidité diélectrique

La rigidité diélectrique du Polypower en fonction du coefficient d'extension à température ambiante est présenté sur la figure 2.3.21. Le silicone Polypower (sans électrodes métalliques) est pré-étiré biaxialement et symétriquement dans deux directions L_1 et L_2 avec le même coefficient λ. Des électrodes en graisse de carbone sont déposées sur le film étiré.

Comme le VHB, plus on étire le silicone Polypower, plus sa rigidité diélectrique augmente. Cette dépendance peut être exprimée par une loi de puissance :

$$E_{claquage} = E_0 \left(\lambda_1 \lambda_2\right)^{\alpha} \tag{2.3.7}$$

avec λ_1, λ_2 : coefficients d'extension suivant les directions L_1 et L_2 ; E_0, α paramètres à corréler.

Au vu de la figure 2.3.21, on peut déterminer que la rigidité diélectrique pour le matériau non déformé est $E_0 = 64MV.m^{-1}$. Le facteur de puissance α vaut 0,55. Ce facteur est le

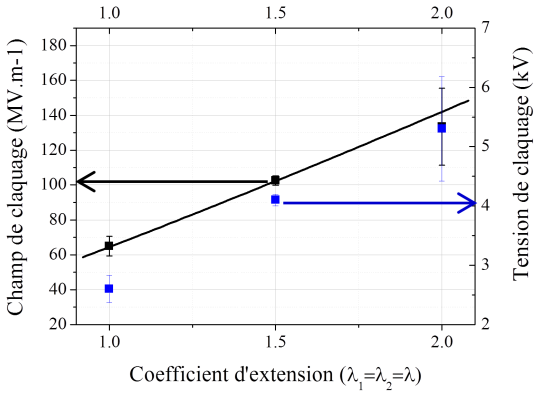


FIG. 2.3.21: Rigidité diélectrique du Polypower pour différents coefficients d'extension.

même que celui trouvé pour le VHB, on peut donc penser que la dépendance de la rigidité diélectrique au coefficient d'extension est de même nature pour les deux matériaux.

La figure 2.3.22 récapitule l'effet de la température sur des échantillons non précontraints. On note que la température n'a pas d'effet important sur la rigidité diélectrique du Polypower contrairement au cas du VHB (figure 2.3.22).

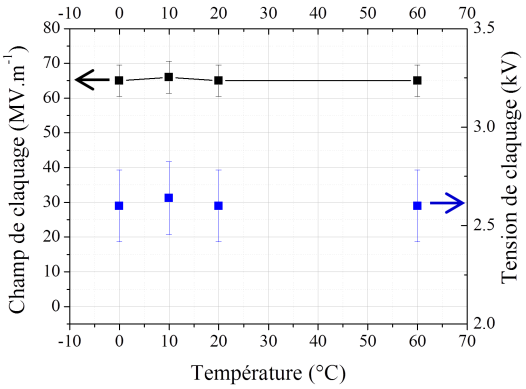


FIG. 2.3.22: Rigidité diélectrique du Polypower pour différentes températures.

La rigidité diélectrique du Polypower augmente avec l'augmentation du coefficient d'extension. Il varie de $64MV.m^{-1}$ *à* $133MV.m^{-1}$ *quand le coefficient d'extension en surface change de* 1 *à* 4. *Toutefois, la température n'a pas d'influence significative sur la rigidité diélectrique du Polypower. Elle est toujours d'environ* $64MV.m^{-1}$ *dans la gamme de températures allant de* 0 °C *à* 60 °C.

2.3.3 Bilan des caractérisations expérimentales

Connaître le comportement mécanique et électrique des élastomères diélectriques est indispensable pour pouvoir évaluer et optimiser le fonctionnement des DEGs. En effet, les

propriétés du matériau sont fonction de différents paramètres, tels que la température, la fréquence, le coefficient d'extension ou bien la nature de l'électrode utilisée. A partir de nos résultats expérimentaux, nous proposons dans cette section des lois analytiques, prenant en compte l'effet des différents paramètres extérieurs sur le comportement mécanique et électrique des élastomères diélectriques. Ces lois seront alors utilisées dans les modèles analytiques décrivant les DEGs.

2.3.3.1 Comportement mécanique

Le comportement hyperélastique du VHB et du Polypower peut être modélisé par des lois analytiques. En effet, la densité d'énergie de déformation de ces élastomères peut être modélisée par différentes formules analytiques (équation 2.2.6 - 2.2.9). Les ajustements entre théorie et expériences sont très fiables (tableau 2.2.2).

Pour le modèle de Gent, il y a deux paramètres importants à identifier : le module de Young et la limite de déformation de l'élastomère. Grâce à sa simplicité et sa capacité à bien corréler les données expérimentales, nous utiliserons ce modèle dans le reste de ce travail de thèse.

Les deux élastomères diélectriques étudiés étant des élastomères, leur comportement caoutchoutique n'est valable que sur une plage de température en dehors de laquelle ils deviennent trop dur (vitreux) ou trop mou (visqueux). Une analyse de la variation du module de Young en fonction de la température permet donc de limiter la plage de fonctionnement du matériau. Le module de Young du VHB dépend fortement de la température [Zhang 04] tandis que le module de Young du Polypower est quasiment indépendant de ce paramètre [Polypower] (figure 2.3.23).

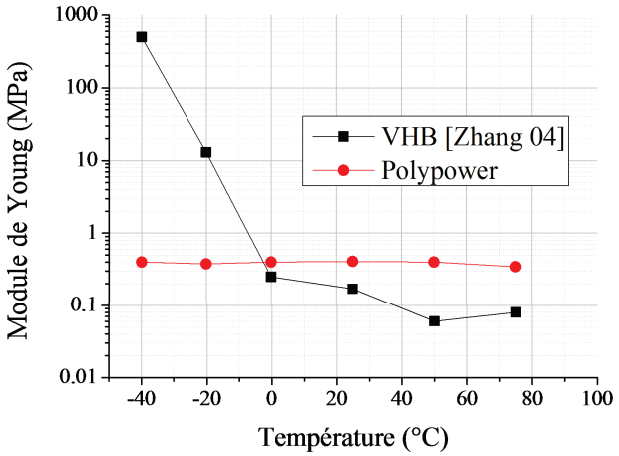


FIG. 2.3.23: Module de Young du VHB et du Polypower pour différentes températures sous traction uniaxiale [Polypower , Zhang 04].

Le module de Young du VHB augmente fortement avec la chute en température. Le matériau devient rigide, et il passe de son état caouchoutique à son état vitreux. A $-40°C$,

sa valeur équivaut à 100 fois celle mesurée à température ambiante. Comme la transition vitreuse s'opère sur une large plage de température, cette température de -40°C sera prise comme température de transition vitreuse du matériau. A température ambiante, le module de Young vaut $0,16MPa$ et cette valeur chute à $0,08MPa$ à 75°C. Contrairement au VHB, le module de Young du Polypower est quasi indépendant de la température et vaut $0,4MPa$. La variation du module de Young du VHB en fonction de la température pour des températures supérieures à 0°C peut être modélisée par :

$$Y_{VHB} = p_1 + p_2 \frac{1000}{T}(MPa) \tag{2.3.8}$$

En corrélant les données de Zhang [Zhang 04] nous obtenons les coefficients suivants : $p_1 = -0,5365$ et $p_2 = 0,214$. Ce modèle est valable de 0°C à 100°C.

Ces variations du module de Young en fonction de la température seront prises en compte dans nos modèles via la loi hyperélastique de Gent dans le chapitre suivant et sont récapitulées au sein du tableau 2.3.5.

En ce qui concerne les pertes mécaniques au sein du matériau, elles peuvent être calculées par l'équation 2.2.12 en connaissant la tangente de pertes mécaniques $tan\delta_{méc}$.

2.3.3.2 Comportement diélectrique

2.3.3.2.1 Constante diélectrique

La constante diélectrique des élastomères diélectriques étudiés est fonction de différents paramètres tels que la fréquence de fonctionnement, la température, la nature de l'électrode mais également la précontrainte imposée au matériau. Nous avons démontré que la nature de l'électrode a un effet non négligeable sur la valeur de la constante diélectrique des matériaux étudiés. En effet, si la nature de l'électrode et la nature de l'élastomère diélectrique sont différentes, il y a une augmentation de la valeur de la permittivité par rapport au cas où l'électrode et l'élastomère sont de même nature. Dans la suite de cette thèse, nous allons essentiellement utiliser des électrodes en graisse. Ainsi, seulement les résultats avec les électrodes en graisse (qui comportent une matrice silicone) seront présentés.

Dans la plupart des applications utilisant des élastomères diélectriques, la fréquence de fonctionnement dépasse rarement les $100Hz$. Aux faibles fréquences, la constante diélectrique du VHB et du Polypower a atteint un plateau. Elle est constante à l'exclusion de la conductivité s'opérant aux basses fréquences. Nous relevons les valeurs à $1Hz$ et la dépendance de la constante diélectrique à la température et à la précontrainte pour le VHB (figure 2.3.24).

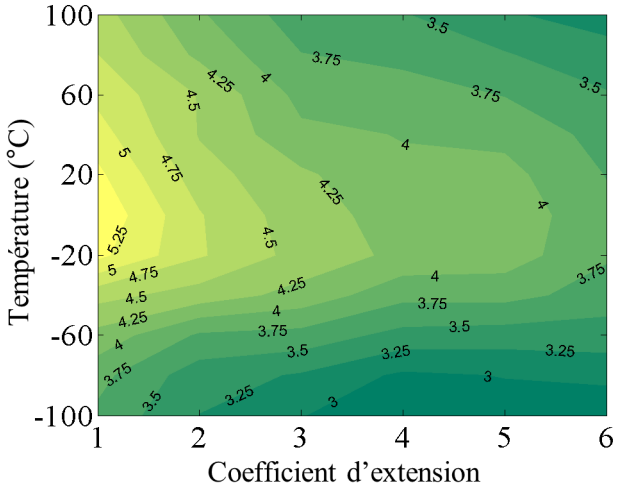


FIG. 2.3.24: Constante diélectrique du VHB pour différentes températures et différents coefficients d'extension. Les valeurs sont relevées à $1Hz$.

Au vu de la figure 2.3.24, au dessus de -20°C la constante diélectrique du VHB décroit quasi linéairement avec l'augmentation de la température pour de faibles niveaux de précontrainte. Avec l'augmentation de la précontrainte, d'autres phénomènes plus complexes se mettent en place et la relation linéaire n'est plus valable (coefficient d'extension supérieur à 4). La dépendance à la précontrainte de la constante diélectrique du VHB est modélisée par une loi polynomiale comme suggéré dans [Zhao 08]. La dépendance en température est une loi inverse. Afin d'introduire l'effet combiné de la précontrainte et de la température, nous modifions l'équation 2.3.3 pour le VHB, la nouvelle équation est alors :

$$\varepsilon'_{r,VHB}(\lambda_1,\lambda_2,T) = \left(\varepsilon_\infty + \frac{A}{T}\right)\left(1 + a(\lambda_1+\lambda_2-2) + b(\lambda_1+\lambda_2-2)^2 + c(\lambda_1+\lambda_2-2)^3\right) \tag{2.3.9}$$

avec ε_∞ la constante diélectrique aux très hautes fréquences ($\varepsilon_\infty = 2,1$), A le facteur d'influence de la température. (ici $A = 963$ voir figure 2.3.8), a, b, c sont les coefficients trouvés à température ambiante (tableau 2.3.4).

L'équation 2.3.9 est valide seulement si la $\beta-$relaxation est terminée au sein du matériau car la variation de la constante diélectrique en fonction de la température suit le modèle de Debye soit pour des températures supérieures à $0°C$ (et par extension > -20°C). La figure 2.3.25 illustre la constante diélectrique du VHB estimé par notre modèle (équation 2.3.9) et l'erreur relative en % entre notre modèle et les résultats mesurés.

Au vu de la figure 2.3.25, notre modèle estime bien la valeur de la constante diélectrique du VHB en fonction de la température et du coefficient d'extension puisque l'erreur relative ne dépasse pas 5% dans toute gamme d'étude, avec une erreur très faible ($< 2\%$) à température ambiante.

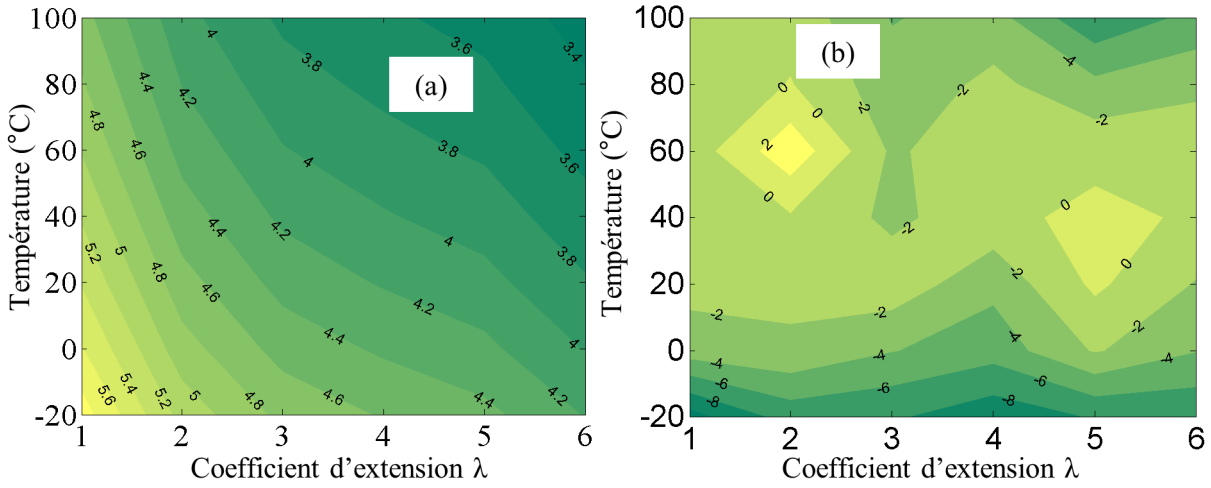


FIG. 2.3.25: Constante diélectrique du VHB pour différentes températures et coefficients d'extension : valeurs estimées du modèle (équation 2.3.9) (a) et erreur relative par rapports aux résultats mesurés (%) (b).

Regardons à présent les variation de la constante diélectrique du le silicone Polypower. Nous avons étudié l'effet combiné de la température et de la déformation en profondeur pour l'élastomère VHB. De toutes ces mesures de de figure 2.3.25, on peut déduire la constante diélectrique du VHB en fonction de la température et de la déformation peut être trouvée en interpolant deux mesures : $\varepsilon_r^{'}(T)$ pour l'échantillon non précontraint et $\varepsilon_r^{'}(\lambda)$ à température ambiante. Pour le Polypower, nous supposons que le même processus est applicable : déduction de toutes les variations à partir de deux mesures. Il suit la même tendance et sa constante diélectrique décroit avec l'augmentation de la température et l'augmentation du coefficient d'extension. On peut donc décrire la relation entre la constante diélectrique, la température et le coefficient d'extension par l'équation suivante :

$$\varepsilon_{r,Polypower}^{'}(\lambda, T) = \left(\varepsilon_\infty + \frac{A}{T}\right)(1 + a(\lambda_1 + \lambda_2 - 2)) \tag{2.3.10}$$

avec ε_∞ la constante diélectrique aux très hautes fréquences ($\varepsilon_\infty = 1,43$), A le facteur d'influence de la température(ici $A = 487$ voir figure 2.3.18), a le facteur décrivant la dépendance de la constante diélectrique à la précontrainte trouvé à température ambiante ($a = -0,338$).

L'équation 2.3.10 est valide sur une large gamme de fréquence,de $0,1Hz$ à 10^5Hz, et de température, de -20°C à 100°C. La figure 2.3.26 prédit la constante diélectrique du Polypower.

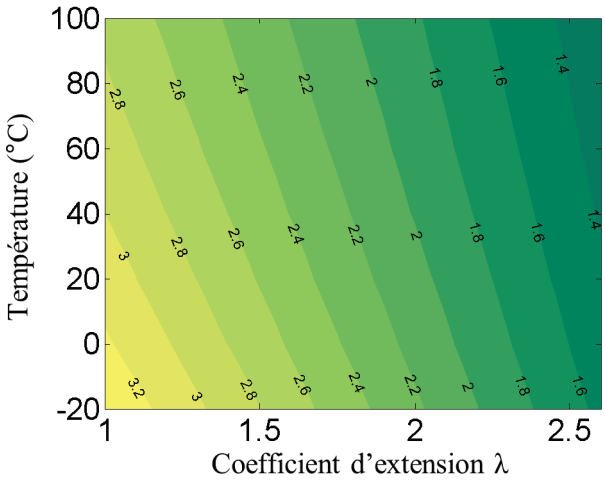


FIG. 2.3.26: Constante diélectrique du Polypower pour différentes températures et différents coefficient d'extension. Valeurs estimées du modèle (équation 2.3.10).

2.3.3.2.2 Facteur de pertes

Les facteurs de pertes du VHB et du Polypower sont quasi indépendants du coefficient d'extension et varient seulement en fonction de la fréquence et de la température (figure 2.3.27).

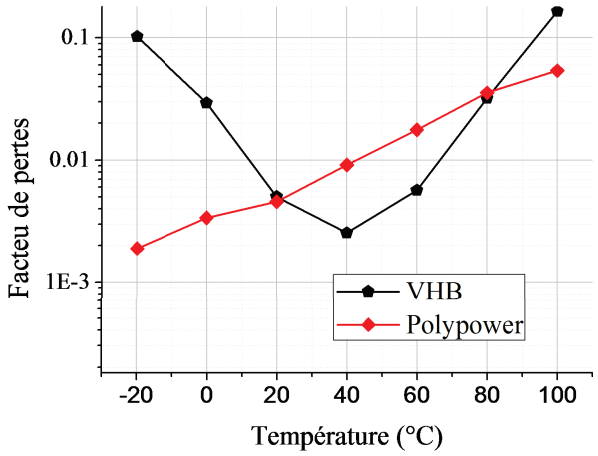


FIG. 2.3.27: Facteur de pertes à $1Hz$ du VHB et du Polypower en fonction de la température.

A température ambiante, les deux matériaux développent une facteur de pertes quasi-identique, autour de $0,005$. En connaissant le facteur de pertes, on peut estimer la quantité d'énergie électrique dissipée au sein du matériau par l'équation 2.3.4.

2.3.3.2.3 Rigidité diélectrique

Pour le VHB, la dépendance de la rigidité diélectrique aux coefficient d'extension et à la température peut être simplement modélisée par l'équation suivante :

$$E_{claquage,VHB}(\lambda_1, \lambda_2, T) = E_0 \left(\lambda_1 \lambda_2\right)^{\alpha} \gamma \left(\frac{1000}{T}\right)^{\beta} \tag{2.3.11}$$

avec E_0 : rigidité diélectrique à l'état initial et à température ambiante. λ_1, λ_2 : coefficients d'extension suivant les directions L_1 et L_2, α : contribution du coefficient d'extension à la variation de la rigidité diélectrique et γ, β : contribution de l'effet de la température. Les paramètres de corrélation sont présentés dans le tableau 2.3.5.

Pour le Polypower, comme la rigidité diélectrique est indépendant de la température, la dépendance de ce paramètre au coefficient d'extension peut être simplement modélisée par :

$$E_{claquage,Polypower}(\lambda_1, \lambda_2, T) = E_0 \left(\lambda_1 \lambda_2\right)^{\alpha} \tag{2.3.12}$$

avec E_0 : rigidité diélectrique à l'état initial et à température ambiante. λ_1, λ_2 : coefficients d'extension suivant les directions L_1 et L_2, α : la contribution du coefficient d'extension à la variation de la rigidité diélectrique. Les paramètres de corrélation sont présentés dans le tableau 2.3.5. La figure 2.3.28 présente la rigidité diélectrique du VHB et du Polypower pour différents niveaux de précontrainte et de températures.

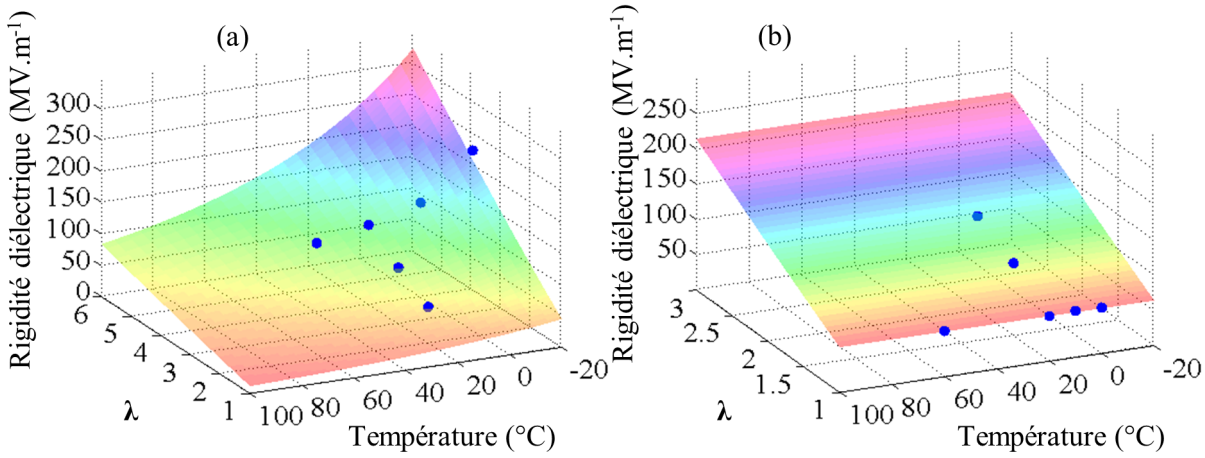


FIG. 2.3.28: Rigidité diélectrique du VHB (a) et du Polypower (b) en fonction de la température et du coefficient d'extension biaxial. Les points représentant des mesures expérimentales. Le dégradé de couleur n'est qu'un guide pour les yeux.

TAB. 2.3.5: Modèles analytiques du module de Young, de la constante diélectrique, et du champ claquage du VHB et du Polypower.

Paramètre	Élastomère diélectrique	
	VHB	Polypower
Module de Young (MPa)	$Y(T) = p_1 + p_2\left(\frac{1000}{T}\right)$ $p_1 = -0,5365$ et $p_2 = 0,214$	$Y(T) = 0,4$
Constante diélectrique $\varepsilon_r^{'}$	$\varepsilon_r^{'}(\lambda_1, \lambda_2, T) = \left(\varepsilon_\infty + \frac{A}{T}\right)\left(1 + a(\lambda_1 + \lambda_2 - 2) + b(\lambda_1 + \lambda_2 - 2)^2 + c(\lambda_1 + \lambda_2 - 2)^3\right)$ $\varepsilon_\infty = 2,1$, $A = 963$, $a = -0,0871$, $b = 0,0121$, $c = -6,285.10^{-4}$	$\varepsilon_r^{'}(\lambda, T) = \left(\varepsilon_\infty + \frac{A}{T}\right)(1 + a(\lambda_1 + \lambda_2 - 2)$ $\varepsilon_\infty = 1,43$, $A = 487$, $a = -0,338$
Rigidité diélectrique ($MV.m^{-1}$)	$E_{claquage}(\lambda_1, \lambda_2, T) = E_0\,(\lambda_1\lambda_2)^\alpha\,\gamma\left(\frac{1000}{T}\right)^\beta$ $E_0 = 27$, $\alpha = 0,55$, $\gamma = 0,014$, $\beta = 3,475$	$E_{claquage}(\lambda_1, \lambda_2, T) = E_0(\lambda_1\lambda_2)^\alpha$ $E_0 = 64$, $\alpha = 0,55$

2.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté le comportement mécanique et diélectrique du polyacrylate VHB et du silicone Polypower sur une large gamme de fréquence, de température et de niveau de déformation. Ces matériaux sont des élastomères qui développent un comportement hyperélastique. La contrainte mécanique peut être obtenue par la dérivée de la densité d'énergie de type Yeoh ou Gent. Toutefois, ces élastomères développent également un comportement viscoélastique ce qui se traduit par des pertes mécaniques au sein du matériau

En ce qui concerne les propriétés diélectriques, nous avons mis en évidence l'influence de la température, de la nature de l'électrode et aussi de la précontrainte sur le comportement diélectrique du VHB et du Polypower. Quand la nature de l'électrode souple est différente de celle de l'élastomère diélectrique, il y a une augmentation de la constante diélectrique de l'élastomère. Cette augmentation est la conséquence d'un phénomène physique à l'interface élastomère - électrode issu probablement de la migration d'oligomères vers la surface de l'élastomère, modifiant ainsi la polarisation d'orientation. De plus, la chute de la constante diélectrique en fonction de la précontrainte s'explique par la diminution de la capacité d'orientation des dipôles sous contrainte mécanique. Il est démontré clairement que l'effet de cette précontrainte est un phénomène volumique tandis que l'effet de la nature de l'électrode est un phénomène interfacial.

Enfin, il est à noter que grâce aux lois analytiques découlant de toutes ces mesures expérimentales, les paramètres mécaniques et diélectriques des élastomères ont pu être estimés pour tout type de scénario durant le fonctionnement. Ces paramètres peuvent maintenant être injectés au sein de modèles analytiques que nous développons dans le chapitre suivant.

Points clés

Positionnement

- ❏ Manque de données expérimentales sur le comportement mécanique et diélectrique de deux élastomères diélectriques couramment utilisés : VHB et Polypower.
- ❏ Disparité des résultats de l'état de l'art sur les paramètres diélectriques.
- ❏ Pas de consensus sur les phénomènes physiques en jeu au sein du matériau précontraint.

Contributions

- ❏ Confirmation de l'influence de la nature de l'électrode sur $\varepsilon_r^{'}$.

- ❏ Mise en lumière et explication de l'effet de la précontrainte sur $\varepsilon_r^{'}$.
- ❏ Proposition de lois analytiques fiables pour les paramètres mécaniques et diélectriques du VHB et du Polypower.

Chapitre 3

Évaluation des performances des générateurs à base d'élastomères diélectriques

Ceux qui ont le privilège de
savoir ont le devoir d'agir....

(Albert Einstein)

Au cours des chapitres précédents, nous avons présenté le fonctionnement des élastomères diélectriques en mode générateur et nous avons réalisé une caractérisation complète des deux élastomères les plus utilisés (le polyacrylate VHB et le silicone Polypower) en fonction de multiples paramètres tels que la fréquence, la température, la précontrainte et la déformation. Ce chapitre est quant à lui consacré à la mise en place d'un modèle analytique pour les élastomères diélectriques. Ce modèle analytique en mode générateur doit être adaptable et modulable à tout scénario. Il doit être simple à mettre en place et fiable.

3.1 Modèles analytiques

Nous avons présenté dans le premier chapitre les modélisations possibles pour un DEG en accentuant sur le modèle thermodynamique. Plus on prend en compte les différents phénomènes physiques s'opérant au sein des élastomères diélectriques et plus la modélisation est précise et fiable. Dans la plupart des résultats disponibles dans la littérature, la modélisation des DEGs s'effectue sous certaines hypothèses :

1. La constante diélectrique est indépendante de la déformation.
2. La rigidité diélectrique est indépendant de la déformation.
3. L'effet de la température n'est pas considéré.

Toutefois, nous avons démontré (dans le deuxième chapitre) que le comportement mécanique et électrique des élastomères diélectriques est fortement dépendant de la déformation, de la température et des conditions de fonctionnement. Nous devons donc inclure ces variations dans les modèles de DEGs.

De plus, différents processus de pertes peuvent jouer un rôle : les pertes viscoélastiques, les pertes diélectriques, les pertes par conduction. Tous ces phénomènes de dissipation très sensibles à la température doivent aussi être considérés et intégrés dans les modèles [Suo 10, Zhao 11].

Nous partons des modèles thermodynamiques proposés par [Suo 10, Zhao 07, Zhao 10] en y introduisant nos lois analytiques traduisant les phénomènes réels s'opérant dans les élastomères diélectriques. Nous allons donc prendre en compte l'effet de :

1. La variation de la constante diélectrique en fonction de la température, de la fréquence et de la précontrainte.
2. La variation de la rigidité diélectrique en fonction de la température et de la précontrainte.
3. L'effet des pertes.

3.1.1 Modèles thermodynamiques des générateurs à base d'un élastomère diélectrique non-idéal

Nous rappelons brièvement les équations thermodynamiques de base pour les DEGs.

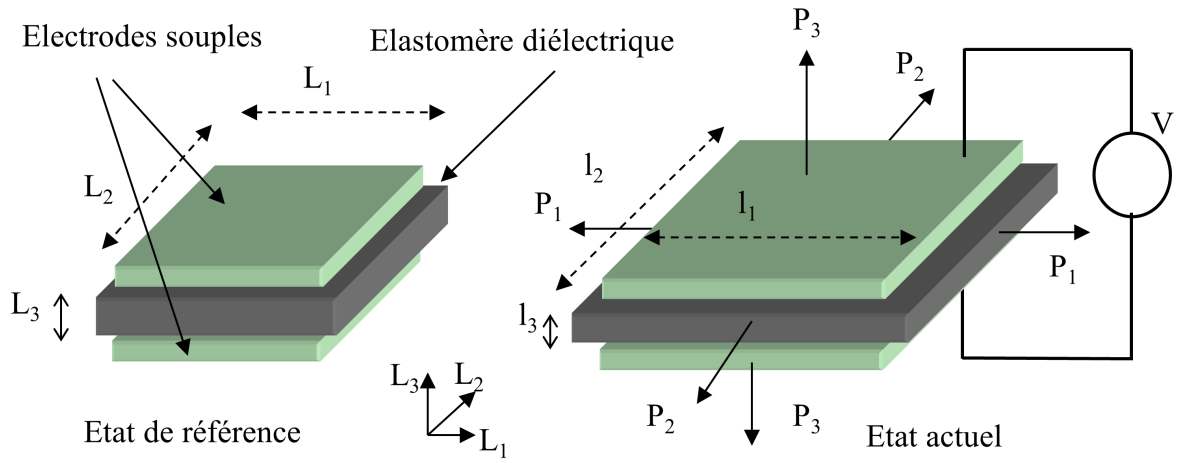


FIG. 3.1.1: Deux états différents pour un DEG : Etat de référence et état actuel.

En fonctionnement, l'élastomère diélectrique est pris en sandwich entre deux électrodes souples et déformables. A l'état de référence, les dimensions du diélectrique sont $L_1L_2L_3$. A l'état actuel, le matériau subit des forces mécaniques P_1, P_2, P_3 et une tension V est imposée entre les électrodes. Les dimensions actuelles sont $l_1l_2l_3$ (figure 3.1.1). Des charges

$\pm Q$ se sont accumulées sur les deux électrodes. Les coefficients d'extension sont définis par : $\lambda_1 = \frac{l_1}{L_1}$, $\lambda_2 = \frac{l_2}{L_2}$, $\lambda_3 = \frac{l_3}{L_3}$.

Comme l'élastomère diélectrique travaille à volume constant (équation 1.4.18), nous déduisons que le troisième invariant du tenseur de Fingeur $I_3 = 1$ et les densités d'énergie peuvent s'exprimer en fonction seulement de deux coefficients d'extension principaux au lieu de trois. La densité d'énergie libre de la structure peut être écrite :

$$w(\lambda_1, \lambda_2, D, T) = w_S(\lambda_1, \lambda_2, T) + w_{ther}(T) + w_{élec}(\lambda_1, \lambda_2, D, T) \tag{3.1.1}$$

Le premier terme à droite de l'équation 3.1.1 (w_S) est la densité d'énergie de déformation. Le deuxième terme de cette équation (w_{ther}) est la contribution purement thermique et le troisième terme ($w_{élec}$) est la densité d'énergie électrostatique de la structure. En comparant cette équation avec l'équation 1.4.4, nous avons ajouté une variable dans la formule de la densité d'énergie libre du transducteur : la température T. En effet, dans cette équation, la dépendance à la température de la densité d'énergie libre w ou bien de la densité d'énergie de déformation w_S et de la densité d'énergie électrostatique $w_{élec}$ est introduite.

Densité d'énergie mécanique

Les élastomères diélectriques développent un comportement hyperélastique lors de leur fonctionnement. Comme présenté dans le chapitre 2, ce comportement peut être modélisé par différents modèles analytiques tels que le modèle de Mooney - Rivlin (équation 2.2.6), Yeoh (équation 2.2.7), Odgen (équation 2.2.8) ou de Gent (équation 2.2.9). Ces quatre modèles peuvent être utilisés pour décrire le comportement hyperélastique avec une très bonne précision.

Nous choisissons dans cette section la densité d'énergie de déformation basée sur le modèle de Gent (équation 2.2.9) avec deux paramètres variables : le module de Young (Y) et la limite de déformation des chaînes (J_m) . Afin d'introduire l'effet de la température (T), cette densité d'énergie peut être écrite comme suit :

$$w_S(\lambda_1, \lambda_2, T) = -\frac{Y(T) J_m (1 + \theta \frac{T - T_0}{T_0})}{6} ln \left(1 - \frac{\lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \frac{1}{\lambda_1^2 \lambda_2^2} - 3}{J_m (1 + \theta \frac{T - T_0}{T_0})} \right) \tag{3.1.2}$$

avec $Y(T)$: module de Young en fonction de la température T. J_m est liée à la déformation maximale des chaines de la matrice de polymère. θ est un paramètre décrivant la variation de J_m en fonction de la température. Dans cette thèse, nous considérons que la température n'a pas une influence importante sur la déformation maximale des chaînes. Ceci nous permet donc de prendre $J_m = const$ et $\theta = 0$ [Sheng 12]. On regarde donc seulement l'influence de la température sur le module de Young d'un point de vue mécanique.

Cette variation est modélisée par les lois analytiques issues du chapitres 2 (voir tableau 2.3.5).

Contribution purement thermique

Les élastomères diélectriques génèrent des pertes diélectriques, des pertes par conduction mais aussi des pertes viscoélastiques qui sont des sources de chaleur et peuvent contribuer à l'échauffement du matériau. De plus, ces matériaux ne fonctionnent jamais dans un environnement isotherme, la température de l'environnement (T ambiante) influence naturellement la température interne du matériau. Il nous faut donc déterminer la solution du problème thermique en prenant comme source de chaleur interne, les pertes générées lors du cycle de fonctionnement et l'influence de la température externe.

Selon l'étude réalisée par [Jean-Mistral 08a], on peut considérer que l'élastomère évolue à température constante, sans apport extérieur de chaleur car les pertes engendrent très peu d'augmentation de la température du matériau. Afin de simplifier le problème, nous supposons que si le matériau évolue dans un environnement à température T, sa température interne vaut aussi T. Ainsi, l'énergie thermique associée à la variation de la température, est calculée par l'équation suivante :

$$w_{ther}(T) = \rho_0 c_0 \left[(T - T_0) - ln\left(\frac{T}{T_0}\right) \right] \tag{3.1.3}$$

avec ρ_0 : densité de masse spécifique et c_0 : capacité thermique du matériau. T_0 et T : température de référence et actuelle.

Densité d'énergie électrostatique

Comme démontré au second chapitre, la constante diélectrique des élastomères diélectriques est une fonction de la déformation et de la température (voir tableau 2.3.5). La relation entre le vecteur de déplacement électrique et le champ électrique imposé au matériau s'écrit alors :

$$E(\lambda_1, \lambda_2, D, T) = \frac{D}{\varepsilon_0 \varepsilon_r'(\lambda_1, \lambda_2, T)} \tag{3.1.4}$$

La densité d'énergie électrostatique devient :

$$w_{élec}(\lambda_1, \lambda_2, D, T) = \frac{D^2}{2\varepsilon_0 \varepsilon_r'(\lambda_1, \lambda_2, T)} \tag{3.1.5}$$

En utilisant les équations 3.1.1, 3.1.2 et 3.1.5, la densité d'énergie libre d'un DEG en formulation eulérienne est :

$$w(\lambda_1,\lambda_2,D,T) = -\frac{Y(T)J_m}{6} ln\left(1-\frac{\lambda_1^2+\lambda_2^2+\frac{1}{\lambda_1^2\lambda_2^2}-3}{J_m}\right) + \rho_0 c_0\left[(T-T_0)-ln\left(\frac{T}{T_0}\right)\right] + \frac{D^2}{2\varepsilon_0\varepsilon_r'(\lambda_1,\lambda_2,T)} \quad (3.1.6)$$

La relation entre le vecteur de déplacement nominal $\tilde{D}$ et le vecteur de déplacement actuel D est :

$$D = \frac{Q}{l_1 l_2} = \frac{Q}{L_1\lambda_1 L_2\lambda_2} = \frac{\tilde{D}}{\lambda_1\lambda_2} \quad (3.1.7)$$

En insérant l'équation 3.1.7 dans l'équation 3.1.6, on obtient la densité d'énergie en grandeur lagrangienne.

$$\tilde{w}(\lambda_1,\lambda_2,\tilde{D},T) = -\frac{Y(T)J_m}{6} ln\left(1-\frac{\lambda_1^2+\lambda_2^2+\frac{1}{\lambda_1^2\lambda_2^2}-3}{J_m}\right) + \rho_0 c_0\left[(T-T_0)-ln\left(\frac{T}{T_0}\right)\right] + \frac{\tilde{D}^2}{2\lambda_1^2\lambda_2^2\varepsilon_0\varepsilon_r'(\lambda_1,\lambda_2,T)} \quad (3.1.8)$$

Les contraintes nominales suivant les directions principales peuvent s'écrire :

$$\sigma_1(\lambda_1,\lambda_2,\tilde{D},T) = \frac{\partial\tilde{w}(\lambda_1,\lambda_2,\lambda_3,\tilde{D})}{\partial\lambda_1} = \frac{Y(T)}{3}\frac{\lambda_1-\lambda_1^{-3}\lambda_2^{-2}}{1-\frac{\lambda_1^2+\lambda_2^2+\frac{1}{\lambda_1^2\lambda_2^2}-3}{J_m}} - \frac{\tilde{D}^2}{\varepsilon_0\varepsilon_r'(\lambda_1,\lambda_2,T)}\lambda_1^{-3}\lambda_2^{-2} - \frac{\tilde{D}^2\lambda_1^{-2}\lambda_2^{-2}}{2\varepsilon_0\varepsilon_r'^2(\lambda_1,\lambda_2,T)}\frac{\partial\varepsilon_r'(\lambda_1,\lambda_2,T)}{\partial\lambda_1} \quad (3.1.9)$$

$$\sigma_2(\lambda_1,\lambda_2,\tilde{D},T) = \frac{\partial\tilde{w}(\lambda_1,\lambda_2,\lambda_3,\tilde{D})}{\partial\lambda_2} = \frac{Y(T)}{3}\frac{\lambda_2-\lambda_1^{-2}\lambda_2^{-3}}{1-\frac{\lambda_1^2+\lambda_2^2+\frac{1}{\lambda_1^2\lambda_2^2}-3}{J_m}} - \frac{\tilde{D}^2}{\varepsilon_0\varepsilon_r'(\lambda_1,\lambda_2,T)}\lambda_1^{-2}\lambda_2^{-3} - \frac{\tilde{D}^2\lambda_1^{-2}\lambda_2^{-2}}{2\varepsilon_0\varepsilon_r'^2(\lambda_1,\lambda_2,T)}\frac{\partial\varepsilon_r'(\lambda_1,\lambda_2,T)}{\partial\lambda_2} \quad (3.1.10)$$

Le champ électrique nominal est :

$$\tilde{E} = \frac{\partial w(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \tilde{D})}{\partial \tilde{D}} = \frac{\tilde{D}}{\lambda_1^2 \lambda_2^2 \varepsilon_0 \varepsilon_r'(\lambda_1, \lambda_2, T)} \tag{3.1.11}$$

L'ensemble des équations 3.1.9, 3.1.10 et 3.1.11 constitue les équations d'états en grandeurs lagrangiennes, permettant de définir tous les états d'un DEG. Nous développons à présent ces équations pour les deux modes de déformations les plus utilisés : biaxial et pure-shear.

3.1.1.1 Mode de déformation biaxiale

Dans ce mode de déformation, l'élastomère diélectrique est déformé symétriquement selon deux sens (L_1 et L_2), ce qui entraine $\lambda_1 = \lambda_2 = \lambda$. La densité d'énergie libre du système est alors :

$$\tilde{w}_b(\lambda, \tilde{D}, T) \quad = \quad w_{Sb}(\lambda, T) \; + \; \rho_0 c_0 \left[(T - T_0) - ln\left(\frac{T}{T_0}\right) \right] \; + \; \frac{\tilde{D}^2}{2\lambda^4 \varepsilon_0 \varepsilon_r'(\lambda, T)} \tag{3.1.12}$$

avec $w_{Sb}(\lambda, T)$: densité d'énergie de déformation en mode biaxial

et $w_{Sb}(\lambda, T) = -\frac{Y(T) J_m}{6} ln\left(1 - \frac{2\lambda^2 + \lambda^{-4} - 3}{J_m}\right)$.

Les contraintes principales suivant les directions L_1 et L_2 sont égales ($\sigma_{1b} = \sigma_{2b} = \sigma_b$) et données par la relation 3.1.13 :

$$\sigma_b \quad = \quad \frac{\partial \tilde{w}_b(\lambda, T)}{\partial \lambda} \quad = \quad \frac{\partial w_{Sb}(\lambda, T)}{\partial \lambda} \; - \; \frac{2\tilde{D}^2}{\varepsilon_0 \varepsilon_r'(\lambda, T)} \lambda^{-5} \; - \; \frac{\tilde{D}^2 \lambda^{-4}}{2\varepsilon_0 \varepsilon_r'^2(\lambda, T)} \frac{\partial \varepsilon_r'(\lambda, T)}{\partial \lambda} \tag{3.1.13}$$

avec

$$\frac{\partial w_{Sb}(\lambda, T)}{\partial \lambda} = \frac{2Y(T)}{3} \frac{\lambda - \lambda^{-5}}{1 - \frac{2\lambda^2 + \lambda^{-4} - 3}{J_m}} \tag{3.1.14}$$

Le champ électrique nominal vaut :

$$\tilde{E} = \frac{\partial \tilde{w}_b(\lambda, T)}{\partial \tilde{D}} = \frac{\tilde{D} \lambda^{-4}}{\varepsilon_0 \varepsilon_r'(\lambda, T)} \tag{3.1.15}$$

En remplaçant l'équation 3.1.15 dans l'équation 3.1.13, on obtient :

$$\sigma_b = \frac{\partial w_{Sb}(\lambda, T)}{\partial \lambda} - 2\varepsilon_0 \varepsilon_r'(\lambda, T) \tilde{E}^2 \lambda^3 - \frac{\varepsilon_0 \tilde{E}^2 \lambda^4}{2} \frac{\partial \varepsilon_r'(\lambda, T)}{\partial \lambda} \tag{3.1.16}$$

3.1.1.2 Mode de déformation pure-shear

Dans ce mode de déformation, le coefficient d'extension suivant la direction L_2 est gardé constant ($\lambda_2 \geq 1$), l'élastomère diélectrique subit un étirement seulement suivant la direction L_1, ce qui se traduit par $\lambda_2 = const$ et $\lambda_1 = \lambda$. La densité d'énergie libre devient :

$$\tilde{w}_p(\lambda, \lambda_2, \tilde{D}, T) \;=\; w_{Sp}(\lambda, \lambda_2, T) \;+\; \rho_0 c_0 \left[(T - T_0) - ln\left(\frac{T}{T_0}\right)\right] \;+\; \frac{\tilde{D}^2}{2\lambda^2\lambda_2^2\varepsilon_0\varepsilon_r'(\lambda, \lambda_2, T)} \tag{3.1.17}$$

avec w_{Sp} : densité d'énergie de déformation en mode de déformation pure-shear

et $w_{Sp}(\lambda, \lambda_2, T) = -\frac{Y(T)J_m}{6} ln\left(1 - \frac{\lambda^2+\lambda_2^2+\frac{1}{\lambda^2\lambda_2^2}-3}{J_m}\right)$.

La contrainte suivant la direction L_1 est :

$$\sigma_{1p} = \sigma_p = \frac{\partial w_{Sp}(\lambda, T)}{\partial\lambda} - \frac{\tilde{D}^2}{\varepsilon_0\varepsilon_r'(\lambda, \lambda_2, T)}\lambda^{-3}\lambda_2^{-2} - \frac{\tilde{D}^2\lambda^{-2}\lambda_2^{-2}}{2\varepsilon_0\varepsilon_r'^2(\lambda, \lambda_2, T)}\frac{\partial\varepsilon_r'(\lambda, \lambda_2, T)}{\partial\lambda} \tag{3.1.18}$$

avec

$$\frac{\partial w_{Sp}(\lambda, T)}{\partial\lambda} = \frac{Y(T)}{3}\frac{\lambda - \lambda^{-3}\lambda_2^{-2}}{1 - \frac{\lambda^2+\lambda_2^2+\frac{1}{\lambda^2\lambda_2^2}-3}{J_m}} \tag{3.1.19}$$

Le champ électrique nominal vaut :

$$\tilde{E} = \frac{\tilde{D}}{\lambda^2\lambda_2^2\varepsilon_0\varepsilon_r'(\lambda, \lambda_2, T)} \tag{3.1.20}$$

En fonction du mode de déformation pour les DEGs, on peut utiliser le système d'équation correspondant afin de décrire les équations d'état du système.

Les équations d'état pour les DEGs ont été présentées et développées pour deux modes de déformation : biaxial et pure-shear. En fonction de l'élastomère à modéliser, l'un ou l'autre de ces systèmes sera utilisé.

3.2 Performances des élastomères VHB et Polypower

Grâce aux caractérisations complètes mises en place et résumées dans le chapitre 2, les comportements mécaniques et électriques du VHB et du Polypower sont bien identifiés et modélisés. Ces lois analytiques sont maintenant insérées dans le système d'équations d'état afin de décrire précisément le fonctionnement, les limites de défaillance et les performances du VHB et du Polypower.

3.2.1 Élastomère diélectrique VHB

Nous considérons deux modes de déformation pour le VHB : biaxial et pure-shear.

3.2.1.1 Déformation biaxiale

La loi de comportement mécanique, la constante diélectrique et le champ de claquage du VHB sont fonction de la température et du coefficient d'extension (tableau 2.3.5). Nous insérons ces dépendances dans le modèle présenté au paragraphe précédent pour les grandeurs lagrangiennes. Les contraintes principales nominales suivant les directions L_1 et L_2 sont égales et valent :

$$\sigma_b = \frac{\partial w_{Sb}(\lambda,T)}{\partial \lambda} - 2\varepsilon_0 \varepsilon_r^{'}(\lambda,T)\tilde{E}^2\lambda^3 - \frac{\varepsilon_0 \tilde{E}^2 \lambda^4}{2}\frac{\partial \varepsilon_r^{'}(\lambda,T)}{\partial \lambda} \tag{3.2.1}$$

avec

$$\frac{\partial w_{Sb}(\lambda,T)}{\partial \lambda} = \frac{2Y(T)}{3}\frac{\lambda - \lambda^{-5}}{1 - \frac{2\lambda^2+\lambda^{-4}-3}{J_m}} \tag{3.2.2}$$

et

$$\varepsilon_r^{'}(\lambda,T) = \left(\varepsilon_\infty + \frac{A}{T}\right)\left(1 + 2a(\lambda-1) + 4b(\lambda-1)^2 + 8c(\lambda-1)^3\right) \tag{3.2.3}$$

$$\frac{\partial \varepsilon_r^{'}(\lambda,T)}{\partial \lambda} = \left(\varepsilon_\infty + \frac{A}{T}\right)\left[2a + 8b(\lambda-1) + 24c(\lambda-1)^2\right] \tag{3.2.4}$$

Le champ électrique nominal est :

$$\tilde{E} = \frac{\tilde{D}}{\lambda^4 \varepsilon_0 \varepsilon_r^{'}(\lambda,T)} \tag{3.2.5}$$

Dans le cas où aucun champ électrique n'est imposé $\tilde{E}_0 = \tilde{D}_0 = 0$, la contrainte nominale est purement mécanique :

$$\sigma_0 = \frac{\partial w_b(\lambda, T)}{\partial \lambda} = \frac{\partial w_{Sb}(\lambda, T)}{\partial \lambda} \tag{3.2.6}$$

Nous analysons maintenant les différentes défaillances, limites de fonctionnement, ruptures que le VHB peut subir en mode de déformation biaxiale.

Claquage électrique

Afin d'éviter le claquage au sein du matériau, le champ d'opération doit être inférieur à celui de la rigidité diélectrique du matériau :

$$\tilde{E} \leq \tilde{E}_{claquage} \tag{3.2.7}$$

La rigidité diélectrique du VHB ($E_{claquage}$) a été déterminé au chapitre 2 en fonction de la température et de l'étirement imposé au matériau (tableau 2.3.5).

La relation entre le champ nominal et le champ actuel est donnée par :

$$E = \frac{V}{l_3} = \frac{V}{\lambda_3 L_3} = \lambda_1 \lambda_2 \tilde{E} \tag{3.2.8}$$

La limite de fonctionnement liée au claquage électrique du VHB s'écrit alors :

$$\tilde{E}(\lambda, T) \leq \tilde{E}_{claquage}(\lambda, T) = \frac{E_{claquage}}{\lambda^2} = E_0 \lambda^{2(\alpha-1)} \gamma \left(\frac{1000}{T}\right)^{\beta} \tag{3.2.9}$$

et :

$$\tilde{D} \leq \tilde{D}_{claquage} = \tilde{E}_{claquage}(\lambda, T) \varepsilon_0 \varepsilon_r^{'}(\lambda, T) \lambda^4 \tag{3.2.10}$$

La contribution électrique s'opposant à celle mécanique, la contrainte nominale σ_b doit toujours être supérieure à celle du claquage électrique $\sigma_{claquage}$ afin d'éviter ce mode de défaillance :

$$\sigma_b \geq \sigma_{claquage}(\lambda, T) = \frac{\partial w_S(\lambda, T)}{\partial \lambda} - 2\varepsilon_0 \varepsilon_r^{'}(\lambda, T) \tilde{E}^2_{claquage}(\lambda, T) \lambda^3 - \frac{\varepsilon_0 \lambda^4}{2} \frac{\partial \varepsilon_r^{'}(\lambda, T)}{\partial \lambda} \tilde{E}^2_{claquage}(\lambda, T) \tag{3.2.11}$$

Instabilité électromécanique (EMI) ou « pull-in »

Cette instabilité est liée à un état où il est impossible de trouver un équilibre entre la contrainte de compression de type Maxwell et la contrainte élastique du matériau. Le matériau claque sous un champ électrique bien inférieur à celui du claquage [Stark 55]. Cette instabilité est identifiée par un pic du champ électrique $\tilde{E}$ en fonction du coefficient d'extension [Zhao 07].

A partir de l'équation 3.2.1, à l'équilibre, le champ électrique nominal $\tilde{E}$ s'écrit :

$$\tilde{E} = \frac{V}{L_3} = \sqrt{\frac{\frac{\partial W_S(\lambda,T)}{\partial \lambda} - \sigma_b}{2\varepsilon_0 \varepsilon_r^{'}(\lambda,T)\lambda^3 + \frac{\varepsilon_0 \lambda^4}{2}\frac{\partial \varepsilon_r^{'}(\lambda,T)}{\partial \lambda}}} \tag{3.2.12}$$

avec V : la tension appliquée à la structure.

La contrainte correspondant à l'instabilité électromécanique peut être trouvée en résolvant l'équation $\frac{\partial \tilde{E}}{\partial \lambda} = 0$. Elle est exprimée par :

$$\sigma_{EMI}(\lambda,T) = \frac{\partial w_S(\lambda,T)}{\partial \lambda} - \frac{\left(\frac{\partial^2 W_S(\lambda,T)}{\partial \lambda^2}\right)\left[\frac{\varepsilon_0 \lambda^4}{2}\frac{\partial \varepsilon_r^{'}(\lambda,T)}{\partial \lambda} + \varepsilon_0 \varepsilon_r^{'}(\lambda,T)\lambda^3\right]}{3\lambda^2 \varepsilon_0 \varepsilon_r^{'}(\lambda,T) + 2\lambda^3 \frac{\partial \varepsilon_r^{'}(\lambda,T)}{\partial \lambda} + \frac{\lambda^4}{2}\frac{\partial^2 \varepsilon_r^{'}(\lambda,T)}{\partial \lambda^2}} \tag{3.2.13}$$

avec

$$\frac{\partial^2 w_S(\lambda,T)}{\partial \lambda^2} = \frac{2Y(T)}{3}\frac{1+5\lambda^{-6}}{1-\frac{2\lambda^2+\lambda^{-4}-3}{J_m}} - \frac{8Y(T)}{3}\frac{\left(\lambda-\lambda^{-5}\right)^2}{J_m\left(1-\frac{2\lambda^2+\lambda^{-4}-3}{J_m}\right)^2} \tag{3.2.14}$$

et

$$\frac{\partial^2 \varepsilon_r^{'}(\lambda,T)}{\partial \lambda^2} = 8\left(\varepsilon_\infty + \frac{A}{T}\right)\left[b + 6c(\lambda-1)\right] \tag{3.2.15}$$

La figure 3.2.1 trace la contrainte correspondant à l'instabilité électromécanique en fonction du coefficient d'extension à température ambiante (20°C).

Afin d'éviter ce type d'instabilité, il faut que la contrainte développée par le système σ_b soit toujours supérieure à celle de l'instabilité électromécanique σ_{EMI} :

$$\sigma_b \geq \sigma_{EMI} \tag{3.2.16}$$

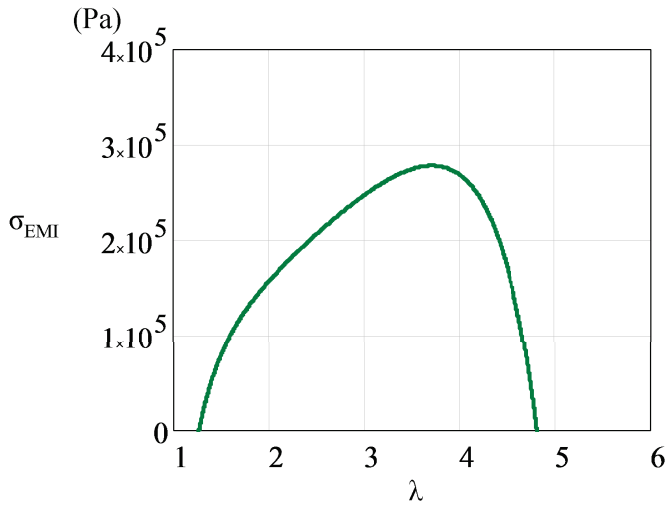


FIG. 3.2.1: Contrainte nominale correspondant à l'instabilité électromécanique.

Perte de tenue (« Loss of tension » en anglais)

En fonctionnement, l'élastomère diélectrique doit être maintenu sous contrainte (soit par un effet mécanique, soit par un effet électrique). Si une contrainte de compression importante est imposée, des zones ridées ou « wrinkling » en anglais, conduisent à une apparence de déformation hors plan du film en élastomère [Plante 06] (figure 3.2.2). Ce phénomène entraîne ensuite une défaillance de la structure par « pull-in » ou claquage.

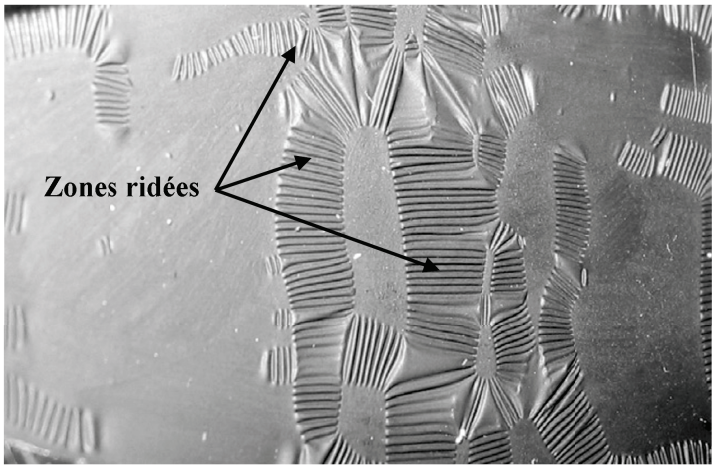


FIG. 3.2.2: Formation de zones ridées sur l'élastomère diélectrique [Plante 06].

Afin d'éviter ce type d'instabilité, il faut que la contrainte développée au sein de la structure σ_b soit supérieure à zéro :

$$\sigma_b \geq \sigma_{LT} = 0 \tag{3.2.17}$$

Le champ électrique nominal $\tilde{E}$ doit être inférieur à celui correspondant à une contrainte nulle $\tilde{E}_{LT}$ (figure 3.2.3).

$$\tilde{E} \leq \tilde{E}_{LT} = \sqrt{\frac{\frac{\partial W_S(\lambda,T)}{\partial \lambda}}{2\varepsilon_0 \varepsilon'_r(\lambda,T)\lambda^3 + \frac{\varepsilon_0 \lambda^4}{2} \frac{\partial \varepsilon'_r(\lambda,T)}{\partial \lambda}}} \tag{3.2.18}$$

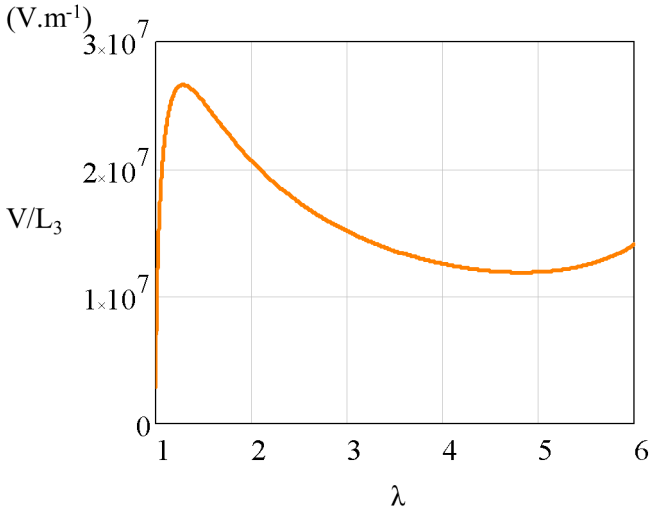


FIG. 3.2.3: Champ électrique nominal correspondant à l'instabilité de type « perte de tenue ». La courbe est tracée à $T = 20°C$.

Rupture mécanique

La condition de non rupture mécanique est déterminée par un coefficient d'extension maximal inférieur à celui de la rupture.

$$\lambda \leq \lambda_{lim} \tag{3.2.19}$$

Pour le VHB, comme démontré par [Plante 06], cette limite λ_{lim} est de 6.

3.2.1.1.1 Zone d'opération et densité d'énergie récupérable du VHB à température ambiante (20°C) et sous déformation maximale

Chacune des limites/défaillances décrites par les équations (3.2.11 - 3.2.19) correspond à une courbe dans les plans mécaniques et électriques limitant ainsi une zone de fonctionnement pour le matériau étudié. Cette zone est représentée par la surface grisée sur la figure 3.2.4. Nous considérons tout d'abord le cas idéal où aucune perte n'est introduite.

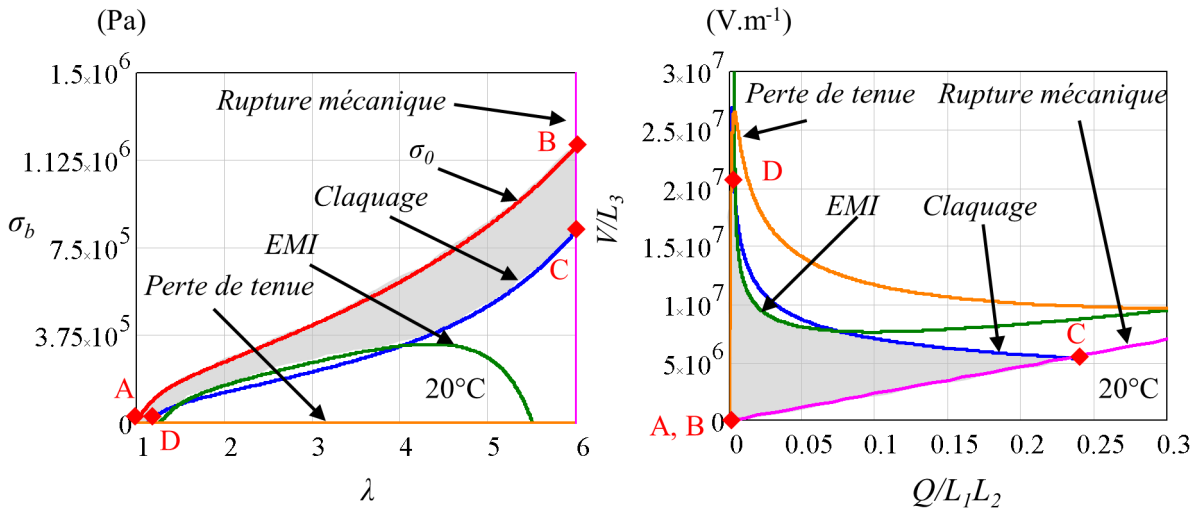


FIG. 3.2.4: Zone de fonctionnement en mode générateur du VHB à 20°C : plan mécanique (a) et plan électrique (b).

Un point, soit dans le plan contrainte nominale - coefficient d'extension ($\sigma_b - \lambda$), soit dans le plan du champ électrique nominal - déplacement nominal ($\tilde{E} = \frac{V}{L_3} - \tilde{D} = \frac{Q}{L_1 L_2}$) représente un état du DEG. Les régions grises dans la figure 3.2.4 définissent la zone de fonctionnement pour le VHB à 20°C, suivant le mode de déformation biaxiale sans défaillances. En opérant un cycle de fonctionnement pour le DEG suivant les limites définies par les différentes mécanismes de défaillances, l'énergie récupérable peut être estimée.

L'élastomère VHB est étiré mécaniquement de l'état A à l'état B soit de 0% à 500% ($\lambda = 1$ à 6). Après avoir été chargé électriquement, il passe de l'état B à l'état C. Notons que dans le cycle présenté sur la figure 3.2.4, le matériau est supposé opérer sous champ maximal (soit à la valeur du champ de claquage). Un fois qu'il est chargé, la force mécanique est retirée, le VHB peut alors se relaxer et retourner à un état d'équilibre entre force élastique et force électrostatique de type Maxwell : de l'état C à l'état D. A l'état D, l'énergie électrostatique stockée dans le VHB a été amplifiée grâce à l'énergie mécanique. L'élastomère est ensuite déchargé : phase $D \rightarrow A$ et un autre cycle énergétique peut recommencer. Le cycle permettant de récupérer une énergie maximale suit donc le contour extérieur de l'aire grisée et l'énergie récupérable n'est autre que la surface liée à cette aire.

La densité d'énergie récupérable $\left(w_{rec} = \frac{W_{rec}}{L_1 L_2 L_3}\right)$ est donnée par la surface grise sur le plan mécanique ($\sigma_b - \lambda$), ou le plan électrique $\left(\tilde{E} - \tilde{D}\right)$. Pour une déformation en mode biaxial, en négligeant les effets de pertes, le surface grise sur le plan $\left(\tilde{E} - \tilde{D}\right)$ est deux fois supérieure à celle du plan ($\sigma - \lambda$). Dans la littérature, en supposant que la constante diélectrique du VHB ne dépend pas de la déformation, la densité d'énergie maximale récupérable a été estimée à $6,3 J.g^{-1}$ à 20°C [Koh 09]. Dans notre étude, la constante diélectrique dépend du coefficient d'extension si bien que la densité d'énergie récupérable

du DEG chute à $2,2 J.g^{-1}$ (la masse volumique du VHB est de $1 g.cm^3$), soit 63% de moins par rapport à [Koh 09]. Cet écart est expliqué par l'utilisation des paramètres $\varepsilon_r^{'}$ et $E_{claquage}$ mesurés, par la prise en compte de la variation de ces paramètres en fonction de la déformation et de la température. Notre modélisation s'approche du cas réel comparée à celle de [Koh 09] qui utilise des paramètre idéaux.

Nous avons développé les équations d'état pour l'élastomère VHB correspondant aux différents types d'instabilité : le claquage électrique, l'instabilité électromécanique, la perte de tenue et la rupture mécanique. Nous avons introduit la variation des paramètres du matériau en fonction de la température et du coefficient d'extension. Un cycle énergétique est présenté pour le VHB à $20°C$. Ce matériau peut en théorie récupérer une densité d'énergie de $2,2 J.g^{-1}$, valeur plus petite que celle reportée dans la littérature. Soulignons que cette densité d'énergie est une valeur théorique difficile à obtenir expérimentalement.

3.2.1.1.2 Effet de la température et du niveau de déformation

Nous avons présenté la zone de fonctionnement pour l'élastomère VHB à température ambiante. Toutefois, comme la température influence fortement le comportement mécanique et électrique de ce matériau, cette zone de fonctionnement doit être définie pour différentes température. La zone de fonctionnement du VHB pour les températures de 0°C et 100°C est présentée sur la figure 3.2.5, pour une déformation maximale (de 0% à 500%).

Au vu de la figure 3.2.5, l'effet de la température est clairement démontré. Lorsque la température augmente, le module de Young, la constante diélectrique et le champ de claquage chutent entraînant une diminution de la zone de fonctionnement pour ce matériau.

En ce qui concerne l'instabilité électromécanique, on note que à 0°C ou 20°C ce mode de défaillance limite la zone de fonctionnement de l'élastomère. Cette instabilité peut en effet apparaître avant le claquage électrique. Avec l'augmentation de la température T, le claquage électrique s'opère avant cette instabilité (figure 3.2.5.(a,c)). En calculant la surface limitée par les différents modes de défaillances, on peut estimer la densité d'énergie maximale récupérable ($w_{rec-max}$) par le VHB pour différentes températures et niveaux de déformation λ imposés au matériau (figure 3.2.6). Par exemple, un matériau étiré de 0% à 100% ($\lambda = 1$ à 2) correspond à un niveau de déformation $\lambda = 2$.

Soulignons toutefois que les pertes mécaniques sont déjà déduites de l'énergie absorbée par le matériau w_S, calculé à partir du modèle de Gent (équation 2.2.9) et de nos donnés expérimentales.

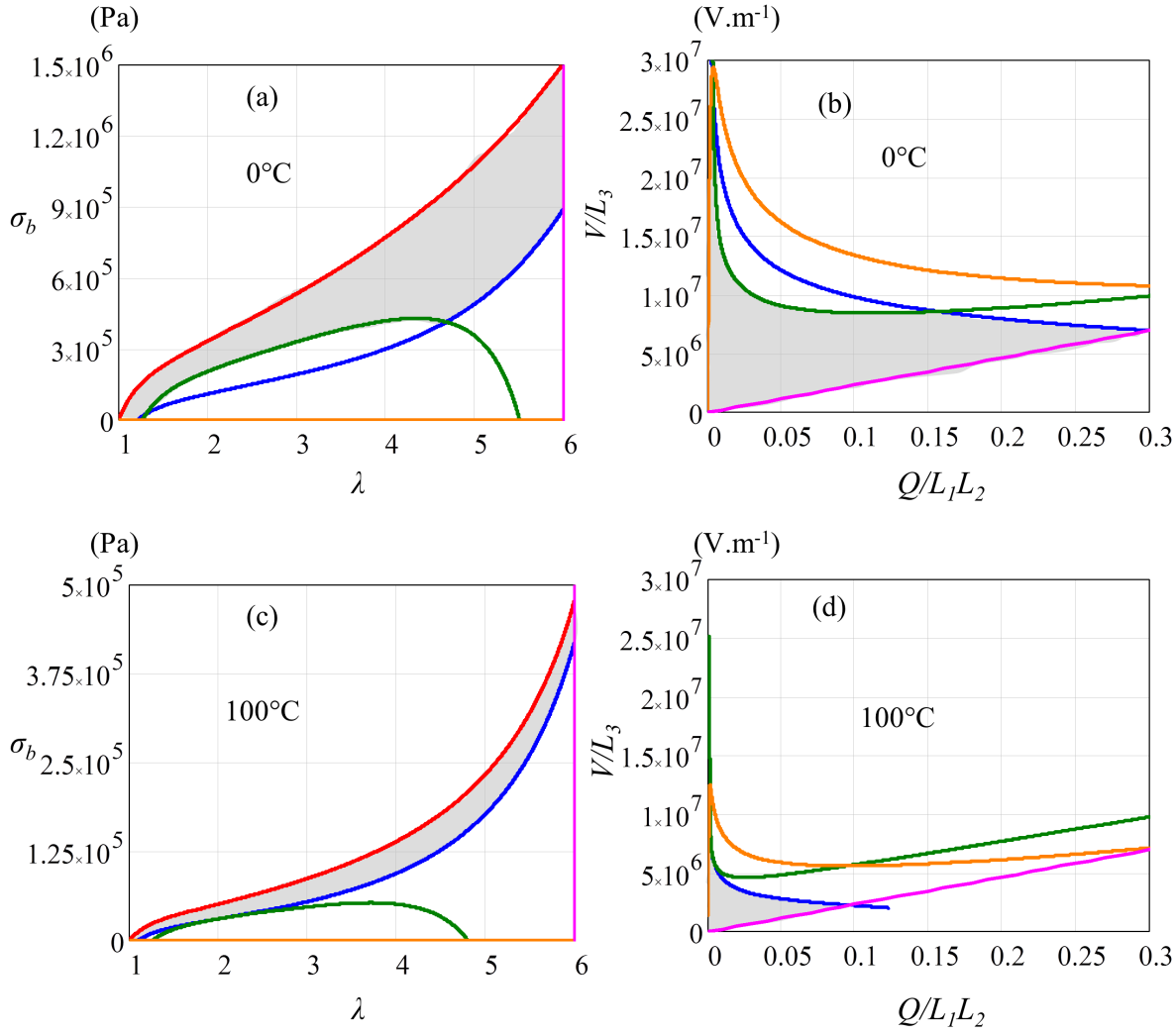


FIG. 3.2.5: Zone de fonctionnement du VHB (surface grise) à 0°C (a, b) et 100°C (c, d). Les mêmes modes de défaillance sont exprimés avec les mêmes couleurs que celles utilisées sur la figure 3.2.4.

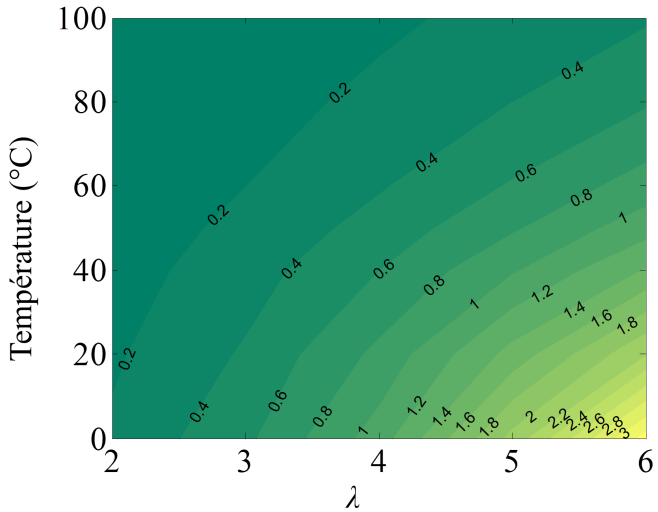


FIG. 3.2.6: Densité d'énergie maximale récupérable (en $J.g^{-1}$) du VHB en fonction de la température et du niveau de déformation. Les pertes d'origine mécanique sont incluses dans le modèle.

Notons que l'élastomère diélectrique VHB récupère plus d'énergie en opérant sous de large déformation et faible température. En effet, plus le matériau se déforme, plus d'énergie mécanique est stockée et plus elle est convertie en énergie électrique. De plus, à faible température, la rigidité diélectrique du VHB est importante, ce qui assure un champ électrique de fonctionnement plus important et donc une énergie récupérable plus conséquente. La densité d'énergie récupérable maximale du VHB est de $3,3 J.g^{-1}$ à 0°C pour une déformation de $\lambda = 6$, c'est à dire que le VHB est étiré d'un coefficient d'extension de 6 lors de la phase active ($B \rightarrow C$). Cette valeur chute à $0,38 J.g^{-1}$ à 100°C pour le même coefficient d'extension λ.

La température et le niveau de déformation influencent fortement l'énergie récupérable par le VHB. Le VHB récupère $3,3 J.g^{-1}$ *à* $0\,°C$ *et* $\lambda = 6$ *mais cette densité d'énergie vaut seulement* $0,03 J.g^{-1}$ *à* $100\,°C$ *et* $\lambda = 2$*, dans le cas idéal.*

3.2.1.1.3 Effet des pertes mécaniques et électriques

Nous regardons maintenant les pertes développées au sein du VHB en fonctionnement. Les mécanismes de pertes peuvent être divisés en deux grandes parties : pertes mécaniques (équation 2.2.12) et pertes diélectriques (équation 2.3.4). Le tableau 3.2.1 récapitule les équations utiles à ce calcul.

TAB. 3.2.1: Équations de calculs pour les pertes mécaniques et diélectriques du matériau.

	Mécaniques	Diélectriques
Densité d'énergie mécanique absorbée	$w_S = \frac{Y J_m}{6} ln\left(1 - \frac{I_1 - 3}{J_m}\right)$ avec $I_1 = \lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2$	—
Densité de pertes	$\Delta w_{Sd} = 2\pi tan\delta_{méc} w_S$	$\Delta w_{diélec} = 2\pi\varepsilon_0 \varepsilon_r^{"} E^2$ avec E supposé maximal

La figure 3.2.7 trace les densités de pertes mécaniques (Δw_{Sd}) et diélectriques (Δw_{dielec}) du VHB à température ambiante suivant différents niveaux de déformation imposés au matériau.

Sur la figure 3.2.7, on voit que les pertes diélectriques sont négligeables par rapport aux pertes mécaniques. En fait, le VHB est un élastomère assez visqueux, la tangente de pertes mécaniques est cent fois supérieure à celle diélectrique dans notre gamme d'étude ($0,1$ contre $1,3.10^{-3}$ - voir figure 2.2.3 et figure 2.3.13). Il faut noter également que la tangente de pertes mécaniques du VHB augmente avec l'augmentation du coefficient d'extension. Les pertes mécaniques sont donc le principal facteur limitant le rendement de conversion des DEGs à base de VHB [Foo 12]. Soulignons que plus la vitesse de sollicitation est importante, plus les pertes mécaniques sont minimisées et plus le rendement de conversion d'énergie est important.

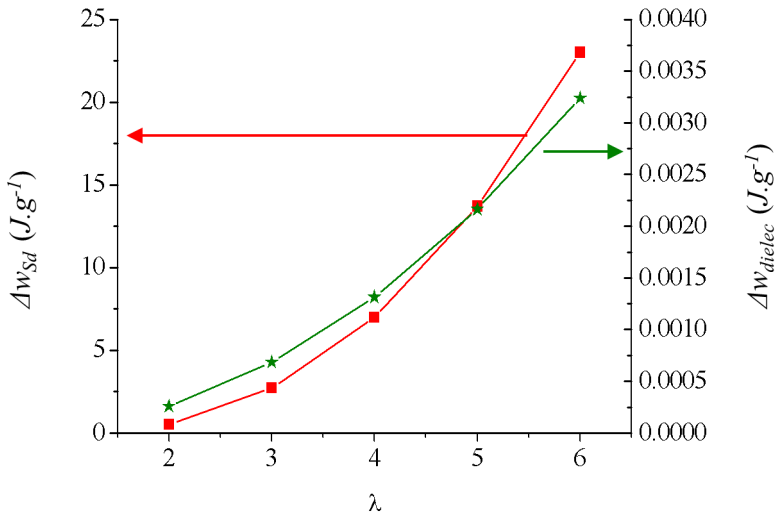


FIG. 3.2.7: Densité de pertes mécaniques et diélectriques du VHB en fonction du coefficient d'extension à température ambiante. Les pertes mécaniques sont calculées pour une vitesse de sollicitation de $0,34s^{-1}$. Les pertes électriques sont calculées à la fréquence de $1Hz$.

Comme la densité des pertes mécaniques w_{Sd} sont déjà déduites de la densité d'énergie mécanique absorbée w_S par le matériau, la densité d'énergie récupérable réelle doit juste prendre en compte les pertes d'origines diélectriques ($w_{rec} = w_{rec-max} - \Delta w_{dielec}$).

La figure 3.2.8 présente la densité d'énergie récupérable (w_{rec}), le rendement de conversion électromécanique (η_{conv}=$\frac{w_{rec}}{w_S}$ - équation 1.4.32) et le rendement du matériau ($\eta_{mat} = \eta_{abs}\eta_{conv} = \frac{w_{rec}}{w_{abs}}$ - équation 1.4.34) définissant ainsi les performances du VHB.

Notons que les pertes mécaniques (Δw_{Sd}) n'influencent pas la densité d'énergie récupérable (w_{rec}) car déjà incluses mais elles jouent un rôle fondamental sur le rendement d'absorption mécanique (η_{abs} - équation 1.4.31) et donc le rendement du matériau (η_{mat}).

La densité d'énergie récupérable réelle du VHB chute peu par rapport au cas idéal car les pertes diélectriques sont faibles comme démontrées sur la figure 3.2.7. A température ambiante, la densité d'énergie récupérable passe de $2,2J.g^{-1}$ dans le cas idéal à environ $2,18J.g^{-1}$ pour $\lambda = 6$ et cette valeur vaut juste $0,2J.g^{-1}$ si $\lambda = 2$. En ce qui concerne le rendement du VHB, même si le rendement de conversion électromécanique (η_{conv}) est relativement haut dans toute la gamme d'étude, le rendement du matériau (η_{mat}) est assez faible et vaut 20% aux faibles températures et faibles déformations (température inférieure à 20°C, λ aux alentours de 2). Avec l'augmentation soit de la température, soit du coefficient d'extension maximale, le η_{mat} diminue en conséquence. Ce rendement est seulement de 6% à 80°C et $\lambda_m = 6$. En comparant l'effet de T et l'effet de λ, on note que le rendement du VHB ($\eta_{mat-VHB}$) est dominé principalement par le coefficient d'extension imposé au matériau. Les faibles rendements du VHB sont principalement dus aux pertes mécaniques importantes (figure 3.2.7).

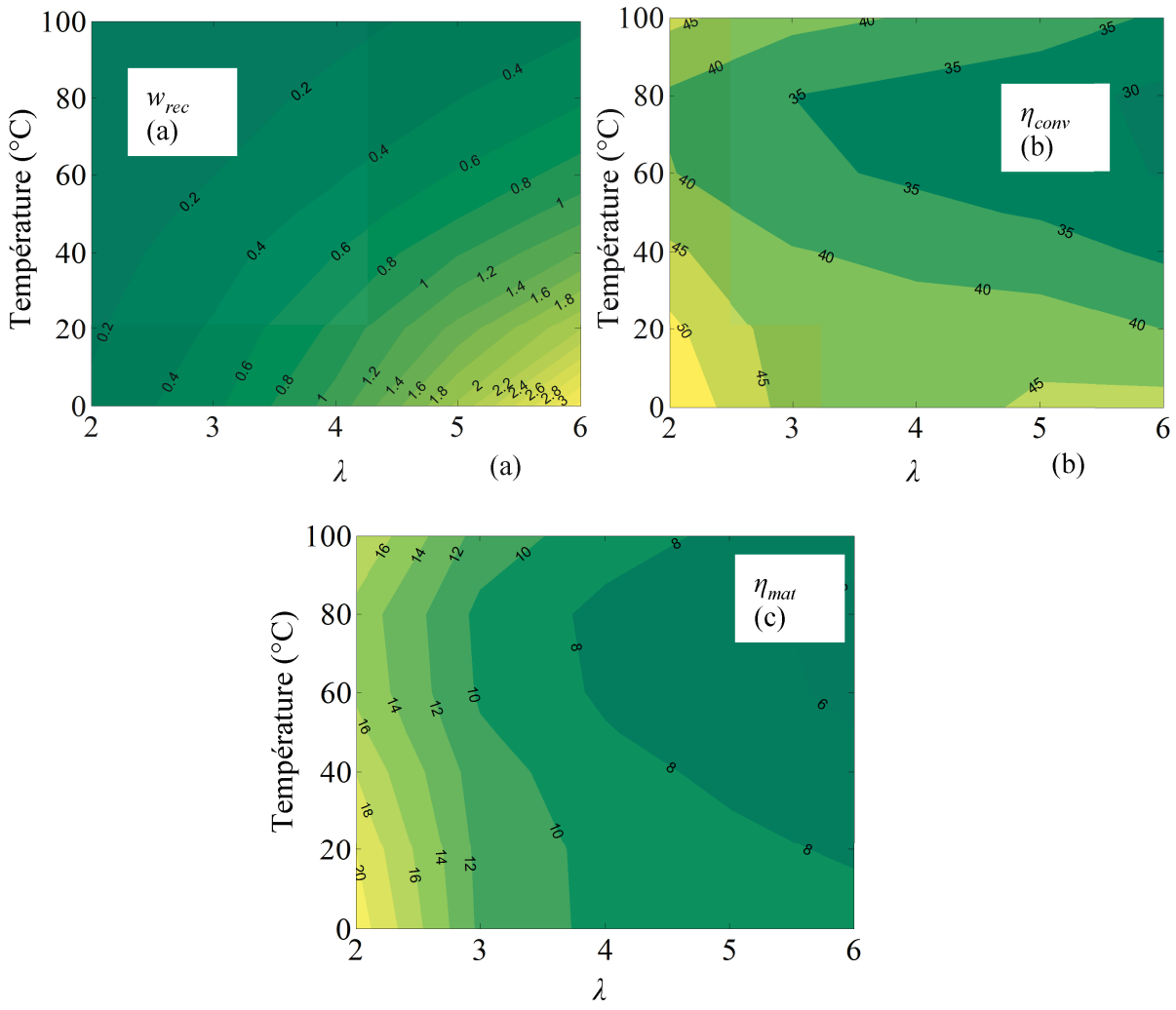


FIG. 3.2.8: Densité d'énergie récupérable en $J.g^{-1}$ (a), rendement de conversion électro-mécanique en ($\eta_{conv}\%$) (b) et rendement du matériau ($\eta_{mat}\%$) (c) du VHB en fonction de la température et du niveau de déformation.

Les pertes diélectriques et mécaniques au sein du VHB limitent ses performances. Cependant ce sont bien ces dernières qui réduisent fortement le rendement du matériau et plus particulièrement la densité d'énergie récupérable.

3.2.1.1.4 Effet de la précontrainte

L'effet de la précontrainte pour les actionneurs en élastomère diélectrique est largement discuté dans la littérature. En effet, la précontrainte augmente la valeur du champ électrique maximal applicable à la structure, entraînant ainsi une augmentation de la contrainte de Maxwell et une plus large déformation [Kofod 08, Li 11a]. Dans cette section, nous allons démontrer comment la précontrainte influence les performances du VHB

en mode générateur et ceci à température ambiante.

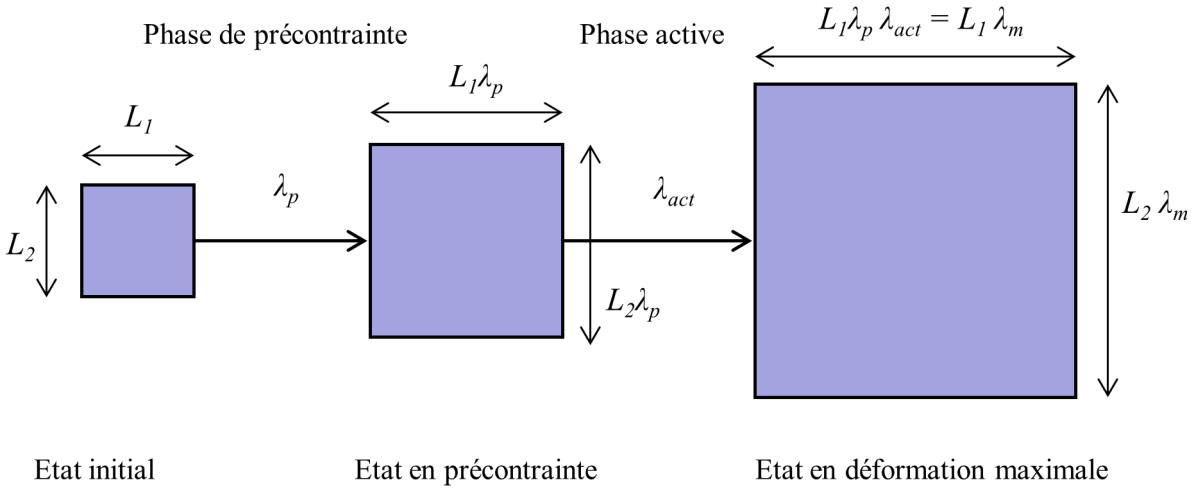


FIG. 3.2.9: Phase de précontrainte et phase active pour un élastomère diélectrique en déformation biaxiale.

Le VHB est pré-étiré biaxialement et symétriquement avec des coefficients λ_p suivants : 2x2, 3x3 et 4x4 (figure 3.2.9). Comme le coefficient d'extension maximal pour le VHB λ_m est de 6, le niveau de déformation en fonctionnement pour chaque précontrainte est alors : $\lambda_{act} = 3$, $\lambda_{act} = 2$ et $\lambda_{act} = 1,5$ respectivement ($\lambda_m = \lambda_p\lambda_{act}$). La figure 3.2.10 trace la densité d'énergie récupérable réelle et le rendement réel du VHB en fonction du niveau de déformation fonctionnement λ_{act} et ceci pour différents niveaux de précontraintes. Une déformation active de 0% à 50% correspond à $\lambda_{act} = 1,5$. Les pertes sont prises en compte.

Nous voyons clairement que la précontrainte n'améliore pas la densité d'énergie récupérable. En effet, plus le matériau est pré-étiré, plus le coefficient d'extension actif λ_{act} diminue et plus la densité d'énergie récupérable chute. Pour un matériau non précontraint, la densité d'énergie récupérable est de $2,2J.g^{-1}$ dans le cas du $\lambda_{act} = 6$, cette valeur chute à $2J.g^{-1}$, $1,53J.g^{-1}$ et $0,94J.g^{-1}$ pour le VHB en précontrainte de 2x2, 3x3 et 4x4 respectivement.

Toutefois, réaliser une déformation du matériau importante ($\lambda_{act} \geq 2$) est difficile et ce niveau de déformation n'existe pas tel quel dans la nature. Ainsi, pour une déformation relative imposée par l'environnement plus réaliste de l'ordre de 50% par exemple $\lambda_{act} = 1,5$, on notera le phénomène inverse : plus le matériau sera précontraint, plus la densité d'énergie récupérable sera importante. Cette densité d'énergie passe de $0,1J.g^{-1}$ pour le matériau non précontraint à $0,2J.g^{-1}$, $0,8J.g^{-1}$ et $1J.g^{-1}$ pour le matériau en précontrainte de 2x2, 3x3 et 4x4 respectivement. Ce comportement est en adéquation avec les systèmes développés dans la littérature qui sont tous précontraints pour en améliorer leurs performances.

Regardons à présent le rendement du VHB. La précontrainte améliore nettement le rendement du matériau ($\eta_{mat-VHB}$) . Sur la figure 3.2.9, le rendement est d'autant plus faible

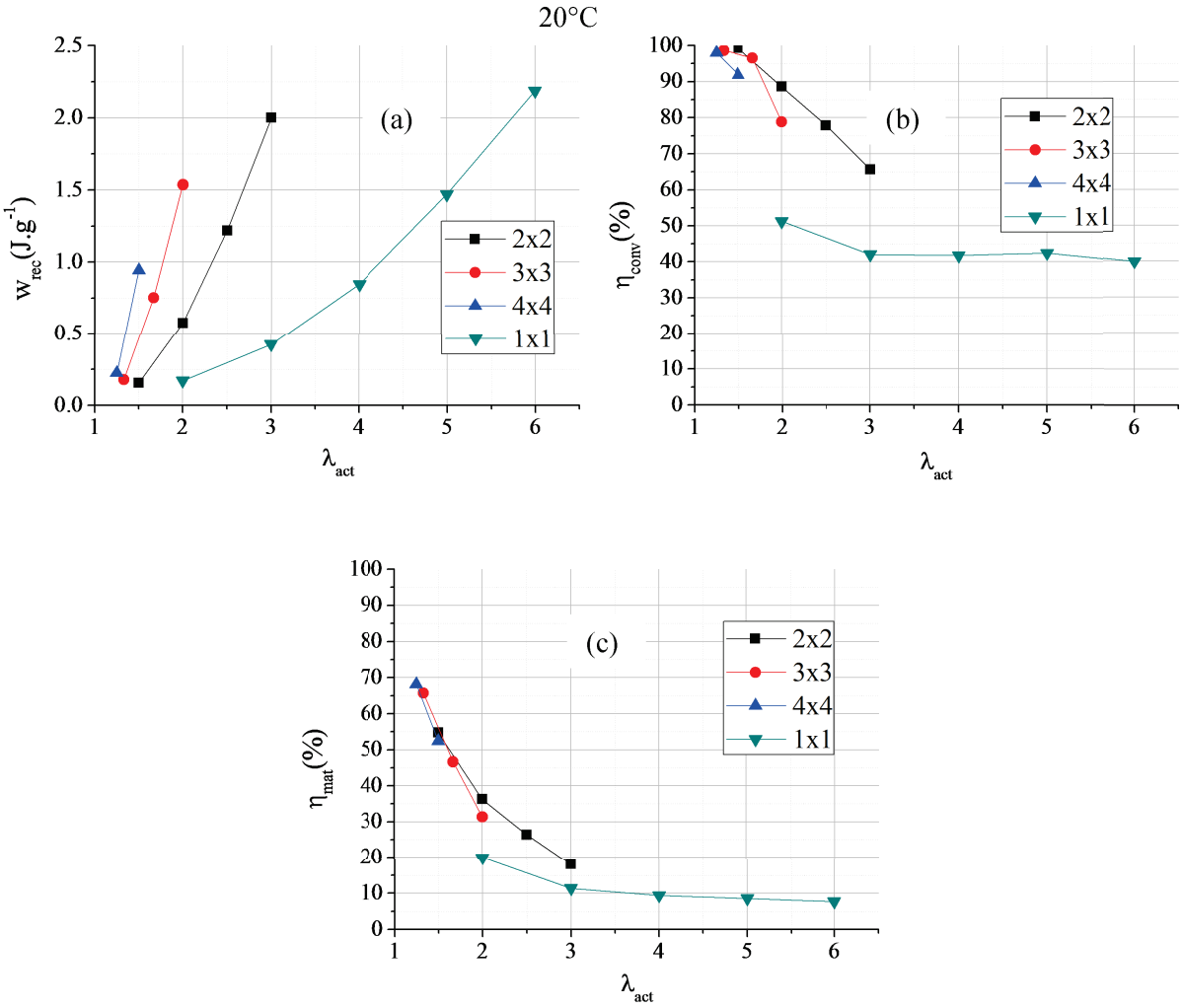


FIG. 3.2.10: Effet de la précontrainte sur la densité d'énergie récupérable réelle (a), sur le rendement de conversion électromécanique (b) et sur le rendement du matériau (c). Le VHB est déformé en mode biaxial.

que le matériau est peu étiré. Ce rendement est inférieur à 20% pour un matériau non pré-étiré. En pré-étirant biaxialement le VHB, le rendement η_{VHB} est amélioré et il est toujours supérieur à 20% dans notre gamme d'étude. Il peut atteindre 70% pour une précontrainte 4x4 et une déformation relative $\lambda_{act} = 1,25$.

Dans la littérature, les performances du VHB varient beaucoup d'un auteur à un autre. Elles dépendent fortement de la configuration et des conditions de fonctionnement du VHB. Par exemple, [Kaltseis 11, Li 12] ont étudié le VHB monté sur une chambre à air et gonflé par le biais d'injection de pression contrôlée dans la chambre (comme un ballon). Leur cycle de conversion d'énergie est d'environ $3,5s$. Un rendement du VHB de $7,5\%$ dans le cas non précontraint et de 40% ou 60% pour le cas de précontrainte 2x2 ou 3x3 a été relevé. [Wang 12] ont analysé un DEG de forme conique et ont montré un rendement du VHB de $12,5\%$ quand le matériau est précontraint de 2,5x2,5. Le niveau de déformation est de 1,8 pour un cycle de conversion de $5s$. Toutefois, dans toutes ces expériences, le

matériau se déforme seulement sur une petite zone au centre de l'échantillon en biaxial. Sur les côtés, la déformation est pure-shear. Huang *et al* ont proposé un dispositif assurant une déformation biaxiale parfaite : échantillon rond étiré en plusieurs points de manière synchrone [Huang 13]. Dans cette expérience, le VHB permet de récupérer une densité d'énergie de $0,56 J.g^{-1}$ et un rendement de 27% avec la précontrainte de 2x2 pour un cycle de conversion d'énergie de $2s$. Les conditions de fonctionnement sont assez proches de celles de défaillance.

Malgré la diversité des résultats présents dans la littérature, qui sont expliqués par la complexité du comportement mécanique et électrique du VHB, notre modèle et nos résultats démontrent très bien la tendance ainsi que les ordres de grandeur et les performances du VHB.Il faut également noter que notre modélisation peut encore être améliorée par la prise en compte de l'effet de la vitesse de sollicitation et la résistivité de l'électrode souple.

La précontrainte n'améliore pas forcément l'énergie récupérable du VHB mais elle améliore nettement le rendement de conversion électromécanique et le rendement du matériau. Dans le cas non précontraint, le rendement du matériau est au maximal de 20% *mais il peut atteindre 70% dans le cas d'un matériau précontraint de* 4x4.

3.2.1.2 Déformation pure-shear

Même si les élastomères diélectriques permettent de récupérer plus d'énergie en mode de déformation biaxiale, ce mode de déformation est difficile à réaliser expérimentalement. Nous considérons donc maintenant un mode de déformation plus réaliste : le mode pure-shear. La figure 3.2.11 explicite la zone de fonctionnement pour le VHB suivant le mode de déformation pure-shear ($\lambda_1 = \lambda$ et $\lambda_2 = const = 1$).

Contrairement au mode de déformation biaxiale ou l'instabilité électromécanique (EMI) apparaît dans la zone de fonctionnement à température ambiante et limite l'énergie maximale récupérable, en mode de déformation pure-shear, cette instabilité n'apparaît pas. L'énergie récupérable peut être estimée en calculant la surface limitée par différents modes de défaillances, soit dans le plan mécanique $(\sigma_p - \lambda)$, soit dans le plan électrique $\left(\frac{V}{L_3} - \frac{Q}{L_1 L_2}\right)$. Pour la déformation en mode pure-shear, la surface grise sur le plan $\left(\frac{V}{L_3} - \frac{Q}{L_1 L_2}\right)$ est égale à celle du plan $(\sigma_p - \lambda)$ et vaut $0,153 J.g^{-1}$ pour $\lambda_{max} = 6$ à température ambiante soit 10 fois moins qu'en mode biaxial pour les mêmes condictions.

Les performances du VHB en mode de déformation pure-shear pour différentes températures et niveaux de déformation ont été estimées et tracées sur la figure 3.2.12.

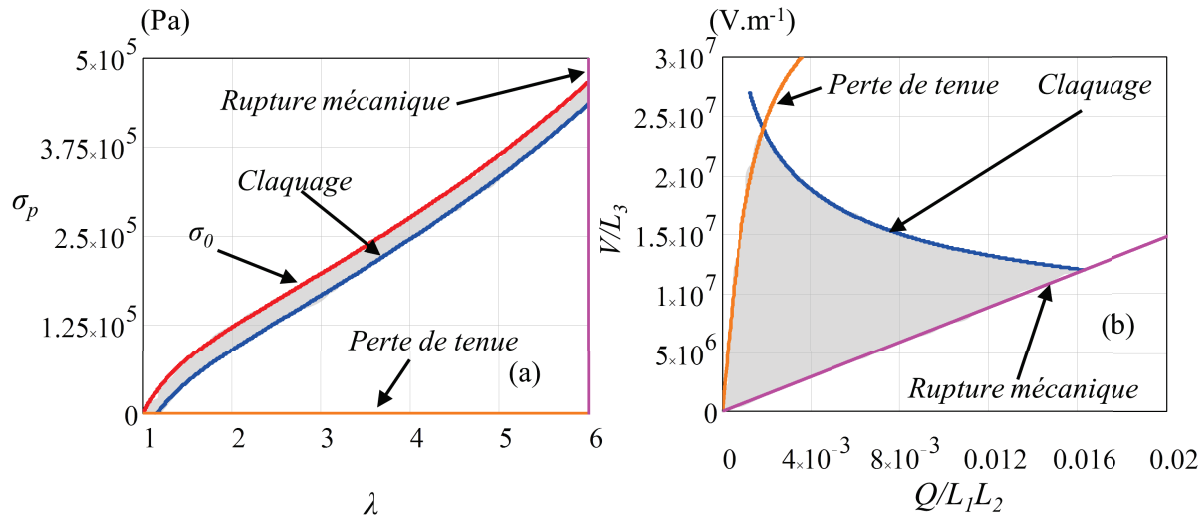


FIG. 3.2.11: Zone de fonctionnement du VHB en mode de déformation pure-shear : plan mécanique (a) et plan électrique (b).

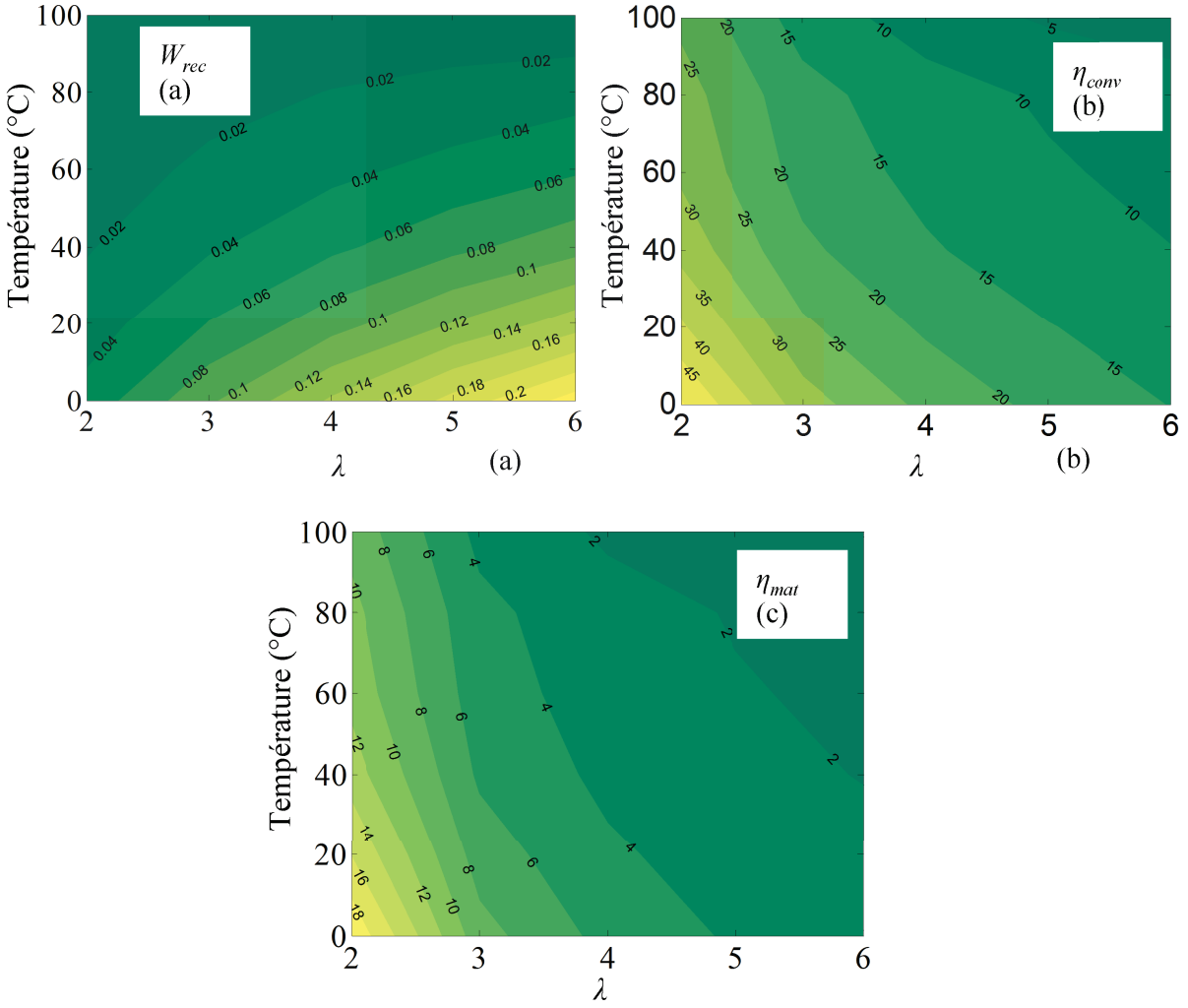


FIG. 3.2.12: Performances du VHB en mode de déformation pure-shear pour différents niveaux de déformation et températures : énergie récupérable en $J.g^{-1}$ (a), rendement de conversion électromécanique en % (b) et rendement du matériau en % (c).

Au vu des figures 3.2.8 et 3.2.12, nous voyons que la déformation en mode pure-shear n'est pas avantageuse par rapport à celle biaxiale. La densité d'énergie récupérable (w_{rec}), le rendement de conversion électromécanique (η_{conv}) et le rendement du matériau (η_{mat}) sont plus faibles. La densité d'énergie récupérable maximale pour ce mode de déformation est de $0,24 J.g^{-1}$, qui est plus de dix fois plus petit que celle obtenue dans le cas où le matériau subit une déformation biaxiale. Cette chute importante de w_{rec} est due à la faible variation de la capacité de la structure (variation en λ^2 et non plus en λ^4 comme pour le cas de déformation biaxiale) et au faible champ électrique maximal applicable au matériau.

3.2.1.2.1 Effet de la précontrainte

Le VHB est à nouveau pré-étiré biaxialement et symétriquement de 2x2, 3x3 et 4x4 comme le cas précédent sauf que le matériau se déforme en mode pure-shear en fonctionnement. La précontrainte biaxiale assure une répartition uniforme des contraintes au sein du matériau. La figure 3.2.13 trace la densité d'énergie récupérable et le rendement du matériau en fonction du niveau de déformation imposé λ_{act} et pour différents niveaux de précontraintes.

Comme dans le mode de déformation biaxiale, la précontrainte améliore nettement le rendement de conversion électromécanique et le rendement du matériau pour les applications de récupération d'énergie. En regardant η_{conv}, ce rendement peut atteindre $98\% - 99\%$ pour des échantillons précontraints. Par contre, si on regarde le rendement du matériau, ce rendement est quasi le même que celui obtenu en mode biaxial et ceci en raison des pertes viscoélastiques importantes du VHB.

Nous avons présenté le fonctionnement et les performances du VHB pour deux modes de déformation : biaxiale et pure-shear. Le polyacrylate VHB a montré une forte densité d'énergie : jusqu'à $3,2 J.g^{-1}$ *et* $0,24 J.g^{-1}$ *en mode biaxial et pure-shear respectivement. L'énergie récupérable chute avec l'augmentation de la température en raison de la chute du champ électrique maximal applicable à la structure. En ce qui concerne le rendement, le VHB possède un rendement de conversion électromécanique relativement haut, notamment si le matériau est précontraint (jusqu'à* 99%*). Toutefois, le rendement du matériau (*η_{mat}*) reste assez faible à cause des fortes pertes viscoélastiques développées au sein du VHB.* η_{mat} *atteint une valeur maximale d'environ* 70% *pour le cas précontraint de 4x4 et une déformation relative de* 25%*.*

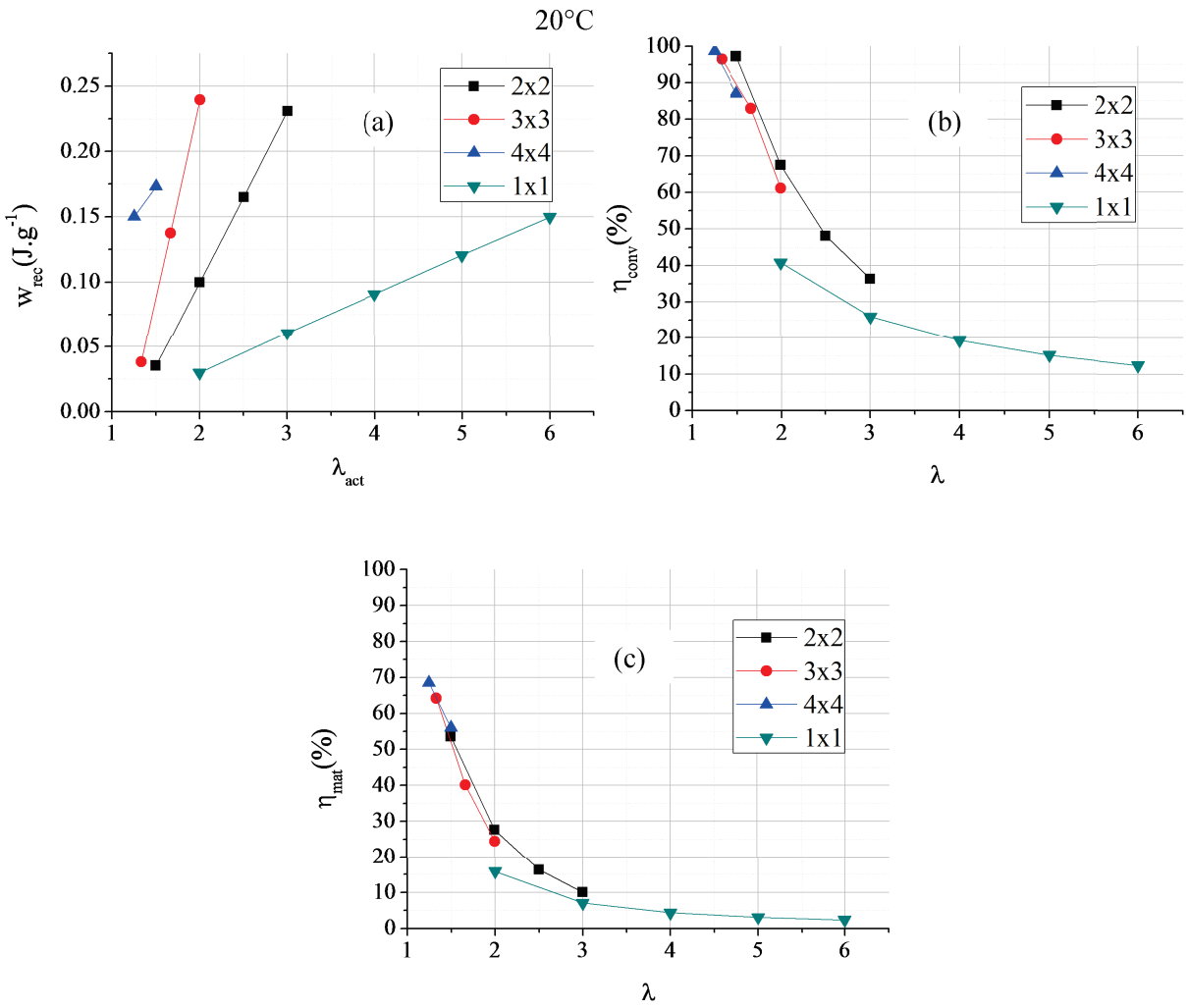


FIG. 3.2.13: Effet de la précontrainte sur la densité d'énergie récupérable réelle (a), sur le rendement de conversion électromécanique (b) et sur le rendement du matériau (c). Le VHB se déforme en mode pure-shear.

3.2.2 Élastomère diélectrique Polypower

Pour le silicone Polypower, nous développons seulement le cas de déformation en mode pure-shear car les électrodes imposent un sens privilégié de déformation. Avec le système d'équations en grandeurs lagrangiennes (équation 3.1.17 - 3.1.20), les équations d'état et les différents modes de défaillances peuvent être déterminés. On peut noter que l'instabilité de « pull-in » ne survient pas pour le Polypower de par la faible limite d'extension de ses chaînes combiné à une faible rigidité diélectrique [Koh 11b].

Les propriétés mécaniques et électriques du Polypower étudiées dans le chapitre précédent (voir tableau 2.3.5) ont été insérées dans les équations d'états. La figure 3.2.14 illustre la zone de fonctionnement pour le Polypower à température ambiante en déformation pure-shear.

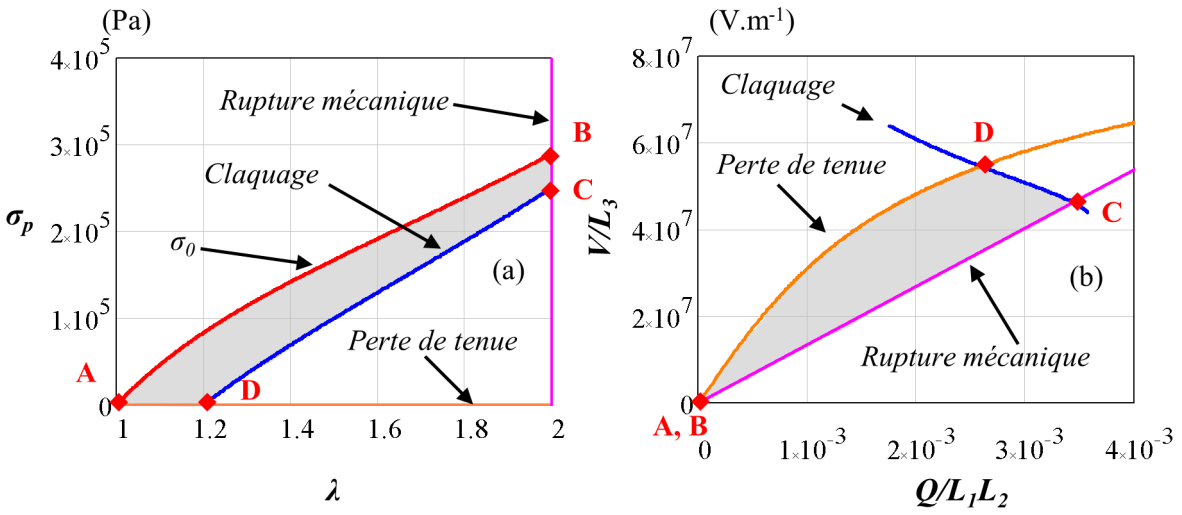


FIG. 3.2.14: Zone de fonctionnement en mode générateur du Polypower : plan mécanique (a) et plan électrique (b). La déformation est en mode pure-shear à température ambiante.

Notons que le niveau de déformation maximal du silicone est plus faible que celui du VHB. Afin d'assurer un fonctionnement à long terme du Polypower, sa valeur de déformation maximale est limitée à 2. Comme pour le VHB, un cycle de fonctionnement est déterminé sur la figure 3.2.14 par les états A, B, C et D. La densité d'énergie récupérable par le Polypower est estimée en calculant l'aire limitée par les différents mode de défaillances soit dans le plan mécanique, soit dans le plan électrique. A température ambiante, avec $\lambda = 2$, la densité d'énergie récupérable du Polypower vaut $57,8 mJ.g^{-1}$ ce qui est un peu plus grand que celle obtenue par le VHB dans les même conditions de fonctionnement ($35 mJ.g^{-1}$).

Nous regardons maintenant les pertes développées par le Polypower en fonctionnement. Les mécanismes de pertes sont divisées en deux grandes parties : pertes mécaniques (équation 2.2.12) et pertes diélectriques (équation 2.3.4). Avec les paramètres liées aux pertes du Polypower présentés dans le chapitre 2 (figure 2.2.3 et 2.3.20), la figure 3.2.15 trace les densités d'énergie récupérable (w_{rec}), le rendement de conversion électromécanique (η_{conv}) et le rendement du matériau (η_{mat}) du silicone Polypower pour différentes températures et niveaux de déformation.

Le Polypower récupère plus d'énergie en grande déformation et à faible température. L'énergie récupérable chute quand le niveau de déformation diminue. Contrairement au VHB, l'effet de la température sur la densité d'énergie récupérable du Polypower est moins visible car le module de Young et la rigidité diélectrique du Polypower sont quasiment indépendants de la température. En effet, la densité d'énergie récupérable chute de $60 mJ.g^{-1}$ à 0°C à $38 mJ.g^{-1}$ à 100°C pour un niveau de déformation $\lambda = 2$.

En ce qui concerne les rendements, nous observons que le rendement de conversion électromécanique η_{conv} et le rendement du matériau η_{mat} sont presque les mêmes car les pertes

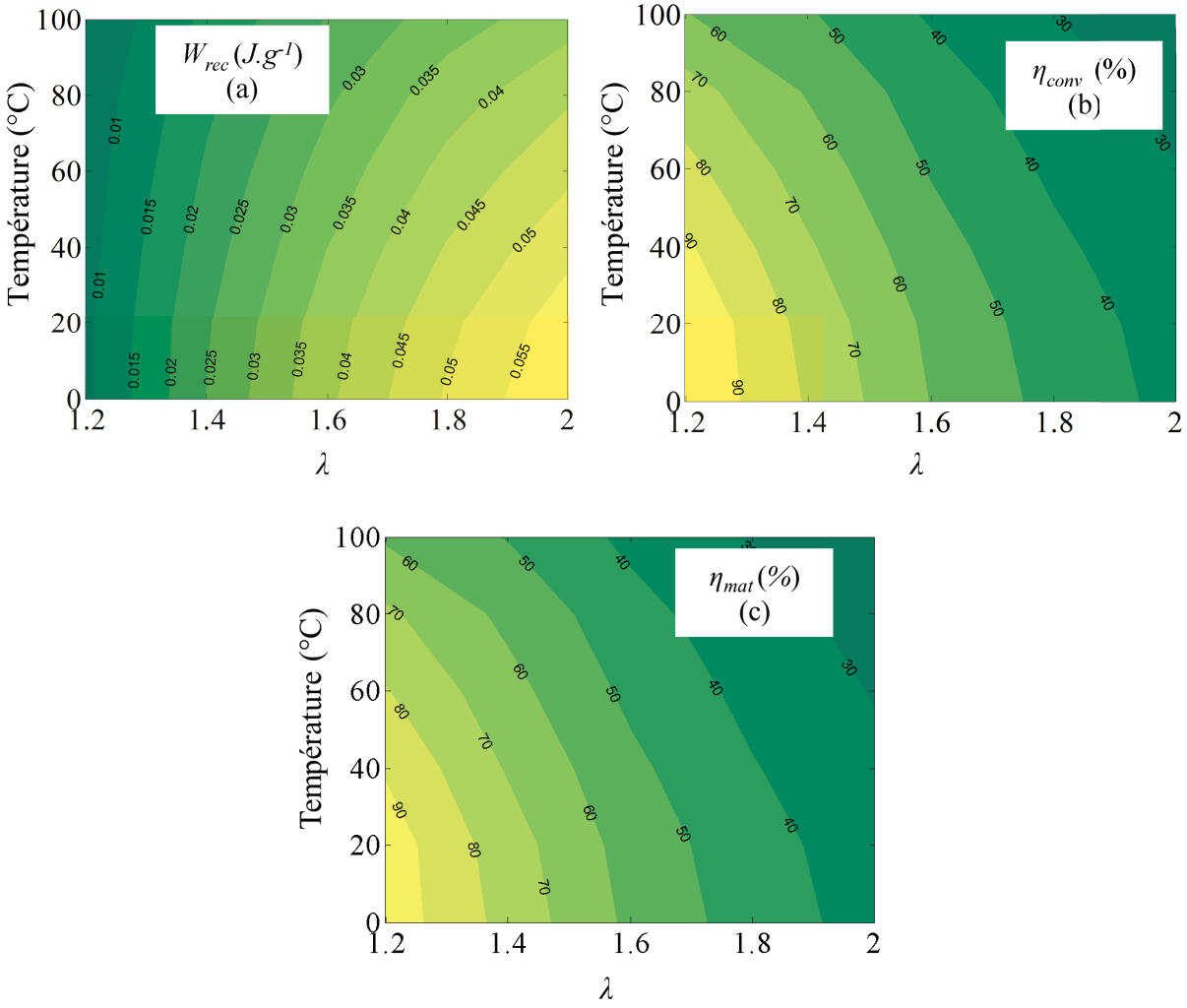


FIG. 3.2.15: Performances du Polypower en mode de déformation pure-shear pour différents niveaux de déformation et différentes température : énergie récupérable (a), rendement de conversion électromécanique (b) et rendement du matériau (c).

mécaniques au sein du Polypower sont faibles ($tan\delta_{méc} = 0,0049$). L'énergie mécanique absorbée et l'énergie mécanique d'entrée nécessaires pour déformer la structure sont très proches. Le rendement maximal peux atteindre 95% aux faibles déformations et faibles températures. Finalement, en comparaison avec le VHB, le rendement du Polypower est bien supérieur.

3.2.2.0.2 Effet de la précontrainte

Le silicone Polypower est pré-étiré biaxialement et symétriquement de 1,2x1,2, 1,4x1,4 et 1,6x1,6. La déformation maximale λ_m est toujours fixée à 2. Le coefficient d'extension pour chaque cas de précontrainte est $\lambda_{act} = 1,67$, $\lambda_{act} = 1,43$ et $\lambda_{act} = 1,25$ respectivement.

Notons que la déformation est toujours en mode pure-shear. La figure 3.2.16 trace la densité d'énergie récupérable par le Polypower et le rendement du matériau. Le rendement de conversion électromécanique et le rendement du matériau sont très proches, ainsi nous présentons ici seulement le rendement du matériau.

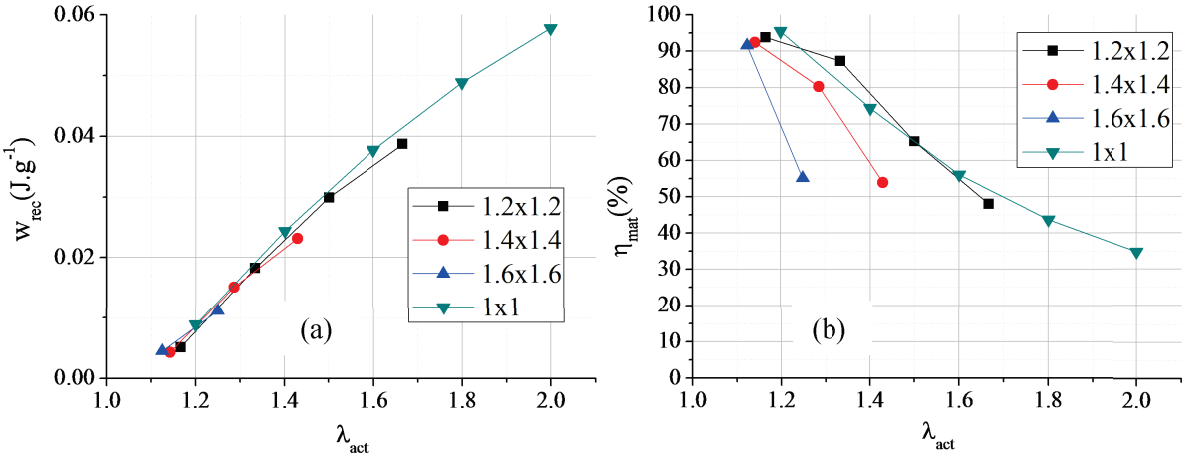


FIG. 3.2.16: Effet de la précontrainte sur les performances du Polypower en mode de déformation pure-shear : énergie récupérable (a), rendement du matériau (b).

Contrairement au cas du VHB, la précontrainte n'a que très peu d'influence sur les performances d'un DEG à base de Polypower. L'énergie récupérable est maximale pour un coefficient d'extension maximal. Plus on pré-étire le matériau, plus le coefficient d'extension λ_{act} diminue et plus l'énergie récupérable est petite. En regardant le rendement du matériau, la précontrainte fait chuter le rendement du Polypower. Il est seulement de 55% pour le cas de précontrainte 1,6x1,6 tandis qu'il vaut 90% en cas de précontrainte 1x1 pour un coefficient d'extension $\lambda_{act} = 1,25$.

En ce qui concerne les études de la littérature, [Iskandarani 09] ont présenté un DEG à base de Polypower et ont montré qu'il était possible d'obtenir une énergie récupérable de $94,5mJ$ sous une tension de polarisation de $1800V$ et une déformation relative de 15% ($\lambda = 1,15$). Le rendement du matériau est de $67,5\%$. Ce rendement est plus faible que celui obtenu par nos calculs car le champ électrique appliqué est assez faible.

Nous avons présenté le fonctionnement du silicone Polypower en mode pure-shear. La densité d'énergie récupérable vaut $57,8mJ.g^{-1}$ *à température ambiante avec* $\lambda = 2$. *L'effet de la température est moins évident pour le Polypower comparé au VHB du fait de l'indépendance de la rigidité diélectrique et du module de Young du Polypower à la température. Nous avons également démontré que l'application d'une précontrainte ne présente pas d'intérêt significatif pour le Polypower en mode générateur.*

3.2.3 Conclusion sur les performances du VHB et du Polypower

Nous avons présenté les performances du polyacrylate VHB et du silicone Polypower sur une large gamme de température et de déformation. La dépendance à la température du module de Young, de la constante diélectrique, du facteur de pertes et de la rigidité diélectrique est introduite dans notre modèle et nous donne une évaluation des performances des matériaux plus précise que ce que la littérature peut fournir. Ces modèles permettent également de définir de nouvelles limites de fonctionnement du VHB et du Polypower qui n'ont jamais été présentées dans la littérature.

La densité d'énergie récupérable, le rendement de conversion électromécanique et le rendement du matériau ont été calculés sur un large domaine donnant ainsi une étude complète et précise de ces deux matériaux pour un fonctionnement de type générateur à base de polymère électroactif. En mode pure-shear pour une déformation de 100% à température ambiante, les deux matériaux démontrent un niveau d'énergie récupérable similaire, d'environ $50 mJ.g^{-1}$. Toutefois, en ce qui concerne le rendement de conversion et le rendement du matériau, le silicone Polypower est plus avantageux car son rendement peut aller jusqu'à plus de 90%. Ses pertes mécaniques et diélectriques sont en effet très faibles.

3.3 Amélioration des performances des élastomères diélectriques

3.3.1 Introduction

Les DEGs fonctionnant comme des générateurs électrostatiques, une petite variation de capacité entraîne directement une faible énergie récupérable. Afin d'augmenter la variation de la capacité de la structure, nous pouvons soit travailler sous de grandes déformations soit augmenter la constante diélectrique du matériau. Comme les très grandes déformations ne sont pas nécessairement réalisables ou faciles à obtenir dans les applications, une amélioration (i.e. augmentation) de la constante diélectrique du matériau utilisé constituerait une alternative intéressante.

Parmi tous les élastomères diélectriques disponibles, le silicone est très intéressant de par ses faibles pertes. Il existe ainsi de nombreuses recherches dédiées à l'augmentation de la constante diélectrique du silicone et elles ont montré une amélioration notable des performances du silicone en mode actionneur. Néanmoins, un matériau optimal pour des applications en mode actionneur ne l'est pas forcément pour des applications en mode générateur. Nous analysons donc dans cette section plusieurs approches pour améliorer la constante diélectrique du silicone et son apport sur les performances des DEGs à base de silicone.

3.3.2 Techniques pour augmenter la constante diélectrique du silicone

Un moyen de modifier la matrice du silicone afin d'en augmenter sa permittivité diélectrique est d'agir sur les moments dipolaires du matériau et par conséquent, sur son vecteur de polarisation P. Ce vecteur est lié au vecteur champ électrique E par l'expression suivante :

$$P(\omega) = \varepsilon_0 \left(\varepsilon_r^*(\omega) - 1\right) E \tag{3.3.1}$$

avec $\omega = 2\pi f$: fréquence angulaire du champ électrique E et $\varepsilon_r^*(\omega) = \varepsilon_r^{'}(\omega) - j\varepsilon_r^{"}(\omega)$: constante diélectrique complexe du matériau.

Dans un milieu homogène, la polarisation P et la constante diélectrique complexe $\varepsilon_r^*(\omega)$ sont le résultat d'une combinaison de diverses contributions et plus précisément de polarisations. Les polarisations électronique, atomique et ionique se produisent aux très hautes fréquences (supérieures à $10^9 Hz$) et ne nous concernent donc pas pour nos applications (leur effet est déjà pris en compte dans la valeur de la constante diélectrique aux fréquences de fonctionnement des DEGs). Pour les fréquences d'opération nous intéressant, deux types de polarisation peuvent intervenir : la polarisation d'orientation (orientation des dipôles) et la polarisation interfaciale (Maxwell-Wagner). Cette dernière a lieu lorsque des charges de surface s'accumulent au niveau des interfaces entre une matrice diélectrique et une autre phase aux propriétés électriques différentes (électrodes, inclusions, défauts, charges, impuretés). Ces polarisations auront pour effet d'augmenter la valeur de la constante diélectrique aux fréquences basses. Ainsi, il faut trouver des solutions pour jouer sur l'une et/ou l'autre de ces polarisations pour changer les propriétés du silicone.

Actuellement, plusieurs méthodes ont été examinées afin de renforcer la permittivité diélectrique du silicone : l'addition de particules isolantes à forte constante diélectrique [Liu 12, Molberg 10, Opris 11, Stoyanov 10b, Stoyanov 12, Yang 12], le mélange de particules conductrices dans la matrice silicone [Romasanta 11, Stoyanov 09, Stoyanov 10a, Zhang 04] ou bien la modification de la polarisation d'orientation de la matrice de base par greffage de chaînes polarisables [Carpi 08a, Kussmaul 11, Kussmaul 12, Risse 11, Risse 12]. Nous résumons les différentes techniques d'amélioration de la constante diélectrique de l'élastomère dans la figure 3.3.1 et nous distinguons trois types de composites (que nous appellerons médias) en fonction des adjuvants insérés dans la matrice en silicone. Ces matériaux deviennent ainsi des composites à constante diélectrique augmentée.

Toutefois, les changements intéressants opérés dans ces composites s'accompagnent aussi d'effets de dégradation comme la rigidité diélectrique ou le module de Young. Par exemple, l'ajout d'une quantité importante de particules céramiques ou de particules conductrices dans une matrice silicone augmente la permittivité diélectrique du matériau, mais le matériau perd son comportement élastique et devient plus rigide [Molberg 10, Stoyanov 09,

Yang 12, Zhang 04]. Autre cas, la modification de la polarisation de la matrice conduit à une augmentation de la constante diélectrique alors que module d'élasticité diminue [Kussmaul 11, Risse 12].

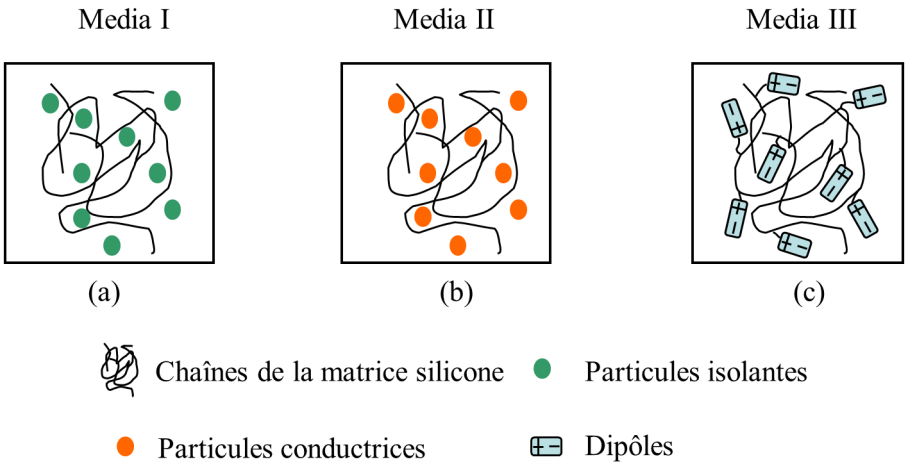


FIG. 3.3.1: Trois techniques principales pour améliorer la constante diélectrique d'une matrice de silicone : Addition des particules d'isolation (a), addition de particules conductrices (b), et greffage des dipôles à haute polarité dans la matrice (c).

La figure 3.3.2 synthétise les études les plus récentes de la littérature sur les composites siliconés. Les points représentent les données expérimentales issues de la littérature et les courbes dans les mêmes couleurs illustrent nos modèles de variation que nous allons introduire dans cette section. Comme nous l'avons évoqué, la constante diélectrique de l'élastomère est toujours augmentée dans le composite par comparaison à la matrice silicone seule ; cependant, qu'en est-il des autres paramètres comme le module de Young et la rigidité diélectrique ? Pour répondre à cette question, nous avons représenté variations du module de Young et de la rigidité diélectrique en fonction de la constante diélectrique (figure 3.3.2). Ce changement de constante diélectrique est directement lié au pourcentage de particules ou dipôles ajoutés à la matrice de silicone.

Comme les adjuvants utilisés varient d'une publication à une autre, à une valeur de $\varepsilon_r^{'}$ peut correspondre différentes valeurs de pourcentage de particules. Comme nous ne cherchons pas à synthétiser des matériaux mais bien à lier entre elles toutes les propriétés des composites, ces informations de % nous sont de peu d'utilité. La variable primordiale reste la constante diélectrique $\varepsilon_r^{'}$. De même, la matrice de base est toujours du silicone dont les propriétés peuvent légèrement évoluer entre les différentes publications, sans pour autant entâcher d'erreur les courbes de tendances et équations associées qui lient les différentes grandeurs physiques du matériau entre elles. Notons que nous n'avons pas de données sur le facteur de pertes mécaniques de ces composites et que nous ne le considérons pas dans la suite de cette étude.

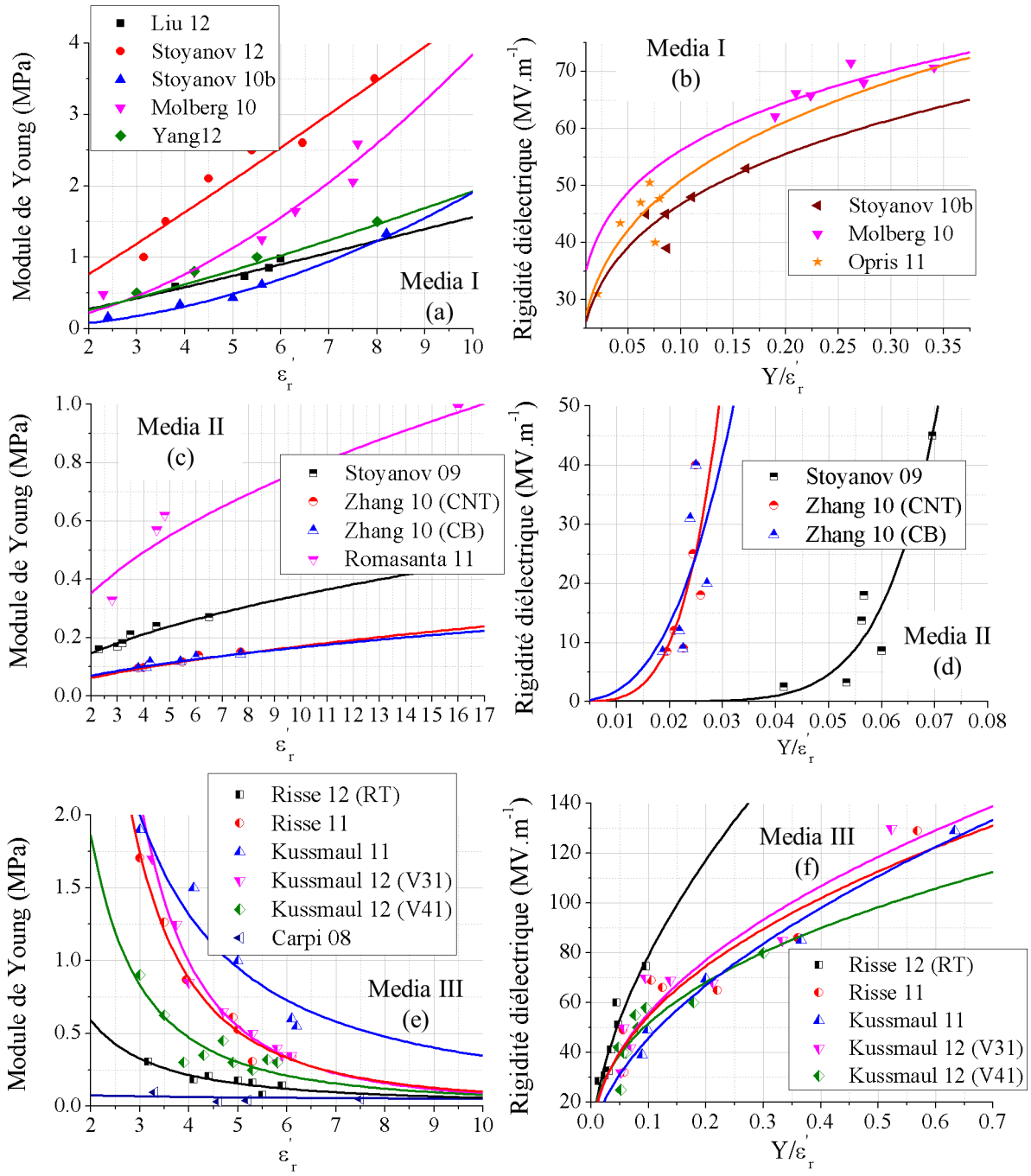


FIG. 3.3.2: Module de Young (a, c, e), et rigidité diélectrique (b, d, f) en fonction de la constante diélectrique. Les points reportent des données expérimentales et les lignes illustrent nos modèles.

Média I : Particules isolantes à forte constante diélectrique

L'utilisation de particules à forte constante diélectrique est une technique bien établie pour améliorer la constante diélectrique d'une matrice polymère. Les particules additives peuvent être le polyéthylèneglycol (PEG) ayant une constante diélectrique de 600 [Liu 12],

le dioxyde de titane [Stoyanov 10b, Stoyanov 12] ou bien le polyaniline (PANI) encapsulé [Molberg 10, Opris 11]. Les poudres céramiques ferroélectriques/piézoélectriques développent une constante diélectrique haute (par exemple de l'ordre de 4000 pour le niobate de plomb magnésium - PMN) et peuvent améliorer significativement la constante diélectrique de la matrice silicone. 20% de PMN ajouté à une matrice de silicone fait évoluer la constante diélectrique de 3 à $22,5$ [Yang 12].

L'un des inconvénients majeur de ce type de composites est la nécessité d'une grande quantité de particules additives pour atteindre une constante diélectrique élevée, conduisant de façon spectaculaire à des composites plus rigides. Pour nos applications, ceci est un effet secondaire indésirable vu que le matériau doit être souple pour se déformer (figure 3.3.2.a). En ce qui concerne la rigidité diélectrique, nous observons que ces composites atteignent une valeur légèrement plus élevée lorsque la constante diélectrique augmente en raison de l'augmentation du module de Young [Zhao 09, Kollosche 10].

Média II : Particules conductrices

L'intérêt de mélanger des particules conductrices et semi-conductrices dans une matrice de silicone est que les particules conductrices contribuent non seulement à la conduction, mais elles peuvent aussi renforcer la polarisation de type Maxwell - Wagner (polarisation interfaciale). Ces particules peuvent être du noir de carbone (CB) [Stoyanov 09], des nanotubes de carbone (CNT) [Zhang 04], des PANIs [Stoyanov 10a] ou des feuilles de graphène fonctionnalisées [Romasanta 11]. Sans tenir compte de la nature des particules conductrices, l'augmentation maximale de la constante diélectrique du composite est réalisée à proximité du seuil de percolation, d'après le relation suivante :

$$\varepsilon_c^{'} = \varepsilon_m^{'} \left(\frac{\nu_{f,perc} - \nu_f}{\nu_f} \right)^{-q} \tag{3.3.2}$$

ν_f est la fraction de particules conductrices additives, $\nu_{f,perc}$ est la fraction pour atteindre le seuil de percolation, q est un facteur de puissance, $\varepsilon_c^{'}$ est la constante diélectrique du composite et $\varepsilon_m^{'}$ est la constante diélectrique de la matrice initiale de silicone.

Néanmoins, cette technique a tendance à former un composite possédant une conductivité très élevée car il est proche de l'état de percolation, ce qui peut entraîner une augmentation importante du courant de fuite et peut ainsi favoriser la formation d'effets dits d'agglomération. En effet, lorsque la quantité de particules conductrices augmente dans la matrice en silicone, ces particules ne sont pas bien isolées les unes par rapport aux autres. Une forte concentration localisée de particules conductrices dans la matrice peut apparaître et former ainsi des groupes de conducteurs structurés, conduisant donc à des courts-circuits dans l'élastomère. En conséquence, la rigidité diélectrique de ce type de composite diminue considérablement (figure 3.3.2.d). En raison de cet effet destructif, la quantité de particules conductrices introduites dans le polymère doit être limitée et bien inférieure à celle du seuil de percolation.

Avec l'augmentation de la constante diélectrique, nous observons également une augmentation du module de Young des composites du média II. Cette augmentation est bien inférieure du celle du média I. En effet, une plus petite quantité de particules additives est nécessaire pour atteindre une constante diélectrique élevée ce qui peut expliquer cette faible augmentation du module de Young (figure 3.3.2.c).

Médias III : Greffage de dipôles à polarisation élevée dans la matrice silicone

En greffant des dipôles conjugués à forte polarité comme le N-allyl-N-méthyl-4-Nitroaniline [Risse 11], le N-allyl-N-Methylaniline [Risse 12], le dipôle N-allyl-N-méthyl-p-nitroaniline tête-bêche [Kussmaul 11], le Poly Hexithiophene (PHT) [Carpi 08a] dans une matrice de silicone, ces groupes à polarité élevée renforcent la polarisation dipolaire de la matrice initiale. La constante diélectrique du matériau composite est ainsi augmentée. Par exemple, si $10,9\%$ en poids de dipôles N-allyl-N-méthyl-p-nitroaniline tête-bêche sont greffés à une matrice de silicone PDMS, la constante diélectrique du composite ainsi formé est doublée, et passe de 3 à $6,1$ [Kussmaul 11].

Comme illustré sur la figure 3.3.2.e, c'est la seule technique permettant d'obtenir un élastomère plus souple à partir d'une matrice silicone initiale et ceci grâce à la modification du réseau moléculaire. A titre d'exemple, le module de Young tombe de $1,9MPa$ à $0,6MPa$ en ajoutant $10,9\%$ en poids de dipôles de type N-allyl-N-méthyl-p-Nitroaniline tête-bêche dans une matrice silicone [Kussmaul 11]. En revanche, comme démontré par [Zhao 09, Kollosche 10], la diminution du module de Young conduit en conséquence à une diminution de la rigidité diélectrique (figure 3.3.2.f). Cette diminution de la rigidité diélectrique avec l'augmentation de la constante diélectrique peut également être expliquée par la conductivité plus élevée du composite en raison de l'augmentation des molécules dipolaires dans la matrice silicone.

Nous avons présenté différentes techniques pour améliorer la constante diélectrique des composites siliconés. Le mélange de particules isolantes, de particules conductrices ou bien le greffage de dipôles dans une matrice silicone contribuent toutes trois à l'augmentation de sa constante diélectrique. Avec cette augmentation, les autres paramètres du matériau tels que le module de Young, la rigidité diélectrique diélectrique et le facteur de pertes varient en conséquence. Lorsque des particules isolantes ou conductrices sont introduites dans une matrice de silicone, l'élastomère devient plus dur. La rigidité diélectrique pour le cas des particules conductrices chute dramatiquement tandis qu'elle varie peu pour le cas des particules isolantes. Le greffage de dipôles dans la matrice silicone semble être la seule technique assurant un composite plus souple par rapport à la matrice initiale.

3.3.3 Modélisation de la variation du comportement mécanique et électrique des composites siliconés

Au vu de la figure 3.3.2.(a, c, e), le durcissement ou le ramollissement du composite avec l'augmentation de la constante diélectrique dépend directement des particules ajoutées. Ainsi, la dépendance à la constante diélectrique du module de Young peut être décrite par la loi analytique suivante :

$$Y(\varepsilon_r^{'}) = Y_0(\varepsilon_r^{'})^{\alpha} \tag{3.3.3}$$

avec Y_0 : constante représentant le module de Young de la matrice de silicone initiale, $\varepsilon_r^{'}$: constante diélectrique du matériau composite, et α est un facteur de puissance.

A partir des données expérimentales, les paramètres Y_0 et α du modèle peuvent ainsi être obtenus. Pour une série de données expérimentales reportée sur la figure 3.3.2.(a, c, e), nous avons pu proposer une loi analytique correspondante avec un facteur de puissance α unique. Il y a autant de loi que de série de données expérimentales. Notre modèle, finalement simple, décrit bien la relation entre le module de Young et la constante diélectrique (coefficient de corrélation $R^2 \approx 1$). Le tableau 3.3.1 résume les valeurs du facteur de puissance α. Le facteur de puissance α est supérieur à 1 pour le média I, évolue entre 0 et 1 pour le média II, et est négatif pour le média III. Ce changement dans le facteur α correspond à trois tendances de rigidité mécanique du matériau : très raide (médias I), raide (médias II) et souple (médias III) en réponse à l'augmentation de la constante diélectrique.

La rigidité diélectrique des composites ($E_{claquage}$) évolue quant à elle selon l'équation 3.3.4 :

$$E_{claquage} = A\left(\frac{Y(\varepsilon_r^{'})}{\varepsilon_r^{'}}\right)^{\beta} \tag{3.3.4}$$

avec A et β qui sont des constantes de corrélation.

La dépendance de la rigidité diélectrique d'un élastomère a été étudiée dans la littérature [Kollosche 10, Stark 55]. Pour un matériau isotrope, $E_{claquage}$ est proportionnel à la racine du rapport entre Y et $\varepsilon_r^{'}$ [Carpi 08b]. Pour nos cas, les composites siliconés ne sont plus isotropes. Nous adoptons donc un facteur de puissance β sur le rapport $\frac{Y}{\varepsilon_r^{'}}$ afin de mieux corréler les donnés expérimentales.

Comme observé sur la figure 3.3.2.(b, d, f), l'équation 3.3.4 illustre bien les tendances de la rigidité diélectrique des composites. Dans cette équation, le rapport entre le module de Young et la constante diélectrique $\left(\frac{Y(\varepsilon_r^{'})}{\varepsilon_r^{'}}\right)$ pour chaque série de mesure est calculé à partir

des données expérimentales. La loi de puissance trouvée pour chaque série est représentée par les courbes en trait plein. Le facteur de puissance β passe de petites valeurs pour les médias I et III (inférieures à 1) à des valeurs plus élevées (supérieures à 1) pour le média II. En effet, dans le cas de particules isolantes (media I), la variation de la rigidité diélectrique est petite (figure 3.3.2.b) de par l'effet des particules isolantes qui réduisent le champ électrique interne de la matrice de silicone. Pour le média II, la diminution de la rigidité diélectrique (figure 3.3.2.d) peut s'expliquer par les effets d'agglomération des particules conductrices. Et pour le média III, la chute de la rigidité diélectrique (figure 3.3.2.f) de la matrice de silicone greffée peut être expliquée par sa conductivité élevée apparaissant avec l'augmentation du nombre de dipôles polaires.

Les facteurs de puissance obtenus pour le module de Young et la rigidité diélectrique, provenant de tous ces médias sont résumés dans le tableau suivant :

TAB. 3.3.1: Facteurs de puissance α, β pour les trois médias.

	Référence	α	β
Média I	[Liu 12]	$1,08$	_
	[Molberg 10]	$1,76$	$0,20$
	[Opris 11]	_	$0,27$
	[Stoyanov 10b]	$1,98$	$0,25$
	[Stoyanov 12]	$1,09$	_
	[Yang 12]	$1,23$	_
Média II	[Romasanta 11]	$0,25$	_
	[Stoyanov 09]	$0,54$	$6,90$
	[Zhang 10] (CNT)	$0,63$	$4,20$
	[Zhang 10] (CB)	$0,55$	$2,80$
Média III	[Carpi 08a]	$-0,24$	_
	[Kussmaul 11]	$-1,46$	$0,55$
	[Kussmaul 12] (V31)	$-2,65$	$0,45$
	[Kussmaul 12] (V41)	$-1,98$	$0,40$
	[Risse 11]	$-2,39$	$0,45$
	[Risse 12]	$-1,46$	$0,56$

En plus du module de Young et de la rigidité diélectrique, on peut souligner un autre paramètre influencé par la présence de particules additives ou la modification des chaînes dipolaires : le facteur de pertes du matériau. En effet, peu importe la technique utilisée, les pertes diélectriques augmentent considérablement avec l'augmentation de la constante diélectrique du composite siliconé. Un fort courant de fuite à travers le composite ou la contribution de la polarisation dans la matrice du composite peuvent expliquer cette augmentation. Le facteur de pertes varie fortement d'un composite à l'autre et il n'y a pas de règle commune à une technique pour estimer ce facteur en fonction de la valeur de la constante diélectrique du composite. Il est alors difficile d'obtenir un modèle général décrivant la variation du facteur de pertes. Cependant, la même tendance est observée pour tous les composites siliconés : l'augmentation de la constante diélectrique entraîne

l'augmentation non négligeable du facteur de pertes du matériau. Afin de faciliter l'évaluation des performances des composites siliconés, nous proposons une loi générale et unique ajustée à toutes les valeurs expérimentales sans perte d'informations pertinentes (figure 3.3.3). On exprime donc le facteur de pertes en fonction de la constante diélectrique par l'équation suivante :

$$\varepsilon_r^{"} = \varepsilon_i^{"} \left(\varepsilon_r^{'}\right)^{\vartheta} \tag{3.3.5}$$

avec $\varepsilon_i^{"}$ et ϑ : des paramètres de corrélation.

L'équation 3.3.5 est utilisée pour corréler tous les résultats expérimentaux (figure 3.3.3) et non plus seulement pour une série de données spécifique comme réalisé précédemment pour le module de Young et la rigidité diélectrique. Le coefficient $\varepsilon_i^{"}$ est d'environ $1,7.10^{-3}$ représentant une valeur moyenne classique du facteur de pertes diélectriques pour des élastomères en silicone pur. Le facteur de puissance ϑ est environ $2,84$.

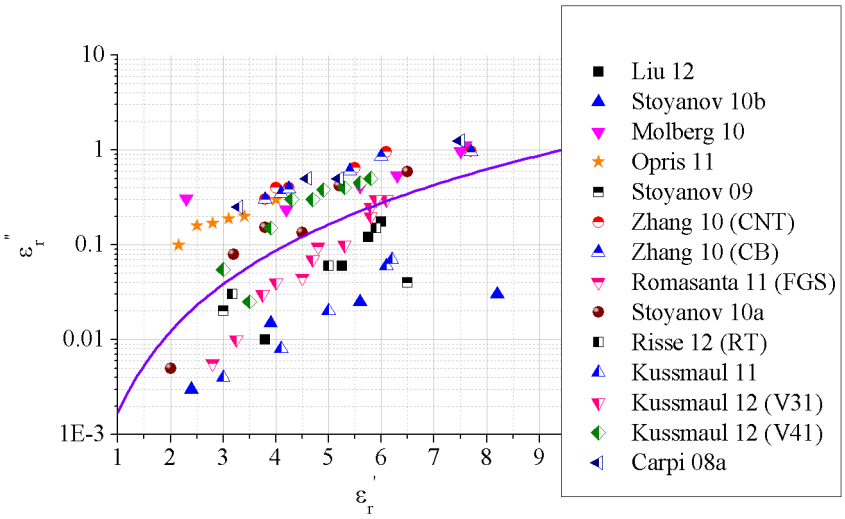


FIG. 3.3.3: Facteur de pertes diélectriques pour différents composites provenant des différentes références et notre modèle (trait plein).

La densité de pertes diélectriques dans les composites est alors calculée par l'équation 2.3.4.

Afin d'évaluer l'intérêt de chacun de ces trois types de composites pour les applications en DEG, nous prenons, pour les facteur α et β, la valeur moyenne de l'ensemble des valeurs trouvées pour chaque média. A partir des données expérimentales et des équations (2.3.4 et 3.3.3 - 3.3.5), les tendances communes pour le module de Young (Y), la rigidité diélectrique ($E_{claquage}$) et la densité d'énergie de pertes diélectriques (Δw_{dielec}) en fonction de la constante diélectrique du composite sont calculées et présentées sur la figure 3.3.4.

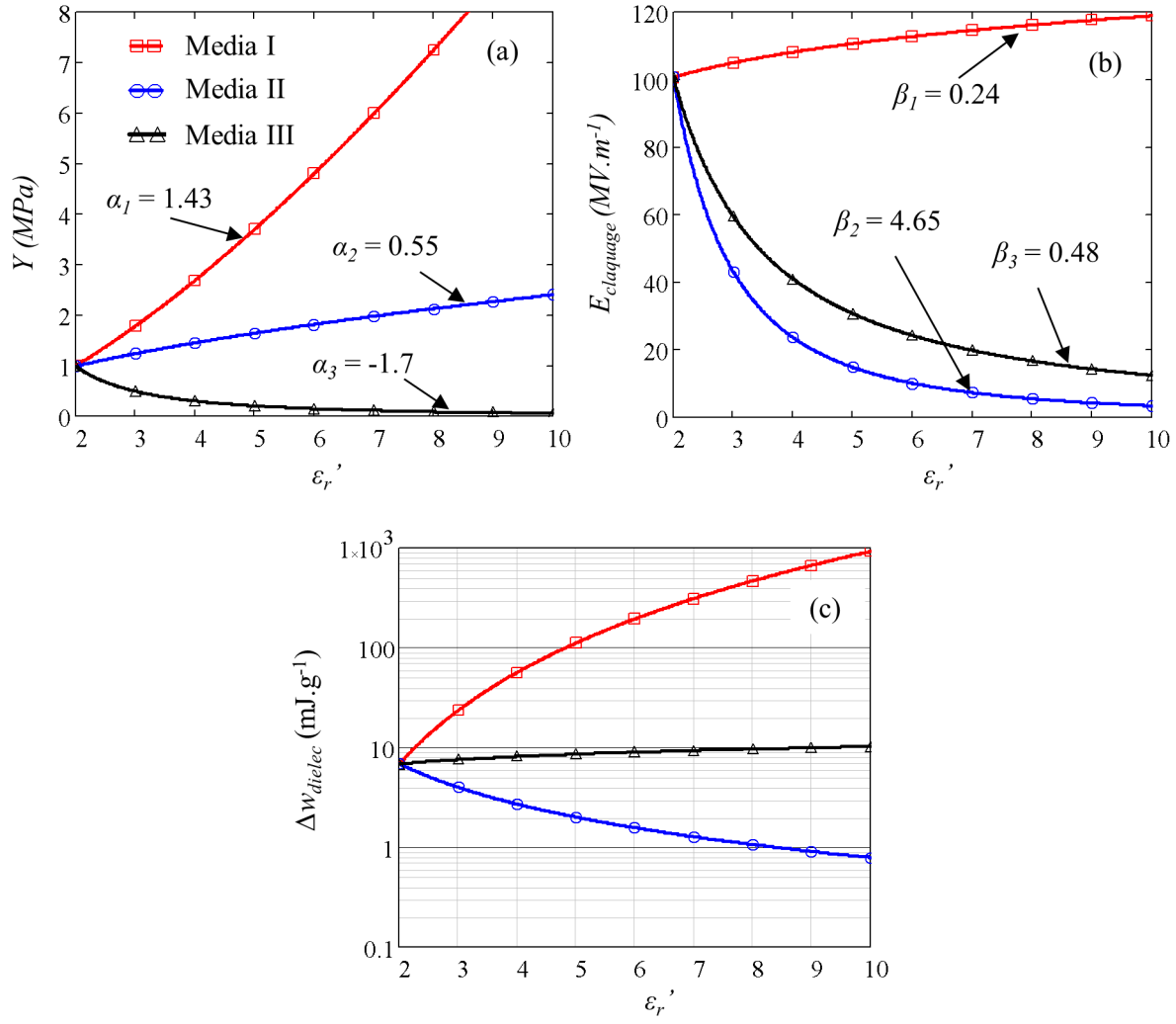


FIG. 3.3.4: Module de Young (a), rigidité diélectrique (b) et densité d'énergie dissipative (c) suivant les différentes techniques d'amélioration de la constante diélectrique des composites siliconés.

Notons que la densité d'énergie électrique dissipée est calculée sous champ électrique maximal, soit sous le champ de claquage du matériau. La matrice de silicone initiale est supposée avoir un module de Young de $1MPa$ et un champ de claquage de $100MV.m^{-1}$. Le modèle du champ de claquage du composite peut s'écrire selon la loi :

$$E_{claquage} = A\left(\frac{Y_0(\varepsilon_r')^{\alpha}}{\varepsilon_r'}\right)^{\beta} = AY_0^{\beta}\left(\varepsilon_r'\right)^{\beta(\alpha-1)} \tag{3.3.6}$$

Remarquons aussi que les densités de pertes diélectriques développées au sein des composites sont relativement importantes, notamment pour le média I. Pour de fortes constantes diélectriques, la densité d'énergie dissipée atteint $1J.g^{-1}$. Ces pertes importantes vont limiter l'énergie récupérable par le matériau. Toutes ces valeurs (ε_r', ε_r'', $E_{claquage}$) seront

ensuite utilisées pour estimer les performances des DEGs utilisant des composites siliconés.

Des lois analytiques décrivant la variation du module de Young, du champ de claquage et du facteur de pertes diélectriques en fonction de la constante diélectrique ont été développés en considérant trois types de composites à matrice silicone. Même s'il n'existe pas de loi suffisamment performante pour prédire exactement toutes les variations, les modèles établis ici permettront cependant d'évaluer les performances (avantages et limites) de ces composites siliconés en vue d'applications en mode générateur.

3.3.4 Performances des composites siliconés pour une application générateur à température ambiante

Nous avons établi précédemment que les paramètres des composites siliconés évoluaient en fonction de la constante diélectrique avec une sensibilité qui dépendait du choix du composite. Nous introduisons à présent ces variations dans notre modèle thermodynamique pour évaluer les performances de ces matériaux en mode générateur.

Comme dans le cas du VHB et du Polypower, la zone de fonctionnement des DEGs à base des composites siliconés peut être définie en deux plans : plan mécanique et plan électrique. Ces deux plans sont déterminés à partir des équations d'états, déduites du modèle thermodynamique présenté dans la section 3.2.1.1.

Afin d'évaluer les performances de DEGs composites, nous choisissons un mode de déformation biaxiale. Les équation d'états sont représentées par l'ensemble des équations (3.1.12 - 3.1.16). La densité d'énergie mécanique du matériau est calculée par le modèle de Gent (équation 2.2.9) avec le module de Young modélisé par l'équation 3.3.3 et qui varie avec la constante diélectrique. La limite de déformation des chaînes J_m est prise identique à celle du Polypower qui est aussi un silicone, et vaut $16,5$. Les phénomènes d'électrostriction et les pertes autres que les pertes diélectriques ne sont pas pris en compte faute d'informations suffisantes. De plus, nous considérons que les composites siliconés possèdent un comportement idéal, c'est-à-dire que leurs constantes diélectriques et leurs champs de claquage sont indépendants de la déformation [Koh 09]. La constante diélectrique du composite varie entre 2 et 10 et le niveau de déformation imposé à la structure en fonctionnement évolue entre $1,2$ et 2. La densité de masse spécifique des composites est supposée égale à $1 g.cm^{-3}$.

3.3.4.1 Composite idéal

La densité d'énergie maximale récupérable $w_{rec-max}$ est théoriquement. Le rendement de conversion électromécanique idéal est défini par l'équation 1.4.33.

Nous examinons tout d'abord la densité d'énergie récupérable maximale $w_{rec-max}$ donnée par la surface de la zone de fonctionnement, limitée par les différents modes de défaillance et le rendement de conversion électromécanique dans le cas idéal η_{conv-i} (équation 1.4.33), où aucune perte n'est introduite. Les résultats sont illustrés sur la figure 3.3.5.

Au vu de la figure 3.3.5, la densité d'énergie récupérable maximale et le rendement de conversion électromécanique idéal sont très différents d'un média à un autre. Quand la constante diélectrique augmente, les DEGs réalisés avec le média I (DEG I) assurent un niveau élevé d'énergie récupérable alors que les DEGs à base de matériaux issus des médias II (DEG II) et des médias III (DEG III) montrent une forte chute de l'énergie récupérable. La densité d'énergie récupérable maximale du DEG I est de $1600 mJ.g^{-1}$ pour un niveau de déformation maximal de 2 ($\lambda = 2$) et une constante diélectrique $\varepsilon_r^{'}$ de 10. Cette énergie, pour les mêmes conditions de fonctionnement, est inférieure à $20 mJ.g^{-1}$ pour le DEG II et le DEG III, comme illustré sur la figure 3.3.5(a, c, e).

Plusieurs phénomènes peuvent expliquer cette différence. Le premier est lié à l'énergie mécanique absorbée par le matériau : moins d'énergie absorbée amène à moins d'énergie convertie. En effet, le module de Young peut augmenter (médias I ou II) ou diminuer (médias III) en fonction de la constante diélectrique conduisant à une augmentation ou une diminution de l'énergie élastique stockée dans le composite. Le second phénomène est directement lié à la variation de la rigidité diélectrique du matériau. En effet, il a été montré que le champ maximal applicable à la structure domine l'énergie récupérable [Pelrine 01]. La rigidité diélectrique du média I augmente avec $\varepsilon_r^{'}$ alors que ceux des médias II et III chute avec $\varepsilon_r^{'}$, conduisant à une énergie récupérable plus importante avec le média I. Il faut noter également que le média III montre un niveau de $w_{rec-max}$ plus important que le média II pour une valeur donnée de la constante diélectrique.

En ce qui concerne le rendement de conversion électromécanique idéal η_{conv-i} (figure 3.3.5(b, d, f)), deux tendances différentes peuvent également être observées. Le DEG I et le DEG II convertissent l'énergie moins efficacement que le DEG III quand la constante diélectrique augmente. Avec $\varepsilon_r^{'} = 10$ et $\lambda = 2$, le η_{conv-i} du DEG I est d'environ 15%, celui du DEG III qui est le plus important et vaut d'environ 33% alors que le DEG II présente le plus faible rendement de seulement quelques pourcents. Il doit être noté que l'augmentation de l'efficacité du DEG III est due à la diminution du module de Young dans la gamme de la constante diélectrique étudiée ($\eta_{conv-i} = \frac{w_{rec-max}}{w_S}$).

Sans considérer les pertes, on peut noter que l'augmentation de λ entraîne une augmentation de $w_{rec-max}$ et également une diminution de η_{conv-i}. Les composites siliconés (les trois médias) sont plus efficaces pour des applications de récupération d'énergie lorsqu'ils travaillent sous niveau modéré de déformation. En fait, η_{conv-i} atteint 90% avec $\lambda = 1,2$ pour le DEG III. L'autre intérêt évident du fonctionnement à faible niveau de déformation est l'accroissement de la durée de vie de la structure par rapport à une structure travaillant sous de très larges déformations [Kornbluh 10].

Nous pouvons ainsi conclure que l'amélioration de la constante diélectrique pour aug-

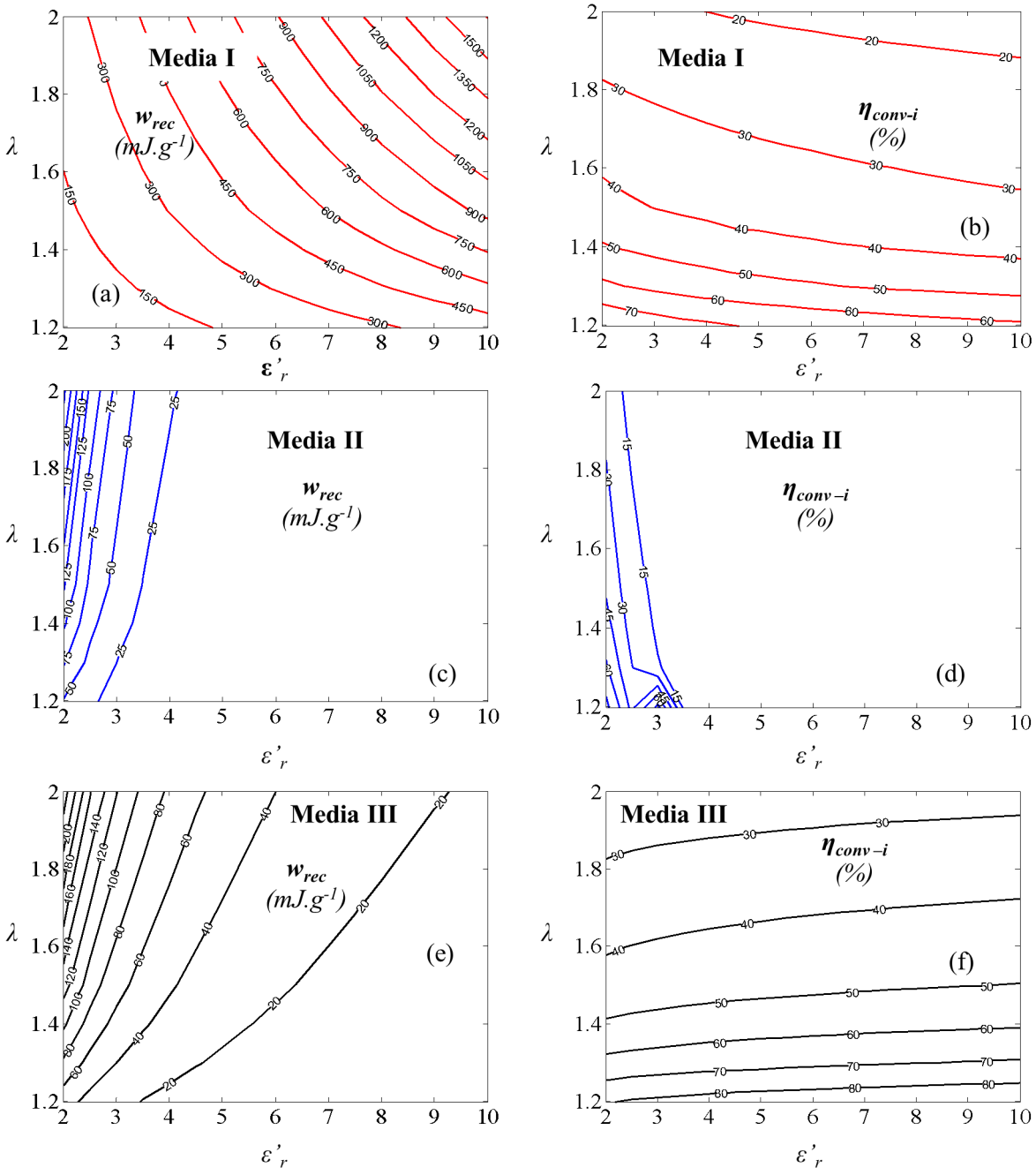


FIG. 3.3.5: Densité d'énergie récupérable maximale (a, c, e) et rendement de conversion électromécanique idéal (b, d, f) pour les trois médias : média I (a, b), média II (c, d) et média III (e, f).

menter l'énergie convertie pour une contrainte fixe est efficace et fiable seulement pour le média I (voir la figure 3.3.5(a, c, e)).

3.3.4.2 Composite réel avec introduction des pertes diélectriques

En reprenant l'étude précédente, nous regardons maintenant l'influence des pertes diélectriques des composites siliconés. La densité d'énergie récupérable est calculée par $w_{rec} = w_{rec-max} - \Delta w_{dielec}$. Le rendement de conversion électromécanique réel est calculé par $\eta_{conv} = \frac{w_{rec}}{w_S}$ (figure 3.3.6).

En introduisant les pertes diélectriques dans le processus de calcul, la densité d'énergie récupérable réelle du DEG est beaucoup plus faible que celle attendue dans le cas idéal (figure 3.3.6.(a, c, e)). Par exemple, si nous voulons récupérer une densité d'énergie de $150 mJ.g^{-1}$ avec le média I, nous avons besoin que le DEG I fonctionne sous un niveau de déformation plus fort ou pour une constante diélectrique plus élevée par rapport au cas du composite idéal (figure 3.3.5.a et figure 3.3.6.a). En ce qui concerne w_{rec}, le DEG I peut produire une densité d'énergie récupérable d'environ $730 mJ.g^{-1}$ sous $\lambda = 2$ et $\varepsilon_r^{'} = 10$, alors que cette valeur vaut $1600 mJ.g^{-1}$ dans le cas idéal. Pour les médias II et III, la densité d'énergie récupérable varie légèrement. Par exemple, pour un composite ayant une constante diélectrique de 4, fonctionnant sous une déformation de $1,5$, la densité d'énergie récupérable est de $16 mJ.g^{-1}$ et $42 mJ.g^{-1}$dans le cas idéal et vaut $13,3 mJ.g^{-1}$ et $34.5 mJ.g^{-1}$ dans le cas réel pour le média II et le média III respectivement. Nous soulignons qu'une valeur optimale de la constante diélectrique peut être trouvée pour un niveau de déformation spécifique (figure 3.3.6.a).

En améliorant la constante diélectrique, les pertes diélectriques augmentent. Cette augmentation réduit fortement les performances des DEGs. Des zones à rendement nul ($\eta_{conv} \leq 0$) apparaissent, zones où l'énergie produite est plus petite que l'énergie dissipée. La figure 3.3.6.(b, d, f) montre les zones de non fonctionnement des DEGs ($\eta_{conv} \leq 0$) pour les médias I, II et III : constante diélectrique élevée et faible déformation. Dans la zone de fonctionnement ($\eta_{conv} > 0$), nous observons une tendance inverse entre w_{rec} et η_{conv} pour les composites. Cette tendance inverse est également démontrée pour le VHB, où les pertes visqueuses jouent un rôle très important sur w_{rec} et η_{conv}.

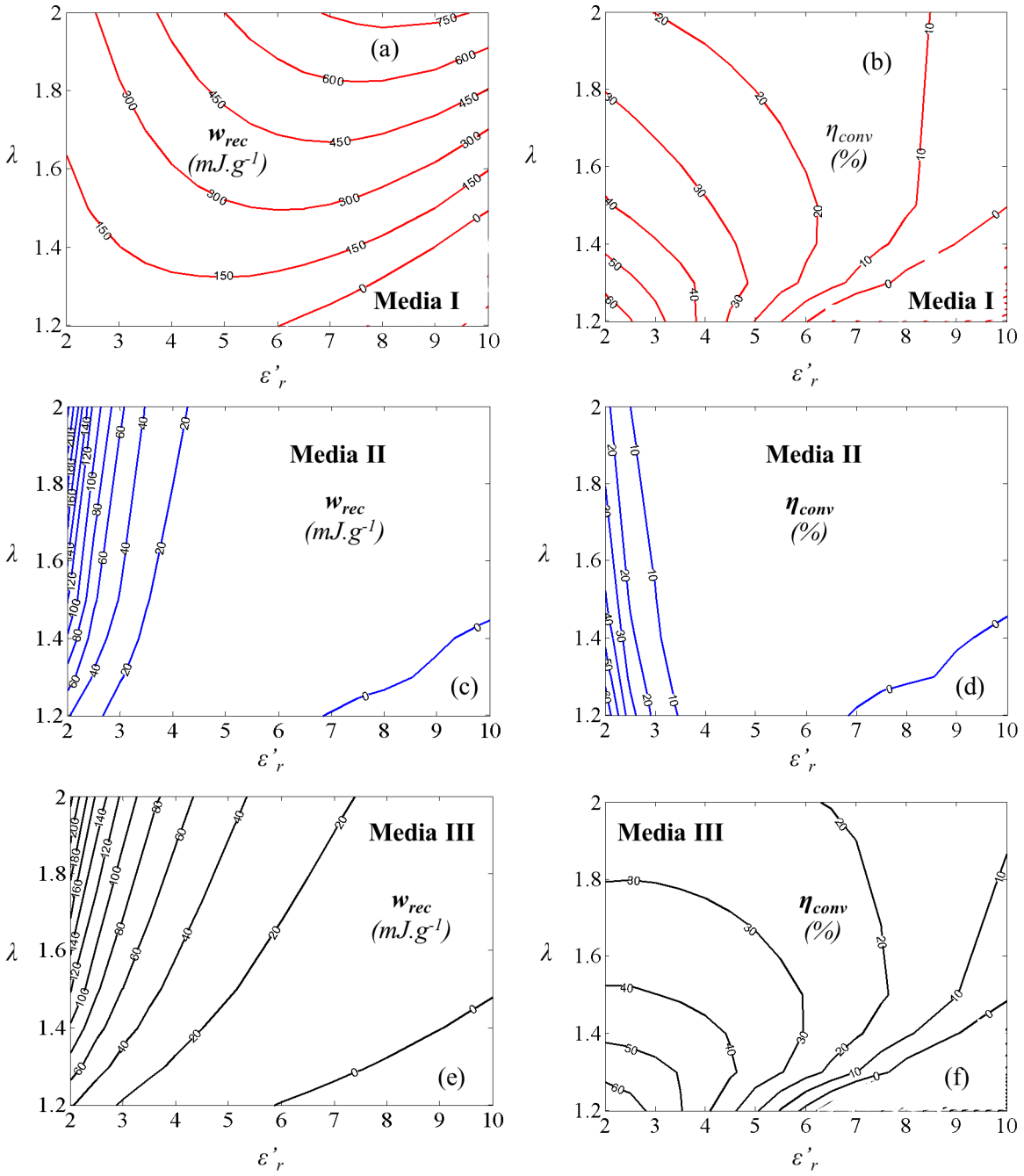


FIG. 3.3.6: Densité d'énergie récupérable réelle (a, c, e) et rendement de conversion électromécanique réel(b, d, f) pour les trois médias : média I (a, b), média II (c, d) et média III (e, f).

3.3.4.3 Performances des composites fonctionnant sous un champ électrique prédéfini

Nous développons maintenant un cas plus proche de la réalité des applications et qui concerne l'utilisation d'une tension modérée pour faire fonctionner le DEG. Le champ

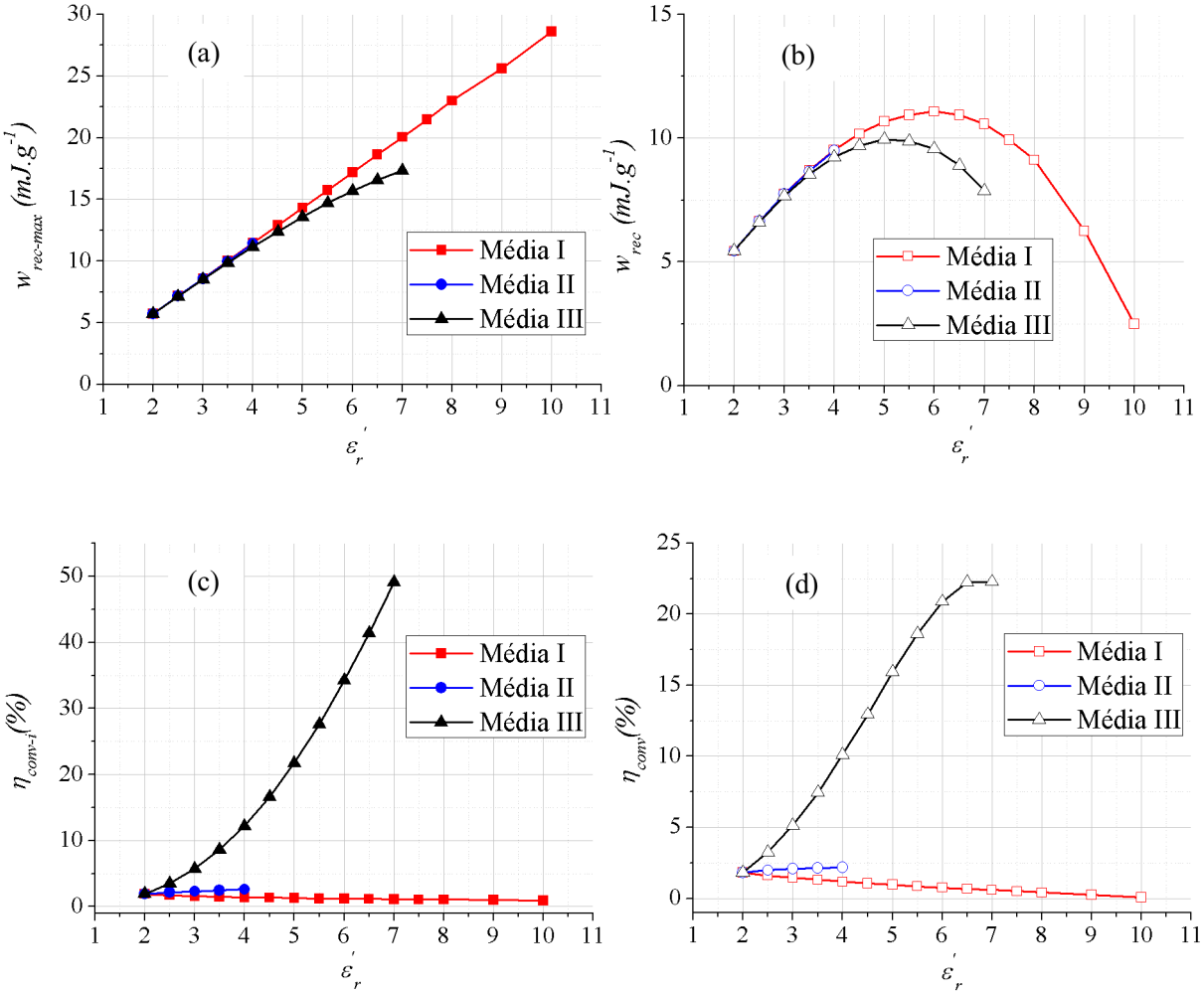


FIG. 3.3.7: Performance des trois médias sous champ électrique de $20MV.m^{-1}$: densité d'énergie (a, b) et rendement de conversion électromécanique (c, d). Symboles remplis et symboles ouverts correspondent respectivement au cas idéal et au cas réel où les pertes diélectriques sont introduites.

électrique maximal appliqué pour les trois médias est le même et vaut $20MV.m^{-1}$, correspondant par exemple à l'utilisation d'une source de tension de $2kV$ sur un film d'élastomère d'épaisseur $100\mu m$. Au regard de la figure 3.3.4, ce champ d'opération faible restreint les variations possibles pour la constante diélectrique ε_r'. En effet, pour des constantes diélectriques élevées, la rigidité diélectrique devient inférieure à ce champ d'opération de $20MV.m^{-1}$ et on ne peut réaliser de DEG sous ces conditions. La déformation relative est choisie à 50% ($\lambda = 1,5$) - cas standard. Les pertes diélectriques sont calculées par l'équation 2.3.4 et les résultats sont présentés sur la figure 3.3.7.

En terme de densité d'énergie récupérable (figure 3.3.7.(a, b)), les médias I et II en développent une légèrement plus élevée que le média III lorsque la constante diélectrique augmente, notamment pour le média I à forte constante diélectrique (supérieure à 7). Cette remarque est valable pour le cas idéal et le cas réel, où les pertes diélectriques

sont prises en compte. Notons que l'énergie récupérable dans cet exemple est beaucoup plus faible en raison d'un champ électrique appliqué plus faible. Par exemple, le média I, dans le cas réel, permet de récupérer au maximum $11mJ.g^{-1}$ comparé au minimum de $120mJ.g^{-1}$ pour le même DEG opérant sous champ électrique maximal. Néanmoins, quand la constante diélectrique augmente, on observe un pic sur la densité d'énergie récupérable montrant qu'il existe une valeur optimale. Un compromis entre $\varepsilon_r^{'}$, w_{rec} et η_{conv} doit être trouvé en fonction des conditions d'utilisation des composites pour les applications en mode générateur. En terme d'efficacité, comme montré sur les figures 3.3.5, 3.3.6 et 3.3.7, les pertes diélectriques influencent fortement le rendement de conversion. Dans le cas d'un champ électrique appliqué de $20MV.m^{-1}$, le rendement de conversion électromécanique pour le média III passe de 50% dans le cas idéal à $22,2\%$ dans le cas réel. Notons que c'est toujours le média III qui assure le meilleur rendement de conversion d'énergie. La figure 3.3.7.d indique également un pic pour le rendement de conversion qui signifie qu'un optimum existe. Pour nos paramètres de simulation, le rendement optimal se trouve au niveau de $\varepsilon_r^{'} = 6,5$ pour le média III.

3.3.4.4 Conclusion sur les performances des composites siliconés en mode générateur

L'augmentation de la constante diélectrique doit être considérée comme une bonne stratégie d'amélioration de la densité d'énergie récupérable ou de l'efficacité de la conversion d'énergie électromécanique pour les applications générateurs, mais cette approche ne permet pas de satisfaire en même temps ces deux objectifs (accroissement de la densité d'énergie et de l'efficacité de la conversion).

La densité d'énergie récupérable et le rendement de conversion électromécanique des composites siliconés sont fonction des paramètres du matériau, de la configuration du DEG mais aussi des caractéristiques propres à l'application. Par exemple, pour des DEGs à grande échelle, tels que ceux utilisés pour convertir l'énergie des vagues ou l'énergie éolienne, dans lesquels l'augmentation du module de Young, une tension de fonctionnement élevée ou un faible rendement peuvent être considérés comme secondaire, la densité d'énergie récupérable w_{rec} pourra être améliorée en utilisant le média I. D'un autre côté, pour des DEGs à petite échelle, conçus pour des applications portables, dans lesquels un faible module de Young et une faible tension d'opération sont nécessaires, le rendement de conversion η_{conv} peut être amélioré en utilisant le média III. Le média II reste une solution prometteuse pour concevoir l'élastomère diélectrique du futur car il pourrait être utilisé d'une manière double : les particules conductrices dans la matrice de silicone servent à augmenter la constante diélectrique du matériau et, mises à proximité des surfaces, elles peuvent réaliser des zones conductrices, fonctionnant comme des électrodes souples intégrées. Le tableau 3.3.2 récapitule ces conclusions.

TAB. 3.3.2: Apport de la solution adoptée pour augmenter la constante diélectrique sur le comportement mécanique et diélectrique des composites siliconés et applications potentielles en mode générateur pour ces médias.

	Média I	Média II	Média III
Y	$\uparrow\uparrow\uparrow$	$\uparrow$	$\downarrow$
$E_{claquage}$	$\rightarrow$	$\downarrow\downarrow\downarrow$	$\downarrow$
$\varepsilon_r^{"}$	$\uparrow$	$\uparrow$	$\uparrow$
W_{rec}	$\uparrow\uparrow$	$\downarrow$	$\downarrow$
η_{conv}	$\downarrow\downarrow$	$\downarrow$	$\uparrow$
Applications potentielles	à grande échelle pour, par exemple, des sources d'énergie environnementales : énergie des vagues, énergie du vent ...	___	à petite échelle comme les structures sur le corps humain : genou, talon, ...

3.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons modélisé analytiquement le fonctionnement des DEGsnon idéaux selon deux modes de déformation : biaxiale et pure-shear. Tous les types d'instabilité développées au sein de l'élastomère diélectrique lors de son fonctionnement sont présentés, modélisés et illustrés pour ces deux modes de déformation.

Nous avons présenté les performances des générateurs à base de polyacrylate VHB et silicone Polypower. Le VHB développe une plus haute densité d'énergie récupérable que le silicone Polypower mais le rendement de conversion électromécanique du VHB est plus faible que celui du silicone car les pertes mécaniques sont très importantes dans le VHB. Les DEGs démontrent des caractéristiques très intéressantes telles qu'une haute densité d'énergie récupérable de $3,2 J.g^{-1}$ pour le VHB ou un rendement η_{mat} pouvant atteindre plus de 90% pour le silicone. Nous avons également étudié l'influence de la variation de différents paramètres tels que la précontrainte, le niveau de déformation, la température sur les performances des DEGs.

L'autre aspect développé dans ce chapitre a consisté à évaluer l'intérêt d'utiliser des composites siliconés pour des applications en mode générateur. L'étude s'est centrée sur le bénéfice réellement apporté par un renforcement (augmentation) de la constante diélectrique dans une matrice silicone pour ces applications. Ce renforcement étant réalisable par une incorporation de particules isolantes ou de particules conductrices ou bien encore un greffage de dipôles dans la matrice silicone. Nous avons discuté les avantages et inconvénients des trois composites ainsi réalisés. Notre étude permet de proposer aux concepteurs de générateurs souples à base de silicone (mais l'approche de notre travail peut être développée à tout autre composite) des abaques leur permettant de définir pour

leur application spécifique le meilleur composite avec la valeur la plus adéquate de la constante diélectrique. Par exemple, si l'énergie de sortie constitue le paramètre clé et que cette énergie doit donc être maximale, le mélange de particules isolantes dans une matrice silicone sera la solution. Cela se prêtera alors bien à des applications à grande échelle comme la récupération d'énergie à partir des vagues ou du vent. En revanche, si l'efficacité de la conversion d'énergie est le paramètre clé, le composite à base de dipôles greffés constituera une meilleure solution . Les applications à petite échelle telles que la récupération d'énergie des mouvements du corps humain rentrent dans cette seconde catégorie.

Points clés

Positionnement

- ❏ Manque de modélisations fiables et complètes pour la conception de DEG.
- ❏ Pas de données en mode générateur sur la sélection des matériaux candidats.

Contributions

- ❏ Développement d'un modèle analytique précis.
- ❏ Évaluation des performances réelles de deux élastomères : le VHB et le Polypower.
- ❏ Développement d'une méthodologie dans le choix d'un matériau pour une application en mode générateur : mise en œuvre à partir de composites siliconés à plus forte constante diélectrique que la matrice silicone.

Chapitre 4

Générateur diélectrique et structure hybride

Qui pense peu, se trompe beaucoup....

(Léonard de Vinci)

Nous avons présenté dans le chapitre 3 les performances du VHB, du Polypower mais également des composites siliconés. Afin de réaliser les cycles de conversion d'énergie avec ces élastomères diélectriques, une source de polarisation et des circuits électroniques associés sont indispensables. Dans ce chapitre, nous évaluons la possibilité d'utiliser un polymère de type électret (i.e. matériau 'réservoir' de charges électriques) pour remplacer le générateur externe haute-tension. Pour cela, nous modélisons la faisabilité de cette approche par différents modes de couplage entre cet électret et l'élastomère diélectrique. La preuve de ce concept faite, nous avons alors réalisé un prototype de générateur hybride souple autonome. Les différentes étapes et conclusions intermédiaires nous ayant guidé vers ce prototype font l'objet de ce chapitre 4.

4.1 Circuits électriques et électroniques de commande

Comme on l'a vu, les DEGs récupèrent l'énergie mécanique de l'environnement par un principe de conversion électrostatique. Il faut donc réaliser des cycles énergétiques composés de quatre phases : étirement, charge, relaxation et décharge. Ces cycles ont été présentés et modélisés dans les chapitres précédents. Afin de les réaliser, des circuits électroniques de commande doivent assurer la charge et la décharge de la structure aux moments opportuns. La figure 4.1.1 présente la chaîne de conversion d'énergie pour un DEG.

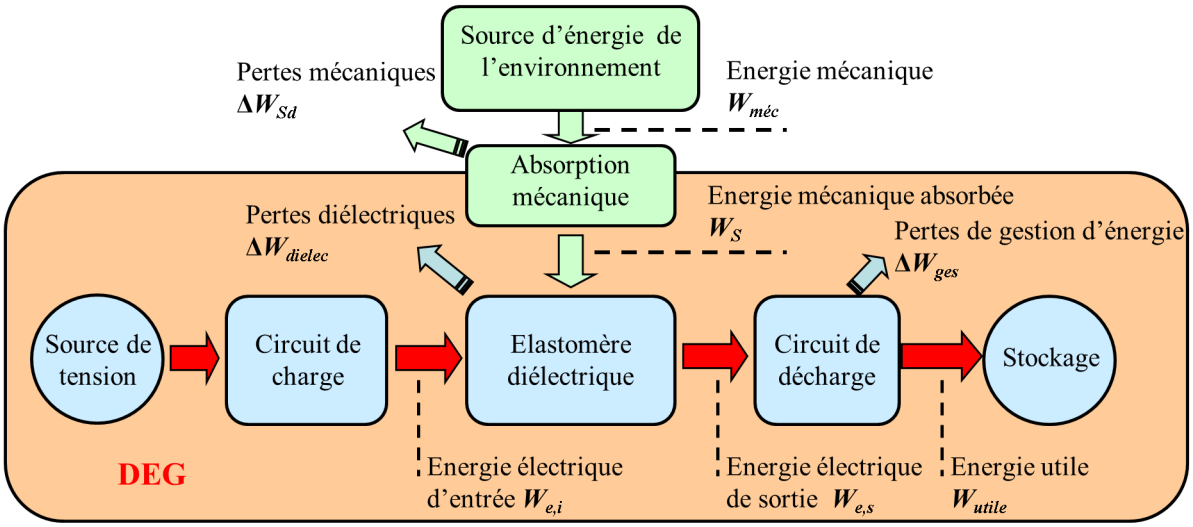


FIG. 4.1.1: Chaîne de conversion d'énergie globale pour un DEG. $W_{rec-max} = W_{e,s} - W_{e,i}$ et $W_{rec} = W_{e,s} - W_{e,i} - \Delta W_{dielec}$.

Les performances d'un DEG sont définies par son énergie utile (W_{utile}) et le rendement de conversion total (η_t - équation 1.4.30). Ce rendement est fonction de différents rendements tels que le rendement d'absorption mécanique (η_{abs}), le rendement de conversion électromécanique (η_{conv}) et le rendement lié à la gestion électrique (η_{ges}) comprenant le circuit de charges, de décharges et les pertes associées.

Le rendement de conversion d'énergie η_{conv} est relativement élevé comme démontré dans le chapitre 3 (figure 3.2.8 et figure 3.2.15) et ne limite donc pas le rendement global de la structure comme le rendement d'absorption η_{abs} et le rendement de gestion η_{ges} peuvent le faire. Nous avons étudié l'influence du rendement du matériau pour différents élastomères diélectriques dans le chapitre précédent ($\eta_{mat} = \eta_{abs}\eta_{conv} > 35\%$ pour le VHB précontraint de 2x2 et $> 48\%$ pour le Polypower précontraint de $1,2 \text{x} 1,2$). Dans cette section, nous considérons seulement le rendement de gestion afin d'évaluer l'influence des différents circuits électriques associés aux DEGs.

Un grand nombre de topologies de convertisseurs haute-tension DC-DC existe : du circuit simple à diodes à des circuits complexes avec des interrupteurs commandables, tels que le boost bidirectionnel, le flyback bidirectionnel ou la topologie en pont complet. Le convertisseur DC-DC doit au moins assurer la charge et la décharge du DEG aux moments opportuns et fournir une tension de sortie maximale de plusieurs kilovolts à l'élastomère diélectrique. Les circuits de charge et de décharge peuvent être dissociés, ce qui conduit à un transfert d'énergie unidirectionnel, ou constitués par un seul circuit de transfert d'énergie qui est alors bidirectionnel. La figure 4.1.2 illustre quelques-unes des topologies couramment utilisées comme convertisseurs DC-DC pour les applications de récupération d'énergie avec des élastomères diélectriques. Le DEG est simplement représenté par une capacité variable. La charge et la décharge de la structure sont représentées par des flèches rouges solides et des flèches vertes en pointillés respectivement.

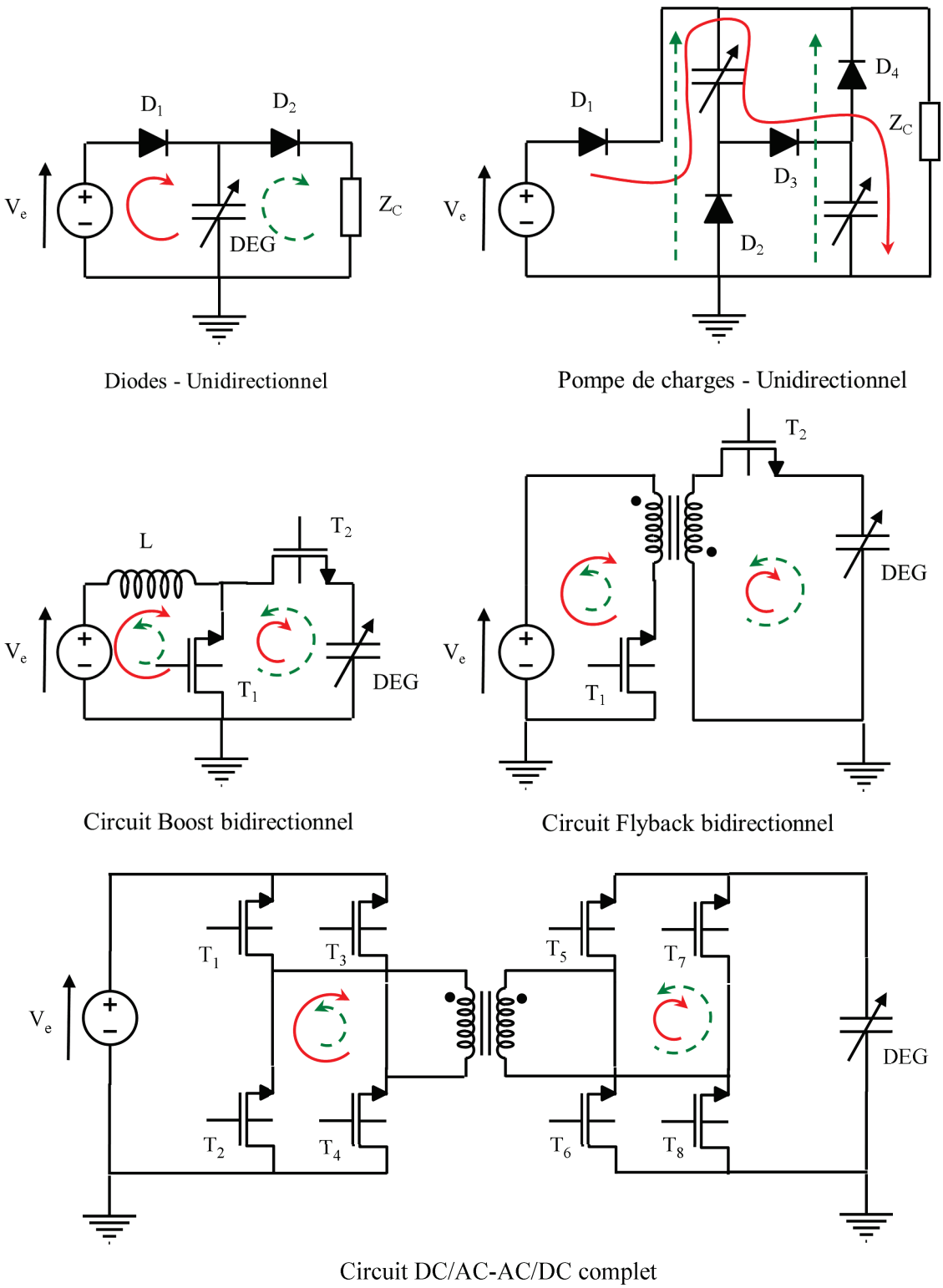


FIG. 4.1.2: Topologies de circuits de transfert d'énergie unidirectionnelle et bidirectionnelle pour les DEGs.

Chacune de ces topologies présente des avantages et des inconvénients. Le circuit à base de diode est évidemment très simple, mais il nécessite l'utilisation de composants haute-tension menant à plus de pertes et à un faible rendement en conséquence. Le circuit de pompe de charges nécessite également des composants haute-tension et a besoin de quelques secondes pour démarrer le processus de récupération d'énergie [McKay 10b]. Les circuits plus complexes tels que le flyback ou le pont complet DC/AC-AC/DC induisent une plus grande complexité sur le circuit et sur leurs commandes associées. Toutefois, ces topologies assurent une isolation galvanique entre le DEG et la tension d'entrée grâce à un transformateur. Le tableau 4.1.1 résume les caractéristiques principales de ces topologies.

Babic *et al* ont adopté la topologie flyback pour piloter des actionneurs en élastomères diélectriques. Ils ont obtenu un rendement de 61% lors de la charge d'une capacité à $5,3kV$, ce qui est mieux que le rendement des convertisseurs DC/HDC commerciaux (41%) [Babič 10]. En mode générateur, les circuits flybacks bidirectionnels sont classiquement utilisés pour les générateurs électrostatiques rigides. Despesse *et al* ont développé une structure centimétrique avec une électronique de puissance et de gestion capable de récupérer $1mW$ à $50Hz$ avec un rendement global de 60% [Despesse 05]. Plus récemment, Boisseau *et al* ont adapté cette topologie à un générateur à base d'électret avec un rendement de conversion d'énergie allant jusqu'à 70% [Boisseau 13]. Ces hauts rendements sont atteints grâce à l'utilisation de composants à faibles pertes (transistors), une fréquence de fonctionnement adaptée et un matériau adéquat pour le noyau magnétique.

En se basant sur des résultats de simulation, Eitzen *et al* ont proposé des critères pertinents (nombre d'interrupteurs, complexité de la commande ...) qui permettent d'évaluer les topologies de convertisseurs DC-DC pour les DEGs [Eitzen 11a]. Plus récemment, ils ont développé des structures en cascade utilisant N convertisseurs DC-HDC connectés en parallèle en entrée et en série en sortie, afin d'obtenir les hautes tension électriques nécessaires aux DEGs tout en utilisant des composants standards minimisant ainsi les pertes dans le circuit [Eitzen 11b]. Cette topologie est assez complexe car le nombre d'interrupteurs et de transformateurs est considérablement augmenté, mais les lois de contrôle restent simples et le convertisseur assure également une isolation galvanique entre le DEG et la source de tension. On peut souligner que les circuits électroniques avec des éléments magnétiques (flyback ...) peuvent facilement être adoptés pour certaines applications comme la production d'énergie à grande échelle, mais ils ne sont pas adaptés pour d'autres applications comme les applications portables. En effet, ces circuits sont lourds et très difficiles à intégrer.

Par ailleurs, Jean *et al* ont développé une topologie d'électronique de puissance basée sur le principe du pompe de charges, qui utilise uniquement des diodes pour réaliser les cycles énergétique pour leur DEG convertissant l'énergie des vagues. Cette structure assure un rendement de 20% [Jean 12].

Dernièrement, McKay *et al* ont réalisé un générateur souple, basé sur un circuit d'auto-amorçage type pompe de charges qui ne nécessite pas de diodes [McKay 11]. Leur circuit

TAB. 4.1.1: Comparaison de différentes topologies de convertisseur DC-DC [Babič 10, Boisseau 13, Despesse 05, Eitzen 11a, Eitzen 11b, Jean 12, McKay 11].

	Diode	Pompe de charges	Boost bidirectionnel	Flyback bidirectionnel	Pont complet
Transfert d'énergie	Unidirectionnel	Unidirectionnel	Bidirectionnel	Bidirectionnel	Bidirectionnel
Nombre de diodes	2	3	1	0	0
Nombre d'interrupteurs	0	0	1	2	8
Inductance ou transformateur	0	0	1	1	1
Niveau de tension d'entrée	haute	faible	faible	faible	faible
Rendement	$< 20\%$	$< 10\%$	$60\% - 70\%$	$60\% - 70\%$	$60\% - 70\%$
Avantages	Circuit simple	Tension d'entrée faible	Commande simple	Isolation galvanique	Isolation galvanique
Inconvénients	Tension d'entrée élevée Composants haute tension	Besoin d'une période d'amorçage	Tension de sortie limitée Composants haute tension	Utilisé classiquement pour une puissance $< 300W$ Composants haute tension	Utilisé classiquement pour une puissance $> 300W$ Composants haute tension

fonctionne en se basant sur des interrupteurs piézorésistifs qui présentent une grande variation de leur résistance sous l'effet de l'étirement. Leur structure DEG présente une densité d'énergie de $10mJ.g^{-1}$ à $3Hz$, avec une tension initiale de $10V$ et, elle commence à récupérer de l'énergie après une période d'amorçage de $11,5s$. Pour éviter l'utilisation de composants haute tension, Jean-Mistral *et al* ont proposé d'utiliser des élastomères diélectriques sous une tension modérée ($< 300V$) [Jean-Mistral 08b]. Bien évidemment, la densité d'énergie est plus faible, mais le circuit électronique associé est simple et ne se compose que de diodes.

Comme tous ces circuits d'électronique de puissance nécessitent une source de polarisation initiale, le DEG n'est pas complètement autonome. Nous proposons maintenant d'utiliser un matériau actif type électret pour remplacer la source de polarisation externe et ainsi créer des générateurs souples parfaitement autonomes.

Nous avons présenté ici les différentes topologies de circuit électronique fréquemment utilisées pour un DEG. Chaque circuit possède des avantages mais également des inconvénients. Les circuits à diode ou pompe de charges sont très simples à utiliser mais ils possèdent un faible rendement. Pour les circuits plus complexes comme le boost bidirectionnel, le flyback ou le pont complet DC/AC-AC/DC, ils présentent un meilleur rendement mais le circuit devient complexe car il nécessite un nombre important d'interrupteurs commandables.

4.2 Électret

4.2.1 Définition et technique de réalisation

Un électret est un isolant qui maintient une charge électrique quasi-permanente et développe un potentiel de surface élevé et stable, sur une longue période : des semaines, des mois, des années ...

Les électrets sont réalisés par injection de charges sur un matériau isolant. Il existe différentes techniques pour faire des électrets telles que l'implantation électronique, la décharge Corona, ... Nous utilisons dans notre laboratoire un dispositif de décharge Corona pour réaliser les électrets grâce à sa simplicité d'utilisation et la bonne stabilité des charges déposées sur les échantillons. Le principe est décrit sur la figure 4.2.1.

La décharge Corona est utilisée depuis longtemps pour charger des isolants [Giacometti 99, Moreno 76]. Elle permet d'effectuer cette opération à l'air ambiant et sans contact avec la surface. Un générateur haute-tension réalise le dispositif de chargement. En effet, l'effet Corona est une décharge électrique qui apparait dans l'air lorsque le champ électrique dépasse une certaine valeur mais sous des conditions inférieures au champ de claquage.

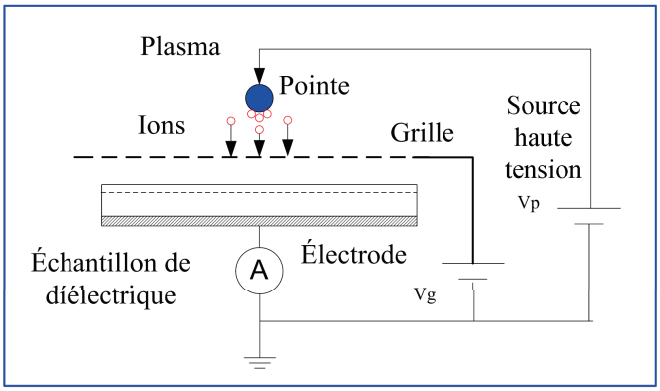


FIG. 4.2.1: Dispositif de décharge Corona.

Cette décharge ionise le milieu : un plasma est créé. Les ions sont alors accélérés, via le champ électrique, vers le diélectrique à charger. Afin de créer une décharge Corona, on utilise généralement une pointe . Le but est de créer des effets de pointe pour augmenter localement le champ électrique (figure 4.2.1). Un échantillon diélectrique est placé sous la pointe. Sa face arrière est recouverte d'une électrode et placée à la masse. Sa face avant est laissée libre. Les ions créés par la décharge Corona sont projetés sur la surface de l'échantillon du fait de la différence de potentiel entre la pointe et l'électrode. Leurs charges sont transférées à la surface du matériau et peuvent migrer dans le volume de l'échantillon par la suite. Une grille métallique (éventuellement contrôlée en tension) positionnée entre la pointe et la surface de l'échantillon permet de contrôler le potentiel de surface et d'homogénéiser la charge implantée dans le diélectrique. Le potentiel de surface de l'échantillon est une image des charges présentes dans le matériau. Ce potentiel est approximé par l'équation :

$$V_S = \frac{\sigma d}{\varepsilon_0 \varepsilon'_{re}} \tag{4.2.1}$$

Avec V_S : potentiel de surface de l'électret, σ : densité surfacique de charges de l'électret, ε'_{re} : permittivité relative de l'électret, d : épaisseur de l'électret et ε_0 : permittivité diélectrique du vide.

Cette formule n'est valable que si les charges sont piégées à la surface du matériau. Au départ, il n'y a pas de charge dans le matériau et le potentiel de surface vaut 0. Au fur et à mesure de l'application de la décharge Corona, des charges sont implantées dans le matériau et le potentiel de surface augmente. Dès que le potentiel de surface de l'échantillon atteint le potentiel de la grille (V_g), il n'y a plus de différence de potentiel entre la surface de l'échantillon et la grille. Les charges électriques ne peuvent plus atteindre la

surface de l'échantillon : le potentiel de la grille joue donc le rôle de consigne des charges de surface que l'on veut déposer sur le matériau.

4.2.2 Théorie principale de la mesure du déclin du potentiel de surface (DPS)

La mesure du déclin du potentiel de surface (DPS) est une technique permettant de caractériser les mécanismes d'écoulement des charges à la surface ou dans les électrets (et plus généralement dans les matériaux isolants). La mesure du potentiel est une mesure sans contact via une sonde électrostatique pour ne pas décharger le matériau. Cette mesure, réalisée au cours du temps, permet, à partir de la forme des courbes obtenues, de déterminer les phénomènes qui entrent en jeu.

Dans les électrets, il existe différents mécanismes expliquant le déclin du potentiel de surface. Les charges injectées dans le matériau ne sont pas nécessairement stables : elles se déplacent, sont neutralisées ... En fait, de nombreux phénomènes peuvent entrer en jeu pour expliquer le déclin du potentiel de surface (figure 4.2.2) [Boisseau 11a, Molinié 10].

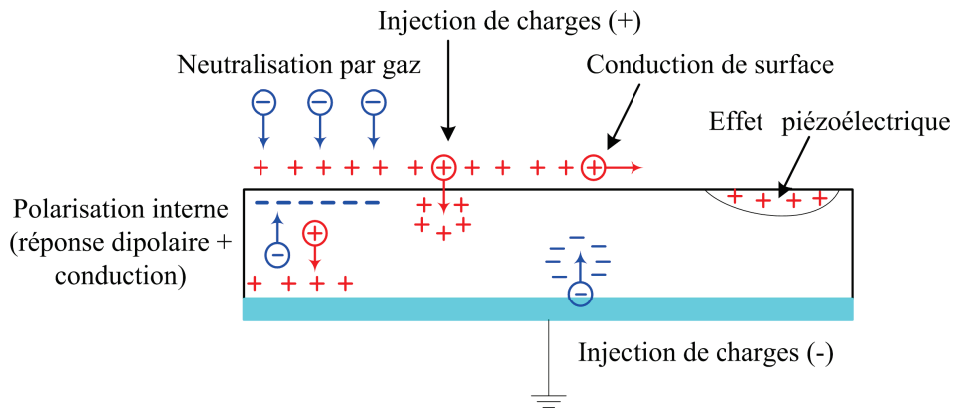


FIG. 4.2.2: Mécanismes expliquant le déclin du potentiel de surface [Boisseau 11a, Molinié 10].

– *Neutralisation par le gaz :*

Les charges présentes en surface peuvent être neutralisées par des charges provenant de l'air ambiant.

– *Injection de charges*

Les charges présentes au niveau des interfaces peuvent migrer dans le volume du matériau. Il peut s'agir de charges présentes au niveau de l'interface air/électret ou électret/métal. Cette injection dépend du type d'interface et du matériau de l'électrode.

– *Conduction de surface*

Les charges se déplacent à la surface du matériau. Ces déplacements peuvent être de nature ohmique ou liés à des sauts entre pièges.

– *Polarisation interne*

La polarisation interne résulte de deux phénomènes : la réponse dipolaire (pour les matériaux dipolaires) et la conduction volumique (transport de charges dans le volume du matériau).

– *Effet piézoélectrique*

Si le matériau présente un caractère piézoélectrique, des charges (piézoélectriques) peuvent être créées lorsque des charges sont injectées. En effet, le matériau peut subir une contraction due à la force engendrée par le dépôt de charges. La contraction du matériau génère alors une charge qui masque l'effet des charges injectées par décharge Corona.

4.2.3 Propriétés du matériau électret

4.2.3.1 Matériau étudié

Dans le cadre de cette thèse, nous voulons réaliser des générateurs souples et autonomes en combinant l'élastomère diélectrique et un électret (figure 4.3.1). Les principales caractéristiques des polymères commerciaux susceptibles d'être des électrets sont résumées dans le tableau 4.2.1.

TAB. 4.2.1: Caractéristiques principales des différents polymères commerciaux. ρ_v : conductivité volumique ; $\tau = \varepsilon_0 \varepsilon_r^{'} \rho_v$: durée de vie de l'électret [Małecki 99] et V_{max} : tension maximale de charge pour le matériau. Les propriétés sont données pour un film polymère de 25µm.

Matériau	Nom commercial	$\varepsilon_r^{'}$	$E_{claquage}(MV.m^{-1})$	$\rho_v(\Omega.cm)$	Durée de vie (ans)	$V_{max}(V)$
PEEK (Polyétheréthercétone)	Victrex, Zyex	3,2	190	10^{16}	0,89	4750
PTFE (Polytétrafluoroéthylène)	Fluon, Teflon	2,1	170	10^{19}	590	4250
FEP (Copolymère d'Ethylène Propylène Fluoré)	Téflon FEP, Hostaflon	2,1	260	10^{18}	60	6500
PVDF (Polyfluorure de Vinylidène)	Floraflon, Kynar	8,5	13	10^{16}	2,4	325
PA 6 (Polyamide - Nylon 6)	Capron, Maranyl	3,6	25	5.10^{12}	5.10^{-4}	625
PP (Polypropylène)	Appryl, PP	2,5	35	10^{17}	7,1	875
PE (Polyéthylène)	Alkathene, Carlona	2,3	27	10^{17}	6,5	675
PI (Polyimide)	Kapton	3,4	303	$1,5.10^{17}$	14	7575
Parylènre HT	_	2,21	185	10^{17}	6	4625
_	CYTOP	2,1	90	10^{18}	60	2250

Parmi les polymères hautes performances présentés dans le tableau 4.2.1, le téflon FEP semble être un bon candidat pour créer un électret car il possède un champ de claquage élevé et une bonne résistivité volumique et surfacique. Le téflon FEP est par ailleurs un polymère utilisé dans de nombreuses applications industrielles. On le retrouve ainsi dans l'automobile, l'aviation, l'espace, l'électronique, la médecine, le photovoltaïque, le bâtiment, etc. Le téflon FEP conserve ses excellentes caractéristiques physiques, électriques et mécaniques sur une plage de température étendue $(-250°C\,;\ 200°C)$. Nous choisissons donc le téflon FEP comme électret. Il est commercialisé par Dupont et existe pour différentes épaisseurs. Nous avons testé le téflon pour deux épaisseurs : 25µm et 50µm.

4.2.3.2 Propriétés d'électret du Téflon FEP

Une tension continue $Vp = \pm 5kV$ à été appliquée à la pointe de la décharge corona. Une tension continue $\pm Vg$ $(Vg = \pm 1000V, \pm 1500V, \pm 2000V)$ est appliquée à la grille située à $2mm$ au-dessus du film téflon FEP. Une procédure de chargement assurant une bonne stabilité des électrets créés est mise en place au regard de la littérature et de notre expérience : chargement en $180s$ sous température ambiante. Puis, l'échantillon est placé sous la sonde électrostatique de mesure (Trek). Les variations du potentiel de surface en fonction du temps $V_S(t)$ mesurées pour différents potentiels de charge initiaux V_0 (tension de grille V_g), sur des films de FEP d'épaisseur 25µm et 50µm sous condition ambiante sont reportées sur la figure 4.2.3.

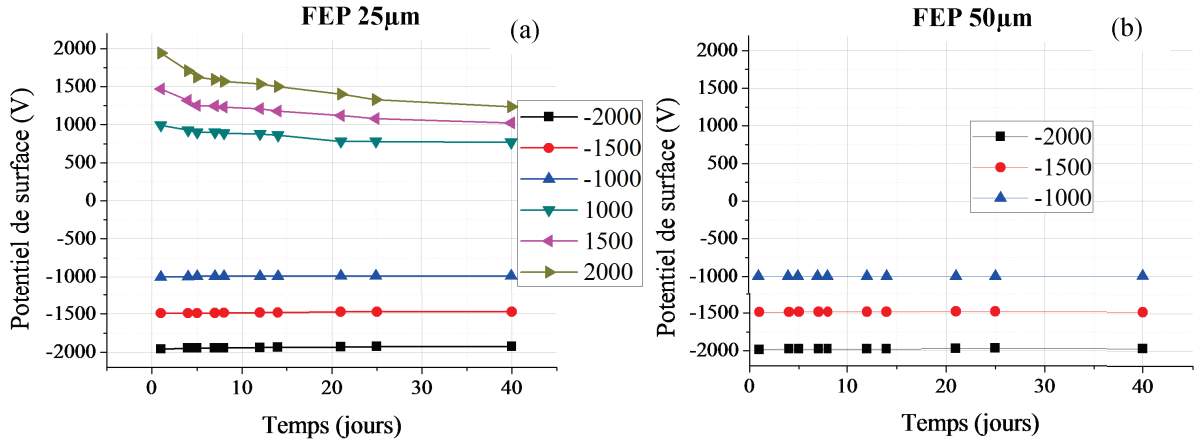


FIG. 4.2.3: Déclin du potentiel de surface (DPS) du téflon FEP 25µm (a) et 50µm (b) en fonction du temps à température ambiante.

On observe que la famille de courbes concernant les charges positives décroît plus vite que celle des charges négatives. Par exemple, pour un potentiel de grille de $+2000V$, le potentiel de surface perd plus de 30% de sa valeur initiale après 40 jours. Au contraire, pour le cas des charges négatives, ce potentiel est pratiquement constant.

Cette différence entre polarité de charges positives et négatives peut être expliquée par la position des charges dans le film de téflon FEP. Comme suggéré par [Giacometti 99], les charges positives se concentrent majoritairement à la surface du film tandis que les charges négatives s'injectent plus profondément dans le volume du film. En effet, le téflon possède des atomes de fluor dans ses chaînes et ces atomes ont tendance à piéger les électrons plus que les charges positives. C'est pour cette raison que les électrets chargés négativement sont plus stables que ceux chargés positivement.

De plus, l'influence de l'épaisseur permet d'identifier la nature de l'écoulement des charges déposées sur la surface du FEP par décharge Corona. La figure 4.2.3 confirme que l'épaisseur de l'échantillon n'a pas d'influence significative sur le DPS, ce qui exclu un effet d'écoulement lié à une conduction volumique [Boisseau 11a].

Pour voir l'influence du potentiel initial sur le déclin de potentiel, on trace le potentiel normalisé par rapport à sa valeur initiale (figure 4.2.4).

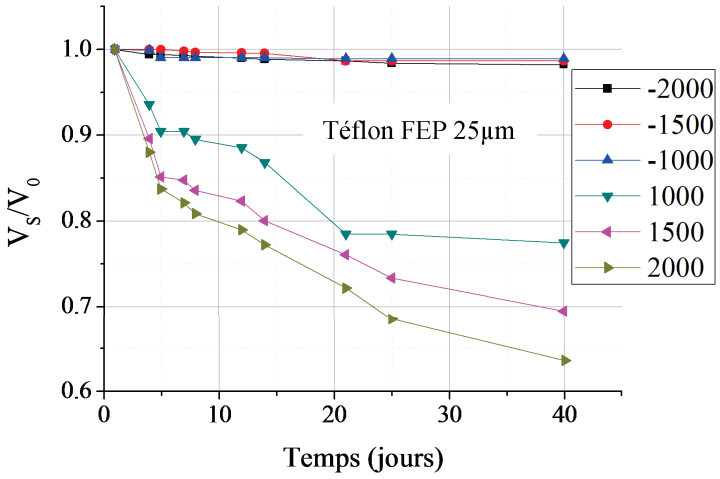


FIG. 4.2.4: Potentiel de surface d'un film de téflon en fonction du temps à température ambiante.

On note que le potentiel initial joue sur la décroissance du potentiel du film téflon FEP. Plus le potentiel initial est élevé et plus la chute du potentiel de surface de l'électret est rapide. Ce phénomène est appelé « cross-over » et signifie qu'il y a une injection partielle de charges dans le volume. Le « cross over » est une fonction de potentiel initial : plus le potentiel initial est grand, plus la décroissance est rapide.

Afin d'apprécier la stabilité du téflon FEP en fonction du temps, nous avons effectué des mesures de déclin du potentiel pour des échantillons soumis à une décharge Corona négative et ceci sur une période supérieure à un an. Les résultats sont regroupés sur la figure 4.2.5.

On peut remarquer que les charges sur le téflon, peu importe son épaisseur, sont stables après plus d'un an. Toutefois, on peut souligner que l'échantillon plus épais, dans ce cas

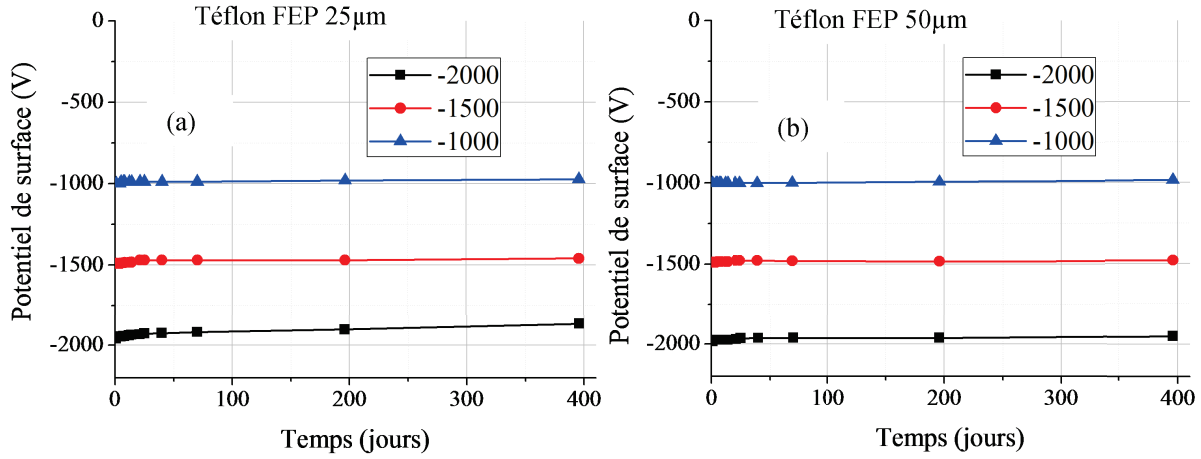


FIG. 4.2.5: Potentiel de surface du film en téflon en fonction du temps à la condition ambiante.

50µm, possède une meilleure stabilité pour des potentiels initiaux plus élevés : pour un potentiel initial de $-2000V$, l'électret d'épaisseur 25µm développe un potentiel de $-1900V$ après 400 jours contre un potentiel de -1965V pour un électret d'épaisseur 50µm soit une chute de 5% et $1,75\%$ respectivement.

Notons que cette bonne stabilité de potentiel du téflon FEP est obtenue à température ambiante et au repos (c'est à dire sans cycles d'étirement et relâchement de l'électret). Les paramètres environnementaux peuvent influencer sur la stabilité des charges telles que la température, l'humidité relative, la contrainte, ... [Boisseau 11a, Molinié 10, Pham-Hong 12].

Les électrets sont des matériaux diélectriques qui ont la capacité à garder une charge de surface pendant de longues durées. Il existe différents mécanismes d'écoulement de charges dans un électret tels que la neutralisation, la conduction, ... Le téflon FEP est un bon électret pour nos applications car il peut garder un potentiel de surface élevé et stable après plus d'un an. Une charge de polarité négative est cependant recommandée pour une meilleure stabilité. L'effet d'épaisseur n'a qu'un rôle infime sur la stabilité de ces charges.

4.3 Hybridation avec l'électret

Le DEG a besoin d'être chargé et déchargé à des moments opportuns afin de réaliser des cycles de conversion d'énergie. Les circuits à base de diodes, de pompe de charges ou les circuits bidirectionnels de type Buck/Boost ou Flyback, présentés précédemment,

sont des circuits adaptés à de telles applications. Toutefois, toutes ces topologies utilisent une source de tension externe, développent un certain niveau d'encombrement, utilisent des transformateurs et/ou bobines, nécessitent des cycles de démarrage, ce qui diminue la flexibilité et l'adaptabilité du générateur.

Ainsi, nous proposons ici d'associer un élastomère diélectrique et un électret pour construire un générateur souple et complètement autonome (figure 4.3.1).

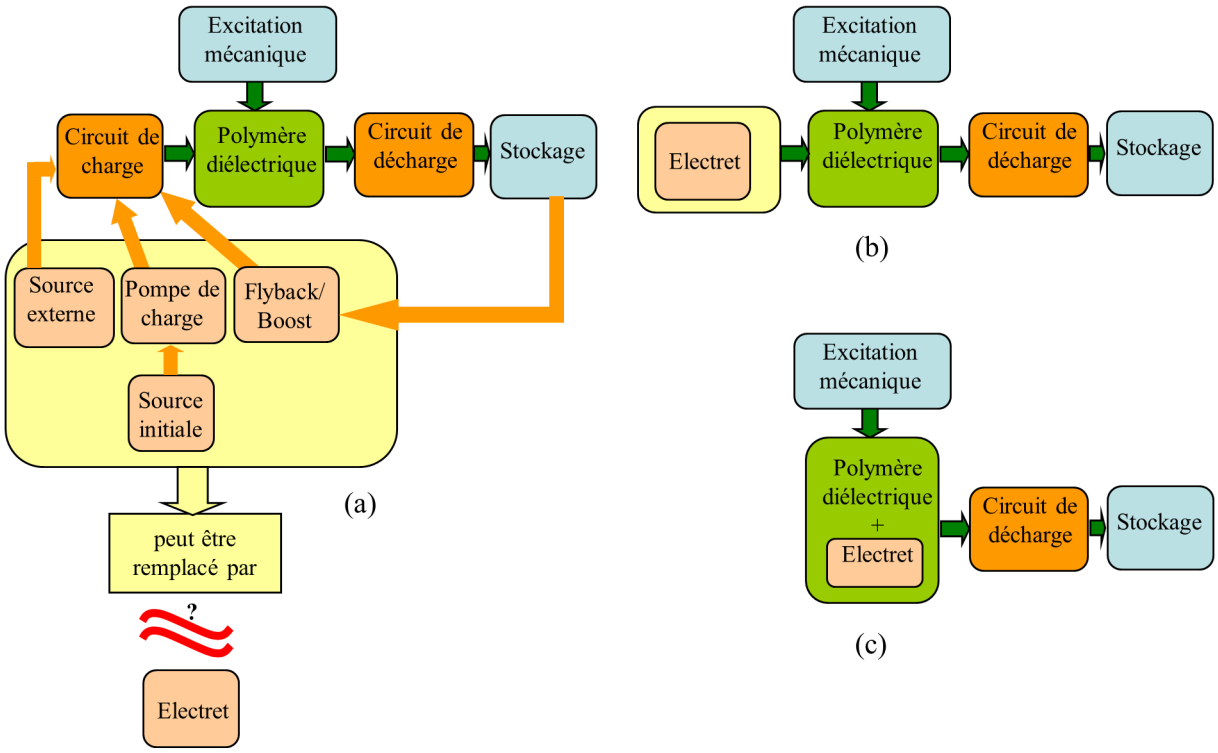


FIG. 4.3.1: Schéma des générateurs hybrides (a) Générateur conventionnel en élastomère diélectrique. (b) Générateur hybride utilisant l'électret comme une source de polarisation (c) Générateur électret hybride.

Nous avons vu que l'électret pouvait conserver des charges électriques sur de très longues périodes. Cette source de potentiel électrostatique pourrait donc être utilisée pour polariser le DEG. C'est ce que nous allons vérifier. Pour cela, nous distinguons deux modes de fonctionnement pour les structures hybrides : élastomère diélectrique - électret.

1. « Mode diélectrique » : mode où le champ électrostatique développé par l'électret est utilisé pour polariser l'élastomère diélectrique, remplaçant ainsi le circuit de charge (figure 4.3.1.b).
2. « Mode électret » : mode où l'élastomère diélectrique est introduit dans un générateur électret classique pour augmenter ses performances (figure 4.3.1.c).

Sur la figure 4.3.1.b (mode diélectrique), l'électret possédant un champ électrique intrinsèque va induire un champ électrique statique dans l'élastomère diélectrique pour le polariser. Keplinger *et al* ont étudié la déformation d'un film en élastomère diélectrique sans électrode placé à proximité de pointes utilisées pour une décharge Corona [Keplinger 10].

Le champ électrique généré par ces aiguilles injecte des charges à la surface du film d'élastomère et déforme ainsi le matériau. Basé sur la même idée, sans connexion électrique entre l'électret et l'élastomère diélectrique, l'électret peut se rapprocher ou s'éloigner du matériau conduisant à la création ou à l'extinction d'un champ électrique dans le matériau. Ce comportement permet la réalisation d'une phase de polarisation (passage de B à C sur la figure 1.3.1) et le cycle énergique classique, étiré - chargé - relaxé et déchargé (figure 1.3.1) peut donc être réalisé.

Sur la figure 4.3.1.c (mode électret), le générateur hybride a le même principe de fonctionnement qu'un générateur électret classique : le changement de capacité induit un réarrangement de charges entre les deux électrodes au travers d'une résistance [Boisseau 11a]. Les générateurs électret basés sur la conservation de la charge totale de la structure (les charges sur l'électret sont égales à la somme des charges induites sur les électrodes) sont généralement des structures résonnantes récupérant l'énergie des vibrations mécaniques. Par exemple, Naruse *et al* ont présenté une structure à base d'électret qui permet de récupérer 40µW avec une surface de $9cm^2$ à $2Hz$ [Naruse 09]. Dans ce mode, le générateur que nous proposons est une structure non résonnante récupérant les déformations quasi-statiques.

Nous allons à présent développer tous ces couplages et les modélisations qui y sont associées.

L'électret peut être utilisé pour remplacer la source de polarisation utilisée par les DEGs. Il existe deux modes de fonctionnement différents pour les structures hybrides : un mode diélectrique (basé sur la polarisation) et un mode électret (basé sur le principe du réarrangement des charges).

4.3.1 Mode diélectrique

Dans ce mode de fonctionnement, l'électret est essentiellement utilisé pour remplacer la source de polarisation externe. Le défi est de combiner électriquement et mécaniquement ces deux matériaux (l'électret et l'élastomère diélectrique) afin d'obtenir une structure déformable optimisée. L'électret ne peut pas être simplement et directement relié à l'élastomère diélectrique, mais une conception judicieuse et spécifique du générateur est nécessaire.

4.3.1.1 Polarisation directe : structure 3D

4.3.1.1.1 Conception

L'électret utilisé comme source de champ électrique ne peut pas être simplement et directement connecté à l'élastomère diélectrique car l'élastomère diélectrique subit de larges

déformations non tolérées par l'électret. La structure doit donc être texturée (figure 4.3.2). La forme 3D que nous proposons permet de ne pas mettre l'électret sous contrainte et donc de garder parfaitement sa polarisation tout en maximisant la variation de capacité de l'élastomère diélectrique et donc l'énergie récupérable. La structure se compose de plusieurs motifs (serpentins) mis en série. L'électret est glissé dans les serpentins. Le diélectrique pris en sandwich entre deux électrodes souples repose sur ces serpentins et un gap d'air le sépare de l'électret. L'électrode souple en regard de l'électret est à un potentiel flottant, l'autre est mise à la masse. Soulignons que seule la partie dite active se déforme.

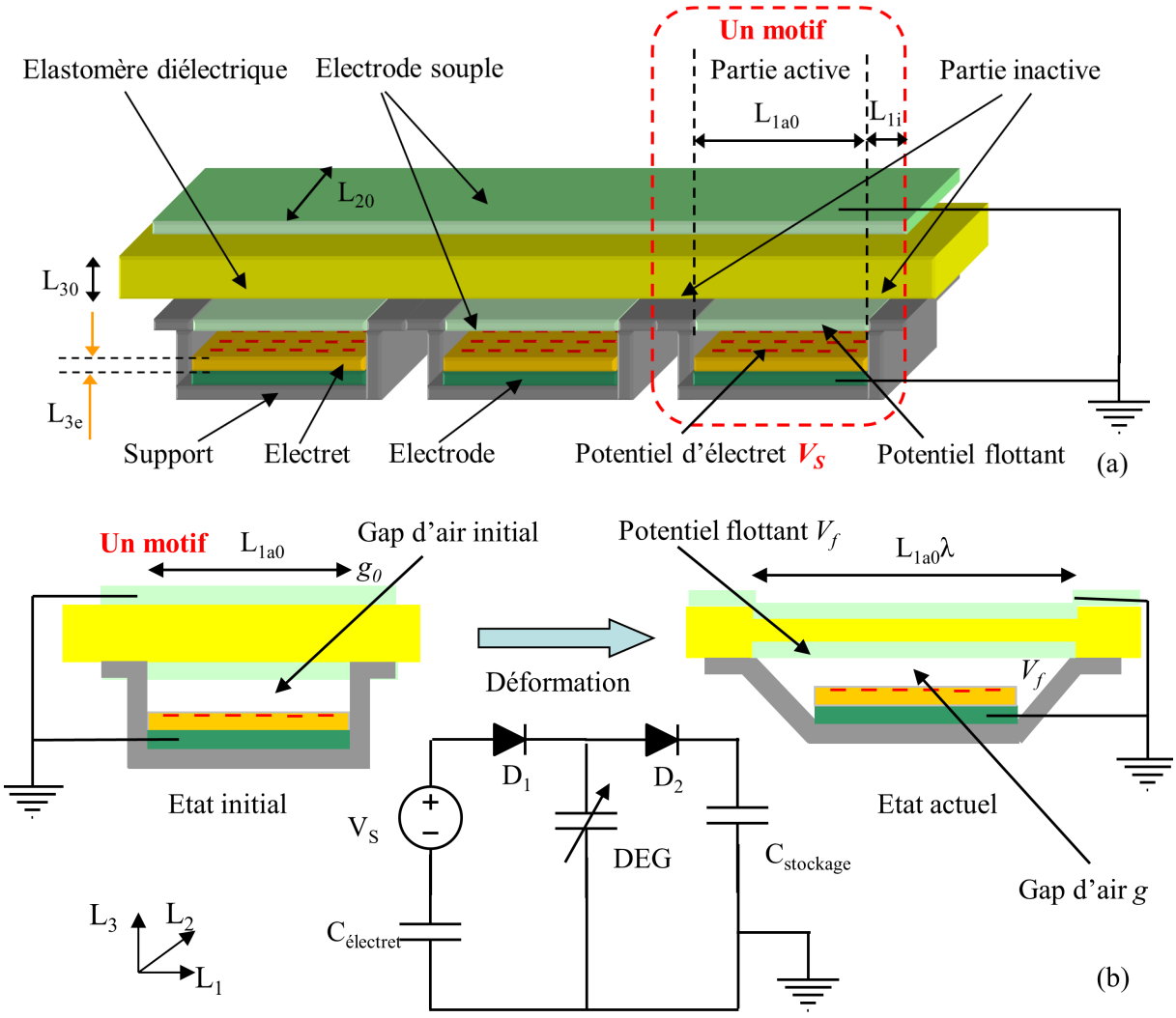


FIG. 4.3.2: Générateur hybride de l'élastomère diélectrique et l'électret en mode diélectrique et sous polarisation directe : Concept de base (a) et schéma équivalent pour un motif (b). Notons que la diode D_1 n'est pas réelle mais symbolise la polarisation de l'élastomère diélectrique via le mouvement de l'électret.

Analysons maintenant ce qui se passe pour un serpentin. Au repos, l'élastomère diélectrique n'est pas polarisé car il est éloigné de l'électret (figure 4.3.2.b à gauche). Lorsque

l'élastomère diélectrique se déforme sous l'action d'une contrainte extérieure, l'électret se rapproche. Les charges induites sur l'électrode basse augmentent de zéro à une certaine valeur, en fonction du potentiel de surface de l'électret, des propriétés du film élastomère et de l'écart entre l'électret et l'électrode souple. Pour une déformation maximale, la structure est chargée sous un potentiel V_f (figure 4.3.2.b à droite), correspondant à l'état C de la figure 1.3.1. Ensuite, le mouvement inverse commence. L'électret s'éloigne et ne polarise plus le diélectrique qui peut décrire un cycle énergétique classique. L'énergie mécanique est alors convertie en énergie électrique.

Le circuit électrique équivalent est donné sur la figure 4.3.2. La diode reliant l'électret au diélectrique symbolise le mouvement relatif entre ces deux matériaux. Les charges générées par le DEG sont simplement stockées dans une capacité de stockage.

4.3.1.1.2 Modélisation de la structure

Afin de connaître l'énergie récupérable et également la densité d'énergie récupérable de cette structure, il est indispensable de connaître le champ électrique $\tilde{E}$, créé par le potentiel flottant V_f en fonction du niveau de déformation λ. Ce potentiel V_f, créé par les charges induites sur l'électrode flottante ($V_f = \frac{Q_f}{C_{eq-a}}$, avec Q_f : charges induites et C_{eq-a} : capacité équivalente de la partie active), est forcément influencé par la position relative entre cette électrode et l'électret. En connaissant la force externe imposée et les dimensions géométriques de la structure, on pourrait expliciter analytiquement le phénomène électrostatique induisant le potentiel flottant sur la structure.

Nous développons une modélisation analytique pour un serpentin. Si la structure finale se compose de N serpentins, l'énergie récupérable finale sera multipliée par N.

La structure suit une déformation en mode pure-shear en gardant sa largueur L_{20} constante. Selon les modèles analytiques développés dans le chapitre 2, si il y a une force externe F_{ext} suivant la direction L_1 imposée à la structure, la relation entre la contrainte nominale (σ_1), le coefficient d'extension de la partie active λ et la contrainte de Maxwell (σ_M) est donnée par [Li 11d] :

$$\sigma_{1p} = \frac{F_{ext}}{L_2 L_3} = \frac{Y}{3} \frac{\lambda - \lambda^{-3}\lambda_2^{-2}}{1 - \frac{\lambda^2+\lambda_2^2+\frac{1}{\lambda^2\lambda_2^2}-3}{J_m}} - \frac{Q_f^2}{L_1^2 L_2^2 \lambda^3 \lambda_2^2 \varepsilon_{110} \varepsilon_r'(\lambda, \lambda_2)} - \frac{Q_f^2}{2L_1^2 L_2^2 \lambda^2 \lambda_2^2 \varepsilon_0 \varepsilon_r'^2(\lambda, \lambda_2)} \frac{\partial \varepsilon_r'(\lambda, \lambda_2)}{\partial \lambda} \tag{4.3.1}$$

Dans notre cas présent, quand L_{20} est gardé constante, on a $\lambda_2 = 1$. Q_f est la charge induite sur l'électrode flottant ($V_f = \frac{Q_f}{C_{eq-a}}$).

Mais, cette modélisation est délicate. Nous proposons ici une méthode simple pour estimer ce potentiel flottant, en imposant le niveau de déformation (de $\lambda = 1$ à $\lambda = \lambda_{max} = 1,5$) à

la structure. En effet, en changeant le coefficient d'extension, les dimensions de la structure changent en conséquence. Ainsi, à l'aide du module électrostatique du logiciel éléments finis Comsol, on peut estimer le potentiel flottant en fonction de la position relative entre l'électret et l'électrode basse.

La configuration utilisée sous Comsol est présentée sur la figure 4.3.3.

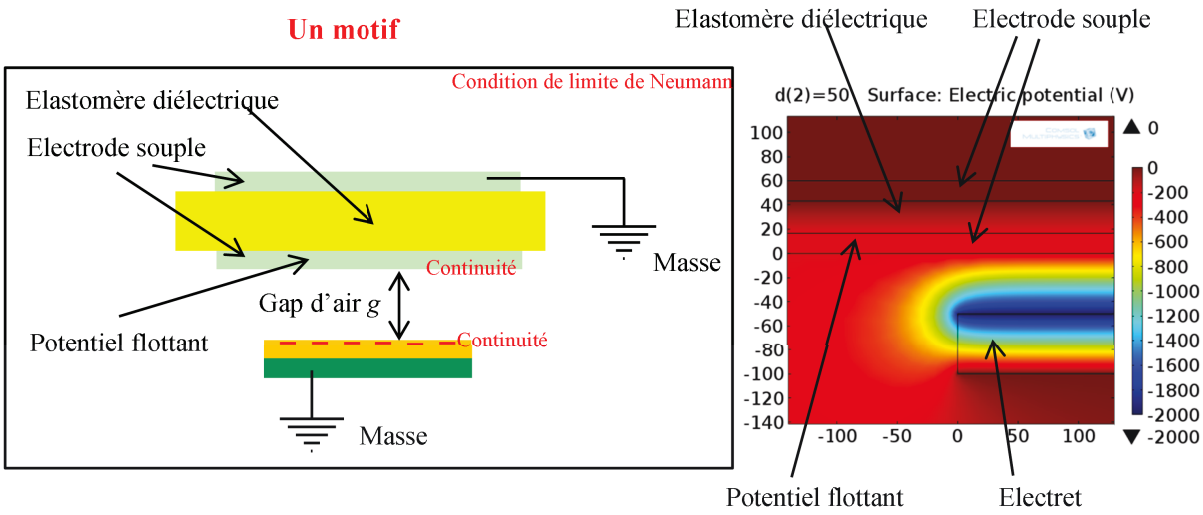


FIG. 4.3.3: Conditions aux limites et potentiel flottant estimé par Comsol.

Au cours de ces simulations préliminaires, nous remarquons que l'épaisseur de l'élastomère influence la valeur du champ électrique sur la structure. Nous avons donc fait des simulations de potentiel flottant pour différentes épaisseurs d'élastomère. Un autre paramètre important pour cette structure hybride est le potentiel de l'électret V_S. Nos mesures ont montré qu'un électret en téflon d'épaisseur 50µm garde un potentiel de surface élevé sur au moins une année. Ainsi, nos simulation sont faites en prenant le silicone Polypower de Danfoss comme diélectrique et le téflon de 50µm d'épaisseur comme électret. Le tableau 4.3.1 résume les paramètres utilisés pour ces simulations.

Les dimensions de la partie active ont été choisies pour une réalisation manuelle rapide et facile du prototype mais surtout pour pouvoir comparer les performances de cette structure avec un ancien prototype de DEG qui n'incorporait pas d'électret [Jean-Mistral 08b].

Une fois le potentiel flottant déterminé et en utilisant le système d'équation d'états (équation 3.1.18 - 3.1.20), nous pouvons calculer la zone de fonctionnement pour ce générateur hybride. L'énergie récupérable ainsi que la densité d'énergie récupérable sont donc estimées. La figure 4.3.4 trace par exemple, la zone de fonctionnement dans les plans mécanique et électrique pour notre structure hybride dans le cas d'un potentiel flottant de $500V$ et $L_{30} = 100$µm.

TAB. 4.3.1: Paramètres de simulation.

Paramètre		Symbole	Unité	
Élastomère diélectrique		___	___	Silicone Polypower
	Constante diélectrique	$\varepsilon_r^{'}$	___	3, 1 (voir tableau 2.3.5)
	Épaisseur	L_{30}	μm	40 ou 100
	Module de Young	Y	MPa	0, 4
	Limite d'extension	J_{lim}	___	16, 5
Électrode				Conducteur
	Épaisseur	$L_{3electrode}$	μm	25
Électret		___	___	Téflon FEP
	Constante diélectrique	$\varepsilon_{re}^{'}$	___	2, 1
	Épaisseur	L_{3e}	μm	50
	Potentiel	V_S	V	-1000, -1500 ou -2000
Structure	Mode de déformation			pure-shear
	Niveau de déformation	λ_{max}		1, 5
Un motif	Longueur de la partie active	L_{1a0}	cm	2
	Longueur de la partie inactive	L_{1i}	cm	0, 5
	Largeur	L_{20}	cm	2
	Gap d'air initial (figure4.3.2)	g_0	cm	0, 5

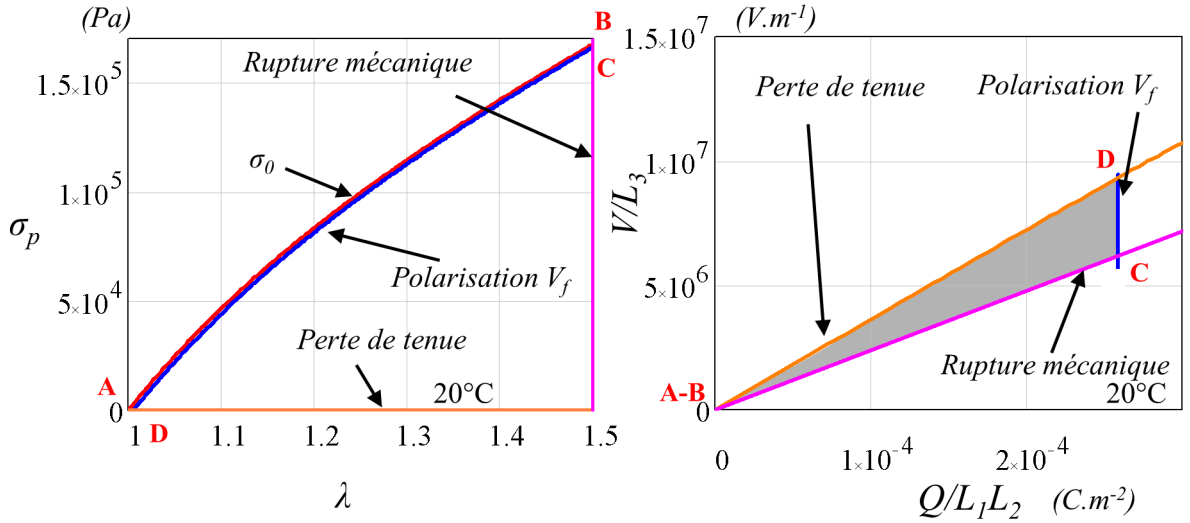


FIG. 4.3.4: Zone de fonctionnement du générateur hybride en mode diélectrique, en structure 3D. Le potentiel flottant est de $500V$.

La densité d'énergie récupérable est estimée en calculant la surface limitée par les différents modes de défaillances. Dans ce cas, la densité d'énergie récupérable w_{rec} est de $1,06mJ.g^{-1}$ soit une énergie récupérable par motif de $21,2\mu J$.

Comme le mécanisme d'instabilité électromécanique ne joue pas un rôle , l'énergie récupérable peut être simplement calculée par la différence entre l'énergie électrostatique stockée au sein du matériau entre deux états : l'état initial et l'état de déformation maximale.

Ainsi, dans la suite de ces travaux de thèse, nous calculerons l'énergie récupérable pour nos structures de façon simplifiée.

4.3.1.1.3 Résultats de simulation

La figure 4.3.5 montre le potentiel flottant estimé par Comsol en fonction du potentiel de l'électret V_S, du gap d'air g entre l'électrode basse et l'électret et de l'épaisseur de l'élastomère diélectrique L_{30}. Le gap d'air varie de 0 à 1000µm, valeur au delà de laquelle les résultats n'évoluent plus.

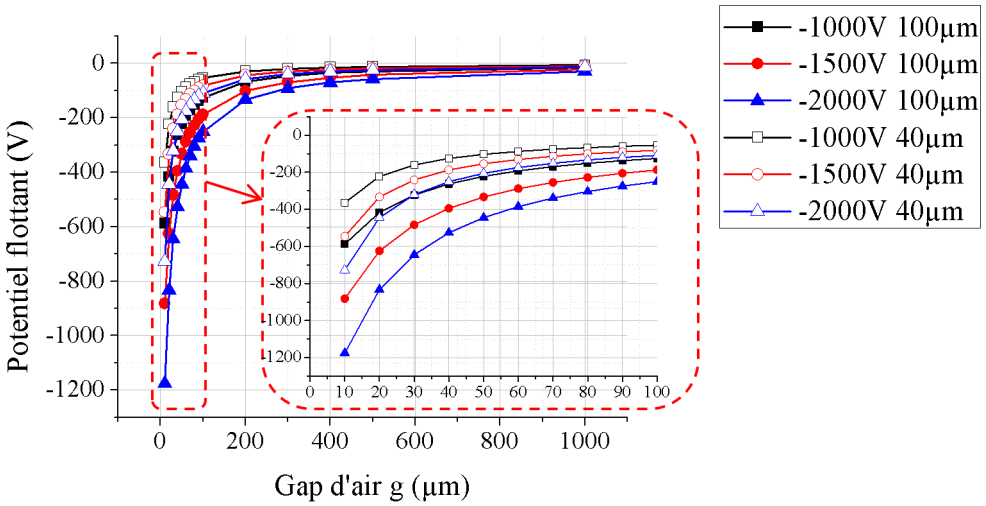


FIG. 4.3.5: Potentiel flottant de la structure hybride en fonction du gap d'air g, du potentiel d'électret V_S et de l'épaisseur de l'élastomère diélectrique L_{30}. Les symboles fermés correspondent à $L_{30} = 100\mu m$ et les symboles ouverts correspondent à l'épaisseur $L_{30} = 40\mu m$.

On observe que la valeur du potentiel flottant augmente fortement avec la diminution du gap d'air entre l'électret et l'électrode basse. Si le gap d'air est de $1000\mu m$, le potentiel flottant est quasi nul mais si le gap d'air est de 10µm, il peut atteindre $1200V$ dans le cas d'un potentiel de surface de l'électret élevé $V_S = 2000V$ et d'un élastomère épais ($L_{30} = 100\mu m$). Notons qu'un plus grand potentiel de surface de l'électret V_S conduit à un plus grand potentiel flottant pour une structure donnée (L_{30} et g fixés).

On note aussi que la valeur du potentiel flottant est plus élevée quand l'élastomère diélectrique est plus épais. Comme l'ensemble électrode supérieure, élastomère diélectrique et électrode de masse forme une capacité, ce résultat est expliqué par la réduction de la capacité lorsque l'épaisseur du film en élastomère augmente.

L'influence du potentiel de l'électret, du gap d'air et de l'épaisseur de l'élastomère diélectrique sur l'énergie récupérable W_{rec} et la densité d'énergie récupérable w_{rec} calculée pour un motif rectangulaire, est reportée sur la figure 4.3.6. Le gap d'air reporté sur la figure

4.3.6 est la valeur finale à l'état de déformation maximale. L'énergie calculée est la différence d'énergie stockée dans la structure entre cette position maximale et une position initiale non déformée. La densité d'énergie est calculée par rapport au volume de la partie active. Le coefficient d'extension λ ($\lambda = 1,5$) est choisi pour faciliter les comparaisons entre les différentes structures.

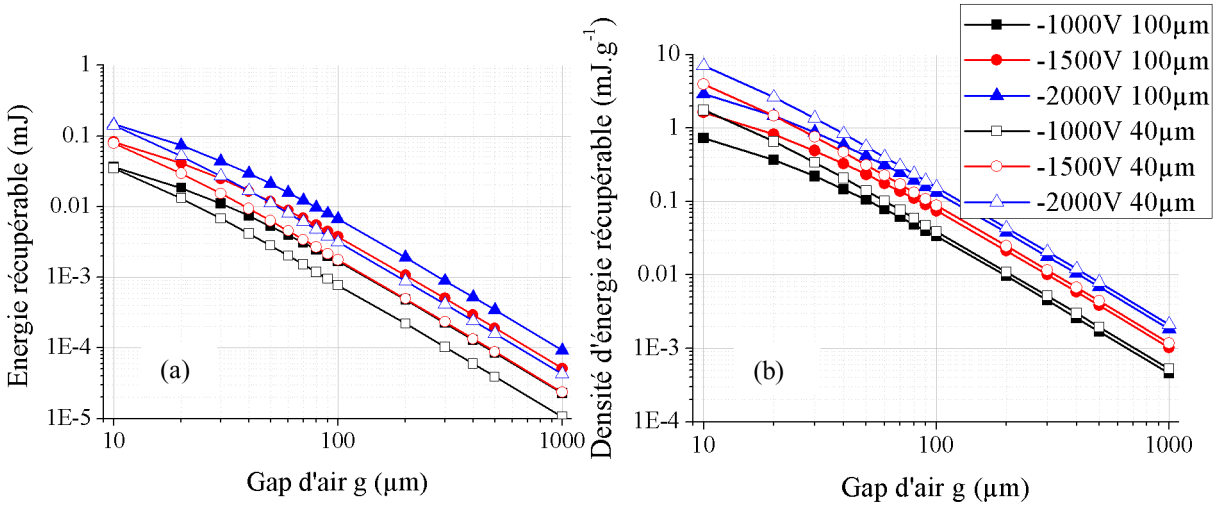


FIG. 4.3.6: Influence de l'épaisseur d'élastomère diélectrique, du potentiel de l'électret et du gap d'air sur l'énergie récupérable (W_{rec}) (a) et sur la densité d'énergie récupérable (w_{rec}) (b) pour un motif.

Avec les paramètres présentés dans le tableau 4.3.1, l'énergie récupérable et la densité d'énergie récupérable sont calculées pour différentes configurations. Plus le gap d'air diminue, plus W_{rec} et également w_{rec} sont améliorées. Dans un cas réaliste, avec $V_S = -2000V$ et $L_{30} = 40\mu m$, cette structure hybride permet de récupérer $9\mu J$ soit une densité d'énergie récupérable de $0,45 mJ.g^{-1}$ quand un gap d'air résiduel d'environ $55\mu m$ existe. Le potentiel flottant dans ce cas est d'environ $180V$, ce qui induit une tension de sortie maximale de $400V$, nous autorisant à utiliser des composants électroniques (diodes ...) standard.

Dans le cas idéal, hors phénomène de claquage dans le gap d'air, une densité d'énergie de $7 mJ.g^{-1}$ est atteignable si $V_S = -2000V$, $L_{30} = 40\mu m$ et avec un gap d'air à l'état de déformation maximale de seulement $10\mu m$. Cette densité d'énergie peut être obtenue en encapsulant sous vide la structure pour qu'elle travaille sous faible pression atmosphérique (remontant ainsi la tension de claquage admissible).

Nous avons présenté la conception, le fonctionnement et la modélisation de structures hybrides en mode diélectrique, soumises à une polarisation directe. En fonction de la localisation relative entre l'élastomère diélectrique et l'électret, l'élastomère diélectrique peut être polarisé plus ou moins grâce aux champs électriques développés par l'électret. Une densité d'énergie récupérable de $7 mJ.g^{-1}$ peut être obtenue avec ce mode de fonctionnement si $L_{30} = 40\mu m$, $V_S = -2000V$ pour un gap d'air final de $10\mu m$.

4.3.1.2 Polarisation par effet de bords : structure plan 2D

4.3.1.2.1 Conception

Dans cette configuration, l'électret est essentiellement utilisé pour remplacer la source de polarisation externe comme pour le « mode diélectrique » mais à la différence que le champ électrique de bord (lié aux effets de bords) est exploité et non plus le champ électrique principal. Le but est de réaliser une structure de récupération d'énergie la plus plane possible.

La figure 4.3.7 présente le concept général de la structure hybride en mode de polarisation par effet de bords. Le schéma équivalent de cette structure est similaire à celui de la structure 3D car le principe de fonctionnement en est identique.

Les zones inactives de la figure 4.3.7 gardent leurs dimensions constantes et seulement la zone active est déformée lorsqu'une contrainte suivant la direction L_1 est imposée. L'électrode souple inférieure est reliée à la masse et l'électrode supérieure est à un potentiel flottant. Au repos, grâce au champ électrique de bords induit par l'électret, l'élastomère diélectrique dans la partie active est polarisé et le potentiel flottant atteint sa valeur maximale. En même temps que la partie active se déforme, le potentiel flottant diminue et la capacité équivalente de la zone active augmente. A l'état de déformation maximale, la capacité équivalente atteint sa valeur maximale et le potentiel flottant atteint sa valeur minimale. La variation de l'énergie électrique stockée entre ces deux positions extrêmes : « maximum » et « minimum » assure la conversion mécanique – électrique de la structure.

Notre idée est d'utiliser le champ électrique de bord produit par un électret pour polariser la zone active. Le positionnement de l'électrode de masse peut jouer sur la distribution des lignes de champ autour de l'électret et donc influencer le potentiel flottant V_f. L'électrode de masse est donc placée seulement dans la zone active pour guider les lignes de champ électrique afin d'augmenter le potentiel flottant sur l'électrode supérieure. Cette configuration doit assurer à la fois un niveau élevé de polarisation et une variation optimale de la capacité de la zone active.

Remarquons qu'il existe une différence de niveau entre l'électret et les électrodes supérieures dans cette configuration. Cela permet en théorie d'éviter l'écoulement des charges de l'électret, même si celui-ci est en contact sur ses côtés avec l'électrode supérieure. Des résultats préliminaires (non inclus dans ce manuscrit) confirment que le champ électrique dans la zone active est plus élevé si la distance entre l'électret et l'électrode supérieure est faible.

4.3.1.2.2 Modélisation de la structure

Comme pour la structure 3D, l'équation de couplage peut être écrite comme il suit :

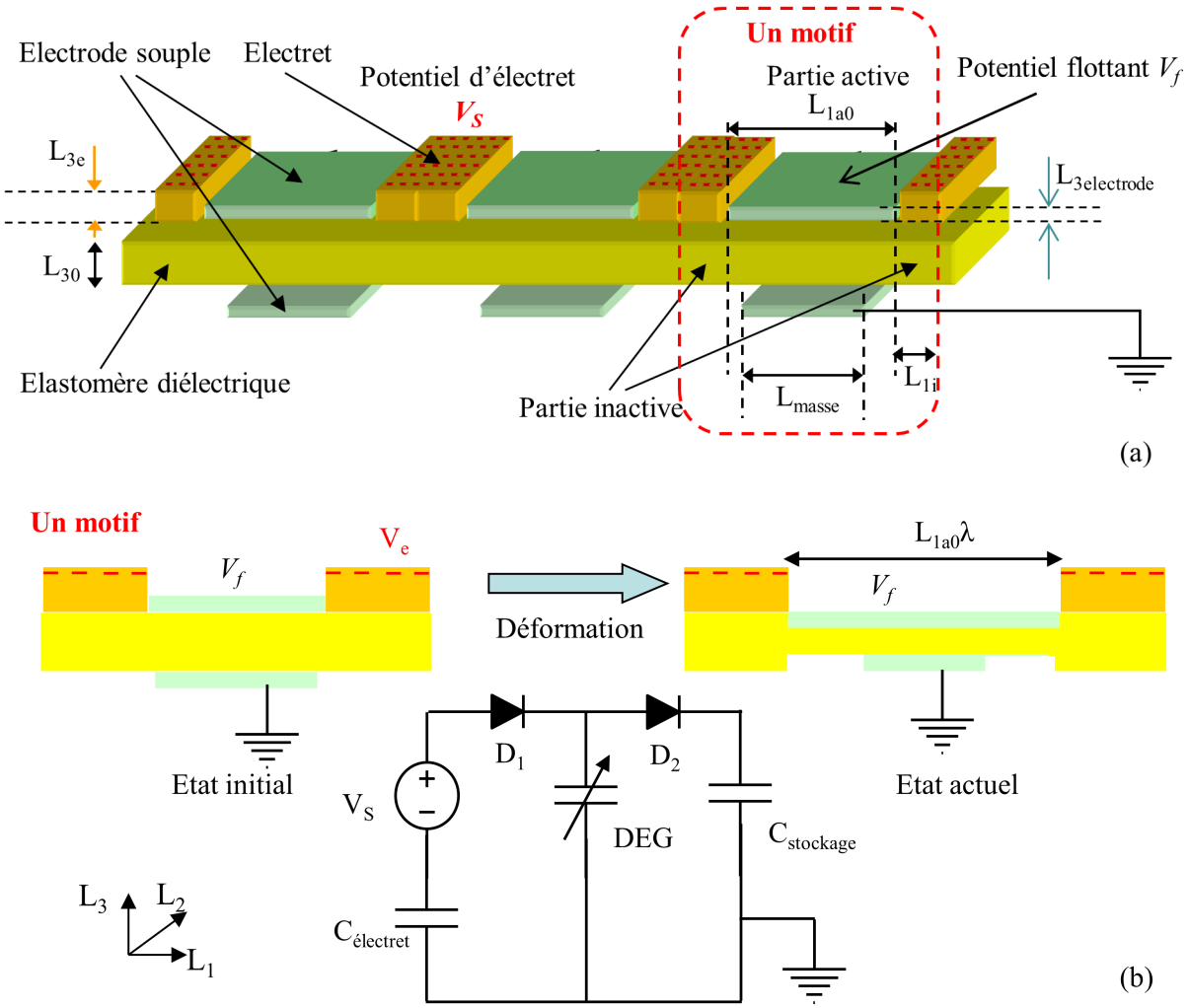


FIG. 4.3.7: Générateur hybride combinant l'élastomère diélectrique et l'électret en mode diélectrique sous polarisation par effet de bords : Concept de base (a) et schéma équivalent pour un motif (b). Notons que la diode D_1 n'est pas réelle mais symbolise la polarisation de l'élastomère diélectrique via le mouvement de l'électret.

$$\sigma_{1p} = \frac{F_{ext}}{L_2 L_3} = \frac{Y}{3} \frac{\lambda - \lambda^{-3}\lambda_2^{-2}}{1 - \frac{\lambda^2+\lambda_2^2+\frac{1}{\lambda^2\lambda_2^2}-3}{J_m}} - \frac{Q_f^2}{L_1^2 L_2^2 \lambda^3 \lambda_2^2 \varepsilon_{110} \varepsilon_r^{'}(\lambda, \lambda_2)} - \frac{Q_f^2}{2L_1^2 L_2^2 \lambda^2 \lambda_2^2 \varepsilon_0 \varepsilon_r^{'2}(\lambda, \lambda_2)} \frac{\partial \varepsilon_r^{'}(\lambda, \lambda_2)}{\partial \lambda} \quad (4.3.2)$$

avec Q_f est la charge induite sur l'électrode flottant ($V_f = \frac{Q_f}{C_{eq-a}}$).

Nous reprenons la méthodologie utilisée dans la section 4.3.1.1.2 pour estimer le potentiel flottant pour un motif de la structure grâce au module électrostatique de Comsol. Un élastomère silicone (Polypower) et un électret en téflon FEP sont toujours utilisés pour ces simulations (tableau 4.3.1).

La figure 4.3.8 présente les conditions aux limites implémentées dans Comsol et les lignes de champ électrique dans la partie active à l'état de repos. Pour les simulations, on distingue également deux structures en fonction de la longueur de l'électrode de masse. La première correspond au cas où la longueur de l'électrode de masse est identique à la distance entre les deux électrets (L_{1a} dans ce cas) (figure 4.3.8.a.P). Nous appelons cette structure «électrode de masse pleine » ou configuration P. Dans un second cas (figure 4.3.8.a.M), la longueur de l'électrode de masse est divisée par deux. Cette structure est appelée «électrode de masse moitié» ou configuration M. Cette distinction de structure en fonction de la longueur de l'électrode de masse est importante parce que les lignes de champ électrique traversant la structure seront guidées par le positionnement respectif de cette électrode de masse et des electrets comme observé clairement dans la figure 4.3.8.

Le dernier paramètre influençant la valeur du potentiel flottant est la distance entre les deux électrets (L_{1a}). Les valeurs de tous ces paramètres de simulation sont récapitulés dans le tableau 4.3.2.

TAB. 4.3.2: Paramètres variables pour les simulations des structures représentées à la figure 4.3.8.

Paramètres	Symbole	Unité	Valeur
Distance entre deux électrets (ou longueur de la partie active)	L_{1a}	cm	de $0,5$ à 3
Longueur de l'électrode de masse	$L_{masse-P}$	cm	L_{1a}
	$L_{masse-M}$	cm	$L_{1a}/2$

4.3.1.2.3 Résultats de simulation

Le potentiel flottant, pour les différents paramètres donnés dans les tableaux 4.3.1 et 4.3.2, est reporté dans la figure 4.3.9.

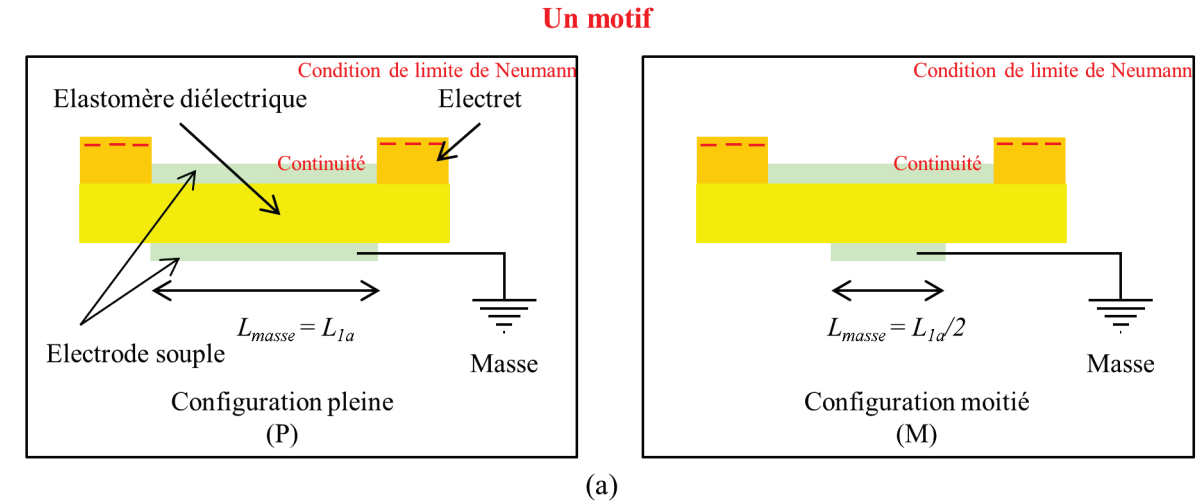


FIG. 4.3.8: Conditions aux limites imposées dans Comsol (a) et Répartition des lignes de champ électrique (b) pour deux configurations d'électrode de masse : pleine et moitié.

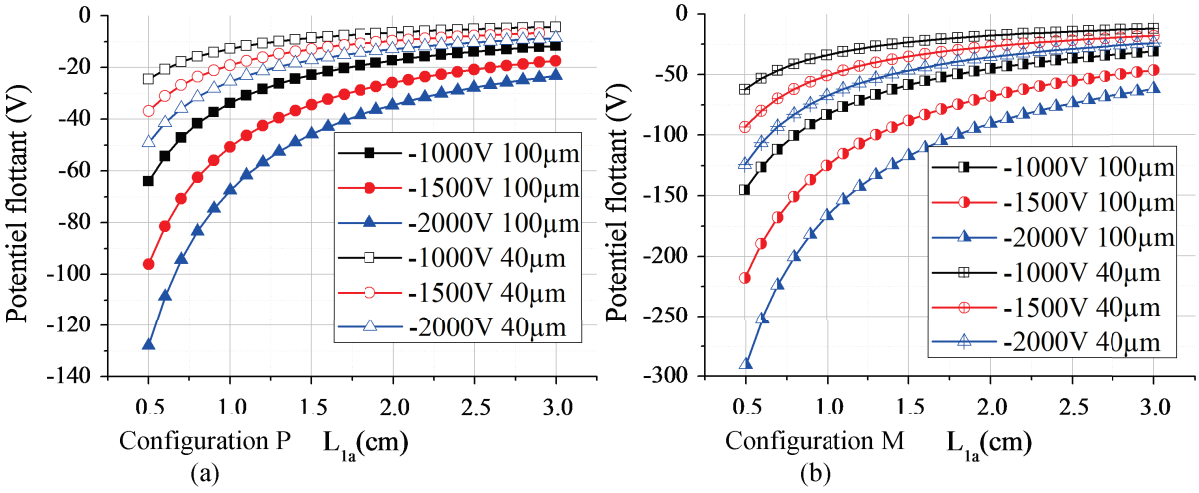


FIG. 4.3.9: Potentiel flottant calculé sur l'électrode supérieure comme une fonction de la distance entre les deux électrets (L_{1a}) pour différents potentiels de l'électret et épaisseurs du diélectrique : Configuration pleine - P (a) et configuration moitié - M (b).

Pour ces deux structures (P et M), l'allure des courbes du potentiel flottant est similaire en fonction des différents paramètres sauf que leurs valeurs diffèrent entre les deux configurations. Des valeurs supérieures de potentiel flottant sont obtenues pour la structure M. Ceci peut être expliqué par la concentration plus élevée des lignes de champ électrique au travers de l'électrode supérieure pour la structure M (voir figure 4.3.8.b). Pour les mêmes raisons, avec une configuration structure pleine ou moitié, le potentiel flottant diminue lorsque la distance entre les deux électrets L_{1a} augmente. De plus, comme dans le cas de la polarisation directe, si l'élastomère diélectrique est plus épais, le potentiel flottant est plus important, expliqué par le fait que la capacité de la structure diminue.

Les potentiels sur l'électrode supérieure sont faibles (centaine de volts) au regard du potentiel de l'électret ($-1000V$ et $-2000V$). Un claquage dans l'air pourrait être craint pour cette structure. Toutefois, nous avons mesuré le potentiel de surface de plusieurs électrets chargés à $-2000V$ et accolés à un autre diélectrique. Aucun claquage lié aux effets de bords ne s'est opéré dans ces structures. Des tests supplémentaires sont nécessaires pour valider ce point.

D'après la figure 4.3.9, on remarque que la géométrie de la structure (positionnement des électrets et électrodes, épaisseur du matériau ...) joue un rôle fondamental si l'on veut exploiter le champ électrique de bords des électrets. Cependant, même dans des conditions géométriques optimales, le potentiel flottant chute fortement par rapport à la valeur du potentiel de l'électret. Néanmoins, ces champs restent exploitables.

A partir du potentiel flottant et de la capacité calculée par simulations numériques, nous calculons maintenant l'énergie récupérable (W_{rec}) et la densité d'énergie récupérable (w_{rec}) pour les structures 2D (figure 4.3.10). Notons que ces énergies sont calculées simplement par la différence de niveau d'énergie entre deux états : l'état initial et l'état de déformation maximale. Le coefficient d'extension est toujours λ de $1,5$. La distance L_{1a} reportée sur la figure 4.3.10 est la valeur au repos. La densité d'énergie est calculée par rapport au volume de la partie active.

Au vu de la figure 4.3.10, la configuration M avec une épaisseur de l'élastomère de $100\mu m$ et un potentiel de surface de l'électret de $-2000V$ présente le meilleur résultat en terme d'énergie récupérée W_{rec} ($0,35$µJ) mais ce n'est pas le cas pour w_{rec}. La densité d'énergie w_{rec} atteint sa valeur maximale pour la configuration M, avec un potentiel d'électret $V_S = -2000V$ et une épaisseur de 40µm.

D'après nos résultats de simulation, un des meilleurs compromis en terme de performances est la configuration M avec une épaisseur de diélectrique de 100µm et une distance entre les électrets de $0,5cm$. Une telle structure est capable de récupérer $0,36\mu J$ pour un motif et sa densité d'énergie récupérable est de $56,7\mu J.g^{-1}$.

À titre d'exemple, si on envisage une nouvelle structure M avec un potentiel d'électret de $-2000V$ et $L_{1a} = 0,5cm$ pour un diélectrique plus épais ($200\mu m$), l'énergie récupérable augmentera à $2,7\mu J$.

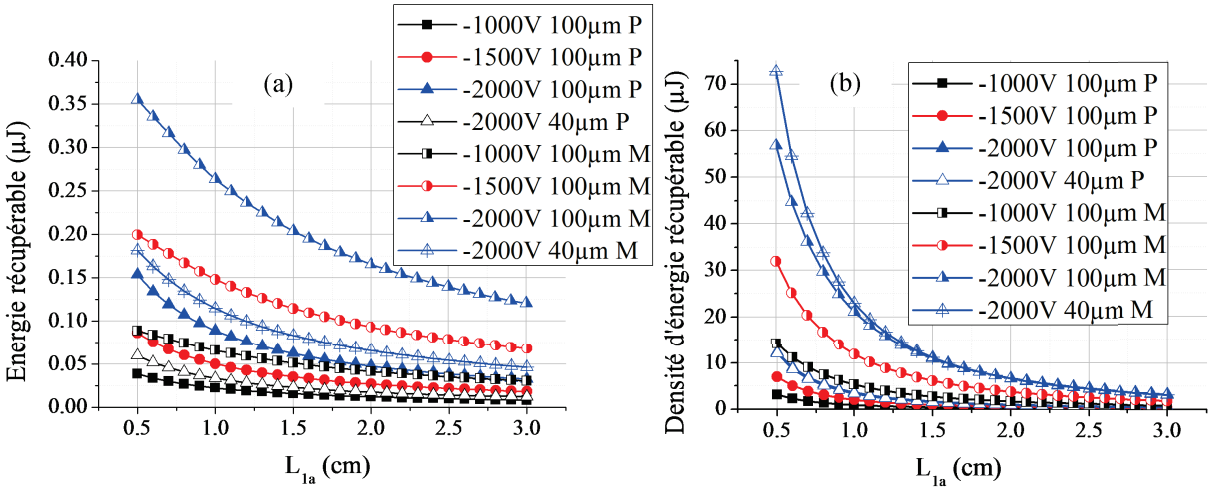


FIG. 4.3.10: Énergie récupérable (a) et densité d'énergie récupérable (b) pour un motif de la structure hybride 2D pour la configuration pleine (P) et la configuration moitié (M).

Nous avons présenté la conception, le fonctionnement et la modélisation de structures hybrides en mode diélectrique, dans le cas de la polarisation par effet de bord. En fonction de la distance entre les deux électrets (L_{1a0}), l'épaisseur de l'élastomère diélectrique et le potentiel de l'électret, l'élastomère diélectrique peut être polarisé plus ou moins grâce aux champs électriques indirects de l'électret. La configuration avec une électrode de masse de moitié l'électrode active assure une meilleure conversion d'énergie. Une densité d'énergie récupérable de $73\mu J.g^{-1}$ peut être obtenue avec ce mode de fonctionnement si $L_{30} = 40\mu m$, $V_S = -2000V$ et la configuration en M.

4.3.2 Mode électret

Comme nous l'avons expliqué, l'élastomère diélectrique peut être introduit dans un générateur électret classique afin d'en augmenter ses performances.

4.3.2.1 Conception

Le principe de fonctionnement de ce mode est identique à celui d'un générateur à base d'électret : le réarrangement de charges [Naruse 09, Boisseau 11a]. En effet, l'électret développe une charge Q_i constante. En raison de la conservation de la charge électrostatique, la somme des charges sur les deux électrodes est égale à la charge de l'électret : $Q_i = Q_1 + Q_2$. Lorsque la structure est soumise à une contrainte mécanique, les changements de capacité induisent une réorganisation des charges entre les électrodes à travers une charge R : un

courant alternatif est généré à travers la charge électrique. Ainsi, une partie de l'énergie mécanique est convertie en électricité.

La figure 4.3.11 présente notre structure hybride en mode électret. La conception est presque la même que celle du mode diélectrique mais l'électrode souple n'est présente que sur une face de l'élastomère diélectrique. L'électret est aussi texturé afin de suivre la déformation du matériau sans perte de charges.

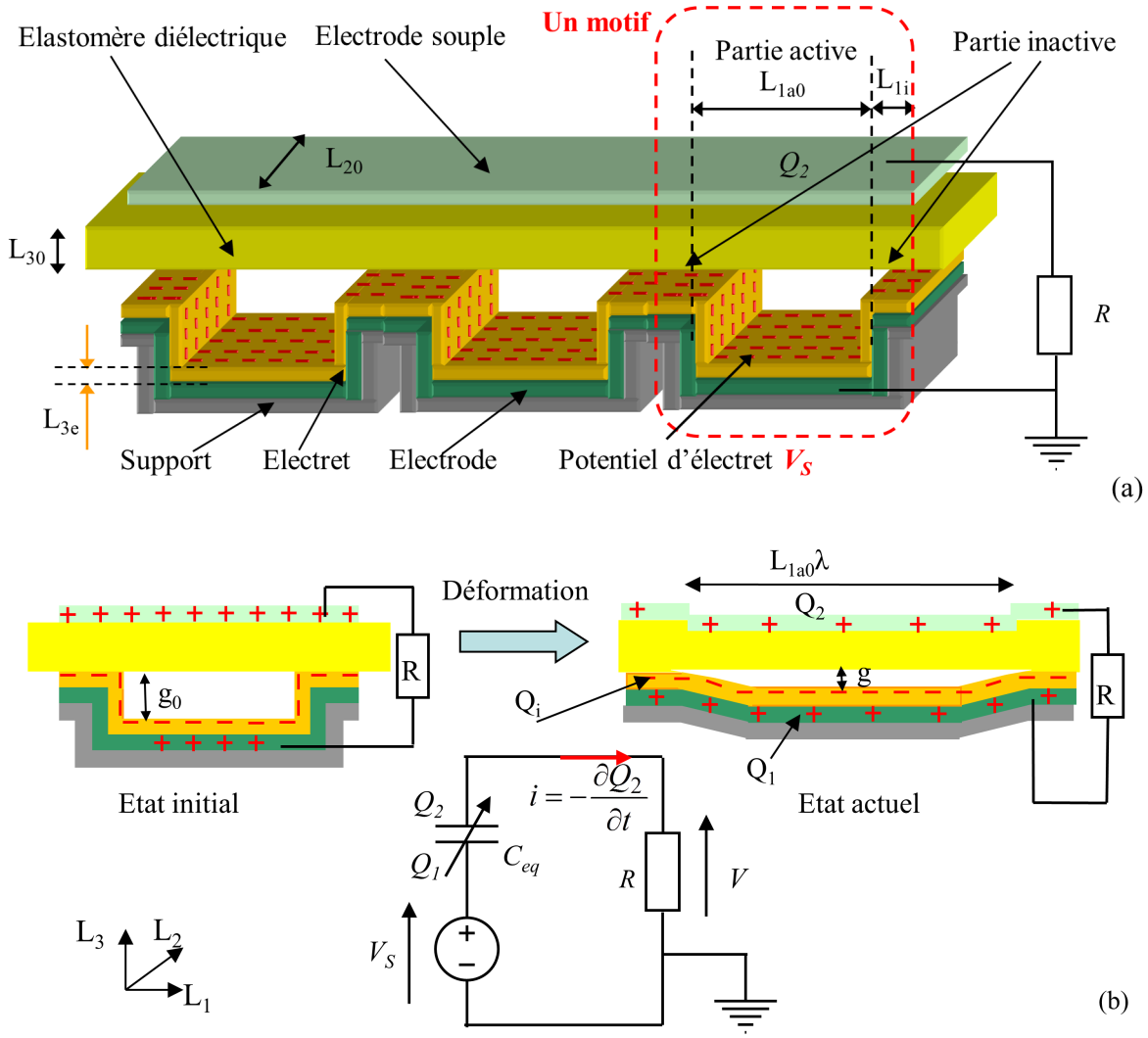


FIG. 4.3.11: Générateur hybride combinant l'élastomère diélectrique et l'électret en mode électret : Concept de base (a) et schéma équivalent pour un motif (b).

A l'état initial, la capacité équivalente de la structure est petite de par le gap d'air considérable entre l'électret et l'élastomère diélectrique. Quand une contrainte suivant la direction L_1 est imposée, seule la partie active est déformée (figure 4.3.11.b). L'électret se rapproche du diélectrique et la capacité équivalente de la structure augmente. A l'état de déformation maximale, la capacité équivalente C_{eq} atteint sa valeur maximale. C_{eq} est la capacité équivalente de la structure, capacité composée du diélectrique, de l'air et de l'électret. Les charges sur l'électret n'évoluant pas, celles sur les électrodes se rééquilibrent

en accord avec les variations de capacités et pour respecter le principe de conservation de la charge. Le réaménagement des charges entre les deux électrodes induit un courant alternatif circulant à travers la résistance R et assure la conversion d'énergie.

4.3.2.2 Modélisation de la structure

4.3.2.2.1 Équation décrivant le couplage

Afin de déterminer la puissance de sortie de ce type de générateur pour une sollicitation mécanique donnée, l'équation du mouvement doit être résolue en même temps que la quantité de charges transférée à la charge électrique R doit être déterminée.

Comme pour les deux autres configurations de structures hybrides, on peut écrire l'équation mécanique du système comme il suit :

$$\sigma_{1p} = \frac{F_{ext}}{L_2 L_3} = \frac{Y}{3} \frac{\lambda - \lambda^{-3}\lambda_2^{-2}}{1 - \frac{\lambda^2+\lambda_2^2+\frac{1}{\lambda^2\lambda_2^2}-3}{J_m}} - \frac{\tilde{E}^2}{\varepsilon_0 \varepsilon_r'(\lambda, \lambda_2)} \lambda \lambda_2^2 - \frac{\tilde{E}^2 \lambda^2 \lambda_2^2}{2\varepsilon_0 \varepsilon_r'^2(\lambda, \lambda_2)} \frac{\partial \varepsilon_r'(\lambda, \lambda_2)}{\partial \lambda} \tag{4.3.3}$$

avec $\tilde{E}$: champ électrique nominal au sein de la structure.

Nous supposons que le potentiel de surface de l'électret ne diminue pas avec le temps : électret idéal. Ainsi, le modèle électrique équivalent du dispositif est présenté sur la figure 4.3.11.b, où Q_1, Q_2 sont les charges sur les électrodes inférieures et supérieures respectivement. V_S est le potentiel de l'électret, R est la charge électrique et C_{eq} est la capacité équivalente de la structure. Basé sur les lois de Kirchhoff, le courant i et l'équation différentielle régissant le système électrostatique est donnée par :

$$i = \frac{\partial Q_2}{\partial t} = \frac{V_S}{R} - \frac{Q_2}{RC_{eq}} \tag{4.3.4}$$

La puissance moyenne de sortie de la structure est déterminée par :

$$P_{moy} = \frac{1}{t_2 - t_1} \int_{t_1}^{t_2} R \left(\frac{\partial Q_2}{\partial t} \right)^2 \partial t \tag{4.3.5}$$

avec $[t_1, t_2]$: intervalle de temps en régime établi.

Le système d'équations (4.3.3 - 4.3.5) nous permet de décrire le fonctionnement et d'estimer la puissance de sortie de notre structure.

4.3.2.2.2 Estimation de la capacité équivalente

Pour résoudre l'équation électrostatique (équation 4.3.4), la capacité équivalente de la structure doit être connue. Quand une contrainte est appliquée à la structure, ses dimensions sont modifiées et engendrent une variation de la capacité équivalente en fonction de la déformation imposée. La capacité équivalente totale $C_{eq}(\lambda)$ s'écrit :

$$C_{eq}(\lambda) = NC_{eq1}(\lambda) \tag{4.3.6}$$

$$C_{eq1}(\lambda) = C_{eq1a}(\lambda) + 1C_{eq1i}(\lambda) \tag{4.3.7}$$

avec $C_{eq1}(\lambda)$: capacité équivalente d'un motif, $C_{eq1a}(\lambda)$: capacité équivalente de la partie active d'un motif et $C_{eq1i}(\lambda)$: capacité équivalente de la partie inactive d'un motif. N : nombre de motifs.

La capacité équivalente de la partie inactive $C_{eq1i}(\lambda)$ est une combinaison en série de deux capacités créées par le diélectrique et l'électret respectivement.

$$\frac{1}{C_{eq1i}(\lambda)} = \frac{1}{C_{électret1i}(\lambda)} + \frac{1}{C_{diélectrique1i}(\lambda)} \tag{4.3.8}$$

avec

$$C_{électret1i}(\lambda) = \frac{2\varepsilon_0\varepsilon_{re}^{'}L_{20}L_{1i}}{L_{3e}} \tag{4.3.9}$$

$$C_{diélectrique1i} = \frac{2\varepsilon_0\varepsilon_{r}^{'}L_{20}L_{1i}}{L_{30}} \tag{4.3.10}$$

Toutes les dimensions sont reportées sur la figure 4.3.11 et le tableau 4.3.1.

La capacité équivalente de la partie active $C_{eq1a}(\lambda)$ est une combinaison série de trois capacités, exprimée en 4.3.11, et créée par le diélectrique, l'air et l'électret.

$$\frac{1}{C_{eq1a}(\lambda)} = \frac{1}{C_{électret1a}} + \frac{1}{C_{air1}(\lambda)} + \frac{1}{C_{diélectrique1a}(\lambda)} \tag{4.3.11}$$

avec C_{eq1a} : capacité équivalente d'un motif, $C_{électret1a}$: capacité de l'électret dans la partie active d'un motif, $C_{diélectrique1a}$: capacité de l'élastomère diélectrique de la partie active d'un motif et C_{air1a} : capacité liée au gap d'air formé entre l'électret et l'élastomère diélectrique.

On a les expressions suivantes :

$$C_{électret1a} = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_{re}^{'} L_{20}(2g_0 + L_{1a0})}{L_{3e}} \tag{4.3.12}$$

$$C_{diélectrique1a} = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r^{'} L_{20} L_{1a0} \lambda^2}{L_{30}} \tag{4.3.13}$$

Pour estimer la capacité liée au gap d'air en fonction de la déformation λ, le gap d'air est découpé en capacités de longueur infinitésimale (∂l_1) dans les zones triangulaires, qui peuvent chacune être considérée comme une capacité plan (figure 4.3.12).

La capacité du gap d'air peut être calculée par :

$$C_{air1}(\lambda) = C_{air1t}(\lambda) + C_{air1r}(\lambda) \tag{4.3.14}$$

avec

$$C_{air1r}(\lambda) = \frac{\varepsilon_0 L_{20} L_{1a0}}{g} = \frac{\varepsilon_0 L_{20} L_{1a0}}{\sqrt{g_0^2 - \left(\frac{L_{1a0}(\lambda - 1)}{2}\right)^2}} \tag{4.3.15}$$

C_{air1t} est la capacité équivalente pour deux zones triangulaires et C_{air1r} est la capacité de la zone centrale rectangulaire.

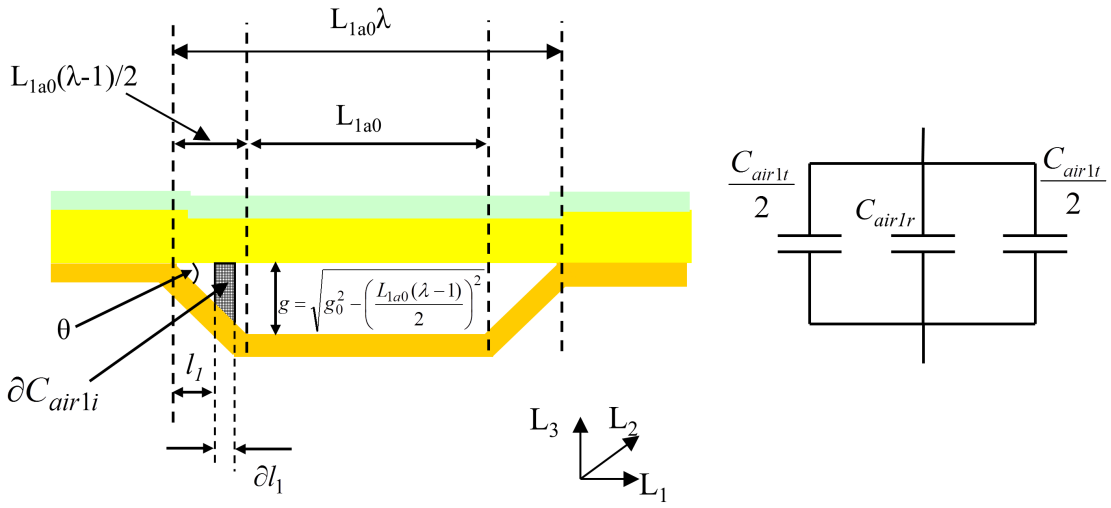


FIG. 4.3.12: Localisation des capacités sur un serpentin dans un état quelconque entre les positions de déformations maximales et de repos.

Pour un coefficient d'extension λ donné, la capacité infinitésimale du gap d'air ∂C_{air1i} est calculée par :

$$\partial C_{air1i}(\lambda) = \frac{\varepsilon_0 L_{20} \partial l_1}{l_1 tan\theta} \tag{4.3.16}$$

avec

$$tan\theta = \frac{g}{\frac{L_{1a0}(\lambda-1)}{2}} = \frac{\sqrt{g_0^2 - \left(\frac{L_{1a0}(\lambda-1)}{2}\right)^2}}{\frac{L_{1a0}(\lambda-1)}{2}} \tag{4.3.17}$$

La capacité totale équivalente du gap d'air dans les zones triangulaires est alors :

$$C_{air1t}(\lambda) = 2 \int_{l_{10}}^{L_{1a0}(\lambda-1)/2} \partial C_{air1i}(\lambda) = \left[\frac{\varepsilon_0 L_{1a0} L_{20}(\lambda-1)}{\sqrt{g_0^2 - \left(\frac{L_{1a0}(\lambda-1)}{2}\right)^2}} ln(l_1) \right]_{l_{10}}^{\frac{L_{1a0}(\lambda-1)}{2}} \tag{4.3.18}$$

où l_{10} correspond à la longueur de la première capacité infinitésimale. Cette valeur doit être suffisamment faible pour permettre d'obtenir une bonne précision. Nous choisissons arbitrairement $l_{10} = 1\mu m$.

La capacité équivalente du gap d'air devient donc :

$$C_{air1}(\lambda) = \frac{\varepsilon_0 L_{1a0} L_{20}}{\sqrt{g_0^2 - \left(\frac{L_{1a0}(\lambda-1)}{2}\right)^2}} + \left[\frac{\varepsilon_0 L_{1a0} L_{20}(\lambda-1)}{\sqrt{g_0^2 - \left(\frac{L_{1a0}(\lambda-1)}{2}\right)^2}} ln(l) \right]_{l_{10}}^{\frac{L_{1a0}(\lambda-1)}{2}} \tag{4.3.19}$$

Afin de valider notre calcul analytique de capacité lié au gap d'air, nous avons comparé nos résultats à ceux obtenus par une simulation éléments finis (FEM) (module électrostatique - Comsol). Cette simulation prend en compte tous les effets de bord et calcule la véritable capacité équivalente de notre structure grâce à la géométrie de l'échantillon et la valeur de la densité d'énergie électrique. La capacité équivalente pour un motif, en fonction des paramètres géométriques présentés sur la figure 4.3.12 et le tableau 4.3.1, est reportée sur la figure 4.3.13.

Pour estimer la valeur de la capacité équivalente d'un motif dans Comsol, le potentiel de l'électrode supérieure est fixé à une valeur, et l'électrode inférieure est mise à la masse. La condition limite entre l'électret et le gap d'air est une condition de continuité. La densité d'énergie électrique calculée par Comsol peut être utilisée pour calculer la capacité équivalente de notre structure. Les résultats de la figure 4.3.13, montrent que le modèle analytique (équation 4.3.7 - 4.3.19) correspond bien aux valeurs calculées par Comsol.

La petite différence observée (zoom sur la figure 4.3.13) peut être expliquée par les effets géométriques et par les effets de bords pris en compte par Comsol. Toutefois, la majorité

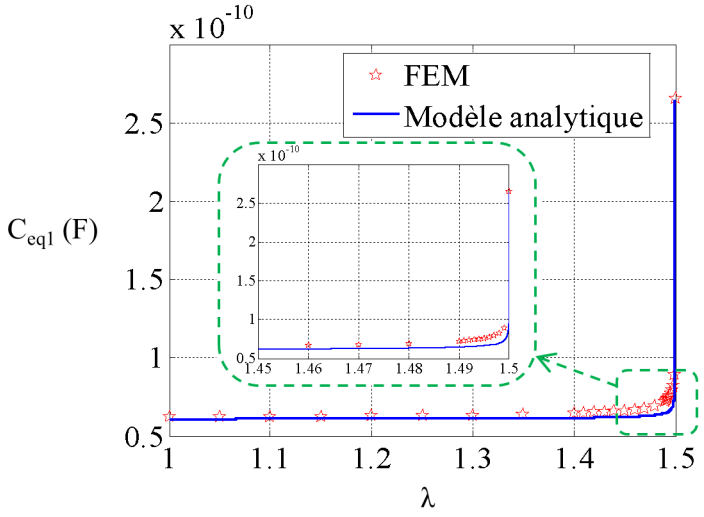


FIG. 4.3.13: Comparaison de la capacité équivalente d'un motif présenté dans la figure 4.3.11, estimée par deux méthodes : FEM et analytique.

des valeurs, et en particulier les capacités extrêmes (minimale et maximale), sont similaires par les deux méthodes.

Ainsi, le calcul analytique de la capacité équivalente sera utilisé dans le modèle analytique de la structure hybride. L'ensemble des équation 4.3.3, 4.3.4 et 4.3.6-4.3.19 nous permet donc maintenant de simuler le comportement global de la structure et d'estimer la puissance de sortie.

4.3.2.3 Résultats de simulation

Avec les paramètres de la structure présentés dans le tableau 4.3.1, le système d'équation est implémenté sous Matlab/simulink. La figure 4.3.14 montre la tension de sortie au niveau de la résistance R pour le cas $R = 5M\Omega$ et la puissance de sortie moyenne P_{moy} en fonction de R pour les potentiels d'électret $V_S = -1000V$ et $V_S = -2000V$.

La tension de sortie possède la même allure que celle obtenue pour un générateur électret classique [Boisseau 11a], c'est-à-dire une tension alternative élevée (figure 4.3.14. (a, c)). Dans le cas idéal, quand aucun gap d'air n'existe entre l'élastomère diélectrique et l'électret à l'état de déformation maximale, une puissance moyenne de 88µW et 373µW peut être récupérée pour un potentiel d'électret $V_S = -1000V$ et $V_S = -2000V$ respectivement, avec une charge électrique optimale. La densité d'énergie récupérable peut atteindre $1,43mJ.g^{-1}$ si le potentiel de l'électret est de $-1000V$ et peut augmenter jusqu'à $6,04mJ.g^{-1}$ si le potentiel de l'électret est de $-2000V$.

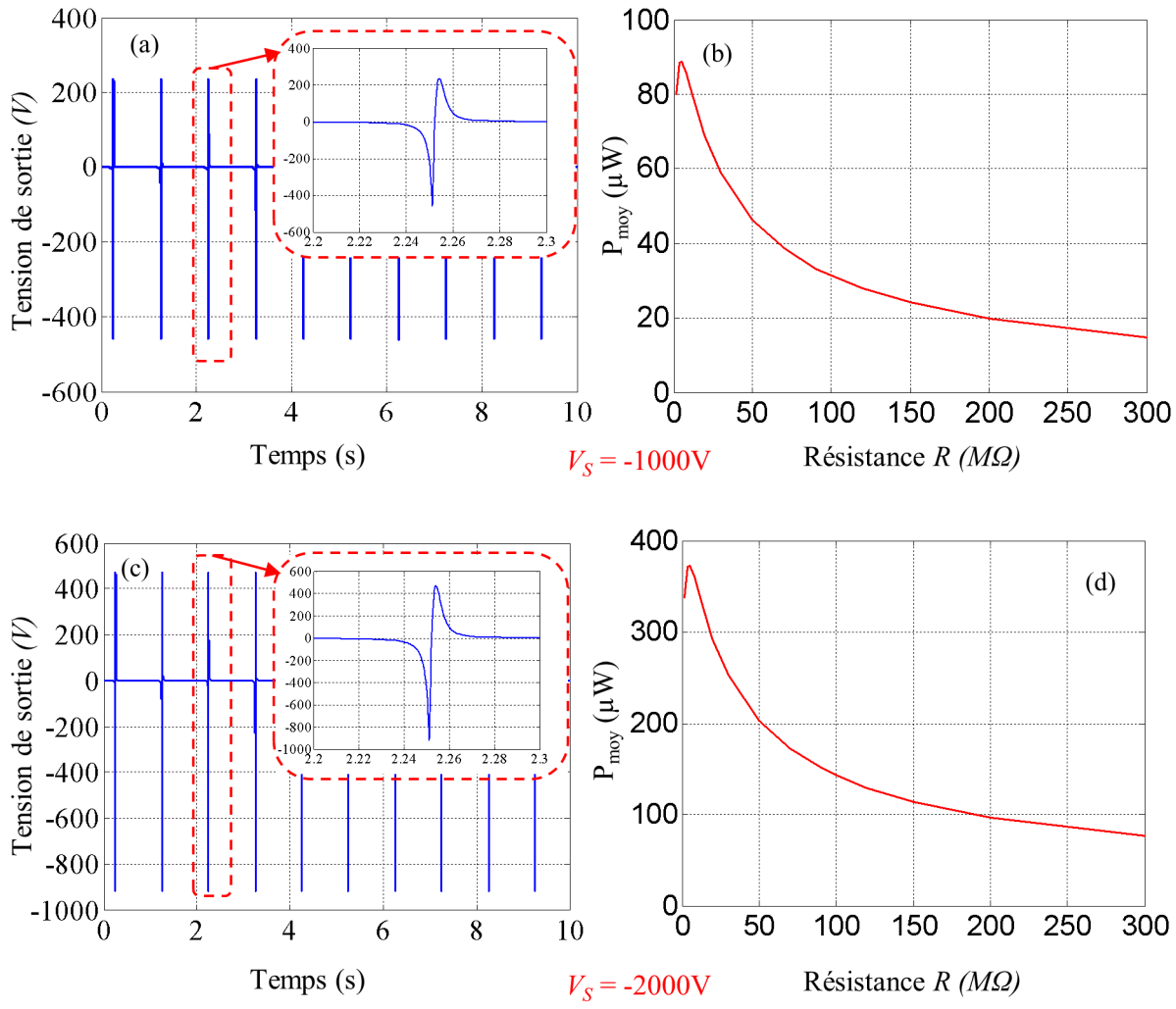


FIG. 4.3.14: Tension de sortie V (a, c) et puissance de sortie moyenne P_{moy} (b, d) pour un potentiel d'électret $V_S = -1000V$ (a, b) et $V_S = -2000V$ (c, d).

Nous avons présenté la conception, le fonctionnement et la modélisation de structures hybrides en mode électret. La conversion d'énergie mécanique - électrique est assurée par le réarrangement de charges quand la structure se déforme sous l'action d'une contrainte mécanique. Avec les mêmes paramètres géométriques que le mode diélectrique, ce mode de fonctionnement présente une densité d'énergie théorique récupérable de $1,43mJ.g^{-1}$ *et* $6,04mJ.g^{-1}$ *si le potentiel de l'électret* $V_S = -1000V$ *et* $V_S = -2000V$ *respectivement.*

4.3.3 Comparaison des structures hybrides

L'avantage principal des structures hybrides combinant un élastomère diélectrique et un électret est l'absence d'une source de polarisation externe. Le DEG devient entièrement

autonome et peut récupérer efficacement l'énergie mécanique dès le premier cycle. Nous comparons maintenant nos structures hybrides à un générateur classique à base d'élastomère diélectrique (tableau 4.3.3). Toutes les structures fonctionnent aux basses fréquences ($1Hz$ ou $2Hz$) et sont bien adaptées pour des applications embarquées. Elles peuvent récupérer suffisamment d'énergie (environ $100\mu W$) pour alimenter des capteurs basse consommation.

En théorie, un générateur classique à base de silicone Polypower de Danfoss peut récupérer jusqu'à $30mJ.g^{-1}$ (voir chapitre 3) pour un mode de déformation « pure-shear » sous une déformation relative de 50% ($\lambda = 1,5$) ce qui est bien supérieur à l'énergie théorique obtenue avec nos structures hybrides. Pour les structures hybrides, une densité d'énergie maximale de quelques $mJ.g^{-1}$ est prévue, que ce soit en mode diélectrique ou en mode électret. L'utilisation du champ électrique induit par un électret à la place d'un champ électrique externe (source haute-tension) peut expliquer cette différence importante au niveau de la densité d'énergie récupérable. En effet, en mode électret, une densité d'énergie théorique de $1,43mJ.g^{-1}$ est estimée avec un potentiel d'électret de $-1000V$ et jusqu'à $6,04mJ.g^{-1}$, avec un potentiel d'électret de $-2000V$. Toutefois, atteindre ce gap d'air nul sans claquage électrique semble délicat voir impossible. La structure hybride en mode électret peut utiliser seulement quatre diodes et aucune alimentation externe, conduisant éventuellement à une intégration facile pour des applications portables. En mode diélectrique, la densité d'énergie spécifique peut atteindre $1,8mJ.g^{-1}$ ou $7mJ.g^{-1}$ correspondant à un potentiel de l'électret de $-1000V$ ou $-2000V$ respectivement, pour une structure dite 3D. Toutefois, il faut noter que cette densité d'énergie ne peut être atteinte que si le gap d'air entre l'élastomère diélectrique et l'électret à l'état de déformation maximale est suffisamment petit : $10\mu m$ ce qui est délicat à obtenir sans claquage dans l'air. Dans le mode dit de bord, une structure 2D ne peut récupérer que des dizaines de $\mu J.g^{-1}$ en raison du faible champ polarisant le matériau. Néanmoins, cette structure est intéressante en termes d'intégration et peut, avec une structuration appropriée, récupérer assez d'énergie pour alimenter un capteur basse consommation.

Finalement, si la taille du générateur n'est pas un critère principal, les structures 3D seront choisies en raison de leur densité énergétique plus élevée. Par exemple, dans le talon d'une chaussure, à l'arrière du genou, une structure 3D est adéquate. Toutefois, lorsque le dispositif doit être intégré dans des applications de type textiles intelligents, une structure hybride 2D sera naturellement choisie.

4.4 Prototype

4.4.1 Choix et conception

Parmi toutes les configurations hybrides, le mode diélectrique pour des structures 3D présente la meilleure densité d'énergie récupérable. Toutefois, ces valeurs de densité d'énergie

TAB. 4.3.3: Comparaison des différents générateurs électrostatiques et hybrides. Les structures hybrides sont composées de trois motifs, chacun possédant une surface active de $5cm^2$.

	Unité	Générateurs hybrides						DEG classique	
		Mode diélectrique				Mode électret			
		Direct		Effet de bords					
		3D		2D					
Surface active	cm^2	15	15	15	15	15	15	15	
Fréquence	Hz	1	1	1	1			1	
V_S	V	-1000	-2000	-1000	-2000	-1000	-2000	170	1000
Gap d'air	µm	10	10	_	_	0	0	_	_
w_{rec}	$mJ.g^{-1}$	1,8	7		0,073	1,43	6,04	1,54	37

sont atteignables seulement si le gap d'air entre le polymère diélectrique et l'électret est suffisamment petit. Plus le gap d'air résiduel augmente et plus la densité d'énergie récupérée chute drastiquement pour cette configuration. A l'opposé, le mode diélectrique pour des structures 2D possède une densité d'énergie très faible.

Pour s'adapter à une réalisation manuelle facile, nous avons décidé de concevoir une structure hybride en mode électret pour valider notre étude théorique. Cette structure développe une densité d'énergie récupérée proche de celle obtenue avec le mode diélectrique en 3D.

4.4.2 Optimisation de la forme des serpentins

Nous avons présenté la conception et la modélisation des DEG en mode électret dans la section 4.3.2. Nous avons supposé qu'il n'existe pas de gap d'air entre l'élastomère diélectrique et l'électret sous déformation maximale. Si c'est toujours le cas, la forme du serpentin n'a pas d'influence sur la puissance de sortie de la structure.

Pourtant, à cause de la réalisation manuelle de nos structures il existe toujours un petit gap d'air entre l'électret et l'élastomère diélectrique même à l'état de déformation maximale. Ce gap d'air entraîne automatiquement une diminution de la capacité équivalente et en conséquence, l'énergie récupérable chute également.

Afin de mieux concevoir le DEG en mode électret, nous supposons qu'il existe un gap résiduel d'air $g = 500$µm à l'état de déformation maximale. Cette condition est alors incorporée dans nos modèles afin d'évaluer l'influence de la forme des serpentins et des paramètres géométriques de notre structure sur la puissance de sortie.

Nous considérons ici quatre formes de base : une rectangulaire et trois triangulaires. Les dimensions de chaque forme sont présentées sur la figure 4.4.1. La déformation maximale est fixée $\lambda_{max} = 1,5$.

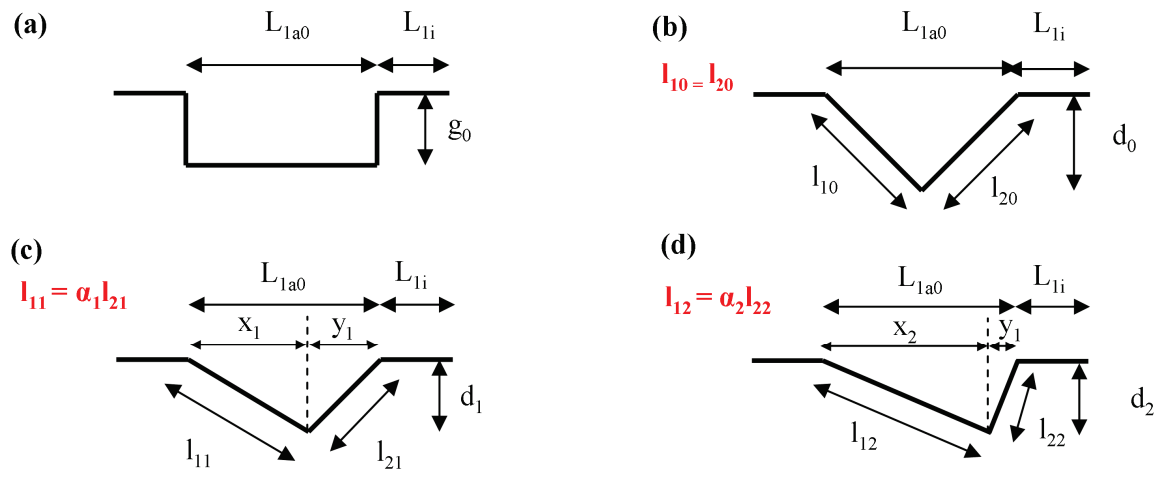


FIG. 4.4.1: Quatre formes de base du serpentin utilisées pour les simulations.

Les paramètres géométriques de ces quatre formes sont résumés dans le tableau 4.4.1.

TAB. 4.4.1: Paramètres géométriques utilisés dans la simulation pour évaluer l'influence de la forme du serpentin.

Paramètres	Unité	Valeur
L_{1a0}	cm	2
L_{1i}	cm	$0,5$
g_0	cm	$0,5$
l_{10}	cm	$1,5$
l_{11}	cm	$1,8$
l_{12}	cm	2
d_i	cm	$\sqrt{l_{1i}^2 - L_{1a0}^2/4}$
α_1		$1,5$
α_2		2
λ_{max}		$1,5$

La figure 4.4.2 présente par exemple, le gap d'air en fonction du coefficient d'extension λ pour la forme rectangulaire. Ce gap d'air à $\lambda = 1,5$ vaut 500µm, ce qui correspond au gap d'air résiduel que nous nous sommes fixé.

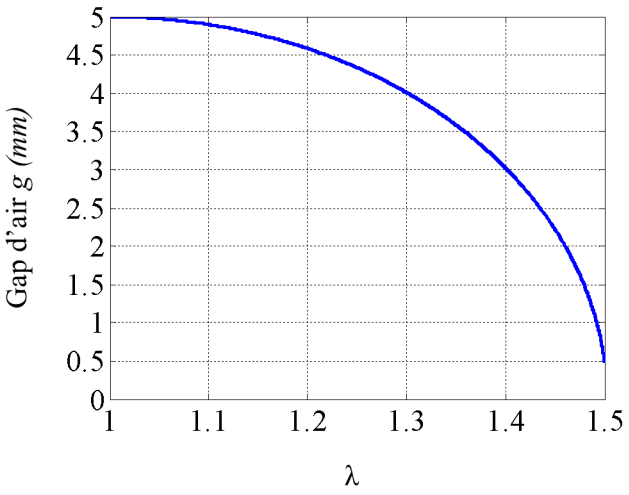


FIG. 4.4.2: Gap d'air g entre l'élastomère diélectrique et l'électret pour la forme rectangulaire. A $\lambda = 1,5$, on a $g = 500\mu m$.

La capacité équivalente et la puissance de sortie de notre structure souple basée sur les quatre formes géométriques sont donc calculées grâce au modèle mis en œuvre dans Matlab/Simulink avec les paramètres présentés dans les tableaux 4.3.1 et 4.4.1.

Le coefficient d'extension maximal λ_{max} étant toujours égale à $1,5$, les paramètres géométriques du serpentin doivent respecter cette condition. On en déduit alors :

$$l_{1i} = L_{1a0}\lambda_{max}\frac{\alpha_i}{\alpha_i + 1} \tag{4.4.1}$$

$$l_{2i} = L_{1a0}\lambda_{max}\frac{1}{\alpha_i + 1} \tag{4.4.2}$$

avec $i = 1$ ou 2 (voir figure 4.4.1)

Comme dans la section 4.3.2.2.2, la capacité équivalente liée au gap d'air pour les différentes formes (a, b, c, d - figure 4.4.1) s'écrit :

$$C_{air1-(a)}(\lambda) = \frac{\varepsilon_0 L_{1a0} L_{20}}{\sqrt{g_0^2 - \left(\frac{L_{1a0}(\lambda-1)}{2}\right)^2}} + \left[\frac{\varepsilon_0 L_{1a0} L_{20}(\lambda-1)}{\sqrt{g_0^2 - \left(\frac{L_{1a0}(\lambda-1)}{2}\right)^2}} ln(l)\right]_{l_{10}}^{\frac{L_{1a0}(\lambda-1)}{2}} \tag{4.4.3}$$

$$C_{air1-(b)}(\lambda) = \left[\frac{\varepsilon_0 L_{1a0} L_{20}\lambda}{\sqrt{g_0^2 - \left(\frac{L_{1a0}(\lambda-1)}{2}\right)^2}} ln(l)\right]_{l_{10}}^{\frac{L_{1a0}\lambda}{2}} \tag{4.4.4}$$

$$C_{air1-(c)}(\lambda) = \left[\frac{\varepsilon_0 L_{1a0} L_{20} x_1}{\sqrt{l_{11}^2 - x_1^2}} ln(x_1)\right]_{l_{10}}^{x_1} + \left[\frac{\varepsilon_0 L_{1a0} L_{20} y_1}{\sqrt{l_{21}^2 - y_1^2}} ln(y_1)\right]_{l_{10}}^{y_1} \tag{4.4.5}$$

$$C_{air1-(d)}(\lambda) = \left[\frac{\varepsilon_0 L_{1a0} L_{20} x_2}{\sqrt{l_{12}^2 - x_2^2}} ln(x_2)\right]_{l_{10}}^{x_2} + \left[\frac{\varepsilon_0 L_{1a0} L_{20} y_2}{\sqrt{l_{22}^2 - y_2^2}} ln(y_2)\right]_{l_{10}}^{y_2} \tag{4.4.6}$$

Les paramètre x_i et y_i avec $i = 1$ ou 2 sont déterminés par :

$$x_i = \frac{L_{1a0}}{2}\left(\lambda + \frac{\lambda_{max}^2}{\lambda}\frac{\alpha_i - 1}{\alpha_i + 1}\right) \tag{4.4.7}$$

$$y_i = \frac{L_{1a0}}{2}\left(\lambda - \frac{\lambda_{max}^2}{\lambda}\frac{\alpha_i - 1}{\alpha_i + 1}\right) \tag{4.4.8}$$

La valeur de la capacité équivalente diffère fortement en fonction de la forme du serpentin (figure 4.4.3). Les serpentins triangulaires assurent une plus grande variation de la capacité équivalente, par rapport à la forme rectangulaire. En conséquence, la puissance de sortie pour les cas de formes triangulaires est beaucoup plus grande que celle obtenue avec la forme rectangulaire : environ $25,5\mu W$ pour la forme triangulaire par rapport à $1,5\mu$W pour la forme rectangulaire (figure 4.4.3).

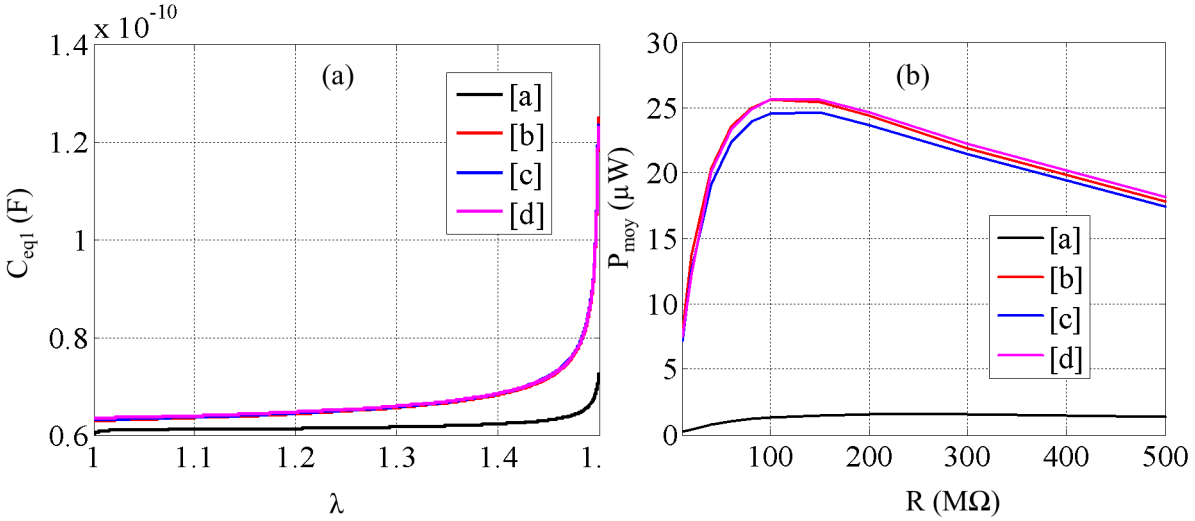
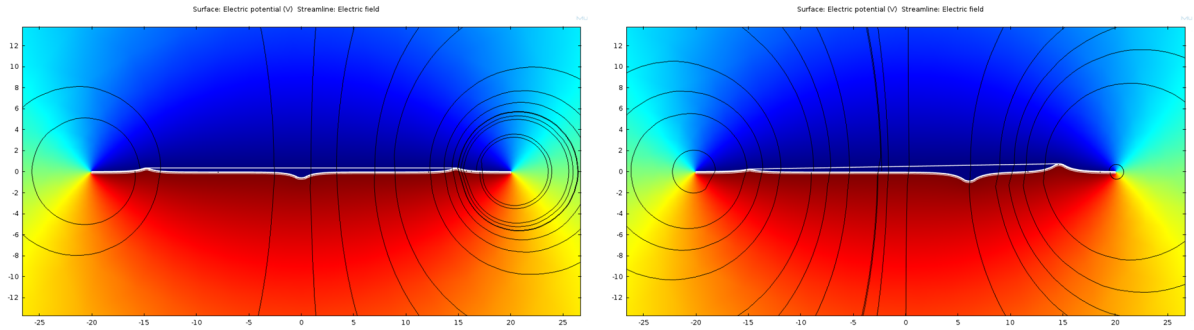


FIG. 4.4.3: Capacité équivalente d'un serpentin (a) et puissance de sortie moyenne (b) pour les différentes formes de serpentins .

Nous considérons ainsi que la forme triangulaire pour le serpentin est la meilleure solution pour concevoir une structure hybride. Entre les trois formes triangulaires, la puissance de sortie varie peu avec un léger gain pour les formes asymétriques. Un serpentin triangulaire

centré sera cependant préféré pour nos générateurs hybrides de par sa réalisation facile comparé au cas asymétrique.

Afin d'illustrer l'existence du gap d'air de la structure à l'état de déformation maximale et de le quantifier, Porter [Porter 13] a simulé une structure hybride couplant l'élastomère diélectrique, l'électret et le support en polycarbonate sous Comsol ave des dimensions centimétriques issues de nos calculs. Il a montré que le gap d'air entre l'électret et l'élastomère diélectrique est toujours présent et minimal pour les configurations triangulaires (figure 4.4.4). Ces simulations valident nos calculs.



(a) Triangle symétrique (b) Triangle asymétrique

FIG. 4.4.4: Forme finale de la structure : triangle symétrique (a) et triangle asymétrique (b). Master réalisé au laboratoire LaMCoS par T. Porter [Porter 13].

La forme du serpentin influence la puissance de sortie de notre structure. La forme triangulaire assure une meilleure conversion de l'énergie car elle assure une meilleure variation de la capacité équivalente.

4.4.3 Optimisation du nombre de serpentins pour une dimension prédéfinie de la structure

Nous venons d'étudier l'influence de la forme du serpentin sur la puissance sortie de la structure. Nous analysons maintenant l'influence des paramètres géométriques des serpentins sur les performances de ce type de système.

Les générateurs hybrides sont intéressants notamment pour les applications portables comme la récupération d'énergie à partir des mouvements du corps humain. On comprend

alors que les dimensions de ces dispositifs soient de taille raisonable. Dans ce travail de thèse, nous souhaitons positionner notre structure hybride dans une même configuration que le DEG classique proposé par [Jean-Mistral 08b], et nous voulons démontrer que notre structure fonctionne sans source externe. Le générateur est placé derrière le genou attaché à un genouillère (pour un sportif par exemple).

Nous considérons donc un encombrement en surface de $10cm$ x $2,5cm$. La longueur de la partie inactive est fixée à $0,5cm$ et la longueur minimale de la partie active est de $0,5cm$. Afin d'évaluer l'influence de la longueur de la partie active L_{1a0}, cette dernière varie de $0,5cm$ à $9cm$. Avec le changement de longueur de la partie active, le nombre de motifs N de la structure change en conséquence. Nous introduisons un nouveau facteur γ appelé facteur de qualité, qui est défini par l'équation suivante :

$$\gamma = \frac{P_{moy-max}}{V_{structure}} \tag{4.4.9}$$

Plus ce facteur est grand, et meilleur est le compromis entre puissance de sortie ($P_{moy-max}$) et volume total de la structure ($V_{structure}$). Le volume total de la structure est calculé par :

$$V_{structure} = N L_{1a0} L_{20} \sqrt{l_{10}^2 - \frac{L_{1a0}^2}{4}} \tag{4.4.10}$$

Le nombre de serpentins, la surface active, le volume actif, le volume total et les résultats pour les différents cas sont récapitulés dans le tableau 4.4.2 et sur la figure 4.4.5.

TAB. 4.4.2: Optimisation du nombre de serpentins.

$L_{1a0}(cm)$	N	$S_a(cm^2)$	$V_{active}(cm^3)$	$V_{structure}(cm^3)$	$P_{moy-max}$ (µW)	w_{rec} ($\mu J.g^{-1}$)	γ ($\mu J.cm^{-3}$))
0,5	6	7,5	0,03	2,10	3,63	121,00	1,73
1	5	12,5	0,05	6,99	8,89	177,80	1,27
1,5	4	15	0,06	12,58	14,90	248,33	1,18
2	3	15	0,06	16,77	25,75	429,17	1,54
2,5	2	12,5	0,05	17,47	24,70	494,00	1,41
3	2	15	0,06	25,16	33,23	553,83	1,32
4	2	20	0,08	44,72	54,00	675,00	1,21
9	1	22,5	0,09	113,20	94,36	1048,44	0,83

Comme observé sur la figure 4.4.5.a, plus la longueur de la partie active L_{1a0} augmente et plus l'énergie récupérable par la structure augmente. Par exemple, si $L_{1a0} = 9cm$, une densité d'énergie de $1040\mu J.g^{-1}$ peut être obtenue pour un motif. Tandis que pour le cas $L_{1a0} = 0,5cm$, soit 6 motifs, une densité d'énergie de $120\mu J.g^{-1}$ est estimée pour notre structure sur une charge électrique optimale. Toutefois, si la surface active est trop importante, la structure devient encombrante (épaisseur importante) et n'est pas adaptée aux applications portables et encore moins intégrable sur le corps humain.

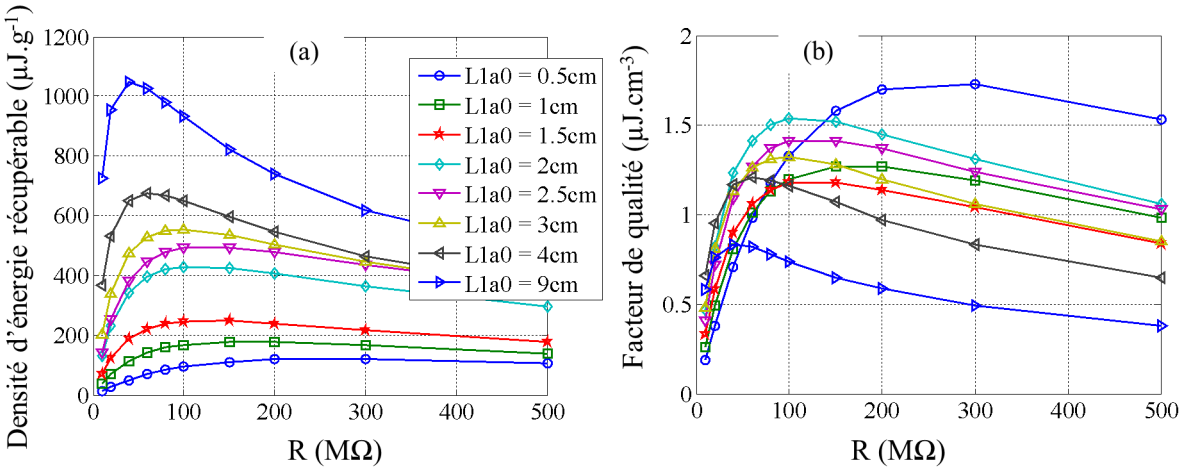


FIG. 4.4.5: Densité d'énergie récupérable (a) et facteur de qualité (b) d'un DEG en mode électret en fonction de la charge électrique R pour différentes longueurs de la partie active.

En ce qui concerne cette condition, un compromis doit être trouvé entre l'énergie récupérable maximale et le volume total de la structure (meilleur facteur de qualité).

Nous avons donc choisi de développer une structure hybride avec une longueur active $L_{1a0} = 2cm$. Cette structure assure une densité d'énergie récupérable relativement élevée $(429,17\mu J.g^{-1})$ et un facteur de qualité élevé $(1,5\mu J.cm^{-3})$.

Plus la longueur de la partie active est importante, et plus l'énergie récupérable et la densité d'énergie récupérable sont importantes. Pourtant, si cette longueur est trop importante, la structure devient alors volumineuse. Un compromis entre puissance de sortie et dimensions totales de la structure a été trouvé pour notre structure avec une surface de 10cm x *2,5cm :* $L_{1a} = 2cm$ *et* $L_{1i} = 0,5cm$.

4.4.4 Structure finale

Après avoir optimisé la forme du serpentin et ses dimensions, nous avons réalisé un prototype de récupération d'énergie mécanique en utilisant l'élastomère diélectrique et l'électret. Nous avons pour but de développer une structure pour des applications autour du corps humain, et en raison de l'espace disponible, la surface totale de la structure est de $10cm$ x $2,5cm$. Cette structure peut être localisée derrière le genou par exemple.

En fonction des considérations géométriques, une déformation relative maximale de 50% ($\lambda = 1,5$) à $1Hz$ est possible avec une utilisation adéquate de la zone active, inactive et du support. La structure est donc composée de 3 serpentins avec une longueur active de

$2cm$ et une longueur inactive totale de $1cm$ ($0,5cm$ de chaque côté). La dimension du support (l_{10}) de $1,5cm$ assure ce niveau de déformation de 50% quand la structure est totalement étirée.

Les principaux paramètres de notre prototype sont résumés dans le tableau 4.4.3. Le potentiel de l'électret est choisi égal à $-1000V$ pour une meilleure stabilité des charges à long terme.

TAB. 4.4.3: Résumé des principaux paramètres de notre prototype DEG en mode électret.

Paramètres		Unité	Matériau	
			Silicone Polypower	Electret Teflon FEP
Épaisseur initiale		µm	$L_{30} = 40$	$L_{3e} = 50$
Déformation en mode pure-shear	$(\lambda; 1)$		$(1,5; 1)$	$(1; 1)$
Constante diélectrique	initial		$\varepsilon_r^{'} = 3,1$	$\varepsilon_{re}^{'} = 2,1$
	à $\lambda = 1,5$		$\varepsilon_r^{'} = 2,6$	—
Modèle de Gent	Y	MPa	$0,4$	—
	J_m		$16,5$	—
Prototype				
Potentiel de l'électret	V_S	V	-1000	
Pour un serpentin	L_{1a0}	cm	2	
	L_{1i}	cm	$0,5$	
	L_{20}	cm	$2,5$	
	λ_{max}		$1,5$	
	$l_{10} = l_{20}$	cm	$1,5$	
Nombre de serpentins	N		3	
Fréquence de fonctionnement	f	Hz	1	

La structure finale a été montée sur un banc de test. La contrainte mécanique est imposée sur un côté à une fréquence de $1Hz$ suivant la direction L_1 grâce à un système d'excitation mécanique réalisé par une bielle manivelle et un moteur à courant continu. Pour déterminer la puissance récupérable, la structure a été reliée à une charge électrique R, et la tension de sortie est mesurée par une sonde de tension électrostatique (Monroe Isoprobe ® électrostatique voltmètre 244). La figure 4.4.6 montre notre prototype et son banc de test.

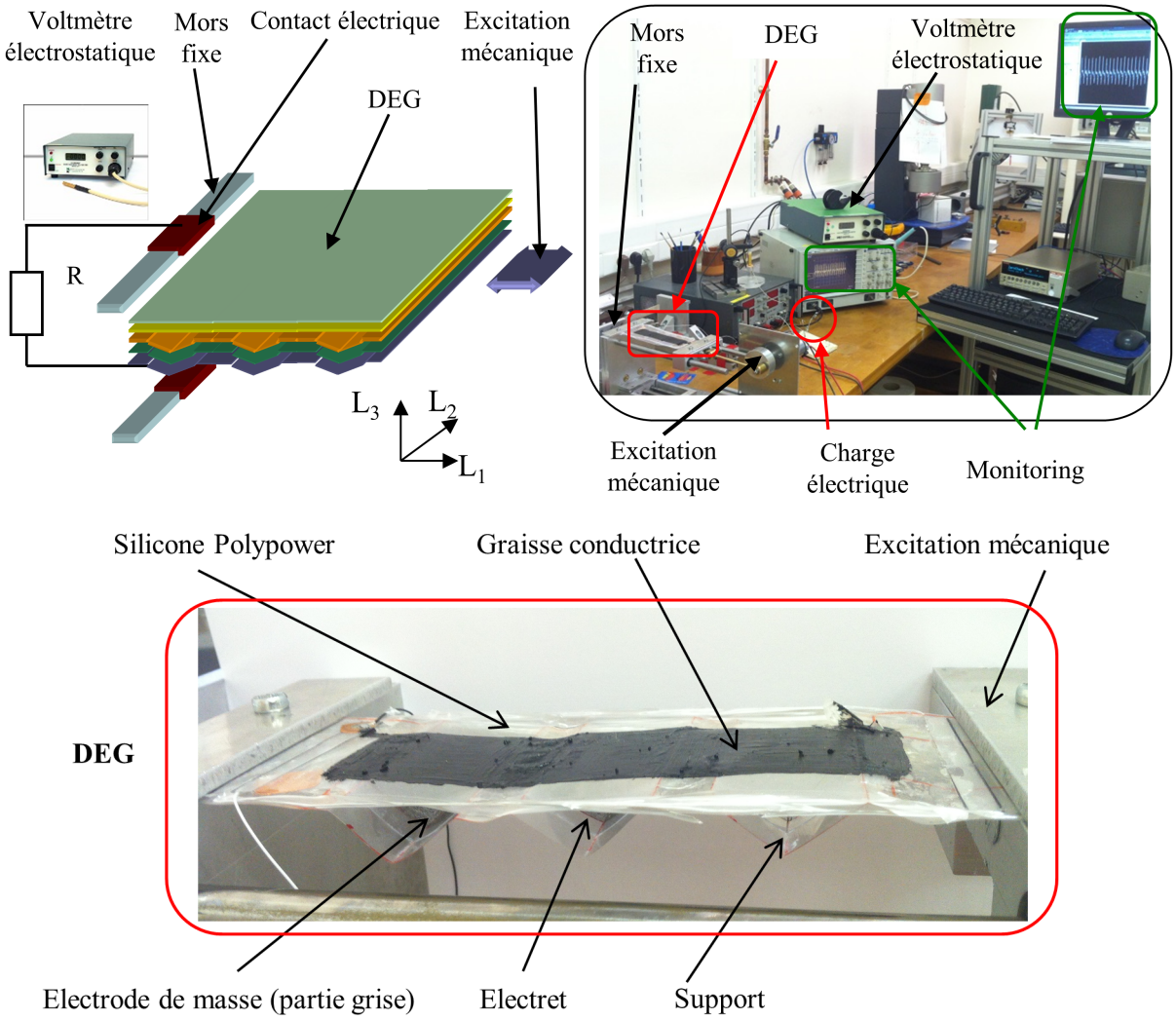


FIG. 4.4.6: Prototype du DEG en mode électret et banc de test.

Pour tous les processus de fabrication du prototype, voir annexe D.

Notre structure finale travaille en mode électret, et se compose de 3 serpentins de forme triangulaire. L'élastomère diélectrique est le silicone Polypower, l'électret est le téflon FEP chargé à $V_S = -1000V$.

4.4.5 Résultats expérimentaux

4.4.5.1 Charge résistive

La figure 4.4.7 illustre la tension de sortie de notre structure sur une charge électrique de $100M\Omega$.

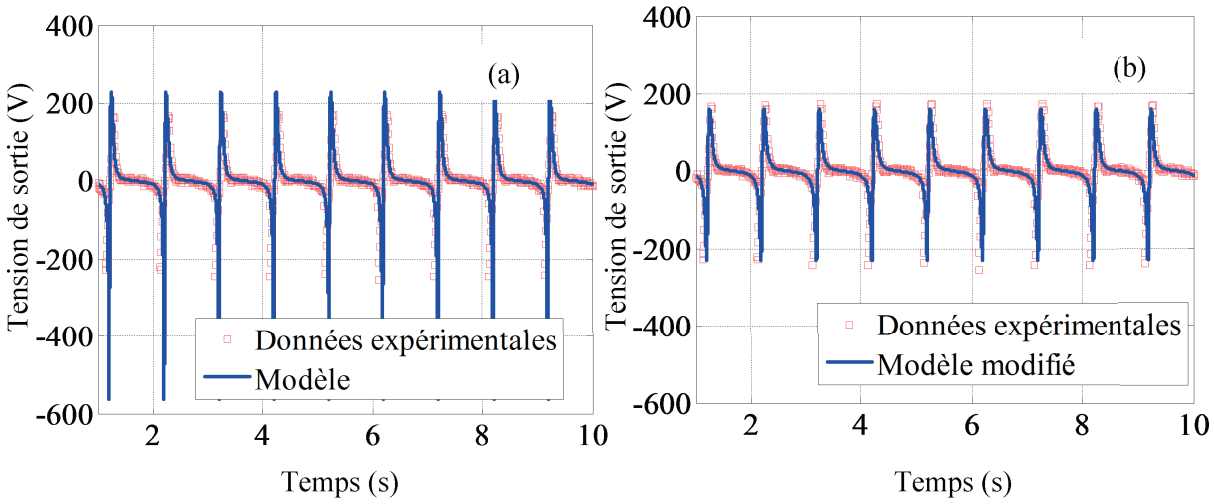


FIG. 4.4.7: Tension de sortie V sur la charge électrique $R = 100M\Omega$ de notre prototype. La tension de sortie mesurée est tracée ensemble avec le modèle idéal (a) et avec le modèle modifié (b).

Tout d'abord, la tension de sortie et l'excitation mécanique ont la même fréquence (dans ce cas c'est $1Hz$). On remarque que la structure produit une tension de sortie élevée (tension crête à crête de plusieurs centaines de volts) (figure 4.4.7), qui est l'allure typique de générateurs électrets rigides [Boisseau 11b, Boland 03].

Quand une modélisation idéale est utilisée (pas de gap d'air à l'état de déformation maximale), on observe que les courbes expérimentales et théoriques ne correspondent pas très bien : même forme, mais différentes valeurs extrêmes (figure 4.4.7.a). Ces différences sont dues au gap d'air résiduel physiquement présent à l'état de déformation maximale. En conséquence, la valeur expérimentale de la capacité maximale est beaucoup plus petite que celle estimée dans le cas théorique idéal. L'énergie récupérable est donc plus faible que prévue. Nous avons déduit de nos mesures la présence d'un gap d'air de $460\mu m$ sous déformation maximale. Cette valeur a été intégrée dans notre modèle, nommé « Modèle modifié » et la tension de sortie correspondante est tracée sur la figure 4.4.7.b. On peut noter que les données expérimentales sont très proches du modèle modifié, même pour les valeurs extrêmes à la fois positives et négatives. Le petit décalage observé lors du passage par les phases extrêmes s'explique par l'incertitude sur la capacité équivalente de la structure estimée par notre modèle analytique.

Afin de mieux valider notre modèle, nous avons mesuré la capacité équivalente de la structure grâce à un LCR mètre HP4284A. Comme observé sur la figure 4.4.8.a, la capacité équivalente est surestimée par notre modèle analytique. Comme la structure est faite à la main, les dimensions souhaitées ne peuvent pas être parfaitement respectées. Une erreur de quelques % sur les dimensions (en particulier sur le gap d'air) est à l'origine de la diminution de la valeur de la capacité équivalente conduisant ainsi à une baisse de la tension de sortie. Cependant, l'erreur relative entre les mesures et les valeurs de

cette capacité équivalente provenant du modèle modifié (environ 8%) peut être considérée comme faible au regard de la bonne estimation de la puissance de sortie (figure 4.4.8.b).

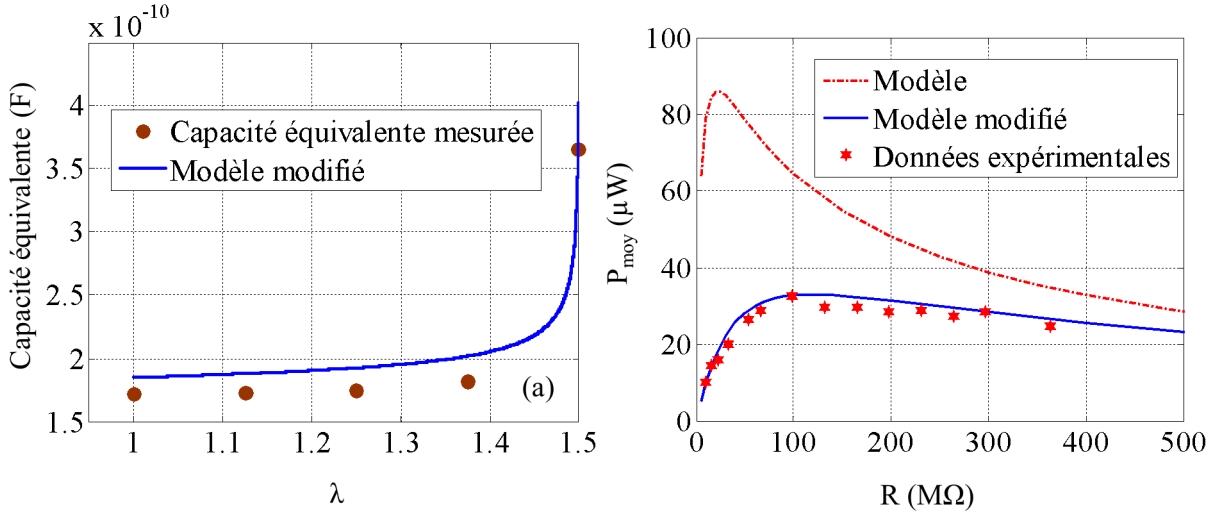


FIG. 4.4.8: Capacité équivalente de la structure : valeur estimée et valeur mesurée (a). Puissance de sortie moyenne : modèle idéal, modèle modifié et valeurs mesurées (b).

Notre modèle modifié constitue une bonne représentation de la puissance de sortie de notre prototype. Notre structure permet de récupérer $33\mu W$ sur une charge résistive de $99M\Omega$ soit une densité d'énergie de $0,55mJ.g^{-1}$. Dans le cas idéal, une puissance de $85\mu W$ est prévue (figure 4.4.8.b) soit une densité d'énergie de $1,42mJ.g^{-1}$.

Il faut noter que d'autres structures flexibles utilisant des polymères piézoélectriques et électrostrictifs ont été développées pour la récupération d'énergie par d'autres équipes de recherche. Par exemple, [Shenck 01] présentent une structure de $65cm^2$ en polymère PVDF (16 couches d'épaisseur $28\mu m$ chacune) incorporée dans des chaussures, récupérant $1,3mW$ sur une résistance électrique de $250k\Omega$ à $0,9Hz$, ce qui conduit à une densité d'énergie de $0,27mJ.g^{-1}$ (en supposant que la masse spécifique du PVDF est $1,78g.cm^{-3}$). S'agissant des polymères électrostrictifs, [Lallart 10] ont montré une densité d'énergie de l'ordre de $0,056mJ.g^{-1}$ récupérable par leur dispositif en P(VDF-TrFE-CFE)1%C ($5cm^2$ et d'épaisseur $50\mu m$) sous un champ électrique de $10MV.m^{-1}$ sous une déformation relative de $0,5\%$ à $100Hz$. Plus récemment, [Meddad 12] ont notifié une puissance de $0,3\mu W$ récupérable en utilisant du PU 1%wtC ($6,4cm^2$ et d'épaisseur $52\mu m$) sous $10V.\mu m^{-1}$ avec une déformation relative de $0,5\%$ à $3Hz$. Cela représente une densité d'énergie de $0,0082mJ.g^{-1}$ (en prenant une masse spécifique du PU 1%wtC de $1,1g.cm^{-3}$). Enfin, on peut souligner que la densité d'énergie expérimentale obtenue par notre dispositif utilisant l'élastomère diélectrique et l'électret est au moins deux fois plus importante que celle atteinte par les polymères piézoélectriques et dix fois plus importante que celle obtenue avec un polymère électrostrictif.

Nous avons conçu un prototype de DEG en mode électret, qui est tout à fait autonome. Le prototype développe les mêmes caractéristiques qu'un générateur électret classique. La puissance de sortie est une fonction de la charge et sous charge optimale, $R = 99M\Omega$, une puissance mesurée de $33\mu W$ a été obtenue par notre structure.

4.4.5.2 Chaîne de conversion d'énergie complète

Afin de compléter les tests sur notre struture en mode électret, nous l'utilisons maintenant pour charger une capacité de stockage. Pour cela, la tension alternative de sortie du DEG est redressée à l'aide d'un circuit constitué de quatre diodes ($1N3595$ - Fairchild Semiconductor). Cette tension continue alimente une capacité de stockage ($1,2nF$) (figure 4.4.9.a). Cette dernière a été caractérisée précisément à l'aide d'un appareil de mesure d'impédance (Novocontrol BDS 20) à la fréquence de $1Hz$. Une capacité $C_p = 1,27nF$ est obtenue avec une résistance associée R_p de $4,8G\Omega$.

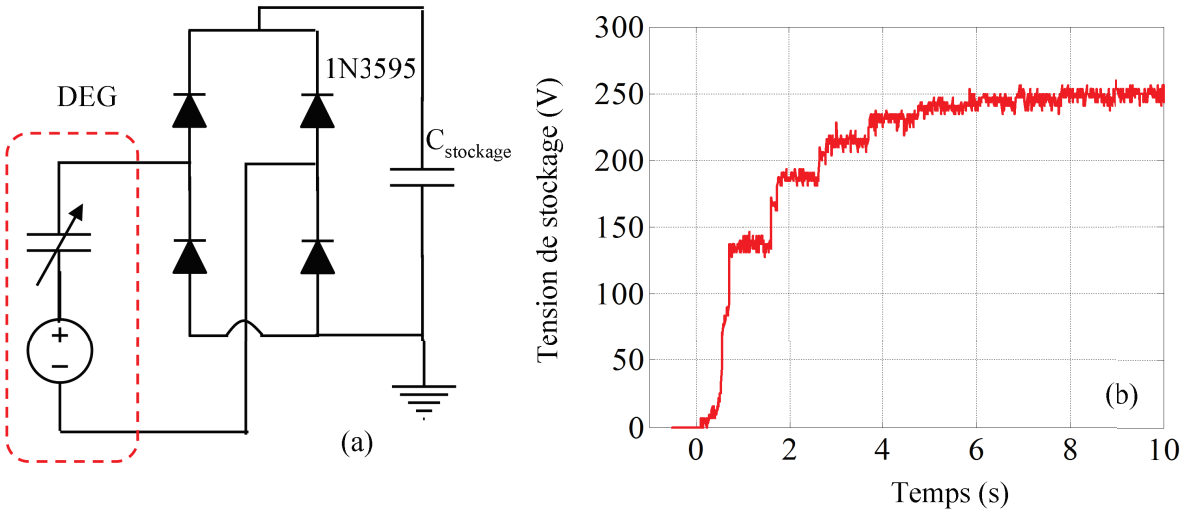


FIG. 4.4.9: Schéma d'un circuit complet de la chaîne de conversion d'énergie (a) et tension aux bornes de la capacité de stockage (b).

Sur la figure 4.4.9.b, la tension aux bornes de la capacité de stockage augmente de $0V$ à $250V$ après $5s$, ce qui équivaut à 5 cycles de fonctionnement de notre structure. Ainsi, l'énergie récupérée et stockée dans la capacité est estimée autour $39,7\mu J$, soit une énergie de $7,95\mu J$ par cycle (correspondant à une puissance de sortie de $7,95\mu W$ pour un cycle de $1Hz$). La densité d'énergie spécifique de notre dispositif est d'environ $0,013mJ.g^{-1}$.

Pour estimer plus précisément le rendement de la gestion électrique, nous avons appliqué notre modèle (équations 4.3.3 - 4.3.13, 4.4.4) pour une charge capacitive. La charge résistive R de la figure 4.3.11.b est alors remplacée par (R_p, C_p) en parallèle avec $R_p = 4,8G\Omega$, $C_p = 1,27nF$. Le courant $i(t)$ généré peut être réécrit comme [Boisseau 11a] :

$$i(t) = \frac{\partial Q_2}{\partial t} = \frac{1}{1 + \frac{C_p}{C_{eq}}} \left[\frac{V}{R_p} - Q_2 \left(\frac{1}{R_p C_{eq}} - \frac{C_p}{C_{eq}^2} \frac{\partial C_{eq}}{\partial t} \right) \right] \tag{4.4.11}$$

Sur la figure 4.4.9.b, la tension aux bornes de la capacité de stockage augmente de $0V$ à $250V$ après $5s$, ce qui équivaut à 5 cycles de fonctionnement de notre structure. Ainsi, l'énergie récupérée et stockée dans la capacité est estimée autour $39,7\mu J$, soit une énergie de $7,95\mu J$ par cycle (correspondant à une puissance de sortie de $7,95\mu W$ pour un cycle de $1Hz$). La densité d'énergie spécifique de notre dispositif est d'environ $0,013mJ.g^{-1}$.

Les équation (4.3.3 et 4.4.11) permettent de calculer une puissance de sortie de $19,6\mu W$ par cycle ($1Hz$). Par rapport à la puissance de $7,95\mu W$ obtenue à la sortie du redresseur. Le rapport entre la puissance que l'on obtient réellement sur la capacité de stockage et la puissance estimée théoriquement par l'équation 4.4.11 est de 42%.

Nous avons présenté une chaîne de conversion d'énergie complète pour notre DEG en mode électret. Un redresseur à base de diodes est utilisé pour transférer l'énergie de notre structure vers une capacité de stockage. Une puissance de $7,95\mu W$ *a été obtenue pour l'ensemble de la structure.*

4.4.6 Amélioration de notre prototype : Impact de la fréquence de fonctionnement, du potentiel de l'électret et du multi-couches

4.4.6.1 Impact de la fréquence de fonctionnement

L'augmentation de la fréquence de fonctionnement n'induira pas nécessairement une augmentation de la densité d'énergie mais sûrement une amélioration de la puissance moyenne de sortie. A titre d'exemple, le mouvement humain peut varier de $1Hz$ (la marche) à $2Hz$ (la course) et la puissance récupérable expérimentale de notre prototype à ces fréquences est représentée sur la figure 4.4.10.

Comme attendu, pour une charge électrique R donnée, la puissance moyenne de sortie est nettement supérieure à une fréquence plus élevée. Cette tendance est respectée strictement sur une large gamme de charges électriques avec, toujours, un maximum de puissance de sortie pour une charge de $99M\Omega$. Pour cette charge optimale, une puissance moyenne de $46,6\mu W$ ($2Hz$) est atteinte. Cette valeur est équivalente à une densité d'énergie de $0,39mJ.g^{-1}$ par cycle. On peut noter que, bien que la densité d'énergie diminue à mesure que la fréquence augmente, la puissance moyenne de sortie s'améliore lorsque la structure fonctionne à des fréquences élevées.

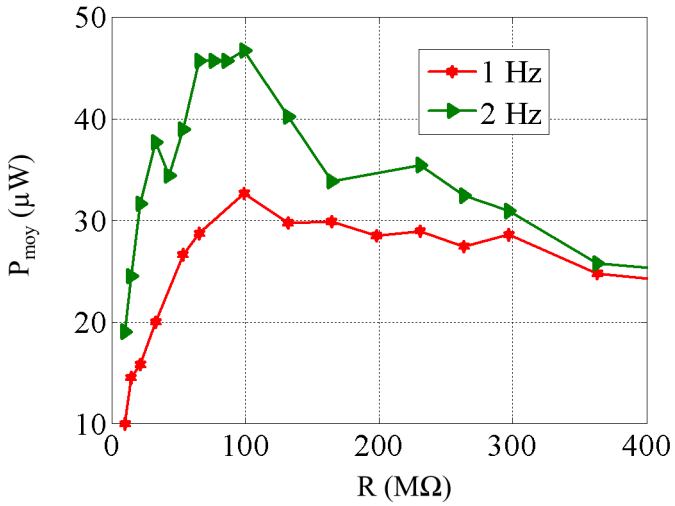


FIG. 4.4.10: Puissance de sortie moyenne de notre prototype pour une fréquence de fonctionnement de $1Hz$ et $2Hz$.

La fréquence influence naturellement la puissance de sortie de notre structure en mode électret. Plus la fréquence augmente, plus la puissance de sortie est importante. Pour notre structure, une puissance moyenne de $46,6\mu W$ *a été obtenue pour une fréquence de* $2Hz$.

4.4.6.2 Impact du potentiel de l'électret

Une autre façon d'accroître la puissance de sortie de la structure est d'augmenter le potentiel de surface de l'électret V_S. Pour étudier cette possibilité, nous avons choisi d'utiliser notre modèle modifié avec un gap d'air résiduel non nul, avec des potentiels de surface plus élevés. La puissance de sortie obtenue en fonction des potentiels de surface V_S est reportée sur la figure 4.4.11.

Nous voyons clairement l'intérêt des DEG en mode électret : plus le potentiel de l'électret V_S est important, et plus le dispositif récupère de l'énergie quelle que soit la charge électrique R (figure 4.4.11.a). La puissance de sortie peut être exprimée en fonction du carré du potentiel de l'électret V_S comme démontré par [Boland 03] (figure 4.4.11.b). Nous avons remarqué que la charge optimale $R = 100M\Omega$ est toujours valide pour tous les potentiels étudiés. Une puissance de sortie de $150\mu W$ (équivalent à $4,16mJ.g^{-1}$) est envisageable avec un potentiel d'électret V_S de $-2000V$.

Le potentiel de l'électret V_S *influence fortement la puissance de sortie du de la structure en mode électret. La dépendance est classiquement une fonction de la tension au carrée. Si le potentiel de l'électret* V_S *est de* $-1000V$*, la densité d'énergie récupérable est de* $0,55mJ.g^{-1}$ *mais si* $V_S = -2000V$*, cette densité d'énergie passe à* $4,16mJ.g^{-1}$.

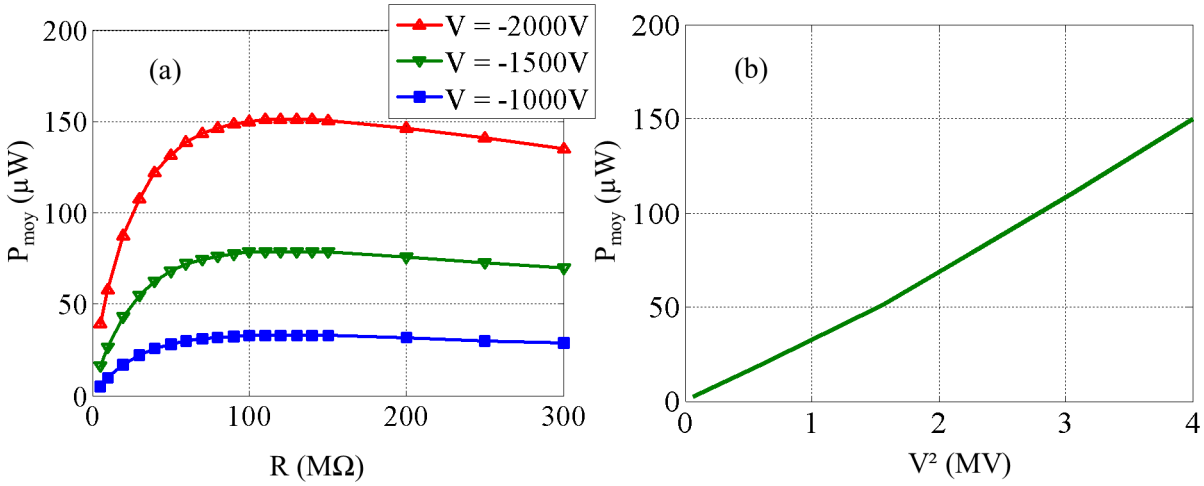


FIG. 4.4.11: Puissance de sortie moyenne de notre prototype pour différents potentiels d'électret V_S : $-1000V$, $-1500V$ et $-2000V$: Puissance de sortie en fonction de charge R pour différentes potentiels d'électret (a) et puissance de sortie en fonction du carré du potentiel d'électret (b).

4.4.6.3 Impact du multi-couches

Nous avons déterminé l'influence de la fréquence de fonctionnement et du potentiel de l'électret sur les performances de notre prototype avec une seule couche « élastomère diélectrique + électrode ». Si le nombre de couches N augmente, nous espérons obtenir une puissance de sortie plus élevée. La capacité équivalente de la structure est N fois plus grande que celle de la structure mono couche (configuration stack). La figure 4.4.12 présente la puissance de sortie et la densité d'énergie récupérable pour une structure multi-couche.

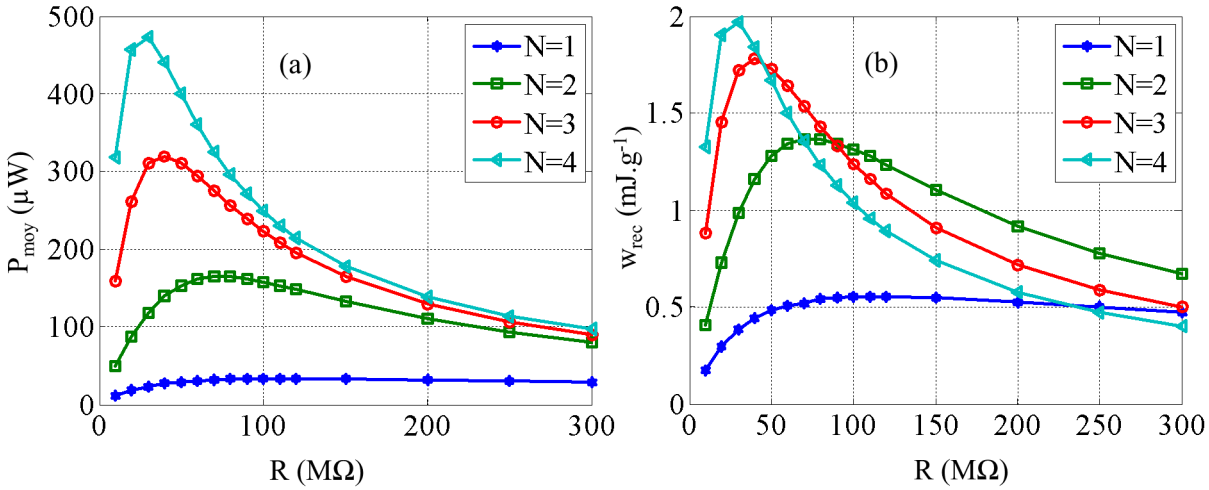


FIG. 4.4.12: Puissance de sortie moyenne (a) et densité d'énergie récupérable (b) pour une structure possédant plusieurs couches de l'élastomère diélectrique.

Comme illustré sur la figure 4.4.12, l'augmentation du nombre de couches de l'élastomère diélectrique augmente nettement la puissance de sortie et la densité d'énergie récupérable w_{rec} sous charge optimale.

On note que la charge résistive optimale pour le multi-couche chute vers des valeurs d'autant plus faibles que le nombre de couches augmente. Pour des charges résistives importantes, la puissance de sortie tend vers une valeur qui est indépendante du nombre de couches diélectriques (dès lors que N est différent de 1). Du point de vue de la densité d'énergie récupérable, la structure avec 2 couches possède la densité d'énergie la plus importante à charge électrique élevée : à charge électrique $R = 300M\Omega$, la structure deux couches possède une densité d'énergie de $0,7mJ.g^{-1}$ tandis que cette densité d'énergie vaut $0,5mJ.g^{-1}$ et $0,4mJ.g^{-1}$ pour la structure à trois et quatre couches respectivement.

Plus on augmente le nombre de couches d'élastomère diélectrique, plus la puissance et l'énergie récupérables sont élevées sous charge optimale. Pourtant si la charge est très grande, il n'existe pas de grande différence entre la structure à 2, 3 ou 4 couches diélectriques. Il nous semble que la structure à 2 couches est une solution optimale.

4.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons proposé une solution innovante pour remplacer la source de polarisation nécessaire aux DEGs pour réaliser leurs cycles énergétiques. La solution est de combiner l'élastomère diélectrique avec un matériau réservoir de charges électriques communément appelé « électret ». Comme les aimants permanents sont utilisés pour les générateurs électromagnétiques, les électrets sont potentiellement utilisables pour les générateurs électrostatiques.

Nous avons proposé différents couplages entre ces deux matériaux (l'élastomère diélectrique et l'électret) tels que le mode diélectrique et le mode électret. Le mode diélectrique fonctionne sur le principe de polarisation du matériau diélectrique par le champ électrique développé par l'électret. A l'opposé, le mode électret fonctionne sur le principe du réarrangement des charges quand la capacité de la structure change. Tous ces modes de couplage permettent de faire évoluer les DEGs, qui nécessitaient une source de polarisation externe, vers des générateurs hybrides souples et autonomes. On comprend aisément l'intérêt de ce nouveau type de dispositifs pour le développement d'applications et nos résultats de simulation prometteurs en terme de performance pour ces nouveaux DEGs nous ont amené à réaliser un prototype .

Ce prototype a consisté en un générateur hybride en mode électret afin de valider notre étude théorique des couplages entre ces deux matériaux. Nous avons montré que, pour un cycle à $1Hz$, la puissance de sortie moyenne est théoriquement de $85\mu W$ sur une

charge optimale de $20M\Omega$ et expérimentalement de $33\mu W$ sur sur une charge de $99M\Omega$. La densité d'énergie produite mesurée est de $0,55mJ.g^{-1}$ et peut atteindre $1,42mJ.g^{-1}$ correspondant au cas idéal. Nous notons également que la fréquence de fonctionnement, le potentiel de l'électret et le nombre de couche influence profondément les performances globales de la structure.

Bien que l'énergie récupérable avec ces solutions hybrides soit plus petite que celle obtenue avec des générateurs classiques à base de polymère diélectrique (qui utilisent une source de polarisation externe), ce couplage est très prometteur pour développer des générateurs souples, autonomes, légers et modulables. Ces générateurs hybrides ouvrent ainsi une nouvelle voie pour les applications portables.

Points clés

Positionnement

- ❏ État de l'art des structures de gestion d'énergie : problème de la nécessité d'une source de polarisation haute tension.
- ❏ Nécessité de structures intégrables et/ou portables.

Contributions

- ❏ Étude de la stabilité du polymère téflon utilisé comme électret.
- ❏ Proposition de structures innovantes s'affranchissant d'un générateur externe haute tension.
- ❏ Étude, modélisation et comparaison de divers modes de couplage entre un élastomère diélectrique et un électret. Démonstration de la faisabilité d'un tel dispositif.
- ❏ Conception et réalisation d'un générateur hybride souple autonome.

Conclusion et perspectives

Rappel des objectifs

Cette thèse a cherché à répondre à trois problématiques principales :

1. La caractérisation fine du comportement mécanique et diélectrique d'élastomères diélectriques dans une utilisation « générateur souple (DEG : Dielectric Elastomer Generator) » et la mise en place de modèles fiables afin d'évaluer les performances de ces DEGs en terme de puissance et densité d'énergie récupérables.

2. Suggérer des pistes pour choisir/concevoir/développer de nouveaux matériaux suivant les types d'applications envisagés pour les DEGs.

3. Proposer des solutions pertinentes dans le but de remplacer les sources de polarisation des DEGs, notamment pour les applications portables.

Bilan des travaux effectués

Dans cette thèse, nous avons présenté les différentes classes de polymères électroactifs. Un intérêt particulier s'est porté sur les élastomères diélectriques. En effet, un état de l'art complet a souligné l'engouement actuel pour les générateurs à base d'élastomères diélectriques fonctionnant aux fréquences ambiantes ($f < 100Hz$). Du fait de leur souplesse, de leur légèreté, de leur faible coût et de leur facilité à se modeler, ils apparaissent comme un bon choix pour le développement de générateurs quasi-statiques récupérant l'énergie mécanique de déformation pour la transformer en électricité. Les nombreuses applications à développer ou en développement concernent par exemple des générateurs souples incorporés sur le corps humain ou les vêtements ou bien encore des systèmes d'envergure immergés dans l'océan pour la réalisation de fermes marines électriques.

Nous avons présenté le principe de fonctionnement des DEGs mais aussi les modèles thermodynamiques indispensables pour une évaluation des performances de ces générateurs. Nous avons caractérisé en profondeur le comportement mécanique et diélectrique du polyacrylate VHB et du silicone Polypower sur une large gamme de fréquence, de température et pour différents types (biaxial, pure-shear) et niveaux (seuils d'étirement) de déformation. Ces matériaux sont des élastomères qui développent un comportement

hyperélastique. Toutefois, ils montrent également un comportement viscoélastique ce qui se traduit par des pertes mécaniques au sein du matériau. En ce qui concerne les propriétés diélectriques, nous avons mis en évidence l'influence de la température, le rôle joué par la nature des électrodes accolées à l'élastomère et enfin l'impact d'une précontrainte sur la constante diélectrique et la rigidité diélectrique du VHB et du Polypower. A partir de ces résultats expérimentaux, nous avons pu déduire des lois analytiques décrivant le comportement mécanique et diélectrique du VHB et du Polypower.

Ces lois analytiques ont ensuite été intégrées dans nos modèles thermodynamiques afin d'évaluer les performances réelles des générateurs à base de polyacrylate VHB et à base de silicone Polypower. Nous avons ainsi démontré l'influence de la variation de différents paramètres tels que la pré-déformation, le seuil de déformation, la température, ... sur les performances des DEGs. Le VHB développe ainsi une densité d'énergie récupérable plus importante que le Polypower mais il convertit l'énergie moins efficacement que ce dernier. Plus concrètement, une densité d'énergie spécifique récupérable de $3,2 J.g^{-1}$a été obtenue pour le VHB et un rendement du matériau η_{mat} pouvant atteindre plus de 90% pour le silicone est possible, montrant les bonnes performances de ces deux matériaux.

Un autre aspect présenté dans cette thèse a concerné la relation entre la valeur de la constante diélectrique et la performance attendue du DEG. Nous avons illustré cette relation à partir de l'élastomère silicone et en nous appuyant sur des résultats plus globaux de la littérature sur les composites siliconés incorporant des particules conductrices ou isolantes ou encore des greffes de dipôles. Les lois analytiques que nous avons déduites pour ces différents composites et leur incorporation dans nos modèles thermodynamiques auront permis de mettre en correspondance le meilleur composite avec l'application souhaitée du DEG. Par exemple, si l'énergie de sortie doit être maximale, le mélange de particules isolantes dans une matrice silicone semble constituer la solution pour développer des applications à grande échelle comme la récupération d'énergie des vagues ou du vent. Si le rendement de conversion d'énergie est le paramètre clé, le greffage de dipôles dans la matrice silicone est alors plus adéquate pour des applications dites à petite échelle comme la récupération d'énergie des mouvements du corps humain.

Dans la dernière partie de ce travail de thèse, nous nous sommes intéressés à la gestion électrique de l'alimentation de l'élastomère diélectrique pour son fonctionnement en DEG et nous avons proposé une solution innovante pour remplacer la source de polarisation haute-tension nécessaire à la réalisation des différents cycles énergétiques. La solution proposée a consisté à coupler l'élastomère diélectrique à un électret qui est un matériau présentant l'intérêt de conserver des charges électriques sur des durées pouvant dépasser plusieurs années. Nous avons démontré par modélisation et expérimentalement que le champ électrique disponible grâce à l'électret permettait de remplacer le générateur haute-tension pour faire fonctionner les DEGs. Différents modes de couplage entre ces deux matériaux ont été évalués par modélisation comme le mode diélectrique ou encore le mode électret. Le mode diélectrique fonctionne sur le principe de polarisation du matériau diélectrique par le champ électrique développé par l'électret. A l'opposé, le mode électret

fonctionne sur le principe de réarrangement des charges quand la capacité de la structure change. Tous ces modes de couplage amènent ainsi à une évolution des DEGs vers des générateurs hybrides souples et autonomes. Même si d'autres verrous restent à ouvrir, ce résultat est particulièrement important et prometteur pour l'extension de ces dispositifs dans des applications de la vie quotidienne.

Pour valider ce résultat important, nous avons conçu un prototype de générateur hybride en mode électret. Pour un cycle à $1Hz$, la puissance de sortie moyenne théorique, calculée à partir de nos modèles appliqués au prototype conçu, est de 85µW sur une charge optimale de $20M\Omega$. Expérimentalement, nous avons obtenu une puissance moyenne de 33µW sur sur une charge de $99M\Omega$. La densité d'énergie produite mesurée est de $0,55mJ.g^{-1}$ et peut atteindre $1,42mJ.g^{-1}$ correspondant au cas idéal. Il est important de noter qu'à travers des simulations, nous avons montré que la fréquence de fonctionnement, le potentiel de l'électret et le nombre de couches d'élastomère diélectrique influencent profondément les performances globales de la structure. Ainsi, il est envisageable de pouvoir réaliser des DEGs souples et autonomes pouvant délivrer plusieurs centaines de microwatts.

Finalement, bien que l'énergie récupérable avec ces solutions hybrides soit plus petite que celle obtenue avec des générateurs classiques à base d'élastomères diélectriques (qui utilisent une source de polarisation externe), ce couplage est très prometteur pour développer des générateurs souples, autonomes, légers et modulables. Ces générateurs hybrides ouvrent ainsi une nouvelle voie notamment pour les applications portables.

Apports par rapport à l'état de l'art

Ce travail de thèse a permis de contribuer au développement des DEGs grâce aux résultats suivants obtenus :

1. Les caractéristiques mécaniques et diélectriques des élastomères diélectriques les plus utilisésle VHB 4910 et le Polypower) sont très bien identifiées en fonction de différents paramètres et plus particulièrement l'étirement des élastomères. Ces résultats nous permettent d'étudier et de définir plus fiablement le fonctionnement des DEGs réalisés avec ces matériaux.
2. Les caractérisations, évoquées dans le point précédent, auront permis d'établir des lois analytiques alimentant à leur tour les modèles thermodynamiques disponibles dans la littérature. Ces modèles thermodynamiques améliorés permettent ainsi de mieux préciser les performances et les limites de fonctionnement des DEGs.
3. Nos modèles thermodynamiques, évoqués dans le point précédent,permettant à un concepteur de DEGs de sélectionner le matériau composite le plus adéquat suivant le cahier des charges au niveau du dimensionnement du générateur et des objectifs à atteindre en terme de puissance ou de densité d'énergie récupérable.
4. Des solutions innovantes d'hybridation des élastomères diélectriques avec un électret sont présentées. Ces solutions nous ont permis de réaliser un DEG complètement autonome ouvrant de vraies perspectives vers un déploiement de ces générateurs pour des applications portables.

Perspectives

Les domaines de recherche sur les élastomères diélectriques sont aujourd'hui en pleine expansion. Les perspectives que nous projetons à l'issue de ces travaux de thèse sont multiples. En voici les principales idées.

Amélioration des élastomères diélectriques/électrodes pour la récupération d'énergie

La réalisation des élastomères diélectriques nécessite la mise en place d'électrodes conductrices accolées à l'élastomère. Ces électrodes sont généralement des pâtes conductrices qui peuvent ainsi suivre aisément les déformations de l'élastomère sans rupture ou baisse de leur bonne conductivité électrique. On voit donc que ces pâtes conductrices constituent un frein pour le développement des DEGs. Deux pistes nous semblent intéressantes à développer. La première consiste à réfléchir à une solution d'encapsulation de ces électrodes afin de ne pas mettre en contact ces électrodes avec l'environnement extérieur. La seconde, plus intéressante mais aussi plus difficile, consisterait à réaliser des électrodes directement moulées dans l'élastomère.

Étude de la stabilité des charges/Amélioration des électrets

On a mis en évidence que les structures hybrides montrent de grands potentiels pour le développement de DEGs dans des applications portables, notamment pour la récupération de l'énergie cinétique des mouvements du corps humain. Le paramètre le plus important pour les structures hybrides est certainement la stabilité des charges sur l'électret. Des études approfondies sur la stabilité des charges de l'électret, notamment lorsqu'ils fonctionnent dans une structure hybride, devront être mises en place pour étudier le fonctionnement à long terme de ces structures.

Par ailleurs, nous avons utilisé le téflon FEP comme électret mais ce matériau n'est disponible que sous forme de feuille et il est ainsi difficile à modeler pour réaliser la forme souhaitée. Or, on a vu que des structures complexes 3D étaient intéressantes d'un point de vue applicatif. L'utilisation d'électrets plus conformants serait donc d'un intérêt réel. Les polymères appartenant à la famille des parylènes pourraient être des candidats intéressants en remplacement du téflon. Les potentialités des parylènes en tant qu'électret doivent donc être évaluées en profondeur.

Amélioration de la conception des structures

Nous avons réalisé une étude préliminaire sur l'optimisation de la forme des serpentins. La forme optimale qui réduit au maximum le gap d'air résiduel doit être recherchée pour les structures hybrides en mode électret.

Les structures hybrides en mode diélectrique ont été évaluées à travers des modélisations mais aucune expérience n'a été mise en place faute de temps. Il serait donc intéressant maintenant de pouvoir valider expérimentalement ce concept.

Plus généralement, il faudrait également aller plus loin dans l'application comme par exemple intégrer ces structures hybrides sur des vêtements afin d'alimenter des capteurs faible consommation.

Liste des publications

Publications

1. T Vu-Cong, C Jean-Mistral and A Sylvestre **2013** « Electrets substituting external bias voltage in dielectric elastomer generators : application to human motion » *Smart Materials and Structures*, volume **22**, page 025012 Lien internet
2. C Jean-Mistral, T Vu-Cong and A Sylvestre **2013** « On the power management and electret hybridization of dielectric elastomer generators » *Smart Materials and Structures,* volume **22**, page 104017 Lien internet
3. T Vu-Cong, C Jean-Mistral and A Sylvestre **2012** « Impact of the nature of the compliant electrodes on the dielectric constant of acrylic and silicone electroactive polymers » *Smart Materials and Structures*, volume **21**, page 105036 Lien internet
4. C Jean-Mistral, T Vu-Cong and A Sylvestre **2012** « Advances for dielectric elastomer generators : Replacement of high voltage supply by electret » *Applied Physics Letters*, volume **101**, page 162901 Lien internet
5. T Vu-Cong, C Jean-Mistral and A Sylvestre **2013** « Influence of dielectric constant enhancement on dielectric elastomer generator applications », In preparation

Communications

Internationales

1. T Vu-Cong, C Jean-Mistral and A Sylvestre **2013** « Autonomous dielectric elastomer generator using electret » *Proceeding of SPIE*, volume **8687**, page 86870H (San Diego, USA) Lien internet
2. T Vu-Cong, C Jean-Mistral and A Sylvestre **2013** « New operating limits for applications with electroactive elastomer : effect of the drift of the dielectric permittivity and the electrical breakdown » *Proceeding of SPIE*, volue **8687**, page 86871S (San Diego, USA) Lien internet
3. C Jean-Mistral, T Vu-Cong and A Sylvestre **2013** « Hybrid electret-dielectric elastomer generator » *Proceeding of EuroEAP 2013* (Dübendorf, Switzerland) Lien internet

4. C Jean-Mistral, T Vu-Cong and A Sylvestre **2013** « Effec of the pre-stretch and the temperature on the dielectric behaviour of polyacrylate film » *Proceeding of EuroEAP 2013* (Dübendorf, Switzerland) Lien internet
5. C Jean-Mistral, T Vu-Cong and A Sylvestre **2012** « Flexible autonomous scavengers : the combination of dielectric polymers and electrets » *Proceeding of SPIE*, volume **8340**, page 834029 (San Diego, USA) Lien internet
6. C Jean-Mistral, T Vu-Cong and A Sylvestre **2011** « Scavenging energy with dielectric polymers : Improvements and next challenges » *Proceeding of EuroEAP 2011* (Pisa, Italy) Lien internet

Nationales

1. T Vu-Cong, C Jean-Mistral and A Sylvestre **2013** « Générateur électrostatique souple combinant polymères électroactifs et électrets » *Proceeding of JCGE 2013* (Saint-Nazaire, France) Lien internet
2. C Jean-Mistral, T Vu-Cong and A Sylvestre **2013** « Soft generators using dielectric elastomer and electret : application to human motion » *Proceeding of JNRSE 2013* (Toulouse, France) Lien internet
3. T Vu-Cong, C Jean-Mistral and A Sylvestre **2012** « Challenges et perspectives de générateurs élaborés à partir de polymères diélectriques » *Proceeding of JNRSE 2012* (Grenoble, France) Lien internet

Annexes

Annexe A

Spectroscopie diélectrique

A.1 Principe de mesure

Le principe de mesure de la spectroscopie diélectrique est présenté sur la figure A.1.

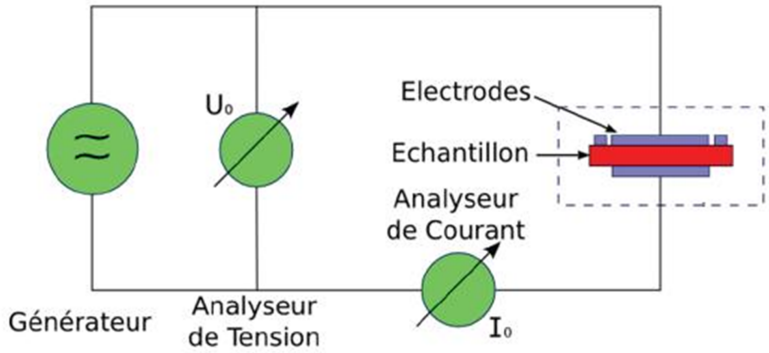


FIG. A.1: Principe de mesure de spectroscopie diélectrique .

Cette technique est largement répandue dans différents secteurs de recherche comme la caractérisation diélectrique des matériaux isolants. Elle consiste à appliquer une perturbation sinusoïdale de potentiel et de courant à l'échantillon et ensuite à mesurer la réponse de l'amplitude de l'impédance et du déphasage entre la tension et le courant en fonction de la fréquence du signal appliqué.

Une tension sinusoïdale $U(\omega) = U_0 cos\,(\omega t)$ est appliquée sur un échantillon isolant situé entre deux électrodes. Il en résulte un courant $I(\omega) = I_0 cos(\omega t - \varphi)$, déphasé de φ par rapport à $U(\omega)$. En considérant le matériau représenté par un circuit de conductance $G(\omega)$ en parallèle avec une capacité $C(\omega)$, la relation entre la tension et le courant devient :

$$I(\omega) = [G(\omega) + jC(\omega)]\, U(\omega) = Y(\omega)U(\omega) \tag{A.1.1}$$

avec $Y(\omega)$: impédance de l'échantillon.

On définit la capacité complexe du matériau par :

$$C^*(\omega) = C^{'}(\omega) - jC^{"}(\omega) \tag{A.1.2}$$

où la partie réelle correspond à la capacité ordinaire du matériau et la partie imaginaire correspond aux pertes diélectriques.

De sorte que :

$$I(\omega) = j\omega C^*(\omega)U(\omega) \tag{A.1.3}$$

Nous avons :

$$C^*(\omega) = C_0 \left(\varepsilon_r^{'}(\omega) - j\varepsilon_r^{"}(\omega)\right) \tag{A.1.4}$$

avec $\varepsilon_r^{'}(\omega)$ et $\varepsilon_r^{"}(\omega)$ la partie réelle et la partie imaginaire respectivement de la constante diélectrique complexe du matériau.

Le facteur de pertes est alors déduit par :

$$tan\delta(\omega) = \frac{\varepsilon_r^{"}(\omega)}{\varepsilon_r^{'}(\omega)} \tag{A.1.5}$$

A.2 Dispositif expérimental

La caractérisation diélectrique est effectuée avec un Alpha High Resolution Dielectric Analyzer Novocontrol BDS 20. La mesure de permittivité diélectrique complexe est effectuée dans une large plage de fréquence $[0,1Hz$–$100kHz]$. L'acquisition des données a été assurée par le logiciel WinDETA spécifique à l'appareil de mesure. La figure A.1 présente le montage complet utilisé pour les mesures diélectriques et électriques.

Notre montage est composé de quatre dispositifs expérimentaux : une enceinte de mesure à atmosphère contrôlée (vide primaire), un régulateur de température (Linkam TMS 94) permettant de faire des mesures de l'azote jusqu'à 600 °C, un électromètre pour des

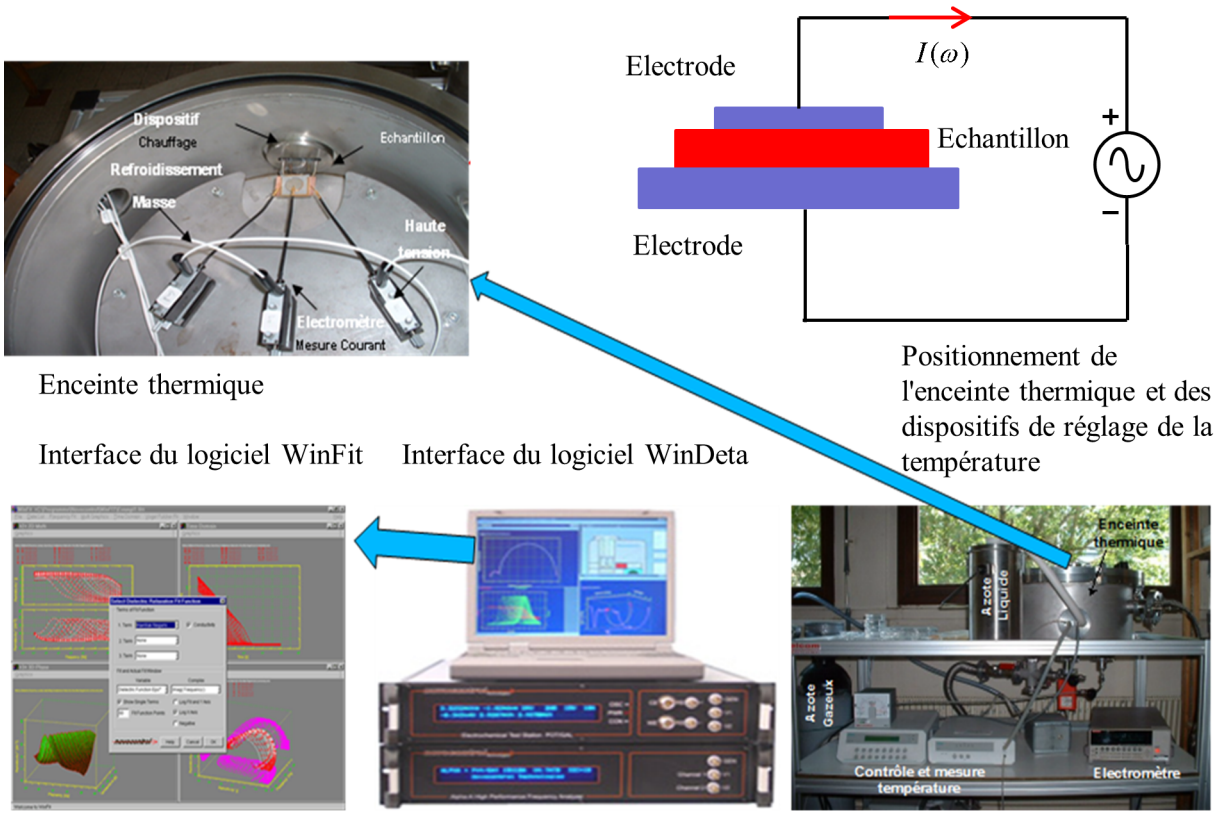


FIG. A.1: Dispositif pour les mesures de spectroscopie diélectrique.

mesures électriques jusqu'à des valeurs de l'ordre de la centaine de femtoampères et le Novocontrol qui fonctionne dans la gamme de 3µHz à $10MHz$ pour des tensions appliquées (V_{rms}) de $10mV$ à $3V$.

Au cours des mesures réalisées à l'aide de ce montage, notre échantillon est pris en sandwich entre deux électrodes. On place l'échantillon sur un support, à température réglable, à l'intérieur de l'enceinte et on fixe deux micro-contrôleurs à pointe, un pour l'application de la tension et l'autre pour la mesure du courant. L'enceinte étant fermée hermétiquement, on effectue un pompage primaire ($10 - 0,1mbar$). De l'azote gazeux est ensuite introduit dans l'enceinte afin d'éviter des phénomènes d'oxydation (mesures hautes températures) et de givrage (mesure en froid) du matériau ou des électrodes. La température de l'échantillon est contrôlée à l'aide du régulateur de température programmable Linkam TMS94.

Les résultats de mesures sont enregistrés et exportés à l'aide du logiciel WinDeta et les séries de données peuvent ensuite être comparées à des modèles comme la loi de Havriliak - Negami, bien représentative du comportement fréquentiel des polymères, à l'aide du logiciel WinFit.

Annexe B

Rigidité diélectrique

La rigidité diélectrique d'un matériau est la valeur maximale du champ électrique que l'on peut lui appliquer sans que se produise une dégradation irréversible nommée claquage ou perforation diélectrique rendant impossible une nouvelle application de la tension (champ de claquage électrique $E_{claquage}$).

La tension de claquage (le champ de claquage est ensuite déduit par le rapport entre la tension de claquage et l'épaisseur du matériau) du matériau est déterminée quand il y a un fort courant qui se passe au sein d'isolant.

Le principe de mesure est présenté sur la figure B.1 et le montage complet utilisé pour les mesures de la rigidité diélectrique est donné sur la figure B.2.

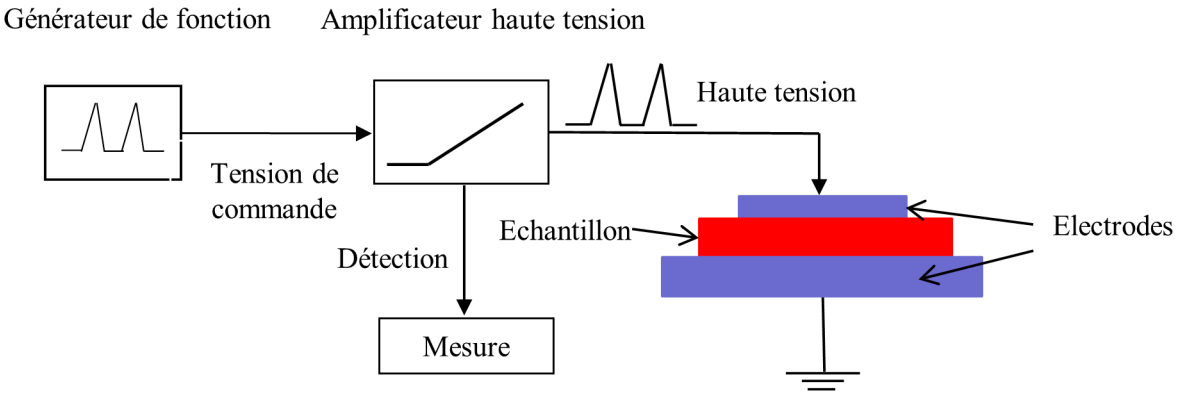


FIG. B.1: Principe de mesure du champ de claquage électrique.

On applique une haute-tension qui augmente en fonction du temps. Cette tension est obtenue à l'aide d'un amplificateur de tension et d'une source de tension de commande. Cette haute-tension engendre un courant au sein de l'échantillon . Quand le claquage commence à avoir lieu, ce courant augmente fortement et une fois le seuil de protection

en courant atteint (20 mA), la source haute tension s'arrête et nous pouvons ainsi relever la tension de claquage.

La tension de commande provenant d'un générateur de fonction (G) (Model 3390 50MHz Arbitrary Waveform/Function Generator) est couplée à un amplificateur haute-tension (AHT) (Spellman) afin de pouvoir fournir une haute tension de 0 à 20kV aux échantillons. Une rampe de 200V/s est appliquée à partir du générateur de fonction. Quand il y a le claquage du matériau, la protection de l'amplificateur le détecte et stoppe l'alimentation. En raison de la durée du claquage, très court, il est donc difficile d'observer directement au multimètre avec la fonction de détection le passage au maximum de tension utilisé. La cellule de mesure est installée dans une enceinte thermique permettant ainsi de réaliser des mesures de rigidité sur une plage étendue de températures.

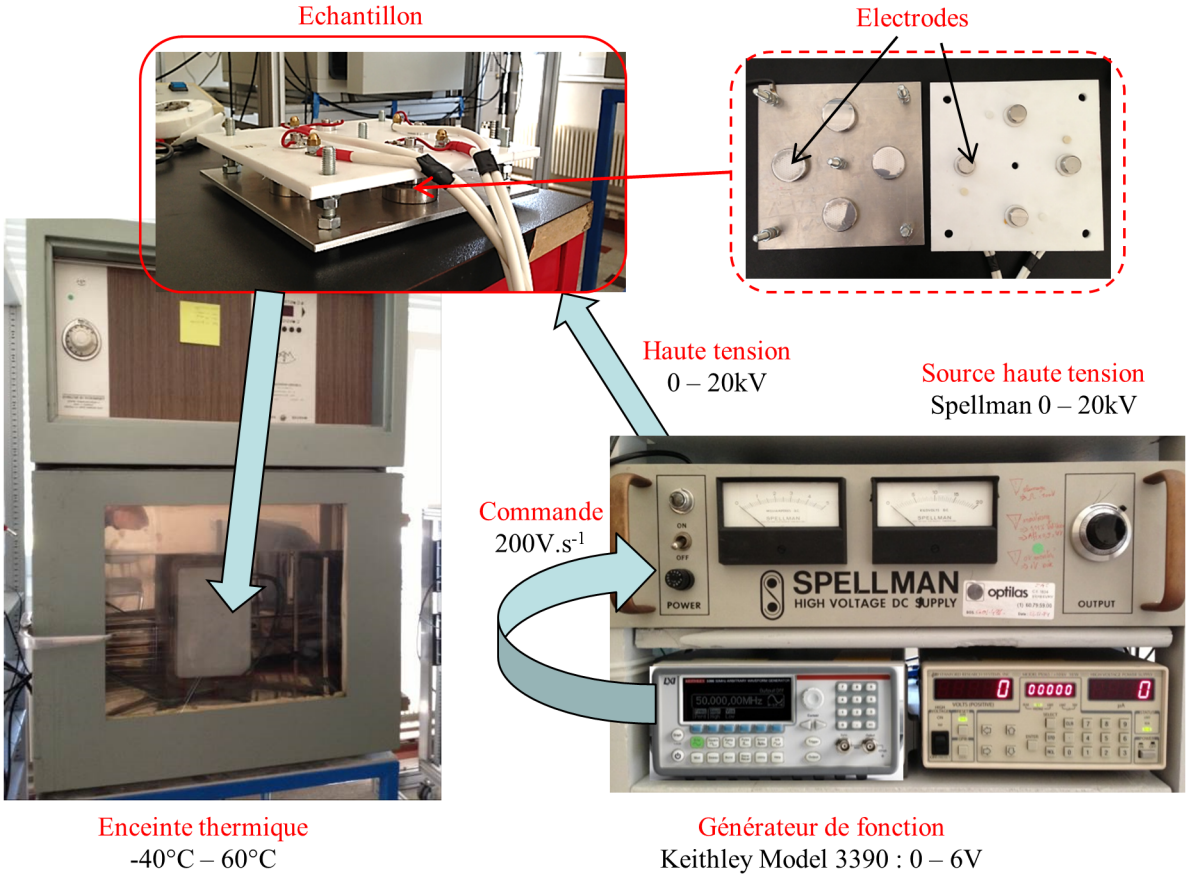


FIG. B.2: Dispositif expérimental pour les mesures du champ de claquage électrique.

Annexe C

Mesure du déclin de potentiel de surface (DPS)

C.1 Sonde électrostatique

On utilise un dispositif automatisé d'injection de charges par décharge Corona dans le matériau et de mesure par une sonde Kelvin vibrante dont la fréquence de travail est située entre 10Hz et quelques centaines de Hertz. La sonde est placée en regard de la surface de l'échantillon à caractériser (figure C.1). La mesure du potentiel de surface est ainsi effectuée sans contact avec le la surface.

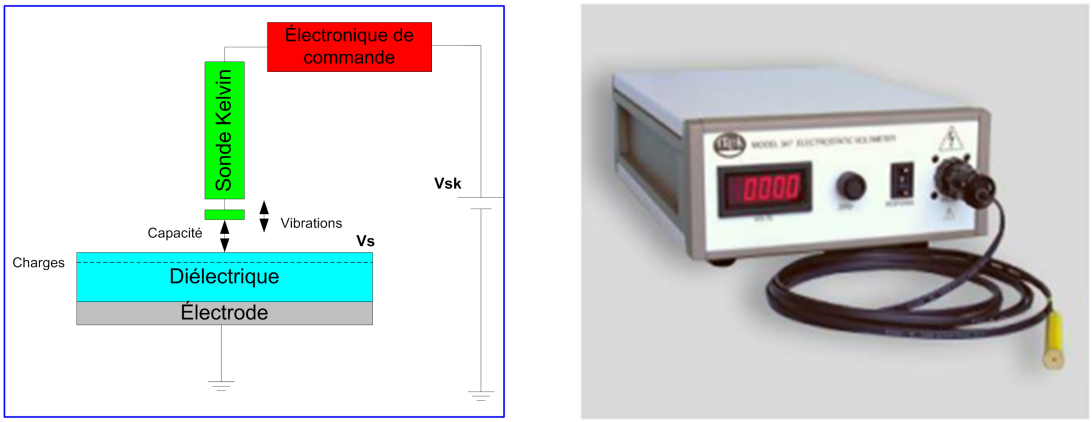


FIG. C.1: Mesure du potentiel de surface par sonde électrostatique sans contact.

La sonde est placée à faible distance de l'échantillon ($1mm - 2mm$) afin d'avoir un bon temps de réponse. Une capacité est formée entre la sonde kelvin (vibrante) et la surface chargée du matériau. Un potentiel V_{Sk} est appliqué au niveau de la sonde. Les vibrations de la sonde engendrent une variation de la capacité C_k.

$$C_k = \frac{Q_k}{V_S - V_{Sk}} \tag{C.1.1}$$

avec C_k : la capacité surfacique, Q_k : la charge équivalente du matériau rapportée à sa surface, V_S : le potentiel de surface du matériau et V_{Sk} : le potentiel de la sonde kelvin.

En régime permanent, un courant i_{Sk} traverse la sonde :

$$i_{Sk} = (V_S - V_{Sk}) \frac{dC_k}{dt} \tag{C.1.2}$$

L'électronique de commande sert à trouver la valeur de V_{Sk} permettant d'annuler le courant i_{Sk}. Cette valeur correspond alors au potentiel de surface de l'échantillon V_S.

C.2 Dispositif de mesure

Le dispositif de mesure du DPS est présenté sur la figure C.1. Un moteur pas à pas fait tourner le porte-échantillon jusqu'à l'amener au poste de charge où une décharge Corona se produit pendant $180s$ afin de charger en ions le matériau en surface. Cette décharge corona est produite par l'application d'une haute-tension sur une aiguille ce qui aura pour effet de ioniser l'air au bout de l'aiguille et ainsi générer des ions qui seront injectés en direction de l'échantillon. Une grille polarisée, positionée entre l'aiguille et la surface de l'échantillon, a pour rôle de répartir uniformément les charges sur la surface de l'échantillon mais elle fixe également la valeur du potentiel que l'on veut mettre sur la surface de l'échantillon. Une fois la décharge Corona effectuée, l'échantillon retourne sur le poste de mesure où la sonde électrostatique enregistrera l'évolution du potentiel de surface au cours du temps.

La commande du système, en mode manuel ou automatique, est réalisée par un logiciel relié à une carte d'acquisition (Picoscope) et connectée à un conditionneur de signal analogique et à une carte électronique permettant le contrôle des moteurs et autres relais de commandes de la charge.

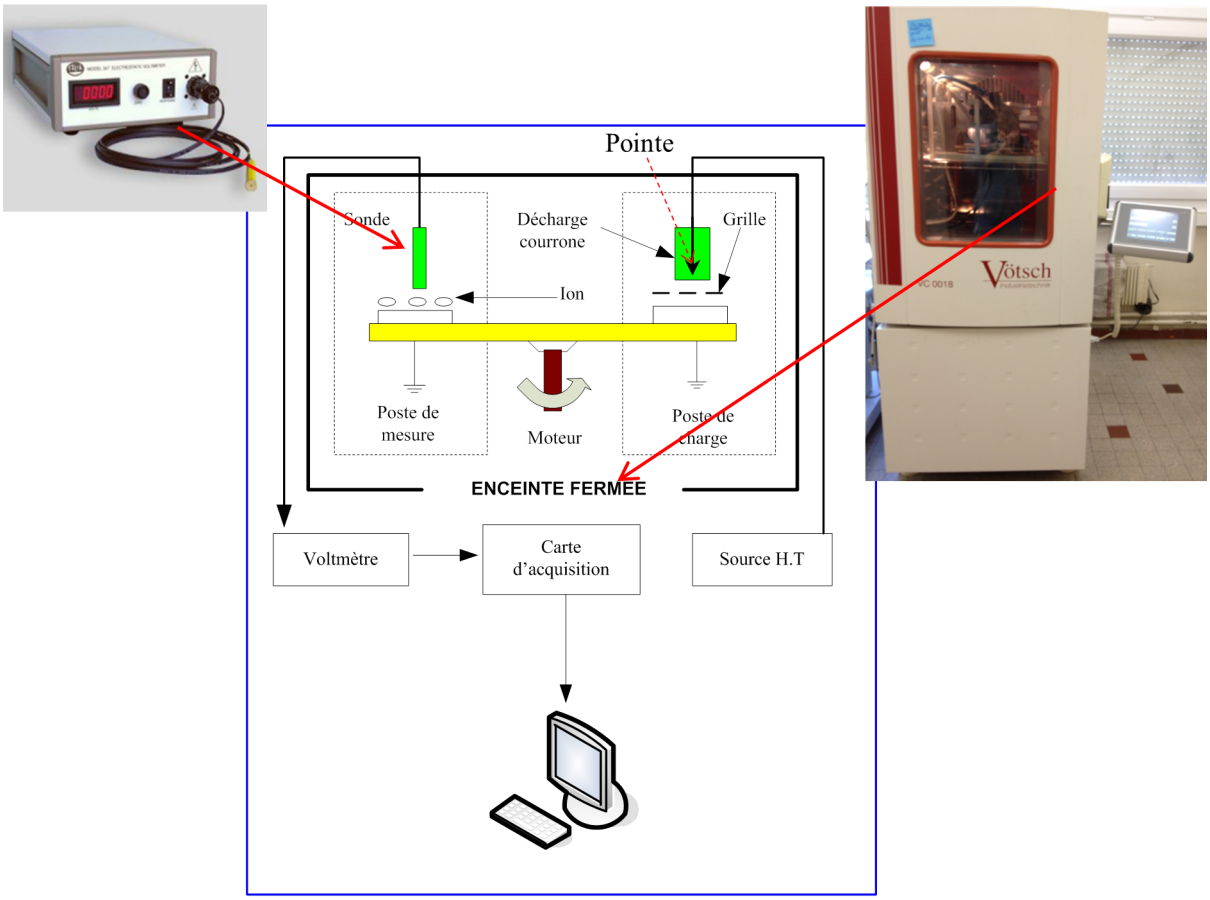


FIG. C.1: Dispositif expérimental de mesure du DPS pour différentes températures et d'humidités relatives.

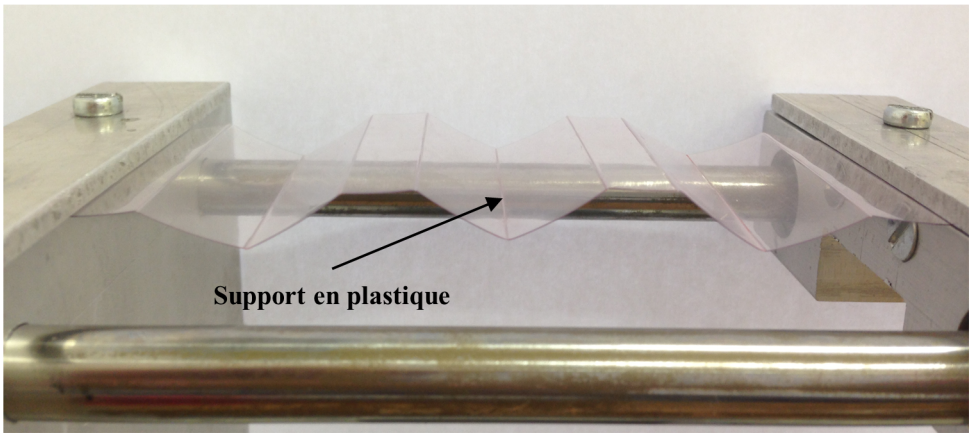
Annexe D

Réalisation du DEG en mode électret

Cette annexe présente un exemple des différentes étapes nécessaires pour la réalisation d'un générateur diélectrique souple en mode électret.

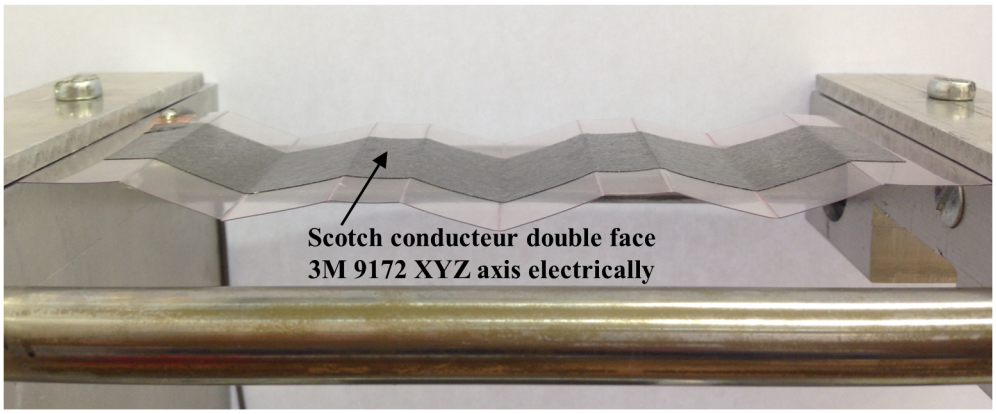
Étape 1

On pré-coupe le support en plastique et, on le plie afin de le mettre sous la forme de serpentin triangulaire.



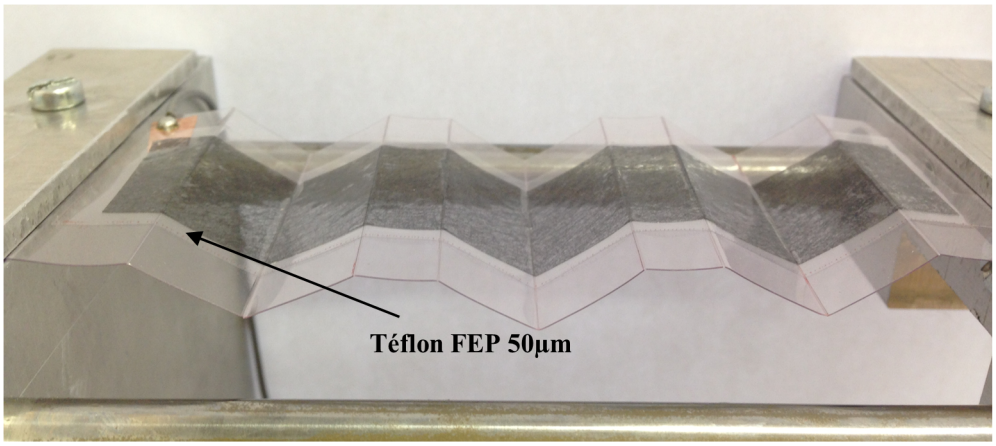
Étape 2

On colle un scotch conducteur double face (3M 9712 XYZ axis electrically) sur le support.



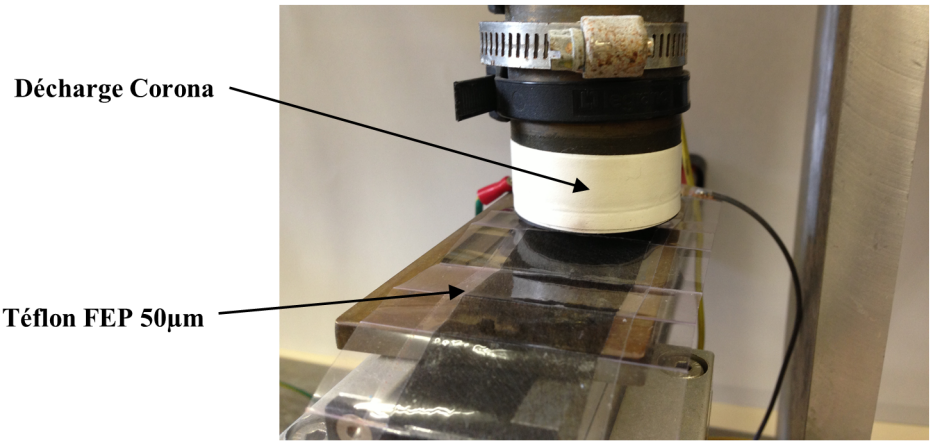
Étape 3

Le téflon FEP 50µm est ensuite collé sur le scotch conducteur.



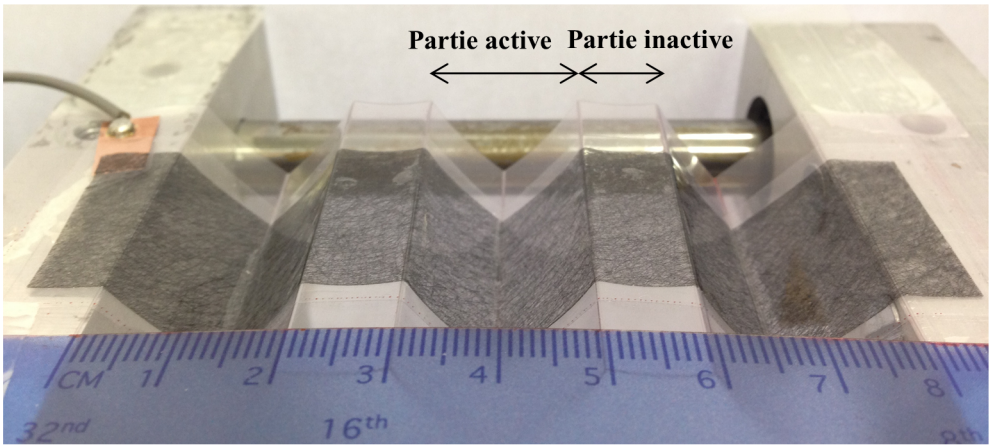
Étape 4

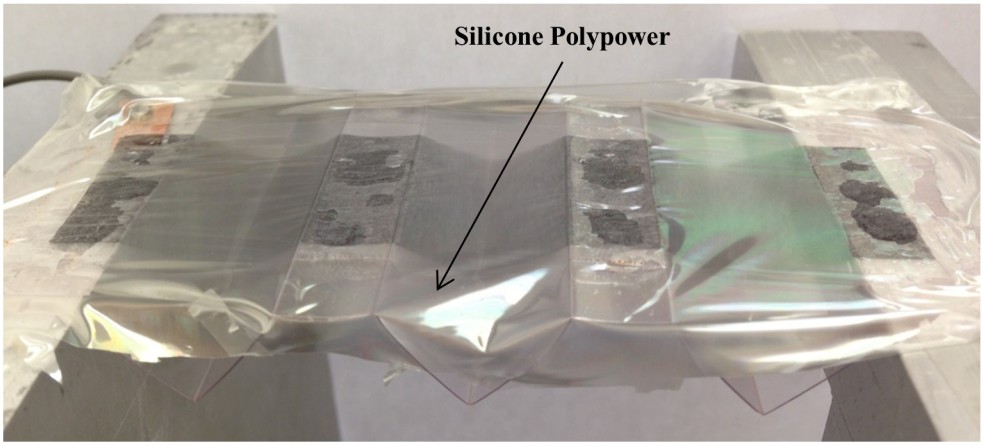
Le téflon est soumis à la décharge Corona pendant $180s$ afin de mettre les charges sur toute sa surface. Le potentiel du téflon est maintenant $-1000V$.



Étape 5

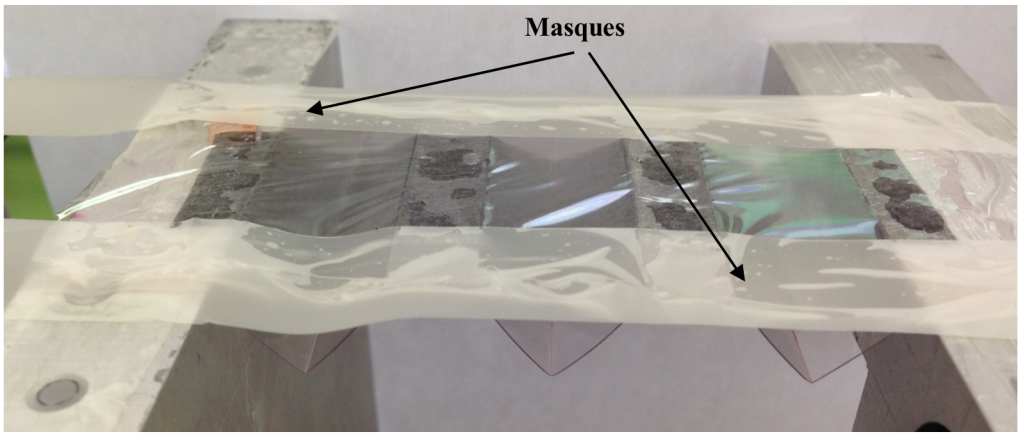
De la colle est déposée sur les parties inactives de la structure. Le silicone Polypower est ensuite collé au-dessus.





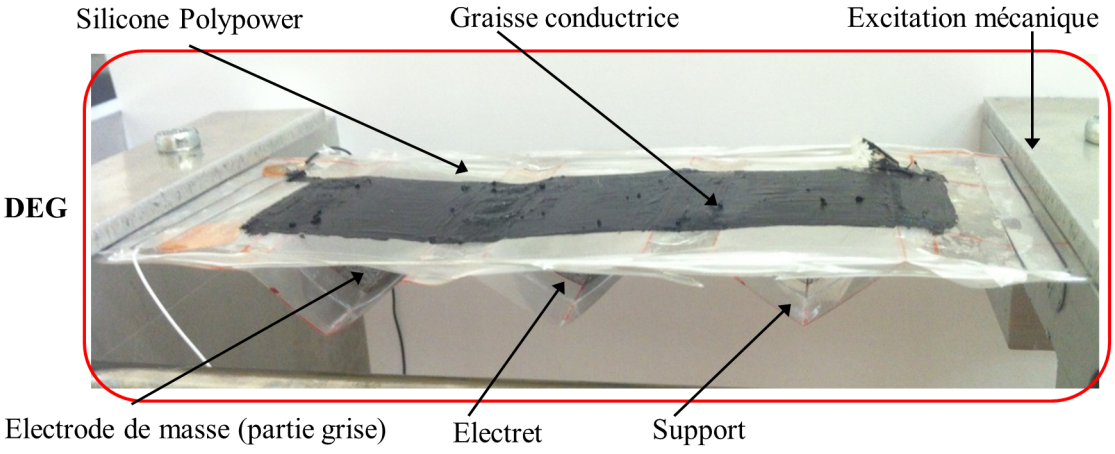
Étape 6

Des masques en scotch sont utilisés pour délimiter la zone active. Les électrodes en graisse de carbone (Nyogel 756) y sont déposées par sérigraphie manuelle.



Résultat obtenu

Nous obtenons un générateur électroactif souple en mode électret. C'est aussi simple que ça !



Bibliographie

[Ahnert 11] K. Ahnert, M. Abel, M. Kollosche, P. J. Jørgensen & G. Kofod. *Soft capacitors for wave energy harvesting.* Journal of Materrials Chemistry, vol. 21, no. 38, pages 14492–14497, 2011. lien internet

[Arruda 93] E. M. Arruda & M. C. Boyce. *A three-dimensional constitutive model for the large stretch behavior of rubber elastic materials.* Journal of the Mechanics and Physics of Solids, vol. 41, no. 2, pages 389–412, 1993. lien internet

[Babič 10] M. Babič, R. Vertechy, G. Berselli, J. Lenarčič, V. Parenti Castelli & G. Vassura. *An electronic driver for improving the open and closed loop electro-mechanical response of Dielectric Elastomer actuators.* Mechatronics, vol. 20, no. 2, pages 201–212, 2010. lien internet

[Bar-Cohen 04] Y. Bar-Cohen, editeur. Electroactive polymer (EAP) actuators as artificial muscles : Reality, potential, and challenges. SPIE, 2004. lien internet

[Bauer 11] S. G. Bauer & C. Keplinger. *Dielectric-elastomer actuators deliver clean energy.* SPIE Solar Alternative Energy, 2011. lien internet

[Boisseau 11a] S. Boisseau. *Récupération d'énergie vibratoire à électrets.* PhD thesis, Université de Grenoble, 2011. lien internet

[Boisseau 11b] S. Boisseau, G. Despesse, T. Ricart, E. Defay & A. Sylvestre. *Cantilever-based electret energy harvesters.* Smart Materials and Structures, vol. 20, no. 10, page 105013, 2011. lien internet

[Boisseau 13] S. Boisseau, G. Despesse, S. Monfray, O. Puscasu & T. Skotnicki. *Semi-flexible bimetal-based thermal energy harvesters.* Smart Materials and Structures, vol. 22, no. 2, page 025021, 2013. lien internet

[Boland 03] J. S. Boland, Y. H. Chao, Y. Suzuki & Y. C. Tai. *Micro electret power generators.* In IEEE/MEMS 2003 Micro Electro Mechanical Systems, pages 538–41, 2003. lien internet

[Brochu 09] P. Brochu, W. Yuan, H. Zhang & Q. Pei. *Dielectric Elastomers for Direct Wind-to-Electricity Power Generation.* Proceeding of ASME, vol. 2009, no. 48968, pages 197–204, January 2009. lien internet

[Brochu 10] P. Brochu & Q. Pei. *Advances in Dielectric Elastomers for Actuators and Artificial Muscles*. Macromolecular Rapid Communications, vol. 31, no. 1, page 10–36, 2010. lien internet

[Carpi 08a] F. Carpi, G. Gallone, F. Galantini & D. De Rossi. *Silicone–Poly(hexylthiophene) Blends as Elastomers with Enhanced Electromechanical Transduction Properties*. Advanced Functional Materials, vol. 18, no. 2, page 235–241, 2008. lien internet

[Carpi 08b] F. Carpi, D. D. Rossi, R. Kornbluh, R. Pelrine & P. Sommer-Larsen. Dielectric elastomers as electromechanical transducers : Fundamentals, materials, devices, models and applications of an emerging electroactive polymer technology. Elsevier Science, March 2008. lien internet

[Chiba 08] S. Chiba, M. Waki, R. Kornbluh & R. Pelrine. *Innovative power generators for energy harvesting using electroactive polymer artificial muscles*. Proceeding of SPIE, vol. 6927, pages 692715–9, 2008. lien internet

[Chiba 11] S. Chiba, M. Waki, R. Kornbluh & R. Pelrine. *Current status and future prospects of power generators using dielectric elastomers*. Smart Materials and Structures, vol. 20, no. 12, page 124006, 2011. lien internet

[Choi 05] H. R. Choi, K. Jung, C. Nguyen Huu, M. Jung, I. Koo, J. Koo, J. Lee, J. Lee, J. Nam, M. Cho & Y. Lee. *Effects of prestrain on behavior of dielectric elastomer actuator*. Proceeding of SPIE, vol. 5759, pages 283–291, 2005. lien internet

[Despesse 05] G. Despesse, J. J. Chaillout, T. Jager, J. M. Léger, A. Vassilev, S. Basrour & B. Charlot. *High damping electrostatic system for vibration energy scavenging*. In Proceeding of sOc-EUSAI '05, sOc-EUSAI '05, page 283–286, New York, NY, USA, 2005. ACM. lien internet

[Di Lillo 12] L. Di Lillo, A. Schmidt, D. A Carnelli, P. Ermanni, G. Kovacs, E. Mazza & A. Bergamini. *Measurement of insulating and dielectric properties of acrylic elastomer membranes at high electric fields*. Journal of Applied Physics, vol. 111, no. 2, pages 024904–8, 2012. lien internet

[Dorfmann 06] A. Dorfmann & R. W. Ogden. *Nonlinear Electroelastic Deformations*. Journal of Elasticity, vol. 82, no. 2, pages 99–127, February 2006. lien internet

[Eitzen 11a] L. Eitzen, C. Graf & J. Maas. *Bidirectional HV DC-DC converters for energy harvesting with dielectric elastomer generators*. In ECCE 2011 - Energy Conversion Congress and Exposition, pages 897–901, 2011. lien internet

[Eitzen 11b] L. Eitzen, C. Graf & J. Maas. *Cascaded bidirectional flyback converter driving DEAP transducers*. In IECON 2011 - 37th Annual Conference on IEEE Industrial Electronics Society, pages 1226–1231, 2011. lien internet

[Foo 12] C. C. Foo, S. Cai, S. J. A. Koh, S. Bauer & Z. Suo. *Model of dissipative dielectric elastomers*. Journal of Applied Physics, vol. 111, no. 3, pages 034102–13, 2012. lien internet

[Gent 96] A. N. Gent. *A New Constitutive Relation for Rubber*. Rubber Chemistry and Technology, vol. 69, no. 1, pages 59–61, 1996. lien internet

[Giacometti 99] J. A. Giacometti, S. Fedosov & M. M. Costa. *Corona charging of polymers : Recent advances on constant current charging*. Brazilian Journal of Physics, vol. 29, no. 2, pages 269–279, 1999. lien internet

[Graf 10a] C. Graf, J. Maas & D. Schapeler. *Energy Harvesting Cycles based on Electro Active Polymers*. Proceeding of SPIE, vol. 7642, page 764217, 2010. lien internet

[Graf 10b] C. Graf, J. Maas & D. Schapeler. *Optimized energy harvesting based on electro active polymers*. In ICSD - IEEE International Conference on Solid Dielectrics, pages 1 –5, 2010. lien internet

[Hillborg 01] H. Hillborg, S. Karlsson & U.W. Gedde. *Characterisation of low molar mass siloxanes extracted from crosslinked polydimethylsiloxanes exposed to corona discharges*. Polymer, vol. 42, no. 21, pages 8883–8889, 2001. lien internet

[Huang 02] J. C. Huang. *Carbon black filled conducting polymers and polymer blends*. Advances in Polymer Technology, vol. 21, no. 4, page 299–313, 2002. lien internet

[Huang 12] J. Huang, S. Shian, R. M. Diebold, Z. Suo & D. R. Clarke. *The thickness and stretch dependence of the electrical breakdown strength of an acrylic dielectric elastomer*. Applied Physics Letters, vol. 101, no. 12, pages 122905–4, 2012. lien internet

[Huang 13] J. Huang, S. Shian, Z. Suo & D. R. Clarke. *Maximizing the Energy Density of Dielectric Elastomer Generators Using Equi-Biaxial Loading*. Advanced Functional Materials, page n/a–n/a, 2013. lien internet

[Ikeda 07] Y. Ikeda, Y. Yasuda, S. Makino, S. Yamamoto, M. Tosaka, K. Senoo & S. Kohjiya. *Strain-induced crystallization of peroxide-crosslinked natural rubber*. Polymer, vol. 48, no. 5, pages 1171–1175, 2007. lien internet

[Iskandarani 09] Y. H. Iskandarani, R. W. Jones & E. Villumsen. *Modeling and Experimental Verification of a Dielectric Polymer Energy Scavenging Cycle*. Proceeding of SPIE, vol. 7287, page 72871Y, 2009. lien internet

[Jean-Mistral 08a] C. Jean-Mistral. *Récupération d'énergie mécanique par polymères électroactifs pour microsystèmes autonomes communicants*. PhD thesis, Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2008. lien internet

[Jean-Mistral 08b] C. Jean-Mistral, S. Basrour & J. J. Chaillout. *Dielectric polymer : scavenging energy from human motion*. Proceeding of SPIE, vol. 6927, page 692716, 2008. lien internet

[Jean-Mistral 10a] C. Jean-Mistral & S. Basrour. *Scavenging energy from human motion with tubular dielectric polymer*. Proceeding of SPIE, vol. 7642, pages 764209–764209, 2010. lien internet

[Jean-Mistral 10b] C. Jean-Mistral, S. Basrour & J. J. Chaillout. *Modelling of dielectric polymers for energy scavenging applications*. Smart Materials and Structures, vol. 19, no. 10, page 105006, October 2010. lien internet

[Jean-Mistral 10c] C. Jean-Mistral, A. Sylvestre, S. Basrour & J. J. Chaillout. *Dielectric properties of polyacrylate thick films used in sensors and actuators*. Smart Materials and Structures, vol. 19, no. 7, page 075019, 2010. lien internet

[Jean 12] P. Jean, A. Wattez, G. Ardoise, C. Melis, R. Van Kessel, A. Fourmon, E. Barrabino, J. Heemskerk & J. P. Queau. *Standing wave tube electro active polymer wave energy converter*. Proceeding of SPIE, vol. 8340, page 83400C, 2012. lien internet

[Jordi 11] C. Jordi, A. Schmidt, G. Kovacs, S. Michel & P. Ermanni. *Performance evaluation of cutting-edge dielectric elastomers for large-scale actuator applications*. Smart Materials and Structures, vol. 20, no. 7, page 075003, 2011. lien internet

[Kaltseis 11] R. Kaltseis, C. Keplinger, R. Baumgartner, M. Kaltenbrunner, T. Li, P. Mächler, R. Schwödiauer, Z. Suo & S. Bauer. *Method for measuring energy generation and efficiency of dielectric elastomer generators*. Applied Physics Letters, vol. 99, no. 16, pages 162904–162904–3, 2011. lien internet

[Keplinger 10] C. Keplinger, M. Kaltenbrunner, N. Arnold & S. Bauer. *Röntgen's electrode-free elastomer actuators without electromechanical pull-in instability*. Proceedings of the National Academy of Sciences, vol. 107, no. 10, pages 4505–4510, 2010. lien internet

[Kofod 03] G. Kofod, P. Sommer-Larsen, R. Kornbluh & R. Pelrine. *Actuation Response of Polyacrylate Dielectric Elastomers*. Journal of Intelligent Material Systems and Structures, vol. 14, no. 12, pages 787–793, 2003. lien internet

[Kofod 05] G. Kofod & P. Sommer-Larsen. *Silicone dielectric elastomer actuators : Finite-elasticity model of actuation*. Sensors and Actuators A : Physical, vol. 122, no. 2, pages 273–283, 2005. lien internet

[Kofod 08] G. Kofod. *The static actuation of dielectric elastomer actuators : how does pre-stretch improve actuation ?* Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 41, no. 21, page 215405, 2008. lien internet

[Koh 09] S. J. A. Koh, X. Zhao & Z. Suo. *Maximal energy that can be converted by a dielectric elastomer generator*. Applied Physics Letters, vol. 94, no. 26, pages 262902–3, 2009. lien internet

[Koh 11a] S. J. A. Koh, C. Keplinger, T. Li, S. Bauer & Z. Suo. *Dielectric Elastomer Generators : How Much Energy Can Be Converted ?* IEEE/ASME Transactions on Mechatronics, vol. 16, no. 1, page 33–41, 2011. lien internet

[Koh 11b] S. J. A. Koh, T. Li, J. Zhou, X. Zhao, W. Hong, J. Zhu & Z. Suo. *Mechanisms of large actuation strain in dielectric elastomers.* Journal of Polymer Science Part B : Polymer Physics, vol. 49, no. 7, pages 504–515, 2011. lien internet

[Kollosche 10] M. Kollosche & G. Kofod. *Electrical failure in blends of chemically identical, soft thermoplastic elastomers with different elastic stiffness.* Applied Physics Letters, vol. 96, no. 7, pages 071904–3, 2010. lien internet

[Kornbluh 00] R. Kornbluh, R. Pelrine, Q. Pei, S. Oh & J. Joseph. *Ultrahigh strain response of field-actuated elastomeric polymers.* Proceeding of SPIE, vol. 3987, page 51–64, 2000. lien internet

[Kornbluh 10] R. Kornbluh, A. Wong-Foy, R. Pelrine, H. Prahlad & B. McCoy. *Long-lifetime All-polymer Artificial Muscle Transducers.* MRS Proceedings, vol. 1271, pages null–null, 2010. lien internet

[Kornbluh 11a] R. Kornbluh, J. Eckerle & B. McCoy. *A scalable solution to harvest kinetic energy.* SPIE Solar and Alternative Energy, 2011. lien internet

[Kornbluh 11b] R. Kornbluh, R. Pelrine, H. Prahlad, A. Wong-Foy, B. McCoy, S. Kim, J. Eckerle & T. Low. *From boots to buoys : promises and challenges of dielectric elastomer energy harvesting.* Proceeding of SPIE, vol. 7976, pages 797605–19, 2011. lien internet

[Kornbluh 12a] R. Kornbluh, R. Pelrine, H. Prahlad, A. Wong-Foy, B. Mccoy, S. Kim, J. Eckerle & T. Low. *Dielectric elastomers : Stretching the capabilities of energy harvesting.* MRS Bulletin, vol. 37, no. 3, page 246–253, 2012. lien internet

[Kornbluh 12b] R. Kornbluh, R. Pelrine, H. Prahlad, A. Wong-Foy, B. McCoy, S. Kim, J. Eckerle & T. Low. *From Boots to Buoys : Promises and Challenges of Dielectric Elastomer Energy Harvesting.* In Lenore Rasmussen, editeur, Electroactivity in Polymeric Materials, pages 67–93. Springer US, 2012. lien internet

[Kussmaul 11] B. Kussmaul, S. Risse, G. Kofod, R. Waché, M. Wegener, D. N. McCarthy, H. Krüger & R. Gerhard. *Enhancement Of Dielectric Permittivity And Electromechanical Response In Silicone Elastomers : Molecular Grafting Of Organic Dipoles To The Macromolecular Network.* Advanced Functional Materials, vol. 21, no. 23, page 4589–4594, 2011. lien internet

[Kussmaul 12] B. Kussmaul, S. Risse, M. Wegener, G. Kofod & H. Krüger. *Novel DEA materials by chemical grafting of silicone networks on molecular level.* Proceeding of SPIE, vol. 8340, page 83400Y, 2012. lien internet

[Lallart 10] M. Lallart, P. Jean-Cottinet, Laurent Lebrun, Benoît Guiffard & Daniel Guyomar. *Evaluation of energy harvesting performance of electrostrictive polymer and carbon-filled terpolymer composites*. Journal of Applied Physics, vol. 108, no. 3, page 034901, 2010. lien internet

[Leng 09] J. Leng, L. Liu, Y. Liu, K. Yu & S. Sun. *Electromechanical stability of dielectric elastomer*. Applied Physics Letters, vol. 94, no. 21, pages 211901–3, 2009.

[Li 11a] B. Li, H. Chen, J. Qiang, S. Hu, Z. Zhu & Y. Wang. *Effect of mechanical pre-stretch on the stabilization of dielectric elastomer actuation*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 44, no. 15, page 155301, 2011. lien internet

[Li 11b] B. Li, H. Chen, J. Zhou, Z. Zhu & Y. Wang. *Polarization-modified instability and actuation transition of deformable dielectric*. Europhysics Letters, vol. 95, no. 3, page 37006, 2011. lien internet

[Li 11c] B. Li, L. Liu & Z. Suo. *Extension limit, polarization saturation, and snap-through instability of dielectric elastomers*. International Journal of Smart and Nano Materials, vol. 2, no. 2, pages 59–67, 2011. lien internet

[Li 11d] B. Li, J. Zhou & H. Chen. *Electromechanical stability in charge-controlled dielectric elastomer actuation*. Applied Physics Letters, vol. 99, page 244101, 2011. lien internet

[Li 12] T. Li, S. Qu & W. Yang. *Energy harvesting of dielectric elastomer generators concerning inhomogeneous fields and viscoelastic deformation*. Journal of Applied Physics, vol. 112, no. 3, pages 034119–034119–6, 2012. lien internet

[Lin 11] G. J. Lin, X. B. Zhang & D. C. Song. *Wind Power Micro-Generator Using Dielectric Electric Active Polymer*. Advanced Materials Research, vol. 328-330, pages 1491–1494, 2011. lien internet

[Liu 10] Y. Liu, L. Liu, Z. Zhang, Y. Jiao, S. Sun & J. Leng. *Analysis and manufacture of an energy harvester based on a Mooney-Rivlin–type dielectric elastomer*. Europhysics Letters, vol. 90, no. 3, page 36004, 2010. lien internet

[Liu 11] L. Liu, Y. Liu, B. Li, K. Yang, T. Li & J. Leng. *Thermo-electro-mechanical instability of dielectric elastomers*. Smart Materials and Structures, vol. 20, no. 7, page 075004, 2011. lien internet

[Liu 12] H. Liu, L. Zhang, D. Yang, N. Ning, Y. Yu, L. Yao, B. Yan & M. Tian. *A new kind of electro-active polymer composite composed of silicone elastomer and polyethylene glycol*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 45, no. 48, page 485303, 2012. lien internet

[Lochmatter 07] P. Lochmatter, G. Kovacs & M. Wissler. *Characterization of dielectric elastomer actuators based on a visco-hyperelastic film model*. Smart Materials and Structures, vol. 16, no. 2, pages 477–486, 2007. lien internet

[Lotz 11] P. Lotz, M. Matysek & H.F. Schlaak. *Fabrication and Application of Miniaturized Dielectric Elastomer Stack Actuators*. IEEE/ASME Transactions on Mechatronics, vol. 16, no. 1, pages 58–66, 2011.

[Maas 12] J. Maas & C. Graf. *Dielectric elastomers for hydro power harvesting*. Smart Materials and Structures, vol. 21, no. 6, page 064006, 2012. lien internet

[Małecki 99] J. A. Małecki. *Linear decay of charge in electrets*. Physical Review B, vol. 59, no. 15, pages 9954–9960, 1999. lien internet

[McKay 09] T. G. McKay, E. Calius & I. Anderson. *The dielectric constant of 3M VHB : a parameter in dispute*. Proceeding of SPIE, vol. 7287, no. 1, pages 72870P–10, 2009. lien internet

[McKay 10a] T. G. McKay. *Soft, low complexity dielectric elastomer generators*. Thesis, ResearchSpace@Auckland, 2010. lien internet

[McKay 10b] T. G. McKay, B. O'Brien, E. Calius & I. Anderson. *An integrated, self-priming dielectric elastomer generator*. Applied Physics Letters, vol. 97, no. 6, page 062911, 2010. lien internet

[McKay 10c] T. G. McKay, B. O'Brien, E. Calius & I. Anderson. *Self-priming dielectric elastomer generators*. Smart Materials and Structures, vol. 19, no. 5, page 055025, 2010. lien internet

[McKay 11] T. G. McKay, B. M. O'Brien, E. P. Calius & I. Anderson. *Soft generators using dielectric elastomers*. Applied Physics Letters, vol. 98, no. 14, pages 142903–3, 2011. lien internet

[McKay 13] T. McKay, P. Walters, J. Rossiter, B. O'Brien & I. Anderson. *3-dimensional fabrication of soft energy harvesters*. Proceeding of SPIE, vol. 8687, pages 86870J–6, 2013. lien internet

[Meddad 12] 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, vol. 112, no. 5, page 054109, 2012. lien internet

[Michel 12] S. Michel, B. T. T. Chu, S. Grimm, F. A. Nüesch, A. Borgschulte & D. M. Opris. *Self-healing electrodes for dielectric elastomer actuators*. Journal of Materials Chemistry, vol. 22, no. 38, pages 20736–20741, 2012. lien internet

[Molberg 10] M. Molberg, D. Crespy, P. Rupper, F. Nüesch, J. A. E. Månson, C. Löwe & D. M. Opris. *High Breakdown Field Dielectric Elastomer Actuators Using Encapsulated Polyaniline as High Dielectric Constant Filler*. Advanced Functional Materials, vol. 20, no. 19, page 3280–3291, 2010. lien internet

[Molinié 10] P. Molinié. *Recherches en Electrostatique - Actualité d'une science ancienne et applications à la caractérisation des matériaux. Mémoire d'Ha-*

bilitation à Diriger des Recherches. PhD thesis, Université Paris Sud - Paris XI, 2010. lien internet

[Mooney 40] M. Mooney. *A Theory of Large Elastic Deformation*. Journal of Applied Physics, vol. 11, no. 9, pages 582–592, 1940. lien internet

[Moreno 76] R. A. Moreno & B. Gross. *Measurement of potential buildup and decay, surface charge density, and charging currents of corona-charged polymer foil electrets*. Journal of Applied Physics, vol. 47, no. 8, pages 3397–3402, 1976. lien internet

[Munch 06] E. Munch, J.M. Pelletier, B. Sixou & G. Vigier. *Molecular mobility of crosslinked elastomers stretched above Tg*. Polymer, vol. 47, no. 10, pages 3477–3485, 2006. lien internet

[Naruse 09] Y. Naruse, N. Matsubara, K. Mabuchi, M. Izumi & S. Suzuki. *Electrostatic micro power generation from low-frequency vibration such as human motion*. Journal of Micromechanics and Microengineering, vol. 19, no. 9, page 094002, 2009. lien internet

[Nguyen 04] D. H Nguyen, A. Sylvestre, S. Bechu & S. Rowe. *Estimation of surface degradation under immersion plasma by surface potential decay method*. In CEIDP 2004 Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, volume 04, pages 631– 634, 2004. lien internet

[Niklaus 09] M. Niklaus, S. Rosset, P. Dubois & H. Shea. *Ion-implanted compliant electrodes used in dielectric electroactive polymer actuators with large displacement*. Proceeding of Eurosensors, vol. 1, no. 1, pages 702–705, 2009. lien internet

[O'Brien 07] B. O'Brien, J. Thode, I. Anderson, E. Calius, E. Haemmerle & S. Xie. *Integrated extension sensor based on resistance and voltage measurement for a dielectric elastomer*. Proceeding of SPIE, vol. 6524, pages 652415–11, 2007. lien internet

[Ogden 72] R. W. Ogden. *Large Deformation Isotropic Elasticity - On the Correlation of Theory and Experiment for Incompressible Rubberlike Solids*. Proceeding of The Royal Society A, vol. 326, no. 1567, pages 565–584, 1972. lien internet

[Opris 11] D. M. Opris, M. Molberg, C. Walder, Y. S. Ko, B. Fischer & F. A. Nüesch. *New Silicone Composites for Dielectric Elastomer Actuator Applications In Competition with Acrylic Foil*. Advanced Functional Materials, vol. 21, no. 18, page 3531–3539, 2011. lien internet

[Pelrine 98] R. Pelrine, R. Kornbluh & J. Joseph. *Electrostriction of polymer dielectrics with compliant electrodes as a means of actuation*. Sensors and Actuators A : Physical, vol. 64, no. 1, pages 77–85, 1998. lien internet

[Pelrine 00a] R. Pelrine, R. Kornbluh, J. Joseph, R. Heydt, Q. Pei & S. Chiba. *High-field deformation of elastomeric dielectrics for actuators*. Mate-

rials Science and Engineering : C, vol. 11, no. 2, page 89–100, 2000. lien internet

[Pelrine 00b] R. Pelrine, R. Kornbluh, Q. Pei & J. Joseph. *High-speed electrically actuated elastomers with strain greater than 100%.* Science, vol. 287, no. 5454, page 836–839, 2000. lien internet

[Pelrine 01] R. Pelrine, R. Kornbluh, J. Eckerle, P. Jeuck, S. Oh, Q. Pei & S. Stanford. *Dielectric elastomers : generator mode fundamentals and applications.* Proceeding of SPIE, vol. 4239, page 148–156, 2001. lien internet

[Pham-Hong 12] H. Pham-Hong. Caractérisation d'électrets pour remplacer des générateurs haute tension dans des dispositifs de récuération d'énergie à base de polymères électroactifs. Master's thesis, Grenoble INP, Grenoble, France, 2012.

[Plante 06] J. S. Plante & S. Dubowsky. *Large-scale failure modes of dielectric elastomer actuators.* International Journal of Solids and Structures, vol. 43, no. 25–26, pages 7727–7751, 2006. lien internet

[Polypower] Danfoss Polypower. *White paper : PolyPower DEAP material.* `www.polypower.com`

[Porter 13] T. Porter. Hybrid dielectric elastomer generators : optimisation of structure. Master's thesis, INSA de Lyon, Lyon, France, 2013.

[Qiang 12] J. Qiang, H. Chen & B. Li. *Experimental study on the dielectric properties of polyacrylate dielectric elastomer.* Smart Materials and Structures, vol. 21, no. 2, page 025006, 2012. lien internet

[Risse 11] S. Risse, B. Kussmaul, H. Krüger, R. Waché & G. Kofod. *DEA material enhancement with dipole grafted PDMS networks.* Proceeding of SPIE, vol. 7976, page 79760N, 2011. lien internet

[Risse 12] S. Risse, B. Kussmaul, H. Krüger & G. Kofod. *A versatile method for enhancement of electromechanical sensitivity of silicone elastomers.* RSC Advances, vol. 2, no. 24, pages 9029–9035, 2012. lien internet

[Romasanta 11] L. J. Romasanta, M. Hernández, M.l A. López Manchado & R. Verdejo. *Functionalised graphene sheets as effective high dielectric constant fillers.* Nanoscale Research Letters, vol. 6, no. 1, page 508, 2011. PMID : 21867505. lien internet

[Rosset 09] S. Rosset, M. Niklaus, P. Dubois & H.R. Shea. *Large-Stroke Dielectric Elastomer Actuators With Ion-Implanted Electrodes.* The Journal of Microelectromechanical Systems, vol. 18, no. 6, pages 1300–1308, 2009. lien internet

[Rosset 12] S. Rosset & H. R. Shea. *Flexible and stretchable electrodes for dielectric elastomer actuators.* Applied Physics A, vol. 110, pages 1–27, 2012. lien internet

[Roundy 03] S. J. Roundy. *Energy Scavenging for Wireless Sensor Nodes with a Focus on Vibration to Electricity Conversion*. PhD thesis, University of California, Berkeley, 2003. lien internet

[Runt 97] J. P. Runt & J. J. Fitzgerald, editeurs. Dielectric spectroscopy of polymeric materials : Fundamentals and applications. American Chemical Society, 1997.

[Sandelin 01] M. Sandelin, U. W. Gedde & M. Hillborg. *Hydrophobic recovery of polydimethylsiloxane after exposure to partial discharges as a function of crosslink density*. Polymers, vol. 42, no. 17, pages 7349–7362, 2001. lien internet

[Shenck 01] N.S. Shenck & J.A. Paradiso. *Energy scavenging with shoe-mounted piezoelectrics*. Micro, IEEE, vol. 21, no. 3, pages 30–42, 2001. lien internet

[Sheng 11] J. Sheng, H. Chen & B. Li. *Effect of temperature on the stability of dielectric elastomers*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 44, no. 36, page 365406, 2011. lien internet

[Sheng 12] J. Sheng, H. Chen, B. Li & Y. Wang. *Influence of the temperature and deformation-dependent dielectric constant on the stability of dielectric elastomers*. Journal of Applied Polymer Science, vol. 128, no. 4, pages 2402–2407, 2012. lien internet

[Shian 12] S. Shian, R. M. Diebold, A. McNamara & D. R. Clarke. *Highly compliant transparent electrodes*. Applied Physics Letters, vol. 101, no. 6, pages 061101–4, 2012. lien internet

[Stark 55] K. H. Stark & C. G. Garton. *Electric Strength of Irradiated Polythene*. Nature, vol. 176, no. 4495, pages 1225–1226, 1955. lien internet

[Stoyanov 09] H. Stoyanov, D. Mc Carthy, M. Kollosche & G. Kofod. *Dielectric properties and electric breakdown strength of a subpercolative composite of carbon black in thermoplastic copolymer*. Applied Physics Letters, vol. 94, no. 23, pages 232905–3, 2009. lien internet

[Stoyanov 10a] H. Stoyanov, M. Kollosche, D. N. McCarthy & G. Kofod. *Molecular composites with enhanced energy density for electroactive polymers*. Journal of Materials Chemistry, vol. 20, no. 35, pages 7558–7564, 2010. lien internet

[Stoyanov 10b] H. Stoyanov, M. Kollosche, S. Risse, D. N. McCarthy & G. Kofod. *Elastic block copolymer nanocomposites with controlled interfacial interactions for artificial muscles with direct voltage control*. Soft Matter, vol. 7, no. 1, pages 194–202, 2010. lien internet

[Stoyanov 12] H. Stoyanov, P. Brochu, X. Niu, E. Della Gaspera & Q. Pei. *Dielectric elastomer transducers with enhanced force output and work density*. Appied Physics Letters, vol. 100, no. 26, pages 262902–3, 2012. lien internet

[Suo 10] Z. Suo. *Theory of dielectric elastomers*. Acta Mechanica Solidia Sinina, vol. 23, 2010. lien internet

[Urdaneta 07] M. G. Urdaneta, R. Delille & E. Smela. *Stretchable Electrodes with High Conductivity and Photo-Patternability.* Advanced Materials, vol. 19, no. 18, page 2629–2633, 2007. lien internet

[Vertechy 13] R. Vertechy, M. Fontana, G. P. Rosati Papini & M. Bergamasco. *Oscillating-water-column wave-energy-converter based on dielectric elastomer generator.* Proceeding of SPIE, vol. 8687, pages 86870I–86870I, 2013. lien internet

[Wang 12] H. Wang, C. Wang & T. Yuan. *On the energy conversion and efficiency of a dielectric electroactive polymer generator.* Applied Physics Letters, vol. 101, no. 3, pages 033904–033904–5, 2012. lien internet

[Wang 13] Y. Wang, H. Xue, H. Chen & J. Qiang. *A dynamic visco-hyperelastic model of dielectric elastomers and their energy dissipation characteristics.* Applied Physics A, 2013. lien internet

[Wei 11] H. Wei. *Modeling viscoelastic dielectrics.* Journal of the Mechanics and Physics of Solids, vol. 59, no. 3, pages 637–650, 2011. lien internet

[Wissler 05] M. Wissler & E. Mazza. *Modeling and simulation of dielectric elastomer actuators.* Smart Materials and Structures, vol. 14, no. 6, pages 1396–1402, 2005. lien internet

[Wissler 07] M. Wissler & E. Mazza. *Electromechanical coupling in dielectric elastomer actuators.* Sensors and Actuators A : Physical, vol. 138, no. 2, pages 384–393, 2007. lien internet

[Xu 10] B. X. Xu, R. Mueller, M. Klassen & D. Gross. *On electromechanical stability analysis of dielectric elastomer actuators.* Applied Physics Letters, vol. 97, no. 16, pages 162908–162908–3, 2010. lien internet

[Yang 12] D. Yang, L. Zhang, H. Liu, Y. Dong, Y. Yu & M. Tian. *Lead magnesium niobate-filled silicone dielectric elastomer with large actuated strain.* Journal of Applied Polymer Science, vol. 125, no. 3, page 2196–2201, 2012. lien internet

[Yeoh 90] O. H. Yeoh. *Characterization of Elastic Properties of Carbon-Black-Filled Rubber Vulcanizates.* Rubber Chemistry and Technology, vol. 63, no. 5, pages 792–805, 1990. lien internet

[Yuan 13] W. Yuan, L. Hu, Z. Yu, T. Lam, J. Biggs, S. M. Ha, D. Xi, B. Chen, M. K. Senesky, G. Grüner & Q. Pei. *Fault-Tolerant Dielectric Elastomer Actuators using Single-Walled Carbon Nanotube Electrodes.* Advanced Materials, vol. 20, no. 3, pages 621–625, 2013. lien internet

[Zhang 04] X. Zhang, M. Wissler, B. Jaehne, R. Breonnimann & G. Kovacs. *Effects of crosslinking, prestrain, and dielectric filler on the electromechanical response of a new silicone and comparison with acrylic elastomer.* Proceeding of SPIE, vol. 5385, pages 78–86, 2004. lien internet

[Zhang 10] Z. Zhang, Y. Liu & J. Leng. *Effects of conductive particles on the actuating behavior of dielectric elastomer actuator*. Proceeding of SPIE, vol. 7642, page 76420S, 2010. lien internet

[Zhao 07] X. Zhao & Z. Suo. *Method to analyze electromechanical stability of dielectric elastomers*. Applied Physics Letters, vol. 91, no. 6, pages 061921–061921–3, 2007. lien internet

[Zhao 08] X. Zhao & Z. Suo. *Electrostriction in elastic dielectrics undergoing large deformation*. Journal of Applied Physics, vol. 104, no. 12, pages 123530–123530–7, 2008. lien internet

[Zhao 09] X. Zhao & Z. Suo. *Electromechanical instability in semicrystalline polymers*. Appied Physics Letters, vol. 95, no. 3, pages 031904–3, 2009. lien internet

[Zhao 10] X. Zhao & Z. Suo. *Theory of Dielectric Elastomers Capable of Giant Deformation of Actuation*. Physical Review Letters, vol. 104, no. 17, page 178302, 2010. lien internet

[Zhao 11] X. Zhao, S. J. A. Koh & Z. Suo. *Nonequilibrium thermodynamics of dielectric elastomers*. International Journal of Applied Mechanics, vol. 03, no. 02, pages 203–217, 2011. lien internet

Contribution à la conception de générateurs électroactifs souples

Résumé

Récupérer l'énergie mécanique ambiante est une alternative prometteuse afin d'assurer l'autonomie énergétique d'appareils nomades**.** Le développement des générateurs électrostatiques souples reste toutefois à ce jour anecdotique du fait des hautes tensions de polarisation employées, de la nécessité de grandes déformations mécaniques mais aussi de l'utilisation de matériaux peu conventionnels et mal caractérisés. Le but de cette thèse est d'apporter des avancées scientifiques et des solutions aux verrous technologiques précités.

Tout d'abord, une caractérisation rigoureuse des propriétés électriques et mécaniques de deux matériaux communément utilisés pour ces applications (acrylate VHB 4910 et silicone Polypower) nous a donné accès aux propriétés physiques dans un fonctionnement réel de ces polymères : influence de la précontrainte, de la nature des électrodes... Ces données ont permis d'élaborer des lois analytiques fiables que nous avons ensuite insérées dans un modèle thermodynamique permettant de définir avec précision les puissances et densités d'énergie récupérables pour ces générateurs. Des pistes d'amélioration des matériaux utilisés dans les applications générateurs peuvent être dégagées de notre modèle.

Le second verrou à lever concerne la source haute tension de polarisation nécessaire à ces générateurs électrostatiques. Pour cela, nous avons proposé une solution innovante couplant l'élastomère diélectrique à un électret. Différentes configurations de générateurs hybrides dans des géométries 2D et 3D ont été évaluées. Enfin, nous avons réalisé un prototype qui a délivré une puissance de l'ordre de 35µW sachant qu'une optimisation de ce prototype est réalisable et que des puissances récupérées de plusieurs centaines de µW sont tout à fait réalistes.

Mots clés : élastomères diélectriques, électrets, générateurs à base d'élastomère diélectrique, générateurs souples, hybridation.

Contribution to the conception of soft dielectric elastomer generators

Abstract

Scavenging mechanical ambient energy is a promising solution to ensure the autonomy of wearable transducers. Nevertheless, the development of soft electrostatic generator (DEG) is up to now slow down due to the use of high bias voltage, high strain and innovative mischaracterized materials. The aim of this Ph-D thesis is to propose innovative solutions to these technological barriers.

Firstly, a complete characterization of the electrical and mechanical properties of two commonly used dielectric polymer (acrylate VHB 4910 and silicone Polypower) has revealed the true physical properties of these polymers and especially the influence of the pre-stress and the nature of the electrode used. Thanks to these data, reliable analytic laws have been proposed and inserted into our thermodynamic model in order to predict the output power and scavenged energy density for the DEG. Moreover, our model allow us to propose improvements for the materials used in these applications.

The second challenge is to propose an alternative to the high bias voltage needed for these soft generators. We have proposed an innovative solution combining an electret and a dielectric elastomer. Various configurations of hybrid generators in 2D or 3D geometry have been modelled and evaluated. Finally, a prototype has been designed allowing scavenging 35µW. With an appropriate optimization of our prototype, hundreds of µW can be scavenged.

Key words: dielectric elastomer, electrets, dielectric elastomer generator, soft generators, hybridization.