



HAL
open science

Développement de nouveaux matériaux polymères pour micro-capteurs de vibrations

Achraf Kachroudi

► **To cite this version:**

Achraf Kachroudi. Développement de nouveaux matériaux polymères pour micro-capteurs de vibrations. Polymères. Université Grenoble Alpes; Université de Tunis El-Manar. Faculté des Sciences de Tunis (Tunisie), 2016. Français. NNT : 2016GREAT099 . tel-01578928

HAL Id: tel-01578928

<https://theses.hal.science/tel-01578928>

Submitted on 30 Aug 2017

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.

THÈSE

Pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE LA COMMUNAUTE UNIVERSITE
GRENOBLE ALPES**

**Préparée dans le cadre d'une cotutelle entre la
Communauté Université Grenoble Alpes et
Université de Tunis El Manar**

Spécialité : **Nano électronique Nano technologies**

Arrêté ministériel : le 6 janvier 2005 - 7 août 2006

Présentée par

Achraf KACHROUDI

Thèse dirigée par **Skandar Basrou**
codirigée par **Fathi Jomni**

préparée au sein des **Laboratoires TIMA (Grenoble, France)**
et **LMOP (Tunis, Tunisie)**

dans les **Écoles Doctorales EEATS (Grenoble, France)**
et **MISMT (Tunis, Tunisie)**

Développement de nouveaux matériaux polymères pour micro-capteurs de vibrations

Thèse soutenue publiquement le **14 Décembre 2016**,
devant le jury composé de :

M. Alain SYLVESTRE

Professeur à l'Université Grenoble Alpes, Président

M. Emmanuel DEFAY

Ingénieur Docteur à l'IST Luxembourg, Rapporteur

M. Fehmi NAJAR

Maître de Conférences à l'EPT Tunisie, Rapporteur

M. Mickaël LALLART

Maître de Conférences à l'INSA de Lyon, Examineur

M. Skandar BASROUR

Professeur à l'Université Grenoble Alpes, Directeur

M. Fathi JOMNI

Professeur à la FST Tunisie, Co-directeur



À la mémoire de mes grands parents.

*À mes parents, pour ce que vous m'avez inculqué,
les sacrifices que vous avez consentis pour moi, mais
encore plus pour votre soutien, votre confiance et votre présence.*

À mon cher frère, pour ton soutien permanent.

*À l'âme de ma chère tante qui nous a quittés
prématurément.*

À ma chère Emma.

Remerciements

LA RECONNAISSANCE EST LA MÉMOIRE DU CŒUR.

*HANS CHRISTIAN ANDERSEN
Écrivain et poète danois (1805-1875)*

Tout d'abord, je tiens à remercier vivement Monsieur Skandar BASROUR qui a dirigé mes travaux de thèse. Je tiens à lui exprimer ma gratitude pour la qualité de ses conseils. Sa perception, son œil critique, sa minutie et sa rigueur m'ont marqué à jamais et m'ont permis de développer mon goût pour la recherche. J'exprime ma gratitude également pour Monsieur Fathi JOMNI qui a assuré le co-encadrement de ma thèse.

Je tiens aussi à remercier Monsieur Alain SYLVESTRE pour avoir accepté de présider le jury et d'évaluer mon travail.

Tout mon respect et ma gratitude s'adressent à mes deux rapporteurs de thèse Monsieur Emmanuel DEFAY et Monsieur Fehmi NAJAR pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail en acceptant de le juger et pour le temps qu'ils ont consacré pour la lecture de cette thèse.

Mes sincères remerciements s'adressent également à Monsieur Mickaël LALLART de m'avoir honoré en acceptant d'examiner ma thèse.

Je remercie Monsieur Vincent MAREAU pour son assistance technique et scientifique dans les caractérisations mécaniques.

Je ne peux conclure sans adresser mes remerciements au personnel du laboratoire de recherche TIMA (Techniques de l'Informatique et de la Microélectronique pour l'Architecture des systèmes intégrés), du laboratoire G2eLab et du CIME nanotech de m'avoir accueilli dans leurs structures de recherches. L'expérience était très riche.

Résumé

L'exploitation des matériaux piézoélectriques dans des micro-capteurs de vibrations mécaniques ont été une alternative prometteuse pour avoir accès à certaines grandeurs physiques (accélération, force, déplacement...etc). Toutefois, la rigidité des matériaux céramiques et semi-conducteurs constitue une limite pour leur intégration dans des capteurs pour les faibles fréquences ou faisant l'objet de grandes déformations. Le but de cette thèse est de développer de nouveaux matériaux de type piézo-électrets souples à base de polydiméthylsiloxane (*PDMS*).

Tout d'abord, une phase de conception basée sur des simulations analytiques ont permis de fixer les paramètres géométriques des structures permettant d'optimiser la figure de mérite des micro-capteurs. Cette phase est suivie par l'étape de micro-fabrication basée sur le procédé de moulage. Les structures obtenues sont chargées par contact direct pour pouvoir implanter les charges dans les micro-cavités et assurer le comportement piézoélectrique.

Le seconde étape concerne les caractérisations piézoélectriques des matériaux ainsi obtenus. Les piézo-électrets à base de *PDMS* que nous avons conçus présentent des coefficients piézoélectriques longitudinaux élevés qui sont de $350pC/N$ en piézoélectricité indirecte et de $430pC/N$ pour la piézoélectricité directe. Par ailleurs, nous avons montré que ces matériaux maintiennent leur piézoélectricité sur une large gamme de température $[-25^{\circ}C, 85^{\circ}C]$.

Enfin, un prototype de capteur intégrant ces piézo-électrets a été conçu, fabriqué et caractérisé. En excitation inertielle ($0.1g$), il présente une sensibilité constante de $385mV/g$ pour des fréquences de $5Hz$ à $200Hz$. En mode récupérateur d'énergie, ce prototype a fourni aussi une densité de puissance constante de $1.3nW/mm^3$ constante sur la même plage de fréquences.

Mots Clés :

- Piézo-électret
- Polydiméthylsiloxane (*PDMS*)
- Matériaux souples
- Polymère électro-actif
- Micro-capteurs

Abstract

The use of piezoelectric materials in mechanical vibration micro-sensors have been a promising alternative to have access to certain physical quantities (acceleration, force, displacement...etc). However, the rigidity of ceramics and semiconductors constitute a limit to their integration in the micro-sensors working at low frequencies or subjected to high deformations at low frequencies. The aim of this thesis is to develop new type of flexible piezoelectric materials referred as piezo-electret based on polydimethylsiloxane (*PDMS*).

First, a design based on analytical simulations steps were used to determine the geometric parameters of the structures allowing us to optimize the micro-sensors figure of merit. This phase is followed by micro-fabrication step based on the molding process. The resulting structures are electrically charged by direct contact in order to implement the charges in micro-cavities and ensure the piezoelectric behavior.

The second step concerns the piezoelectric characterizations of the obtained materials. The piezo-electret based on *PDMS* present high longitudinal piezoelectric coefficients which are of $350pC/N$ in the inverse piezoelectric mode and of $430pC/N$ for the direct piezoelectric mode. We have shown that these materials maintain their piezoelectricity over a wide range of temperature $[-25^{\circ}C, 85^{\circ}C]$.

Finally, we have designed a sensor prototype incorporating these piezo-electrets. It provided a constant sensitivity of $385mV/g$ covering frequencies from $5Hz$ to $200Hz$ at $0.1g$ of acceleration. This prototype can be used as an energy harvester, it provided a constant power density of $1.3nW/mm^3$ for the same frequency range.

Keywords :

- Piezo-electret
- Polydiméthylsiloxane (*PDMS*)
- Flexible materials
- Electro-active polymer
- Micro-sensors

Table des matières

Introduction générale	1
1 État de l'art : les matériaux piézoélectriques	5
1.1 Introduction	5
1.2 La piézoélectricité	6
1.2.1 Définition	6
1.2.2 Équations de la piézoélectricité	7
1.2.3 Équations d'état	7
1.2.4 Grandeurs piézoélectriques	11
1.3 Les matériaux piézoélectriques	13
1.3.1 Les cristaux et les céramiques	13
1.3.2 Les semi-conducteurs	16
1.3.3 Les polymères	18
1.3.4 Les piézo-composites	22
1.3.5 Les piézo-électrets	23
1.4 Figure de mérite	26
1.5 Les applications	27
1.6 Conclusion	29
2 Conception et micro-fabrication des matériaux micro-structurés	31
2.1 Introduction	31
2.2 Modèle analytique des matériaux piézo-électrets	32
2.3 Choix du polymère	36
2.4 Optimisation de la figure de mérite	38
2.4.1 Modélisation des propriétés diélectriques du PDMS massif	38
2.4.2 Modélisation des propriétés diélectriques du PDMS micro-structuré	41
2.4.3 Procédé de micro-fabrication	46
2.4.4 Étude de la fiabilité du modèle	47
2.5 Chargement électrique	49
2.5.1 Description du procédé du chargement électrique	49
2.5.2 Condition de chargement électrique	49
2.5.3 Phénomène de saturation	51
2.5.4 Phénomène de neutralisation des charges	54
2.5.5 Effet du temps de chargement électrique	59
2.6 Conclusion	61

3	Etude des propriétés diélectriques des matériaux micro-structurés	63
3.1	Introduction	63
3.2	Etude des propriétés diélectriques	64
3.2.1	Principe de mesure de la spectroscopie diélectrique	64
3.2.2	Circuit électrique équivalent	65
3.2.3	Dispositifs de mesure de spectroscopie diélectrique	65
3.2.4	La polarisation électrique	66
3.2.5	Etude des propriétés diélectriques du PDMS massif et micro-structuré	83
3.3	Conclusion	93
4	Investigations des propriétés piézoélectriques	95
4.1	Introduction	95
4.2	Étude des propriétés piézoélectriques en mode indirect	96
4.2.1	Formalisme théorique	96
4.2.2	Étude de la stabilité thermique de la piézoélectricité des matériaux piézo-électrets	98
4.2.3	Amélioration de la stabilité thermique de la piézoélectricité	102
4.2.4	Effet des proportions stœchiométriques sur les propriétés piézoélectriques	107
4.3	Étude des propriétés piézoélectriques en mode direct	112
4.3.1	Formalisme théorique	112
4.3.2	Montage expérimental	114
4.3.3	Résultats et discussions	115
4.4	Conclusion	123
5	Intégration du piézo-électret dans un capteur	125
5.1	Introduction et motivations	126
5.2	Structure de poutres séparées par un gap d'air	129
5.3	Equilibre des forces et des moments de flexion	130
5.4	Modes de flexion	131
5.5	Décomposition des forces et des moments de flexion	132
5.5.1	Equations pour la flexion rotationnelle	132
5.5.2	Equations pour la flexion translationnelle	135
5.5.3	Expressions de la constante de raideur du système	136
5.5.4	Fréquence de résonance et déformation pour la membrane piézoélectrique	137
5.6	Conception d'un prototype	138
5.7	Caractérisations électromécaniques du prototype	140
5.8	Conclusion	142

Conclusion générale et perspectives	143
Liste des publications	147
Bibliographie	149
Annexe A : Relation entre la permittivité d'un diélectrique et la polarisabilité des espèces qui le constituent	161
Annexe B : Fonction de réponse diélectrique	163
Annexe C : Le modèle de l'électron élastiquement lié	165
Annexe D : Polarisation dipolaire en champ électrique alternatif	167
Annexe E : Rappel de la théorie des poutres	169

Table des figures

1.1	Schématisation de l'effet piézoélectrique direct (à gauche) et indirect (à droite).	6
1.2	Organigramme des 32 classes cristallines [Brissaud, 2007].	7
1.3	Relations entre les différentes grandeurs physiques.	8
1.4	Illustration schématique d'un film piézoélectrique ayant une polarisation permanente \vec{P}	11
1.5	Illustration schématique d'un matériau piézoélectrique ayant une polarisation permanente en effet direct.	12
1.6	Poutre piézoélectrique à base de sel de Rochelle pour des microcapteurs pour la récupération d'énergie vibratoire et pour des applications acoustiques [Lemaire <i>et al.</i> , 2015].	14
1.7	Photo par la microscopie à balayage électronique du <i>PZT</i> poreux [Lee <i>et al.</i> , 2007].	16
1.8	Etat de la surface d'une couche de <i>AlN</i> déposée par pulvérisation magnétron réactive à basse température [Tonischa <i>et al.</i> , 2006].	17
1.9	Photo par microscopie électronique des nanofils de <i>ZnO</i> [Wang et Song, 2006].	17
1.10	Photo par microscopie électronique du <i>ZnO</i> poreux [Liu <i>et al.</i> , 2005].	18
1.11	Structure moléculaire du (a) <i>PVDF</i> et (b) <i>PVDF - TrFE</i>	19
1.12	Structure moléculaire du parylène C.	21
1.13	Structure moléculaire du Polyimide ($\beta - CN$) <i>APB/ODPA</i>	21
1.14	Photographie par microscopie électronique à balayage d'un piézoélectret multi-couches massif [Zhang <i>et al.</i> , 2010].	24
1.15	Photographies par microscopie électronique à balayage d'un piézoélectret micro-structuré <i>PP</i> obtenus par injection de gaz (à gauche) et <i>PDMS</i> obtenu par moulage (à droite) [Anton <i>et al.</i> , 2014, Shi <i>et al.</i> , 2014].	24
1.16	Capteur à base de matériaux piézo-électret <i>PP</i> [Hyun <i>et al.</i> , 2014].	28
1.17	Capteur à base de matériaux piézo-électret <i>PP</i> [Vodafone, 2013].	28
2.1	Modèle simplifié d'un piézo-électret à base de <i>PP</i> basé sur des couches chargées de polymère massif et des couches de gaz [Alvarez-Arenas, 2013].	33
2.2	Modèle d'un piézo-électret avec un arrangement régulier des microcavités.	33
2.3	Modélisation d'un matériau piézo-électret par un système de ressorts.	35
2.4	Ajustement de la partie réelle ϵ'_b (a) et imaginaire ϵ''_b (b) du PDMS massif à partir du modèle de la figure 2.5.	39

2.5	Modèle électrique proposé pour les propriétés diélectriques du <i>PDMS</i> massif.	39
2.6	Algorithme pour la prédiction des propriétés diélectriques des matériaux micro-structurés.	41
2.7	Vue 3D d'une maille élémentaire discrétisée d'un matériau PDMS micro-structuré et son circuit électrique équivalent correspondant. . .	42
2.8	Variation de la <i>FOM</i> en fonction des paramètres géométriques des structures pour différentes configurations.	45
2.9	Croquis du déroulement du procédé de fabrication du matériau PDMS micro-structuré.	46
2.10	Illustration schématique de la structure finale et une image par microscopie électronique de la couche micro-structurée.	47
2.11	Modélisation des propriétés diélectriques des matériaux <i>PDMS</i> micro-structurés pour différentes épaisseurs des couches massives à 25°C. . .	48
2.12	Modélisation des propriétés diélectriques des matériaux <i>PDMS</i> micro-structurés avec différents pas des micro-cavités à 25°C.	48
2.13	Valeurs du champ de la rigidité diélectrique du <i>PDMS</i> pour différentes valeurs de températures.	50
2.14	Le champ électrique (a) et la tension (b) de claquage en fonction du gap d'air pour une pression de 1 bar relativement à la loi de <i>Paschen</i> . . .	51
2.15	Le procédé d'implantation des charges électriques dans les micro-cavités : (a) les matériaux sont soumis à une tension et (b) la tension de polarisation est supprimée.	52
2.16	Représentation schématique d'une capacité formée à partir d'une maille élémentaire de la structure sous l'action d'une tension V_{DC}	54
2.17	Représentation pour le calcul de la capacité variable.	55
2.18	Illustration des formes des parois circulaires (a) avant et (b) après l'application d'une tension V_{DC}	57
2.19	Représentation du rapport x en fonction de V_{DC} pour différentes températures.	58
2.20	La partie réelle et imaginaire de la capacité des matériaux <i>PDMS</i> micro-structurés à la température ambiante et pour différents temps de chargement électrique pour une tension appliquée $V = 1V_{rms}$	60
3.1	Principe de mesure en spectroscopie diélectrique.	64
3.2	Modèle électrique proposé pour les propriétés diélectriques du <i>PDMS</i> massif.	65
3.3	Schéma du banc de spectroscopie diélectrique.	66
3.4	Polarisation d'un matériau diélectrique.	67
3.5	Schéma explicatif de la polarisation électronique.	72
3.6	Schéma explicatif de la polarisation atomique.	73

Table des figures

3.7	Schéma explicatif de la polarisation dipolaire.	74
3.8	Spectre diélectrique de relaxation de type Debye.	75
3.9	Schéma explicatif de la polarisation interfaciale.	77
3.10	Présentation du modèle de Maxwell-Wagner du point de vue physique.	77
3.11	Présentation du modèle de Maxwell-Wagner de point de vue électrique.	77
3.12	Modèle de Maxwell-Wagner (a) et Maxwell-Wagner Sillars (b, c, d).	79
3.13	Variation de la partie réelle ϵ'_r et imaginaire ϵ''_r de la permittivité en fonction de la fréquence.	80
3.14	Modèle de conduction par saut où 'a' est la distance de saut.	82
3.15	Variations de la partie réelle et imaginaire de la permittivité du <i>PDMS</i> massif d'épaisseur $t_b = 100\mu m$ en fonction de la fréquence et de la température.	84
3.16	Variations de la partie réelle et imaginaire de la permittivité du <i>PDMS</i> micro-structuré en fonction de la fréquence et de la température.	84
3.17	Variations de la constante diélectrique en fonction de la température pour le <i>PDMS</i> massif et micro-structuré à la fréquence de $100Hz$	85
3.18	Évolution de la conductivité σ_{AC} du <i>PDMS</i> micro-structuré en fonction de la fréquence et de la température.	86
3.19	Variations de σ_{DC} en fonction de la température pour le <i>PDMS</i> massif et micro-structuré.	87
3.20	Évolution de l'exposant $n(T)$ en fonction de la température pour le <i>PDMS</i> massif et micro-structuré.	88
3.21	Variation de l'exposant $(1 - n(T))$ en fonction de la température pour le <i>PDMS</i> massif et micro-structuré.	89
3.22	Modèle schématique des mécanismes de conduction- <i>AC</i> pas saut ("hopping") pour le <i>PDMS</i> massif et micro-structuré.	89
3.23	Variation de la partie réelle du module électrique M'_{33} du <i>PDMS</i> micro-structuré en fonction de la température.	91
3.24	Variation de la partie imaginaire du module électrique M''_{33} du <i>PDMS</i> micro-structuré en fonction de la température.	91
3.25	Variation de f_{max} en fonction de la température pour le <i>PDMS</i> micro-structuré.	92
3.26	Variation de la constante diélectrique ϵ'_{33} en fonction de la température à $100Hz$	93
4.1	Variation de C''_{TE} pour le matériau <i>PDMS</i> micro-structuré non-chargé en fonction de la fréquence et de la température de mesure.	98
4.2	Variation de C''_{TE} pour le matériau <i>PDMS</i> micro-structuré chargé à $25^\circ C$ en fonction de la fréquence et de la température de mesure.	99

4.3	Ajustement de la courbe de la partie imaginaire de la capacité du matériau <i>PDMS</i> piézo-électret autour de la résonance.	99
4.4	Variation du coefficient de couplage k'_{33} et le coefficient piézoélectrique d_{33} en fonction de la température.	100
4.5	Variations de la partie réelle et imaginaire de la constante de rigidité élastique en fonction de la température.	101
4.6	Évolution de C''_{TE} pour le <i>PDMS</i> micro-structuré chargé à $50^{\circ}C$. . .	103
4.7	Évolution de C''_{TE} pour le <i>PDMS</i> micro-structuré chargé à $100^{\circ}C$. . .	103
4.8	Variations de c'_{33} en fonction de la température.	104
4.9	Variations de c''_{33} en fonction de la température.	105
4.10	Variation du coefficient de couplage k'_{33} en fonction de la température.	106
4.11	Variation du coefficient piézoélectrique d_{33} en fonction de la température.	106
4.12	Spectre Infra-rouge par transmittance pour du <i>PDMS</i> pour différentes proportions stœchiométriques entre le pré-polymère et l'agent réticulant.	107
4.13	Ajustement des courbes de C''_{TE} des matériaux piézo-électrets en <i>PDMS</i> pour différentes proportions stœchiométriques entre le pré-polymère et l'agent réticulant autour de la résonance à $25^{\circ}C$	108
4.14	Variations de la partie réelle du coefficient du rigidité élastique c'_{33} et du coefficient piézoélectrique d_{33} des matériaux piézo-électrets en <i>PDMS</i> pour différentes proportions stœchiométriques entre le pré-polymère et l'agent réticulant autour de la résonance à $25^{\circ}C$	109
4.15	Évolution de C''_{TE} pour le <i>PDMS</i> micro-structuré chargé à $25^{\circ}C$ pour les proportions 1:5.	110
4.16	Évolution de C''_{TE} pour le <i>PDMS</i> micro-structuré chargé à $25^{\circ}C$ pour les proportions 1:15.	110
4.17	Évolution de C''_{TE} pour le <i>PDMS</i> micro-structuré chargé à $25^{\circ}C$ pour les proportions 1:20.	111
4.18	Variations du coefficient piézoélectrique d_{33} des piézo-électrets à base de <i>PDMS</i> pour différentes proportions stœchiométriques entre le pré-polymère et l'agent réticulant.	111
4.19	Présentation schématique de la structure de mesure.	114
4.20	Montage du test électromécanique.	114
4.21	Coefficient piézoélectrique quasi-statique $d_{33,s}$ en appliquant des masses sur les échantillons, la surface totale des échantillons fait $2 \times 2cm^2$. . .	115
4.22	Variations de la partie réelle du module de Young du <i>PDMS</i> massif en fonction de la fréquence et de la température.	117
4.23	Variations de la partie imaginaire du module de Young du <i>PDMS</i> massif en fonction de la fréquence et de la température.	117
4.24	Les variations de la partie réelle du module de Young du <i>PDMS</i> micro-structuré en fonction de la fréquence et de la température. . . .	118

4.25	Les variations de la partie imaginaire du module de Young du <i>PDMS</i> micro-structuré en fonction de la fréquence et de la température.	118
4.26	Coefficient piézoélectrique dynamique $d_{33,dyn}$ en fonction de la fréquence.	119
4.27	Coefficient piézoélectrique dynamique $d_{33,dyn}$ en fonction de la fréquence en dépendance de la contrainte statique.	120
4.28	Stabilité thermique du coefficient piézoélectrique dynamique $d_{33,dyn}$ pour des échantillons subissant des recuits d'une heure pour chaque température.	121
4.29	Variation du coefficient piézoélectrique dynamique $d_{33,dyn}$ en fonction du nombre de couches micro-structurées à $25^{\circ}C$	122
5.1	Illustration comparative entre une poutre à gap d'air (a) et une poutre conventionnelle(b).	128
5.2	Structure de la poutre assymétrique avec un gap d'air.	129
5.3	Bilan des forces et des moments appliquées à une poutre avec un gap d'air lors de la flexion.	130
5.4	Illustration des deux modes de flexion de la poutre avec gap d'air : flexion rotationnelle (a) et flexion translationnelle (b).	131
5.5	Forces et moments pour la flexion rotationnelle (a) et translationnelle (b).	132
5.6	Photo du prototype réalisé au laboratoire avec une poutre en aluminium ($30.59mm \times 20.55mm \times 0.5mm$), une poutre en piézo-électret PDMS ($30.59mm \times 10.34mm \times 0.25mm$) et une masse sismique en aluminium ($50.59mm \times 50.59mm \times 2mm$).	139
5.7	Montage utilisé pour étudier la sensibilité et l'énergie récupérée par le système de poutre avec un gap d'air.	139
5.8	Variation du déplacement de la poutre avec un gap d'air en fonction de la fréquence entre $3.7Hz$ à $200Hz$ et en fonction de l'accélération.	140
5.9	Sensibilité de la poutre avec un gap d'air en fonction de la fréquence entre $3.7Hz$ à $200Hz$ et en fonction de l'accélération.	141
5.10	Courbe représentant la puissance générée par la poutre piézoélectrique en fonction de la fréquence entre $3.7Hz$ à $200Hz$ et en fonction de de la résistance.	141
E1	Schématisation des forces normales et de cisaillement sur une surface plane d'un solide parallépipédique	170
E2	Coupe infinitésimale de la poutre subissant une flexion (a) et relation entre l'angle de flexion et le déplacement de la poutre dans le plan de la coupe dans la direction x	171
E3	Illustration du stress normal et le moment de flexion pour la coupe d'une poutre.	172
E4	Flexion d'une poutre conventionnelle encastré-libre.	174

Liste des tableaux

1.1	Propriétés de quelques matériaux polymères piézoélectriques massifs [Harrison et Ounaies, 2002, Li <i>et al.</i> , 2008, Sharma <i>et al.</i> , 2012, Kim <i>et al.</i> , 2011, Kim <i>et al.</i> , 2012, Park <i>et al.</i> , 2004].	22
1.2	Propriétés de quelques matériaux polymères piézocomposites [Prashanthi <i>et al.</i> , 2013, Zhang <i>et al.</i> , 2011, Matt et di Scalea, 2007, Yang <i>et al.</i> , 2009].	23
1.3	Propriétés de quelques matériaux polymères piézo-électrets [Anton <i>et al.</i> , 2014, Mellinger, 2003, Mellinger <i>et al.</i> , 2001a, Fang <i>et al.</i> , 2007, Wang <i>et al.</i> , 2012].	26
1.4	Figure de mérite de quelques matériaux piézoélectriques [Wang <i>et al.</i> , 1998, Nagata et Takenaka, 1997, Kim <i>et al.</i> , 2011, Harrison et Ounaies, 2002, Mellinger <i>et al.</i> , 2001b, Fang <i>et al.</i> , 2007, Wang <i>et al.</i> , 2012].	27
2.1	Propriétés diélectriques et mécaniques de quelques matériaux polymères [Brandrup <i>et al.</i> , 2003, Thomas <i>et al.</i> , 2010, Luo <i>et al.</i> , 2013, Pramila <i>et al.</i> , 1993].	37
2.2	Variation de la tension de neutralisation des structures pour différentes températures de chargement électrique.	59
4.1	Comparaison de la figure de mérite de notre piézo-électret à base du <i>PDMS</i> à celle des autres matériaux piézoélectriques [Wegener <i>et al.</i> , 2004, Kim <i>et al.</i> , 2011, Anton <i>et al.</i> , 2014, Mellinger <i>et al.</i> , 2001b, Fang <i>et al.</i> , 2007].	102
5.1	Quelques sources de modes de vibrations mécaniques avec leurs fréquences correspondantes [Roundy <i>et al.</i> , 2003, Ikeda <i>et al.</i> , 1998, Roundy, 2005].	126
5.2	Symboles des dimensions géométriques des éléments constituant la poutre avec un gap d'air.	129

Introduction générale

Contexte

Les domaines où la mesure d'une grandeur physique (exemples : pression, température,...etc) via des micro-capteurs sont devenus multiples. En effet, le développement de ces derniers est devenu indispensable surtout pour contrôler le fonctionnement des systèmes communicants, à savoir, la surveillance du fonctionnement des machines, la surveillance des personnes,...etc. Les micro-capteurs ont été également orientés vers la récupération d'énergie dissipée sous formes de vibrations mécaniques, thermique...etc, existant dans notre vie quotidienne [Marzencki *et al.*, 2009, Defosseux, 2011, Colin *et al.*, 2013]. L'énergie restituée par ces capteurs sert en général à alimenter les nœuds de réseaux de capteurs sans fil afin de résoudre le problème de changement des batteries à durée de vie limitée, de leur recyclage mais aussi de la pollution associée. Cela met en question l'une des caractéristiques les plus visées par les chercheurs pour les capteurs qui est l'autonomie. Ainsi, récupérer l'énergie ambiante sous toutes ses formes pouvant correspondre à des différentes sources d'énergie ambiantes comme la lumière, le vent, un gradient de température, des vibrations mécaniques peut constituer une alternative prometteuse afin d'assurer l'autonomie de point de vue énergétique des appareils nomades.

Pour toutes ces raisons, des efforts ont été fournis pour améliorer la précision, la fiabilité et la robustesse des capteurs. De nombreux travaux ont été réalisés également sur la miniturisation. Beaucoup de capteurs ont été développés avec des éléments piézoélectriques. Ainsi, leur développement dépend d'une façon directe du développement, l'optimisation et la micro-fabrication des éléments piézoélectriques. Les premiers matériaux piézoélectriques intégrés dans les capteurs sont des cristaux tel que le *Quartz*, des éléments céramiques conventionnels tel que le Titanate-Zirconate de Plomb (*PZT*) et les semi-conducteurs tel que le l'Oxyde de Zinc (*ZnO*). Le *PZT* présente un inconvénient majeur bien identifié dans son nom, qui est la présence de plomb. Le plomb, étant un métal très nocif pour la santé humaine, plusieurs pays ont adoptés des politiques très strictes sur les produits en contenant. Dans la mesure du possible, les matériaux piézoélectriques contenant du plomb devront être remplacés. Toutefois, l'implication des matériaux piézoélectriques céramiques dans les capteurs est freiné par la résistance aux grandes déformations de ces derniers vu qu'ils présentent un module de Young élevé. Cela constitue un handicap pour leurs intégration dans les capteurs et les rendre adaptés à n'importe quelle forme et

taille là où ils doivent être insérés. Cette contrainte met en cause une des caractéristiques les plus recherchées pour les éléments piézoélectriques dans les capteurs : la souplesse.

De nombreux efforts ont été fournis afin d'aboutir à des éléments piézoélectriques pouvant subir de grandes déformations. L'une des solutions qui a été proposée par les chercheurs et les industriels est l'amincissement des matériaux piézoélectriques céramiques conventionnels [Colin *et al.*, 2013], ou encore, exploiter des matériaux céramiques et semi-conducteurs poreux ou en structure de fibres...etc [Tonischa *et al.*, 2006, Lee *et al.*, 2007]. Néanmoins, ces solutions proposées semblent être limitées car la souplesse atteinte n'est pas satisfaisante vu les propriétés mécaniques intrinsèques du matériau de base. Une autre alternative a permis d'atteindre ces objectifs, à savoir l'utilisation des matériaux polymères ferroélectriques tel que le poly(fluorure de vinylidène) (*PVDF*) qui a résolu dans une certaine mesure le problème vu sa faible sensibilité aux excitations extérieures et son faible coefficient piézoélectrique comparé à celui obtenu avec les céramiques. Nos efforts durant ce travail de thèse vont se focaliser sur le développement de nouveaux matériaux piézoélectriques micro-structurés à base de polymères. Ces derniers sont sensés combiner à la fois la souplesse et une sensibilité au signal d'entrée comparable à celle obtenue avec les matériaux céramiques. Ces matériaux ainsi développés pourront faire l'objet d'un élément actif dans des capteurs de vibrations mécaniques.

Motivations et objectifs

Notre travail s'insère dans le cadre d'un défi qui a été lancé par plusieurs équipes de recherche. En effet, nous développons dans ce cadre de thèse de nouveaux matériaux polymère piézoélectriques micro-structurés très souples et ayant une sensibilité et un coefficient piézoélectrique importants. Par conséquence, ces matériaux très souples pourront convertir des vibrations de basses fréquences en général inférieures à $200Hz$ mais aussi à des sollicitations en régime quasi-statique. Après une étude bibliographique, nous avons constaté que les polymères électroactifs constituent des candidats intéressants pour la réalisation de ces matériaux micro-structurés.

Structure du document

Notre travail dans ce mémoire se divise en quatre parties.

Le premier chapitre est consacré à un état de l'art et une revue des matériaux piézoélectriques existant dans la littérature. Nous rappelons également la théorie de la piézoélectricité. Nous illustrons par des exemples les différents matériaux piézoélectriques qui sont utilisés dans des transducteurs. Nous nous focalisons enfin sur les propriétés des matériaux micro-structurés à base de polymère nommés également des piézo-électrets.

Le second chapitre est dédié à l'optimisation des paramètres géométriques de structures conçues à travers la figure de mérite correspondante aux applications visées (capteurs de vibrations mécaniques en mode épaisseur). Puis, nous passerons à la description des différentes étapes de micro-fabrication. Les structures ainsi obtenues sont caractérisées d'un point de vue diélectrique via la spectroscopie d'impédance.

Le troisième chapitre porte sur l'effet piézoélectrique indirecte des structures obtenues afin d'accéder aux propriétés piézoélectriques et la stabilité thermique de la piézoélectricité de ces structures. Une étude de certains paramètres physiques influençant ces propriétés est également détaillée. Le quatrième chapitre est consacré aux tests électromécaniques des structures obtenues en piézoélectricité directe tout en tenant compte des différents paramètres influençant la réponse piézoélectrique des matériaux fins.

Le cinquième chapitre concerne un dispositif intégrant notre matériau pouvant servir comme accéléromètre ou récupérateur d'énergie de vibrations mécaniques.

Une conclusion générale et des perspectives achèvent notre manuscrit.

État de l'art : les matériaux piézoélectriques

Sommaire

1.1 Introduction	5
1.2 La piézoélectricité	6
1.2.1 Définition	6
1.2.2 Équations de la piézoélectricité	7
1.2.3 Équations d'état	7
1.2.4 Grandeurs piézoélectriques	11
1.3 Les matériaux piézoélectriques	13
1.3.1 Les cristaux et les céramiques	13
1.3.2 Les semi-conducteurs	16
1.3.3 Les polymères	18
1.3.4 Les piézo-composites	22
1.3.5 Les piézo-électrets	23
1.4 Figure de mérite	26
1.5 Les applications	27
1.6 Conclusion	29

1.1 Introduction

Ce chapitre est dédié essentiellement à la description de la théorie de la piézoélectricité et la modélisation électromécanique de la réponse des matériaux piézoélectriques. Nous allons présenter par la suite les derniers travaux reportés dans la littérature dans le cadre du développement des matériaux piézoélectriques. Nous allons également détailler les propriétés piézoélectriques des différentes classes des

matériaux pour finir par les comparer grâce à une figure de mérite reportée dans la littérature pour les capteurs de vibrations mécaniques. Nous nous focaliserons enfin sur la famille des matériaux piézoélectriques souples à laquelle nous nous sommes intéressés désignés par piézo-électrets. Nous présenterons aussi des exemples d'applications intégrant ce type de matériaux dans des capteurs récemment développés.

1.2 La piézoélectricité

1.2.1 Définition

Le mot "piézoélectricité" est la contraction de deux mots grecs "piezein" (pression) et "elektron" (électron). La piézoélectricité est une spécificité que présente certains matériaux (cristaux, céramiques, polymères ou composites) de transformer une énergie mécanique en une énergie électrique et inversement. La piézoélectricité a été mise en évidence qualitativement pour la première fois par l'abbé René Just Haüy en 1817. Néanmoins, la découverte est toujours attribuée à Pierre et Jacques Curie qui étaient les premiers à faire les études sur ces matériaux en 1880.

Nous distinguons les effets piézoélectriques direct et indirect. L'effet direct consiste en l'apparition des charges électriques suite à la soumission d'un matériau à une contrainte mécanique. Par contre, l'effet indirect correspond à l'apparition d'une déformation mécanique du matériau lorsque ce dernier est soumis à un champ électrique. La figure 1.1 représente les deux effets.

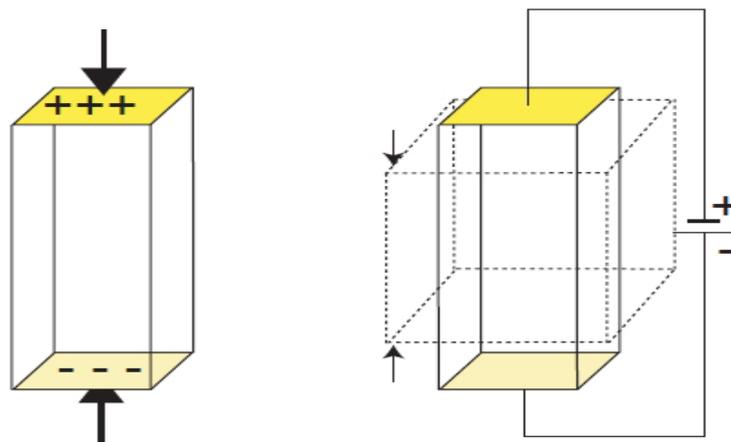


FIGURE 1.1: Schématisation de l'effet piézoélectrique direct (à gauche) et indirect (à droite).

1.2.2 Équations de la piézoélectricité

Les équations d'état permettent de percevoir quantitativement les phénomènes piézoélectriques (les déformations, l'apparition du champ électrique...etc). Le coefficient de couplage permet de quantifier la conversion piézoélectrique et les coefficients piézoélectriques permettent de quantifier la quantité de charges récupérées suite aux contraintes mécaniques et les déformations qui découlent de l'application d'un champ électrique extérieur.

1.2.3 Équations d'état

L'explication de la piézoélectricité exige une description fondamentale via une modélisation électromécanique. Cela consiste à coupler le comportement électrique et le comportement mécanique (relation entre deux variables : l'une électrique et l'autre mécanique). La description du phénomène de couplage est présentée dans le cas adiabatique : le cas d'une vibration rapide ou isotherme pour une transformation statique ou lentement variable. De plus, l'effet piézoélectrique n'apparaît que dans le cas des matériaux appartenant à des classes de symétrie cristalline ne présentant pas de centre de symétrie. Cette condition est présentée dans la figure 1.2.

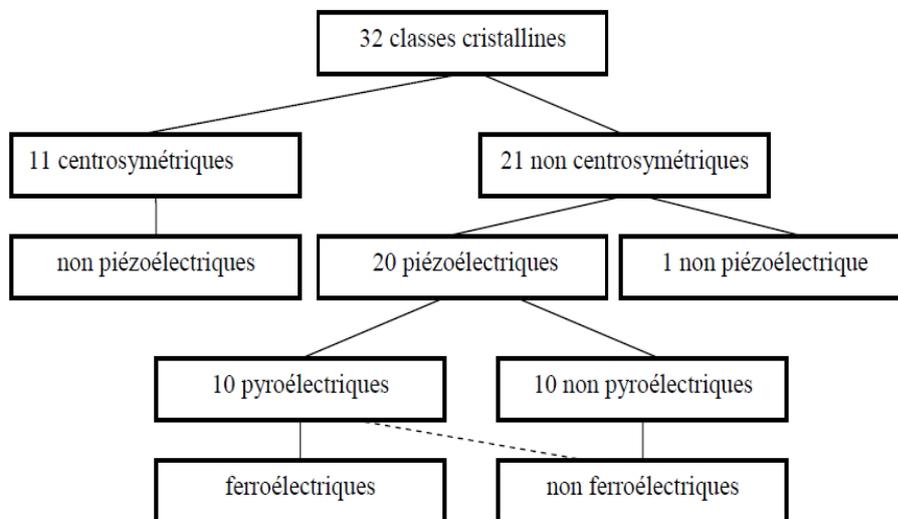


FIGURE 1.2: Organigramme des 32 classes cristallines [Brissaud, 2007].

La piézoélectricité est une propriété due à l'anisotropie des matériaux et pour pouvoir la décrire, l'utilisation de la notion des tenseurs est indispensable. Il est important de rappeler que les grandeurs physiques envisagées sont des tenseurs, dont l'ordre est 1 pour le champ électrique E et le déplacement électrique D , l'ordre 2 pour la contrainte T et la déformation S . Le champ électrique E est relié au tenseur

des déformations S par un tenseur d'ordre 3, d d'une part et d'autre part par un tenseur d'ordre 2, la permittivité électrique ε .

Le déplacement électrique D est relié au tenseur de contraintes T par un tenseur d'ordre 3, d . Le tenseur de contraintes T est relié au tenseur de déformations S par un tenseur d'ordre 4, le tenseur de rigidité c . Dans le cas où la loi de comportement élastique est envisagée, les grandeurs T et S sont reliées par un tenseur d'ordre 4, le tenseur de souplesse s . Les grandeurs en exposant signifient que cette grandeur est constante ou nulle, par exemple c^E définit le coefficient de rigidité à champ électrique constant ou nul. Pour la présentation des tenseurs, les constantes piézoélectriques d , les contraintes T et les déformations S sont décrites respectivement par des matrices de dimensions 3×6 , 6×1 et 6×1 [Brissaud, 2007]. La figure 1.3 résume les relations entre les différentes grandeurs.

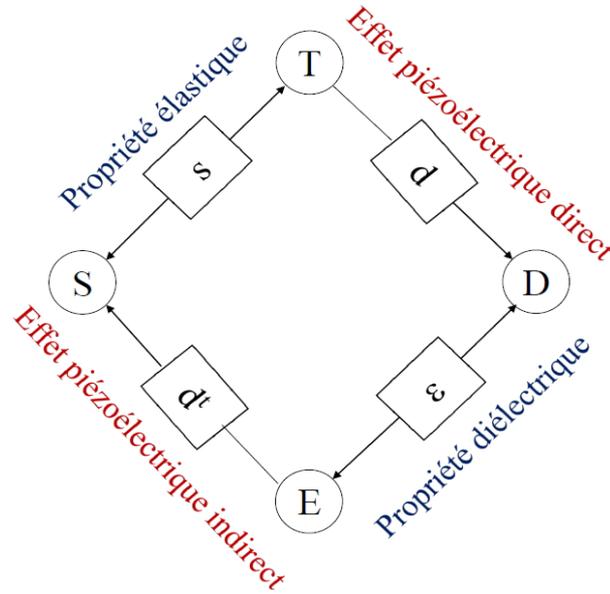


FIGURE 1.3: Relations entre les différentes grandeurs physiques.

$$d = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix}$$

$$T = \begin{pmatrix} T_{11} \\ T_{12} \\ T_{13} \\ T_{14} \\ T_{15} \\ T_{16} \end{pmatrix} \quad S = \begin{pmatrix} S_{11} \\ S_{12} \\ S_{13} \\ S_{14} \\ S_{15} \\ S_{16} \end{pmatrix}$$

Thermodynamiquement, le phénomène de la piézoélectricité est défini à partir de l'équation 1.1 de la densité d'énergie libre de Gibbs dans le cas isotherme.

$$G = U - \theta\beta - T_i S_i - E_m D_m \quad (1.1)$$

U est l'énergie interne, θ étant la température et β est l'entropie du matériau piézoélectrique.

Selon la première et la deuxième loi de la thermodynamique, la variation de l'énergie interne est donnée par l'équation 1.2.

$$dU = \theta d\beta + T_i dS_i + E_m dD_m \quad (1.2)$$

En utilisant les relations 1.1 et 1.2, la variation de l'énergie libre de Gibbs s'écrit alors selon l'équation 1.3 [Brissaud, 2007].

$$dG = -\beta d\theta - S_i dT_i - D_m dE_m \quad (1.3)$$

A partir de l'équation 1.3, nous obtenons les équations 1.4, 1.5 et 1.6.

$$\beta = -\left(\frac{\partial G}{\partial \theta}\right)_{T_i, E_m} \quad (1.4)$$

$$S_i = -\left(\frac{\partial G}{\partial T_i}\right)_{\theta, E_m} \quad (1.5)$$

$$D_m = -\left(\frac{\partial G}{\partial E_m}\right)_{T_i, \theta} \quad (1.6)$$

Les différentielles totales pour l'entropie, la déformation et le déplacement électrique (densité de charges surfaciques) peuvent être écrites sous la forme des équations 1.7, 1.8 et 1.9.

$$d\beta = \left(\frac{\partial \beta}{\partial \theta}\right)_{T_i, E_m} d\theta + \left(\frac{\partial \beta}{\partial T_i}\right)_{\theta, E_m} dT_i + \left(\frac{\partial \beta}{\partial E_m}\right)_{T_i, \theta} dE_m \quad (1.7)$$

$$dS_i = \left(\frac{\partial S_i}{\partial \theta}\right)_{T_i, E_m} d\theta + \left(\frac{\partial S_i}{\partial T_j}\right)_{\theta, E_m} dT_j + \left(\frac{\partial S_i}{\partial E_m}\right)_{T_i, \theta} dE_m \quad (1.8)$$

$$dD_m = \left(\frac{\partial D_m}{\partial \theta}\right)_{T_i, E_m} d\theta + \left(\frac{\partial D_m}{\partial T_j}\right)_{\theta, E_m} dT_j + \left(\frac{\partial D_m}{\partial E_l}\right)_{T_i, \theta} dE_l \quad (1.9)$$

Nous obtenons l'expression du tenseur piézoélectrique défini par l'équation 1.10 [Brissaud, 2007].

$$d_{im}^{\theta, T} = \left(\frac{\partial S_i}{\partial E_m}\right)_{\theta, T_i} \quad (1.10)$$

En utilisant les équations 1.5 et 1.6, nous obtenons l'équation 1.11.

$$\begin{aligned}
d_{im}^{\theta,T} &= \left(\frac{\partial S_i}{\partial E_m} \right)_{\theta, T_i} = - \frac{\partial}{\partial E_m} \left(\frac{\partial G}{\partial T_i} \right) = - \left(\frac{\partial^2 G}{\partial E_m \partial T_i} \right) \\
&= - \frac{\partial}{\partial T_i} \left(\frac{\partial G}{\partial E_m} \right) = \left(\frac{\partial D_m}{\partial T_i} \right)_{\theta, E_m} = d_{im}^{\theta, E_m}
\end{aligned} \tag{1.11}$$

L'équation 1.11 permet de démontrer la réversibilité de l'effet piézoélectrique. Le comportement électromécanique dans le cas d'un processus isotherme est décrit par les équations constitutives 1.12 et 1.13 qui sont dûes aux deux contributions mécanique et électrique [Brissaud, 2007].

$$S_i = s_{ij}^E T_j + d_{mi} E_m \tag{1.12}$$

$$D_m = d_{mi} T_i + \varepsilon_{mk}^T E_k \tag{1.13}$$

($i, j = 1..6$) et ($m, k = 1..3$).

S_i sont les composantes du tenseur des déformations représenté sous la forme d'un vecteur à 6 composantes.

T_i sont les composantes du tenseur des contraintes représenté sous la forme d'un vecteur à 6 composantes.

E_m sont les composantes du vecteur champ électrique (V/m ou N/C).

d_{mi} sont les composantes du tenseur de piézoélectricité (m/V ou C/N).

s^E sont les composantes du tenseur de souplesse, déterminés à champ électrique constant (m^2/N).

D_m sont les composantes du vecteur déplacement électrique (densité de charges surfaciques) (C/m^2).

ε^T sont les composantes du tenseur de la permittivité électrique à contrainte constante (F/m).

Il existe aussi un paramètre fondamental qui est le coefficient de couplage électromécanique k qui permet la caractérisation du taux de conversion de l'énergie mécanique en énergie électrique et vice versa. Ce coefficient est caractéristique de la performance d'un matériau piézoélectrique qui permet d'évaluer l'efficacité piézoélectrique du matériau. Il est d'autant plus grand que la conversion d'énergie est optimale. Dans ce cas, k aura une valeur proche de 1.

Dans le cas de l'effet piézoélectrique direct, ce coefficient est défini par l'équation 1.14.

$$k = \sqrt{\frac{\text{énergie électrique fournie}}{\text{énergie mécanique absorbée}}} \tag{1.14}$$

Dans le cas de l'effet piézoélectrique indirect, nous avons l'équation 1.15.

$$k = \sqrt{\frac{\text{énergie mécanique fournie}}{\text{énergie électrique absorbée}}} \quad (1.15)$$

1.2.4 Grandeurs piézoélectriques

Nous nous focalisons sur le type de sollicitations qui nous intéressent dans la suite du manuscrit.

Soit un matériau piézoélectrique repéré par le système d'axes $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$, polarisé dans la direction \vec{z} (figure 1.4) [Brissaud, 2007].

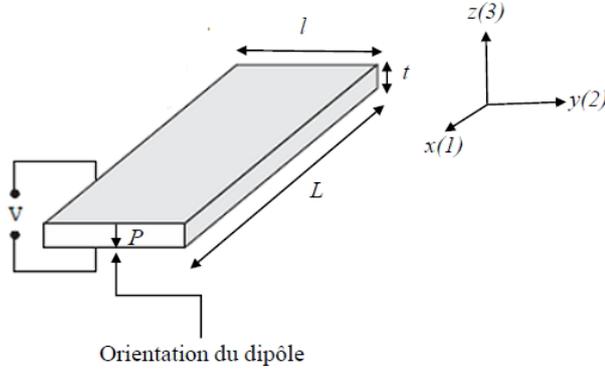


FIGURE 1.4: Illustration schématique d'un film piézoélectrique ayant une polarisation permanente \vec{P} .

Le coefficient piézoélectrique d_{mi} (constant) caractérise le rapport entre le déplacement électrique (densité de charges surfaciques) dans la direction m ($m = 1..3$) pour une contrainte d'indice i ($i = 1..6$) (effet piézoélectrique direct).

Il caractérise aussi la déformation d'indice i pour un champ électrique dans la direction m (effet piézoélectrique indirect) qui est donné par l'équation 1.16.

$$d_{mi} = \frac{D_m}{T_i} = \frac{S_i}{E_m} \quad (1.16)$$

Ce coefficient est déterminé à partir de la densité d'énergie libre de Gibbs. Dans les conditions adiabatiques $d\beta = 0$, nous obtenons l'équation 1.17.

$$d_{mi} = -\left(\frac{\partial^2 G}{\partial E_m \partial T_i}\right) \quad (1.17)$$

Ce qui donne l'équation 1.18.

$$d_{mi} = \left(\frac{\partial D_m}{\partial T_i} \right)_{E_m, \theta} = \left(\frac{\partial S_i}{\partial E_m} \right)_{T_i, \theta} \quad (1.18)$$

Dans le cas général d'anisotropie piézoélectrique, le tenseur d se présente sous la forme indiquée ci-dessus avec 18 coefficients indépendants. Par contre, dans le cas d'un film mince, le comportement piézoélectrique peut être considéré comme isotrope transverse dans le plan (x, y) et si la polarisation est suivant \vec{z} , le tenseur de piézoélectricité est simplifié et il est caractérisé par trois coefficients indépendants.

$$d = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

1.2.4.1 Effet piézoélectrique direct

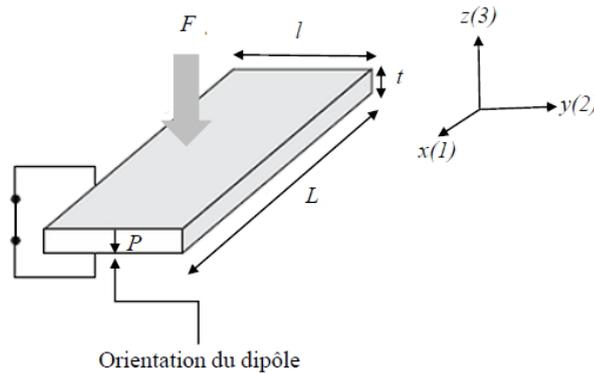


FIGURE 1.5: Illustration schématique d'un matériau piézoélectrique ayant une polarisation permanente en effet direct.

Si nous appliquons une force F dans la direction z , elle engendre une contrainte T_3 (figure 1.5) qui s'écrit sous la forme de l'équation 1.19.

$$\begin{aligned} T_3 &= \frac{F}{Ll} \\ d_{33} &= \frac{D_3}{T_3} \\ D_3 &= qLl \\ \Rightarrow q &= d_{33}F \end{aligned} \quad (1.19)$$

q est la charge générée par le matériau piézoélectrique.

1.2.4.2 Effet piézoélectrique indirect

Si nous appliquons une tension V dans la direction z , elle engendre un champ électrique qui peut être exprimé par l'équation 1.20.

$$E_3 = \frac{V}{l} S_3 = \frac{\Delta l}{l} d_{33} = S_3 E_3 \Rightarrow \Delta l = d_{33} V$$

Le coefficient de couplage k_{33} dans la direction z est défini par l'équation 1.20.

$$k_{33} = d_{33} \sqrt{\frac{C_{33}^E}{\varepsilon_{33}^T}} \quad (1.20)$$

Nous avons rappelé succinctement les notions de base de la piézoélectricité ainsi que la théorie à travers les couples des équations d'état et les coefficients mis en jeu. Dans la suite, nous allons définir les différentes classes des matériaux piézoélectriques existant dans les différents travaux tout en nous focalisant sur les propriétés mécaniques et piézoélectriques pour pouvoir justifier le choix de notre matériau dans le chapitre suivant.

1.3 Les matériaux piézoélectriques

Les matériaux piézoélectriques ont évolué d'une manière rapide depuis leur découverte. Cela est dû essentiellement au développement des applications faisant intégrer les matériaux piézoélectriques. Les paramètres qui sont toujours mis en jeu dans le développement de ce type de matériaux sont le module de Young pour atteindre la souplesse souhaitée et les coefficients piézoélectriques. En effet, les chercheurs visent souvent à avoir des matériaux pouvant subir de grandes déformations (faible module de Young) avec des coefficients piézoélectriques élevés. Les matériaux piézoélectriques reportés dans la littérature peuvent être classés en cinq catégories que nous allons présenter dans la suite de ce chapitre.

1.3.1 Les cristaux et les céramiques

La piézoélectricité a été mise en évidence pour la première fois dans le sel de Rochelle (Tartrate double de sodium et de potassium) par les deux frères Curie en 1880, puis, ils ont étendu leurs études au quartz, tourmaline et topaze. Le sel de Rochelle est incolore à bleu-blanc dans le système orthorhombique avec la formule moléculaire $KNaC_4H_4O_6 - 4H_2O$. Il est légèrement soluble dans l'alcool, mais pas soluble dans l'eau. Il a une masse volumique d'environ $1.77g/cm^3$ et un point de fusion de $75^\circ C$. Les coefficients piézoélectriques du sel de la Rochelle dépendent d'une façon directe de la température, en effet, il présente un coefficient piézoélectrique longitudinal d_{33} qui peut dépasser $2300pC/N$ à très basses températures [dos Santos

et al., 2001] et entre 27 et 230pC/N à la température ambiante qui dépend aussi de l'orientation du cristal avec une permittivité relative $\varepsilon_{33} = 8.6$ [Lemaire *et al.*, 2015]. Le sel de Rochelle est élaboré par la recristallisation par sursaturation des solutions. La figure 1.6 présente un exemple de micro-capteur réalisé à partir du sel de Rochelle déposé en couches minces.

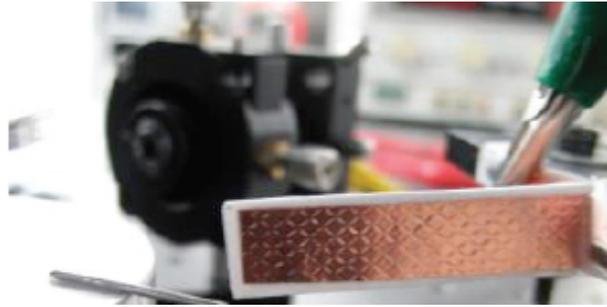


FIGURE 1.6: Poutre piézoélectrique à base de sel de Rochelle pour des micro-capteurs pour la récupération d'énergie vibratoire et pour des applications acoustiques [Lemaire *et al.*, 2015].

Pour améliorer la réponse piézoélectrique des matériaux et pour répondre aux besoins des applications, il y a eu des progrès significatifs sur les matériaux piézoélectriques depuis la découverte du Titanate Zirconate de Plomb (*PZT*) dans les années 50 [Wang *et al.*, 1998]. Le *PZT* ($Pb(Zr_xTi_{1-x})O_3$) est un matériau céramique de type pérovskite qui possède une polarisation spontanée qui peut être inversée en présence d'un champ électrique [IEEE, 1991].

Deux méthodes sont utilisées pour l'élaboration de céramiques *PZT*. La première est par voie sèche qui consiste en un mélange des oxydes en poudre avec une activation mécanique. La stœchiométrie du mélange dépend des propriétés piézoélectriques et mécaniques souhaitées. Le mélange des poudres sont uniaxialement pressé pour obtenir des échantillons sous forme de pastilles. Un traitement de calcination et de frittage pendant des heures et à hautes températures avec des rampes de recuit et de refroidissement faibles suit l'étape de pression [Lee *et al.*, 1999]. La deuxième méthode de synthèse repose sur la méthode sol-gel. Cette méthode est bien détaillée par Coffman et al [Coffman et Dey, 1994, Coffman *et al.*, 1996]. Cette méthode permet d'obtenir des céramiques de *PZT* avec une grande pureté. Les coefficients piézoélectriques longitudinaux d_{33} du *PZT* varie de 155 à 590pC/N avec une permittivité relative $\varepsilon_{33} = 1010$. Wang et al [Wang *et al.*, 1998] ont montré que ces propriétés piézoélectriques dépendent de la température. En effet, l'augmentation de la température augmente significativement la réponse piézoélectrique. Des investigations ont été faites aussi sur la fatigue du *PZT*. Ce matériau résiste bien aux contraintes extérieures : la température, le nombre de cycle et l'application d'un

champ électrique [Wang *et al.*, 1998].

L'amélioration permanente de la réponse piézoélectrique a poussé les chercheurs à développer d'autres matériaux piézoélectriques céramiques comme le titanate de bismuth sodium (*BNST*) qui présente un coefficient de couplage important $k_{33} = 0.42$, une faible constante diélectrique $\epsilon_{33} = 431$ comparé à celui du *PZT* et un coefficient piézoélectrique longitudinal $d_{33} = 74.7pC/N$ qui est trop faible par rapport à celui du *PZT* [Nagata et Takenaka, 1997]. Mais, ce matériau a l'avantage de ne pas contenir du plomb.

D'autres matériaux sont apparus comme des concurrents directs du *PZT* pour limiter l'utilisation de ce dernier surtout qu'il contient un élément nocif tel que le plomb. Les céramiques basées sur $(K_xNa_{1-x}(NbO_3))/KNN$ ont été développées par la même méthode en phase solide utilisés pour le *PZT*. Sa texturation a contribué également à des coefficients piézoélectriques longitudinaux importants entre 300 et $416pC/N$ avec une permittivité relative ϵ_{33} de 1400 [Saito *et al.*, 2004]. Des améliorations ont été portées sur la réponse piézoélectrique de ces céramiques *KNN* par le frittage avec des oxydes de cuivre *CuO*. Takao et al et Park et al [Takao *et al.*, 2006, Park *et al.*, 2008] ont montré que l'utilisation des oxydes de cuivre *CuO* permet d'augmenter le coefficient piézoélectrique d'un facteur de 1.63 avec une permittivité relative ϵ_{33} de 220.

Une autre alternative concerne la fabrication de matériaux *PZT* poreux pour s'adapter à des applications spécifiques comme les hydrophones [K. Mizumura, 1991, Arai *et al.*, 1991]. En effet, l'introduction des pores permet d'adapter l'impédance acoustique et d'améliorer la réponse piézoélectrique. L'existence des pores permet également de réduire la permittivité et les pertes diélectriques de ces matériaux.

Il existe plusieurs méthodes pour la mise en œuvre de ces matériaux poreux à base de *PZT*. Les plus connues sont : la méthode de sphères de polymère brûlées [Rittenmyer *et al.*, 1982], la replication du polymère [Skinner *et al.*, 1978] et la technique de fabrication du solide libre [Allahverdi *et al.*, 2001]. Ces méthodes n'ont pas été satisfaisantes vu qu'elles n'ont pas permis de contrôler ni la forme ni la taille des pores et elle donnent aussi des parties de *PZT* contenant des fissures et des défauts. Ces derniers réduisent la performance piézoélectrique de ces matériaux. Pour cela, une nouvelle méthode apparaît comme la plus prometteuse qui est le moulage à froid, cette méthode permet de geler ou solidifier un liquide sous la forme de dendrites en laissant les particules de céramiques se concentrer entre les dendrites. Le liquide le plus utilisé est le camphène [Lee *et al.*, 2007]. Par la suite les dendrites sont éliminées par la sublimation du liquide gelé (figure 1.7).

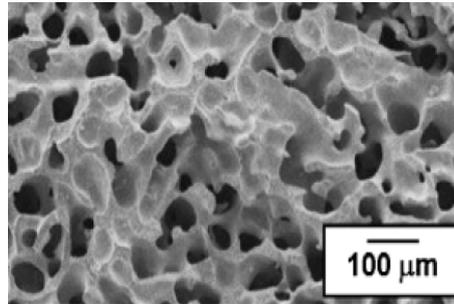


FIGURE 1.7: Photo par la microscopie à balayage électronique du *PZT* poreux [Lee *et al.*, 2007].

Malgré tous les efforts fournis par les chercheurs sur le développement des céramiques piézoélectriques, ces derniers restent à usage limité car ils ne sont pas susceptibles de subir des grandes déformations avec un module de Young de quelques dizaines de *GPa*. En effet, les céramiques sont rigides, elles sont exploitées dans des applications à hautes fréquences (exemple : sonde acoustique pour l'imagerie médicale). De plus, il faut faire attention à la température de Curie de ces matériaux à partir de laquelle ils perdent leur caractère piézoélectrique.

1.3.2 Les semi-conducteurs

Les semi-conducteurs piézoélectriques appartiennent au groupe II-VI tel que l'oxyde de zinc (*ZnO*) et le groupe III-V tel que le nitrure de gallium (*GaN*) et le nitrure d'aluminium (*AlN*).

Ces deux familles de semi-conducteurs ont une grande bande interdite ($E_{g,ZnO} = 3.37eV$ et $E_{g,GaN} = 3.43eV$). Ils sont utilisés dans un large spectre d'applications : optique, optoélectronique et surtout dans le domaine des micro-capteurs, des actionneurs et des récupérateurs d'énergie. Les oxydes obtenus à partir des éléments II-VI et les nitrures obtenus à partir des éléments III-V cristallisent en deux phases : wurtzite (hexagonale) et Zinc Blende (cubique). La structure wurtzite appartient au groupe d'espace *P63mc* et la Zinc Blende au groupe d'espace *F43m* en notation Hermann Mauguin. Seule la structure de wurtzite est piézoélectrique. Les atomes d'oxygène (pour *ZnO*) ou les atomes d'azote (pour *GaN*) forment un hexagone treilli.

Les atomes de *Zn* et *Ga* occupent la moitié des sites tetrahédriques disponibles. Nous obtenons ainsi deux sous réseaux hexagonaux compacts.

Parmi les composés semi-conducteurs wurtzite piézoélectriques, *ZnO*, *GaN* et *AlN* sont les plus utilisés dans de nombreuses applications : en piézoélectronique, micro-capteurs ...etc. Les méthodes de fabrication diffèrent et varient selon les applications

souhaitées et selon la nature du matériau lui même. Dans le cas de l'*AlN*, deux méthodes ont été proposées pour sa fabrication, la première est la pulvérisation réactive magnétron à basse température entre 350 et 590°C [Tonischa *et al.*, 2006]. La deuxième méthode est le dépôt métallique chimique en phase vapeur organique qui se passe à hautes températures entre 1050 et 1190°C [Tonischa *et al.*, 2006]. La différence est constatée au niveau de la qualité et la morphologie de la surface des films ainsi obtenus. En effet, la taille des grains sont plus petits dans le cas de la première méthode ce qui est présenté dans la figure 1.8 ce qui donne une meilleure qualité du film plus compact et plus dense et donc des propriétés piézoélectriques plus importantes.

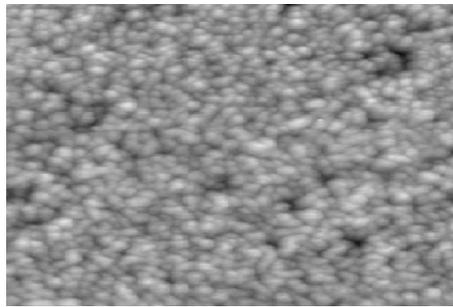


FIGURE 1.8: Etat de la surface d'une couche de *AlN* déposée par pulvérisation magnétron réactive à basse température [Tonischa *et al.*, 2006].

Quant au *ZnO*, la structure la plus utilisée dans les applications est celle des nanofils comme il est montré sur la figure 1.9 [Song *et al.*, 2006, Wang et Song, 2006].

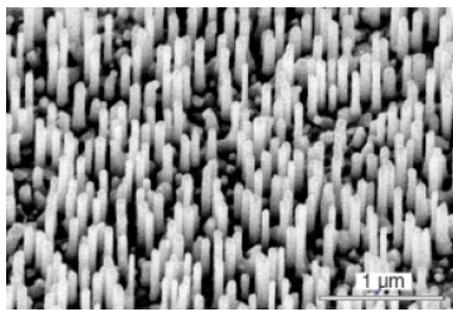


FIGURE 1.9: Photo par microscopie électronique des nanofils de *ZnO* [Wang et Song, 2006].

Des efforts ont été fournis également pour le développement de matériaux semi-conducteurs poreux comme le *ZnO* par la technique sol-gel (figure 1.10) afin de

réduire le module de Young et d'augmenter la souplesse des couches obtenues [Liu *et al.*, 2005].

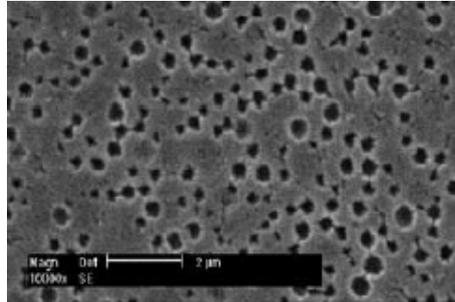


FIGURE 1.10: Photo par microscopie électronique du ZnO poreux [Liu *et al.*, 2005].

Des améliorations importantes étant constatées, les semi-conducteurs s'approchent par leur performance piézoélectrique de celle des matériaux cristallins et céramiques piézoélectriques. Néanmoins, le module de Young de ces derniers varie entre 100 et 250GPa ce qui constitue un handicap dans leur intégration dans des applications exigeant des matériaux subissant de grandes déformations.

1.3.3 Les polymères

La famille des polymères piézoélectriques apparaît comme une alternative très attractive pour les chercheurs pour résoudre surtout le problème de la rigidité accompagnant les matériaux piézoélectriques céramiques et semi-conducteurs. Depuis la découverte du caractère piézoélectrique dans le β -fluorure de polyvinylidène (β - $PVDF$) par Kawai [Kawai, 1969], les polymères piézoélectriques n'ont pas cessé d'évoluer vu la variété et la diversité de ce type de matériaux que nous pouvons classer en trois sous catégories.

1.3.3.1 Les polymères massifs

Les polymères massifs piézoélectriques présentent un effet piézoélectrique à cause de la structure moléculaire du polymère et leur orientation. Il y a deux types de polymères massifs qui ont différents principes de fonctionnement : des polymères semi-cristallins et des polymères amorphes [Harrison et Ounaies, 2002]. Dans les deux types, il existe des conditions exigées qui doivent être assurées pour que ces polymères massifs soient piézoélectriques. La structure moléculaire doit contenir obligatoirement des dipôles moléculaires. De plus, ces dipôles peuvent être réorientés pour le maintenir dans une orientation préférée. Cette réorientation est réalisée

à travers une polarisation électrique extérieure. Les exemples de polymères semi-cristallins sont multiples comme le fluorure de polyvinylidène (*PVDF*) [Dargaville *et al.*, 2005], les polyamides, les polymères cristaux liquides [Harrison et Ounaies, 2002] et le parylène C (*Pa - C*) [Kim *et al.*, 2011].

Ces polymères sont similaires dans leur comportement aux matériaux piézo-électriques conventionnels. Les ions chargés positivement et négativement (ou les groupements polaires dans les polymères) sont arrangés dans la forme cristalline pour changer la polarisation quand le matériau fait l'objet d'une contrainte extérieure. Un polymère semi-cristallin peut être considéré comme un ensemble de micro-cristaux appelés des cristallites qui sont dispersés d'une manière aléatoire dans la phase amorphe du polymère. Pour obtenir une réponse piézoélectrique, ces cristallites doivent être réorientés par une polarisation extérieure dans une même direction [Harrison et Ounaies, 2002]. En effet, le polymère doit être soumis à un fort champ électrique et à une haute température pour créer cette polarisation. Deux types de polarisations sont souvent utilisées, soit la polarisation par contact direct, ou la polarisation par une décharge couronne. Suite à cette étape, tous les cristallites et les dipôles sont réorientés dans une seule direction [Harrison et Ounaies, 2002]. L'effet piézoélectrique existe également dans les polymères amorphes si la structure moléculaire contient des dipôles [Harrison et Ounaies, 2002], parmi les exemples les polyimides [Park *et al.*, 2004, Atkinson *et al.*, 2003a] et le chlorure de polyvinylidène (*PVDC*) [Harrison et Ounaies, 2002]. Si la température de polarisation dépasse de quelques degrés la température de transition vitreuse du polymère, les dipôles sont alignés selon le champ électrique appliqué. Nous allons décrire les polymères piézoélectriques les plus connus dans la littérature.

1.3.3.2 Le PVDF et les copolymères du PVDF

Le *PVDF* (figure 1.11 (a)) est le piézo-polymère le plus utilisé dans les dispositifs électromécaniques. Cela est dû à son large coefficient piézoélectrique longitudinal d_{33} entre 20 et 28 pC/N, avec une température de transition vitreuse $T_g = -40^\circ\text{C}$, comparés aux autres piézo-polymères massifs [Harrison et Ounaies, 2002].

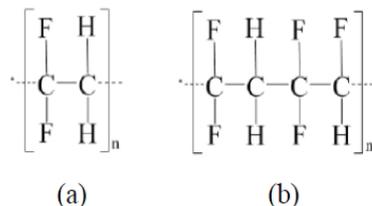


FIGURE 1.11: Structure moléculaire du (a) *PVDF* et (b) *PVDF - TrFE*.

Le *PVDF* est un polymère semi-cristallin qui est synthétisé par la polymérisation de monomères $H_2C = CF_2$. Un défaut dans la connection des chaînes de polymère se produit quand deux groupements CF_2 ou deux groupements CH_2 sont connectés. En augmentant les défauts de la chaîne polymérique, la polarité de cette dernière augmente ce qui augmente la réponse piézoélectrique [Dargaville *et al.*, 2005]. C'est pour cette raison que différentes techniques de synthèse ont été développées pour améliorer l'orientation du cristal par l'addition de trifluoroéthylène (*TrFE*) [Sharma *et al.*, 2012], le noir de carbone [Lallart *et al.*, 2010] ou des nanotubes de carbone [Ramaratnam et Jalili, 2006]. Il existe aussi des travaux qui visent à additionner des particules piézoélectriques inorganique dans le *PVDF* pour améliorer la réponse piézoélectrique et pyroélectrique du matériau à travers un mécanisme de polarisation spécifique. Ces particules sont le $BaTiO_3$ [Ye *et al.*, 2013], le *PZT* [Graz *et al.*, 2009] et le ZnO [Dodds *et al.*, 2012]. Le procédé de la polarisation du *PVDF* reste une étape clé pour avoir une réponse piézoélectrique importante. Toutefois, le procédé de la tournette sert aussi comme une étape d'étirement et favorise l'obtention de la phase- β dans l'orientation du cristal [Sharma *et al.*, 2012]. Le film le plus mince trouvé dans la littérature fait $1\mu m$. Dans cette étude, aucune phase de polarisation n'était réalisée et le film présente une réponse piézoélectrique deux fois plus importante que celle d'un film ayant une épaisseur de $6\mu m$ obtenu avec le même procédé. De plus, le coefficient piézoélectrique d_{33} obtenu dans ce cas est plus important que $28pC/N$ obtenu avec le film épais en *PVDF* pur. Cette méthode simplifie la fabrication et améliore les avantages du *PVDF*. La nonimpression de sub- $20nm$ du *PVDF - TrFE* a permis d'obtenir un coefficient piézoélectrique important de $72pC/N$ [Hong *et al.*, 2012]. Néanmoins, cette valeur n'est pas uniforme sur toute la matrice de polymère, cela donne un problème au niveau de la reproductibilité des résultats. Un coefficient piézoélectrique a été aussi obtenu par la recristallisation du *PVDF - TrFE* par un recuit avant l'étape de nano-impression. Un micro-capteur tactile a été réalisé par cette configuration [Chen *et al.*, 2012].

1.3.3.3 Le parylène C

Le parylène C est souvent déposé par la technique de dépôt chimique en phase vapeur. La structure moléculaire du parylène C (figure 1.12) présente un dipôle résultant de la substitution de l'atome d'hydrogène par un atome de chlore sur le cycle de benzène. Le parylène C possède une température de transition vitreuse $T_g = 90^\circ C$. Les propriétés piézoélectriques du parylène C semi-cristallin ont été récemment étudiées et il est utilisé pour la fabrication des poutres piézoélectriques et les microphones [Kim *et al.*, 2012, Kim, 2013]. Le coefficient piézoélectrique longitudinal d_{33} du parylène C est de $2pC/N$ qui est très faible comparé à celui du *PVDF*. Cette faible valeur incite à se poser la question sur l'ampleur de l'utilisation du parylène C comme un élément piézoélectrique. Beaucoup d'efforts doivent être menés

pour améliorer sa réponse piézoélectrique.

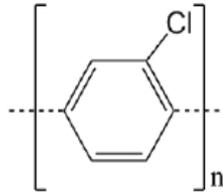


FIGURE 1.12: Structure moléculaire du parylène C.

1.3.3.4 Le polyimide amorphe

Le polyimide a été utilisé dans les micro-systèmes électromécaniques (MEMS). Sa température de transition vitreuse ($360-410^{\circ}C$) permet son utilisation pour des applications à hautes températures [Tsang *et al.*, 2008, Marnat *et al.*, 2013]. Des recherches menées par NASA ont permis par une assistance par ordinateur de synthétiser du polyimide amorphe avec un grand nombre de dipôles [Harrison et Ounaies, 2002].

La caractérisation du groupement nitrile du polyimide, 2,6 di(3-aminophenoxy) benzonitrile/4,4-oxidiphthaliqueanhydrique, ($\beta - CN$) APB/ODPA présente une réponse piézoélectrique importante [Park *et al.*, 2004, Atkinson *et al.*, 2003a]. L'avantage du ($\beta - CN$) APB/ODPA comparé au PVDF est qu'il peut servir à hautes températures vu sa haute température de transition vitreuse. Un capteur MEMS tactile à base du polyimide a été proposé par "the material's inventors" en 2003 [Atkinson *et al.*, 2003b].

Le tableau 1.1 regroupe quelques propriétés mécaniques, diélectriques et piézoélectriques de quelques polymères massifs.

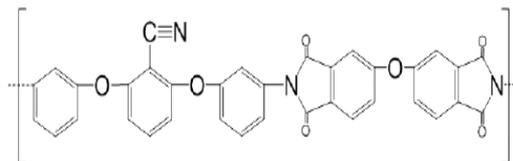


FIGURE 1.13: Structure moléculaire du Polyimide ($\beta - CN$) APB/ODPA .

	PVDF	PVDF-TrFE	Parylène C	PI ($\beta - CN$) <i>APB/ODPA</i>
Densité ($kg.m^{-3}$)	1800	1900	1290	1420
Module de Young (GPa)	2.5-3.2	1.1-3	2.8	2-3
Permittivité relative ε_r	12	12	3.15	4
Angle de pertes $\tan \delta_e$	0.018	0.018	0.01	0.01
d_{33} (pC/N)	13-28	24-38	2	5.3-16.5
k_{33}	0.27	0.37	0.02	0.048-0.15

TABLE 1.1: Propriétés de quelques matériaux polymères piézoélectriques massifs [Harrison et Ounaies, 2002, Li *et al.*, 2008, Sharma *et al.*, 2012, Kim *et al.*, 2011, Kim *et al.*, 2012, Park *et al.*, 2004].

1.3.4 Les piézo-composites

Un matériau polymère composite piézoélectrique ou piézo-composite est un matériau polymère contenant des particules piézoélectriques inorganiques. L'avantage de mélanger les céramiques piézoélectriques avec les polymères est de combiner les avantages des deux matériaux qui inclue le coefficient de couplage des céramiques et la souplesse des polymères. Les piézo-composites sont privilégiés pour les dispositifs acoustiques vu l'impédance acoustique faible des polymères. L'arrangement des céramiques/polymères peut être fait selon différentes combinaisons [Safari *et al.*, 1997]. Des tiges céramiques peuvent être dispersées d'une manière régulière ou aléatoire dans une matrice de polymère, ces matériaux sont classés comme les composites (1 – 3). Une autre approche s'agit d'introduire des micro ou nanoparticules dans une matrice de polymère. Dépendant de la connectivité entre les particules, un composite peut être classé comme (0 – 3) si les particules sont totalement séparées et sont totalement entourées par du polymère et le composite peut être (3 – 3) si les particules sont en contact [Levassort *et al.*, 1999]. Nous décrivons quelques piézo-composites dans ce qui suit.

1.3.4.1 Les piézo-composites (1-3)

Les composites (1 – 3) à base de *PZT* sont commercialisés par *SmartMaterials*. Des piézo-composites différents à base de polyuréthane ou époxydes sont disponibles. Un coefficient de couplage électromécanique de 0.65 a été atteint avec ce type de composites. Un autre type de composite est basé sur le niobate de plomb de magnésium-titanate de plomb *PMN – PT*. Les proportions de *PMN* et de *PT* dans

la matrice de polymère ont une influence directe sur le couplage électromécanique [Baek *et al.*, 2012, Kim *et al.*, 2010]. Ce type de composites permet d'avoir un coefficient de couplage électromécanique de 0.7 à 0.85. Des transducteurs ultrasonores ont été développés à base de ces piézocomposites [Sun *et al.*, 2010].

1.3.4.2 Les piézo-composites (0-3)

Des recherches très récentes ont été développées pour incorporer des nanoparticules de ZnO dans de la résine $SU-8$ pour des applications piézoélectriques comme la récupération d'énergie [Kandpal *et al.*, 2012, Prashanthi *et al.*, 2013]. D'autres composites utilisant le polydiméthylsiloxane ($PDMS$) ont été développés. Des nanoparticules de $BaTiO_3$ et des nanotubes de carbone sont introduits dans la matrice du polymère. Les nanotubes de carbone permettent d'orienter les nanoparticules durant le procédé de polarisation pour améliorer la réponse piézoélectrique. D'autres composites ont été réalisés à base de nanofils de $PMN-PT$ introduits dans une matrice de $PDMS$ [Park *et al.*, 2012].

Le tableau 1.2 regroupe les propriétés de quelques composites.

	PMN-PT/époxyde (1-3) composite	MFC	ZnO-SU8
Densité ($kg.m^{-3}$)	5000	5440	-
Module de Young (GPa)	-	30	12.3
Permittivité relative ε_r	2000	850	7
d_{33} (pC/N)	1200	374	5-8
k_{33}	0.85	0.53	0.07-0.12

TABLE 1.2: Propriétés de quelques matériaux polymères piézocomposites [Prashanthi *et al.*, 2013, Zhang *et al.*, 2011, Matt et di Scalea, 2007, Yang *et al.*, 2009].

1.3.5 Les piézo-électrets

Un électret est un matériau diélectrique qui a l'aptitude de stocker des charges électriques statiques. Le mot statique signifie que la constante du temps de la décroissance des charges est beaucoup plus importante que le temps mis pour réaliser les investigations sur ces matériaux. Les charges électriques peuvent être des charges surfaciques implantées à la surface des matériaux, ou bien des charges implantées au niveau des interfaces séparatrices des domaines dans le matériau ou encore au niveau des chaînes moléculaires. Un piézo-électret est un polymère à base d'électrets qui présentent des propriétés piézoélectriques. Les piézo-électrets peuvent être des

multicouches de polymères massives avec une alternance entre des couches chargées et couches non chargées. Les couches sont chargées positivement et négativement en alternance. Les couches chargées sont en général des matériaux à base de polymère halogéné qui permettent de maintenir les charges [Xu *et al.*, 2013]. La figure 1.14 représente un exemple de ces structures réalisées avec une alternance des couches massives de fluoroéthylène propylène (*FEP*) et des couches de polytétrafluoroéthylène (*PTFE*).

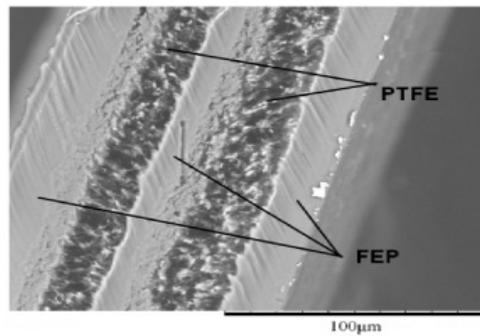


FIGURE 1.14: Photographie par microscopie électronique à balayage d'un piézo-électret multi-couches massif [Zhang *et al.*, 2010].

Les couches chargées sont obtenues généralement par une décharge couronne. Une autre manière de réaliser ces piézo-électrets et de micro-fabriquer des polymères cellulaires micro-structurés. Cela revient soit à injecter du gaz dans le polymère lors de la phase de fabrication pour obtenir des polymères contenant des bulles de gaz, soit de réaliser des multicouches alternées entre des couches micro-structurées et des couches massives (figure 1.15).

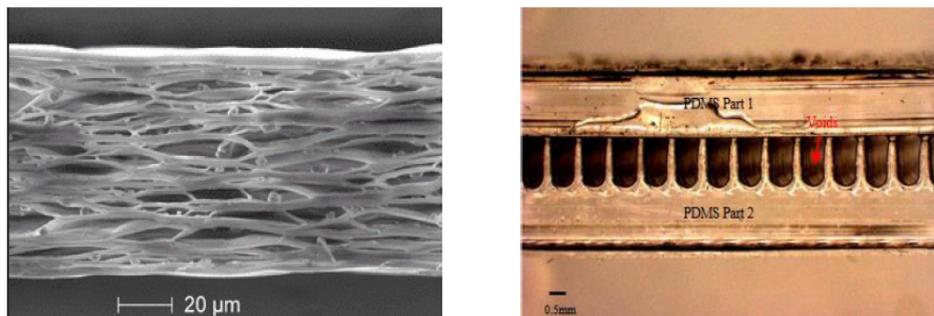


FIGURE 1.15: Photographies par microscopie électronique à balayage d'un piézo-électret micro-structuré *PP* obtenus par injection de gaz (à gauche) et *PDMS* obtenu par moulage (à droite) [Anton *et al.*, 2014, Shi *et al.*, 2014].

Finalement, les structures finales sont polarisées par l'application d'un champ électrique externe intense par contact direct à travers les électrodes conductrices préalablement déposées sur les échantillons, soit par une décharge couronne. Le champ électrique permet d'ioniser le gaz piégé dans les micro-cavités. Ainsi des charges de signe opposé sont créées et accélérées dans les deux sens pour venir s'implanter dans les surfaces internes des micro-cavités. Les échantillons finaux obtenus dans les deux cas varient au point de vue épaisseur de quelques dizaines à quelques centaines de micromètres. Dans les deux cas, la séparation des charges forme un macro-dipôle.

L'application d'une contrainte mécanique fait apparaître des charges induites sur les électrodes qui sont déposées sur les surfaces extérieures des matériaux [Fang *et al.*, 2007, Wegener *et al.*, 2004, Wegener et Bauer, 2005]. L'expérience a montré que les piézo-électrets contenant les micro-cavités sont les plus souples et résistent aux grandes déformations. Pour cette raison, nous nous sommes plus intéressés par ces matériaux vu nos objectifs.

Le changement de volume a lieu au niveau des micro-cavités puisque le gaz est plus compressible que le polymère massif.

Alors la distance entre les charges positives et négatives décroît contribuant à la décroissance du moment dipolaire. Bien que la densité de dipôles augmente en raison de la diminution du volume total, faisant ainsi apparaître des charges selon l'épaisseur sur les électrodes.

Ces matériaux ont expérimentalement montré qu'ils sont plus utiles selon leur épaisseur avec une réponse piézoélectrique plus importante [Wegener et Bauer, 2005, Fang *et al.*, 2007]. Cela est dû à leur coefficient piézoélectrique longitudinal d_{33} important. Par rapport aux matériaux piézoélectriques conventionnels, les propriétés les plus attractives des piézo-électrets est donc leurs coefficients piézoélectriques longitudinaux d_{33} . Par exemple, le piézo-électret à base de polypropylène (*PP*) possède un d_{33} de l'ordre de $175\text{pC}/\text{N}$ alors que celui du *PVDF* est de $28\text{pC}/\text{N}$ [Anton *et al.*, 2014], de plus de sa souplesse avec un module de Young de 0.5MPa . Puisque l'activité piézoélectrique provient essentiellement de la variation d'épaisseur suite à l'application d'une contrainte mécanique, la compressibilité de l'échantillon est importante pour atteindre une forte piézo-électricité. En effet, l'activité piézoélectrique dépend fortement de la structure et de la rigidité du matériau. Cela nous mène vers une augmentation contrôlée de la densité des micro-cavités pour pouvoir améliorer l'activité piézoélectrique du matériau.

De cette condition découle une remarque très importante est que la technique de l'injection du gaz dans le polymère est une méthode qui ne permet pas de contrôler ni la taille, ni la forme ni la distribution des micro-cavités. Cela nous empêche donc de contrôler les propriétés piézoélectriques des matériaux finaux.

Par contre, l'empilement des couches alternées entre des couches massives de polymère et des couches micro-structurées obtenues par le moulage a montré son efficacité et sa performance piézoélectrique vu la possibilité de contrôler les propriétés élastiques et piézoélectriques [Zhang *et al.*, 2014, Wang *et al.*, 2012].

Le tableau 1.3 regroupe les propriétés des matériaux piézo-électrets les plus importants ainsi que leurs propriétés mécaniques, diélectriques et piézoélectriques.

	Polypropylène (<i>PP</i>)	Téflon	<i>PEN</i>	PDMS microstructuré
Densité ($kg.m^{-3}$)	1.1	500	0.95	1.3
Module de Young (<i>MPa</i>)	0.5	0.170	1.4	0.3
Permittivité relative ϵ_r	1.23	2.9	3.2	3
d_{33} (pC/N)	175	600	140	34.8
k_{33}	0.06	0.1	0.02	-

TABLE 1.3: Propriétés de quelques matériaux polymères piézo-électrets [Anton *et al.*, 2014, Mellinger, 2003, Mellinger *et al.*, 2001a, Fang *et al.*, 2007, Wang *et al.*, 2012].

1.4 Figure de mérite

Pour pouvoir comparer quantitativement les différentes classes de matériaux piézoélectriques au niveau de leur performance, en vue de les intégrer dans des capteurs de vibrations mécaniques, Islam et al [Islam et Priya, 2006] ont défini une figure de mérite qui permet de les comparer. Elle est donnée par l'équation 1.21 avec c_{33} est le coefficient de rigidité élastique du matériau (N/m^2) et ϵ_0 est la permittivité du vide.

$$FOM = \frac{d_{33}^2}{\epsilon_0 \epsilon_{33} c_{33}} \quad (1.21)$$

Cette figure de mérite (*FOM*) est valable dans le cas où le matériau piézoélectrique est utilisé dans le mode-33 (en épaisseur), ce qui est le cas le plus courant pour les matériaux piézo-électrets. Nous pouvons calculer les différentes figures de mérite des différents matériaux du tableau 1.4 et les comparer.

Matériau	ε_{33}	$d_{33}(pC/N)$	$E(MPa)$	FOM
PZT	1010	230	43.5×10^3	1.36×10^{-22}
BNST	431	74.4	119.3×10^3	1.23×10^{-23}
Parylène C	3.15	2	2.8×10^3	5.12×10^{-23}
PVDF	12	28	3.2×10^3	2.3×10^{-21}
MFC	850	374	30×10^3	6.2×10^{-22}
Piézo-électret PTFE	2.9	600	0.170	8.25×10^{-14}
PEN piézo-électret	3.2	140	1.4	4.94×10^{-16}
PDMS piézo-électret	3	34.8	0.3	1.52×10^{-16}

TABLE 1.4: Figure de mérite de quelques matériaux piézoélectriques [Wang *et al.*, 1998, Nagata et Takenaka, 1997, Kim *et al.*, 2011, Harrison et Ounaies, 2002, Melinger *et al.*, 2001b, Fang *et al.*, 2007, Wang *et al.*, 2012].

Nous pouvons constater d’après le tableau 1.4 que les matériaux ayant les meilleures figures de mérite sont les matériaux piézo-électrets. Ces résultats justifient notre choix de ce type de matériaux susceptibles de subir les grandes déformations. Nos travaux dans le cadre de la thèse s’insère dans l’optimisation de cette figure de mérite.

1.5 Les applications

Les applications des matériaux piézo-électrets ont été développés beaucoup plus tard que celles des cristaux et céramiques piézoélectriques car ils étaient non appréciés au début. Un exemple parmi les plus anciennes applications a été un transducteur piézo-électret décrit la première fois en 1928. Ces transducteurs, ainsi que le microphone piézo-électret discuté dans les années suivantes, ont montré une insatisfaction, parce que les piézo-électrets utilisés au cire dans le temps avaient une stabilité piézoélectrique insuffisante dans les conditions normales [Sessler, 1998].

Cette situations n’a pas changé jusqu’à ce que les applications basées sur les piézo-électrets polymères ont été introduits dans la seconde moitié du $XX^{\text{ème}}$ siècle montrant ainsi leur efficacité.

En comparaison avec les matériaux piézoélectriques conventionnels, les piézo-électrets ont des avantages pour une variété d’applications de transducteurs. En effet, les polymères sont minces et légers, et donc ils peuvent être facilement fabriqués en toute

taille et forme. De plus, ils sont relativement peu coûteux. Un autre avantage important par rapport à la plupart des matériaux piézoélectriques est que la majorité des polymères micro-structurés sont constitués d'éléments chimiques non toxiques. Parmi les applications, nous pouvons citer le système de surveillance du fonctionnement de l'activité physique d'un patient. Le capteur à base de piézo-électret *PP* est installé sur la poitrine (figure 1.16), il répond aux variations de pression provoquée par le battement du cœur et la respiration du patient, et génère une tension de sortie, par lequel le rythme cardiaque, la respiration et l'activité du mouvement peuvent être identifiés [Hyun *et al.*, 2014].

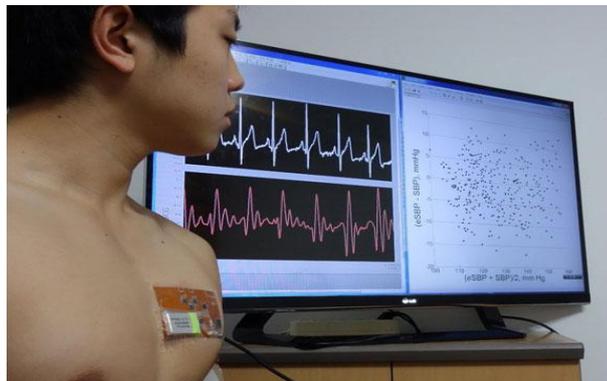


FIGURE 1.16: Capteur à base de matériaux piézo-électret *PP* [Hyun *et al.*, 2014].

Une autre application importante concerne l'intégration des matériaux piézo-électrets du type *PP* dans des systèmes récupérateurs d'énergie mécanique. Un short a été développé par *Vodafone* qui sert à convertir l'énergie mécanique en énergie électrique pour charger les téléphones mobiles (figure 1.17).



FIGURE 1.17: Capteur à base de matériaux piézo-électret *PP* [Vodafone, 2013].

De plus, la faible valeur de l'impédance acoustique des matériaux piézo-électrets constitue un autre avantage dans les applications des capteurs. Par rapport aux matériaux céramiques piézoélectriques, l'impédance des polymères est plus proche de celle de l'eau, en conséquence, les polymères peuvent émettre une plus grande partie de l'énergie acoustique générée dans une source sonore sous-marine [Bauer *et al.*, 2004].

Cette liste est non exhaustive du champ des applications faisant intégrer les matériaux piézo-électrets.

1.6 Conclusion

Nous constatons, d'après cette étude comparative dans la littérature, que les matériaux piézo-électrets présentent **une souplesse** très importante avec un module de Young qui varie de quelques **centraines de kPa jusqu'à quelques MPa** . De plus, ils présentent des coefficients piézoélectriques longitudinaux importants qui sont comparables ou même plus importants que ceux des matériaux piézoélectriques céramiques. L'efficacité de la réponse piézoélectrique a été mise en évidence par la comparaison à travers la figure de mérite dédiée aux applications de capteurs en mode épaisseur. **Ces matériaux piézo-électrets semblent présenter les meilleures figures de mérite**. Tous ces avantages sont compatibles avec nos objectifs. De plus, la maîtrise des techniques de micro-fabrication de ce type de matériaux et la théorie qui gère leur comportement piézoélectrique constituent des facteurs importants pour la micro-fabrication de nouveaux piézo-électrets. Dans le prochain chapitre, nous décrivons la conception, les simulations et la micro-fabrication de nouveaux matériaux piézo-électrets.

Conception et micro-fabrication des matériaux micro-structurés

Sommaire

2.1	Introduction	31
2.2	Modèle analytique des matériaux piézo-électrets	32
2.3	Choix du polymère	36
2.4	Optimisation de la figure de mérite	38
2.4.1	Modélisation des propriétés diélectriques du PDMS massif	38
2.4.2	Modélisation des propriétés diélectriques du PDMS micro-structuré	41
2.4.3	Procédé de micro-fabrication	46
2.4.4	Étude de la fiabilité du modèle	47
2.5	Chargement électrique	49
2.5.1	Description du procédé du chargement électrique	49
2.5.2	Condition de chargement électrique	49
2.5.3	Phénomène de saturation	51
2.5.4	Phénomène de neutralisation des charges	54
2.5.5	Effet du temps de chargement électrique	59
2.6	Conclusion	61

2.1 Introduction

Ce chapitre est consacré à la description détaillée de l'élaboration des matériaux piézo-électrets. Tout d'abord, nous avons commencé par le choix du polymère de base de ces micro-structures, puis, nous avons fixé les paramètres géométriques en vue d'optimiser la réponse piézoélectrique. Cette optimisation est réalisée à partir de la figure de mérite exploitant ces structures en mode capteur. Cela a été possible grâce à un modèle diélectrique fiable. Une fois les paramètres géométriques issus des

simulations fixés, nous détaillons les différentes étapes intervenant dans la micro-fabrication. Enfin, nous nous sommes focalisés sur l'étude des facteurs de chargement électrique de ces micro-structures ainsi fabriqués pour assurer leur comportement piézoélectrique suite à l'implantation des charges électriques dans les micro-cavités. Des modèles analytiques ont été aussi développés dans ce cadre pour augmenter la distribution de charges dans les micro-cavités et améliorer ainsi la performance piézoélectrique.

2.2 Modèle analytique des matériaux piézo-électrets

Depuis le développement des premiers matériaux piézo-électrets qui consistent à l'injection du gaz dans des matrices de polymères, les chercheurs se sont intéressés au développement d'un modèle théorique pour le coefficient piézoélectrique longitudinal d_{33} . Toutefois, les micro-cavités introduites dans les polymères sont distribuées d'une façon aléatoire et ayant des formes arbitraires. Cette configuration a empêché les chercheurs de pouvoir développer un modèle qui reflète le comportement diélectrique, mécanique et piézoélectrique réels des piézo-électrets. Les études ont été restreintes à des modèles simplifiés comportant des couches de polymère électriquement chargées alternées avec des couches de gaz [Paaajanen *et al.*, 1999, Sessler et Hillenbrand, 1999, Hillenbrand et Sessler, 2000, Zhang *et al.*, 2004, Hillenbrand *et al.*, 2005, Zhang *et al.*, 2006]. La figure 2.1 présente un exemple de piézo-électret en polypropylène (*PP*) et le modèle électrique qui lui est équivalent, où $V_{\text{chargement}}$ est la tension appliquée entre les deux électrodes, σ_i est la densité de la charge électrique à l'interface de la $i^{\text{ème}}$ couche, ε_b et ε_a sont respectivement la permittivité relative de la couche du polymère et du gaz, t_{bi} , E_{bi} et t_{ai} , E_{ai} sont les épaisseurs et les champs électriques de la $i^{\text{ème}}$ couche du polymère massif et du gaz respectivement.

Pour remédier à ce problème, un modèle plus sophistiqué a été développé accompagné par une distribution régulière des micro-cavités dans la matrice de polymère. Un arrangement régulier de ces micro-cavités permet de contrôler les propriétés diélectriques, mécaniques et piézoélectriques des matériaux piézo-électrets. Dans notre travail, nous nous proposons de réaliser des piézo-électrets contenant des micro-cavités cylindriques distribuées régulièrement dans la matrice du polymère. Cette géométrie est choisie pour avoir une structure mécanique qui résiste aux grandes déformations et pour assurer une implantation des charges seulement sur les bases des micro-cavités. Le modèle proposé tient compte de la densité de charge effective que contient le matériau piézo-électret. Nous nous proposons de calculer à travers ce modèle le coefficient piézoélectrique longitudinal d_{33} et montrer sa dépendance dans la configuration géométrique des structures. La figure 2.2 représente la configuration

proposée pour pouvoir calculer d_{33} [Wang *et al.*, 2012, J-J. Wang et Su, 2013].

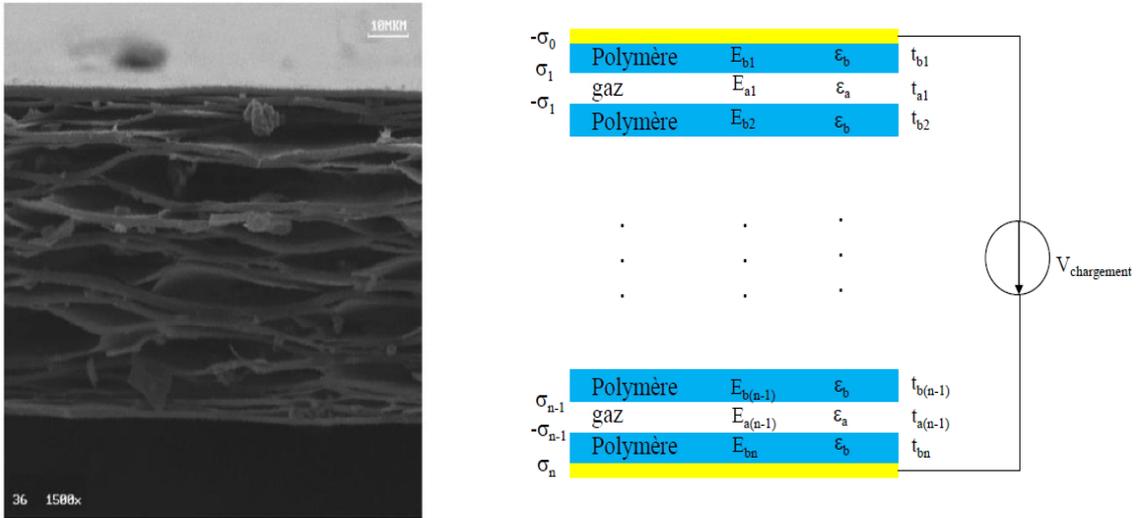


FIGURE 2.1: Modèle simplifié d'un piézo-électret à base de *PP* basé sur des couches chargées de polymère massif et des couches de gaz [Alvarez-Arenas, 2013].

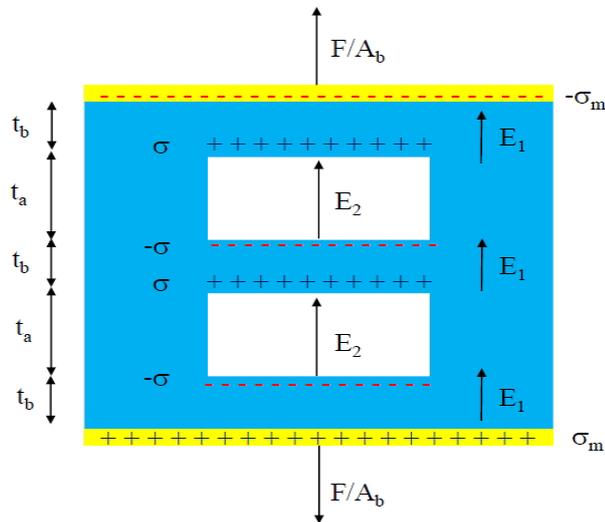


FIGURE 2.2: Modèle d'un piézo-électret avec un arrangement régulier des micro-cavités.

Les valeurs des champs électriques E_1 et E_2 dans les couches massives de polymère et les couches contenant des micro-cavités micro-structurées respectivement sont données par les équations 2.1 et 2.2.

$$E_1 = \frac{\sigma_m}{\varepsilon_0 \varepsilon_b} \quad (2.1)$$

$$E_2 = \frac{\sigma_m - \sigma}{\varepsilon_0} \quad (2.2)$$

σ_m est la densité des charges libres dans les électrodes métalliques.

En appliquant la loi de *Gauss* et en supposant que nos structures sont composées de $(n + 1)$ couches massives de polymère et n couches micro-structurées, nous obtenons la relation donnée par l'équation 2.3 en court circuit.

$$V = (n + 1)t_b E_1 + n t_a E_2 = 0 \quad (2.3)$$

En remplaçant les équations 2.1 et 2.2 dans l'équation 2.3, nous obtenons l'expression de la densité de charge sur les électrodes par l'équation 2.4.

$$\sigma_m = \frac{n t_a \varepsilon_b \sigma}{(n + 1)t_b + n t_a \varepsilon_b} \quad (2.4)$$

La variation de la densité de charge $\Delta\sigma_m$ au niveau des électrodes, suite à l'application d'une contrainte mécanique uniforme, peut être exprimée en fonction de la variation des épaisseurs t_a et t_b des différentes couches par l'équation 2.5. Nous supposons que les phénomènes physiques sont linéaires.

$$\Delta\sigma_m = \frac{\partial\sigma_m}{\partial t_b} \Delta t_b + \frac{\partial\sigma_m}{\partial t_a} \Delta t_a \quad (2.5)$$

Ce qui donne l'expression de l'équation 2.6.

$$\Delta\sigma_m = \frac{-n(n + 1)\varepsilon_b \sigma t_a}{((n + 1)t_b + n\varepsilon_b t_a)^2} \Delta t_b + \frac{n(n + 1)\varepsilon_b \sigma t_b}{((n + 1)t_b + n\varepsilon_b t_a)^2} \Delta t_a \quad (2.6)$$

L'application d'une force extérieure déforme cette structure en couches, la relation entre la force appliquée et la déformation sont données par les équations 2.7 et 2.8 respectivement.

$$\frac{F}{A_b} = c_{33} \frac{\Delta t_b}{t_b} \quad (2.7)$$

$$\frac{F}{A_a} = c_{33} \frac{\Delta t_a}{t_a} = \frac{F}{s_r A_b} \quad (2.8)$$

c_{33} est le coefficient de rigidité élastique, $s_r = \frac{A_a}{A_b}$, A_b et A_a désignent les surfaces effectives des couches de polymère massives et micro-structurées.

En divisant les deux équations 2.7 et 2.8 membre à membre, nous obtenons l'équation 2.9.

$$\frac{\Delta t_a}{\Delta t_b} = \frac{1}{s_r} \frac{t_a}{t_b} = \frac{t_r}{s_r} \quad (2.9)$$

$t_r = \frac{t_a}{t_b}$ désigne le rapport entre les épaisseurs des couches micro-structurées et les couches massives.

En réalité, la relation entre la force appliquée et la déformation de toute la structure fait intervenir le coefficient d'élasticité effectif de la structure c_{33eff} qui est exprimée par l'équation 2.10.

$$\frac{F}{A_b} = c_{33eff} \frac{(n+1)\Delta t_b + n\Delta t_a}{(n+1)t_b + nt_a} \quad (2.10)$$

Pour calculer le coefficient d'élasticité effectif de la structure, cette dernière peut être modélisée par un ensemble de ressorts en série comme représenté par la figure 2.3.

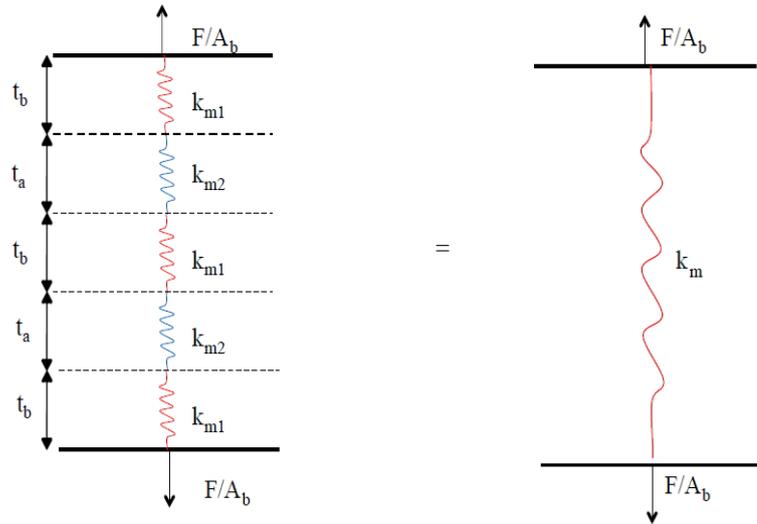


FIGURE 2.3: Modélisation d'un matériau piézo-électret par un système de ressorts.

D'une façon générale, la raideur d'un ressort k_m modélisant un solide s'exprime à partir du coefficient d'élasticité de ce dernier selon l'épaisseur c_{33} , la surface A sur laquelle une contrainte mécanique sera appliquée et son épaisseur t par l'équation 2.11.

$$k_m = \frac{A}{t} c_{33} \quad (2.11)$$

Dans notre cas, nous disposons en général de $(n+1)$ couches massives de polymères et n couches micro-structurées contenant des micro-cavités, soit alors $(n+1)$

ressorts de raideur k_{m1} et n ressorts de raideur k_{m2} . Le ressort équivalent à toute la structure possède une raideur k_m qui s'exprime par l'équation 2.12.

$$k_m = \frac{A_b}{(n+1)t_b + nt_a} c_{33eff} = \frac{1}{\frac{n+1}{k_1} + \frac{n}{k_2}} \quad (2.12)$$

$k_{m1} = \frac{A_b}{t_b} c_{33}$, $k_{m2} = \frac{A_a}{t_a} c_{33}$ et c_{33} est le coefficient d'élasticité du polymère massif.

Le coefficient d'élasticité c_{33eff} du matériau piézo-électret s'écrit alors selon l'équation 2.13.

$$c_{33eff} = s_r \frac{(n+1) + nt_r}{(n+1)s_r + nt_r} c_{33} \quad (2.13)$$

En injectant l'équation 2.9 dans l'équation 2.6, nous obtenons l'équation 2.14 qui concerne la variation de la densité des charges au niveau des électrodes.

$$\Delta\sigma_m = \frac{n(n+1)\varepsilon_b t_r (1-s_r)\sigma \Delta t_b}{s_r((n+1)t_b + n\varepsilon_b t_a)^2} = \frac{n(n+1)\varepsilon_b t_r (1-s_r)\sigma \Delta t_a}{t_r((n+1)t_b + n\varepsilon_b t_a)^2} \quad (2.14)$$

D'après l'équation 2.14, nous constatons qu'une partie des électrodes est chargée avec une densité de charge efficace σ_{meff} , d'où l'équation 2.15.

$$\sigma_{meff} = (1-s_r)\sigma_m \quad (2.15)$$

Et la variation de cette densité de charge s'exprime par l'équation 2.16.

$$\Delta\sigma_{meff} = (1-s_r)\Delta\sigma_m \quad (2.16)$$

Par définition, le coefficient piézoélectrique effectif du matériau piézo-électret d_{33} est donnée par l'équation 2.17.

$$d_{33} = \frac{\Delta\sigma_{meff}}{\frac{F}{A_b}} = \frac{n(n+1)\varepsilon_b t_r (1-s_r)^2 \sigma}{s_r((n+1) + n\varepsilon_b t_r)^2 c_{33}} \quad (2.17)$$

D'après l'équation 2.17, nous constatons qu'il est possible d'améliorer et de contrôler le coefficient piézoélectrique longitudinal effectif d_{33eff} du matériau piézo-électret en ajustant les dimensions de la structure pour des propriétés du polymère de base donné.

2.3 Choix du polymère

Depuis la découverte et la mise en évidence du comportement piézoélectrique dans les matériaux piézo-électrets, plusieurs matrices de polymères ont été exploitées

pour leur fabrication. Ces polymères peuvent être dans leur état amorphe ou semi-cristallin. Cet état influe d'une façon directe sur leur comportement mécanique par leur module de Young. C'est pour cette raison que les coefficients piézoélectriques diffèrent d'un matériau à un autre puisque les propriétés piézoélectriques dépendent aussi des propriétés mécaniques. Néanmoins, l'optimisation de la réponse piézoélectrique des piézo-électrets a été très rarement abordée à travers la figure de mérite et les propriétés diélectriques. En tenant compte de la figure de mérite que nous avons choisie, nous devons choisir un polymère qui présente la permittivité relative ε_b la plus faible parmi tous les candidats. Si nous revenons sur notre objectif initial, ce polymère doit posséder aussi un module de Young très faible pour garantir la souplesse du matériau final. Le tableau 2.1 regroupe une liste non exhaustive des polymères pouvant être exploités dans la micro-fabrication des piézo-électrets. Nous constatons que le *PDMS* présente un compromis entre les deux grandeurs évoquées. Il constitue le candidat le plus favorable pour être le polymère de base pour nos structures.

Nous rappelons que la figure de mérite *FOM* est donnée par l'équation 2.18.

$$FOM = \frac{d_{33}^2}{\varepsilon_0 \varepsilon_{33} c_{33}} \quad (2.18)$$

Matériaux polymères	permittivité relative ε_b à 60Hz	Module de Young (MPa)
Polypropylène (<i>PP</i>)	3.2	1803
Poly(méthacrylate de méthyle) (<i>PMMA</i>)	3.5	3226
Polytétrafluoroéthène (<i>PTFE</i>)	3	366
Polydimethylsiloxane (<i>PDMS</i>)	3	1.3
Poly(téréphtalate d'éthylène) (<i>PET</i>)	3.2	4103
Poly(fluorure de vinylidène) (<i>PVDF</i>)	12	3200

TABLE 2.1: Propriétés diélectriques et mécaniques de quelques matériaux polymères [Brandrup *et al.*, 2003, Thomas *et al.*, 2010, Luo *et al.*, 2013, Pramila *et al.*, 1993].

2.4 Optimisation de la figure de mérite

Dans cette partie, nous allons détailler la démarche que nous avons suivie pour fixer les paramètres géométriques des matériaux micro-structurés pour finir par l'élaboration des structures finales.

2.4.1 Modélisation des propriétés diélectriques du PDMS massif

D'après l'équation 2.18, pour optimiser la *FOM* il faut réduire la permittivité relative des structures finales dans le cadre d'une étude dynamique. Toutefois, la permittivité relative ϵ_{33} de la structure est composée de la partie réelle ϵ'_{33} et imaginaire ϵ''_{33} sous sa forme complexe qui s'écrit sous la forme de l'équation 2.19 et le module est donné par l'équation 2.20.

$$\epsilon_{33}^* = \epsilon'_{33} - j\epsilon''_{33} \quad (2.19)$$

$$|\epsilon_{33}^*| = \epsilon_{33} = \sqrt{\epsilon'^2_{33} + \epsilon''^2_{33}} \quad (2.20)$$

Pour réduire la permittivité relative, il faut réduire à la fois la partie réelle et imaginaire. A savoir que la permittivité relative dépend des paramètres géométriques des structures finales. Pour cette raison, nous nous sommes proposés de développer un modèle qui permet de prédire la permittivité relative et d'optimiser la *FOM* par le jeu de paramètres géométriques. Nous proposons de réaliser un modèle pour un matériau sandwich composé de deux couches massives du *PDMS* séparée par une couche micro-structurée. Cette dernière comporte des micro-cavités cylindriques qui sont arrangées régulièrement dans les deux directions du plan de la couche. Ce modèle exige la modélisation des propriétés diélectriques (la partie réelle ϵ'_b et la partie imaginaire ϵ''_b) du *PDMS* massif en fonction de la fréquence et de la température. Pour cela, nous avons caractérisé des couches massives du *PDMS* faisant une épaisseur de $100\mu m$ avec des électrodes en or qui sont déposées sur les deux surfaces par pulvérisation. Les caractérisations sont réalisées avec un analyseur d'impédance du type *Novocontrol-Alpha BDS20*. Toutes les mesures sont réalisées dans une enceinte et sous un gaz inerte (Azote). La variation de la température est contrôlée par un appareil du type *Linkam TMS94*. Les caractérisations sont restreintes à une gamme de fréquence de $1Hz$ à $100Hz$ qui est la gamme utile pour couvrir les fréquences de vibrations mécaniques existant dans l'environnement. Les études sont réalisées pour des températures allant de $25^\circ C$ à $125^\circ C$ par pas de $20^\circ C$.

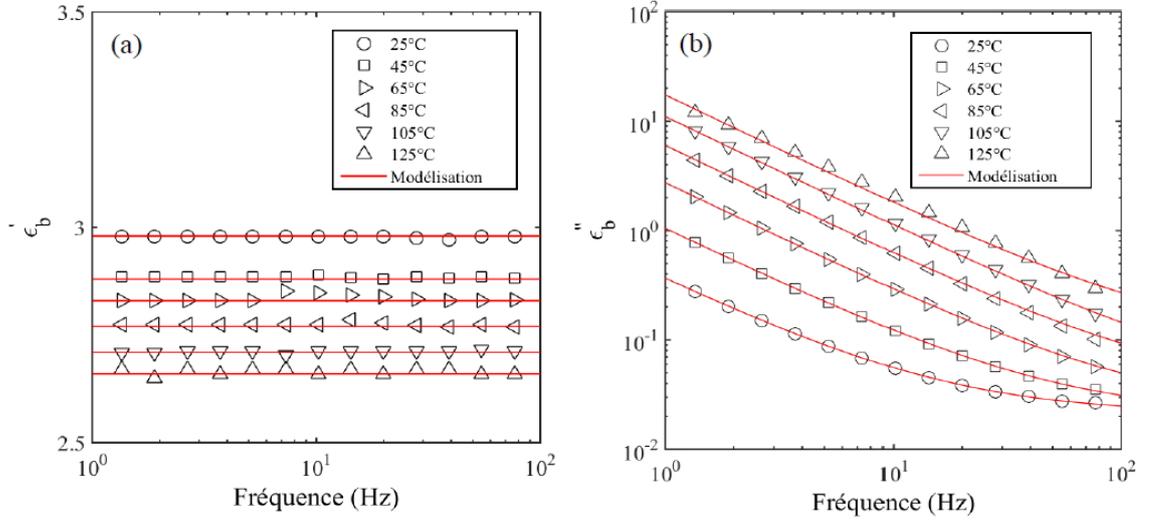


FIGURE 2.4: Ajustement de la partie réelle ε'_b (a) et imaginaire ε''_b (b) du PDMS massif à partir du modèle de la figure 2.5.

Les propriétés diélectriques du *PDMS* massif peuvent être modélisées par un simple circuit électrique qui est représenté par la figure 2.5. Dans ce modèle, C^* désigne une capacité complexe composée d'une partie purement capacitive et une autre partie qui caractérise les pertes diélectriques autre que les pertes par conduction. Cette capacité complexe est en parallèle avec une résistance R correspondant aux pertes par conduction dans le polymère massif. L'admittance complexe Y_{eq}^* du circuit équivalent représenté dans la figure 2.5 est donné par l'équation 2.21 [Kachroudi *et al.*, 2015b].

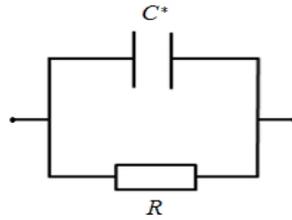


FIGURE 2.5: Modèle électrique proposé pour les propriétés diélectriques du *PDMS* massif.

$$Y_{eq}^* = jC^*\omega + \frac{1}{R} = j(C' - jC'')\omega + \frac{1}{R} = \left(\frac{1}{R} + C''\omega\right) + jC'\omega \quad (2.21)$$

ω représente la pulsation en $rad.s^{-1}$.

L'impédance est définie par l'inverse de l'admittance Y_{eq}^* par l'équation 2.22.

$$Z_{eq}^* = \frac{1}{Y_{eq}^*} = \frac{\frac{1}{R} + C''\omega}{(\frac{1}{R} + C''\omega)^2 + (C''\omega)^2} - j \frac{C'\omega}{(\frac{1}{R} + C''\omega)^2 + (C''\omega)^2} = Z' - jZ'' \quad (2.22)$$

Des équations 2.21 et 2.22, nous pouvons déterminer la capacité équivalente C_{eq} (équation 2.23) et la conductance équivalente G_{eq} (équation 2.24) pour le circuit proposé.

$$C_{eq} = \frac{Z''}{\omega(Z'^2 + Z''^2)} = C' \quad (2.23)$$

$$G_{eq} = \frac{1}{R_{eq}} = \frac{Z'}{Z'^2 + Z''^2} = \frac{1}{R} + C''\omega \quad (2.24)$$

Les équations 2.23 et 2.24 montrent clairement que C_{eq} est indépendante de la fréquence, par contre, G_{eq} varie linéairement avec la fréquence. Ces valeurs peuvent être utilisées pour calculer la partie réelle ε'_b et imaginaire ε''_b de la permittivité relative du *PDMS* massif respectivement (équations 2.25 et 2.26).

$$\varepsilon'_b = \frac{1}{\varepsilon_0} \frac{t}{A} C' \quad (2.25)$$

$$\varepsilon''_b = \frac{G_{eq} \varepsilon'_b}{\omega C_{eq}} = \left(\frac{1}{R\omega} + C'' \right) \frac{t}{\varepsilon_0 A} = \frac{1}{\varepsilon_0 \rho_b \omega} + \varepsilon''_{b\infty} \quad (2.26)$$

t est l'épaisseur de l'échantillon, A est l'aire des électrodes. La résistivité ρ_b pour chaque température peut être calculée à partir de la valeur de la résistance R grâce à l'équation 2.27.

$$R = \rho_b \frac{t}{A} \quad (2.27)$$

Les valeurs de $\varepsilon''_{b\infty}$ caractérisent les phénomènes de pertes diélectriques qui apparaissent à hautes fréquences. Les courbes de la figure 2.4 ont été ajustées par les expressions des équations 2.25 et 2.26 qui fournissent les valeurs des paramètres (ε'_b , $\varepsilon''_{b\infty}$ et ρ_b). Ces valeurs sont utiles pour la prédiction des propriétés diélectriques du matériau piézo-électret micro-structuré en suivant l'algorithme représenté par la figure 2.6.

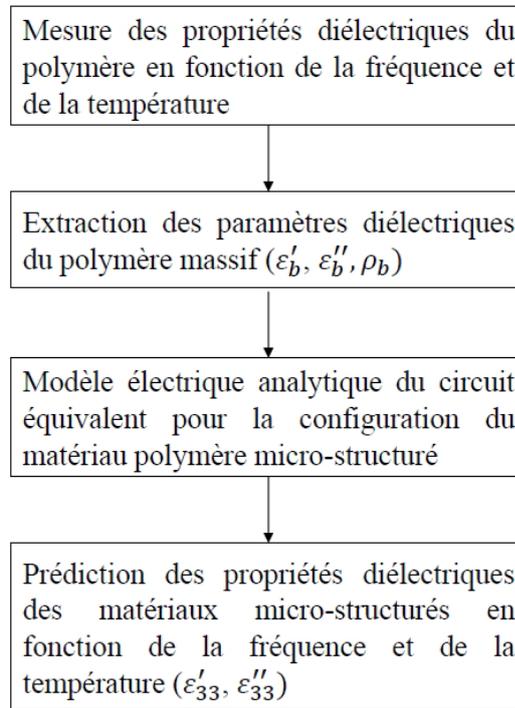


FIGURE 2.6: Algorithme pour la prédiction des propriétés diélectriques des matériaux micro-structurés.

2.4.2 Modélisation des propriétés diélectriques du PDMS micro-structuré

Dans ce travail, nous proposons un modèle analytique qui est représenté par un circuit électrique équivalent pour prédire la partie réelle et imaginaire de la permittivité relative du *PDMS* micro-structuré. Le modèle proposé est basé sur la discrétisation du matériau micro-structuré en maille élémentaire dont sa translation dans les trois directions x , y et z de l'espace permet de reproduire tout le matériau (figure 2.7). La maille élémentaire est discrétisée à son tour en des admittances partielles, chaque admittance est représentée par un circuit $R - C^*$ pour prendre en considération les pertes diélectriques dans le *PDMS* à partir des caractérisations déjà réalisées. Par la suite, la partie réelle et imaginaire de la permittivité relative des matériaux micro-structurés sont calculées à partir de l'admittance équivalente du circuit global représentant la maille élémentaire. Cette dernière est considérée comme un condensateur contenant une micro-cavité cylindrique qui peut être discrétisée en parties élémentaires et à chacune correspond une admittance qui correspond à un circuit qui est représenté par la figure 2.5. Le circuit équivalent correspondant à la maille élémentaire est représenté dans la figure 2.7. La capacité et la résistance

correspondant à chaque élément de la cellule élémentaire sont calculées à partir des paramètres géométriques et des constantes diélectriques du *PDMS* massif déjà déterminées [Kachroudi *et al.*, 2015b, Patil *et al.*, 2008, Koledintseva *et al.*, 2009].

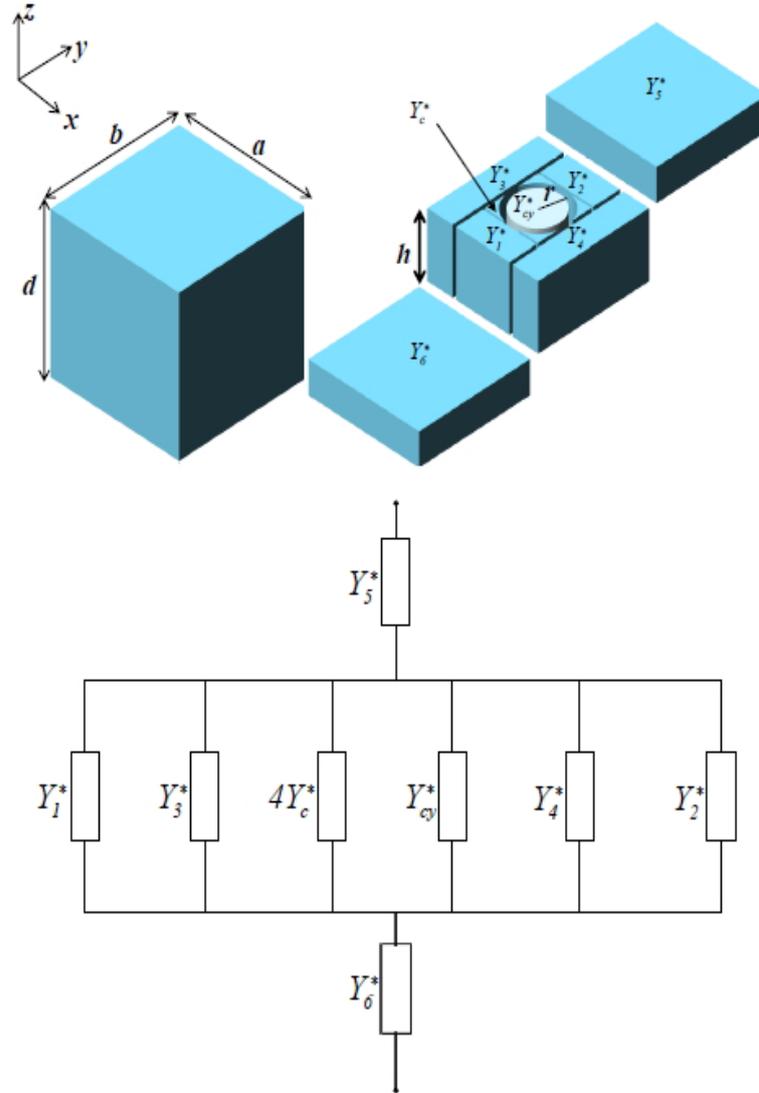


FIGURE 2.7: Vue 3D d'une maille élémentaire discrétisée d'un matériau PDMS micro-structuré et son circuit électrique équivalent correspondant.

A partir de la figure 2.7, Y_1^* et Y_2^* représentent les admittances à gauche et à droite de la micro-cavité. Étant donné que la structure est symétrique, les capacités complexes C_1^* et C_2^* sont données par l'équation 2.28.

$$C_1^* = C_2^* = \varepsilon_0(\varepsilon'_b - j\varepsilon''_{b\infty}) \frac{(b-2r)a}{2h} \quad (2.28)$$

Les résistances correspondantes sont données par l'équation 2.29.

$$R_1 = R_2 = \rho_b \frac{2h}{(b-2r)a} \quad (2.29)$$

Les admittances Y_3^* et Y_4^* , les capacités C_3^* et C_4^* et les résistances R_3 et R_4 correspondent aux éléments localisés en avant et en arrière de la micro-cavité et sont données par les équations 2.30 et 2.31.

$$C_3^* = C_4^* = \varepsilon_0(\varepsilon'_b - j\varepsilon''_{b\infty}) \frac{r(a-2r)}{h} \quad (2.30)$$

$$R_1 = R_2 = \rho_b \frac{h}{r(a-2r)} \quad (2.31)$$

Les admittances Y_5^* et Y_6^* , les capacités C_5^* et C_6^* et les résistances R_5 et R_6 correspondent aux éléments situés en haut et en bas de la micro-cavité et qui sont exprimées par les équations 2.32 et 2.33.

$$C_5^* = C_6^* = \varepsilon_0(\varepsilon'_b - j\varepsilon''_{b\infty}) \frac{2ab}{d-h} \quad (2.32)$$

$$R_5 = R_6 = \rho_b \frac{(d-h)}{2ab} \quad (2.33)$$

Y_c^* représente l'admittance de chacun des coins de la micro-cavité. La capacité C_c^* et la résistance R_c sont données par les équations 2.34 et 2.35.

$$C_c^* = \varepsilon_0(\varepsilon'_b - j\varepsilon''_{b\infty}) \frac{2(4r^2 - \pi r^2)}{4h} \quad (2.34)$$

$$R_c = \rho_b \frac{4h}{(4r^2 - \pi r^2)} \quad (2.35)$$

Y_{cy}^* représente l'admittance de la micro-cavité cylindrique et la capacité C_{cy}^* et la résistance R_{cy} correspondantes sont données par les équations 2.36 et 2.37.

$$C_{cy}^* = \varepsilon_0 \frac{\pi r^2}{h} \quad (2.36)$$

$$R_{cy} = \rho_{air} \frac{h}{\pi r^2} \quad (2.37)$$

ρ_{air} est la résistivité de l'air.

Chaque admittance Y_p^* de la maille élémentaire, où l'indice p réfère à chaque élément mentionné ci-dessus, est donnée par l'équation 2.38.

$$Y_p^* = j\omega C_p^* + \frac{1}{R_p} \quad (2.38)$$

L'admittance complexe centrale est donnée par l'équation 2.39.

$$Y_{central}^* = 2Y_1^* + 2Y_3^* + 4Y_c^* + Y_{cy}^* \quad (2.39)$$

L'admittance complexe Y_{eq}^* équivalente à toute la maille élémentaire est donnée par l'équation 2.40.

$$Y_{eq}^* = \frac{Y_5^* Y_{central}^*}{Y_5^* + 2Y_{central}^*} \quad (2.40)$$

La capacité équivalente C_{eq} et la conductance équivalente G_{eq} peuvent être déduites à partir de l'équation 2.40 et elles sont exprimées par les équations 2.41 et 2.42.

$$G_{eq} = Re(Y_{eq}^*) \quad (2.41)$$

$$C_{eq} = \frac{1}{\omega} Im(Y_{eq}^*) \quad (2.42)$$

La partie réelle et imaginaire de la permittivité relative du matériau *PDMS* micro-structuré selon l'axe z (en épaisseur) sont données par les équations 2.43 et 2.44.

$$\varepsilon'_{33} = \frac{1}{\varepsilon_0} \frac{d}{ab} C_{eq} \quad (2.43)$$

$$\varepsilon''_{33} = \frac{1}{\omega} \varepsilon'_{33} \frac{G_{eq}}{C_{eq}} \quad (2.44)$$

A partir de ces expressions, nous avons étudié les variations de la *FOM* en fonction des paramètres géométriques en étudiant trois cas différents. Les paramètres s_r et t_r sont donnés par les équations 2.45 et 2.46 à partir des dimensions de la maille élémentaire tout en considérant le même pas dans les directions x et y .

Nous avons étudié ces trois cas pour montrer l'influence des paramètres géométriques sur les propriétés diélectriques et sur la *FOM*. Des valeurs de s_r et t_r optimisant la *FOM* sont repérées dans chaque cas. Les variations des valeurs de r et h sont choisies d'une manière à assurer la convergence des équations ε'_{33} et ε''_{33} .

$$s_r = \frac{ab - \pi r^2}{ab} = 1 - \pi \frac{r^2}{ab} \quad (2.45)$$

$$t_r = \frac{2h}{d-h} \quad (2.46)$$

Les différents cas étudiés sont représentés dans la figure 2.8.

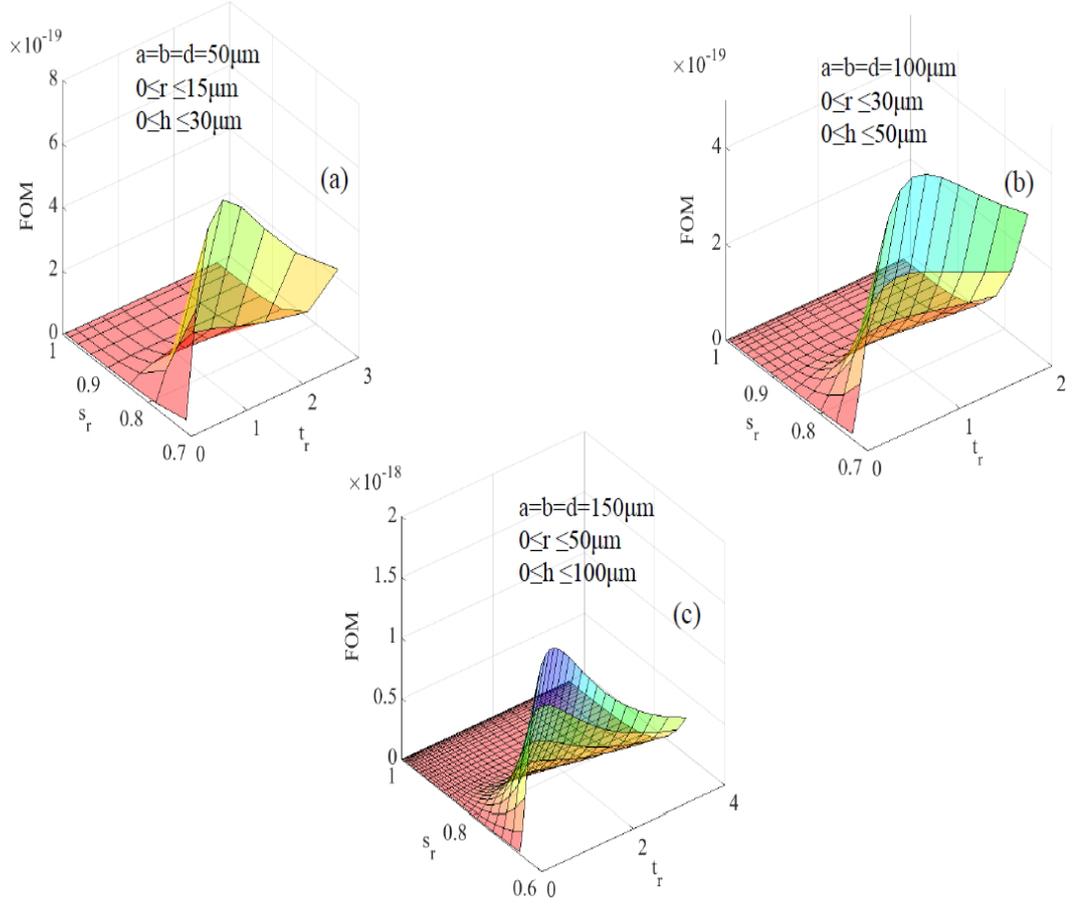


FIGURE 2.8: Variation de la FOM en fonction des paramètres géométriques des structures pour différentes configurations.

Le seul cas qui peut être réalisé dans notre laboratoire avec les moyens technologiques que nous disposons et qui possède la meilleure FOM est le cas représenté par la figure 2.8 c : $s_r = 0.65$ et $t_r = 0.75$. Cette configuration correspond à un sandwich constitué de deux couches massives ayant chacune une épaisseur de $55\mu\text{m}$ séparée par une couche micro-structurée de $40\mu\text{m}$ d'épaisseur. Cette dernière contient des micro-cavités cylindriques ayant un diamètre de $100\mu\text{m}$ avec un pas régulier de $150\mu\text{m}$.

Le procédé de micro-fabrication de ces matériaux est détaillé dans le paragraphe suivant.

2.4.3 Procédé de micro-fabrication

Le procédé de micro-fabrication des matériaux *PDMS* micro-structurés est réalisée en six étapes [Kachroudi *et al.*, 2015b, Wang *et al.*, 2012, J-J. Wang et Su, 2013]. La figure 2.9 résume les différentes étapes :

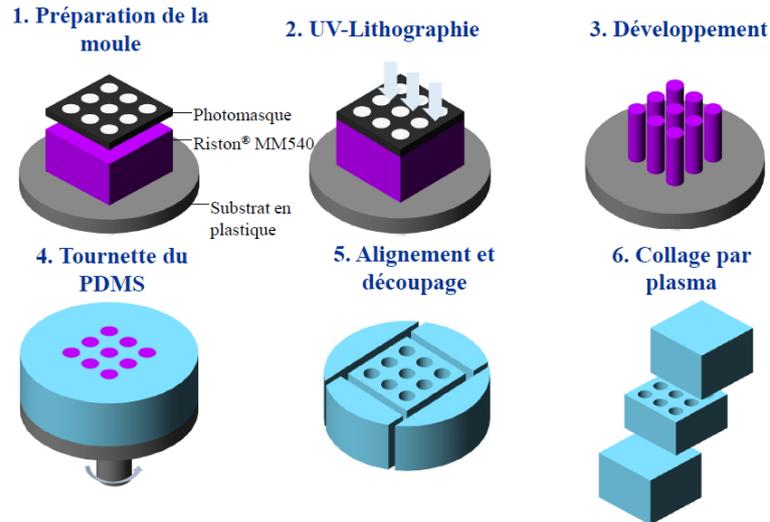


FIGURE 2.9: Croquis du déroulement du procédé de fabrication du matériau PDMS micro-structuré.

- La première étape consiste à la préparation du *PDMS* en utilisant le kit *Sylgard 184* de *Dow Corning* en mélangeant l'agent réticulant et le prépolymère dans des proportions 1:10 recommandées par les fournisseurs et d'autres auteurs. Le mélange obtenu est dégazé grâce à un dessiccateur sous vide pendant une heure au moins. Puis, nous préparons les moules, nous collons une résine sous forme de ruban adhésif du type *Riston MM540*, *Dupont* faisant une épaisseur de $40\mu m$ sur un substrat en plastique. Un photo-masque contenant des cercles avec des diamètres de $100\mu m$ séparées régulièrement avec un pas de $150\mu m$.
- La deuxième étape est la photolithographie qui consiste à introduire le substrat avec la résine et le photo-masque dans un insolateur à rayons ultraviolets du type *Krub, Kloé* pour être exposé à 50% de la puissance maximale durant 20s.
- La troisième étape est le développement. En effet, la résine est développée en utilisant une solution aqueuse à 1% de Carbonate de Sodium (Na_2CO_3) anhydre. Les moules obtenus sont constitués de piliers cylindriques ayant une hauteur de $40\mu m$ et de diamètre $100\mu m$ distants de $150\mu m$.
- La quatrième phase est l'introduction à la tournette. Pour obtenir des couches micro-structurées de $40\mu m$ d'épaisseur, du *PDMS* est introduit en tournette

sur les moules. Le même procédé est utilisé pour fabriquer les couches massives de $55\mu m$. Les épaisseurs des différentes couches sont contrôlées par un capteur de type *Mitutoyo*.

- La cinquième étape est celle du décollement et de l'alignement des différentes couches.
- La sixième étape est celle du traitement plasma d'oxygène, les différentes couches sont exposées à un plasma pendant 20s pour arriver à les coller et obtenir les structures finales.

La figure 2.10 représente une photo par microscopie électronique des couches micro-structurées avec une illustration schématique des structures finales. Ces dernières sont d'une épaisseur de $150\mu m$ et d'une aire électrodée de $2 \times 2cm^2$.

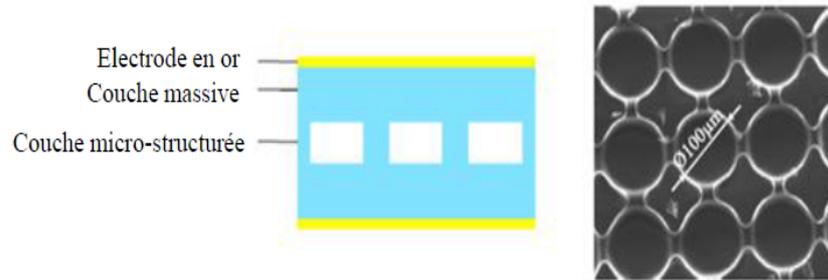


FIGURE 2.10: Illustration schématique de la structure finale et une image par microscopie électronique de la couche micro-structurée.

2.4.4 Étude de la fiabilité du modèle

Pour valider le modèle proposé pour les matériaux micro-structurés, nous avons comparé les résultats expérimentaux de la réponse diélectrique de différentes configurations des structures aux résultats issus des simulations. Nous proposons deux types de structures qui sont composées toutes les deux d'une couche micro-structurée placée entre deux couches massives du *PDMS*. La variation de la fraction volumique des micro-cavités a été réalisée de deux manières différentes. Pour le premier cas, l'épaisseur des couches massives a été variée de $55\mu m$, $100\mu m$ et $150\mu m$ tout en gardant l'épaisseur de la couche micro-structurée fixe à $40\mu m$. L'épaisseur totale de la cellule élémentaire d (figure 2.7) est de $150\mu m$, $240\mu m$ et $340\mu m$. Les micro-cavités sont cylindriques et de diamètre de $100\mu m$ espacées avec un pas de $150\mu m$. La figure 2.11 montre que les résultats obtenus par le modèle électrique proposé sont en bon accord avec les résultats expérimentaux qui reflète la cohérence du modèle.

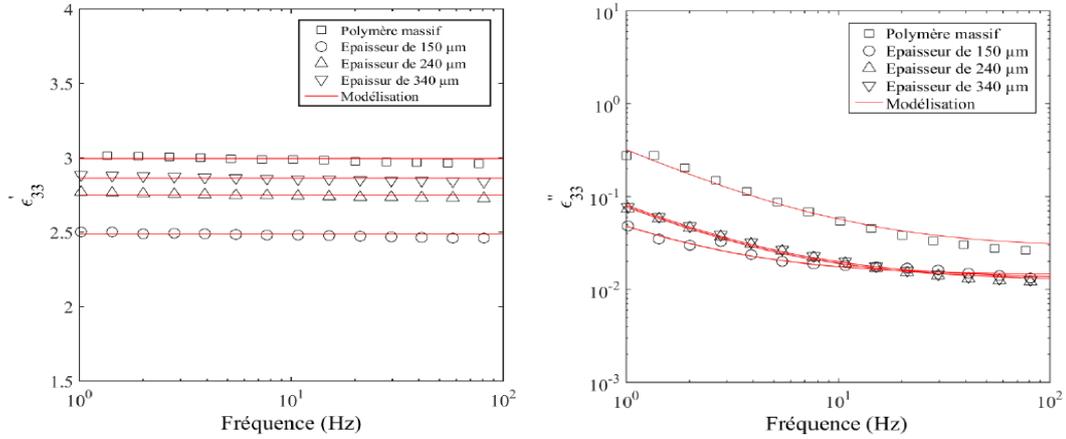


FIGURE 2.11: Modélisation des propriétés diélectriques des matériaux *PDMS* micro-structurés pour différentes épaisseurs des couches massives à $25^{\circ}C$.

Nous pouvons constater que l'augmentation de l'épaisseur des couches massives du polymère micro-structuré fait croître les propriétés diélectriques de ce dernier pour s'approcher des propriétés diélectriques du polymère massif.

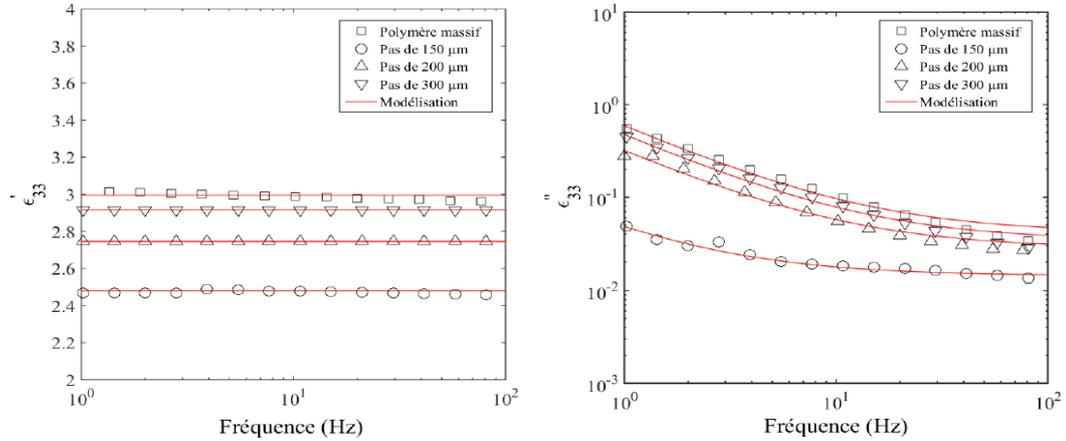


FIGURE 2.12: Modélisation des propriétés diélectriques des matériaux *PDMS* micro-structurés avec différents pas des micro-cavités à $25^{\circ}C$.

La deuxième façon de changer la fraction volumique des micro-cavités est par la variation du pas des micro-cavités. De cette manière, une couche micro-structurée de $40\mu m$ d'épaisseur contenant des micro-cavités cylindriques de $100\mu m$ de diamètre est placée entre deux couches d'*PDMS* massives d'une épaisseur de $55\mu m$ chacune. Nous avons fait varier le pas des micro-cavités de $150\mu m$, $200\mu m$ et $300\mu m$ ce qui

engendre la variation des dimensions de la cellule élémentaire a et b (figure 2.7) de $150\mu m$, $200\mu m$ et $300\mu m$ respectivement. La figure 2.12 montre la fiabilité du modèle électrique proposé dans la reproduction des résultats expérimentaux ainsi obtenus. Ce modèle peut être utilisé pour prédire le comportement diélectrique de ces matériaux micro-structurés dans la gamme de fréquence étudiée [Kachroudi *et al.*, 2015b].

Nous constatons que la réduction de la distance entre les micro-cavités du polymère micro-structuré augmente la fraction volumique de la partie massive ce qui fait augmenter les propriétés diélectriques pour atteindre celles du polymère massif.

2.5 Chargement électrique

2.5.1 Description du procédé du chargement électrique

Le chargement électrique par contact direct est la technique la plus utilisée dans le laboratoire qui peut être réalisée avec un simple équipement. Des électrodes métalliques doivent être préalablement déposées sur les deux surfaces des matériaux micro-structurés. Les électrodes de la cellule de chargement électrique doivent être de surfaces plus petites par rapport à celles déposées sur les échantillons. Une tension quasi-statique est appliquée directement à travers les électrodes et le champ électrique provoque l'ionisation de l'air dans les micro-cavités. Le chargement électrique par contact direct peut être réalisé aussi à hautes températures. Dans ce cas, les électrodes de la cellule de chargement électrique sont aussi utilisés pour chauffer les échantillons par un système de contrôle de température. L'inconvénient de cette technique est le claquage du polymère si un défaut existe dans le matériau. Nous allons discuter en détail dans les parties suivantes les différentes conditions pour arriver à charger les structures tout en assurant le maximum de charges implantées dans les surfaces internes des micro-cavités [Neugschwandtner *et al.*, 2000, Lindner *et al.*, 2002].

2.5.2 Condition de chargement électrique

Pour éviter le phénomène de claquage du *PDMS* des mesures du champ de claquage ont été effectuées sur des échantillons massifs faisant $100\mu m$ d'épaisseur. D'après la figure 2.13, nous constatons que la température n'a aucun effet sur la rigidité diélectrique du *PDMS*. La valeur correspondante est approximativement de $1.6MV.cm^{-1}$ pour une gamme de températures allant de $20^{\circ}C$ à $100^{\circ}C$.

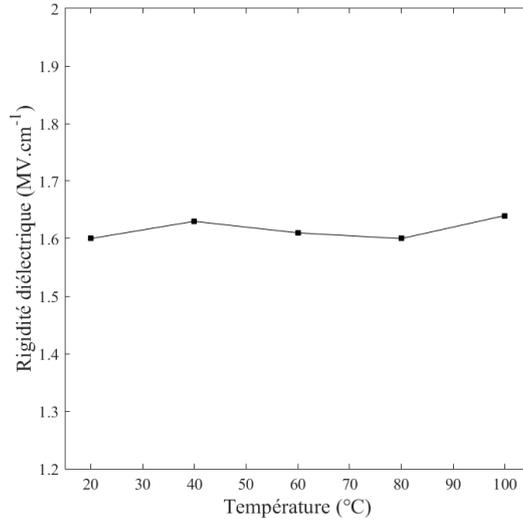


FIGURE 2.13: Valeurs du champ de la rigidité diélectrique du *PDMS* pour différentes valeurs de températures.

La loi de *Paschen* est considérée pour expliquer la rupture diélectrique de l'air dans les micro-cavités dans le cas des polymères cellulaires micro-structurés avec un gap d'air entre 5 et 200 μm [Anderson *et al.*, 2002]. D'après la loi de *Paschen*, la tension de claquage V_{claquage} et le champ électrique de claquage E_{claquage} sont donnés respectivement par les équations 2.47 et 2.48 [Boyle et Kisliuk, 1995].

$$V_{\text{claquage}} = B \frac{Pt}{C + \ln(Pt)} \quad (2.47)$$

$$E_{\text{claquage}} = B \frac{P}{C + \ln(Pt)} \quad (2.48)$$

Où

$$C = \ln\left(\frac{A}{\ln\left(1 + \frac{1}{\gamma}\right)}\right)$$

t est le gap d'air exprimé en μm et P est la pression dans les micro-cavités exprimée en bar . A et B sont des constantes qui dépendent de la composition du gaz ($A = 11250.96\text{cm}^{-1}.\text{bar}^{-1}$ et $B = 273773.27\text{V}.\text{cm}^{-1}.\text{bar}^{-1}$ pour l'air dans les conditions normales) et γ est le second coefficient d'ionisation ($\gamma = 0.01$ dans les conditions normales) [Bazelyan et Raizer, 1998].

En différentiant les équations 2.47 et 2.48, la valeur minimale de la tension et le champ électrique du claquage selon la loi de *Paschen* peuvent être estimés. La figure 2.14 représente les courbes relatives à la loi de *Paschen* dans le cas de l'air avec une

pression de 1bar pour différentes valeurs de gap d'air pour des matériaux cellulaires micro-structurés. La tension et le champ électrique de claquage pour nos structures sont repérés par les flèches sur la figure 2.14. Ces valeurs sont respectivement 485V et 12MV.m^{-1} dans notre cas avec un gap d'air de $40\mu\text{m}$.

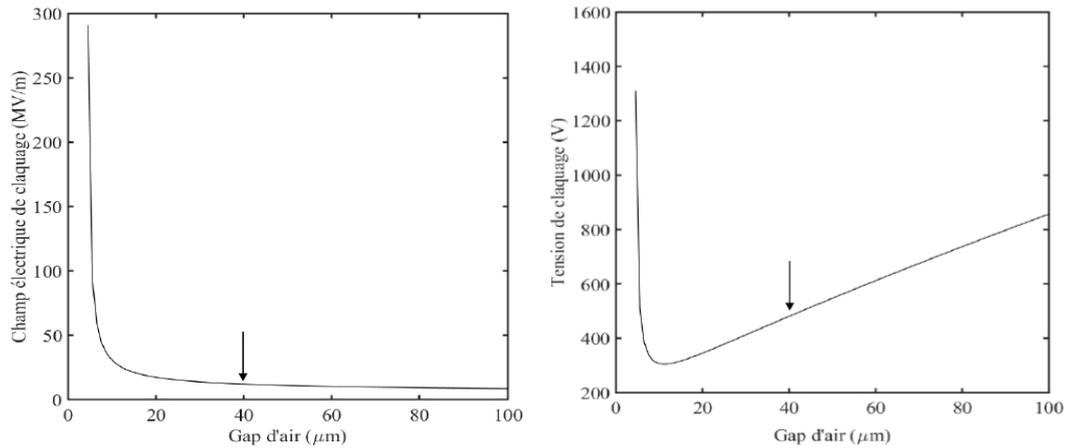
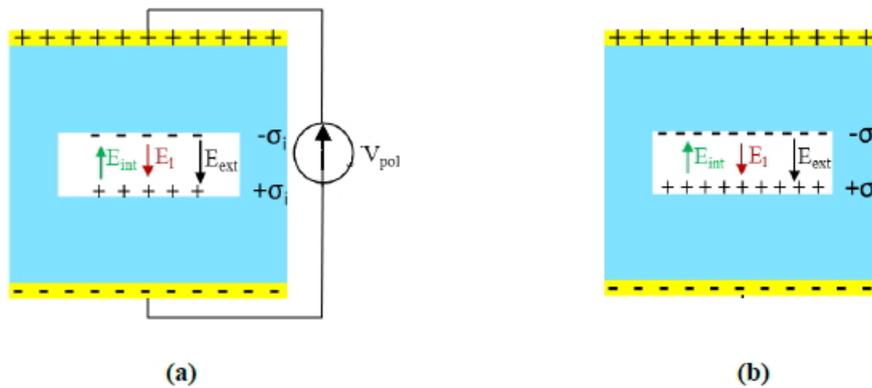


FIGURE 2.14: Le champ électrique (a) et la tension (b) de claquage en fonction du gap d'air pour une pression de 1 bar relativement à la loi de *Paschen*.

2.5.3 Phénomène de saturation

Le procédé d'implantation des charges électriques impose certaines contraintes. En effet, nous devons discuter les différents cas qui peuvent se produire en fonction du champ électrique (et la tension) qui sont appliqués par le biais des électrodes pour charger les structures. La figure 2.15 résume les différents phénomènes qui peuvent se produire au cours du procédé de polarisation. V_{pol} est la tension de chargement électrique appliquée entre les électrodes de l'échantillon, E_l représente le champ électrique local dans la micro-cavité qui est la superposition du champ extérieur E_{ext} provenant des charges existantes sur les électrodes de l'échantillon et le champ électrique intérieur E_{int} provenant des charges implantées dans les surfaces internes des micro-cavités. $E_{claquage}$ est le champ électrique seuil estimé par la loi de *Paschen* décrit ci-dessus. Quand on applique V_{pol} , E_l provient du champ E_{ext} du fait de la tension de polarisation. Si celui-ci est supérieur au seuil du champ de claquage, l'ionisation de l'air se produit dans la micro-cavité (figure 2.15 (a.i)) et des charges de signe opposé sont implantées dans les surfaces internes. Si la densité des charges implantées augmente, le champ électrique interne E_{int} résultant de ces charges abaisse le champ électrique local E_l , par conséquent, l'ionisation de l'air est interrompue une fois que E_l est inférieur à $E_{claquage}$ (2.15 (a.ii)). Si V_{pol} est supprimé, E_{int} compense E_{ext} , si E_l est supérieur à $E_{claquage}$, l'ionisation de l'air se produit (2.15

(b.i)). Ce phénomène détruit certaines charges précédemment implantées et réduit le champ électrique local. Les charges restantes sont les charges finales qui peuvent être maintenues sur les surfaces internes des micro-cavités (figure 2.15 (b.ii)). Toutefois, pour un tel matériau micro-structuré cellulaire, le maximum de charges qui peuvent être implantées dans les surfaces internes des micro-cavités est limité. Cela confirme l'existence d'une tension de saturation $V_{saturation}$ de polarisation au-dessus de laquelle aucune charge ne peut être implantée. D'après le modèle de notre matériau *PDMS* micro-structuré cellulaire représenté sur la figure 2.15 et en supposant que les charges implantées dans les surfaces internes des micro-cavités sont réparties uniformément, le champ électrique local E_l dans la micro-cavité peut être estimée par la loi de *Gauss* (équation 2.49).



(i) $E_l = E_{ext} - E_{int} > E_{breakdown}$
Les charges implantées dans les surfaces internes de micro-cavités induit un champ électrique intérieur E_{int} qui s'oppose à E_{ext} . E_{int} réduit E_{ext} .

(ii) $E_l = E_{ext} - E_{int} < E_{breakdown}$
En augmentant la densité des charges implantées, le champ électrique local E_l décroît. S'il n'est pas plus important que la valeur seuil du champ électrique de claquage, le processus d'ionisation de l'air est arrêté.

(i) $E_l = E_{ext} - E_{int} > E_{breakdown}$
Si la tension de polarisation est supprimée, le champ électrique intérieur E_{int} peut compenser le champ électrique extérieur E_{ext} et si E_l est plus important que le champ électrique seuil du claquage, les charges électriques implantées seront détruites.

(ii) $E_l = E_{ext} - E_{int} < E_{breakdown}$
Si le champ électrique local n'est pas suffisamment important par rapport au champ électrique seuil du claquage, le phénomène de destruction des charges est arrêté.

FIGURE 2.15: Le procédé d'implantation des charges électriques dans les micro-cavités : (a) les matériaux sont soumis à une tension et (b) la tension de polarisation est supprimée.

$$E_l = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_b V_{pol} - \sigma_i t_b}{\varepsilon_0 \varepsilon_a t_b + \varepsilon_0 \varepsilon_b t_a} \quad (2.49)$$

σ_i est la densité des charges électriques implantées dans les surfaces internes des micro-cavités, ε_0 est la permittivité du vide, ε_a , ε_b sont respectivement les permittivités relatives de l'air et du *PDMS* massif, t_a et t_b sont respectivement les épaisseurs des couches micro-structurées et des couches massives. L'ionisation de l'air dans les micro-cavités ne se produit que si $E_l = E_{claquage}$. A partir de l'équation 2.49, nous obtenons l'équation 2.50.

$$\sigma_i = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_b V_{pol} - E_{claquage}(\varepsilon_0 \varepsilon_a t_b + \varepsilon_0 \varepsilon_b t_a)}{t_b} \quad (2.50)$$

Pour assurer l'effet piézoélectrique dans ces matériaux micro-structurés, des charges doivent être implantées dans les surfaces internes des micro-cavités, cette condition est exprimée par l'équation 2.51.

$$\frac{\varepsilon_0 \varepsilon_b V_{pol} - E_{claquage}(\varepsilon_0 \varepsilon_a t_b + \varepsilon_0 \varepsilon_b t_a)}{t_b} > 0 \quad (2.51)$$

Ce qui donne l'équation 2.52.

$$V_{pol} > E_{claquage} \left(\frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_b} t_b + t_a \right) = V_{seuil} \quad (2.52)$$

V_{seuil} est la tension minimale qui peut être appliquée pour assurer l'ionisation de l'air dans les micro-cavités. Une fois que la tension de polarisation est supprimée ($V_{pol} = 0$) et si le champ électrique local est plus important que le champ électrique seuil de claquage, une recombinaison des charges peut se reproduire (2.53).

$$E'_l = \frac{-\sigma'_i t_b}{\varepsilon_0 \varepsilon_a t_b + \varepsilon_0 \varepsilon_b t_a} > E_{claquage} \quad (2.53)$$

L'équation 2.53 peut être réécrite sous la forme de l'équation 2.54

$$\sigma'_i > E_{claquage}(\varepsilon_0 \varepsilon_a t_b + \varepsilon_0 \varepsilon_b t_a) \quad (2.54)$$

En combinant les deux équations 2.50 et 2.54, nous obtenons l'équation 2.55.

$$V'_{pol} > 2E_{claquage} \left(\frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_b} t_b + t_a \right) = V_{saturation} \quad (2.55)$$

De l'équation 2.52, nous déduisons l'équation 2.56.

$$V_{saturation} = 2V_{seuil} \quad (2.56)$$

La tension de saturation est deux fois la tension seuil de claquage de l'air dans les micro-cavités, qui est estimée à $2kV$ dans notre cas. Cette valeur représente la

valeur maximale de la tension qui peut être appliquée aux échantillons contribuant à la valeur maximale de la densité de charges électriques pouvant être implantées dans les surfaces internes des micro-cavités sans claquer le *PDMS*.

2.5.4 Phénomène de neutralisation des charges

Durant le chargement électrique des matériaux micro-structurés, un phénomène important peut avoir lieu empêchant les structures d'être polarisées de façon efficace. Ce phénomène est responsable de la neutralisation des charges électriques qui peuvent être implantées dans les surfaces internes des micro-cavités qui dépend de la tension appliquée aux échantillons. En effet, au-dessus d'une certaine valeur seuil de la tension de polarisation que nous notons $V_{neutralisation}$, les parties internes des parois constituant les micro-cavités peuvent se courber et se toucher contribuant à la neutralisation des charges électriques précédemment implantées. Si nous revenons à la maille élémentaire de nos structures, elle peut être considérée comme une capacité constituée de deux parois circulaires fixées à leurs circonférences basées sur du *PDMS* massif qui peut être considéré rigide. Ces parois circulaires peuvent être déformées sous la pression résultant d'une contrainte mécanique ou un champ électrique. Les deux parois circulaires emprisonnent l'air qui est ionisé durant le chargement électrique des structures pour générer les macro-dipôles assurant ainsi l'activité piézoélectrique des piézo-électrets (figure 2.16).

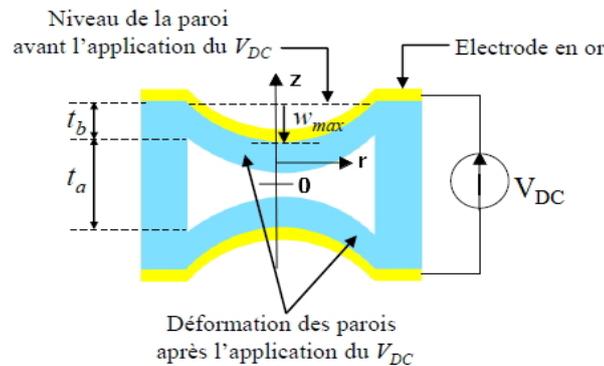


FIGURE 2.16: Représentation schématique d'une capacité formée à partir d'une maille élémentaire de la structure sous l'action d'une tension V_{DC} .

Si nous prenons en considération les conditions aux limites mécaniques imposées aux parois circulaires qui forment la capacité qui sont supposées fixes sur leurs circonférences, la déformation verticale $w(r)$ en fonction de la position r par rapport à l'axe z peuvent être obtenues par l'équation 2.57 (figure 2.17).

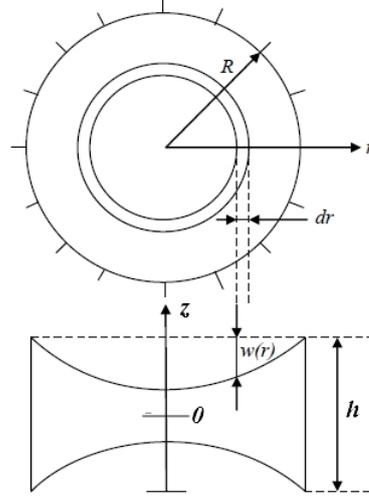


FIGURE 2.17: Représentation pour le calcul de la capacité variable.

$$w(r) = \frac{PR^4}{64D} \left(1 - \left(\frac{r}{R}\right)^2\right)^2 \quad (2.57)$$

R représente le rayon des parois circulaires, P est la différence de pression au niveau des surfaces des parois et D est la rigidité de flexion qui est donnée par l'équation 2.58 [Warren et Richard, 2012].

$$D = \frac{Et_b^3}{12(1 - \nu^2)} \quad (2.58)$$

Par ailleurs, E est le module de Young et ν est le coefficient de Poisson du *PDMS* massif.

Nous notons que

$$w(r = 0) = \frac{PR^4}{64D} = w_{max}$$

représente le déplacement vertical maximal au centre des parois circulaires et qui dépend uniquement de la pression appliquée aux parois.

D'après les modèles développés par Zhang et al, Ahmad et al et Certon et al [Zhang *et al.*, 2015, Ahmad et Pratap, 2010, Certon *et al.*, 2005], nous pouvons définir la déformation moyenne d'une paroi par l'équation 2.59.

$$w_{moy} = \frac{1}{\pi R^2} \int_0^R 2\pi r w(r) dr = \frac{PR^4}{192D} = \frac{1}{3} w_{max} \quad (2.59)$$

Si nous considérons une maille élémentaire, les deux parois qui sont susceptibles de se mouvoir et qui sont initialement séparées par un gap d'air t_a constitue une capacité variable (figure 2.17). Suite à l'application d'une tension continue V_{DC} qui exerce une pression électrostatique sur les parois circulaires, la capacité de la structure contenant une micro-cavité est calculé par l'équation 2.60.

$$\begin{aligned}
 C &= \int_0^R \frac{2\pi\varepsilon_0 r}{t_a - 2w(r)} dr \\
 &= \int_0^R \frac{2\pi\varepsilon_0 r}{t_a - 2w_{max}(1 - (\frac{r}{R})^2)^2} dr \\
 &= \frac{\varepsilon_0\pi R^2}{t_a} \int_0^R \frac{1}{1 - 2\frac{w_{max}}{t_a}(1 - (\frac{r}{R})^2)^2} d(\frac{r^2}{R^2}) \\
 &= \frac{\varepsilon_0\pi R^2}{t_a} \frac{\operatorname{arctanh}(\sqrt{\frac{2w_{max}}{t_a}})}{\sqrt{\frac{2w_{max}}{t_a}}} \quad (2.60)
 \end{aligned}$$

Pour alléger les étapes de calcul dans la suite, nous posons $x = \frac{w_{max}}{t_a}$, ce qui donne l'équation 2.61.

$$C = \frac{\varepsilon_0\pi R^2}{t_a} \frac{\operatorname{arctanh}(\sqrt{2x})}{\sqrt{2x}} \quad (2.61)$$

La dérivée première de la capacité C est reportée dans l'équation 2.62.

$$\frac{dC}{dx} = \frac{\varepsilon_0\pi R^2}{2t_a} \frac{1}{x} \left(\frac{1}{1-2x} - \frac{\sqrt{2}\operatorname{arctanh}(\sqrt{2x})}{2\sqrt{x}} \right) \quad (2.62)$$

La force électrique subie par une paroi déformable est donnée par l'équation 2.63.

$$F_e = \frac{1}{2} V_{DC}^2 \frac{dC}{dw_{moy}} = \frac{1}{2} V_{DC}^2 \frac{dC}{dx} \frac{dx}{dw_{moy}} = \frac{3V_{DC}^2}{2t_a} \frac{dC}{dx} \quad (2.63)$$

Le collage des couches massives du *PDMS* et des couches micro-structurées est réalisé dans les conditions atmosphériques. La pression dans les micro-cavités a un effet important dans la déflexion des parois et dans les caractéristiques pour déterminer la valeur de $V_{neutralisation}$ [Huang *et al.*, 2003]. Nous supposons que la pression atmosphérique est P_a . En tenant compte des conditions de notre méthode de micro-fabrication, la pression initiale à l'intérieur des micro-cavités est égale à la pression atmosphérique, et les parois circulaires sont en équilibre dans leurs positions horizontales avant d'appliquer la tension V_{DC} (figure 2.18 a). Après l'application de la tension V_{DC} , la pression à l'intérieur des micro-cavités change et la pression est notée P_c (figure 2.18 b) et la condition d'équilibre des parois circulaires dans ce cas est donnée par l'équation 2.64.

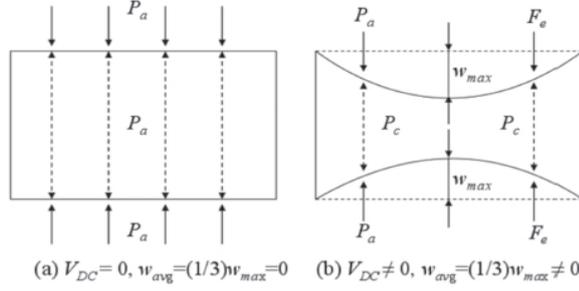


FIGURE 2.18: Illustration des formes des parois circulaires (a) avant et (b) après l'application d'une tension V_{DC} .

$$F_m + (P_c - P_a)\pi R^2 = F_e \quad (2.64)$$

F_m est la force de rappel mécanique de la paroi circulaire.

En tenant compte des conditions citées ci-dessus, le processus doit être isotherme et non adiabatique. Cela suggère, d'après la loi de *Boyle*, que le produit de la pression dans la micro-cavité par son volume est constant (équation 2.65).

$$P_c \pi R^2 (t_a - 2w_{moy}) = P_a \pi R^2 t_a \quad (2.65)$$

A partir de l'équation 2.59, nous déduisons l'équation 2.66.

$$w_{moy} = \frac{PR^4}{192D} = F_m \frac{R^2}{192\pi D} = \frac{1}{k_m} F_m \quad (2.66)$$

La constante de raideur d'une paroi circulaire fixée sur la circonférence est donnée par l'équation 2.67.

$$k_m = \frac{192\pi D}{R^2} \quad (2.67)$$

Lorsqu'une tension continue V_{DC} est appliquée à une structure, les deux parois circulaires s'incurvent. Si la tension appliquée atteint la tension de neutralisation $V_{neutralisation}$, les deux parois atteignent une position stable. Après diverses étapes de calcul, nous aboutissons à l'équation 2.68 qui lie la tension V_{DC} aux variables P_a et les dimensions des cavités.

$$V_{DC} = \sqrt{\frac{4t_a^2 x \left(\frac{64\pi D t_a}{R^2} x + \frac{2x}{3-2x} P_a \pi R^2 \right)}{3\epsilon_0 \pi R^2 \left(\frac{1}{1-2x} - \frac{\operatorname{arctanh}(\sqrt{2x})}{\sqrt{2x}} \right)}} \quad (2.68)$$

Si nous chauffons les structures à une température θ_2 qui est supérieure à la température ambiante θ_1 (le cas qui sera discuté dans le chapitre 4), la pression

initiale dans la micro-cavité avant et après l'application de la tension V_{DC} change. Ce changement de la pression donne une nouvelle expression entre V_{DC} et les autres paramètres qui est donnée par l'équation 2.69.

$$V_{DC} = \sqrt{\frac{4t_a^2 x \left(\frac{64\pi D t_a}{R^2} x + \left(\frac{\theta_2}{\theta_1} \frac{3}{3-2x} - 1 \right) P_a \pi R^2 \right)}{3\varepsilon_0 \pi R^2 \left(\frac{1}{1-2x} - \frac{\operatorname{arctanh}(\sqrt{2x})}{\sqrt{2x}} \right)}} \quad (2.69)$$

La figure 2.19 représente le rapport x de la déflexion maximale au centre des parois circulaires en fonction de la tension appliquée V_{DC} . Pour chaque valeur de la tension appliquée, les équations 2.68 et 2.69 ont deux racines. Quand la tension appliquée V_{DC} croît, les deux solutions s'approchent et convergent vers la même valeur. Cette valeur est caractéristique du point de neutralisation où les deux parois se touchent contribuant à la neutralisation des charges électriques implantées dans les surfaces internes des micro-cavités. La figure 2.19 représente les courbes simulées par *Matlab* pour différentes températures θ_2 de chargement électrique, 25, 50 et 100°C. La valeur de la tension de neutralisation $V_{neutralisation}$ correspondante pour chaque température est donnée dans le tableau 2.2.

Nous pouvons constater que $V_{neutralisation}$ diminue en augmentant la température θ_2 . En effet, en augmentant la température, le module de Young du *PDMS* diminue augmentant ainsi la souplesse du matériau et le rend facile à s'incurver.

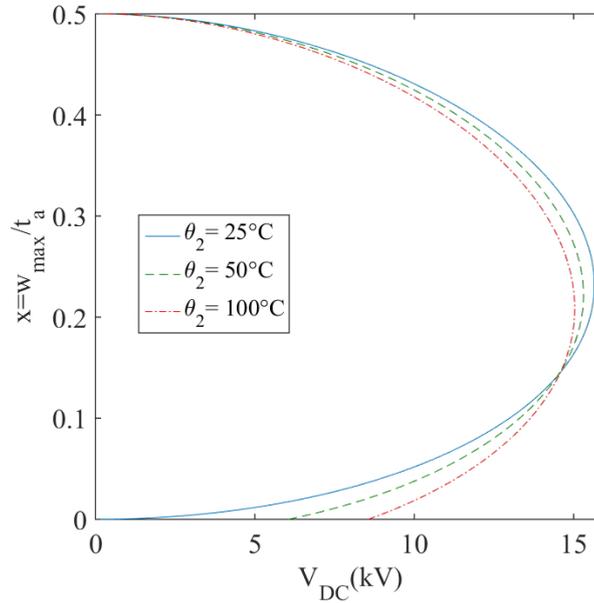


FIGURE 2.19: Représentation du rapport x en fonction de V_{DC} pour différentes températures.

Une fois que les conditions de chargement électrique des structures sont identi-

$\theta_2(^{\circ}C)$	25	50	100
$V_{neutralisation}$	15.65	15.31	15

TABLE 2.2: Variation de la tension de neutralisation des structures pour différentes températures de chargement électrique.

fiées, nous polarisons nos structures tout en respectant l'équation 2.70.

$$V_{saturation} < V_{pol} < V_{neutralisation}, V_{claquage,dielectrique} \quad (2.70)$$

Pour charger les structures, les échantillons sont soumis à une tension quasi-statique triangulaire avec des amplitudes comprises entre $1kV$ et $4kV$ avec une fréquence de $0.5Hz$. L'équipement utilisé dans le chargement électrique est un générateur de fonction de type *Keithley* 3390, $50MHz$ couplé avec un amplificateur de tension du type *Spellman*, *SL60* pour fournir les amplitudes désirées. Ce système présente un détecteur de claquage pour protéger les équipements et les échantillons. La cellule de chargement électrique est fournie avec des électrodes plus petites que la surface des échantillons. Cette cellule est placée dans une enceinte thermique pour charger les structures à différentes températures.

2.5.5 Effet du temps de chargement électrique

Le temps de chargement électrique a un effet sur les propriétés diélectriques tout en sachant qu'il faut minimiser la partie réelle et imaginaire de la capacité des matériaux micro-structurés.

Les matériaux sont polarisés avec une tension quasi-statique triangulaire avec des amplitudes comprises entre $1kV$ et $4kV$ avec une fréquence de $0.5Hz$ à la température ambiante.

Comme le montre la figure 2.20, le temps de chargement électrique a un effet prononcé sur la partie réelle de la capacité. Cette dernière augmente avec le temps de polarisation pour atteindre sa valeur maximale après 5 minutes de chargement. Puis, elle décroît pour atteindre une valeur comparable à celle obtenue avec un temps de polarisation de 3 minutes au bout de 15 minutes. Cette valeur reste inchangée même si nous augmentons le temps de polarisation. Une discussion analogue peut être réalisée pour les pertes diélectriques (figure 2.20). Aux basses fréquences, les valeurs les plus importantes sont observées pour les matériaux soumis à 3 minutes de polarisation. Puis, les pertes diélectriques décroissent en augmentant le temps de polarisation mais restent toujours plus hautes que celles pour les matériaux non polarisés. Toutefois, avec un temps de polarisation de 15 minutes, les pertes diélectriques sont plus faibles que celles des micro-structures non polarisés. Les pertes

diélectriques restent inchangées même si nous augmentons le temps de polarisation au delà de 15 minutes. Les valeurs des deux parties réelle et imaginaire réduites obtenues avec un temps de polarisation de 15 minutes constituent un avantage correspondant à une figure de mérite optimale définie par l'équation 2.18.

Ce phénomène observé au niveau des propriétés diélectriques durant le chargement électrique du *PDMS* cellulaire micro-structuré fait intervenir des processus microscopiques se produisant à différentes échelles de temps. Le premier processus est l'injection progressive des charges électriques au niveau des surfaces séparant le *PDMS* et l'air emprisonné dans les micro-cavités. Ce processus atteint une saturation qui dépend de la valeur de la tension appliquée aux échantillons et de la taille des surfaces internes des micro-cavités et de leurs volumes. Le deuxième processus microscopique est la réorganisation des chaînes polymériques stimulées par l'application d'un champ électrique extérieur aux matériaux et le champ électrique local E_l résultant des charges implantées dans les micro-cavités (figure 2.15). La réorganisation des chaînes polymériques apparaît comme une contre-balance pour les charges implantées dans les micro-cavités. Si nous considérons la figure 2.20, la partie réelle de la capacité atteint son maximum avec un facteur de pertes significatif pour un temps de polarisation de 5 minutes. Ce phénomène est dû à la différence au niveau des échelles du temps des deux processus microscopiques cinétiques cités ci-dessus.

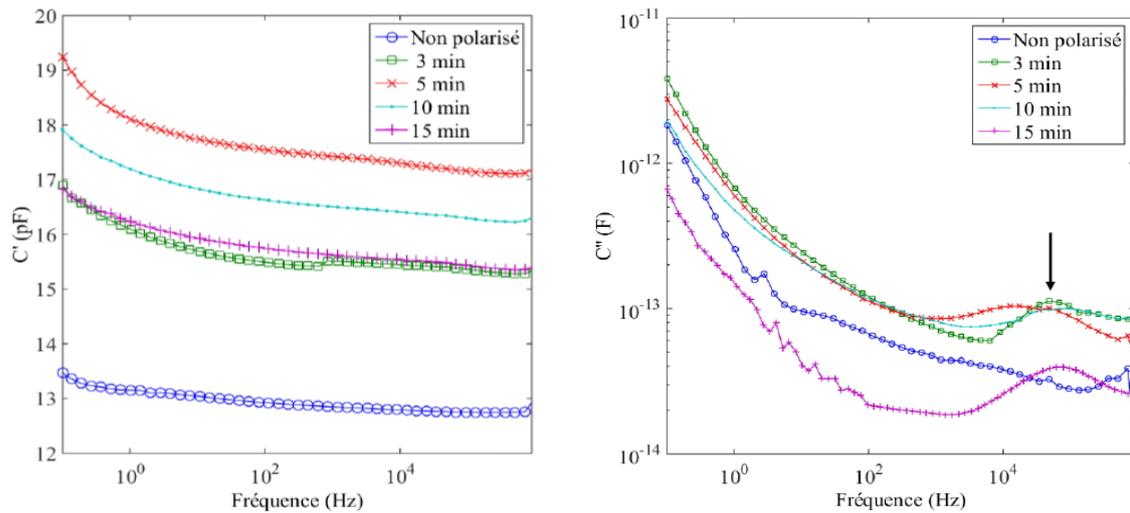


FIGURE 2.20: La partie réelle et imaginaire de la capacité des matériaux *PDMS* micro-structurés à la température ambiante et pour différents temps de chargement électrique pour une tension appliquée $V = 1V_{rms}$.

Cet effet est considérable car l'injection des charges est plus rapide que le phénomène de réorganisation des chaînes polymériques vu l'encombrement stérique et la masse de ces dernières. De plus, il est possible que le phénomène de saturation par les charges d'espace correspond aux fortes valeurs de la partie réelle et imaginaire de la capacité relative des matériaux micro-structurés, qui, après un long temps de polarisation de 15 minutes décroissent par une réorganisation lente du processus de réorganisation des chaînes polymériques conduisant le système à l'énergie potentielle la plus basse. Cette condition est atteinte après 15 minutes de polarisation. Le pic qui apparaît vers les hautes fréquences (repéré par une flèche sur la figure 2.20) est la signature de la réponse piézoélectrique qui sera discutée dans le chapitre 4.

2.6 Conclusion

Nous avons réussi dans ce chapitre à identifier les paramètres géométriques des structures permettant ainsi l'optimisation de la réponse piézoélectrique des matériaux piézo-électrets par **la diminution de la permittivité diélectrique**. Les matériaux ainsi obtenus sont sous forme **d'empilements contenant deux couches massives de PDMS faisant une épaisseur de $55\mu m$ chacune, séparées par une couche micro-structurée d'épaisseur $40\mu m$ contenant des micro-cavités cylindriques de diamètre $100\mu m$ avec un pas régulier de $150\mu m$** . La micro-fabrication de ces derniers est basée sur **la technique de moulage**. Cette technique permet de contrôler la taille et les dimensions des micro-structures ainsi que les propriétés diélectriques, mécaniques et piézoélectriques. Nous avons discuté également les conditions de chargement électrique aboutissant à l'optimisation de la performance des matériaux finaux. A savoir, nous avons étudié les différentes contraintes du procédé de chargement électrique (**le claquage du polymère, le phénomène de saturation des micro-cavités par les charges électriques, le phénomène de neutralisation et l'effet du temps de polarisation sur la permittivité diélectrique**). L'optimum est obtenu pour les matériaux polarisés avec une tension quasi-statique triangulaire avec des amplitudes comprises entre $1kV$ et $4kV$ de fréquence $0.5Hz$, à température ambiante et pendant une durée de 15 minutes.

Etude des propriétés diélectriques des matériaux micro-structurés

Sommaire

3.1	Introduction	63
3.2	Etude des propriétés diélectriques	64
3.2.1	Principe de mesure de la spectroscopie diélectrique	64
3.2.2	Circuit électrique équivalent	65
3.2.3	Dispositifs de mesure de spectroscopie diélectrique	65
3.2.4	La polarisation électrique	66
3.2.5	Etude des propriétés diélectriques du PDMS massif et micro-structuré	83
3.3	Conclusion	93

3.1 Introduction

Une fois que la conception, les simulations et la micro-fabrication ont été réalisés dans le chapitre 2. Le présent chapitre est dédié à l'étude des propriétés diélectriques des structures après la fabrication. En effet, nous avons montré que la réponse piézoélectrique des matériaux piézo-électrets dépend d'une façon directe des propriétés diélectriques et mécaniques de ces derniers. Cette dépendance peut être constatée à travers la figure de mérite qui a été introduite et analysée dans le chapitre 1. Les propriétés diélectriques du *PDMS* micro-structuré sont étudiées à travers les parties réelle et imaginaire de la permittivité relative complexe ϵ_{33}^* en fonction de la fréquence et de la température. Ces propriétés sont comparées à celles du *PDMS* massif pour mettre en valeur l'influence de l'introduction des micro-cavités. Ces propriétés constituent une base de données pour l'interprétation et la modélisation des propriétés piézoélectriques en piézoélectricité indirecte.

3.2 Etude des propriétés diélectriques

3.2.1 Principe de mesure de la spectroscopie diélectrique

La technique de spectroscopie diélectrique est basée sur l'application d'une tension sinusoïdale sur l'échantillon à étudier qui doit être situé entre deux électrodes métalliques, c'est à dire en configuration Métal-Isolant-Métal (*MIM*). Elle repose aussi sur l'analyse de l'amplitude et du déphasage de la réponse en courant du matériau.

La figure 3.1 explique le principe de la mesure.

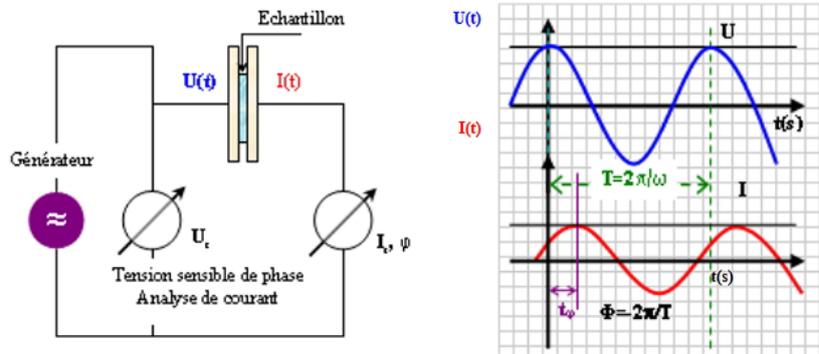


FIGURE 3.1: Principe de mesure en spectroscopie diélectrique.

Nous pouvons accéder au rapport des amplitudes tension-courant qui définit le module de l'impédance $|Z|$; la mesure du déphasage entre la tension et le courant nous donne accès à une information complète, nous obtenons ainsi les parties réelle et imaginaire de l'impédance complexe Z^* (équation 3.1).

$$Z^* = Z'(\omega) + jZ''(\omega) = \frac{U(\omega)}{I(\omega)} (\cos(\theta(\omega)) + j\sin(\theta(\omega))) \quad (3.1)$$

L'échantillon étudié peut être modélisé comme une admittance complexe Y^* ou une capacité complexe C^* à travers l'équation 3.2.

$$Z^* = \frac{1}{Y^*} = \frac{-j}{\omega C^*} = \frac{U^*(\omega)}{I^*(\omega)} \quad (3.2)$$

La permittivité diélectrique relative complexe et le facteur des pertes diélectriques sont donnés par les équations 3.3 et 3.4 respectivement.

$$\varepsilon_r^*(\omega) = \varepsilon_r'(\omega) - j\varepsilon_r''(\omega) = -\frac{j}{\omega Z^*(\omega) C_0} = -\frac{jY^*(\omega)}{\omega C_0} = \frac{C^*}{C_0} \quad (3.3)$$

$$\tan \delta = \frac{\varepsilon_r''(\omega)}{\varepsilon_r'(\omega)} = -\frac{Z'(\omega)}{Z''(\omega)} \quad (3.4)$$

Avec $C_0 = \frac{A\varepsilon_0}{t}$, où A et t représentent respectivement la surface et l'épaisseur de l'échantillon.

3.2.2 Circuit électrique équivalent

Nous pouvons modéliser le comportement diélectrique d'un polymère isolant par un schéma électrique équivalent plus ou moins complexe comportant des composants passifs R , L et C . Toutefois, nous avons montré dans le chapitre 2 que le circuit électrique équivalent qui peut représenter le comportement du *PDMS* est représenté par la figure 3.2.

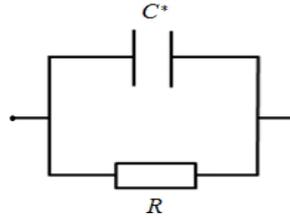


FIGURE 3.2: Modèle électrique proposé pour les propriétés diélectriques du *PDMS* massif.

L'expression de l'admittance complexe Y_{eq}^* relative à ce schéma équivalent s'écrit suivant l'équation 3.5.

$$Y_{eq}^* = jC^*\omega + \frac{1}{R} = j(C' - jC'')\omega + \frac{1}{R} = \left(\frac{1}{R} + C''\omega\right) + jC'\omega \quad (3.5)$$

3.2.3 Dispositifs de mesure de spectroscopie diélectrique

L'équipement utilisé lors de l'étude des propriétés électriques et diélectriques est constitué des dispositifs expérimentaux suivant : une enceinte de mesure, un régulateur de température *Linkam TMS94* et un analyseur d'impédance *Novocontrol Alpha, BDS20* couplé avec une interface *Labview* pour les mesures diélectriques. La figure 3.3 représente un schéma d'ensemble du montage utilisé. Ce banc a été mis à disposition par l'équipe Matériaux Diélectriques et Electrostatique (*MDE*) du laboratoire (*G2eLab*) à Grenoble.

Dans l'objectif d'obtenir des mesures électriques et diélectriques fiables et reproductibles, l'échantillon est placé dans l'enceinte qui fonctionne sous vide primaire et sous gaz inerte (Azote). Le gaz inerte est utilisé afin de protéger les échantillons de

la contamination à travers les composés oxygénés. En effet, l'azote est utilisé pour éviter le phénomène de d'oxydation à hautes températures et le givrage à basses températures.

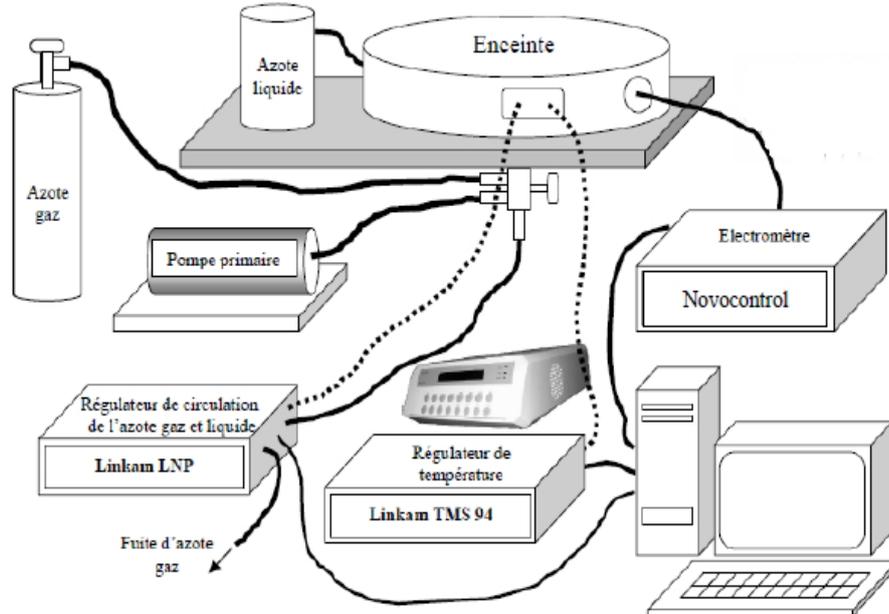


FIGURE 3.3: Schéma du banc de spectroscopie diélectrique.

3.2.4 La polarisation électrique

La polarisation est un phénomène physique prenant naissance suite à la sollicitation du matériau diélectrique par un champ électrique. En effet, dans un diélectrique, les charges sont liées, elles ne peuvent pas se déplacer entre les électrodes, mais elles sont susceptibles d'osciller localement ce qui va entraîner une variation des charges images sur les électrodes induisant un courant nommé courant de déplacement.

3.2.4.1 La polarisation statique des diélectriques

La polarisation diélectrique résulte de l'orientation des dipôles électriques en présence d'un champ appliqué. Un dipôle électrique est constitué de deux charges électriques q de signes opposés et séparées par une distance l tel qu'il est représenté sur la figure 3.4. Le moment dipolaire électrique \vec{p} d'un tel dipôle est défini par l'équation 3.6.

$$\vec{p} = q \vec{l} \quad (3.6)$$

D'un point de vue macroscopique, la polarisation \vec{P} est définie comme la somme vectorielle de tous les moments dipolaires \vec{p} par unité de volume ΔV . Si nous considérons N le nombre de dipôles par unité de volume, nous obtenons l'équation 3.7.

$$\vec{P} = \frac{1}{\Delta V} \sum_{i=1}^{N\Delta V} \vec{p}_i \quad (3.7)$$

Nous notons que les dipôles électriques peuvent être soit permanents (dans le cas des molécules polaires) soit induits résultant de la présence d'un champ électrique et liés à la présence des charges positives et négatives. Dans la figure 3.4, nous résumons les phénomènes de polarisations du matériau diélectrique qui peuvent apparaître suite à l'application du champ électrique.

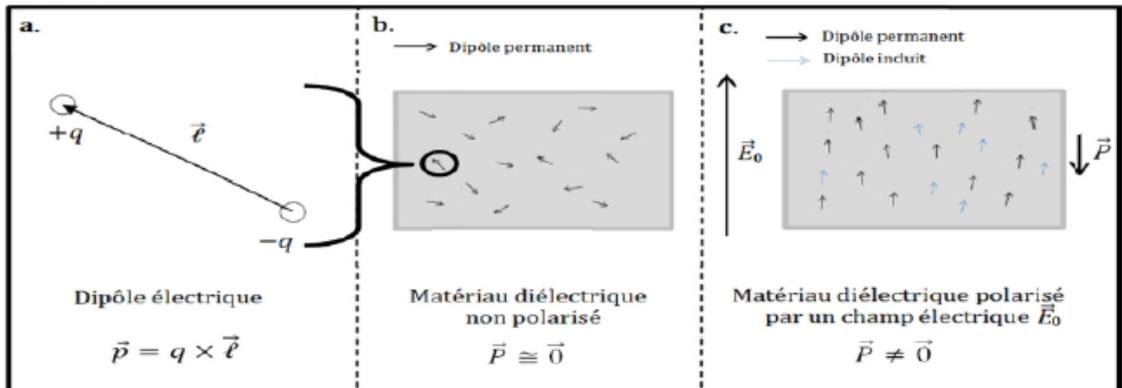


FIGURE 3.4: Polarisation d'un matériau diélectrique.

Les dipôles permanents présents initialement au sein du matériau diélectrique (polymère) ainsi que les dipôles induits apparaissent suite à l'application du champ extérieur \vec{E}_0 . Cette orientation dans la direction du champ électrique est en relation avec le couple de forces électriques de Coulomb exercées sur les charges.

Considérons le cas d'un diélectrique ne comportant pas de dipôles permanents dans sa structure. Sous l'action d'un champ électrique extérieur, nous pouvons observer une dissociation du barycentre des charges positives de celui des charges négatives donnant ainsi naissance à des dipôles de moment \vec{p} . Ce phénomène fait appel à la notion de polarisabilité α (exprimée en m^3), cette grandeur microscopique traduit l'aptitude d'une structure à être déformée une fois soumise à un champ électrique extérieur \vec{E}_0 et à créer un dipôle. Le moment dipolaire correspondant à une structure i du matériau sous l'effet d'un champ local \vec{E}_{local} (c'est à dire le champ réellement ressenti par la structure qui est généralement différent du champ extérieur \vec{E}_0) (équation 3.8).

$$\vec{p}_i = \alpha_i \vec{E}_{local} \quad (3.8)$$

Compte tenu de l'équation 3.7, la polarisation \vec{P} est donnée par l'équation 3.9

$$\vec{P} = N\alpha \vec{E}_{local} \quad (3.9)$$

N et α sont respectivement la densité et la polarisabilité des espèces polarisables du diélectrique.

La majorité des diélectriques utilisés sont considérés comme des milieux linéaires, homogènes et isotropes. Dans ce cas, il existe une relation simple entre la polarisation \vec{P} et le champ extérieur \vec{E}_0 par l'intermédiaire de la permittivité relative ε_r appelée également constante diélectrique (équation 3.10).

$$\vec{P} = \varepsilon_0(\varepsilon_r - 1)\vec{E}_0 \quad (3.10)$$

Il est à noter qu'en général, les termes de polarisabilité et de la permittivité sont des grandeurs tensorielles qui reflètent l'anisotropie du matériau. Dans cette étude, nos matériaux sont considérés comme isotropes et ces grandeurs sont réduits donc à un scalaire.

Les deux équations 3.9 et 3.10 de la polarisation, qui sont symétriques, font appel à des grandeurs qui sont soit à l'échelle microscopique (polarisabilité et champ local pour l'équation 3.9), soit à l'échelle macroscopique (permittivité et champ extérieur pour l'équation 3.10). En effet, le champ extérieur \vec{E}_0 initie l'excitation, la création d'un dipôle engendre à son tour un champ électrique qui s'ajoute à \vec{E}_0 pour affecter les dipôles voisins et inversement. Si le champ extérieur \vec{E}_0 est facilement mesurable, il faut indiquer que le champ local ne peut être sondé, et à ce niveau réside la difficulté de lier ces deux mondes.

De plus, il faut noter que nous pouvons accéder facilement à la permittivité en tant que grandeur macroscopique, mais, la polarisabilité est inaccessible. Le lien entre ces deux mondes permettant d'évaluer toutes les grandeurs microscopiques fait l'objet de l'Annexe A.

Dans la suite, nous développons les expressions relatives à la permittivité en tant que grandeur mesurable via les expériences.

En développant l'équation 3.10, nous obtenons l'équation 3.11.

$$\vec{P} = \varepsilon_0\varepsilon_r\vec{E}_0 - \varepsilon_0\vec{E}_0$$

D'où

$$\varepsilon_0\varepsilon_r\vec{E}_0 = \varepsilon_0\vec{E}_0 + \vec{P}$$

Soit

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E}_0 + \vec{P} \quad (3.11)$$

Où

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \varepsilon_r \vec{E}_0$$

\vec{D} est appelé champ de déplacement diélectrique, cette grandeur constitue aussi une façon pour quantifier la réorganisation des charges et des segments de chaînes polymériques dans le matériau sous l'influence d'un champ extérieur \vec{E}_0

D'autre part, pour un grand nombre de matériaux, la réaction du milieu à un champ électrique appliqué \vec{E}_0 est caractérisé aussi par une relation linéaire entre la polarisation volumique \vec{P} et le champ \vec{E}_0 qui est donné par l'équation 3.12

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \chi \vec{E}_0 \quad (3.12)$$

χ étant une quantité sans dimension appelée susceptibilité diélectrique caractérisant la polarisation créée par un champ électrique.

Les deux équations 3.11 et 3.12 fournissent une autre équation liant le champ de déplacement électrique \vec{D} au champ électrique appliqué \vec{E}_0 , nous obtenons l'équation 3.13.

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E}_0 + \vec{P} = \varepsilon_0 \vec{E}_0 + \varepsilon_0 \chi \vec{E}_0 = \varepsilon_0 (1 + \chi) \vec{E}_0 = \varepsilon_0 \varepsilon_r \vec{E}_0 = \varepsilon \vec{E}_0 \quad (3.13)$$

Avec $\begin{cases} \varepsilon_r = 1 + \chi : \text{est la permittivité relative du matériau.} \\ \varepsilon = \varepsilon_0 \varepsilon_r : \text{est la permittivité absolue du matériau.} \end{cases}$

3.2.4.2 La réponse diélectrique et la conduction électrique dans le domaine temporel

Les équations statiques, exprimées dans le paragraphe précédent ne sont valables que pour un champ électrique \vec{E}_0 , statique ou encore en régime permanent. Néanmoins, les composés polymériques, présentés en tant que diélectriques, présentent une dépendance temporelle de leur réponse. Pour tenir compte de celle-ci, nous pouvons réécrire l'équation 3.13 sous la forme de l'équation 3.14 [Jonscher, 1983, Jonscher, 1995, Kremer et Schönals, 2002].

$$\vec{D}(t) = \varepsilon_0 \vec{E}(t) + \vec{P}(t) \quad (3.14)$$

Dans le cas d'un diélectrique homogène, isotrope et linéaire, nous définissons la fonction de réponse diélectrique $f(t)$ qui représente le retard temporel de la réponse d'un milieu diélectrique à une sollicitation électrique dépendante du temps. Le développement que nous allons présenter en Annexe B relatif à cette fonction de réponse

fournit une expression de la polarisation sous la forme d'une convolution, soit en faisant abstraction à la notation vectorielle. (équation 3.15).

$$P(t) = \varepsilon_0 \int_0^\infty f(\tau)E(t - \tau) d\tau \quad (3.15)$$

Ce qui permet d'écrire la densité de courant $J(t)$ dans le matériau diélectrique en fonction du champ excitateur $E(t)$ comme le montre l'équation 3.16.

$$J(t) = \sigma_{DC}E(t) + \frac{\partial D}{\partial t} \quad (3.16)$$

Ce qui donne l'équation 3.17.

$$J(t) = \sigma_{DC}E(t) + \varepsilon_0 \frac{\partial}{\partial t} (E(t) + \int_0^\infty f(\tau)E(t - \tau) d\tau) \quad (3.17)$$

Avec σ_{DC} est la conductivité en courant direct du diélectrique. Le premier terme de cette équation représente la densité du courant de conduction du diélectrique, tandis que le deuxième terme représente la densité du courant qui est lié à la polarisation totale du diélectrique. Cette polarisation est la somme des polarisations rapides dûes aux charges libres et des polarisations lentes dûes au charges liées.

3.2.4.3 La réponse diélectrique et la conduction électrique dans le domaine fréquentiel

En faisant abstraction de la notation vectorielle, et dans le cas où l'excitation électrique $E(t)$ appliquée à un matériau polymérique diélectrique est une fonction sinusoïdale du temps et de pulsation ω , qui s'écrit sous la forme de l'équation 3.18.

$$E(t) = E_0 \sin(\omega t + \phi) \quad (3.18)$$

E_0 est l'amplitude du signal et ϕ est la phase à l'origine.

Il est pratique d'exprimer la réponse d'un milieu diélectrique dans le domaine fréquentiel. En appliquant la transformée de Fourier aux deux membres de l'équation 3.15 et en tenant compte que la transformée de Fourier d'une convolution est un produit, nous réécrivons cette équation sous la forme de l'équation 3.19.

$$P^*(\omega) = \varepsilon_0 \chi^*(\omega) E^*(\omega) \quad (3.19)$$

$\chi^*(\omega)$ est la susceptibilité complexe du matériau diélectrique définie par l'équation 3.20.

$$\chi^*(\omega) = \int_0^\infty f(t) e^{-j\omega t} dt = \chi'(\omega) - j\chi''(\omega) \quad (3.20)$$

De même, en appliquant la transformée de Fourier aux deux membres de l'équation 3.17 et en considérant le champ électrique comme référence de phase, nous pouvons la réécrire sous la forme de l'équation 3.21.

$$\begin{aligned}
 J^*(\omega) &= \sigma_{DC}(\omega)E(\omega) + j\omega\varepsilon_0[E(\omega) + \chi^*(\omega)E(\omega)] \\
 &= \sigma_{DC}(\omega)E(\omega) + j\omega\varepsilon_0E(\omega)[1 + \chi^*(\omega)] \\
 &= \sigma_{DC}(\omega)E(\omega) + j\omega\varepsilon_0\varepsilon_r^*E(\omega)
 \end{aligned} \tag{3.21}$$

Le terme σ_{DC} est la conductivité, $\varepsilon_r^*(\omega)$ est la permittivité relative complexe qui permet de quantifier les mécanismes de polarisation du diélectrique pour une pulsation ω . Si nous décomposons en partie réelle et imaginaire, nous obtenons l'équation 3.22.

$$\begin{aligned}
 J^*(\omega) &= \sigma_{dc}(\omega)E(\omega) + j\omega\varepsilon_0[\varepsilon_r' - j\varepsilon_r'']E(\omega) \\
 &= (\sigma_{dc} + \omega\varepsilon_0\varepsilon_r'')E(\omega) + j\omega\varepsilon_0\varepsilon_r'E(\omega)
 \end{aligned} \tag{3.22}$$

Le premier terme de l'équation 3.22 représente la densité du courant en phase avec le champ électrique qui est en lien avec les pertes dans les matériaux diélectriques qui est la somme des pertes par conduction (σ_{DC}) et des pertes par polarisation ($\omega\varepsilon_0\varepsilon_r''$). Il est à noter que la partie imaginaire de la permittivité relative ε_r'' est souvent appelée "perte diélectrique".

La partie imaginaire de l'équation 3.22 représente quant à elle la densité du courant en quadrature de phase avec le champ électrique qui est également appelée densité de courant de déplacement. Cette densité de courant est liée aux charges induites à l'interface métal-diélectrique dans la configuration Métal-Isolant-Métal qui sera exploité dans notre cas.

Pour plus de clarté et dans la suite de ce manuscrit, nous détaillons ci-dessous les relations entre la permittivité complexe ε^* , la permittivité relative complexe ε_r^* et la susceptibilité complexe χ^* ainsi que leurs parties réelles et imaginaires à travers les équations 3.23, 3.24 et 3.25.

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_0\varepsilon_r^*(\omega) = \varepsilon_0(\chi^*(\omega) + 1) \tag{3.23}$$

$$\varepsilon_r' = \chi' + 1 \tag{3.24}$$

$$\varepsilon_r'' = \chi'' \tag{3.25}$$

3.2.4.4 Les différents types de polarisation

D'après les paragraphes précédents, la polarisabilité constitue donc un paramètre important de la permittivité. Or il existe plusieurs types d'espèces polarisables et par conséquent plusieurs types de polarisation. En effet, sous l'action d'un champ électrique externe, les espèces ne vont pas réagir de la même façon. Nous pouvons distinguer :

- Les espèces comme les ions, les atomes et les électrons, qui vont se polariser sous l'action d'un champ électrique.
- Les espèces polaires qui présentent déjà un moment dipolaire permanent et qui vont simplement s'aligner suivant le champ exciteur.

Commençons donc par définir le mode d'excitation de ces différentes espèces et leurs contributions à la permittivité.

Polarisation électronique et atomique

L'application d'un champ électrique externe va entraîner une déformation du nuage électronique des atomes (figure 3.5). Le déplacement des électrons par rapport au noyau d'un atome fait apparaître une polarisation dite électronique P_e (équation 3.26). Le temps d'établissement de ce type de polarisation est extrêmement court, il est de l'ordre de $10^{-15} s$ ($f = 10^{15} Hz$ et se situe dans l'UV proche).

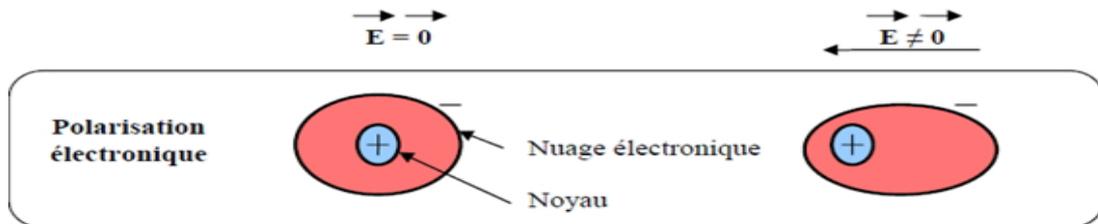


FIGURE 3.5: Schéma explicatif de la polarisation électronique.

$$\vec{P}_e^* = \epsilon_0 \chi_e^* \vec{E}_0^* \quad (3.26)$$

Dans un matériau diélectrique soumis à un champ électrique externe, le déplacement des charges positives et négatives apparaissent surtout au niveau des liaisons à caractère ionique. Ce phénomène génère une polarisation dite atomique P_a (équation 3.27), qui s'établit en un temps de l'ordre de $10^{-13} s$ à $10^{-12} s$ ($f = 10^{12} - 10^{13} Hz$ et se situe dans l'infra-rouge).

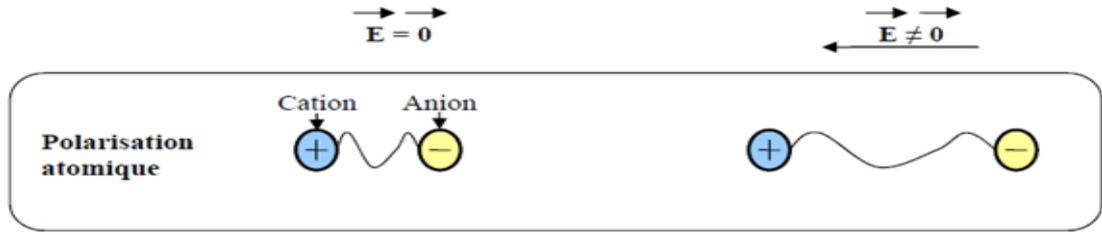


FIGURE 3.6: Schéma explicatif de la polarisation atomique.

$$\vec{P}_a^* = \varepsilon_0 \chi_a^* \vec{E}_0^* \quad (3.27)$$

Ces deux types de polarisation résultent d'un déplacement contrarié de charges par une force de rappel qui est proportionnelle à l'amplitude du mouvement. Ceci confère à ces types de polarisation un comportement de type résonateur. Le développement du modèle de l'électron élastiquement lié qui fait l'objet de l'Annexe C nous fournit l'équation 3.28 de la permittivité relative complexe décrivant ces deux types de polarisation.

$$\varepsilon_r^*(\omega) = 1 + \frac{ne^2}{\varepsilon_0 m(\omega_0^2 - \omega^2 - j\frac{\omega}{\tau})} \quad (3.28)$$

Avec $\left\{ \begin{array}{l} n : \text{est la densité des électrons ou des atomes.} \\ m : \text{est la masse de l'électron ou de l'atome selon le type de polarisation.} \\ \omega_0 : \text{est la pulsation propre du système considéré.} \\ \tau : \text{est la constante du mécanisme de rappel.} \end{array} \right.$

La polarisation atomique ou électronique est donc une grandeur complexe dont la partie réelle de la permittivité relative complexe ε_r' présente une résonance et une antirésonance autour de la pulsation propre ω_0 . Nous observons aussi un pic de la partie imaginaire ε_r'' de la permittivité relative complexe qui reflète une absorption du champ extérieur à cette pulsation (figure 3.13). En effet, les milieux diélectriques présentent des absorptions dans le domaine UV-visible, qui sont dûes au mouvement des électrons, ainsi que dans le domaine de l'infra-rouge, résultant du déplacement des atomes les uns par rapport aux autres, c'est à dire à la vibration des liaisons du matériau.

Polarisation dipolaire ou d'orientation

Certains matériaux n'ont pas besoin de champ extérieur pour présenter des dipôles. Dans ce cas, il existe des dipôles permanents. Dans le cas de l'absence de champ électrique extérieur, ils sont aléatoirement orientés et ne confère pas donc de polarisation globale au matériau. Par contre, sous l'effet d'un champ, ces dipôles

vont tenter de s'aligner dans le sens du champ électrique afin de minimiser l'énergie potentielle et pour générer une polarisation dite d'orientation. Cette tendance est contrariée par l'agitation thermique. Cependant, si nous supprimons instantanément le champ, nous constatons que la dépolérisation des molécules concernées n'est pas instantanée. Lors de l'orientation des dipôles, nous pouvons considérer le système comme étant visqueux et le mouvement des dipôles est alors gêné par l'encombrement des autres molécules environnantes. Cela leur confère donc un comportement de type relaxeur (figure 3.7).

Le modèle de Debye retranscrit bien ce phénomène dans le cas idéal d'une assemblée de dipôles identiques sans interactions entre eux. La polarisation d'orientation se présente alors comme la résultante d'une moyenne de dipôles alignés sur le champ et qui sont seulement perturbés par l'agitation thermique.

Le formalisme de Debye a été à l'origine développé pour décrire les relaxations liées à l'orientation des molécules polaires. Il constitue une approche générale pour décrire les relaxations diélectriques des matériaux. Il considère simplement qu'en réponse à un échelon de champ électrique, le milieu se polarise suivant une loi du premier ordre qui est donnée par l'équation 3.29 [Jonscher, 1983, Jonscher, 1995].

$$P_{dip}(t) = P_{\infty} + (P_S - P_{\infty})(1 - e^{-t/\tau}) \quad (3.29)$$

Avec $\left\{ \begin{array}{l} \tau : \text{est la constante du temps de relaxation (} 10^{-7} \text{s)}. \\ P_{\infty} : \text{est la polarisation dite instantanée.} \\ P_S : \text{est la polarisation stationnaire.} \end{array} \right.$

La polarisation instantanée P_{∞} permet de rendre compte des mécanismes de polarisation qui sont considérés simultanés à l'application du champ électrique (polarisation des nuages électroniques). La polarisation statique P_S correspond à la nouvelle polarisation qui est atteinte lorsque le régime est établi. Ce formalisme est bien détaillé dans l'Annexe D.

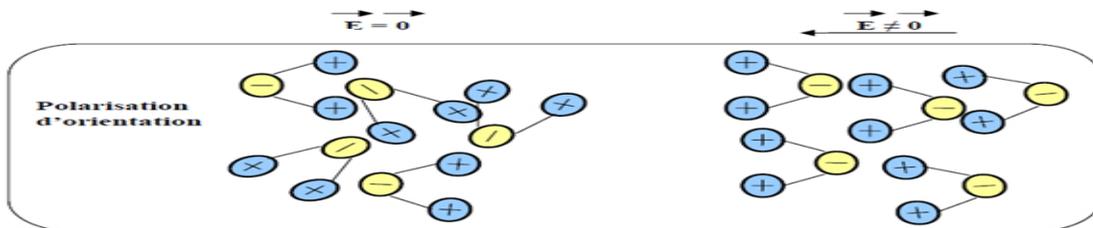


FIGURE 3.7: Schéma explicatif de la polarisation dipolaire.

En effectuant la transformée de Fourier, nous obtenons la réponse du milieu par l'équation 3.30.

$$P_{dip}(\omega) = P_{\infty} + \frac{P_S - P_{\infty}}{1 + j\omega\tau} \quad (3.30)$$

Nous obtenons ainsi en tenant compte de la relation 3.10 la permittivité dite de Debye exprimée à travers l'équation 3.31.

$$\varepsilon_r^*(\omega) = \varepsilon_{\infty} + (\varepsilon_S - \varepsilon_{\infty}) \frac{1}{1 + j\omega\tau} \quad (3.31)$$

Avec $\begin{cases} f_c = \frac{1}{2\pi\tau} : \text{est la fréquence caractéristique de relaxation (10}^7\text{ Hz)}. \\ \varepsilon_S : \text{est la permittivité statique pour des fréquences inférieures à } f_c. \\ \varepsilon_{\infty} : \text{est la permittivité limite pour des fréquences supérieures à } f_c. \end{cases}$

Nous pouvons ainsi extraire la partie réelle de la permittivité relative ε_r' et la partie imaginaire ε_r'' qui sont données par les équations 3.32 et 3.33.

$$\varepsilon_r'(\omega) = \varepsilon_{\infty} + (\varepsilon_S - \varepsilon_{\infty}) \frac{1}{1 + (\omega\tau)^2} \quad (3.32)$$

$$\varepsilon_r''(\omega) = (\varepsilon_S - \varepsilon_{\infty}) \frac{\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2} \quad (3.33)$$

Nous notons que ε_r'' passe par un maximum pour $\omega = \omega_0 = \frac{1}{\tau}$ alors que ε_r' subit une inflexion. Cette fréquence caractéristique correspond au maximum de dissipation de l'énergie dans le matériau. La représentation du spectre diélectrique de Debye est donnée par la figure 3.8

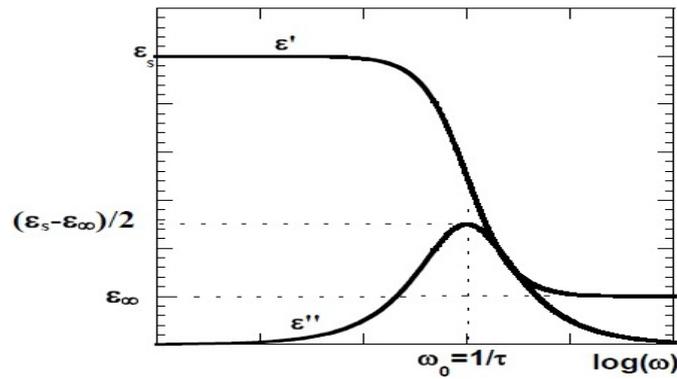


FIGURE 3.8: Spectre diélectrique de relaxation de type Debye.

D'une façon générale, le formalisme de Debye précédemment exposé est limité à quelques solutions diluées ou des matériaux ferroélectriques où l'interaction entre dipôles dans le système étudié ne joue pas un rôle important voire même négligeable. De plus, le formalisme de Debye obéit à un modèle de relaxation basé sur une

constante de temps unique. Or, la pratique a montré que la courbe représentant le facteur de pertes ε_r'' en fonction de la fréquence est plus large et asymétrique comparée à celle de Debye, cela revient à ce que tous les dipôles dans un matériau n'ont pas les mêmes durées de relaxation propres. Nous aboutissons donc à des dispersions qui s'étendent sur une large gamme de fréquence. Dans ce cadre, de nombreuses tentatives ont été faites pour décrire ces dispersions, néanmoins, les mécanismes impliqués restent assez mal identifiés et complexes à modéliser. Pour cette raison, nous avons souvent recours à des modèles de relaxations empiriques permettant de paramétrer les données expérimentales. Le modèle le plus utilisé est celui développé par Cole, Davidson, Havriliak et Negami que fournit l'équation 3.34 [Jonscher, 1983, Jonscher, 1995].

$$\varepsilon_r^*(\omega) = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_S - \varepsilon_\infty) \frac{1}{(1 + (j\omega\tau)^\alpha)^\beta} \quad (3.34)$$

Avec $0 \leq \alpha \leq 1$ et $0 \leq \beta \leq 1$ qui sont respectivement les paramètres quantifiant la déviation symétrique et asymétrique de la relaxation par rapport à une relaxation du type Debye.

Les expressions de Debye, Cole-Cole et Davidson-Cole sont retrouvées respectivement pour les cas où :

- Si $\alpha = \beta = 1$, nous avons la réponse de Debye.
- Si $\alpha = 1$ et $0 < \beta < 1$, nous avons la réponse diélectrique dans les liquides et les solutions de polymères, ce modèle est proposé par Davidson et Cole.
- Si $0 < \alpha < 1$ et $\beta = 1$, nous avons la réponse de Cole-Cole pour les solides amorphes et certains polymères.
- Si $0 < \alpha < 1$ et $0 < \beta < 1$, nous avons la réponse de Havriliak-Negami qui constitue en général la meilleure description pour représenter le comportement des polymères.

Polarisation interfaciale ou polarisation de Maxwell-Wagner-Sillars

Un matériau hétérogène est généralement constitué par des zones qui sont caractérisées par des propriétés diélectriques et des conductivités différentes. Il est important d'indiquer que les interfaces entre ces zones sont des lieux de concentrations de charges et de défauts qui peuvent être des impuretés ou des lacunes. En absence de champ électrique, les charges sont dispersées uniformément dans chaque région. Lors de l'application d'un champ électrique, il se produit une accumulation de ces charges aux interfaces. Cela donne lieu à une polarisation interfaciale P_i (figure 3.9).

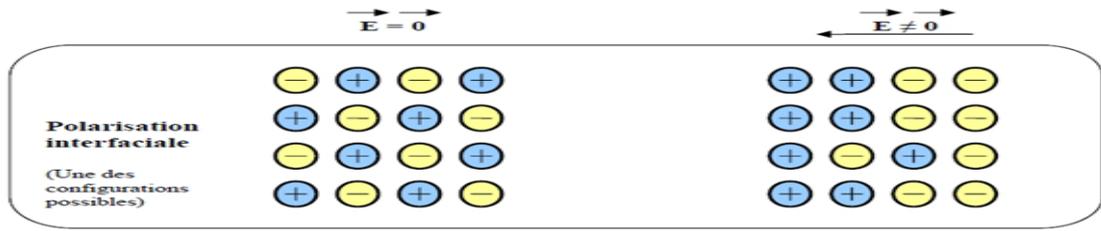


FIGURE 3.9: Schéma explicatif de la polarisation interfaciale.

Ce type de polarisation a été étudié pour la première fois par Maxwell dans un système formé par deux couches de deux matériaux diélectriques différents (figure 3.10).

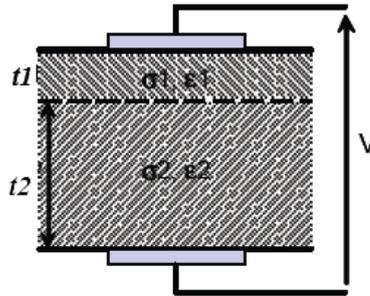


FIGURE 3.10: Présentation du modèle de Maxwell-Wagner du point de vue physique.

Avec $\left\{ \begin{array}{l} \epsilon_1 \text{ est la permittivité de la première couche diélectrique.} \\ \sigma_1 \text{ est la conductivité de la première couche diélectrique.} \\ \epsilon_2 \text{ est la permittivité de la deuxième couche diélectrique.} \\ \sigma_2 \text{ est la conductivité de la deuxième couche diélectrique.} \end{array} \right.$

Ce modèle physique représenté par la figure 3.10 peut être traduit par un modèle électrique à constantes localisées qui est représenté par la figure 3.11.

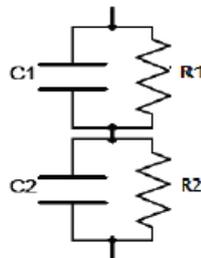


FIGURE 3.11: Présentation du modèle de Maxwell-Wagner de point de vue électrique.

Ce modèle est composé de deux impédances en série où chacune des impédances est composée d'une capacité en parallèle avec une conductance. La capacité et la conductance peuvent être exprimées en fonction des paramètres physiques $C_i = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_i A}{t_i}$ et la conductance $R_i = \frac{\sigma_i A}{t_i}$ avec ε_0 est la permittivité du vide, A est la surface de la capacité et t est l'épaisseur de chaque couche diélectrique [Jonscher, 1983, Jonscher, 1995].

L'admittance du circuit est donnée par l'équation 3.35.

$$Y^*(\omega) = \frac{(1 + j\omega\tau_1)(1 + j\omega\tau_2)}{(R_1 + R_2)(1 + j\omega\tau)} \quad (3.35)$$

Avec $\tau_1 = R_1 C_1$ et $\tau_2 = R_2 C_2$ et τ est la constante de temps du pic de relaxation interfaciale, qui est très faible comparée à celle de la relaxation dipolaire, elle est donnée par l'équation 3.36.

$$\tau = \frac{R_1 R_2}{R_1 + R_2} (C_1 + C_2) \quad (3.36)$$

La capacité complexe est donnée par l'équation 3.37.

$$C(\omega) = \frac{Y^*(\omega)}{j\omega} = C'(\omega) - jC''(\omega) \quad (3.37)$$

A partir de l'équation 3.35, nous pouvons déterminer les équations de la capacité réelle et imaginaire de la façon suivante.

$$\begin{cases} C''(\omega) = C_\infty \left(\frac{\tau}{\omega\tau_1} + \frac{K\omega\tau}{1+\omega^2\tau^2} \right). \\ C'(\omega) = C_\infty \left(1 + \frac{K}{1+\omega^2\tau^2} \right). \end{cases}$$

C_∞ est la capacité réelle lorsque ω tend vers l'infini. K étant un paramètre adimensionnel donné par l'équation 3.38.

$$K = \frac{(\tau(\tau_1 + \tau_2 - \tau)) - \tau_1\tau_2}{\tau_1\tau_2} \quad (3.38)$$

Comme nous pouvons également nous servir des expressions des capacités et des conductances, et en simplifiant d'avantage le problème en supposant que $t_1 = t_2$, nous pouvons aboutir à l'expression de la permittivité complexe relative qui est du type Debye qui s'écrit sous la forme de l'équation 3.39.

$$\varepsilon_r^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\Delta\varepsilon}{1 + i\omega\tau} \quad (3.39)$$

$$\text{Avec } \begin{cases} \varepsilon_\infty = \frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}. \\ \Delta\varepsilon = \frac{\varepsilon_2 \sigma_1 + \varepsilon_1 \sigma_2}{(\sigma_1 + \sigma_2)^2 (\varepsilon_1 + \varepsilon_2)}. \\ \tau = \varepsilon_0 \frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\sigma_1 + \sigma_2}. \end{cases}$$

Le fait que ce modèle permette uniquement de représenter un comportement du type Debye pur le rend limité, puisque nous avons indiqué un écart dans la pratique de ce modèle. C'est pour cette raison que Wagner et Sillars ont essayé de développer ce modèle en travaillant sur le comportement d'un diélectrique contenant des impuretés de différentes formes. Ces impuretés ont, comme le diélectrique principal, une permittivité et une conductivité propre (figure 3.12).

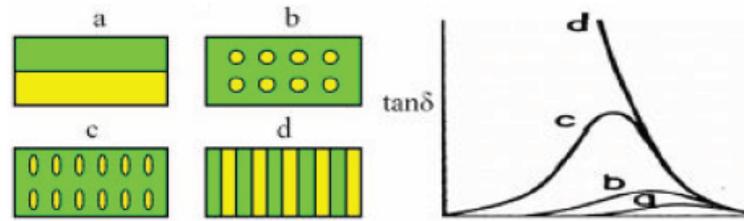


FIGURE 3.12: Modèle de Maxwell-Wagner (a) et Maxwell-Wagner Sillars (b, c, d).

Sillars a considéré le cas d'un diélectrique extrêmement isolant (ε_1, σ_1) contenant des impuretés conductrices sphériques (ε_2, σ_2) de fraction volumique f dans la matrice diélectrique, cette approche a permis d'améliorer l'expression de ε_∞ et ε_S (équations 3.40 et 3.41).

$$\varepsilon_\infty = \varepsilon_1 \left(1 + \frac{3f(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)}{2\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \right) \quad (3.40)$$

$$\varepsilon_S = \varepsilon_\infty \left(1 + \frac{9f\varepsilon_1}{2\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \right) \quad (3.41)$$

Par la suite, Sillars a montré que suivant la forme de ces impuretés, la permittivité apparente totale peut présenter de très fortes variations en basses fréquences, parfois bien plus fortes que celle du modèle simple présenté précédemment comprenant les deux couches diélectriques (figure 3.10).

La permittivité : somme de quatre contributions

La polarisation totale P peut donc survenir à plusieurs échelles. Elle peut aussi figurer comme la résultante de plusieurs phénomènes à la fois : due à la polarisation électronique P_e , atomique P_a , d'orientation P_{dip} et interfaciale P_i . Nous aboutissons donc à l'équation 3.42.

$$\vec{P} = \vec{P}_e + \vec{P}_a + \vec{P}_{dip} + \vec{P}_i \quad (3.42)$$

Pour reconnaître le type de polarisation ou de relaxation qui est mis en jeu dans un matériau diélectrique, nous sommes amenés à observer le comportement de la

partie réelle ε'_r et de la partie imaginaire ε''_r de la permittivité relative complexe en fonction de la fréquence.

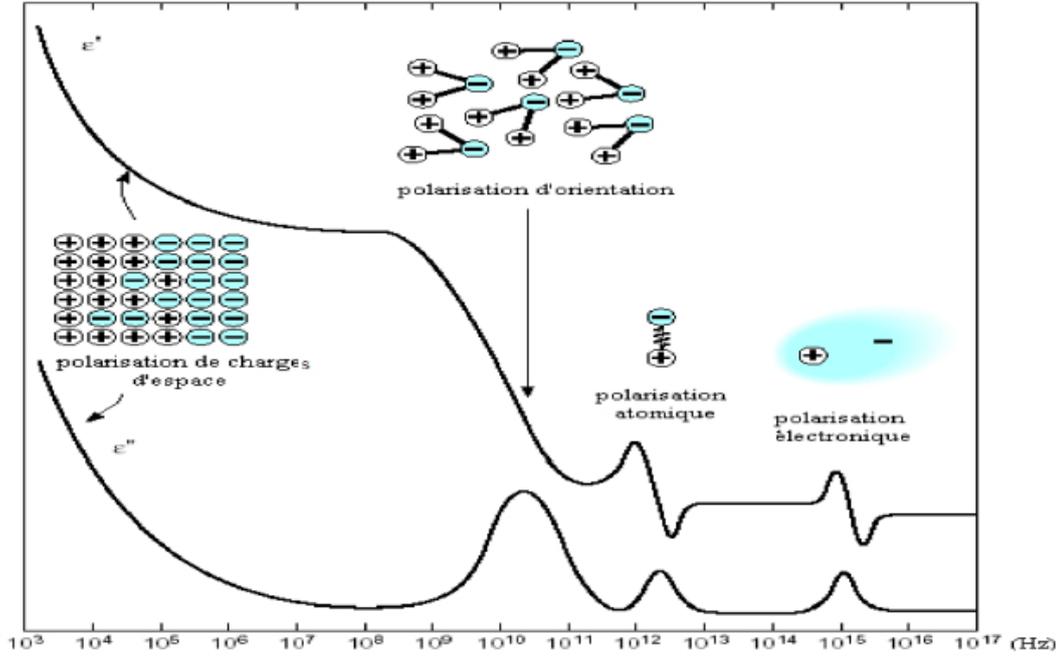


FIGURE 3.13: Variation de la partie réelle ε'_r et imaginaire ε''_r de la permittivité en fonction de la fréquence.

La polarisation se manifeste par une augmentation de la partie imaginaire de la permittivité relative complexe, cela traduit des pertes plus importantes ainsi qu'une réduction de la partie réelle. Cette dernière correspond à une réduction de la capacité du matériau à se polariser et à stocker de l'énergie électrique, cela revient à l'incapacité du matériau de suivre les variations du champ électrique et que l'un des mécanismes qui contribue à la polarisation globale n'agit plus.

Pour tenir compte des différentes origines des pertes diélectriques présentes dans un matériau, nous décomposons le facteur des pertes global $\varepsilon''_r(\omega)$ selon l'équation 3.43.

$$\varepsilon''_{r,tot}(\omega) = \varepsilon''_{r,i}(\omega) + \varepsilon''_{r,dip}(\omega) + \varepsilon''_{r,a}(\omega) + \varepsilon''_{r,e}(\omega) \quad (3.43)$$

$\varepsilon''_{r,i}(\omega)$ est due à la polarisation interfaciale, $\varepsilon''_{r,dip}(\omega)$ est due à la polarisation dipolaire ou d'orientation, $\varepsilon''_{r,a}(\omega)$ est due à la polarisation atomique et $\varepsilon''_{r,e}(\omega)$ est due à la polarisation électronique. D'autre part, pour certains matériaux, ces types de réponses sont plus complexes par l'apparition d'un terme supplémentaire au facteur global des pertes $\varepsilon''_{r,cond}(\omega) = \frac{\sigma_{DC}}{\omega\varepsilon_0}$. Cette contribution domine la réponse spectrale

à basses fréquences et elle peut même cacher le plus souvent les relaxations diélectriques ayant lieu dans ce domaine de fréquences.

L'équation 3.43 s'écrit sous la forme de l'équation 3.44.

$$\varepsilon''_{r,tot}(\omega) = \varepsilon''_{r,cond}(\omega) + \varepsilon''_{r,i}(\omega) + \varepsilon''_{r,dip}(\omega) + \varepsilon''_{r,a}(\omega) + \varepsilon''_{r,e}(\omega) \quad (3.44)$$

Étant donné la résolution de l'analyseur utilisé dans le cadre de ce travail de thèse et vu que les deux processus de polarisation atomique et électronique sont très rapides (ils se produisent en un temps de $10^{-13}s$ à $10^{-12}s$), nous ne pouvons détecter que le phénomène de conduction et les deux polarisations interfaciale et dipolaire si elles existent.

3.2.4.5 Loi d'Arrhénius pour la variation du temps de relaxation en fonction de la température

La variation et la dépendance des temps de relaxation est généralement étudiée par l'intermédiaire du diagramme d'Arrhenius. Ce dernier est obtenu en traçant la variation de τ (temps de relaxation) dans une échelle semi-logarithmique en fonction de l'inverse de la température ($\log(\tau) = f(\frac{1}{T})$).

La loi d'Arrhenius est donnée par l'équation 3.45 [Jonscher, 1983, Jonscher, 1995].

$$\tau(T) = \tau_0 \exp\left(\frac{E_a}{k_b T}\right) \quad (3.45)$$

Avec $\left\{ \begin{array}{l} k_b \text{ est la constante de Boltzmann.} \\ \tau_0 \text{ est le temps de relaxation.} \\ E_a \text{ est l'énergie d'activation du processus.} \end{array} \right.$

Cette loi est décrite par une droite dans le diagramme d'Arrhenius. E_a et τ_0 sont déterminés à travers la pente et la valeur à l'origine. Le système étudié étant un dipôle qui peut occuper deux états possibles séparés par une barrière de potentiel. Le temps de relaxation est présenté comme étant l'inverse de la fréquence du saut.

3.2.4.6 Contribution de la transition par saut dans le domaine fréquentiel

La présence de défauts dans le diélectrique peut contribuer à son tour à des variations de la permittivité avec la fréquence. Ces défauts forment des puits de potentiel pouvant contenir des charges. Suite à l'application d'un champ électrique, ces charges peuvent passer d'un piège à l'autre et donc se déplacer dans le diélectrique. Nous représentons dans la figure 3.14 la transition par saut.

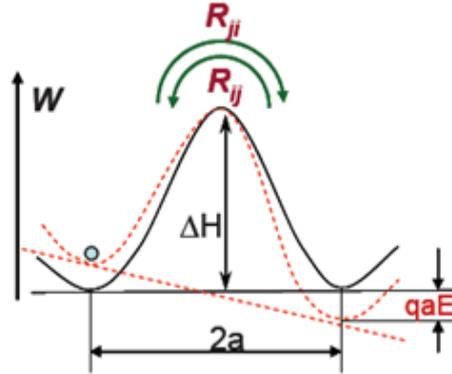


FIGURE 3.14: Modèle de conduction par saut où 'a' est la distance de saut.

Sans l'application d'un champ électrique, la probabilité des transitions entre les puits R_{ij} et R_{ji} entre le i ème et le j ème puit sont égales, la hauteur de barrière à vaincre pour passer d'un piège vers l'autre est de ΔH . L'application d'un champ électrique a pour effet de diminuer la hauteur de barrière pour sauter du point i vers j . Cela a pour conséquence d'augmenter la probabilité de saut R_{ij} et de diminuer R_{ji} . A partir de ce modèle, Jonscher [Jonscher, 1983] a montré que dans le cas de l'application d'un champ électrique sinusoïdal, une contribution du "hopping" à la polarisation apparaît qui s'exprime par l'équation 3.46.

$$\chi(\omega) = \frac{N\mu^2}{3k_bT\varepsilon_0} r\tau \frac{1}{1 + j\omega\tau} \quad (3.46)$$

Avec $\left\{ \begin{array}{l} r \text{ est le taux de transition entre deux défauts.} \\ \mu \text{ est le moment dipolaire.} \\ N \text{ est le nombre de puits doubles dans le diélectrique.} \end{array} \right.$

Le prolongement de la théorie de Jonscher a fourni l'équation 3.47 qui exprime la contribution de la conduction par saut en fonction de la fréquence.

$$\varepsilon_{r,ho}(\omega) = \frac{\sigma_{ho}}{\varepsilon_0(j\omega)^\gamma} \quad (3.47)$$

σ_{ho} est constante et $1 - \gamma < 1$.

Le phénomène de conduction qui apparaît souvent dans les matériaux diélectriques à basses fréquences est souvent dominé par la conduction par saut.

3.2.4.7 Evoluition de la permittivité relative en fonction de la température

Généralement, l'évolution de la permittivité en fonction de la température est décrite par le modèle de Debye donné par l'équation 3.48. Le phénomène observé est

lié au fait que les dipôles se sont orientés. Ce modèle a été récemment utilisé dans le cadre des polymères électro-actifs [Jean-Mistral *et al.*, 2010].

$$\varepsilon'_r = \varepsilon'_{r,\infty} + \frac{N\mu^2}{3\varepsilon_0 k_b T} \quad (3.48)$$

$$\text{Avec} \left\{ \begin{array}{l} \varepsilon_{r,\infty} \text{ est la permittivité relative à très hautes fréquences.} \\ \varepsilon_0 \text{ est la permittivité du vide.} \\ N \text{ est la densité du dipôles.} \\ \mu \text{ est le moment dipolaire.} \\ k_b \text{ est la constante de Boltzmann.} \\ T \text{ est la température.} \end{array} \right.$$

Dans l'équation 3.48, $\varepsilon'_{r,\infty}$ est la contribution des dipôles induits (polarisation électronique) et $\frac{N\mu^2}{3\varepsilon_0 k_b T}$ est la contribution de la polarisation d'orientation. Toutefois le modèle de Debye est valide dans le cas de matériaux à faible densité de dipôles car il ne prend pas compte l'interaction dipôle-dipôle. Cette hypothèse est valide si l'énergie d'interaction dipôle-dipôle E_{dip} donnée par l'équation 3.49 est plus faible que l'énergie de fluctuation thermique E_{th} reportée dans l'équation 3.50 qui assure au dipôle un changement de direction aléatoire avec le temps.

$$E_{dip} = \frac{N\mu^2}{4\pi\varepsilon_0} \quad (3.49)$$

$$E_{th} = \frac{k_b T}{q} \quad (3.50)$$

q est la charge d'un électron.

3.2.5 Etude des propriétés diélectriques du PDMS massif et micro-structuré

Les variations de la constante diélectrique ε'_b et des pertes diélectriques ε''_b en fonction de la température allant de $25^\circ C$ à $125^\circ C$ par un pas de $20^\circ C$ et pour une gamme de fréquence allant de $0.1 Hz$ à $1 MHz$ soumis à une tension $V = 1 V_{rms}$ sont représentées sur la figure 3.15. Toutes les mesures sont étendues sur cette large gamme de fréquence car nous avons besoin des valeurs de la permittivité comme une base de données pour l'ajustement des courbes dans le chapitre 4.

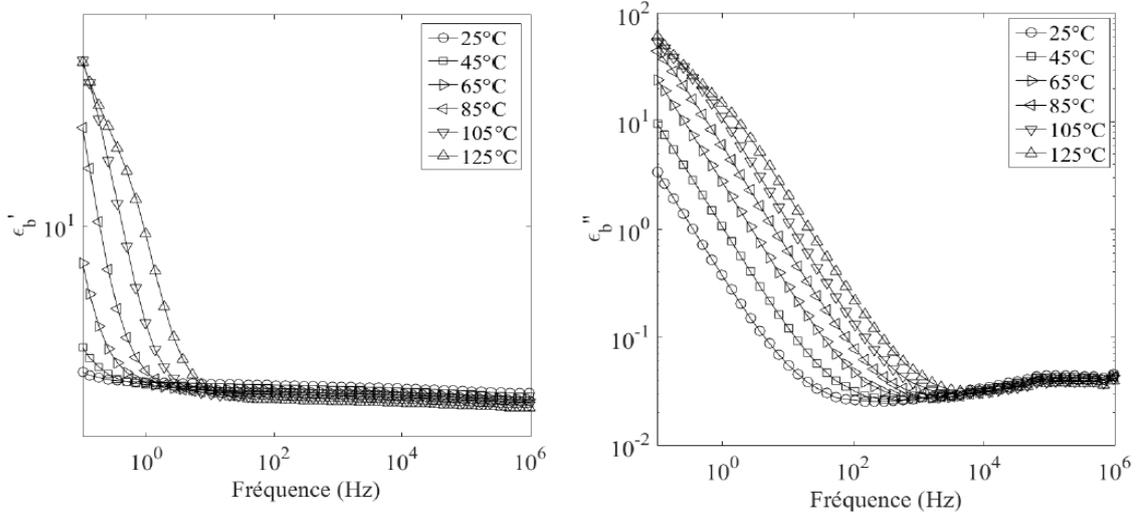


FIGURE 3.15: Variations de la partie réelle et imaginaire de la permittivité du *PDMS* massif d'épaisseur $t_b = 100\mu\text{m}$ en fonction de la fréquence et de la température.

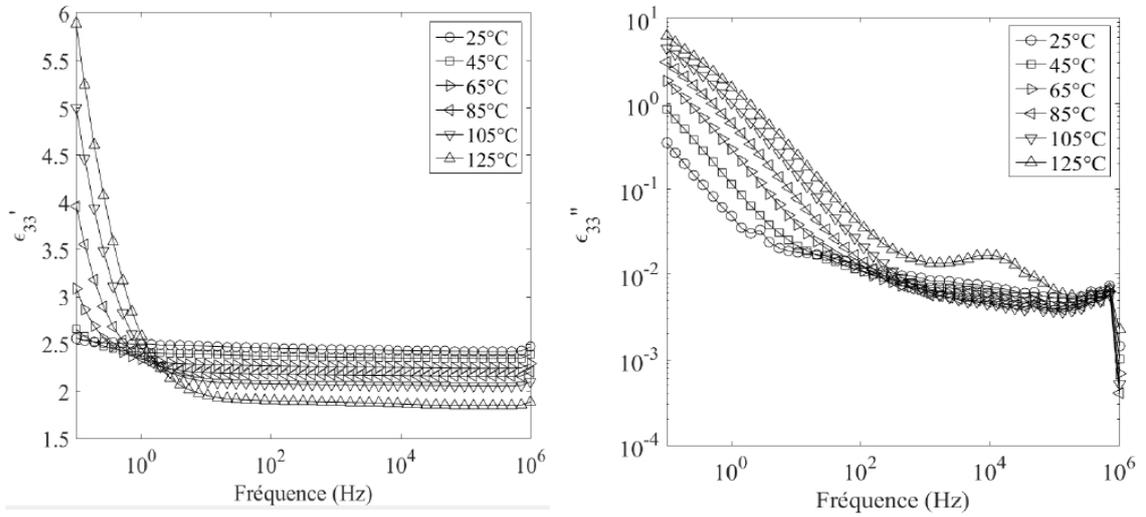


FIGURE 3.16: Variations de la partie réelle et imaginaire de la permittivité du *PDMS* micro-structuré en fonction de la fréquence et de la température.

Les variations de la partie réelle ε'_{33} et la partie imaginaire ε''_{33} de la permittivité relative complexe du *PDMS* micro-structuré dans la configuration optimisant la *FOM* discutée dans le chapitre 2 dans la même gamme de température et de

fréquence sont représentés dans la figure 3.16. Ces mesures sont faites sur des empilements non polarisés.

Nous pouvons constater que l'introduction des micro-cavités dans le *PDMS* réduit la constante diélectrique par 16% (de 3 à 2.5) et réduit les pertes diélectriques par une décade à $25^{\circ}C$ et à $10Hz$. Ces réductions, spécialement dans les pertes, peuvent être utiles pour les applications des micro-capteurs en tenant compte de la *FOM* utilisée.

La figure 3.16 montre que la constante diélectrique du matériau *PDMS* micro-structuré ϵ'_{33} reste indépendante de la fréquence pour une température donnée entre $1Hz$ et $1MHz$, et elle décroît en fonction de la température pour une fréquence donnée. Ce comportement est typique pour les matériaux apolaires. La constante diélectrique ϵ'_{33} obéit à la loi de Debye donnée par l'équation 3.52.

Nous estimons par l'équation 3.52 l'énergie d'activation de $11.5meV$ ce qui prouve que l'approximation faite pour utiliser ce modèle est valide pour le *PDMS* micro-structuré. Cette énergie est de $7.65meV$ pour le *PDMS* massif. L'énergie d'activation augmente dans le cas du *PDMS* micro-structuré à cause de l'introduction des micro-cavités.

La différence d'énergie dans ce modèle provient des vibrations des dipôles qui apparaissent au niveau des interfaces *air/PDMS* où des charges de signes opposés sont condensées. L'origine de ces dipôles sera discuté plus loin. Les paramètres du modèle de Debye sont représentés dans la figure 3.17.

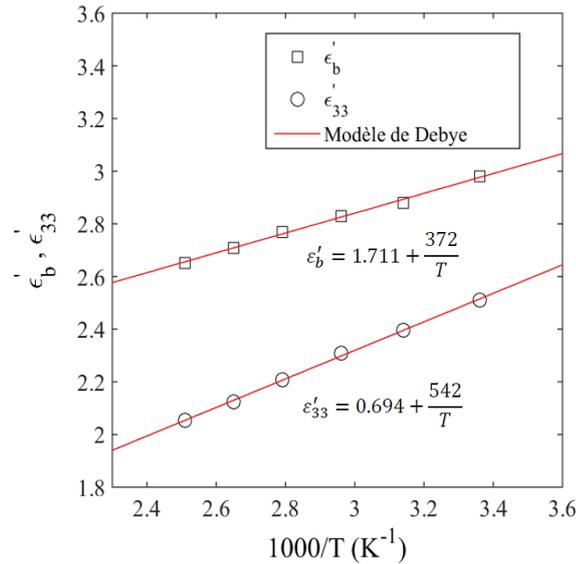


FIGURE 3.17: Variations de la constante diélectrique en fonction de la température pour le *PDMS* massif et micro-structuré à la fréquence de $100Hz$.

ε_{33}'' présente un comportement particulier, elle croît considérablement pour des fréquences entre 0.1Hz et 10Hz avec la température. La pente associée à l'évolution de ε_{33}'' en fonction de la fréquence sur cette plage est égale à -1 . En considérant les théories des matériaux diélectriques, les pertes diélectriques sont expliqués par la contribution du phénomène de conduction σ_{DC} dans le matériau.

La conductivité en régime alternatif σ_{AC} dans le matériau *PDMS* micro-structuré peut être représentée par l'équation 3.51.

$$\sigma_{AC} = \varepsilon_0 \omega \varepsilon_{33}'' \quad (3.51)$$

σ_{AC} peut être exprimée par l'équation 3.52.

$$\sigma_{AC} = \sigma_{DC} + A(T)\omega + B(T)\omega^{n(T)} \quad (3.52)$$

Cette relation représente la loi de Jonscher [Jonscher, 1995]. Le coefficient $n(T)$ est l'exposant qui dépend de la température avec la condition $0 \leq n(T) \leq 1$.

A et B sont des constantes qui dépendent de la température et σ_{DC} représente la conductivité σ_{DC} .

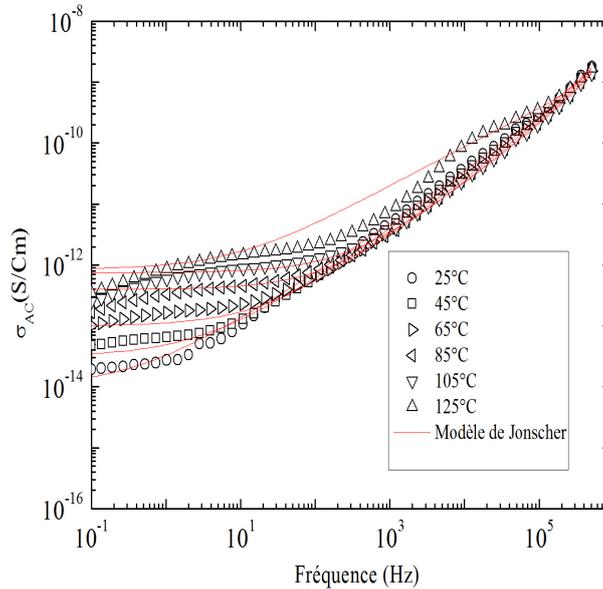


FIGURE 3.18: Évolution de la conductivité σ_{AC} du *PDMS* micro-structuré en fonction de la fréquence et de la température.

La figure 3.18 représente les variations de σ_{AC} en fonction de la fréquence à différentes températures. La conductivité σ_{AC} du *PDMS* micro-structuré est ajustée

par la loi de Jonscher (équation 3.52). Aux basses fréquences, nous constatons que la conductivité est indépendante de la fréquence. Les valeurs des plateaux apparaissant dans les basses fréquences sont spécifiques à la conduction σ_{DC} qui augmentent avec la température. La contribution de la conduction- DC peut être expliquée par le phénomène de conduction par saut de charges à grandes échelles dans le matériau [Jonscher, 1995].

La conductivité σ_{AC} varie avec la fréquence et ce comportement peut être décrit par les deux termes fréquentiels dans l'équation 3.52. La région qui dépend de la fréquence montre une faible influence de la température. Le phénomène observé est lié à la conduction par saut de charges à petites échelles contrôlé par le champ électrique extérieur appliqué au matériau.

L'exposant $n(T)$ et σ_{DC} sont déterminés pour la gamme de température allant de $25^{\circ}C$ à $125^{\circ}C$ pour le *PDMS* massif et pour le *PDMS* micro-structuré.

La figure 3.19 montre que la conductivité σ_{DC} suit la loi d'Arrhénius donnée par l'équation 3.53.

$$\sigma_{DC} = \sigma_0 \exp\left(-\frac{E_a}{k_b T}\right) \quad (3.53)$$

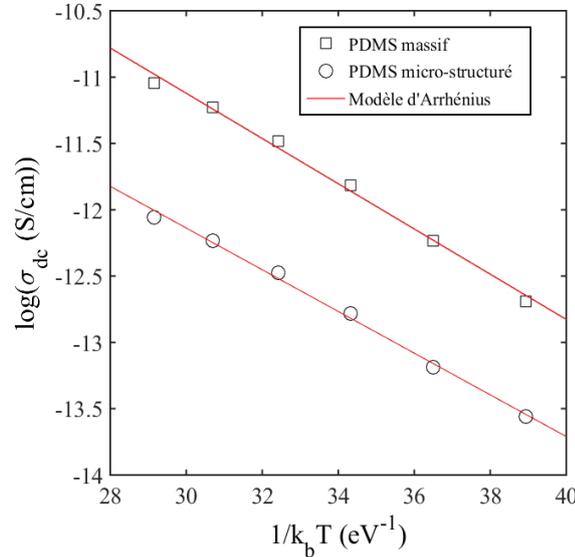


FIGURE 3.19: Variations de σ_{DC} en fonction de la température pour le *PDMS* massif et micro-structuré.

σ_0 est une constante, E_a est l'énergie d'activation du processus qui vaut 170meV pour le *PDMS* massif et 150meV pour le matériau micro-structuré. La décroissance

de l'énergie d'activation est due à l'introduction des micro-cavités dans le matériau. En effet, les charges se déplacent facilement dans l'air emprisonné dans les micro-cavités qui possède une faible résistivité comparée à celle du *PDMS*. Pour le phénomène responsable des pertes diélectriques ayant lieu dans les matériaux micro-structurés à hautes fréquences, nous décidons d'étudier les variations de l'exposant $n(T)$, estimé par la loi de Jonscher, en fonction de la température (figure 3.20). Compte tenu du modèle du saut ("hopping") de barrière corrélé, les valeurs de l'exposant $n(T)$ doivent varier entre 0.7 et 1 et diminuent en augmentant la température [Gudmundsson *et al.*, 2003].

Ce modèle est cohérent avec les résultats expérimentaux pour le *PDMS* micro-structuré qui suggère que le phénomène de conduction σ_{AC} dans la gamme de température $25^{\circ}C - 125^{\circ}C$ peut être expliqué par le saut de charges entre les sites à travers une barrière de potentiel W_M les séparant. Dans ce cas, l'exposant $n(T)$ est donné par l'équation 3.54.

$$n(T) = 1 - \frac{6k_bT}{W_M} \quad (3.54)$$

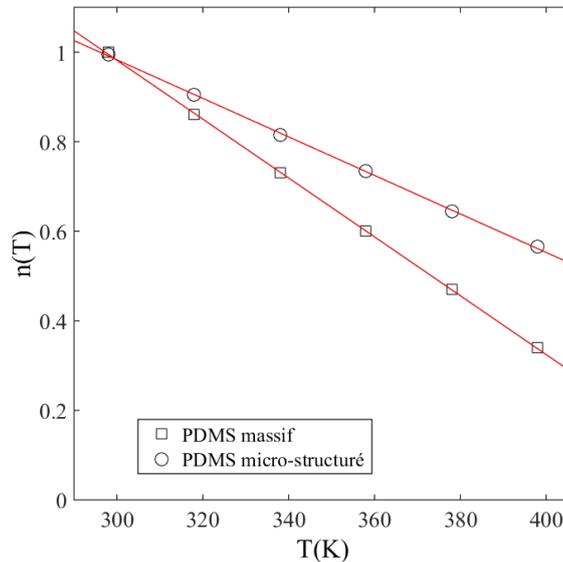


FIGURE 3.20: Évolution de l'exposant $n(T)$ en fonction de la température pour le *PDMS* massif et micro-structuré.

W_M est le maximum de la hauteur du potentiel que les charges doivent franchir. Cette énergie peut être évaluée facilement de la pente de la courbe $(1 - n(T))$ en fonction de la température (figure 3.21). Une valeur de $W_{M,b} = 80meV$ est obtenue pour le *PDMS* massif et une valeur de $W_{M,p} = 120meV$ est obtenue pour le *PDMS*

micro-structuré. La figure 3.22 représente une illustration schématique de la hauteur des barrières dans le cas du polymère massif et micro-structuré.

L'introduction des micro-cavités constitue des barrières plus hautes que celles existant dans le *PDMS* massif.

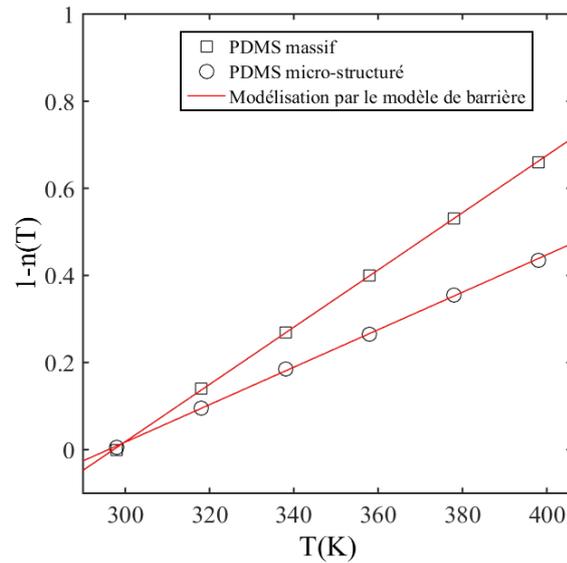


FIGURE 3.21: Variaton de l'exposant $(1 - n(T))$ en fonction de la température pour le *PDMS* massif et micro-structuré.

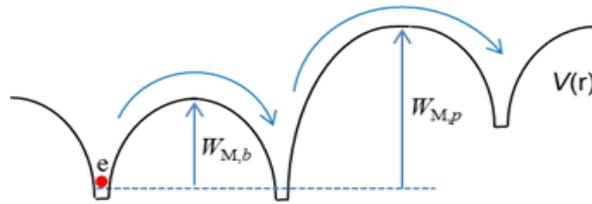


FIGURE 3.22: Modèle schématique des mécanismes de conduction-*AC* pas saut ("hopping") pour le *PDMS* massif et micro-structuré.

Dans notre étude, certains phénomènes de relaxations peuvent être masqués par la conduction ionique à basses fréquences en se basant sur la permittivité relative complexe. Ce phénomène de dispersion et les fortes pertes diélectriques observés aux basses fréquences et pour des températures allant de 25°C à 125°C dans la partie réelle et imaginaire de la permittivité relative complexe du *PDMS* micro-structuré (figure 3.16) indiquent les effets combinés des mécanismes de polarisation et de

conduction.

Pour dissocier les deux effets, le formalisme du module électrique est utilisé. Le module électrique complexe M_{33}^* ainsi que sa partie réelle et imaginaire sont donnés respectivement par les équations 3.55, 3.56 et 3.57.

$$M_{33}^* = \frac{1}{\varepsilon_{33}^*} = M_{33}' + jM_{33}'' \quad (3.55)$$

$$M_{33}' = \frac{\varepsilon_{33}'}{\varepsilon_{33}'^2 + \varepsilon_{33}''^2} \quad (3.56)$$

$$M_{33}'' = \frac{\varepsilon_{33}''}{\varepsilon_{33}'^2 + \varepsilon_{33}''^2} \quad (3.57)$$

D'un point de vue physique, le module électrique correspond au champ électrique de relaxation dans le polymère quand le champ de déplacement électrique est constant et représente le processus de relaxation diélectrique réel.

L'origine de l'augmentation des propriétés diélectriques peut être expliquée par le phénomène de polarisation interfaciale (Maxwell-Wagner-Sillars (MWS)). En effet, la structure que présente le *PDMS* micro-structuré constitue un support pour la présence de la polarisation au niveau des interfaces *air/PDMS* car le matériau est hétérogène et contient deux composants avec des conductivités différentes. Nous avons étendu notre étude à la gamme de températures ($[25^\circ C, 145^\circ C]$) afin de mieux distinguer l'effet de la température sur le module électrique

La figure 3.23 montre que M_{33}' est pratiquement nul aux basses fréquences et pour les températures d'étude et ce comportement sera attribué à la conduction ionique. Pour les hautes fréquences, M_{33}' atteint une valeur limite $M_{33,\infty}' = \frac{1}{\varepsilon_{33,\infty}'}$ caractéristique d'un phénomène de relaxation.

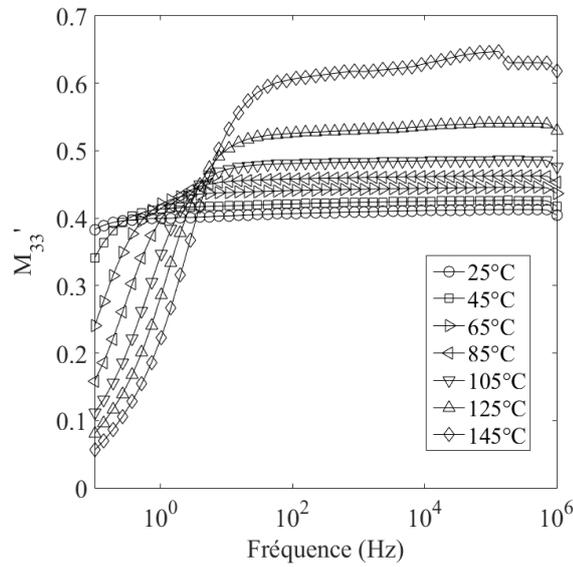


FIGURE 3.23: Variation de la partie réelle du module électrique M'_{33} du *PDMS* micro-structuré en fonction de la température.

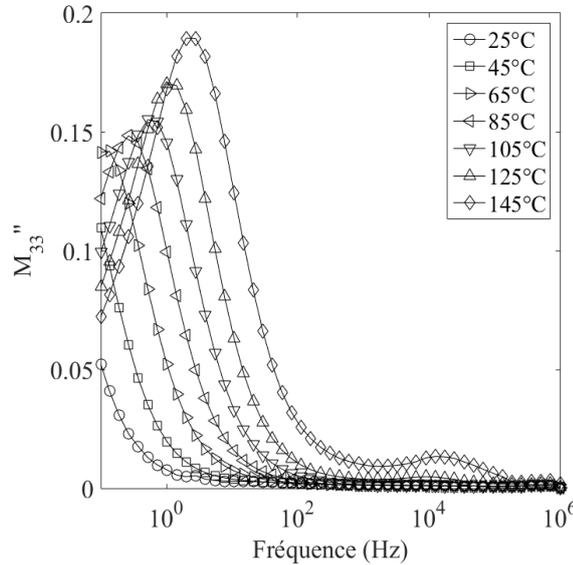


FIGURE 3.24: Variaton de la partie imaginaire du module électrique M''_{33} du *PDMS* micro-structuré en fonction de la température.

Les courbes de M''_{33} représentées sur la figure 3.24 pour les différentes températures allant de 25°C à 145°C montrent des pics de relaxation pour des fréquences caractéristiques. Ces pics se translatent vers les hautes fréquences en augmentant la

température. Ce comportement confirme que ce phénomène est assisté thermiquement.

Le régime fréquentiel au dessous du pic de M''_{33} indique des mobilités des charges à grandes échelles indiquant l'existence de la polarisation *MWS*. Pour des fréquences plus hautes que celle du pic, les charges sont confinées dans les puits de potentiel et libres de se déplacer à travers les barrières et les dipôles générés par la polarisation de *MWS* et mentionnés dans le modèle de Debye. Ils n'ont pas le temps pour se réorienter relativement au champ électrique. La gamme de fréquences où le pic a lieu confirme la transition de la mobilité des charges associé à des mécanismes de type courtes distances à des grandes portées.

La figure 3.25 représentent les variations de f_{max} , la fréquence correspondante à la valeur maximale $M''_{33,max}$ de M''_{33} en fonction de la température. Elle montre que la polarisation interfaciale obéit à la loi d'Arrhénius donnée par l'équation 3.58.

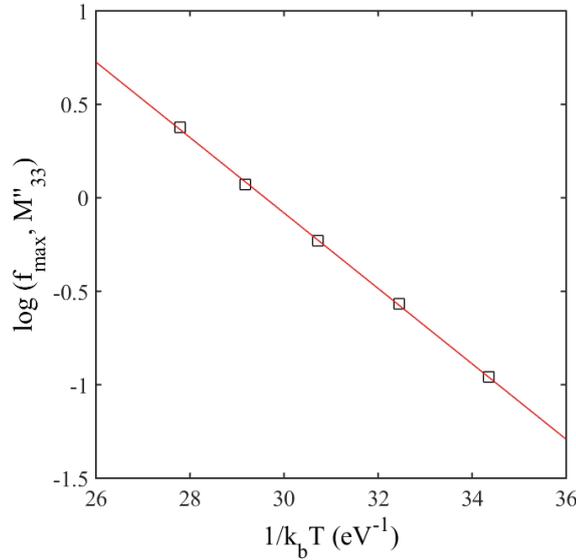


FIGURE 3.25: Variation de f_{max} en fonction de la température pour le *PDMS* micro-structuré.

$$f_{max} = f_0 \exp\left(-\frac{E_a}{k_b T}\right) \quad (3.58)$$

f_0 est une fréquence constante.

L'énergie d'activation E_a de la polarisation de type *MWS* vaut 190meV . Cette valeur est cohérente et en accord avec les valeurs calculées pour la conductivité σ_{DC} qui confirme que les deux phénomènes sont activés simultanément par les mêmes charges.

Finalement, nous avons étudié la stabilité des propriétés diélectriques du *PDMS* micro-structuré en fonction de la température durant un cycle de chauffage et un cycle de refroidissement de $T_i = 25^\circ C$ à $T_f = 125^\circ C$ à fréquence de $100Hz$ avec une vitesse de $4^\circ C/min$. La figure 3.26 montre que la constante diélectrique ϵ'_{33} présentent les mêmes valeurs pour les deux cycles confirmant la stabilité des propriétés diélectriques du matériau micro-structuré en fonction de la température.

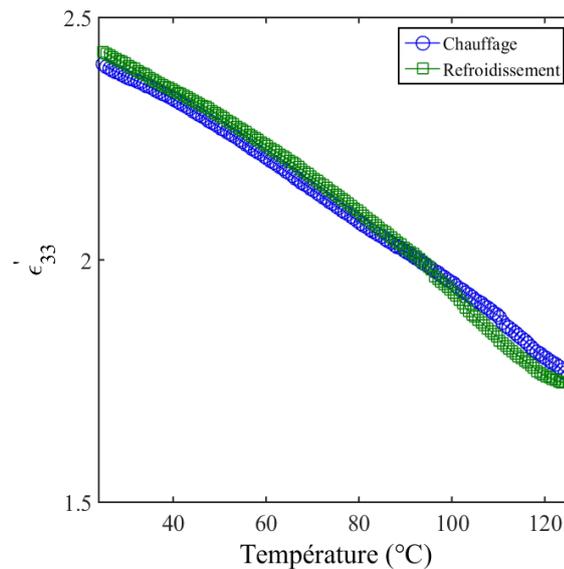


FIGURE 3.26: Variation de la constante diélectrique ϵ'_{33} en fonction de la température à $100Hz$.

3.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié les propriétés diélectriques des matériaux micro-structurés tout en les comparant à celle du *PDMS* massif. Ces propriétés ont été modélisés avec les modèles théoriques existant pour **qu'ils puissent servir comme base de données dans la modélisation de la réponse piézoélectrique indirecte des échantillons finaux** dans le chapitre 4.

L'introduction des micro-cavités a permis de **réduire la constante diélectrique du *PDMS* micro-structuré de 16% et les pertes d'une décade à $25^\circ C$ et à $10Hz$** . Cette réduction constitue un avantage pour optimiser la figure de mérite que nous avons retenue. Toutefois, l'introduction des micro-cavités a favorisé l'apparition des phénomènes de dispersion tel que **le phénomène de conduction par saut et la polarisation interfaciale**.

Investigations des propriétés piézoélectriques

Sommaire

4.1	Introduction	95
4.2	Étude des propriétés piézoélectriques en mode indirect	96
4.2.1	Formalisme théorique	96
4.2.2	Étude de la stabilité thermique de la piézoélectricité des matériaux piézo-électrets	98
4.2.3	Amélioration de la stabilité thermique de la piézoélectricité	102
4.2.4	Effet des proportions stoechiométriques sur les propriétés piézoélectriques	107
4.3	Étude des propriétés piézoélectriques en mode direct	112
4.3.1	Formalisme théorique	112
4.3.2	Montage expérimental	114
4.3.3	Résultats et discussions	115
4.4	Conclusion	123

4.1 Introduction

Après avoir fixé tous les paramètres géométriques des structures finales faisant l'objet des matériaux piézo-électrets dans le chapitre 2. Ces paramètres géométriques permettent d'optimiser la figure de mérite retenue et d'améliorer la réponse piézo-électrique. Après avoir fixé les conditions d'implantation des charges qui nous permettent d'augmenter la distribution effective de charges implantée dans les micro-cavités, nous nous proposons dans ce chapitre d'étudier les propriétés piézoélectriques des structures finales en mode actionneur (piézoélectricité indirecte). Cette étude est basée sur l'utilisation de la spectroscopie diélectrique. Cette technique nous

a permis de remonter aux propriétés mécaniques, piézoélectriques et à la stabilité thermique des piézo-électrets à base du *PDMS*. Nous avons également amélioré la stabilité thermique des matériaux ainsi obtenus. Des études sur l'effet des proportions stœchiométriques entre le pré-polymère et l'agent réticulant sur les propriétés piézoélectriques ont été réalisées. Par la suite, nous avons testé nos structures électromécaniquement en appliquant des contraintes mécaniques sur les piézo-électrets. Une étude préliminaire du vieillissement des structures a été aussi réalisée.

4.2 Étude des propriétés piézoélectriques en mode indirect

La méthode de la résonance par la spectroscopie diélectrique ou la spectroscopie d'impédance est une méthode électrique d'investigation des propriétés piézoélectriques en piézoélectricité indirecte. Cette méthode est très utilisée pour les matériaux du type piézo-électret puisqu'elle permet de solliciter les matériaux sans les avoir endommagé par un abus de déformations surtout qu'ils présentent un module de Young très faible. En effet, les échantillons se déforment s'ils font l'objet d'une tension alternative et vibrent avec la fréquence. Une fois que la fréquence de sollicitation coïncide avec une fréquence d'oscillation mécanique propre des échantillons, un phénomène de résonance est détecté sur les spectres diélectriques. La spectroscopie diélectrique possède l'avantage de donner l'accès à plusieurs paramètres dans une seule mesure [Kachroudi *et al.*, 2015a, Mellinger *et al.*, 2001b, Fang *et al.*, 2011]. La théorie issue de l'utilisation de cette technique a été largement discuté dans le document fourni par la communauté *IEEE* pour la modélisation de la réponse des matériaux piézoélectriques en piézoélectricité indirecte [Std, 1987]. Nous détaillons ça dans la sous-section suivante.

4.2.1 Formalisme théorique

Suite à l'application d'un champ électrique alternatif $E(t) = E_0 \sin(\omega t)$, un échantillon piézoélectrique présente une résonance de vibration en longueur (en anglais "Length-Extension" (LE)), en largeur (en anglais "Width-Extension" (WE)) ou en épaisseur (en anglais "Thickness-Extension" (TE)) à ses fréquences propres. La résonance d'un film piézoélectrique dans la direction-33 est le mode en épaisseur [Kachroudi *et al.*, 2015a, Mellinger *et al.*, 2001b, Fang *et al.*, 2011]. Avec une tension appliquée V et le courant mesuré I , l'impédance complexe ou l'admittance calculées sont données par les équations 4.1 et 4.2.

$$Z_{TE}^* = \frac{V^*}{I^*} \quad (4.1)$$

$$Y_{TE}^* = \frac{I^*}{V^*} \quad (4.2)$$

De plus, la capacité complexe et l'admittance peuvent être exprimées par les équations 4.3 et 4.4 respectivement.

$$Z_{TE}^*(\omega) = \frac{1}{j\omega C_{TE}^*} \quad (4.3)$$

$$Y_{TE}^*(\omega) = j\omega C_{TE}^* \quad (4.4)$$

La capacité complexe est donnée par l'équation 4.5.

$$C_{TE}^* = \frac{I^*}{j\omega V} = C'_{TE} - jC''_{TE} \quad (4.5)$$

C'_{TE} et C''_{TE} sont les parties réelle et imaginaire de la capacité complexe respectivement. La capacité complexe d'un film piézoélectrique autour de la résonance en mode épaisseur est donné par l'équation 4.6 [Mellinger, 2003].

$$C_{TE}^* = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_{33}^* A}{t} \frac{1}{1 - k_{33}^* \frac{\tan(\omega/4f_{r,TE}^*)}{\omega/4f_{r,TE}^*}} - jC_{pertes} \quad (4.6)$$

C_{pertes} caractérise les pertes autres que les pertes diélectriques lorsque nous nous écartons de la fréquence de résonance du piézo-électret. $f_{r,TE}^*$ est la fréquence de résonance complexe et k_{33}^* est le coefficient de couplage électromécanique complexe qui sont données par les équations 4.7 et 4.8 respectivement [Mellinger, 2003].

$$f_{r,TE}^* = \frac{1}{2t} \sqrt{\frac{c_{33}^*}{\rho}} \quad (4.7)$$

dans le cas d'un matériau libre [Mellinger, 2003].

$$k_{33} = d_{33} \sqrt{\frac{c_{33}}{\varepsilon_0 \varepsilon_{33}}} \quad (4.8)$$

A représente l'aire des électrodes des échantillons, t représente l'épaisseur, ρ est la masse volumique, c_{33}^* est le coefficient de rigidité élastique complexe et d_{33} est le coefficient piézoélectrique longitudinal. Les mesures sont effectuées par les mêmes équipements décrits dans la section 3.2.3 du chapitre 3 avec une tension appliquée $V = 1V_{rms}$. Il est important d'indiquer que le contact avec les électrodes des échantillons à travers les pointes de mesure est fait d'une façon à laisser la liberté aux échantillons de vibrer librement avec la tension sinusoïdale appliquée. Cela suppose un effet minimal de la précontrainte que peut appliquer la pointe de mesure sur l'échantillon.

4.2.2 Étude de la stabilité thermique de la piézoélectricité des matériaux piézo-électrets

Dans cette partie, nous nous proposons d'analyser les spectres relatifs à la partie imaginaire de la capacité d'un matériau piézo-électret à base de *PDMS*. Ces matériaux ont la configuration qui est fixée dans le chapitre 2 pour optimiser la réponse piézoélectrique. Ces échantillons ont une surface des électrodes $A = 2 \times 2 \text{cm}^2$ et une épaisseur $t = 150 \mu\text{m}$. Ils ont été chargés avec une tension quasi-statique triangulaire avec des amplitudes entre 1kV et 4kV pendant 15 minutes et à 25°C . Les mesures sont réalisées dans la gamme de températures allant de -25°C à 85°C pour étudier la stabilité thermique de la piézoélectricité sur cette gamme de température. La fréquence des mesures varie entre 1Hz et 1MHz . La figure 4.1 présente les variations de la partie imaginaire de la capacité du matériau micro-structuré non-chargé. Notre étude a été restreinte à la partie imaginaire de la capacité puisque les deux parties réelle et imaginaire de la capacité sont reliées par les relations de Kramers-Krönig [Jonscher, 1983, Kremer et Schönals, 2002].

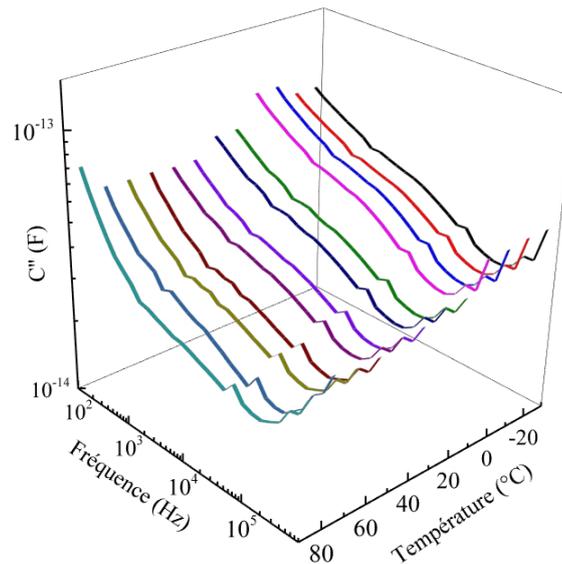


FIGURE 4.1: Variation de C''_{TE} pour le matériau *PDMS* micro-structuré non-chargé en fonction de la fréquence et de la température de mesure.

La figure 4.2 représente la courbe à trois dimensions de la partie imaginaire de la capacité du matériau piézo-électret en fonction de la température et de la fréquence. En comparant les deux figures 4.1 et 4.2, nous constatons l'apparition des pics de résonance dans le cas des matériaux piézo-électrets électriquement chargés [Kachroudi *et al.*, 2016].

Ces pics de résonance constituent la signature de la piézoélectricité dans la réponse du matériau suite à sa sollicitation par une tension sinusoïdale. Les courbes de la figure 4.2 sont ajustées en utilisant l'équation 4.6 pour pouvoir accéder aux paramètres k_{33}^* et $f_{r,TE}^*$. Par la suite, en connaissant les valeurs de ϵ_{33} réportées dans le chapitre 3, nous déduisons c_{33}^* et d_{33} par l'intermédiaire des équations 4.7 et 4.8.

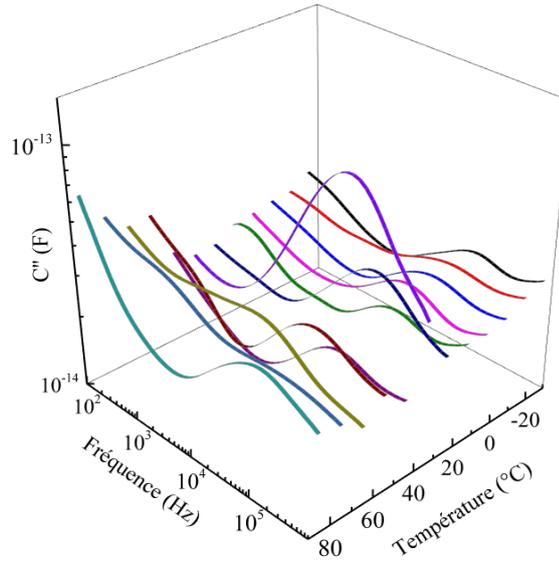


FIGURE 4.2: Variation de C''_{TE} pour le matériau *PDMS* micro-structuré chargé à $25^\circ C$ en fonction de la fréquence et de la température de mesure.

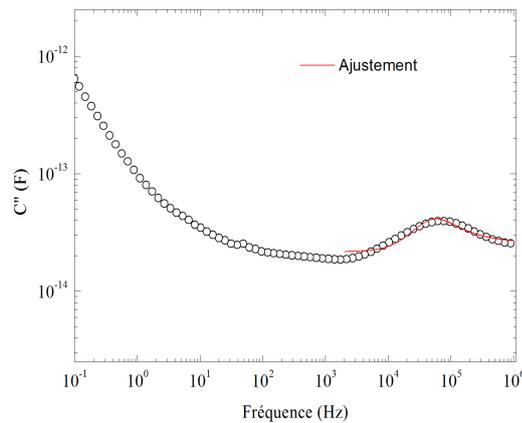


FIGURE 4.3: Ajustement de la courbe de la partie imaginaire de la capacité du matériau *PDMS* piézo-électret autour de la résonance.

La figure 4.3 représente un exemple d'ajustement autour de la fréquence de résonance pour la partie imaginaire de la capacité du matériau piézo-électret à la température $25^{\circ}C$.

Les figures 4.4 et 4.5 représentent respectivement les variations de la partie réelle et imaginaire du coefficient de la rigidité élastique c_{33}^* , de la partie réelle du coefficient du couplage électromécanique k'_{33} et le coefficient piézoélectrique longitudinal en fonction de la température allant de $-25^{\circ}C$ à $85^{\circ}C$.

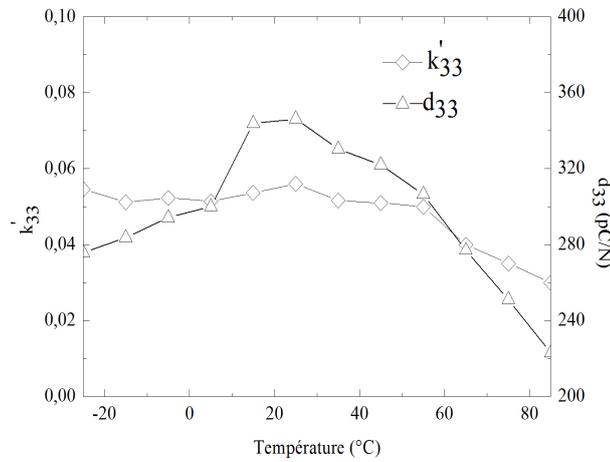


FIGURE 4.4: Variation du coefficient de couplage k'_{33} et le coefficient piézoélectrique d_{33} en fonction de la température.

La figure 4.5 présente la partie réelle du coefficient de rigidité élastique c'_{33} du matériau piézo-électret à base du *PDMS* qui est très faible et qui vaut $0.3MPa$ à la température de $25^{\circ}C$ comparé à celui es matériaux conventionnels piézoélectriques polymères comme le *PVDF* ($= 10.9GPa$) et le *PP* ($= 1.3MPa$) [Wegener *et al.*, 2004]. Cette faible valeur constitue un avantage pour ce matériau dans son intégration dans des applications de dispositifs implantables. Cette valeur diminue sensiblement en fonction de la température, cela explique la translation de la fréquence de résonance en fonction de la température (figure 4.2). Pour la partie imaginaire du coefficient de rigidité élastique c''_{33} , elle dépasse toujours la partie réelle mais reste toujours plus faible que celle du *PVDF* et du *PP* [Wegener *et al.*, 2004]. Cette forte valeur est relative à la nature du polymère lui même, son état physique et sa morphologie. Le *PDMS*, dans cette gamme de températures ($[-25^{\circ}C, 85^{\circ}C]$) est au dessus de la température de transition vitreuse $T_g = -125^{\circ}C$ et la température de fusion $T_m = -40^{\circ}C$ [Bosq *et al.*, 2014]. C'est pour cette raison que les échantillons sont toujours souples, surtout après l'introduction des micro-cavités qui augmentent

les pertes présentées c_{33}'' [Kachroudi *et al.*, 2016].

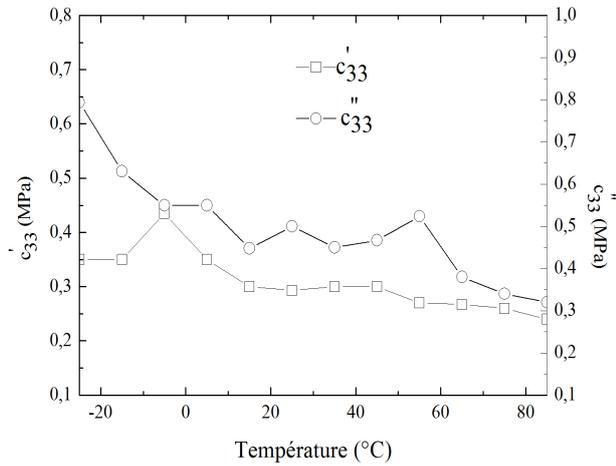


FIGURE 4.5: Variations de la partie réelle et imaginaire de la constante de rigidité élastique en fonction de la température.

La figure 4.4 représente une valeur maximale de $d_{33} = 350pC/N$ à $25^{\circ}C$, cette valeur correspond à une valeur maximale du coefficient du couplage $k'_{33} = 5.5\%$ à la même température qui coïncide avec le pic maximal à la fréquence de $80kHz$ sur la figure 4.2 à $15^{\circ}C$. En effet, à cette température, nous sollicitons les charges qui sont implantées à la température ambiante lors du procédé du chargement électrique. Les charges implantées commencent à vibrer et peuvent passer par le mécanisme de conduction par saut d'un piège à l'autre au niveau des surfaces internes des micro-cavités. Nous constatons d'après les figures 4.2 et 4.4 que la piézoélectricité persiste sur toute la gamme de températures. Toutefois, nous remarquons que le coefficient piézoélectrique d_{33} décroît considérablement à partir de $60^{\circ}C$ et s'accompagne aussi par la diminution de la hauteur des pics de résonance à partir de cette température. Deux phénomènes peuvent être à l'origine de cette diminution. Le premier étant la perte des charges par la dépolarisation thermo-stimulée à partir de cette température. En effet, à cette température qui est très haute par rapport à la température de transition vitreuse $T_g = -125^{\circ}C$ du *PDMS* [Bosq *et al.*, 2014], les segments des chaînes polymériques ont plus de liberté de se mouvoir favorisant ainsi le dépiégeage des charges électriques implantées dans le *PDMS*. Le deuxième phénomène concerne la déformation des structures lors du chauffage, ce qui peut réduire la taille des micro-cavités et les échantillons deviennent plus mous. Mais, la décroissance du coefficient piézoélectrique d_{33} est de 30% de la valeur maximale uniquement à la température de $85^{\circ}C$. Au dessus de cette température, la piézoélectricité disparaît

complètement, c'est pour cette raison que toutes les investigations sont limitées à 85°C [Kachroudi *et al.*, 2016]. Maintenir la piézoélectricité sur toute cette température fait du matériau piézo-électret à base du PDMS un vrai concurrent d'autres matériaux piézoélectriques à base de polymère. Nous pouvons estimer la valeur de la densité de charges implantées dans le matériau qui est de $2220\mu\text{C}\cdot\text{m}^{-2}$ à partir de l'équation 2.17 du chapitre 2. Nous pouvons constater que notre matériau piézo-électret à base de PDMS présente un coefficient piézoélectrique important comparé à ses concurrents directs qui sont le PVDF et le piézo-électret à base de polypropylène (PP).

Le piézo-électret à base de PDMS présente un coefficient de couplage de 5.5% comparable à celui du piézo-électret à base du PP valant 5% et qui est plus important que celui obtenu avec le Polynaphthalate d'éthylène (PEN) qui vaut 2%. Notre matériau présente une large gamme de températures de fonctionnement comparé à celles du PVDF ($[0^{\circ}\text{C}, 70^{\circ}\text{C}]$) et le piézo-électret à base du PP ($[-20^{\circ}\text{C}, 50^{\circ}\text{C}]$). De plus, nous avons obtenu un faible module de Young de 300kPa comparé à 500kPa obtenu dans le cas du piézo-électret à base du PP et le PVDF avec 10.6GPa [Wegener *et al.*, 2004, Fang *et al.*, 2007].

Matériau	ε_{33}	$d_{33}(\text{pC}/\text{N})$	$E(\text{MPa})$	FOM
Piézo-électret PEN	3.2	140	1.4	4.94×10^{-16}
Piézo-électret PP	1.23	175	0.5	5.53×10^{-15}
piézo-électret PDMS	2.5	350	0.3	1.85×10^{-14}
Parylène C	3.15	2	2.8×10^3	5.12×10^{-23}
PVDF	12	28	3.2×10^3	2.3×10^{-21}

TABLE 4.1: Comparaison de la figure de mérite de notre piézo-électret à base du PDMS à celle des autres matériaux piézoélectriques [Wegener *et al.*, 2004, Kim *et al.*, 2011, Anton *et al.*, 2014, Mellinger *et al.*, 2001b, Fang *et al.*, 2007].

De plus, notre travail nous a permis de réaliser un matériau piézo-électret de coefficient piézoélectrique longitudinal qui est dix fois plus important que le piézo-électret à base du PDMS élaboré par d'autres auteurs [Wang *et al.*, 2012].

4.2.3 Amélioration de la stabilité thermique de la piézoélectricité

Pour améliorer la stabilité thermique de la piézoélectricité du matériau, nous avons choisi de charger les structures à 50°C et 100°C respectivement. Quand nous

procédons au chargement électrique à hautes températures, la tension est maintenue et elle n'est supprimée que si la température de l'échantillon atteint la température ambiante.

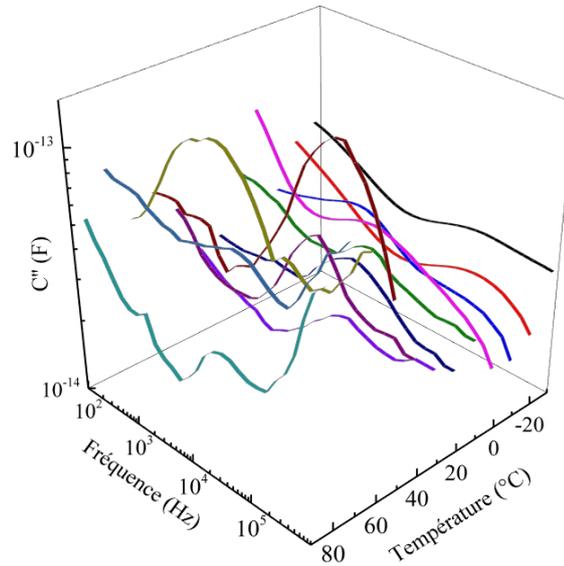


FIGURE 4.6: Évolution de C''_{TE} pour le *PDMS* micro-structuré chargé à $50^{\circ}C$.

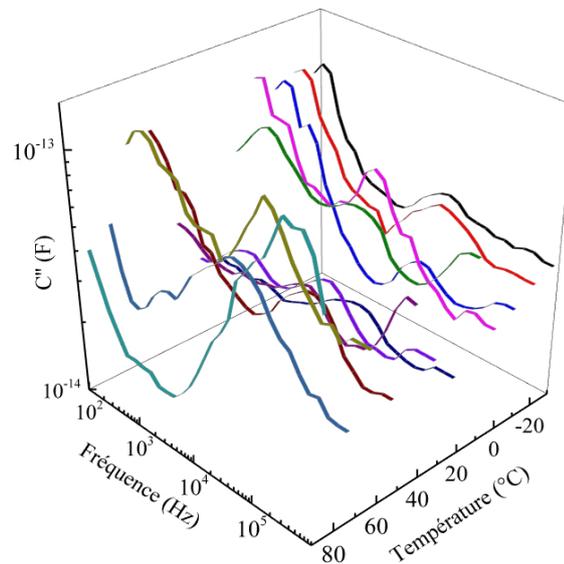


FIGURE 4.7: Évolution de C''_{TE} pour le *PDMS* micro-structuré chargé à $100^{\circ}C$.

Ce choix a été fait pour éviter la perte des charges électriques par les dépolarisa-

tions thermo-stimulées. Des pics de résonance observés dans fréquences plus hautes dans le cas des matériaux chargés à hautes températures ($50^{\circ}C$ et $100^{\circ}C$) comparés à ceux chargés à la température ambiante (figure 4.2). Durant le chargement électrique à haute température, le *PDMS* subit un récuît et ce processus favorise la mobilité des chaînes polymériques dans le *PDMS* qui deviennent libres. Le fait de leur faire subir un recuit à des températures plus hautes que la température de transition vitreuse T_g leur donne suffisamment d'énergie pour être dans leur configuration la plus stable, mettre le système dans son niveau d'énergie potentielle le plus faible contribue à sa stabilité.

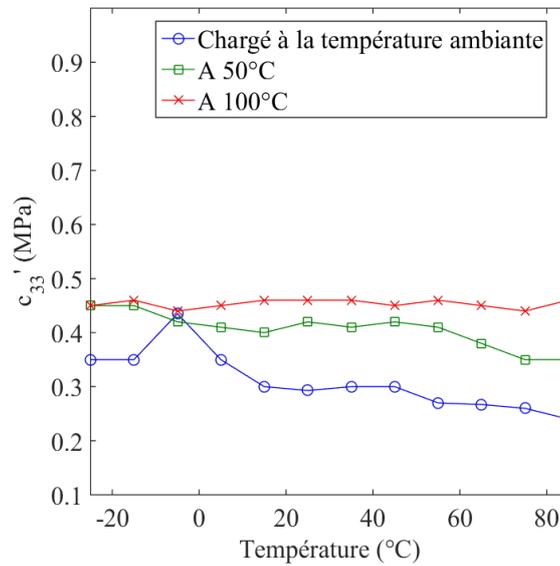
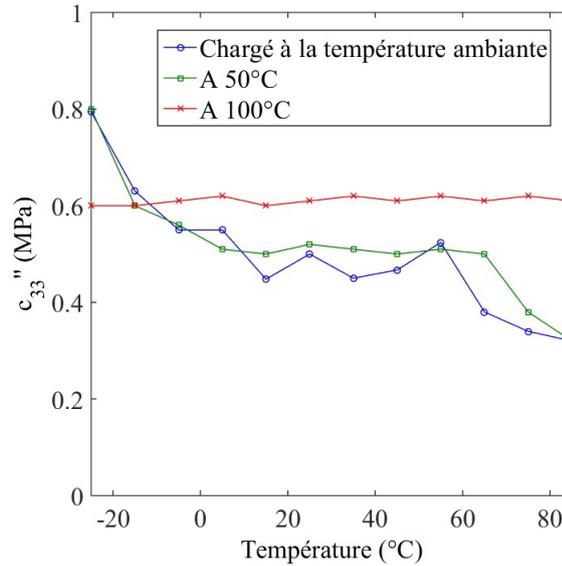


FIGURE 4.8: Variations de c'_{33} en fonction de la température.

De plus, en augmentant la température, nous pouvons favoriser la réticulation du polymère. A température élevée, les structures sont soumises à un champ électrique. Cela contribue à l'accélération et l'injection des charges électriques dans les pièges les plus profonds du *PDMS* contribuant ainsi à l'augmentation de la densité de charges implantées dans les surfaces internes des micro-cavités du piézo-électret. Ce phénomène contribue à la réorganisation des chaînes polymériques. Suite à ce processus, le matériau devient plus rigide qu'avant. Par conséquent, les fréquences de résonance deviennent plus hautes à cause de l'augmentation de la rigidité du matériau par le traitement thermique (les figures 4.8 et 4.9) [Kachroudi *et al.*, 2016]. Pour les structures chargées à $50^{\circ}C$ et $100^{\circ}C$, nous pouvons constater que le coefficient de couplage électromécanique est réduit à 5% et 4.8% respectivement (figure 4.10) comparé à celui obtenu avec les matériaux chargés à température ambiante. Mais, il reste comparable à celui obtenu avec le *PP*, et plus important que celui obtenu avec le *PEN*.

FIGURE 4.9: Variations de c''_{33} en fonction de la température.

Des résultats importants sont observés pour le coefficient piézoélectrique longitudinal d_{33} obtenus avec les matériaux chargés à 50°C et 100°C . En effet, les matériaux chargés à 50°C présentent un coefficient piézoélectrique à 85% de la valeur du coefficient piézoélectrique mesuré à 25°C pour les matériaux chargés à la température ambiante. Quant à celui relatif aux matériaux chargés à 100°C , il est à 83% de cette valeur. Mais, cette valeur de d_{33} est stable sur toute la gamme de températures d'étude comparée à celui des matériaux chargées à la température ambiante. Ce phénomène peut être expliqué par le fait que les charges implantées à hautes températures possèdent suffisamment d'énergie thermique et sont accélérées pour atteindre les pièges les plus profonds des surfaces internes des micro-cavités.

Pour cette raison, nous observons une décroissance du coefficient piézoélectrique par dépolarisation thermo-stimulée dans le cas des structures chargées à 50°C (figure 4.11). Le coefficient d_{33} est maintenu stable même pour la gamme de température allant de -25°C à 85°C pour les structures chargées à 100°C où les charges gagnent plus d'énergie que dans le cas des structures chargées à 25°C pour se localiser dans des pièges plus profonds. Nous pouvons constater que le procédé de chargement électrique à hautes températures améliore la stabilité thermique et il ne réduit pas trop la piézoélectricité qui peut être dû à la déformation des structures suite à leur chauffage. Si une meilleure stabilité thermique est préférée, le chargement électrique à hautes températures doit être privilégié, et, si un coefficient piézoélectrique longitudinal plus élevé est préféré, un chargement électrique à température ambiante devra être choisi.

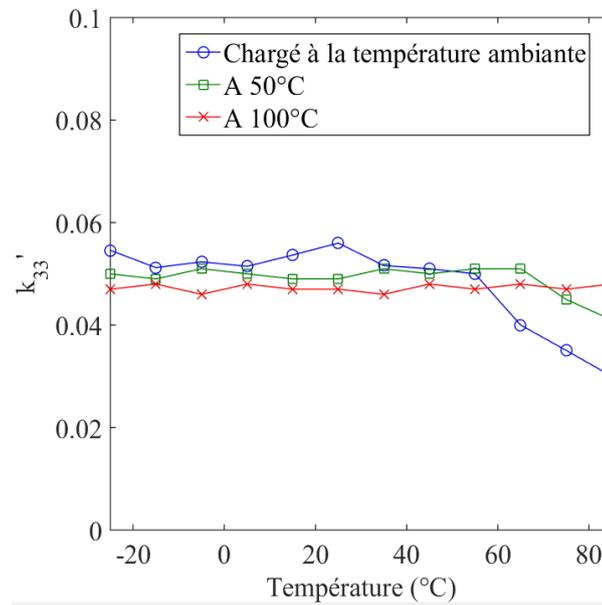


FIGURE 4.10: Variation du coefficient de couplage k'_{33} en fonction de la température.

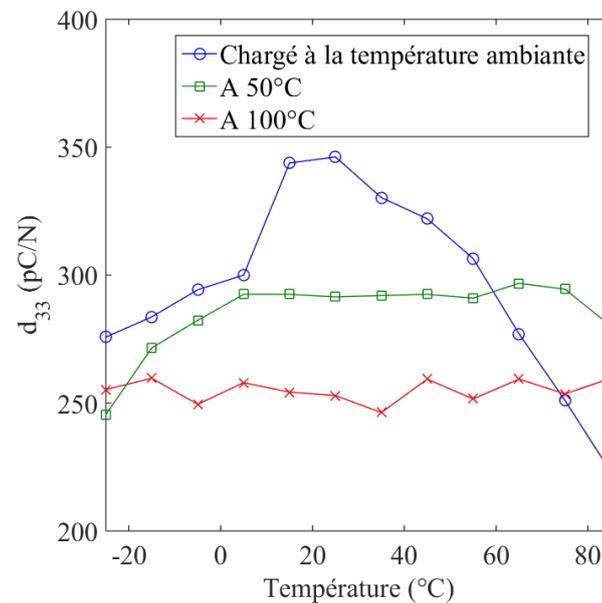


FIGURE 4.11: Variation du coefficient piézoélectrique d_{33} en fonction de la température.

4.2.4 Effet des proportions stœchiométriques sur les propriétés piézoélectriques

Dans cette partie, nous nous proposons d'étudier l'effet des proportions entre le pré-polymère et l'agent réticulant sur les propriétés piézoélectriques des matériaux finaux. Nous avons choisi de faire varier les proportions entre 1:5, 1:10, 1:15 et 1:20 tout en gardant les mêmes paramètres géométriques optimisant la réponse piézoélectrique des structures finales.

Pour pouvoir comparer les propriétés piézoélectriques des matériaux ainsi obtenus, nous avons choisi de garder les mêmes conditions de chargement électrique qui est une tension quasi-statique triangulaire avec des amplitudes entre $1kV$ et $4kV$ avec une fréquence de $0.5Hz$.

Nous avons étudié les spectres infra-rouge réalisés par transmittance par un appareil du type *Nicolet 380* pour voir l'impact des proportions stœchiométriques sur la réticulation du *PDMS* (figure 4.12). Les molécules du pré-polymère sont identifiées par la répétition de l'unité $-Si(CH_3)_2O-$ et le groupement de terminaison éthylène ($-CH=CH_2$), par contre la fonction d'hydruure de silicium $Si-H$ est le groupement caractéristique de l'agent réticulant. La réaction de polymérisation est décrite par l'hydrogénation du groupement de terminaison éthylène du pré-polymère avec le groupement de réticulation $Si-H$ [Lamberti *et al.*, 2014].

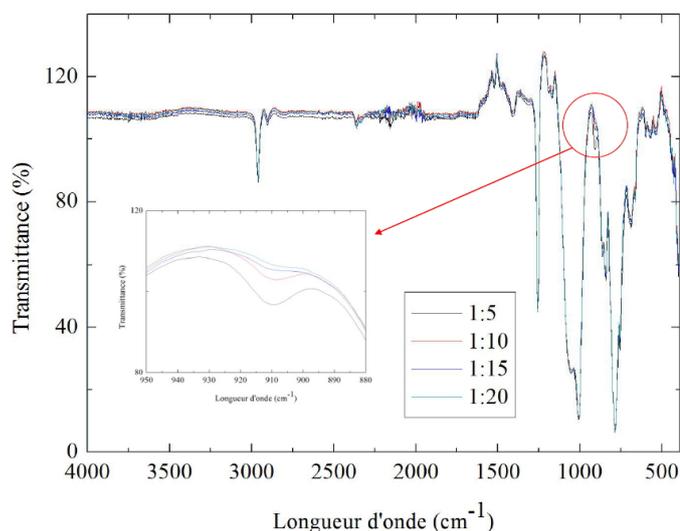


FIGURE 4.12: Spectre Infra-rouge par transmittance pour du *PDMS* pour différentes proportions stœchiométriques entre le pré-polymère et l'agent réticulant.

Si nous considérons les spectres représentés dans la figure 4.12, nous constatons

que tous les pics représentant des vibrations des groupements du *PDMS* présentent des faibles variations. Les variations d'intensité les plus prononcées sont attribuées à la liaison d'hydrure de silicium qui possède un effet direct sur la réticulation dans le polymère.

L'agrandissement reporté dans la figure 4.12, nous aide à bien constater le comportement en diminuant la quantité de l'agent réticulant, cela permet d'avoir un *PDMS* moins polymérisé avec plus de volumes libres dans la matrice ce qui peut influencer d'une façon directe les propriétés mécaniques. L'intensité relative à *Si-H* diminue quand le polymère est bien réticulé [Lamberti *et al.*, 2014].

Nous avons étudié les réponses piézoélectriques des échantillons préparés avec différentes proportions (1:5, 1:10, 1:15 et 1:20) chargés à 25°C . Pour pouvoir exploiter les mesures piézoélectriques, nous avons préalablement fait des caractérisations de la permittivité relative complexe ε_{33}^* (partie réelle et imaginaire) du *PDMS* microstructuré pour les différentes proportions précédemment mentionnées.

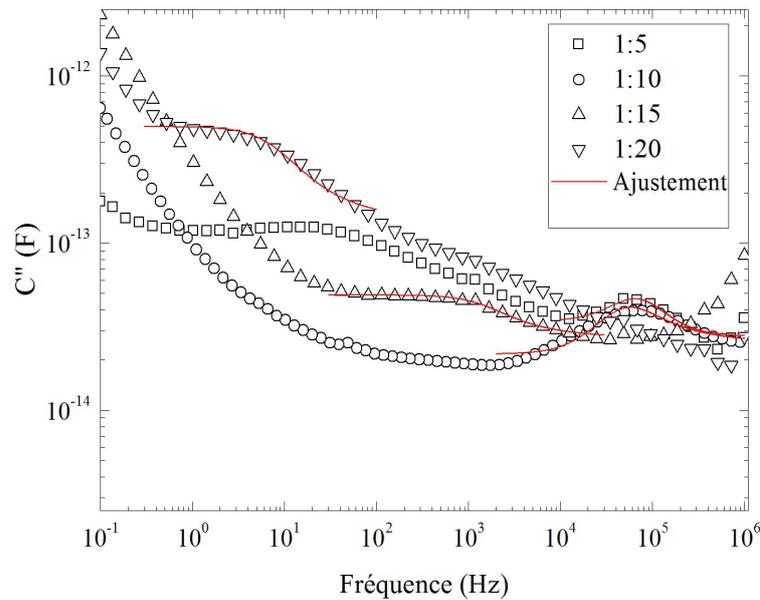


FIGURE 4.13: Ajustement des courbes de C''_{TE} des matériaux piézo-électrets en *PDMS* pour différentes proportions stœchiométriques entre le pré-polymère et l'agent réticulant autour de la résonance à 25°C .

Ces valeurs ont été modélisées en fonction de la fréquence et de la température comme cela a été fait dans le cas des proportions 1:10 dans le chapitre 2 et répertoriées pour nous en servir dans l'ajustement des courbes de C''_{TE} .

La figure 4.13 représente l'ajustement des courbes de la partie imaginaire de la capacité de ces matériaux autour du pic de résonance.

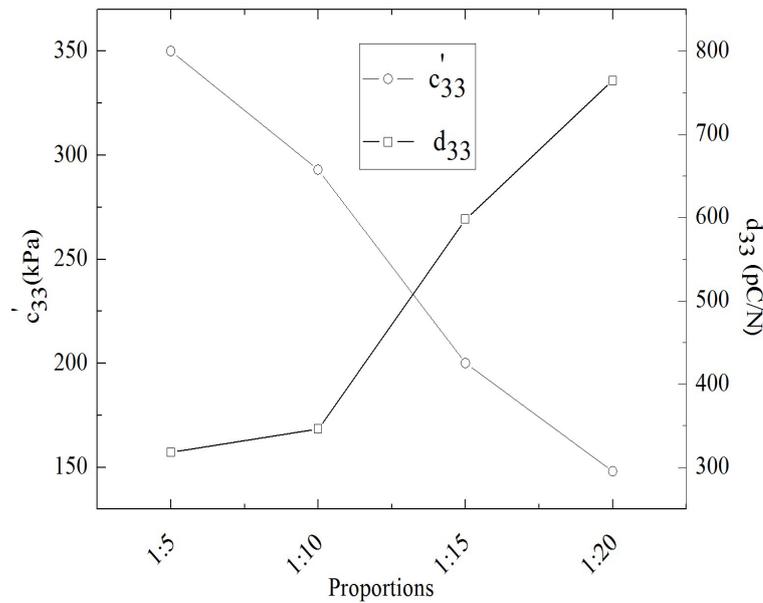


FIGURE 4.14: Variations de la partie réelle du coefficient du rigidité élastique c'_{33} et du coefficient piézoélectrique d_{33} des matériaux piézo-électrets en *PDMS* pour différentes proportions stœchiométriques entre le pré-polymère et l'agent réticulant autour de la résonance à $25^{\circ}C$.

La figure 4.14 représente les variations de la partie réelle du coefficient de la rigidité élastique c'_{33} et du coefficient piézoélectrique longitudinal d_{33} .

Nous constatons que le coefficient piézoélectrique d_{33} croît avec la diminution du coefficient du rigidité élastique prouvant que le coefficient piézoélectrique dépend des propriétés mécaniques. Le coefficient piézoélectrique le plus important est de $760pC/N$ pour un coefficient du rigidité élastique de $150kPa$ obtenu pour les proportions 1:20 alors qu'il est de $150pC/N$ pour un coefficient de rigidité de $350kPa$ pour les proportions 1:5.

Nous avons étudié également la stabilité thermique de la piézoélectricité dans chacun des échantillons. Les figures 4.15, 4.16 et 4.17 représentent les courbes C''_{TE} de la partie imaginaire de la capacité en fonction de la fréquence et de la température pour les proportions 1:5, 1:15 et 1:20 respectivement. Ces courbes sont ajustées autour de la résonance pour extraire le coefficient piézoélectrique longitudinal pour chacun des échantillons.

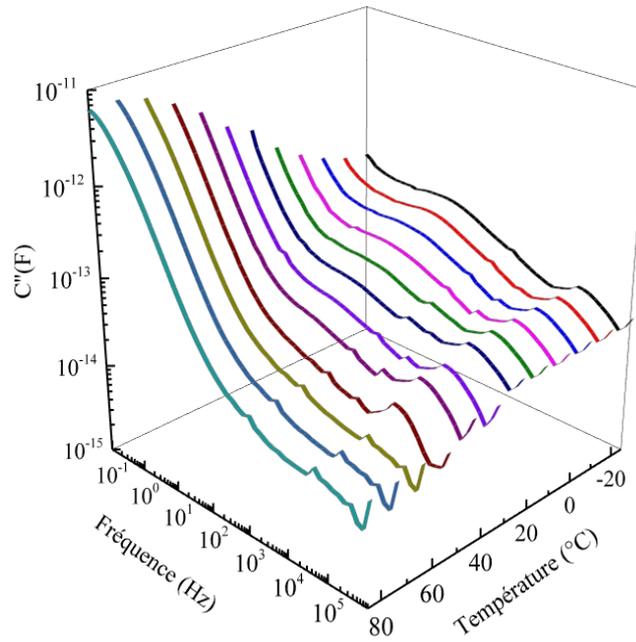


FIGURE 4.15: Évolution de C''_{TE} pour le *PDMS* micro-structuré chargé à 25°C pour les proportions 1:5.

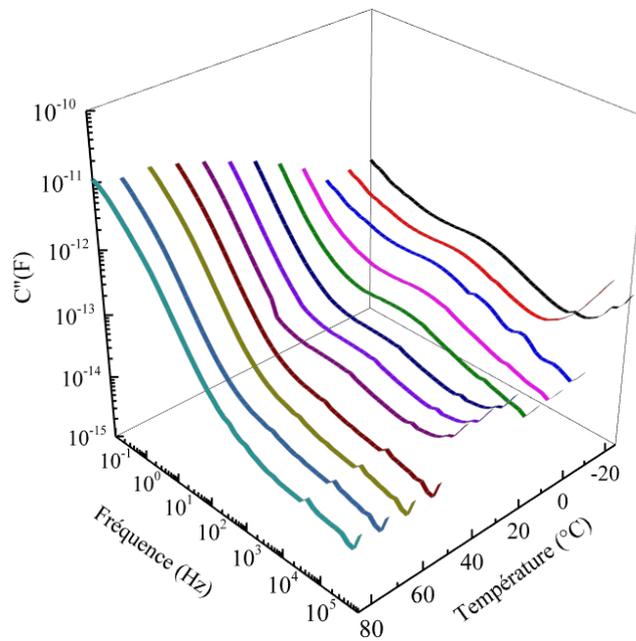


FIGURE 4.16: Évolution de C''_{TE} pour le *PDMS* micro-structuré chargé à 25°C pour les proportions 1:15.

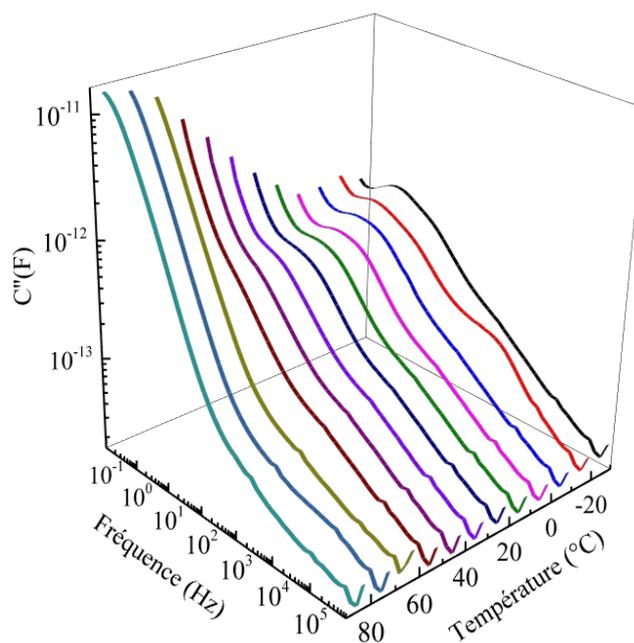


FIGURE 4.17: Évolution de C''_{TE} pour le *PDMS* micro-structuré chargé à 25°C pour les proportions 1:20.

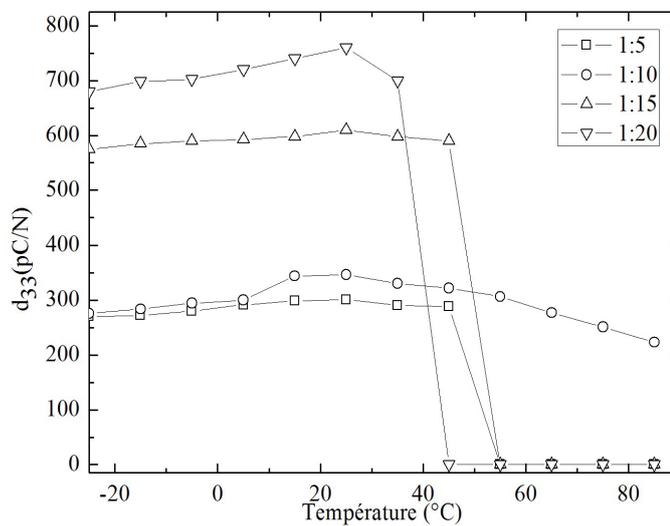


FIGURE 4.18: Variations du coefficient piézoélectrique d_{33} des piézo-électrets à base de *PDMS* pour différentes proportions stœchiométriques entre le pré-polymère et l'agent réticulant.

La figure 4.18 représente les variations du coefficient piézoélectrique d_{33} en fonc-

tion de la température pour les différentes proportions.

Nous constatons que le coefficient piézoélectrique croît avec la diminution de l'agent réticulant lors de la préparation du *PDMS*. En effet, d_{33} augmente pour des échantillons préparés avec les proportions 1:5 aux échantillons préparés avec les proportions 1:20. Cela s'explique par le fait que le module de Young décroît en diminuant l'agent réticulant et les échantillons deviennent plus souples.

Toutefois, les échantillons ne possèdent pas tous la même stabilité thermique de la piézoélectricité. En effet, les échantillons préparés par les proportions 1:10 présentent la meilleure stabilité thermique sur toute la gamme de températures. Par contre, les échantillons préparés avec les proportions 1:5 perdent leur piézoélectricité à partir de 45°C qui peut s'expliquer par le durcissement des structures. Et les échantillons préparés avec les proportions 1:15 perdent leur piézoélectricité à 45°C et ceux préparés avec les proportions 1:20 à 40°C . Cela revient à favoriser la mobilité des chaînes polymériques en leur communiquant de l'énergie thermique favorisant ainsi le dépiégeage des charges électriques par dépolarisation thermo-stimulée.

Il est important d'analyser les conditions de mesures effectuées en piézoélectricité indirecte. En effet, les mesures sont réalisées avec des pré-contraintes des pointes qui sont très faibles. L'échantillon n'est soumis qu'au champ électrique et la pression électrostatique ressentie semble être assez faible pour pouvoir faire varier significativement la longueur des macro-dipôles des piézo-électrets.

4.3 Étude des propriétés piézoélectriques en mode direct

Dans cette partie, nous allons nous focaliser sur la caractérisation des échantillons qui sont préparés à partir des proportions stœchiométriques 1:10. De plus, ces structures sont chargées à 25°C parce que nous avons visé la valeur maximale du coefficient piézoélectrique longitudinal d_{33} qui a été déterminé par spectroscopie diélectrique. Nous allons détailler dans ce qui suit le formalisme théorique servant pour le test électromécanique des piézo-électrets à base du *PDMS*.

4.3.1 Formalisme théorique

Nous avons montré dans le chapitre 2 que le coefficient piézoélectrique dans le cas d'une structure avec une seule couche micro-structurée est donnée par l'équation 4.9.

$$d_{33} = \frac{2\varepsilon_b t_r (1 - s_r)^2 \sigma}{s_r (2 + \varepsilon_b t_r)^2 c_{33}} \quad (4.9)$$

Cette relation n'est valable que dans le régime de sollicitations de faible amplitude. A cause du faible coefficient de rigidité élastique des structures, les contraintes mécaniques appliquées à ce type de matériau doivent avoir une certaine limite. Car cela peut contribuer facilement à la disparition totale de la piézoélectricité. En effet, une contrainte très forte peut réduire le gap d'air dans les structures faisant ainsi toucher les parois internes des micro-cavités et neutraliser les charges implantées.

Une fois que les piézo-électrets sont soumis à une contrainte mécanique, des charges apparaissent sur les électrodes préalablement déposées sur les échantillons. L'expression de la charge par unité de surface en fonction de la contrainte T est donnée par l'équation 4.10 [Hillenbrand et Sessler, 2004, Kressmann, 2001].

$$q(T) = T \frac{\varepsilon_b \sigma}{c_{33}} \frac{2(1 - s_r)}{s_r} \frac{(t_r - \frac{T}{c_{33}}(1 + t_r))}{(2 + \varepsilon_b(t_r - \frac{T}{c_{33}}(1 + t_r)))^2} \quad (4.10)$$

La réponse quasi-statique mesurée sur les piézo-électrets ($\frac{q}{T}$) diffère de la réponse dynamique ($(\frac{\partial q}{\partial T})_{T_0}$). De plus, dans les expériences dynamiques, l'amplitude de la contrainte dynamique T_d et la contrainte statique T_0 doivent être prises en considération simultanément.

L'équation 4.9 est valide pour la piézoélectricité directe. Le développement de Taylor de l'équation 4.10 en T_0 donne l'expression de la charge $q(T)$ générée par la contrainte $T = T_s + T_d \cos(\omega t)$. L'expression de $q(T)$ est donnée par l'équation 4.11.

$$q(T_0 + T_d, t) = q(T_0) + [\frac{\partial q}{\partial T}]_{T_s} T_d \cos(\omega t) + \frac{1}{2!} [\frac{\partial^2 q}{\partial T^2}]_{T_s} T_d^2 (1 + \cos(\omega t)) + \frac{1}{3!} [\frac{\partial^3 q}{\partial T^3}]_{T_s} T_d^3 (\cos(3\omega t) + 3\cos(\omega t) + \dots) \quad (4.11)$$

La relation entre le coefficient piézoélectrique dynamique et la charge générée par le matériau piézo-électret est donnée par l'équation 4.12.

$$d_{33,dyn} = \frac{q}{T} \left(1 + \frac{T}{c_{33}} \frac{(1 + t_r)}{(t_r - \frac{T}{c_{33}}(1 + t_r))} \frac{\varepsilon_b (t_r - \frac{T}{c_{33}}(1 + t_r)) - 2}{2 + \varepsilon_b (t_r - \frac{T}{c_{33}}(1 + t_r))} \right) \quad (4.12)$$

Dans une première approximation, nous pouvons limiter notre étude au premier terme et l'équation 4.12 qui s'écrit dans ce cas sous la forme 4.13.

$$d_{33,dyn} = \frac{q}{T} \quad (4.13)$$

4.3.2 Montage expérimental

Les échantillons utilisés dans ces mesures font une surface de $2 \times 2\text{cm}^2$ et une épaisseur de $150\mu\text{m}$. Les échantillons sont placés sur une électrode en cuivre, l'ensemble est placé dans une cage en aluminium pour éviter les interférences avec les signaux extérieurs. Pour appliquer la contrainte mécanique aux échantillons, des masses en cuivre sont reportées sur les matériaux servant aussi comme électrode supérieure (figure 4.19) [Hillenbrand et Sessler, 2004, Kressmann, 2001].

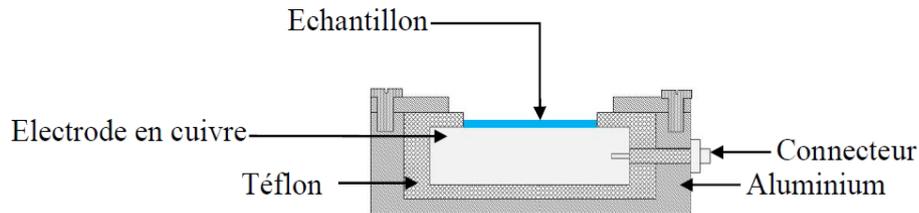


FIGURE 4.19: Présentation schématique de la structure de mesure.

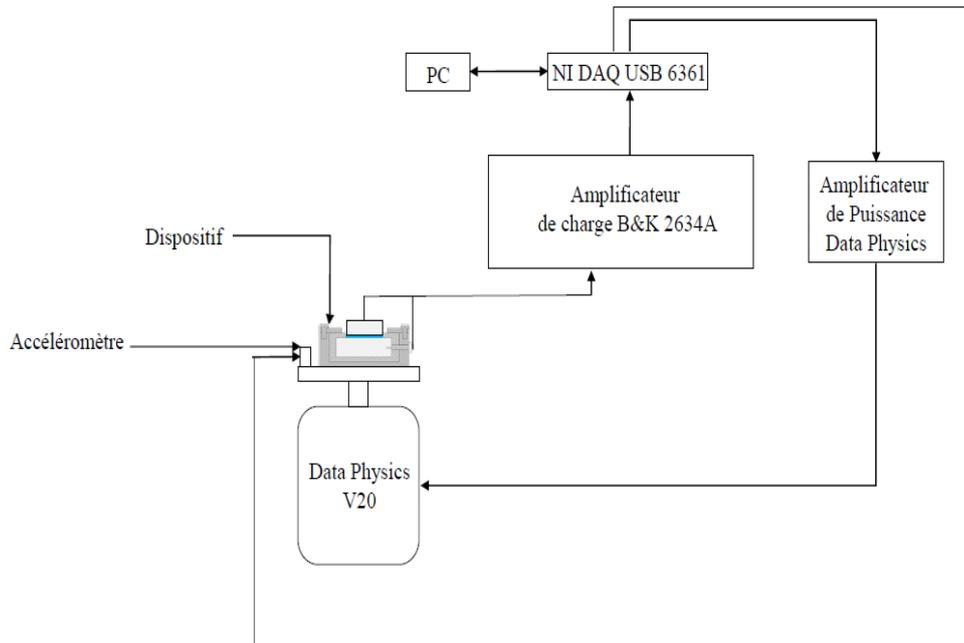


FIGURE 4.20: Montage du test électromécanique.

L'ensemble est placé sur un pot vibrant *Data Physics*, V20. Ce dernier permet de faire vibrer d'une façon sinusoïdale tout le système et générer la contrainte

dynamique. Les deux électrodes sont connectées à un amplificateur de charge *B & K*, 2634 pour évaluer la quantité de charge générée. L'accélération du système est asservie par un accéléromètre *Piezotronics*, 355B04. Toute l'expérience est pilotée par un ordinateur. La figure 4.20 montre l'ensemble du montage utilisé.

4.3.3 Résultats et discussions

4.3.3.1 Réponse quasi-statique du matériau

La réponse quasi-statique du matériau est mesurée en appliquant manuellement une masse et en la retirant de la surface supérieure de l'échantillon. La charge induite est mesurée par la variation visualisée sur l'oscilloscope connecté à l'amplificateur de charge. Dans tous les cas, nous avons fait une moyenne sur plusieurs mesures. Les masses utilisées varient entre $9.4g$ et $392g$ et les surfaces sollicitées varient entre $1cm^2$ et $4cm^2$ pour faire varier les valeurs des contraintes.

La figure 4.21 représente le coefficient piézoélectrique quasi-statique $d_{33,s}$ en fonction de la contrainte quasi-statique T_s appliquée à l'échantillon. Nous constatons, qu'à partir de $3kPa$, le coefficient piézoélectrique augmente considérablement pour atteindre des valeurs de $300pC/N$ qui sont comparables aux valeurs trouvées en mode indirect par la spectroscopie diélectrique. Les surfaces sollicitées figurent sur la figure 4.21.

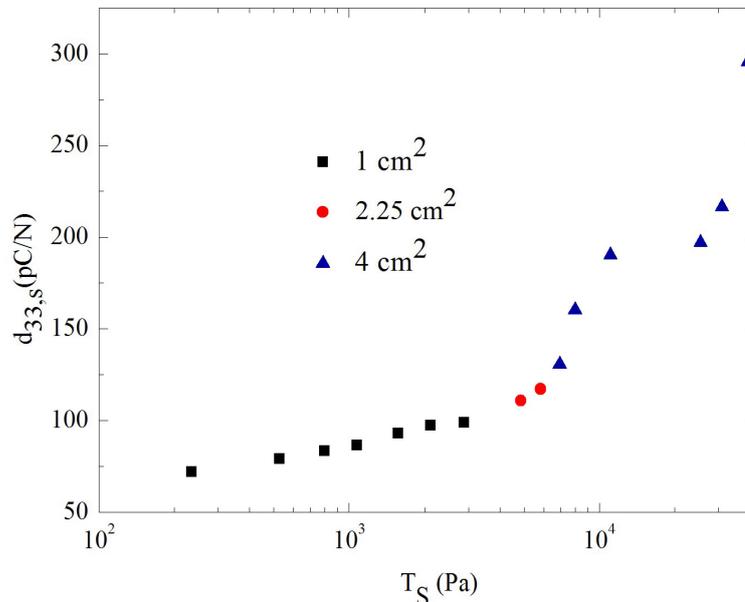


FIGURE 4.21: Coefficient piézoélectrique quasi-statique $d_{33,s}$ en appliquant des masses sur les échantillons, la surface totale des échantillons fait $2 \times 2cm^2$.

Nous pouvons conclure que la réponse piézoélectrique dépend de la compressibilité du piézo-électret. Cela veut dire que plus nous comprimons le matériau, plus nous varions la longueur des macro-dipôles dans le piézo-électret et plus nous générons des charges électriques en sortie.

4.3.3.2 Réponse dynamique du matériau

Avant d'aborder les tests électromécaniques en fonction de la fréquence, des piézo-électrets à base de *PDMS*, nous avons étudiés les variations de la partie réelle et imaginaire du module de Young du *PDMS* massif et micro-structuré pour étudier l'effet des micro-cavités sur les propriétés mécaniques. Nous avons utilisé un analyseur mécanique *DMA Q800* disponible à la plateforme de polymère à *Polytech* de Grenoble. Le pilotage peut être fait soit en fixant la force appliquée et en mesurant la déformation, soit en travaillant à déformation imposée et en mesurant la force. Dans notre cas, des essais en élongation-compression ont été choisis car les matériaux sont plutôt exploités en mode épaisseur. L'échantillon testé est posé entre deux mors, un mobile, l'autre fixe car il est relié au capteur de force. L'étude est réalisée sur une gamme de fréquences allant de $1Hz$ à $200Hz$ et pour une gamme de températures entre $25^{\circ}C$ et $125^{\circ}C$ sur des échantillons circulaires ayant des diamètres de $12mm$ pour respecter les dimensions imposés par les conditions de mesures.

L'échantillon est précontraint avec une contrainte statique de $T_s = 1.15kPa$ pour garder le contact entre l'échantillon et les mors et il est excité par une contrainte dynamique constante de $T_d = 513.27Pa$ pour différentes fréquences. Nous pouvons constater que dans les deux cas, pour le *PDMS* massif ou micro-structuré, que les grandeurs mécaniques varient fortement avec la fréquence. Nous pouvons remarquer que l'introduction des micro-cavités dans le *PDMS* permet de réduire la partie réelle du module de Young de 83% (de $872kPa$ à $147kPa$) et la partie imaginaire de 72% (de $237kPa$ à $103kPa$). Cette réduction constitue un avantage pour assurer la souplesse souhaitée pour le matériau piézo-électret final. Néanmoins, nous remarquons qu'à partir de $100Hz$, que la partie imaginaire du module de Young c''_{33} devient sensiblement égale à la partie réelle du module de Young c'_{33} . Cela donne un angle de pertes mécanique $\tan \delta_m = \frac{c''_{33}}{c'_{33}}$ presque égale à l'unité pour une température θ donnée.

C'est pour cette raison que l'énergie mécanique qui sera communiquée au système sera intégralement dissipée. De plus, nous remarquons que les parties réelle et imaginaire du module de Young diminuent avec la température. En se basant sur ces constatations, les tests électromécaniques réalisés sont restreints à $100Hz$.

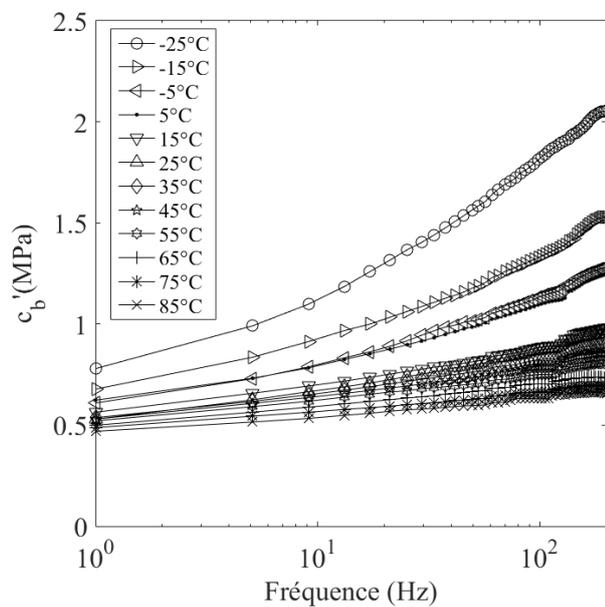


FIGURE 4.22: Variations de la partie réelle du module de Young du *PDMS* massif en fonction de la fréquence et de la température.

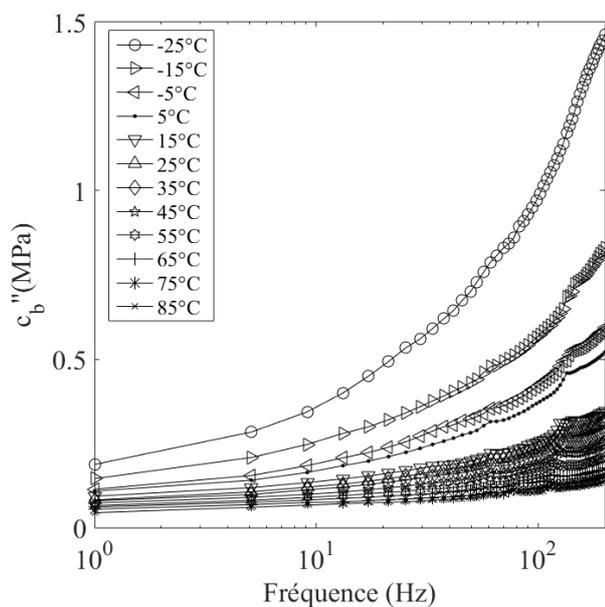


FIGURE 4.23: Variations de la partie imaginaire du module de Young du *PDMS* massif en fonction de la fréquence et de la température.

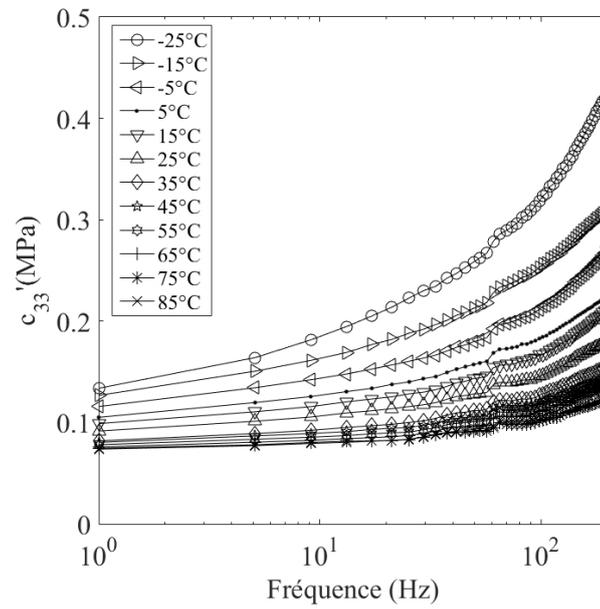


FIGURE 4.24: Les variations de la partie réelle du module de Young du *PDMS* micro-structuré en fonction de la fréquence et de la température.

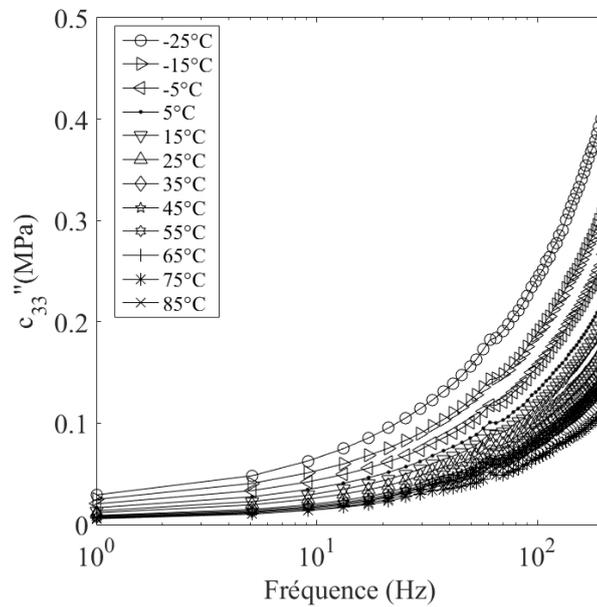


FIGURE 4.25: Les variations de la partie imaginaire du module de Young du *PDMS* micro-structuré en fonction de la fréquence et de la température.

Nous avons étudié l'effet de la contrainte dynamique qui est exprimée par l'équa-

tion 4.14 sur la gamme de fréquences allant de $10Hz$ à $100Hz$.

$$T_d = \frac{ma}{A} \quad (4.14)$$

a est l'accélération du pot vibrant qui varie de $0.2g$ à $0.45g$ par pas de $0.05g$ (g est l'accélération terrestre), m est la masse posée sur l'échantillon et A est la surface sollicitée.

Cette étude est réalisée sur une surface sollicitée de $4cm^2$ et avec une contrainte statique $T_s = \frac{mg}{A} = 318Pa$ avec une masse $m = 13g$.

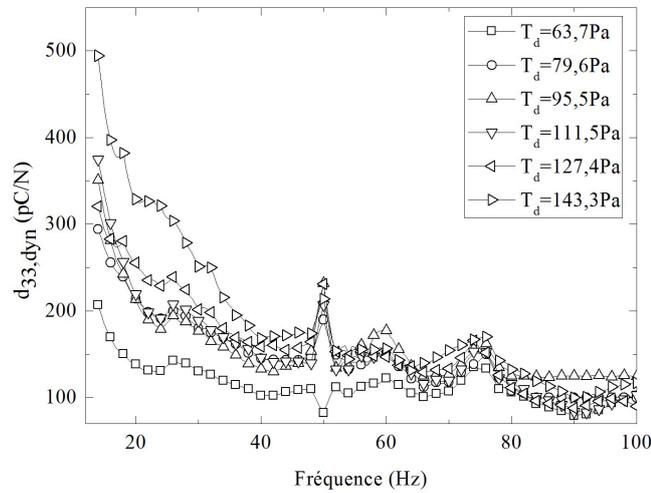


FIGURE 4.26: Coefficient piézoélectrique dynamique $d_{33,dyn}$ en fonction de la fréquence.

Nous constatons que le coefficient piézoélectrique dynamique $d_{33,dyn}$ augmente avec la contrainte dynamique. Des valeurs très importantes du coefficient piézoélectrique sont notées vers les basses fréquences autour de $20Hz$, par exemple, une valeur de $382pC/N$ est mesurée à $20Hz$ pour une pression dynamique $T_d = 143.3Pa$.

Les valeurs diminuent légèrement pour se stabiliser dans les fréquences les plus hautes. Une valeur de $200pC/N$ à $60Hz$ est relevée dans le cas d'une contrainte dynamique $T_d = 143.3Pa$ appliquée à l'échantillon.

Nous constatons que ces valeurs sont inférieures à celles obtenues avec la spectroscopie diélectrique. Cela est dû à la nature des expériences elles mêmes, en effet, dans les tests électromécaniques, les échantillons sont précontraints avec la contrainte statique alors que dans la spectroscopie diélectrique, les échantillons sont libres de vibrer. Nous pouvons constater d'après les figures 4.24 et 4.25 que pour une fréquence allant de $1Hz$ à $10Hz$ pour une température θ donnée, c'_{33} prend une valeur

constante et c_{33}'' est très faible. Dans cette gamme de fréquences, $d_{33,dyn}$ prend des valeurs élevées et varie fortement. Au delà de $10Hz$, c_{33}'' s'approche de c_{33} alors $d_{33,dyn}$ diminue significativement. En effet, les propriétés piézoélectriques des piézo-électrets dépendent d'une façon directe de leurs propriétés mécaniques.

4.3.3.3 Réponse dynamique du matériau en fonction de la contrainte statique

Nous nous proposons d'étudier les variations du coefficient piézoélectrique dynamique $d_{33,dyn}$ tout en tenant compte de sa dépendance de la contrainte statique. En effet, nous avons fait varier la contrainte statique tout en gardant la même contrainte dynamique qui est égale à $T_d = 143.3Pa$.

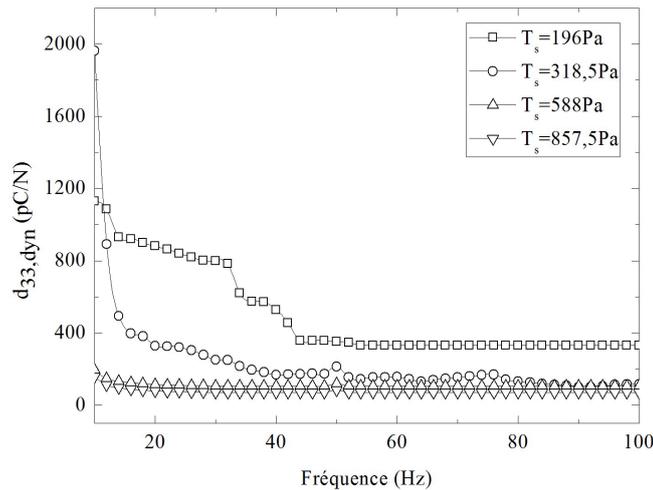


FIGURE 4.27: Coefficient piézoélectrique dynamique $d_{33,dyn}$ en fonction de la fréquence en dépendance de la contrainte statique.

D'après la figure 4.27, nous pouvons constater que pour la même contrainte dynamique, le coefficient piézoélectrique $d_{33,dyn}$ diminue en augmentant la contrainte statique. Par exemple, nous partons d'une valeur du coefficient piézoélectrique de $335pC/N$ pour une contrainte statique de $196Pa$ pour atteindre une valeur de $57pC/N$ pour une contrainte statique de $857.5Pa$. Cela revient essentiellement au fait de la grande déformation du matériau en lui imposant une contrainte statique importante, ce qui réduit le volume des micro-cavités. Cette réduction réduit la longueur du dipôle et contrarie sa variation induisant la réduction de la réponse piézoélectrique.

4.3.3.4 Stabilité thermique de la piézoélectricité

L'une des caractéristiques critiques qui détermine le champ des applications des matériaux piézo-électrets est la stabilité thermique. Nous avons choisi de faire subir des échantillons avec un coefficient piézoélectrique dynamique $d_{33,dyn}$ initial de 200pC/N à 60Hz des recuits. Les échantillons ont été chauffés à des températures prédéterminées plus hautes que la température ambiante pour une heure pour chaque température. Ensuite, le coefficient $d_{33,dyn}$ est déterminé lorsque les échantillons sont refroidis à la température ambiante par une contrainte dynamique $T_d = 143.3\text{Pa}$ avec le montage représenté dans la figure 4.20 à la fréquence 60Hz .

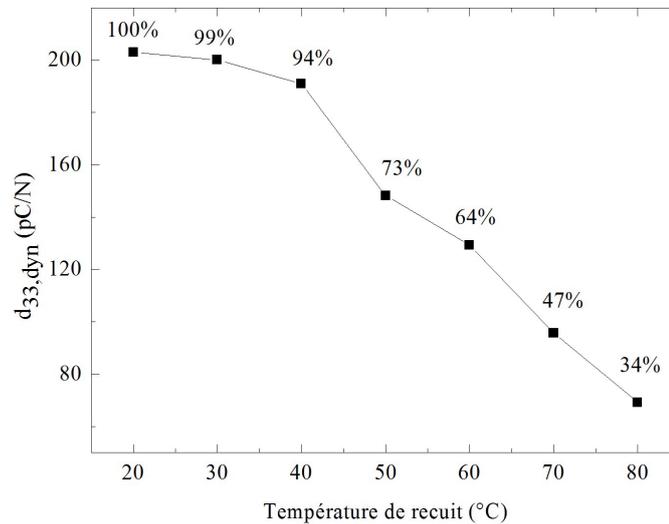


FIGURE 4.28: Stabilité thermique du coefficient piézoélectrique dynamique $d_{33,dyn}$ pour des échantillons subissant des recuits d'une heure pour chaque température.

Sur la figure 4.28, nous constatons une légère décroissance de $d_{33,dyn}$ quand les échantillons sont recuits à 30°C et 40°C . Puis, le coefficient piézoélectrique décroît considérablement de 70% et de 40% entre 60°C et 80°C . En effet, le fait de faire subir des recuits aux échantillons à des températures plus hautes que la température de transition vitreuse T_g du *PDMS* favorise la mobilité des chaînes polymériques favorisant ainsi le dépiégeage des charges par le phénomène de dépolarisation thermo-stimulé. De plus, les échantillons peuvent se déformer à hautes températures réduisant ainsi le volume des micro-cavités et par conséquent les macro-dipôles générés.

4.3.3.5 Effet des multi-couches sur les propriétés piézoélectriques

Nous nous sommes proposés d'étudier l'effet des multi-couches sur les propriétés piézoélectriques. Nous avons changé le nombre des couches micro-structurées à chaque fois tout en gardant les mêmes épaisseurs des couches massives ($55\mu m$) et micro-structurées ($40\mu m$) avec les mêmes diamètres des micro-cavités ($100\mu m$) et le même pas ($150\mu m$). Les structures sont basées sur l'alternance des couches massives et micro-structurées. Les empilements sont repérés par le nombre des couches micro-structurées dans chaque structure. Les matériaux finaux sont chargés électriquement tout en tenant compte des conditions discutées dans le chapitre 2. La figure 4.29 représente le coefficient piézoélectrique dynamique étudié grâce au montage de la figure 4.20 en fonction du nombre de couches micro-structurées. Les échantillons subissent une contrainte statique $T_s = 318Pa$ et une contrainte dynamique $T_d = 143.3Pa$.

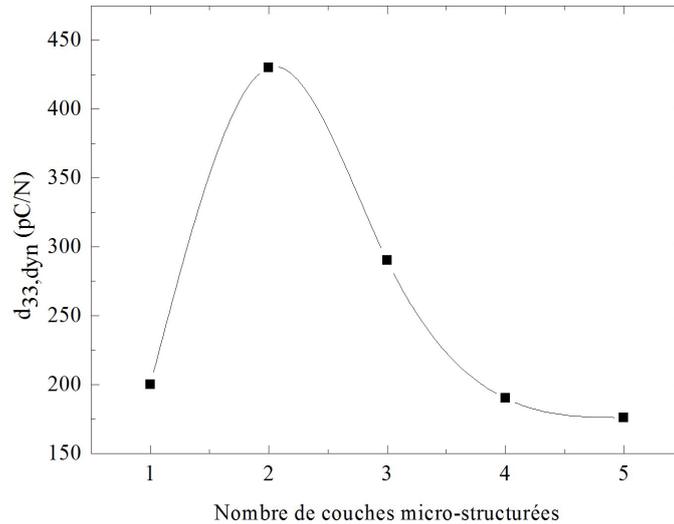


FIGURE 4.29: Variation du coefficient piézoélectrique dynamique $d_{33,dyn}$ en fonction du nombre de couches micro-structurées à $25^\circ C$.

Toutes les mesures sont réalisées à $60Hz$. Nous constatons d'après la figure 4.29 que la valeur maximale du coefficient piézoélectrique de $430pC/N$ est atteinte pour des empilements avec deux couches micro-structurées. Par la suite, le coefficient piézoélectrique décroît en augmentant le nombre de couches micro-structurées. En effet, cela revient à l'augmentation du module de Young, c'est à dire qu'avec des empilements contenant deux couches micro-structurées, les matériaux sont plus déformables suite à l'effet des couches contenant des micro-cavités. Par contre, pour les autres empilements, c'est les couches massives qui l'emportent, les structures deviennent plus rigides et ne sont pas susceptibles d'être assez déformables pour récupérer assez de charges en réponse piézoélectrique.

Il est important de noter que dans le mode direct, les conditions de mesures de la réponse piézoélectrique changent. En effet, une pré-contrainte assez élevée est préalablement appliquée aux piézo-électrets qui déforme considérablement l'échantillon comparée aux conditions de mesures en piézoélectricité indirecte. De plus, la déformation dynamique subie par l'échantillon est plus importante que celle ressentie par la pression électrostatique en mode indirect. Cela peut expliquer l'augmentation de la réponse piézoélectrique aux basses fréquences.

4.4 Conclusion

Nous avons étudié dans ce chapitre les propriétés piézoélectriques des matériaux piézo-électrets en *PDMS*. Les matériaux piézo-électrets avec une seule couche micro-structurée présentent **un coefficient piézoélectrique longitudinal d_{33} de 350pC/N en mode indirect**. Ces structures maintiennent **leur piézoélectricité sur une large gamme de température allant de -25°C à 85°C** . Des améliorations ont été constatées sur **la stabilité du coefficient piézoélectrique en chargeant les structures à des températures plus hautes** que la température ambiante. Des effets importants ont été aussi observés sur le phénomène de réticulation, la réduction des proportions de l'agent réticulant lors de la préparation des matrices de polymère augmente le coefficient piézoélectrique. Néanmoins, ces structures présentent **une stabilité thermique réduite** de la piézoélectricité par rapport aux matériaux préparés avec les proportions 1:10 entre le pré-polymère et l'agent réticulant.

Lors du test électromécanique, les structures présentent un coefficient piézoélectrique plus faible que celui obtenu par la spectroscopie diélectrique, vu que dans les tests électromécaniques, les matériaux subissent une pré-contrainte qui les déforment d'avantage. Une dépendance aux contraintes statiques et dynamiques appliquées de la réponse piézoélectrique est observée. **Nous avons montré que des empilements avec deux couches micro-structurées présentent le coefficient piézoélectrique le plus important qui est de 430pC/N .**

Intégration du piézo-électret dans un capteur

Sommaire

5.1	Introduction et motivations	126
5.2	Structure de poutres séparées par un gap d'air	129
5.3	Equilibre des forces et des moments de flexion	130
5.4	Modes de flexion	131
5.5	Décomposition des forces et des moments de flexion	132
5.5.1	Equations pour la flexion rotationnelle	132
5.5.2	Equations pour la flexion translationnelle	135
5.5.3	Expressions de la constante de raideur du système	136
5.5.4	Fréquence de résonance et déformation pour la membrane piézoélectrique	137
5.6	Conception d'un prototype	138
5.7	Caractérisations électromécaniques du prototype	140
5.8	Conclusion	142

Ce chapitre est consacré au développement d'une application de capteur de vibrations mécaniques qui existent dans notre vie quotidienne. Tout d'abord, nous allons présenter les motivations qui nous ont amenées à choisir ce type de dispositif tout en nous comparant aux vibrations mécaniques existant dans l'environnement. Par la suite, nous allons présenter une étude analytique du prototype capteur et récupérateur d'énergie. Le prototype intègre nos matériaux piézo-électrets à base de *PDMS* optimisés en réponse piézoélectrique suite aux études faites dans les chapitres précédents, pour finir avec un test du dispositif.

5.1 Introduction et motivations

Un grand nombre de dispositifs de capteurs et de récupérateurs d'énergie existant dans la littérature sont basés sur les vibrations mécaniques. Parmi les principes de trasduction est piézoélectricité qui s'avère être le meilleur candidat notamment pour les dispositifs microscopiques [Marzencki *et al.*, 2009, Defosseux, 2011, Colin *et al.*, 2013]. Cela revient surtout à la simplicité de ces systèmes et à l'importance de l'énergie offerte par les sources de vibrations mécaniques qui sont résumées dans le tableau 5.1 avec leurs fréquences correspondantes.

<i>Source de vibration</i>	<i>Fréquence (Hz)</i>
<i>Compartiment du moteur d'un véhicule</i>	200
<i>Base d'une machine à trois axes</i>	70
<i>Boîtier d'un blender</i>	121
<i>Sèche-linge</i>	121
<i>Tableau de bord d'une voiture</i>	13
<i>Fenêtres à côté d'une route très fréquentée</i>	100
<i>Personne tapotant nerveusement leur talon</i>	1
<i>Four à micro-ondes</i>	121
<i>CD dans un ordinateur portable</i>	75
<i>Cadre de la porte juste après fermeture</i>	125

TABLE 5.1: Quelques sources de modes de vibrations mécaniques avec leurs fréquences correspondantes [Roundy *et al.*, 2003, Ikeda *et al.*, 1998, Roundy, 2005].

Dans ce contexte, nous avons choisi de développer une application de capteur et de récupération d'énergie à partir des vibrations dont les fréquences sont en général comprises entre $5Hz$ et $200Hz$. Toutefois, dans la plupart des cas, la performance de ces micro-générateurs dépendent essentiellement de la fréquence des vibrations qui doit coïncider obligatoirement avec la fréquence de résonance du capteur et du système récupérateur d'énergie. Ces systèmes avec une largeur de bande fréquentielle relativement étroite ne sont efficaces au niveau de la production de la puissance efficace qu'autour de leurs fréquences de résonance. Cela les rends inadaptés à des fréquences d'excitations assez variables et limitent leur fonctionnement.

Ainsi, le défi est de concevoir un capteur et un récupérateur d'énergie de vibrations mécaniques qui sera efficace sur une large bande de fréquence pour s'adapter

à toutes les vibrations existant dans l'environnement. Notre objectif est de se fixer un cahier des charges avec un dispositif qui répond à ces besoins. Notre choix a été fait sur les structures en poutre qui ont été largement utilisés dans de nombreuses applications dans les micro-systèmes électro-mécaniques (MEMS) grâce à leur simplicité et la maîtrise des modèles théoriques qui les gouvernent.

Les MEMS est une technologie qui peut être en général définie comme des dispositifs électromécaniques miniaturisés issus d'une micro-fabrication. Les dimensions des dispositifs MEMS varient d'un micron à quelques millimètres.

Durant ces dernières années, grâce au progrès et la croissance progressive des applications impliquant les MEMS, beaucoup de chercheurs se sont focalisés sur le développement des micro-capteurs, micro-actionneurs et micro-systèmes. C'est pour cette raison que nous trouvons un grand nombre de MEMS intégrant les poutres ont été développés et jouent un rôle important dans le domaine civile, militaire et médical.

L'idée de base de ces structures est de convertir un stimulus d'entrée (température, pression,...etc) en flexion de la poutre et de détecter le niveau de la flexion en fonction du signal d'entrée. Des détections en utilisant des éléments piézorésistives, piézoélectriques et optiques constituent les choix les plus répandus pour la détection de la flexion des poutres. Néanmoins, en comparant avec la méthode optique, les approches utilisant des éléments piézorésistifs et piézoélectriques restent les plus prometteuses et cela est dû à plusieurs avantages. En effet, ils sont des éléments à faible coût, facilement micro-fabriqués, peuvent servir aussi comme des récupérateurs d'énergie dans le même dispositif et les circuits mis en place pour la récupération du signal de sortie sont aussi simple à faire [Amarasinghe *et al.*, 2007, Bao, 2000, Barlian *et al.*, 2007, Barlian *et al.*, 2009, Beaty *et al.*, 1992, Marzencki *et al.*, 2009, Defosseux, 2011, Colin *et al.*, 2013].

Toutefois, ces éléments sont limités car ils possèdent une faible sensibilité aux faibles déformations ce qui constitue un inconvénient majeur de ces capteurs et récupérateurs d'énergie et limitent leurs applications. Il existe plusieurs approches pour surmonter ces problèmes. Les solutions les plus connues sont toujours d'ordre géométrique, en effet, la sensibilité peut être augmentée en se fixant les dimensions de la poutre et la masse sismique. De plus la performance du capteur ou du récupérateur d'énergie peut être améliorée en optimisant aussi les éléments piézoélectriques intégrés dans les poutres.

Une autre alternative est d'améliorer la performance en utilisant des nouvelles configurations des poutres [Zheng *et al.*, 2008, Zheng et Xu, 2008]. Dans ce cha-

pitre, nous proposons une nouvelle configuration qui est la poutre avec un gap d'air qui implique un matériau piézo-électret du type PDMS constituées de deux couches micro-structurées et trois couches massives alternées.

La réponse piézoélectrique de ces derniers a été optimisée grâce aux travaux effectués dans les chapitres précédents. La nouvelle configuration des poutres proposée est sensée accroître considérablement la sensibilité au signal de sortie. En effet, cette configuration asymétrique qui consiste à une poutre de base placée en bas du dispositif séparée avec un gap d'air d'une poutre piézoélectrique en haut comme il est indiqué sur la figure E1.

L'idée de base de cette configuration asymétrique est que la déformation subie par l'élément piézoélectrique soit proportionnelle à la distance séparant la poutre piézoélectrique du plan neutre. Pour la configuration conventionnelle des poutres, cette distance est approximativement la moitié de l'épaisseur des poutres comme il est indiqué sur la figure 5.1.

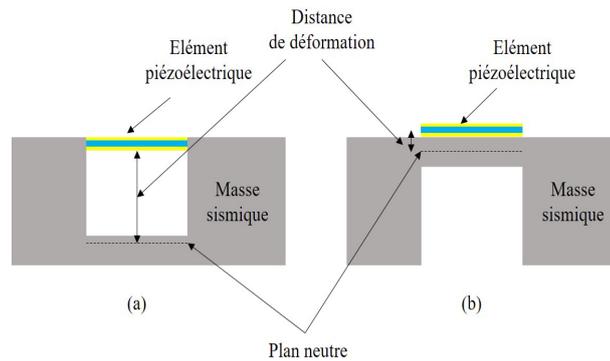


FIGURE 5.1: Illustration comparative entre une poutre à gap d'air (a) et une poutre conventionnelle(b).

Par contre, pour la configuration asymétrique, la distance est pratiquement égale au gap d'air, alors, la déformation est plus importante. Il faut noter que ce nouveau dispositif permet de transférer toute l'énergie de flexion à l'élément piézo-électrique pour fournir un signal plus important en sortie. Mais, pour la configuration conventionnelle, une grande partie de l'énergie est perdue pour déformer la poutre non-active car l'élément piézoélectrique possède une épaisseur très faible comparée à l'épaisseur totale de la poutre. Alors, d'un point de vue énergétique, les poutres asymétriques semblent être plus efficaces et peuvent avoir un rendement plus important dans le cas des capteurs et des récupérateurs d'énergie. Dans notre étude, nous allons commencer par un prototype assez grand qui peut faire l'objet d'une

étude de miniaturisation dans des projets futurs. Des rappels des concepts de base sur la théorie des poutres est détaillé dans l'Annexe E qui peut nous servir pour développer le modèle analytique relatif à notre dispositif asymétrique et sa fréquence de résonance.

5.2 Structure de poutres séparées par un gap d'air

La figure 5.2 présente la forme générale d'une poutre asymétrique. Cette structure inclut une base, une masse sismique, une poutre mécanique par dessous et une poutre formée d'un élément piézoélectrique sensible par dessus. Les deux poutres sont séparées par un gap d'air et cette structure est appelée poutre avec gap d'air.

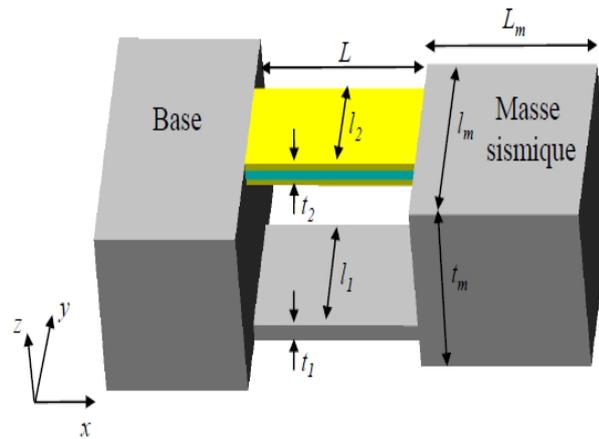


FIGURE 5.2: Structure de la poutre asymétrique avec un gap d'air.

Les symboles pour les dimensions de la structure figurent sur le tableau 5.2.

	Longueur (x)	Largeur (y)	Épaisseur (z)
Poutre métallique	L	l_1	t_1
Poutre piézoélectrique	L	l_2	t_2
Masse sismique	L_m	l_m	t_m

TABLE 5.2: Symboles des dimensions géométriques des éléments constituant la poutre avec un gap d'air.

Il est important aussi de noter que :

- La déformation de la masse sismique est négligée.

- Les masses des poutres sont négligées.
- Les déflexions sont supposées petites.

5.3 Equilibre des forces et des moments de flexion

Quand une force est appliquée à la masse sismique dans la direction des z , les poutres subissent des déformations résultant du déplacement et de la rotation de la masse sismique. Si nous considérons une coupe imaginaire entre les poutres et la masse sismique, des forces et des moments de flexion sont appliquées au niveau des parties séparatrices comme il est indiqué sur la figure 5.3.

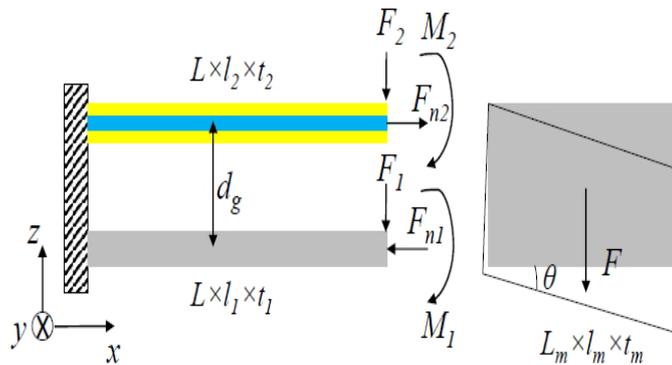


FIGURE 5.3: Bilan des forces et des moments appliquées à une poutre avec un gap d'air lors de la flexion.

En se basant sur l'équilibre des forces et des moments de flexion, nous pouvons écrire respectivement les équations 5.1, 5.2 et 5.3.

- Equilibre des forces dans la direction des x

$$F_{n1} - F_{n2} = 0 \quad (5.1)$$

- Equilibre des forces dans la direction des z

$$F_1 - F_2 - F = 0 \quad (5.2)$$

- Equilibre des moments de flexion dans la direction des y

$$M_1 + M_2 + F_{n1} \frac{d_g}{2} - F \frac{l_m}{2} = 0 \quad (5.3)$$

F_{n1} , F_{n2} , F_1 , F_2 , M_1 et M_2 sont les forces normales et de cisaillement et les moments de flexion de la poutre mécanique et piézoélectrique respectivement. F est la force totale appliquée à la masse sismique et d_g est la distance entre les deux plan médians des deux poutres. Si nous considérons que la masse sismique est suffisamment rigide, les deux conditions exprimées par les équations 5.4 et 5.5 doivent être satisfaites à l'extrémité libre des deux poutres.

$$\theta_1 = \theta_2 \quad (5.4)$$

$$w_1 = w_2 \quad (5.5)$$

θ_1 , θ_2 , w_1 et w_2 sont les angles de flexion et le déplacement dans la direction des z de la poutre mécanique et la poutre piézoélectrique à l'extrémité libre respectivement.

5.4 Modes de flexion

Pour les poutres conventionnelles, nous considérons toujours que la section transversale de la poutre reste plane après la flexion relativement aux hypothèses déduites par des travaux antérieurs [Hearn, 1997]. Les déformations subies par les poutres peuvent être déterminées par les théories classiques connues. Néanmoins, pour les poutres avec un gap d'air, les hypothèses ne sont plus valides. Dans la pratique, nous observons deux types de déformations de cette configuration. Le premier type de déformation est celui de la flexion par rotation de la poutre composite avec un gap d'air comme il est illustré dans la figure 5.4 (a). Le deuxième est celui de la flexion translationnelle qui est schématisé par la figure 5.4 (b). En effet, la flexion subie par cette configuration est la somme linéaire de ces deux modes de flexion. Le mode de flexion de la poutre dépend principalement des paramètres géométriques [Zheng *et al.*, 2008, Zheng et Xu, 2008].

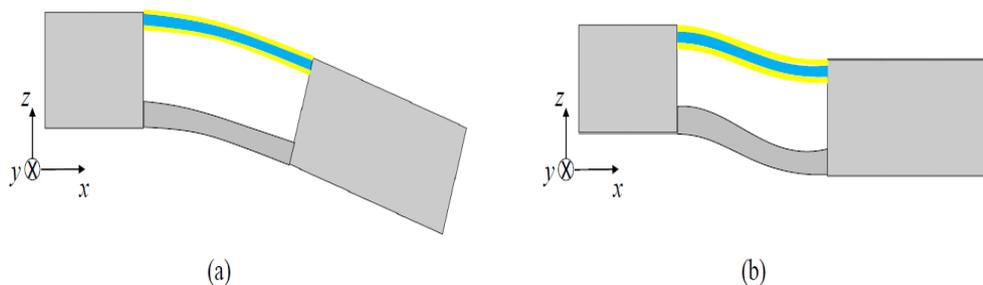


FIGURE 5.4: Illustration des deux modes de flexion de la poutre avec gap d'air : flexion rotationnelle (a) et flexion translationnelle (b).

5.5 Décomposition des forces et des moments de flexion

Le système peut être considéré dans une première approximation linéaire. Les forces et les moments de flexion peuvent être décomposés en deux catégories qui correspondent aux deux modes de flexion qui sont déjà vus dans le paragraphe précédent. Pour la flexion rotationnelle, il faut noter le moment de flexion le long des poutres avec des forces normales appliquées à chacune des deux poutres composant le système comme il est indiqué sur la figure 5.5 (a). D'autre part, pour la flexion translationnelle, chaque poutre fait l'objet d'une force de cisaillement et un moment de flexion comme il est schématisé sur la figure 5.5 (b). Nous utilisons dans tout ce qui suit l'indice T pour les paramètres correspondants à la flexion translationnelle et R pour les paramètres relatifs à la flexion rotationnelle.

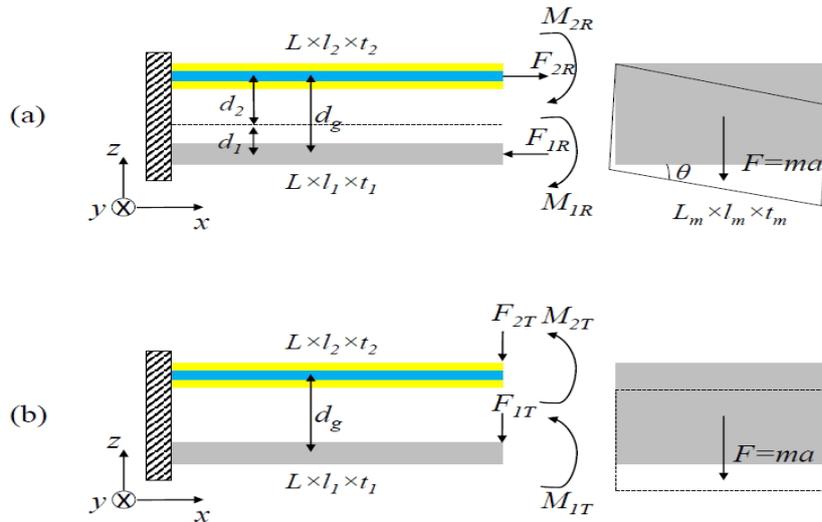


FIGURE 5.5: Forces et moments pour la flexion rotationnelle (a) et translationnelle (b).

5.5.1 Equations pour la flexion rotationnelle

Pour la flexion rotationnelle, l'angle de flexion de la masse sismique est égale à la pente à l'extrémité libre des deux poutres constituant le système qui sont exprimées par les deux équations 5.6 et 5.7.

$$\theta = \frac{M_{1R}L}{E_1 I_1} \quad (5.6)$$

$$\theta = \frac{M_{2R}L}{E_2I_2} \quad (5.7)$$

I_1 et I_2 sont les moments d'inertie de la poutre métallique de dessous et la membrane piézoélectrique respectivement. Les déplacements dans la direction x de la poutre métallique et piézoélectrique peuvent être exprimés par les équations 5.8 et 5.9.

$$v_1 = \frac{F_{1R}L}{E_1A_1} \quad (5.8)$$

$$v_2 = \frac{F_{2R}L}{E_2A_2} \quad (5.9)$$

$A_1 = l_1t_1$ et $A_2 = l_2t_2$ sont les sections des deux poutres métallique et piézoélectrique respectivement.

Puisque le plan neutre n'a aucun déplacement dans la direction x dans le cas de la flexion rotationnelle, l'angle de flexion peut être calculé pour les deux poutres sous la condition des petits déplacements par les équations 5.10 et 5.11.

$$\theta = \frac{v_1}{d_1} = \frac{F_{1R}L}{E_1A_1d_1} \quad (5.10)$$

$$\theta = \frac{v_2}{d_2} = \frac{F_{2R}L}{E_2A_2d_2} \quad (5.11)$$

Le moment de flexion total appliqué à tout le système de la poutre avec un gap d'air s'écrit alors selon l'équation 5.12.

$$M_R = M_{1R} + M_{2R} + F_{1R}d_1 + F_{2R}d_2 \quad (5.12)$$

En substituant F_{1R} , F_{2R} , M_{1R} et M_{2R} des équations 5.6, 5.7, 5.10 et 5.11 dans l'équation 5.12, l'angle de flexion peut être calculé et exprimé par l'équation 5.13.

$$\theta = \frac{M_R L}{E_1I_1 + E_2I_2 + E_1A_1d_1^2 + E_2A_2d_2^2} \quad (5.13)$$

Nous pouvons définir la rigidité pour la flexion rotationnelle R_R par l'équation 5.14.

$$R_R = E_1I_1 + E_2I_2 + E_1A_1d_1^2 + E_2A_2d_2^2 \quad (5.14)$$

L'angle de flexion peut être simplifié et écrit sous la forme de l'équation 5.15.

$$\theta = \frac{M_R L}{R_R} \quad (5.15)$$

En utilisant la rigidité équivalente par flexion, nous pouvons déterminer le déplacement dans la direction z de la masse sismique (au centre) pour la flexion rotationnelle par l'équation 5.16.

$$w_R = w_{R0} + \theta \frac{L_m}{2} = \frac{M_R L^2}{2R_R} + \frac{M_R L L_m}{R_R \cdot 2} = \frac{M_R L(L + L_m)}{2R_R} \quad (5.16)$$

w_{R0} est le déplacement des poutres à l'extrémité libre.

Il est important de noter que le moment total de flexion est exprimé par l'équation 5.17.

$$M = M_R + M_T = \frac{FL_m}{2} \quad (5.17)$$

De plus, le moment de flexion translationnelle peut être écrit en se basant sur la force de cisaillement pour ce mode et il est exprimé par l'équation 5.18.

$$M_T = -\frac{FL}{2} \quad (5.18)$$

Le moment pour la flexion rotationnelle s'écrit dans ce cas sous la forme de l'équation 5.19.

$$M_R = M - M_T = \frac{F(L + L_m)}{2} \quad (5.19)$$

En substituant les équations 5.19 dans l'équation 5.16, le déplacement selon z de la masse sismique s'exprime par l'équation 5.20.

$$w_R = \frac{FL(L + L_m)^2}{4R_R} \quad (5.20)$$

Et la constante de raideur pour la flexion rotationnelle s'exprime alors sous la forme de l'équation 5.21.

$$k_R = \frac{F}{w_R} = \frac{4R_R}{L(L + L_m)^2} \quad (5.21)$$

Si nous considérons à nouveau l'équation 5.14, nous pouvons constater que la constante de rigidité R_R pour la flexion rotationnelle est constituée par les différentes formes d'énergie composant l'énergie potentielle distribuée dans le système. Ces énergies sont déterminées par les équations 5.22, 5.23, 5.24 et 5.25.

$$E_{1-flexion} = \frac{1}{2} M_{1R} \theta \quad (5.22)$$

$$E_{2-flexion} = \frac{1}{2} M_{2R} \theta \quad (5.23)$$

$$E_{1-compression} = \frac{1}{2}F_{1R}v_1 \quad (5.24)$$

$$E_{2-étirement} = \frac{1}{2}F_{2R}v_2 \quad (5.25)$$

En substituant les équations de 5.6 à 5.11 dans les équations de 5.22 à 5.25, nous définissons le rapport pour chaque forme d'énergie par l'équation 5.26.

$$\begin{aligned} E_{1-flexion} &= E_1 I_1 \\ E_{2-flexion} &= E_2 I_2 \\ E_{1-compression} &= E_1 A_1 d_1^2 \\ E_{2-étirement} &= E_2 A_2 d_2^2 \end{aligned} \quad (5.26)$$

Nous pouvons remarquer que ce mode de flexion contribue à la déformation par pur étirement/compression, surtout que cette partie dépend d'après son expression dans l'équation 5.25 de la distance entre le plan médian de la poutre piézoélectrique et le plan neutre de la structure. Ayant une structure avec un gap d'air contribue à une sollicitation mécanique plus importante de l'élément actif produisant ainsi un signal de sortie plus important.

5.5.2 Equations pour la flexion translationnelle

Pour la flexion translationnelle, le déplacement de la masse sismique dans la direction z est égale au déplacement des deux poutres à l'extrémité libre qui peuvent être exprimés par les équations 5.27 et 5.28.

$$w_T = \frac{F_{1T}L^3}{12E_1I_1} \quad (5.27)$$

$$w_T = \frac{F_{2T}L^3}{12E_2I_2} \quad (5.28)$$

Puisque la force totale de cisaillement subi par le système s'écrit sous la forme de l'équation 5.29.

$$F = F_{1T} + F_{2T} \quad (5.29)$$

Les équations 5.27 et 5.28 peuvent être réarrangées et mises sous la forme de l'équation 5.30.

$$w_T = \frac{FL^3}{12(E_1I_1 + E_2I_2)} \quad (5.30)$$

Nous définissons la rigidité équivalente pour la flexion translationnelle par l'équation 5.31.

$$R_T = E_1 I_1 + E_2 I_2 \quad (5.31)$$

Le déplacement selon l'axe z pour la flexion translationnelle s'exprime par l'équation 5.32.

$$w_T = \frac{FL^3}{12R_T} \quad (5.32)$$

La constante de raideur pour ce mode de flexion s'écrit sous la forme de l'équation 5.33.

$$k_T = \frac{F}{w_T} = \frac{12R_T}{L^3} \quad (5.33)$$

5.5.3 Expressions de la constante de raideur du système

Pour simplifier les expressions et les discussions, nous avons choisi d'introduire deux paramètres sans dimensions qui sont donnés respectivement par les équations 5.34 et 5.35.

$$\alpha = \frac{L + L_m}{L} \quad (5.34)$$

$$\beta = \frac{R_T}{R_R} \quad (5.35)$$

Les constantes de raideur peuvent être exprimées par les équations 5.36 et 5.37 pour les flexions rotationnelle et translationnelle respectivement.

$$k_R = \frac{4R_R}{L^3 \alpha^2} \quad (5.36)$$

$$k_T = \frac{12R_T}{L^3} \quad (5.37)$$

La constante de raideur totale équivalente de tout le système s'écrit alors sous la forme de l'équation 5.38.

$$k_E = (k_R^{-1} + k_T^{-1})^{-1} = \frac{R_T}{L^3} \frac{12}{3\alpha^2\beta + 1} \quad (5.38)$$

Afin de favoriser la flexion rotationnelle pour assurer une énergie importante par un étirement/compression pur qui sera communiquée à la poutre piézoélectrique, il faut maintenir la constante de raideur issue de la flexion rotationnelle k_R plus faible

que celle pour la flexion translationnelle k_T . Mathématiquement, il faut satisfaire la condition exprimée par l'équation 5.39.

$$N(\alpha, \beta) = \frac{k_R}{k_T} = \frac{1}{3\alpha^2\beta} \ll 1 \quad (5.39)$$

Une simple stratégie pour satisfaire cette inégalité est de prendre une masse sismique avec une longueur importante par rapport à celle des poutres ($\alpha \gg 1$).

5.5.4 Fréquence de résonance et déformation pour la membrane piézoélectrique

La fréquence de résonance est donnée par l'équation 5.40.

$$f_0 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k_E}{m}} = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{12R_T}{mL^3(3\alpha^2\beta + 1)}} \quad (5.40)$$

A partir des équations 5.11, 5.15 et 5.19, la déformation normale moyenne subie par la membrane piézoélectrique est exprimée par l'équation 5.41.

$$s_2 = \frac{\Delta v_2}{L} = \frac{F(L + L_m)d_2}{2R_R} \quad (5.41)$$

Une fréquence de résonance plus précise peut être déterminée en se basant sur la méthode de Rayleigh-Ritz [Hearn, 1997]. L'énergie mécanique qui est la somme de l'énergie potentielle et cinétique est stockée dans le système de vibrations si l'amortissement est négligé. Le maximum d'énergie potentielle doit être égale au maximum d'énergie cinétique durant chaque cycle de vibration. Le maximum d'énergie potentielle est atteint lorsque la vitesse est nulle et qui peut être calculée par l'équation 5.42.

$$E_{pmax} = \frac{F^2}{2k_E} = \frac{F^2 L^3}{24R_T} (3\alpha^2\beta + 1) \quad (5.42)$$

Par contre, le maximum d'énergie cinétique (vitesse maximale) est atteint quand le déplacement est nul. Si nous considérons des vibrations sinusoïdales, la vitesse maximale et le déplacement maximal sont reliés par l'équation 5.43.

$$\dot{w}(x) = \omega w(x) \quad (5.43)$$

ω est la pulsation des vibrations et $w(x)$ est le déplacement selon la direction z à la position x .

En prenant comme origine du système le centre de gravité de la masse sismique, l'équation 5.43 peut être écrite sous la forme de l'équation 5.44.

$$\dot{w}(x) = \omega(\Delta z + \theta x), -\frac{L_m}{2} \leq x \leq \frac{L_m}{2} \quad (5.44)$$

w est le déplacement du centre de gravité de la masse sismique qui peut être calculé par l'équation 5.45 en utilisant la constante de raideur équivalente du système.

$$w = \frac{F}{k_E} \quad (5.45)$$

Le maximum d'énergie cinétique s'écrit alors sous la forme de l'équation 5.46.

$$\begin{aligned} E_{cmax} &= \int_{-L_m/2}^{L_m/2} \frac{\dot{w}(x)^2}{2} dx = \frac{\rho A_m \omega^2}{2} \int_{-L_m/2}^{L_m/2} (w + \theta x)^2 dx \\ &= \omega^2 \frac{m}{288} \frac{F^2 L^6}{R_T^2} ((3\alpha^2 \beta + 1)^2 + 3\alpha^2 \beta^2 (\alpha - 1)^2) \end{aligned} \quad (5.46)$$

$A_m = l_m t_m$ est la section de la masse sismique. En égalisant le maximum de l'énergie potentielle (équation 5.42) et le maximum de l'énergie cinétique (équation 5.46), la fréquence de résonance s'écrit alors sous la forme de l'équation 5.47.

$$f_0 = \frac{\omega}{2\pi} = \sqrt{\frac{R_T}{mL^3} \frac{12(3\alpha^2 \beta + 1)}{(3\alpha^2 \beta + 1)^2 + 3\alpha^2 \beta^2 (\alpha - 1)^2}} \quad (5.47)$$

5.6 Conception d'un prototype

Un prototype basé sur un système assymétrique de deux poutres avec un gap d'air est mis en place en utilisant nos piézo-électrets à base de *PDMS*. Ce matériau est constitué de deux couches micro-structurées faisant chacune une épaisseur de $40\mu m$ alternées avec trois couches massives faisant chacune $55\mu m$ d'épaisseur. Les couches micro-structurées contiennent des micro-cavités cylindriques de hauteur $40\mu m$, de diamètre $100\mu m$ distribuées régulièrement dans la matrice de polymère avec un pas de $150\mu m$. Le matériau piézo-électret possède une surface totale de $1 \times 4cm^2$ avec une épaisseur totale de $250\mu m$. Pour assurer le contact électrique, des électrodes en or d'épaisseur $400nm$ sont déposées par pulvérisation sur les deux faces du matériau. La permittivité relative du matériau est de 2.5, son module de Young en tension est de $1.3MPa$. Une poutre en Aluminium est coupée et collée à une masse sismique en aluminium aussi. La configuration assymétrique de la poutre avec un gap d'air est représentée par la figure 5.6.

Le système est placé sur un pot vibrant du type *DataPhysics*, *V20* pour générer les vibrations mécaniques. Un accéléromètre du type *Piezotronics*, *355B04* est placé sur la base du système pour asservir l'accélération du pot vibrant. Un signal

sinusoïdal est appliqué au système pour étudier sa réponse pour une gamme de fréquence allant de $3.7Hz$ à $200Hz$. La membrane piézoélectrique est connectée à un amplificateur de charge du type *B & K*, 2634A pour étudier sa sensibilité. Un vibromètre laser du type *Polytec*, OFV3001 est placé sur la masse sismique pour déterminer le déplacement. Le montage utilisé lors de cette étude est représenté par la figure 5.7.

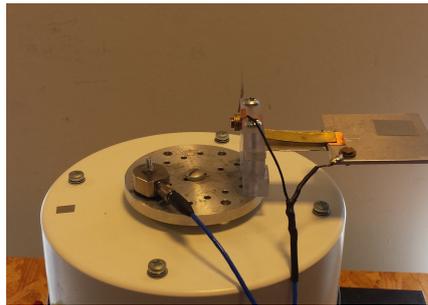


FIGURE 5.6: Photo du prototype réalisé au laboratoire avec une poutre en aluminium ($30.59mm \times 20.55mm \times 0.5mm$), une poutre en piézo-électret PDMS ($30.59mm \times 10.34mm \times 0.25mm$) et une masse sismique en aluminium ($50.59mm \times 50.59mm \times 2mm$).

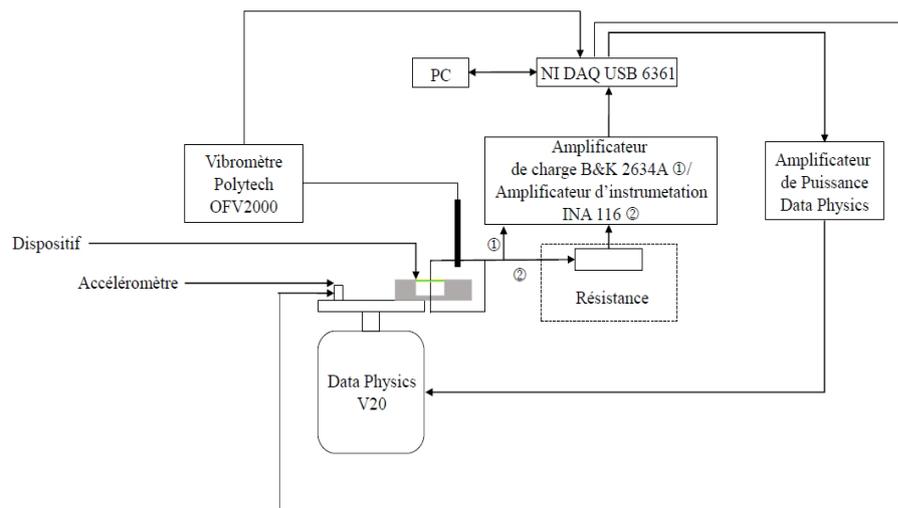


FIGURE 5.7: Montage utilisé pour étudier la sensibilité et l'énergie récupérée par le système de poutre avec un gap d'air.

5.7 Caractérisations électromécaniques du prototype

Nous avons choisi lors de nos études de solliciter notre dispositif conçu avec des accélérations de $0.06g$ à $0.1g$ avec un pas de $0.01g$. Ce choix est fait afin d'éviter le flambage et la torsion de notre membrane piézoélectrique qui est très souple. Ce phénomène peut être surmonté en ajoutant "un stoppeur" à notre dispositif. Nous avons commencé par l'étude du déplacement de notre dispositif afin de pouvoir repérer la fréquence de résonance du système. Notre objectif est d'avoir un prototype qui présente une faible fréquence de résonance. Théoriquement, cette fréquence, d'après l'équation 5.47, est $2.8Hz$.

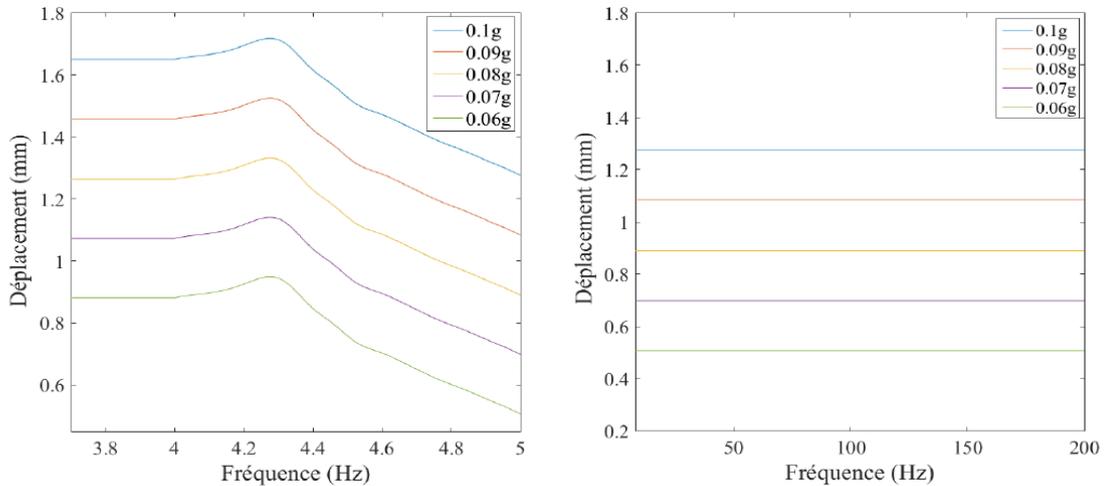


FIGURE 5.8: Variation du déplacement de la poutre avec un gap d'air en fonction de la fréquence entre $3.7Hz$ à $200Hz$ et en fonction de l'accélération.

La figure 5.8 représente le déplacement des poutres en fonction de la fréquence de 3.7 à $200Hz$ pour différentes accélérations. Le système présente une fréquence de résonance à $4.3Hz$. Le déplacement reste pratiquement stable de $5Hz$ à $200Hz$ pour les différentes accélérations.

Cette différence au niveau de la fréquence de résonance peut être due à des petites imperfections au niveau du prototype au niveau de l'encastrement. Nous envisageons dans cette étude d'avoir une réponse piézoélectrique stable dans la gamme de fréquences utile avec un signal de sortie important pour pouvoir s'adapter à n'importe quelle vibration existant dans notre environnement.

Nous avons étudié la sensibilité de notre dispositif dans cette gamme de la fréquences. La figure 5.9 représente la sensibilité pour une fréquence allant de $3.7Hz$ à

200Hz. La sensibilité présente un pic de résonance à 3.7Hz d'une valeur de 420mV/g, par contre, la sensibilité reste stable sur tout l'intervalle de fréquence allant de 5Hz à 200Hz avec une valeur de 385mV/g qui dépasse celle du PZT avec 320mV/g [Nemirovsky *et al.*, 1996].

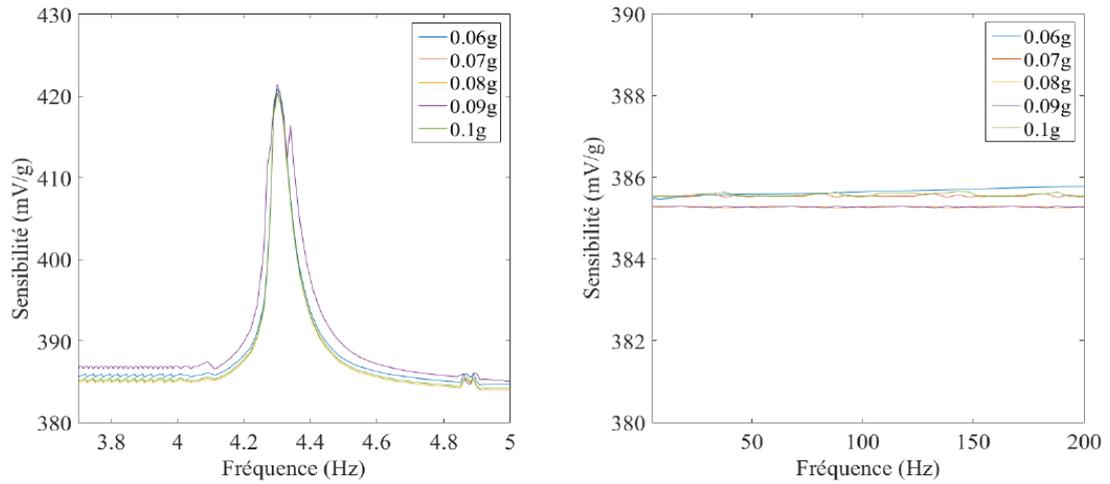


FIGURE 5.9: Sensibilité de la poutre avec un gap d'air en fonction de la fréquence entre 3.7Hz à 200Hz et en fonction de l'accélération.

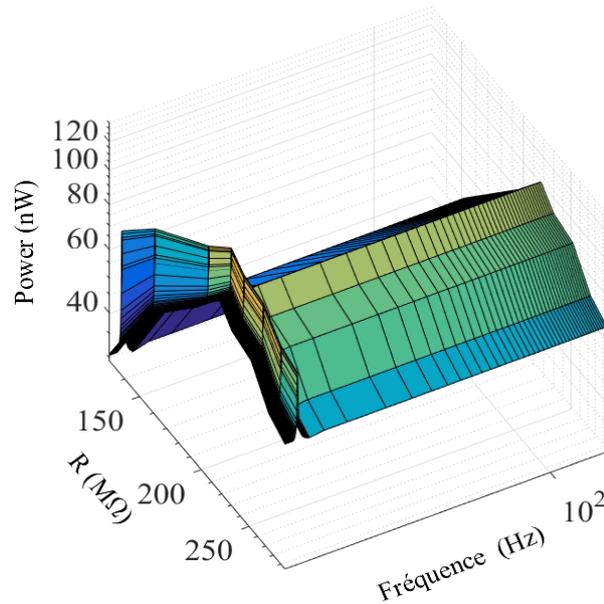


FIGURE 5.10: Courbe représentant la puissance générée par la poutre piézoélectrique en fonction de la fréquence entre 3.7Hz à 200Hz et en fonction de de la résitance.

Par la suite, nous avons étudié la faisabilité de la récupération d'énergie par ce système de poutres avec un gap d'air. Nous avons connecté la poutre piézoélectrique en parallèle avec une résistance qui est connectée à un amplificateur d'instrumentation de type *INA*, 116. Le système étant excité avec une accélération à $0.1g$. Nous avons fait varier les valeurs de la résistance de $130.2M\Omega$ à $295M\Omega$.

La figure 5.10 représente la courbe à trois dimensions de la puissance générée par la poutre piézoélectrique en fonction de la résistance et en fonction de la fréquence de $3.7Hz$ à $200Hz$. La courbe de la puissance représente une valeur maximale à la résistance de $217M\Omega$ pour une capacité du matériau de $171pF$ mesurée avec un analyseur d'impédance *Hioki IM3570*. La puissance présente une valeur maximale de $103nW$ stable sur la gamme de fréquences allant de $5Hz$ à $200Hz$, soit une densité de puissance de $1.3nW/mm^3$. Cette densité est comparable à celle obtenue par d'autres auteurs avec une densité de puissance de $2.83nW/mm^3$ [Glynne-Jones *et al.*, 2000]. Toutefois, nous sommes au-dessous d'autres valeurs reportées dans la littérature de $3.5\mu W/mm^3$ [Fang *et al.*, 2006] dans le domaine des *MEMS* vibrant à hautes fréquences. Cela peut s'expliquer par le fait que nous ne sommes pas entrain de solliciter l'intégralité de l'échantillon par ce système. Des améliorations peuvent être envisagées pour ce prototype.

5.8 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons réussi à montrer la faisabilité d'un accéléromètre et d'un récupérateur d'énergie avec le matériau piézo-électret à base de *PDMS* contenant deux couches micro-structurées. Le matériau a présenté ainsi avec la configuration de poutres avec un gap d'air une sensibilité constante valant $385mV/g$ sur une gamme de fréquence couvrant les fréquences de résonances des vibrations existant dans notre vie quotidienne. Cette sensibilité a dépassé celle du *PZT*. Dans cette même bande de fréquence, le matériau a fourni une puissance constante lorsque le matériau est connecté à la valeur de la résistance optimale de $217M\Omega$ qui est de $103nW$. Toutefois, des améliorations et des nouvelles configurations des systèmes récupérateurs d'énergie doivent être étudiés afin d'augmenter la valeur de la capacité du matériau piézo-électret permettant ainsi la réduction de la valeur optimale de la résistance utilisée.

Conclusion générale et perspectives

Rappel des objectifs

Cette thèse a cherché à répondre à quatre problématiques principales :

1. La conception et la modélisation de nouveaux matériaux piézoélectriques micro-structurés à base de polymère pouvant subir de grandes déformations. Ces matériaux serviront comme capteurs de vibrations mécaniques.
2. Suggérer des pistes de micro-fabrication permettant de réaliser des prototypes des matériaux conçus. Le procédé proposé doit permettre de contrôler les paramètres géométriques des matériaux finaux. Ces paramètres affectent les propriétés piézoélectriques de ces derniers.
3. Réaliser des caractérisations fines du comportement piézoélectrique des matériaux issus de la micro-fabrication afin d'évaluer leurs performances.
4. Proposer une application intégrant les matériaux fabriqués dans un prototype pouvant faire l'objet d'un capteur.

Bilan des travaux effectués

Dans cette thèse, nous avons présenté les différentes classes de matériaux piézoélectriques répertoriés dans la littérature. Un intérêt particulier s'est porté sur les matériaux piézo-électrets. En effet, un état de l'art complet a souligné l'une des caractéristiques les plus recherchées dans les matériaux piézoélectriques : la souplesse et la résistance aux grandes déformations aux fréquences ambiantes ($f < 200Hz$). En se basant sur la figure de mérite retenue, les piézo-électrets semblent pouvoir répondre aux objectifs fixés. Ces matériaux ont l'avantage de combiner la souplesse et une réponse piézoélectrique élevée.

En tenant compte de la figure de mérite retenue, nous avons constaté que pour optimiser la réponse piézoélectrique, il faut réduire les propriétés diélectriques des matériaux tout en prenant en considération la souplesse (faible module de Young). Notre choix est porté sur le polydiméthylsiloxane (*PDMS*) comme étant un bon candidat en tant que matrice polymère. Par la suite, nous avons développé un modèle fiable en accord avec les résultats expérimentaux pour prédire les propriétés diélectriques (la partie réelle et imaginaire de la permittivité relative complexe) des

matériaux micro-structurés. Ce modèle nous a permis de fixer les paramètres géométriques minimisant les propriétés diélectriques des structures tout en optimisant la figure de mérite. Les matériaux finaux sont sous forme d'un sandwich constitué de deux couches massives de *PDMS* ayant chacune une épaisseur de $55\mu m$ séparées par une couche micro-structurée de $40\mu m$ d'épaisseur de *PDMS*. Cette dernière contient des micro-cavités cylindriques ayant un diamètre de $100\mu m$ avec un pas régulier de $150\mu m$.

Par la suite, nous nous sommes focalisés sur la discussion et l'analyse des conditions de chargement électrique des matériaux micro-structurés pour obtenir les piézo-électrets finaux à base du *PDMS*.

Ces discussions nous ont permis d'augmenter la distribution des charges implantées dans les surfaces des micro-cavités des piézo-électrets et d'éviter le phénomène de neutralisation de ces charges. Le procédé de chargement électrique est réalisé en étudiant l'effet du temps mis pour la polarisation sur les variations des propriétés diélectriques. Nous avons fixé le temps permettant de minimiser les parties réelle et imaginaire de la permittivité relative des matériaux finaux. Les structures sont chargées de façon optimale avec une tension triangulaire quasi-statique avec des amplitudes entre $1kV$ et $4kV$ et de fréquence $0.5Hz$ pendant une durée de 15 minutes.

Des études des propriétés diélectriques des matériaux micro-structurés ont été réalisées par spectroscopie d'impédance. Ces études ont été faites sur une large gamme de fréquences ($[0.1Hz, 1MHz]$) et une large gamme de températures ($[25^{\circ}C, 125^{\circ}C]$). La partie réelle et imaginaire de la permittivité relative des matériaux micro-structurés sont modélisées en nous appuyant sur les théories reportées dans la littérature. Ces valeurs nous serviront lors des investigations des propriétés piézoélectriques en piézoélectricité indirecte.

L'analyse de la réponse piézoélectrique en mode indirect des piézo-électrets à base de *PDMS* a donné un coefficient piézoélectrique longitudinal maximal de $350pC/N$. Les piézo-électrets maintiennent leur piézoélectricité sur une large gamme de températures allant de $-25^{\circ}C$ à $85^{\circ}C$. Nous avons constaté des améliorations sur la stabilité du coefficient piézoélectrique en chargeant les structures à des températures plus hautes que la température ambiante. Nous avons remarqué également des effets importants du phénomène de réticulation sur les propriétés piézoélectriques. En effet, la réduction des proportions de l'agent réticulant lors de la préparation des matrices de polymère augmente le coefficient piézoélectrique. Le coefficient le plus élevé est obtenu avec les proportions 1:20 entre le pré-polymère et l'agent réticulant avec une valeur de $760pC/N$. Néanmoins, ces structures présentent une stabilité thermique réduite de la piézoélectricité par rapport aux matériaux préparés avec les

proportions 1:10.

Il est important de noter que les mesures sont réalisées avec des pré-contraintes des pointes de l'équipement qui sont très faibles. L'échantillon n'est soumis qu'au champ électrique et la pression électrostatique ressentie semble être assez faible pour pouvoir faire varier significativement la distance entre les charges négatives et positives implantées dans les surfaces internes des micro-cavités des piézo-électrets.

Par la suite, des tests électromécaniques en piézoélectricité directe ont montré une grande dépendance aux contraintes statiques et dynamiques appliquées de la réponse piézoélectrique. Grâce à ces investigations, nous avons montré que des empilements contenant deux couches micro-structurées présentent le coefficient piézoélectrique le plus important qui est de $430pC/N$.

Finalement, ces dernières structures sont intégrées dans un prototype de capteur de type poutres séparées par un gap d'air. Ce dispositif a fourni une sensibilité constante de $385mV/g$ sur une gamme de fréquences allant de $5Hz$ à $200Hz$. Cela peut couvrir les fréquences des vibrations de l'environnement. Une étude de la faisabilité d'un récupérateur d'énergie a donné une densité de puissance constante de $1.3nW/mm^3$ pour une résistance optimale de $217M\Omega$ connectée au piézo-électret.

Apport par rapport à l'état de l'art

Ce travail de thèse a permis de contribuer au développement de nouveaux matériaux de type piézo-électrets grâce aux résultats suivants obtenus :

1. Les propriétés piézoélectriques du piézo-électret à base de *PDMS* sont importantes étant donné que le coefficient piézoélectrique longitudinal ainsi obtenu a dépassé celui du *PVDF* ($d_{33} = 28pC/N$) et celui des piézo-électrets à base de *PP* ($d_{33} = 175pC/N$).
2. La piézoélectricité des piézo-électrets est maintenue sur une large gamme de température par rapport à d'autres matériaux concurrents.
3. La souplesse assurée avec un tel piézo-électret (un module de Young de $300kPa$).
4. La sensibilité élevée ($385mV/g$) que présente ce matériau piézo-électret qui est comparable à celle du *PZT*, mais qui peut être utilisé pour des vibrations de basses fréquences.

Perspectives

Le domaine de recherche sur les piézo-électrets est aujourd'hui en pleine expansion. Les perspectives que nous projetons à l'issue de ces travaux de thèse sont multiples. En voici les principales.

Augmentation de la densité de charges implantées

L'un des paramètres importants dans la micro-fabrication des piézo-électrets est l'implantation des charges. En effet, les propriétés piézoélectriques dépendent de la densité de charges maintenue dans les micro-cavités. Afin d'augmenter cette densité, nous avons pensé à une approche physique : effectuer des chargements sur des échantillons préalablement étirés. Cette solution peut améliorer la réponse piézo-électrique. Une autre approche chimique semble être importante est de recouvrir les surfaces internes des micro-cavités par des couches minces de polymères halogénés tel que le téflon. Ces derniers ont été largement exploités dans des électrets et ont montré des résultats importants dans le maintien des charges.

Amélioration des électrodes

Des investigations des propriétés piézoélectriques en étirement peuvent être réalisées sur ce type de matériaux pour d'éventuelles applications selon ce mode d'excitation. Cela nécessite la mise en place d'électrodes conductrices souples qui peuvent résister à l'étirement. Deux pistes semblent intéressantes à développer. La première consiste à utiliser le PEDOT'S/PSS. La seconde consiste à réaliser des électrodes directement moulées dans le *PDMS*.

Procédé de miniaturisation

Des travaux de miniaturisation des structures des piézo-électrets à l'échelle nanométrique peuvent être envisagés. Cela fera appel à d'autres techniques de micro-fabrication, à savoir la nano-impression.

Liste des publications

Revue internationale

1. A. Kachroudi, S. Basrour, L. Rufer, A. Sylvestre, F. Jomni, 2015 Dielectric properties modelling of cellular structures with PDMS for micro-sensor applications, *Smart Materials and structures*, 24(12), 125013.
2. A. Kachroudi, S. Basrour, L. Rufer, A. Sylvestre, F. Jomni, 2016 Micro-structured PDMS piezoelectric enhancement through charging conditions, *Smart Materials and structures*, 25(10), 105027.

Conférences internationales avec comité de lecture et actes

1. A. Kachroudi, S. Basrour, L. Rufer, F. Jomni, 2015 Piezoelectric cellular micro-structured PDMS material for micro-sensors and energy harvesting, *Journal of Physics : Conference Series (Power MEMS 2015, Boston, USA)*, 660, 125013.
2. A. Kachroudi, S. Basrour, L. Rufer, F. Jomni, 2016 Air-spaced PDMS piezoelectric cantilevers for vibration energy harvesting, *Journal of Physics : Conference Series (Power MEMS 2016, Paris, France)*.
3. A. Kachroudi, S. Basrour, L. Rufer, F. Jomni, 2016 Dynamic piezoelectric response of cellular micro-structured PDMS piezoelectric material as function of polymeric reticulation, *International Symposium on Dielectric Materials (Isydma'16)*, Rabat, Morocco.

Séminaires

1. A. Kachroudi, S. Basrour, F. Jomni, B. Yangui, 2014 Modélisation et simulation de matériaux de type piézo-électrets polymères pour des capteurs de vibrations mécaniques, *Rencontre Francophone sur les Matériaux Isolants (RFMI 2014)*, Hammamet, Tunis, Tunisie.

2. A. Kachroudi, S. Basrour, F. Jomni, 2015 A predictive model for the effective permittivity of micro-structured polymer as ferroelectric material for micro-sensors applications, *International Meeting on Advanced Materials (MAM 2015)*, Hammamet, Tunis, Tunisie.
3. A. Kachroudi, S. Basrour, F. Jomni, 2016 Optimization of piezo-electrets properties in cellular polymer, *GDR Mephy 2016 Active Materials (électro- or magneto- responsive solids)*, Ecole Polytechnique de Paris, Paris, France.
4. A. Kachroudi, S. Basrour, L. Rufer, F. Jomni, 2016 Piezoelectric characterizations of piezo-electret PDMS material for energy harvesting, *Journées Nationales sur la Récupération et le Stockage d'Énergie (JNRSE 2016)*, IMS Bordeaux, France.
5. A. Kachroudi, S. Basrour, L. Rufer, F. Jomni, 2016 Etude des propriétés piézoélectriques d'un matériau piézo-électret polymère pour micro-capteurs de vibrations mécaniques, *Journées du Réseau Doctoral en Micro-Nanoélectronique (JNRDM 2016)*, CEMES Toulouse, France.

Bibliographie

- [Ahmad et Pratap, 2010] AHMAD, B. et PRATAP, R. (2010). Elasto-electrostatic analysis of circular microplates used in capacitive micromachined ultrasonic transducers. *IEEE Sens. J.*, pages 1767–1773. (Cit  en page 55.)
- [Allahverdi *et al.*, 2001] ALLAHVERDI, M., DANFORTH, S. C., JAFARI, M. et SAFARI, A. (2001). Processing of advanced electroceramic components by fused deposition technique. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 21:1485–1490. (Cit  en page 15.)
- [Alvarez-Arenas, 2013] ALVAREZ-ARENAS, T. E. G. (2013). Air-coupled piezoelectric transducers with active polypropylene foam matching layers. *Sensors*, 13(5):5996–6013. (Cit  en pages et 33.)
- [Amarasinghe *et al.*, 2007] AMARASINGHE, R., DAO, D. V., TORIYAMA, T. et SUGIYAMA, S. (2007). Development of miniaturized 6-axis accelerometer utilizing piezoresistive sensing elements. *Sensors and Actuators A-Physical*, 134:310–320. (Cit  en page 127.)
- [Anderson *et al.*, 2002] ANDERSON, R. A., LAGASSE, R. R., RUSSICK, E. M. et SCHROEDER, J. L. (2002). Effects of void size and gas content on electrical breakdown in lightweight, mechanically compliant, voidfilled dielectrics. *J. Appl. Phys.*, 91:3205–3212. (Cit  en page 50.)
- [Anton *et al.*, 2014] ANTON, S. R., FARINHOLT, K. M. et ERTURK, A. (2014). Piezoelectret foambased vibration energy harvesting. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures*, 25(14):16811692. (Cit  en pages , 24, 25, 26 et 102.)
- [Arai *et al.*, 1991] ARAI, T., AYUSAWA, K., SATO, H., MIYATA, T., KAWAMURA, K. et KOBAYASHI, K. (1991). Properties of hydrophone with porous piezoelectric ceramics. *Japanese journal of applied physics*, 30(9B):2253–2255. (Cit  en page 15.)
- [Atkinson *et al.*, 2003a] ATKINSON, G. M., PEARSON, R. E., OUNAIES, Z., PARK, C., HARRISON, J. S., DOGAN, S. et MIDKIFF, J. A. (2003a). Novel piezoelectric polyimide mems. *12th Int. Conf. on TRANSDUCERS, SolidState Sensors, Actuators and Microsystems*, page 782. (Cit  en pages 19 et 21.)
- [Atkinson *et al.*, 2003b] ATKINSON, G. M., PEARSON, R. E., OUNAIES, Z., PARK, C., HARRISON, J. S. et MIDKIFF, J. A. (2003b). Piezoelectric polyimide tactile sensors. *Proc. 15th Biennial University/Government/Industry Microelectronics Symp.*, page 3085. (Cit  en page 21.)
- [Baek *et al.*, 2012] BAEK, S., RZCHOWSKI, M. S. et AKSYUK, V. A. (2012). Giant piezoelectricity in pmnpt thin films : beyond pzt mrs. *Bull.*, 37:1022–1029. (Cit  en page 23.)
- [Bao, 2000] BAO, M. H. (2000). Micro mechanical transducers : Pressure sensors, accelerometers and gyroscopes. *Elsevier Science*. (Cit  en page 127.)

- [Barlian *et al.*, 2007] BARLIAN, A. A., PARK, S. J., MUKUNDAN, V. et PRUITT, B. L. (2007). Design and characterization of microfabricated piezoresistive floating element-based shear stress sensors. *Sensors and Actuators A-Physical*, 134:77–87. (Cité en page 127.)
- [Barlian *et al.*, 2009] BARLIAN, A. A., PARK, W. T., MALLON, J. R., RASTEGAR, A. J. et PRUITT, B. L. (2009). Design and characterization of microfabricated piezoresistive floating element-based shear stress sensors. *Sensors and Actuators A-Physical*, 97:513–552. (Cité en page 127.)
- [Bauer *et al.*, 2004] BAUER, S., GERHARD-MULTHAUPT, R. et SESSLER, G. M. (2004). Ferroelectrets : soft electroactive foams for transducers. *Physics Today*, 57(2):37–43. (Cité en page 29.)
- [Bazelyan et Raizer, 1998] BAZELYAN, E. M. et RAIZER, Y. P. (1998). *Spark Discharge*. (Boca Raton, FL : CRC Press). (Cité en page 50.)
- [Beaty *et al.*, 1992] BEATY, R. E., JAEGER, R. C., SUHLING, J. C., JOHNSON, R. W. et BUTLER, R. D. (1992). Evaluation of piezoresistive coefficient variation in silicon stress sensors using a 4-point bending test fixture. *IEEE Transactions on Components Hybrids and Manufacturing Technology*, 15:904–914. (Cité en page 127.)
- [Bosq *et al.*, 2014] BOSQ, N., GUIGO, N., PERSELLO, J. et SBIRRAZZUOLI, N. (2014). Melt and glass crystallization of pdms and pdms silica nanocomposites. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 16:7830–7840. (Cité en pages 100 et 101.)
- [Boyle et Kisliuk, 1995] BOYLE, W. S. et KISLIUK, P. (1995). Departure from paschens law of breakdown in gases. *Phys. Rev.*, 97:255–259. (Cité en page 50.)
- [Brandrup *et al.*, 2003] BRANDRUP, J., EDMUND, H. I. et ERIC, A. G. (2003). *Polymer Handbook*. New York : Wiley, USA. (Cité en pages 37 et 38.)
- [Brissaud, 2007] BRISSAUD, M. (2007). *Matériaux piézoélectriques : caractérisation, modélisation et vibration*. Presse polytechniques et universitaires romandes, EPFL Press-Suisse. (Cité en pages 7, 8, 9, 10 et 11.)
- [Certon *et al.*, 2005] CERTON, D., TESTON, F. et PATAT, F. (2005). A finite difference model for cmut devices. *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control*, 52:2199–2210. (Cité en page 55.)
- [Chen *et al.*, 2012] CHEN, A., LIN, K., HONG, C., LIOU, T., SHIEH, J. et CHEN, S. (2012). Flexible tactile sensors based on nanoimprinted sub20 nm piezoelectric copolymer nanograft films. *Sensors*, pages 1–4. (Cité en page 20.)
- [Coffman *et al.*, 1996] COFFMAN, P., BARLINGAY, C. K., GUPTA, A. et DEY, S. (1996). Structure evolution in the pbo-zro2-tio2 sol-gel system : Part i: pyrolysis of acid and base-catalyzed bulk and thin film gels. *J. of Sol-gel Science and Technology*, 6:83–106. (Cité en page 14.)

- [Coffman et Dey, 1994] COFFMAN, P. et DEY, S. K. (1994). Structure evolution in the pbo-zro2-tio2 sol-gel system : Part i characterization of prehydrolyzed precursors. *J. of Sol-gel Science and Technology*, 1:251–265. (Cit  en page 14.)
- [Colin et al., 2013] COLIN, M., MORTIER, Q., BASROUR, S. et BENCHEIKH, N. (2013). Compact and low-frequency vibration energy scavenger using the longitudinal excitation of a piezoelectric bar. *Journal of Physics : Conference Series*, 476:012135. (Cit  en pages 1, 2, 126 et 127.)
- [Dargaville et al., 2005] DARGAVILLE, T. R., CELINA, M. C., ELLIOTT, J. M., CHAPLYA, P. M., JONES, G. D., MOWERY, D. M., ASSINK, R. A., CLOUGH, R. L. et MARTIN, J. W. (2005). Characterization, performance and optimization of pvdf as a piezoelectric film for advanced space mirror concepts. *Livermore, CA : Sandia National Laboratories*, page 6428. (Cit  en pages 19 et 20.)
- [Defosseux, 2011] DEFOSSEUX, M. (2011). *Conception et caract risation de micro-g n rateurs pi zo lectriques pour microsyst mes autonomes*. Th se de doctorat, Universit  de Grenoble Alpes, France. (Cit  en pages 1, 126 et 127.)
- [Dodds et al., 2012] DODDS, J. S., MEYERS, F. N. et LOH, K. J. (2012). Piezoelectric characterization of pvdf/trfe thin films enhanced with zno nanoparticles. *IEEE Sensors J.*, 12:1889–1890. (Cit  en page 20.)
- [dos Santos et al., 2001] dos SANTOS, A. O., YAEGASHI, W. H., MARCON, R., LI, B. B., GELAMO, R. V., CARDOSO, L. P., SASAKI, J. M., MIRANDA, M. A. R. et MELLO, F. E. A. (2001). Rochelle salt piezoelectric coefficients obtained by x-ray multiple diffraction. *J. Phys. : Condens. Matter*, 13(46):10497–10505. (Cit  en page 14.)
- [Fang et al., 2006] FANG, H. B., LIU, J. Q., XU, Z. Y., DONG, L., WANG, L., CHEN, D., BING-CHU, C. et LIU, Y. (2006). Fabrication and performance of mems-based piezoelectric power generator for vibration energy harvesting. *Microelectron. J.*, 37(11):1280–1284. (Cit  en page 142.)
- [Fang et al., 2011] FANG, P., WANGWERNER, F., REIMUND, W., HEITOR, G. et BASSO, C. (2011). Three-layer piezoelectrets from fluorinated ethylene-propylene (fep) copolymer films. *Applied Physics A*, 103(2):455–461. (Cit  en page 96.)
- [Fang et al., 2007] FANG, P., WEGENER, M., WIRGES, W. et ZIRKEL, L. (2007). Cellular polyethylene-naphthalate ferroelectrets : Foaming in supercritical carbon dioxide, structural and electrical preparation, and resulting piezoelectricity. *J. Appl. Phys.*, 90:192908. (Cit  en pages , 25, 26, 27 et 102.)
- [Glynn-Jones et al., 2000] GLYNN-JONES, P., EL-HAMI, M., BEEBY, S. P., JAMES, E. P., BROWN, A. D., HILL, M. et WHITE, N. M. (2000). A vibration-powered generator for wireless micro-systems. *In Proc. Symp. Smart Struc. Microsyst. Hong Kong*. (Cit  en page 142.)

- [Graz *et al.*, 2009] GRAZ, I., KRAUSE, M., GOGONEA, S. B., BAUER, S., LACOUR, S. P., B.PLOSS, ZIRKL, M., STADLOBER, B. et WAGNER, S. (2009). Flexible active-matrix cells with selectively poled bifunctional polymer-ceramic nanocomposite for pressure and temperature sensing skin. *J. Appl. Phys.*, 106:034503. (Cité en page 20.)
- [Gudmundsson *et al.*, 2003] GUDMUNDSSON, J. T., SVAVARSSON, H. G., GUDJONSSON, S. et GISLASON, H. P. (2003). Frequency-dependent conductivity in lithium-diffused and annealed glass. *Physica B*, 340:324–328. (Cité en page 88.)
- [Harrison et Ounaies, 2002] HARRISON, J. S. et OUNAIES, Z. (2002). *Piezoelectric polymers*. Encyclopedia of Polymer Science and Technology, (New York : Wiley). (Cité en pages , 18, 19, 21, 22 et 27.)
- [Hearn, 1997] HEARN, E. J. (1997). *Mechanics of Materials*. Elsevier. (Cité en pages 131, 137, 169 et 173.)
- [Hillenbrand et Sessler, 2000] HILLENBRAND, J. et SESSLER, G. M. (2000). Piezoelectricity in cellular electret films. *IEEE Trans. Dielect. Electr. Insul.*, 7(4):537–542. (Cité en page 32.)
- [Hillenbrand et Sessler, 2004] HILLENBRAND, J. et SESSLER, G. M. (2004). Quasi-static and dynamic piezoelectric coefficients of polymer foams and polymer film systems. *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, 11(1):72–79. (Cité en pages 113 et 114.)
- [Hillenbrand *et al.*, 2005] HILLENBRAND, J., SESSLER, G. M. et ZHANG, X. (2005). Verification of a model for the piezoelectric d_{33} coefficient of cellular electret films. *J. Appl. Phys.*, 98(6):064105. (Cité en page 32.)
- [Hong *et al.*, 2012] HONG, C., HUANG, S., SHIEH, J. et CHEN, S. (2012). Enhanced piezoelectricity of nanoimprinted sub20 nm poly (vinylidene fluoridetrifluoroethylene) copolymer nanogras. *Macromolecules*, 45:1580–1586. (Cité en page 20.)
- [Huang *et al.*, 2003] HUANG, Y., ERGUN, A. S., HAEGGSTROM, E., BADI, M. H. et KHURI-YAKUB, B. T. (2003). Fabricating capacitive micromachined ultrasonic transducers with wafer-bonding technology. *J. Microelectromechanical Syst.*, 12: 128–137. (Cité en page 56.)
- [Hyun *et al.*, 2014] HYUN, E., NOH, S., YOON, C. et KIM, H. C. (2014). Patch type integrated sensor system for measuring electrical and mechanical cardiac activities. *Sensors Applications Symposium (SAS) IEEE*. (Cité en pages et 28.)
- [IEEE, 1991] IEEE (1991). Ieee micro electro mechanical systems workshop. (Cité en page 14.)
- [Ikeda *et al.*, 1998] IKEDA, K., ISHIZUKA, H., SAWADA, A. et K., U. (1998). Vibration acceleration magnitudes of hand-held tools and workpieces. *Computer Communications*, 36:197–208. (Cité en pages et 126.)

- [Islam et Priya, 2006] ISLAM, R. A. et PRIYA, S. (2006). Realization of high-energy density polycrystalline piezoelectric ceramics. *Applied Physics Letters*, 88(3):032903. (Cité en page 26.)
- [J-J. Wang et Su, 2013] J-J. WANG, J.-W. T. et SU, Y.-C. (2013). Piezoelectric rubber films for highly sensitive impact measurement. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 23(7):075009. (Cité en pages 33 et 46.)
- [Jean-Mistral *et al.*, 2010] JEAN-MISTRAL, C., SYLVESTRE, A., BASROUR, S. et CHAILLOUT, J.-J. (2010). Dielectric properties of polyacrylate thick films used in sensors and actuators. *Smart Mater. Struct.*, 19:075019. (Cité en page 83.)
- [Jonscher, 1983] JONSCHER, A. K. (1983). *Dielectric Relaxation in Solids*. Chelsea Dielectrics Press Ltd, London. (Cité en pages 69, 74, 76, 78, 81, 82 et 98.)
- [Jonscher, 1995] JONSCHER, A. K. (1995). *Universal relaxation law*. Chelsea Dielectrics Press Ltd, London. (Cité en pages 69, 74, 76, 78, 81, 86 et 87.)
- [K. Mizumura, 1991] K. MIZUMURA, Y. Kurihara, H. O. (1991). Porous piezoelectric ceramic transducer. *Japanese journal of applied physics*, 30(9B):2271–2273. (Cité en page 15.)
- [Kachroudi *et al.*, 2015a] KACHROUDI, A., BASROUR, S., RUFER, L. et JOMNI, F. (2015a). Piezoelectric cellular micro-structured pdms material for micro-sensors and energy harvesting. *Journal of Physics : Conference Series*, 660:012040. (Cité en page 96.)
- [Kachroudi *et al.*, 2015b] KACHROUDI, A., BASROUR, S., RUFER, L., SYLVESTRE, A. et JOMNI, F. (2015b). Dielectric properties modelling of cellular structures with pdms for micro-sensor applications. *Smart Mater. Struct.*, 24:125013. (Cité en pages 39, 42, 46 et 49.)
- [Kachroudi *et al.*, 2016] KACHROUDI, A., BASROUR, S., RUFER, L., SYLVESTRE, A. et JOMNI, F. (2016). Micro-structured pdms piezoelectric enhancement through charging conditions. *Smart Materials and Structures*, 25(10):105027. (Cité en pages 98, 101, 102 et 104.)
- [Kandpal *et al.*, 2012] KANDPAL, M., SHARAN, C., PODDAR, P., PRASHANTHI, K., APTE, P. R. et RAO, V. R. (2012). photopatternable nanocomposite (su8/zno) thin films for piezoelectric applications appl. *Phys. Lett.*, 408:104102. (Cité en page 23.)
- [Kawai, 1969] KAWAI, H. (1969). Piezoelectricity of poly(vinylidene fluoride). *Japanese journal of applied physics*, 8(7):975–976. (Cité en page 18.)
- [Kim, 2013] KIM, J. Y. (2013). Parylenec as a new piezoelectric material. *PhD Thesis California Institute of Technology*. (Cité en page 20.)
- [Kim *et al.*, 2011] KIM, J. Y., CHENG, A. et YUCHONG, T. (2011). Parylenec as a piezoelectric material. *MEMS : 2011 IEEE 24th Int. Conf. on Micro Electro*

- Mechanical Systems*, page DOI : 10.1109/MEMSYS.2011.5734464. (Cit  en pages , 19, 22, 27 et 102.)
- [Kim *et al.*, 2012] KIM, J. Y., NANDRA, M. et YUCHONG, T. (2012). Cantilever actuated by piezoelectric parylenec. *MEMS : 2012 IEEE 25th Int. Conf. on Micro Electro Mechanical Systems*, page 1141. (Cit  en pages , 20 et 22.)
- [Kim *et al.*, 2010] KIM, K., HSU, D. K., AHN, B., KIM, Y. et BARNARD, D. J. (2010). Fabrication and comparison of pmnpt single crystal, pzt and pztbased 13 composite ultrasonic transducers for nde application. *Ultrasonics*, 50:790. (Cit  en page 23.)
- [Koledintseva *et al.*, 2009] KOLEDINTSEVA, M. Y., PATIL, S. K., SCHWARTZ, R. W., HUEBNER, W., ROZANOV, K. N., SHEN, J. et CHEN, J. (2009). Prediction of effective permittivity of diphasic dielectrics as a function of frequency. *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul*, 16:793808. (Cit  en page 42.)
- [Kremer et Sch nals, 2002] KREMER, F. et SCH NALS, A. (2002). *Broadband dielectric spectroscopy*. Springer, Berlin. (Cit  en pages 69 et 98.)
- [Kressmann, 2001] KRESSMANN, R. (2001). Quasistatic and dynamic piezoelectric coefficients of polymer foams and polymer film systems. *J. Appl. Phys*, 90:3489–3496. (Cit  en pages 113 et 114.)
- [Lallart *et al.*, 2010] LALLART, M., COTTINET, P., LEBRUN, L., GUIFFARD, B. et GUYOMAR, D. (2010). Evaluation of energy harvesting performance of electrostrictive polymer and carbonfilled terpolymer composites. *Journal of applied physics*, 108:034901. (Cit  en page 20.)
- [Lamberti *et al.*, 2014] LAMBERTI, A., MARASSOAB, S. L. et COCUZZAAB, M. (2014). Pdms membranes with tunable gas permeability for microfluidic applications. *RSC Advances*, 4(106):61415–61419. (Cit  en pages 107 et 108.)
- [Lee *et al.*, 1999] LEE, S., XUE, J., WAN, D. et WANG, J. (1999). Effects of mechanical activation on the sintering and dielectric properties of oxide-derived pzt. *Acta Materialia*, 47(9):26332639. (Cit  en page 14.)
- [Lee *et al.*, 2007] LEE, S.-H., JUN, S.-H. et KIM, H.-E. (2007). Processing of advanced electroceramic components by fused deposition technique. *Journal of the american ceramic society*, 90(9):2807–2813. (Cit  en pages , 2, 15 et 16.)
- [Lemaire *et al.*, 2015] LEMAIRE, E., MOSER, R., BORSA, C. J., SHEA, H. et BRIAND, D. (2015). Green paper-based piezoelectric material for sensors and actuators. *Procedia Engineering*, 120:360–363. (Cit  en pages et 14.)
- [Levassort *et al.*, 1999] LEVASSORT, F., LETHIECQ, M. et DESMARE, R. (1999). Effective electroelastic moduli of 33(03) piezocomposites. *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control*, 46:1028–1034. (Cit  en page 22.)

- [Li *et al.*, 2008] LI, C., WU, P. M., LEE, S., GORTON, A., SCHULZ, M. J. et AHN, C. H. (2008). Flexible dome and bump shape piezoelectric tactile sensors using pvdftrfe copolymer. *J. Microelectromech. Syst.*, 17:334–341. (Cité en pages et 22.)
- [Lindner *et al.*, 2002] LINDNER, M., BAUER-GOGONEA, S., BAUER, S., PAAJANEN, M. et RAUKOLA, J. (2002). Dielectric barrier microdischarges : mechanism for the charging of cellular piezoelectric polymers. *J. Appl. Phys.*, 91:52835287. (Cité en page 49.)
- [Liu *et al.*, 2005] LIU, Z., JIN, Z., LI, W. et QIU, J. (2005). Piezoelectric nanogenerators based on zinc oxide nanowire arrays. *Materials Letters*, 59:3620–3625. (Cité en pages et 18.)
- [Luo *et al.*, 2013] LUO, B., WANG, X., WANG, Y. et LI, L. (2013). Fabrication, characterization, properties and theoretical analysis of ceramic/pvdf composite flexible films with high dielectric constant and low dielectric loss. *J. Mater. Chem.*, 2:510–519. (Cité en pages et 37.)
- [Marnat *et al.*, 2013] MARNAT, L., CARRENO, A. A., CONCHOUSO, D., MARTINEZ, M. G., FOULDS, I. et SHAMIM, A. (2013). New movable plate for efficient millimeter wave vertical onchip antenna. *IEEE Trans. Antennas and Propagation*, 61:1608–1615. (Cité en page 21.)
- [Marzencki *et al.*, 2009] MARZENCKI, M., DEFOSSEUX, M. et BASROUR, S. (2009). Mems vibration energy harvesting devices with passive resonance frequency adaptation capability. *J. Microelectromechanical Syst.*, 18(6):14441453. (Cité en pages 1, 126 et 127.)
- [Matt et di Scalea, 2007] MATT, H. et di SCALEA, F. L. (2007). Macrofiber composite piezoelectric rosettes for acoustic source location in complex structures. *Smart Mater. Struct.*, 16:1489. (Cité en pages et 23.)
- [Mellinger, 2003] MELLINGER, A. (2003). Dielectric resonance spectroscopy : a versatile tool in the quest for better piezoelectric polymers. *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, 10(5):842–861. (Cité en pages , 26 et 97.)
- [Mellinger *et al.*, 2001a] MELLINGER, A., WEGENER, M., WIRGES, W. et GERHARD-MULTHAUPT, R. (2001a). Thermally stable dynamic piezoelectricity in sandwich films of porous and nonporous amorphous fluoropolymer. *Applied physics letters*, 79(12):1852. (Cité en pages et 26.)
- [Mellinger *et al.*, 2001b] MELLINGER, A., WEGENER, M., WIRGES, W. et GERHARD-MULTHAUPT, R. (2001b). Thermally stable dynamic piezoelectricity in sandwich films of porous and nonporous amorphous fluoropolymer. *Appl. Phys. Lett*, 79(12):1852–1854. (Cité en pages , 27, 96 et 102.)
- [Nagata et Takenaka, 1997] NAGATA, H. et TAKENAKA, T. (1997). Lead-free piezoelectric ceramics of $(\text{bi}1/2\text{na}1/2)\text{tio}3\text{-}1/2(\text{bi}2\text{o}3.\text{sc}2\text{o}3)$ system. *Japanese journal of applied physics*, 36:6055–6057. (Cité en pages , 15 et 27.)

- [Nemirovsky *et al.*, 1996] NEMIROVSKY, Y., NEMIROVSKY, A., MURALT, P. et SETTER, N. (1996). Design of a novel thin-film piezoelectric accelerometer. *Sensors and Actuators A*, 56:239–249. (Cité en page 141.)
- [Neugschwandtner *et al.*, 2000] NEUGSCHWANDTNER, G. S., SCHWÖDIAUER, R., VIEYTES, M., BAUER-GOGONEA, S., BAUER, S., HILLENBRAND, J., KRESSMANN, R., SESSLER, G. M., PAAJANEN, M. et LEKKALA, J. (2000). Large and broadband piezoelectricity in smart polymer-foam spacecharge electrets. *Appl. Phys. Lett.*, 77:38273829. (Cité en page 49.)
- [Paajanen *et al.*, 1999] PAAJANEN, M., VÄLIMÄKI, H. et LEKKALA, J. (1999). Modelling the sensor and actuator operations of the electromechanical film emfi. *Proceedings, 10th International Symposium on Electrets, 22-24 September, Delphi, Greece (IEEE Service Center, Piscataway, NJ, USA)*, pages 735–738. (Cité en page 32.)
- [Park *et al.*, 2004] PARK, C., OUNAIES, Z., WISE, K. E. et HARRISON, J. S. (2004). In situ poling and imidization of amorphous piezoelectric polyimides. *Polymer*, 45:5417–5425. (Cité en pages , 19, 21 et 22.)
- [Park *et al.*, 2008] PARK, H.-Y., CHOI, J.-Y., CHOI, M.-K., CHO, K.-H. et NAHM, S. (2008). Effect of cuo on the sintering temperature and piezoelectric properties of (na0.5k0.5)nbo3 lead-free piezoelectric ceramics. *Journal of the american ceramic society*, 91(7):2374–2377. (Cité en page 15.)
- [Park et al, 2012] PARK, K. et AL (2012). Flexible nanocomposite generator made of batio3 nanoparticles and graphitic carbons. *Adv. Mater.*, 24:29993004. (Cité en page 23.)
- [Patil *et al.*, 2008] PATIL, S. K., KOLEDINTSEVA, M. Y., SCHWARTZ, R. W. et HUEBNER, W. (2008). Prediction of effective permittivity of diphasic dielectrics using an equivalent capacitance model. *J. Appl. Phys.*, 104:074108. (Cité en page 42.)
- [Pramila *et al.*, 1993] PRAMILA, C., GOEL, T. C. et PILLAI, P. K. C. (1993). Piezoelectric, pyroelectric and dielectric properties of la- and sm-doped pzt ceramics. *J. Mater. Sci. Lett.*, 12:1657–1658. (Cité en pages et 37.)
- [Prashanthi *et al.*, 2013] PRASHANTHI, K., MIRIYALA, N., GAIKWAD, R. D., MOUSSA, W., RAO, V. R. et T.THUNDAT (2013). Vibrational energy harvesting using photopatternable piezoelectric nanocomposite cantilevers. *Nano Energy*, 2:923–932. (Cité en pages et 23.)
- [Ramaratnam et Jalili, 2006] RAMARATNAM, A. et JALILI, N. (2006). Reinforcement of piezoelectric polymers with carbon nanotubes : pathway to nextgeneration. *J. Intell. Mater. Syst. Struct.*, 108:199–208. (Cité en page 20.)

- [Rittenmyer *et al.*, 1982] RITTENMYER, K., SHROUT, T., SCHULZE, W. A. et NEWNHAM, R. E. (1982). Piezoelectric 33 composites. *Ferroelectrics*, 41:189–195. (Cit  en page 15.)
- [Roundy, 2005] ROUNDY, S. (2005). On the effectiveness of vibration-based energy harvesting. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures*, 16:809–823. (Cit  en pages et 126.)
- [Roundy *et al.*, 2003] ROUNDY, S., WRIGHT, P. K. et RABAEY, J. (2003). A study of low level vibrations as a power source for wireless sensor nodes. *Computer Communications*, 26:1131–1144. (Cit  en pages et 126.)
- [Safari *et al.*, 1997] SAFARI, A., JANAS, V. F. et BANDYOPADHYAY, A. (1997). Development of finescale piezoelectric composites for transducers. *AICHE J.*, 43:2849–2856. (Cit  en page 22.)
- [Saito *et al.*, 2004] SAITO, Y., TAKAO, H., TANI, T., NONOYAMA, T., TAKATORI, K., HOMMA, T., NAGAYA, T. et NAKAMURA, M. (2004). Lead-free piezoceramics. *Nature*, 432:84–87. (Cit  en page 15.)
- [Sessler, 1998] SESSLER, G. M. (1998). *Electrets*. Laplacian Press, Morgan Hill, California. (Cit  en page 27.)
- [Sessler et Hillenbrand, 1999] SESSLER, G. M. et HILLENBRAND, J. (1999). Electro-mechanical response equations of cellular electret films. *Proceedings, 10th International Symposium on Electrets, 22-24 September, Delphi, Greece (IEEE Service Center, Piscataway, NJ, USA)*, pages 261–264. (Cit  en page 32.)
- [Sharma *et al.*, 2012] SHARMA, T., JE, S., B, B. G. et ZHANG, J. X. J. (2012). piezoelectric thin film pvdfrfe based pressure sensor for catheter application. *Sensors Actuators A*, 177:87–92. (Cit  en pages , 20 et 22.)
- [Shi *et al.*, 2014] SHI, J., ZHU, D. et BEEBY, S. P. (2014). An investigation of pdms structures for optimized ferroelectret performance. *Journal of Physics : Conference Series*, 557:012104. (Cit  en pages et 24.)
- [Skinner *et al.*, 1978] SKINNER, D. P., NEWNHAM, R. E. et CROSS, L. E. (1978). Flexible composite transducers. *Mater. Res. Bull.*, 13(6):599–607. (Cit  en page 15.)
- [Song *et al.*, 2006] SONG, J., ZHOU, J. et WANG, Z. L. (2006). Piezoelectric and semiconducting coupled power generating process of a single zno belt/wire. a technology for harvesting electricity from the environment. *Nano Letters*, 6(8): 1656–1662. (Cit  en page 17.)
- [Std, 1987] STD, A. (1987). Ieee standard on piezoelectricity. Rapport technique 176. (Cit  en page 96.)
- [Sun *et al.*, 2010] SUN, P., WANG, G., WU, D., ZHU, B., HU, C., LIU, C., DJUTH, F. T., ZHOU, Q. et SHUNG, K. K. (2010). High frequency pmnpt 13 composite

- transducer for ultrasonic imaging application. *Ferroelectrics*, 408:120–128. (Cité en page 23.)
- [Takao *et al.*, 2006] TAKAO, H., SAITO, Y., AOKI, Y. et HORIBUCHI, K. (2006). Microstructural evolution of crystalline-oriented (k0.5na0.5)nbo3 piezoelectric ceramics with a sintering aid of cuo. *Journal of the american ceramic society*, 89(6):1951–1956. (Cité en page 15.)
- [Thomas *et al.*, 2010] THOMAS, P., SATAPATHY, S., DWARAKANATH, K. et VARMA, K. B. R. (2010). Dielectric properties of poly(vinylidene fluoride)/cacu3ti4o12 nanocrystal composite thick films express. *Polym. Lett.*, 4:632–634. (Cité en pages et 37.)
- [Tonischa *et al.*, 2006] TONISCHA, K., CIMALLAA, V., FOERSTERA, C., ROMANUSA, H., AMBACHERA, O. et DONTSOVB, D. (2006). Piezoelectric properties of polycrystalline aln thin films for mems application. *Sensors and Actuators A*, 132:658–663. (Cité en pages , 2 et 17.)
- [Tsang *et al.*, 2008] TSANG, S. H., MA, A. H., KARIM, K. S., PARAMESWARAN, A. et LEUNG, A. M. (2008). Monolithically fabricated polymermems 3axis thermal accelerometers designed for automated wirebonder assembly mems. *IEEE 21st Int. Conf. on Micro Electro Mechanical Systems*, page 880. (Cité en page 21.)
- [Vodafone, 2013] VODAFONE (2013). <http://www.dailymail.co.uk/sciencetech/article-2340142/The-shorts-sleeping-bag-mean-ll-run-mobile-battery-theyre-powered-body-heat.html>. (Cité en pages et 28.)
- [Wang *et al.*, 1998] WANG, D., FOTINICH, Y. et CARMAN, G. P. (1998). Influence of temperature on the electromechanical and fatigue behavior of piezoelectric ceramics. *Journal of applied physics*, 83(10):5342–5350. (Cité en pages , 14, 15 et 27.)
- [Wang *et al.*, 2012] WANG, J.-J., HSU, T.-H., YEH, C.-N., TSAI, J.-W. et SU, Y.-C. (2012). Piezoelectric polydimethylsiloxane films for mems transducers. *J. Micromechanics Microengineering*, 22:015013. (Cité en pages , 26, 27, 33, 46 et 102.)
- [Wang et Song, 2006] WANG, Z. L. et SONG, J. (2006). Piezoelectric nanogenerators based on zinc oxide nanowire arrays. *Science*, 312(5771):242–246. (Cité en pages et 17.)
- [Warren et Richard, 2012] WARREN, C. Y. et RICHARD, G. B. (2012). *Roarks Formulas for Stress and Strain*. (New York : McGraw-Hill). (Cité en page 55.)
- [Wegener et Bauer, 2005] WEGENER, M. et BAUER, S. (2005). Microstorms in cellular polymers : a route to soft piezoelectric transducer materials with engineered macroscopic dipoles. *ChemPhysChem*, 6:1014–1025. (Cité en page 25.)
- [Wegener *et al.*, 2004] WEGENER, M., WIRGES, W., GERHARD-MULTHAUPT, R., DANSACHMÜLLER, M., SCHWÖDIAUER, R., BAUER-GOGONEA, S., BAUER, S.,

- PAAJANEN, M., MINKKINEN, H. et RAUKOLA, J. (2004). Controlled inflation of voids in cellular polymer ferroelectrets : optimizing electromechanical transducer properties. *Appl. Phys. Lett.*, 84(3):392–394. (Cité en pages , 25, 100 et 102.)
- [Xu *et al.*, 2013] XU, B.-X., von SEGGERN, H., ZHUKOV, S. et GROSS, D. (2013). Continuum modeling of charging process and piezoelectricity of ferroelectrets. *J. Appl. Phys.*, 114:094103. (Cité en page 24.)
- [Yang *et al.*, 2009] YANG, Y., TANG, L. et LI, H. (2009). Vibration energy harvesting using macrofiber composites. *Smart Mater. Struct.*, 18:115025. (Cité en pages et 23.)
- [Ye *et al.*, 2013] YE, H., SHAO, W. et ZHEN, L. (2013). Crystallization kinetics and phase transformation of poly (vinylidene fluoride) films incorporated with functionalized batio₃ nanoparticles. *J. Appl. Polym. Sci*, 129:2940–2949. (Cité en page 20.)
- [Zhang *et al.*, 2006] ZHANG, P., XIA, Z., QIU, X., WANG, F. et WU, X. (2006). Influence of charging parameters on piezoelectricity for cellular pp film electrets. *Chin. Phys. Soc.*, 55(2):904–909. (Cité en page 32.)
- [Zhang *et al.*, 2015] ZHANG, W., ZHANG, H., DU, F., SHI, J., JIN, S. et ZENG, Z. (2015). Pull-in analysis of the flat circular cmut cell featuring sealed cavity. *Math. Probl. Eng.*, page e150279. (Cité en page 55.)
- [Zhang *et al.*, 2004] ZHANG, X., HILLENBRAND, J. et SESSLER, G. M. (2004). Improvement of piezoelectric activity of cellular polymers using a double-expansion process. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 37:2146–2150. (Cité en page 32.)
- [Zhang *et al.*, 2010] ZHANG, X., HUANG, J., WANG, X. et XIA, Z. (2010). Piezoelectricity and dynamic characteristics of laminated fluorocarbon films. *IEEE Trans. Dielectrics and Electrical Insulation*, 17:1001–1007. (Cité en pages et 24.)
- [Zhang *et al.*, 2014] ZHANG, X., SESSLER, G. M. et WANG, Y. (2014). Fluoroethylenepropylene ferroelectret films with cross-tunnel structure for piezoelectric transducers and micro energy harvesters. *Journal of applied physics*, 116:074109. (Cité en page 26.)
- [Zhang *et al.*, 2011] ZHANG, Y., WANG, S., LIU, D., ZHANG, Q., WANG, W., REN, B., ZHAO, X. et LUO, H. (2011). Fabrication of angle beam twoelement ultrasonic transducers with pmnpt single crystal and pmnpt/epoxy 13 composite for nde applications. *Sensors Actuators A*, 168:223. (Cité en pages et 23.)
- [Zheng *et al.*, 2008] ZHENG, Q. L., WANG, Z. et XU, Y. (2008). Spaced cantilevers for strain sensing. *Sensors and Actuators A-Physical*, 147:142–149. (Cité en pages 127 et 131.)
- [Zheng et Xu, 2008] ZHENG, Q. L. et XU, Y. (2008). Assymmetric air spaced cantilevers for vibration energy harvesting. *Smart Materials and Structures*, 17:055009. (Cité en pages 127 et 131.)

Annexe A : Relation entre la permittivité d'un diélectrique et la polarisabilité des espèces qui le constituent

Nous avons déjà énoncé que les deux expressions 3.9 et 3.10 de la polarisation font intervenir des grandeurs qui sont à l'échelle microscopique (polarisabilité α et le champ local \vec{E}_l pour l'équation 3.9) et des grandeurs à l'échelle macroscopique (permittivité ε_r et le champ extérieur \vec{E}_0 pour l'équation 3.10). Le lien entre ces deux mondes permet d'établir l'expression de la permittivité d'un diélectrique ε_r (grandeur macroscopique mesurable) en fonction de la polarisabilité des différentes espèces qui le constituent α (grandeur microscopique non-mesurable). Nous pouvons faire des évaluations dans certains cas particuliers.

Cas d'un milieu dilué

Dans le cas où le milieu étudié est dilué, tel un gaz diatomique comme O_2 ou N_2 , l'interaction entre les diverses espèces polarisables peut être négligée et le champ localement ressenti est alors égal au champ extérieur appliqué au matériau \vec{E}_0 . Ainsi, à partir des équations 3.9 et 3.10, nous exprimons aisément la permittivité relative par l'équation A-1.

$$\varepsilon_r = 1 + \frac{N\alpha}{\varepsilon_0} \quad (\text{A-1})$$

Cas d'un milieu dense

Dans le cas d'un milieu dense, l'interaction entre les diverses espèces polarisables n'est plus négligeable. Il faut donc tenir compte du champ ressenti par une espèce donnée, mais généré par la polarisation des autres espèces environnantes. L'approximation de Lorentz en donne une assez bonne évaluation dans le cas d'un cristal ionique. Si nous "creusons" fictivement dans le matériau une cavité de rayon bien supérieur à la taille des unités qui la composent mais bien plus petite que la taille du matériau, le champ local qui y règne vaut alors d'après l'équation A-2.

$$\vec{E}_l = \vec{E}_0 + \frac{\vec{P}}{3\varepsilon_0} \quad (\text{A-2})$$

Il peut être assimilé au champ ressenti par la molécule située à cet endroit à cause des espèces environnantes. Ainsi, des équations 3.9 et 3.10, nous obtenons l'équation A-3 dite de Clausius-Mossoti.

$$\frac{\varepsilon_r - 1}{\varepsilon_r + 2} = \frac{N\alpha}{3\varepsilon_0} \quad (\text{A-3})$$

La question du champ local reste un problème qui n'est pas totalement résolu. Ces modèles restent des approximations.

Pour conclure, nous constatons que dans les deux cas, la permittivité dépend essentiellement de deux paramètres : la polarisabilité et la densité des espèces polarisables.

Annexe B : Fonction de réponse diélectrique

Pour un diélectrique homogène, isotrope et linéaire, on peut définir la fonction de réponse diélectrique $f(t)$ qui représente le retard temporel de la réponse d'un milieu diélectrique à une excitation électrique spécifique.

Soit en considérant la distribution de Dirac δ et une impulsion électrique tel que $\vec{E}\delta = \text{constante}$, nous pouvons exprimer la dépendance temporelle de la polarisation $\vec{P}(t)$ d'un diélectrique telle qu'elle est donnée par l'équation B-1.

$$\vec{P}(t) = \epsilon_0 \vec{E} \delta f(t) \quad (\text{B-1})$$

Selon Jonscher, le principe de causalité implique qu'il ne peut y avoir de réaction avant l'action, donc, qui s'exprime selon l'équation B-2.

$$f(t) \equiv 0 \text{ pour } t < 0 \quad (\text{B-2})$$

De plus, nous excluons les matériaux ayant une polarisation permanente (comme les ferroélectriques), ce qui se traduit par l'équation B-3.

$$\lim_{t \rightarrow +\infty} \vec{P}(t) = \lim_{t \rightarrow +\infty} f(t) = 0 \quad (\text{B-3})$$

En considérant le champ électrique $\vec{E}(t)$ comme la somme d'impulsion électrique $\vec{E}(t)dt$ et en appliquant le théorème de superposition, nous pouvons réécrire l'équation 3.15 pour exprimer la polarisation comme une convolution.

$$P(t) = \epsilon_0 \int_0^\infty f(\tau) E(t - \tau) d\tau \quad (\text{B-4})$$

En omettant la notation vectorielle et en appliquant la loi d'Ampère exprimant la densité de courant total traversant le diélectrique comme la somme de la densité de courant de conduction directe et de la densité de courant de déplacement comme le montre l'équation B-5.

$$J(t) = \sigma_{DC} E(t) + \frac{dD}{dt} \quad (\text{B-5})$$

Avec σ_{DC} , la conductivité directe du diélectrique et en combinant les équations 3.14, (B-4) et (B-5), nous obtenons l'expression de la densité de courant total $J(t)$

traversant le matériau diélectrique en fonction du champ électrique $E(t)$ tel que le montre l'équation B-6.

$$J(t) = \sigma_{DC}E(t) + \varepsilon_0 \frac{\partial}{\partial t} \left(E(t) + \int_0^\infty f(\tau)E(t - \tau) d\tau \right) \quad (\text{B-6})$$

Nous notons que le premier terme de cette équation est donc relatif à la densité du courant de conduction directe du diélectrique et que le deuxième terme est relatif à la densité du courant de déplacement diélectrique qui est lui-même la somme des polarisations rapides dues aux charges libres et des polarisations lentes dues aux charges liées.

Annexe C : Le modèle de l'électron élastiquement lié

Dans ce modèle, nous supposons qu'un électron subit de la part du noyau atomique une force de rappel en $-k\vec{r}$. En outre, dans son mouvement (toujours confiné au voisinage de l'atome), il est aussi soumis à une force de frottement en $-\lambda\vec{v}$. Cette force traduit une nécessaire dissipation d'énergie sous forme électromagnétique. L'équation du mouvement de l'électron soumis à l'action d'un champ électromagnétique s'écrit sous la forme de l'équation C-1.

$$m\frac{d\vec{v}}{dt} = -k\vec{r} - \lambda\vec{v} - e\vec{E} \quad (\text{C-1})$$

Nous supposons de plus que le champ exciteur est sinusoïdal qui se met sous la forme de l'équation C-2 en notation complexe.

$$\vec{E} = \vec{E}_0 e^{-j\omega t} \quad (\text{C-2})$$

L'équation C-1 peut être écrite sous la forme de l'équation C-3.

$$(-m\omega^2 + k - j\omega\lambda)\vec{r} = -e\vec{E} \quad (\text{C-3})$$

Ou encore, en introduisant une fréquence propre de l'oscillateur que constitue le système électron-noyau par la relation $\frac{k}{m} = \omega_0^2$ et en posant $\frac{\lambda}{m} = \frac{1}{\tau}$, nous obtenons l'équation C-4 qui exprime le vecteur position.

$$\vec{r} = -\frac{e\vec{E}}{m(\omega_0^2 - \omega^2 - j\frac{\omega}{\tau})} \quad (\text{C-4})$$

Appliquons ce modèle à l'atome d'hydrogène formé d'un proton "central" en $r = 0$ et d'un électron. En l'absence de champ extérieur appliqué, la position de l'électron, dans ce modèle, est telle que $\vec{r} = 0$. L'atome ne possède aucun moment dipolaire. En revanche, en présence de \vec{E} , le moment dipolaire \vec{p} acquis par le système proton-électron est exprimé par l'équation C-5.

$$\vec{p} = -e\vec{r} = \frac{e^2}{m(\omega_0^2 - \omega^2 - j\frac{\omega}{\tau})}\vec{E} \quad (\text{C-5})$$

Dans ce modèle, en supposant que les électrons du milieu concernés par la polarisation ont une densité n , le vecteur polarisation est donc mis sous la forme de l'équation C-6.

$$\vec{P} = n \vec{p} = -ne \vec{r} \quad (\text{C-6})$$

Nous admettons que la linéarité suggérée par l'équation 3.12 existe pour certains milieux qui sont dits linéaires, homogènes et isotropes (LHI).

Pour un diélectrique LHI, la relation de proportionnalité entre \vec{P} et \vec{E} définit la susceptibilité électrique du milieu, qui est une grandeur structurellement construite sans unités. Cette relation de proportionnalité est donnée par l'équation C-7.

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \chi_e \vec{E} \quad (\text{C-7})$$

Or $\varepsilon_r^* = 1 + \chi_e$, alors, d'après les équations C-6 et C-7, nous pouvons écrire la permittivité relative complexe du milieu sous la forme de l'équation C-8.

$$\varepsilon_r^* = 1 + \frac{ne^2}{m\varepsilon_0(\omega_0^2 - \omega^2 - j\frac{\omega}{\tau})} \quad (\text{C-8})$$

Annexe D : Polarisation dipolaire en champ électrique alternatif

Sous l'action d'un champ électrique \vec{E} , les moments dipolaires permanents \vec{p}_0 tendent à s'orienter parallèlement à \vec{E} pour diminuer l'énergie d'interaction $W = -\vec{p}_0 \cdot \vec{E}$. Ce phénomène rentre en compétition avec l'agitation thermique qui tend à rendre la répartition. La relation entre la polarisation dipolaire résultante \vec{P}_{dip} et \vec{E} est linéaire du type $\vec{P}_{dip} = n\varepsilon_0\alpha_{dip}\vec{E}$ où α_{dip} est la polarisabilité dipolaire et qui vaut $\alpha_{dip} = \frac{p_0^2}{3\varepsilon_0k_bT}$.

Lorsque nous passons d'un champ électrique nul à un champ électrique statique \vec{E} , la polarisation dipolaire \vec{P}_{dip} s'établit avec un certain retard. Cet effet a été modélisé par Debye en 1912 par l'équation 5.8.

$$\tau \frac{d\vec{P}_{dip}}{dt} + \vec{P}_{dip} = n \left(\frac{p_0^2}{3\varepsilon_0k_bT} \right) \vec{E}$$

τ est le temps de relaxation.

En présence d'un champ électrique alternatif, $\vec{E} = \vec{E}_0 e^{j\omega t}$, sachant que la polarisation \vec{P}_{dip} obéit à l'équation 5.8, nous écrivons l'équation 5.8.

$$\vec{P}_{dip}(1 + j\omega\tau) = n \frac{p_0^2}{3k_bT} \vec{E}$$

Et la polarisabilité s'écrit sous la forme de l'équation D-1.

$$\alpha_{dip} = \frac{p_0^2}{(1 + j\omega\tau)(3k_bT)} \vec{E} \quad (D-1)$$

La polarisation est donnée par l'équation D-2.

$$\vec{P} = n\varepsilon_0(\alpha_0 + \alpha_{dip})\vec{E} \quad (D-2)$$

$n\varepsilon_0\alpha_0\vec{E}$ est la polarisation induite et $\vec{P} = \varepsilon_0(\varepsilon_r - 1)\vec{E}$. Nous obtenons alors l'équation D-3 de la permittivité diélectrique relative complexe.

$$\varepsilon_r^*(\omega) = 1 + \frac{np_0^2}{(1 + j\omega\tau)(3\varepsilon_0k_bT)} + n\alpha_0 \quad (D-3)$$

avec $\begin{cases} n \text{ est la densité des dipôles permanents.} \\ k_b \text{ est la constante de Boltzmann.} \end{cases}$

Étudions les deux cas limites suivants :

• $\omega = 0$

Alors $\varepsilon_r^* \rightarrow \varepsilon_r^S = 1 + \frac{np_0^2}{(3\varepsilon_0 k_b T)} + n\alpha_0$ qui est la polarisation statique.

• $\omega \gg \tau^{-1}$

Alors $\varepsilon_r^* \rightarrow \varepsilon_r^\infty = 1 + n\alpha_0$ qui est la polarisation électronique et ionique.

Nous pouvons finalement écrire la permittivité diélectrique relative complexe sous la forme de l'équation D-4.

$$\varepsilon_r^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_S - \varepsilon_\infty}{1 + j\omega\tau} \quad (\text{D-4})$$

Annexe E : Rappel de la théorie des poutres

Puisque les modèles théoriques des poutres conventionnelles ne peuvent pas être appliquées d'une façon directe à notre configuration à cause du gap d'air entre la poutre mécanique et l'élément piézoélectrique, il est nécessaire de développer un nouveau modèle pour décrire les propriétés mécaniques de la nouvelle structure. La résistance des matériaux est la technique utilisée pour analyser le comportement des matériaux et les structures mécaniques [Hearn, 1997]. Grâce à cette méthode, nous sommes capables de prédire et calculer théoriquement le comportement de certaines structures sous certaines conditions (la charge, les conditions aux limites,...etc). Une fois que la théorie et le modèle analytique de la structure sont établis, ils peuvent être utilisés pour analyser, modéliser et vérifier les structures dans n'importe quelles applications.

Contraintes et déformations

La contrainte est le rapport entre la force appliquée F et la section surfacique A , elle est définie comme une force par unité de surface. La contrainte engendrée par une force normale appliquée au plan est notée comme une contrainte normale et exprimée par l'équation E-1.

$$T_n = \frac{F_n}{A} \quad (\text{E-1})$$

Où F_n est la force normale au plan présentée dans la figure E1.

Tandis que la contrainte engendrée par une force de cisaillement (force parallèle au plan) appliquée au plan est notée comme une contrainte de cisaillement et elle est exprimée par l'équation E-2.

$$T_p = \frac{F_p}{A} \quad (\text{E-2})$$

Où F_p est la force de cisaillement appliquée et présentée dans la figure E1.

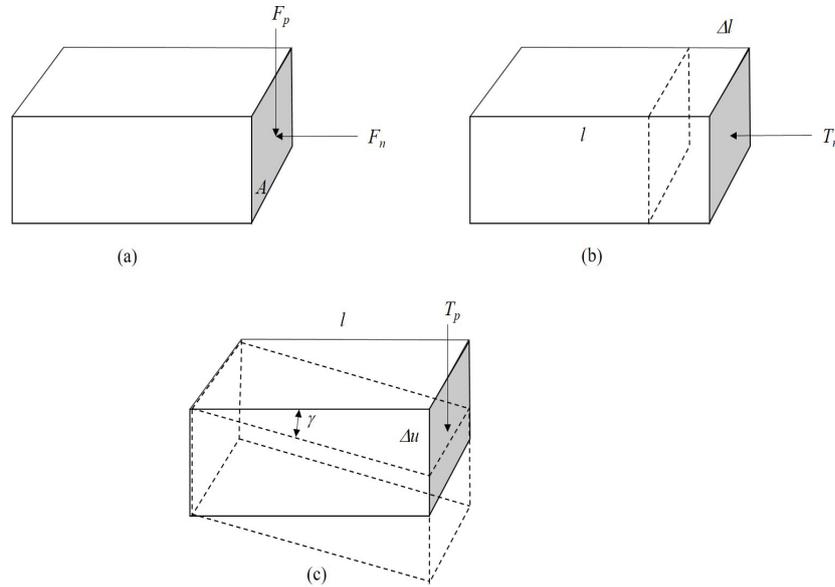


FIGURE E1: Schématisation des forces normales et de cisaillement sur une surface plane d'un solide parallélépipédique

La déformation du solide est définie à partir des contraintes. Similirairement aux classifications des contraintes normale et par cisaillement, il existe des déformations normales et par cisaillement correspondant aux deux types de contraintes. Mathématiquement, la déformation normale est définie comme étant le rapport entre la variation de la longueur par la longueur initiale du bloc et elle est exprimée par l'équation E-3.

$$s_n = \frac{\Delta l}{l} \quad (\text{E-3})$$

Δl est le changement de la longueur due à la contrainte normale et l est la valeur de la longueur initiale comme elle est schématisée dans la figure E1 (b).

La déformation par cisaillement est définie comme étant le rapport entre le déplacement par cisaillement due à la contrainte par cisaillement par la longueur du bloc, qui est exprimée par l'équation E-4.

$$\gamma_p = \frac{\Delta u}{l} \quad (\text{E-4})$$

Δu est le déplacement par cisaillement comme il est schématisé dans la figure E1 (c).

Quand le déplacement est suffisamment faible comparé à la longueur, la déformation par cisaillement est égal à l'angle de cisaillement. Beaucoup de métaux ont

des déformations qui sont proportionnelles aux contraintes sans limites. Le rapport entre la contrainte et la déformation normale est définie comme étant le module de Young qui s'exprime par l'équation E-5.

$$E = \frac{T_n}{s_n} \quad (\text{E-5})$$

Théorie d'Euler-Bernoulli pour les poutres

Pour comprendre le comportement d'une poutre soumise à un mouvement de flexion, un élément infinitésimal de la poutre est analysée par la théorie d'Euler-Bernoulli relative aux poutres. Un élément infinitésimal de la poutre faisant l'objet d'une flexion due à un moment de flexion M est décrit par la figure E2. Si nous considérons que la surface de la section est toujours plane après flexion, le déplacement dans la direction x des points de la surface peut être exprimée par l'équation E-6.

$$u_x = -z\psi(x) \quad (\text{E-6})$$

z est l'axe vertical au plan neutre, $\psi(x)$ est l'angle de flexion du plan tranchant comme il est schématisé sur la figure E2.

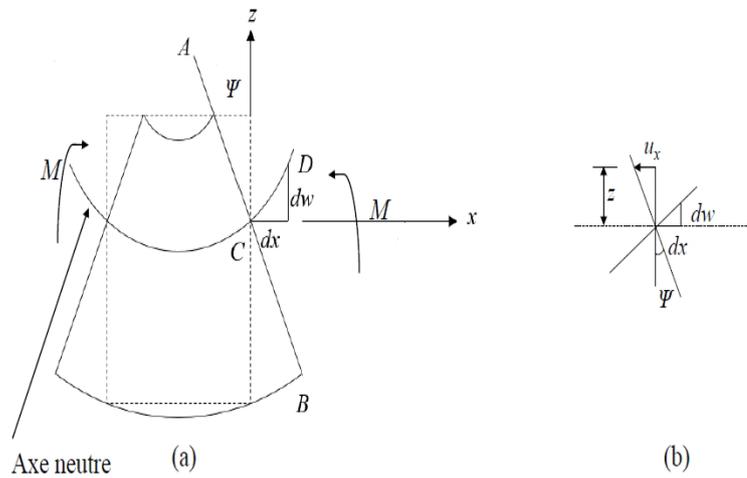


FIGURE E2: Coupe infinitésimale de la poutre subissant une flexion (a) et relation entre l'angle de flexion et le déplacement de la poutre dans le plan de la coupe dans la direction x .

Si le plan AB reste perpendiculaire à CD , nous avons l'équation E-7.

$$\psi = \frac{dw}{dx} \quad (\text{E-7})$$

dw est la déflexion verticale infinitésimale de la poutre et dx est la longueur infinitésimale dans la direction x .

Donc, le déplacement dans la direction x peut être exprimé par l'équation E-8.

$$u_x = -z \frac{dw}{dx} \quad (\text{E-8})$$

La déformation normale (dans la direction x) est le rapport entre le changement de la longueur par la longueur originale qui peut être exprimée par l'équation E-9.

$$s_{xx} = \frac{\partial u_x}{\partial x} \quad (\text{E-9})$$

Combinant les deux équations E-8 et E-9, nous obtenons l'équation E-10.

$$s_{xx} = \frac{\partial u_x}{\partial x} = -z \frac{d^2w}{dx^2} \quad (\text{E-10})$$

Donc, la contrainte normale s'écrit comme étant l'équation E-11.

$$T_{xx} = -Ez \frac{d^2w}{dx^2} \quad (\text{E-11})$$

Puisque le moment de flexion sur la surface coupée peut être calculée comme l'intégrale du moment de flexion engendré par la contrainte normale sur toute la surface comme il est illustré sur la figure E3, nous avons l'équation E-12.

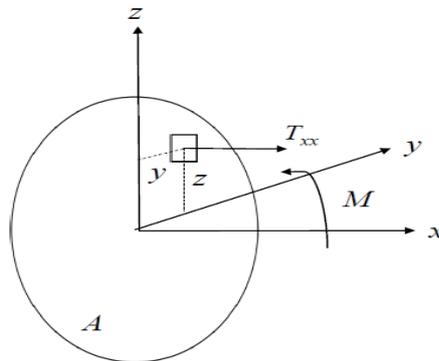


FIGURE E3: Illustration du stress normal et le moment de flexion pour la coupe d'une poutre.

$$M = - \int T_{xx} z dA = E \frac{d^2 w}{dx^2} \int z^2 dA = EI \frac{d^2 w}{dx^2} \quad (\text{E-12})$$

Où I est le second moment d'inertie.

Combinant les deux équations E-11 et E-12, la contrainte normale peut être simplifiée et écrite sous la forme de l'équation E-13.

$$T_{xx} = - \frac{Mz}{I} \quad (\text{E-13})$$

Notons que la dérivée première du moment de flexion selon l'axe des x est la force de cisaillement, nous avons l'équation E-14.

$$\frac{dM}{dx} = V(x) \quad (\text{E-14})$$

De plus, la dérivée première de la force de cisaillement est la force distribuée qui est définie par la force par unité de longueur exprimée par l'équation E-15.

$$\frac{dV}{dx} = q_z(x) \quad (\text{E-15})$$

Donc, à partir des équations E-13, E-14 et E-15, nous pouvons écrire l'équation E-16.

$$EI \frac{d^4 w}{dx^4} = q_z(x) \quad (\text{E-16})$$

Cette équation est connue sous le nom de l'équation d'Euler-Bernouilli [Hearn, 1997].

Flexion de la poutre

Considérons une poutre avec une terminaison encastree et l'autre faisant l'objet d'une force verticale comme il est scématisé sur la figure E4.

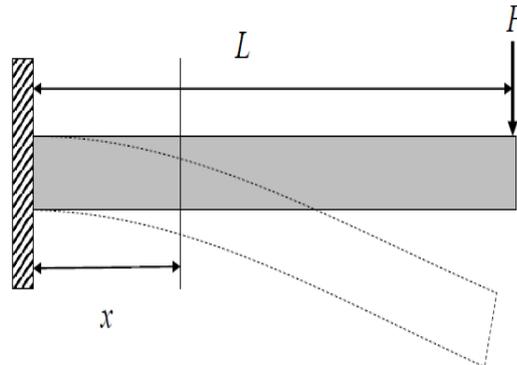


FIGURE E4: Flexion d'une poutre conventionnelle encastré-libre.

A une position x , le moment de flexion s'écrit sous la forme de l'équation E-17.

$$M(x) = F(L - x) \quad (\text{E-17})$$

En se basant sur l'équation E-12, nous obtenons l'équation E-18.

$$\frac{d^2w(x)}{dx^2} = \frac{M(x)}{EI} = \frac{F(L - x)}{EI} \quad (\text{E-18})$$

Si nous l'intégrons sur la longueur de 0 à x , la pente de la poutre à une position x peut être calculée à partir de l'équation E-19.

$$\frac{dw(x)}{dx} = \int_0^x \frac{F(L - x)}{EI} dx = \frac{F(Lx - \frac{x^2}{2})}{EI} \quad (\text{E-19})$$

Avec les conditions aux limites

$$\frac{dw(0)}{dx} = 0$$

Si nous intégrons la pente une autre fois sur la longueur de 0 à x , la déflexion verticale de la poutre peut être déterminée à la position x par l'équation E-20.

$$w(x) = \int_0^x \frac{F(Lx - \frac{x^2}{2})}{EI} dx = \frac{F(L\frac{x^2}{2} - \frac{x^3}{6})}{EI} \quad (\text{E-20})$$

Avec les conditions aux limites

$$w(0) = 0$$

Donc, en substituant $x = L$ dans les équations E-19 et E-20, nous pouvons calculer la pente et la déflexion verticale de la poutre à la terminaison libre qui sont données respectivement par les équations E-21 et E-22.

$$\frac{dw(L)}{dx} = \frac{FL^2}{2EI} \quad (\text{E-21})$$

$$w(L) = \frac{FL^3}{3EI} \quad (\text{E-22})$$

Nous avons rappelé les concepts fondamentaux de la mécanique ainsi que les équations de base qui sont utiles pour le développement du modèle théorique de la configuration de poutres avec un gap d'air.