



**HAL**  
open science

# Fabrication additive de matériaux électroactifs pour applications à la mécatronique

Florent Ganet-Mattei

► **To cite this version:**

Florent Ganet-Mattei. Fabrication additive de matériaux électroactifs pour applications à la mécatronique. Mécanique [physics.med-ph]. Université de Lyon, 2018. Français. NNT : 2018LYSEI011 . tel-02124607

**HAL Id: tel-02124607**

**<https://theses.hal.science/tel-02124607>**

Submitted on 9 May 2019

**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.



N° d'ordre NNT :  
2018LYSEI011

**THÈSE de DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE LYON**  
opérée au sein de  
**l'Institut National des Sciences Appliquées de Lyon**

**École Doctorale N° ED162**  
**Mécanique – Énergétique - Génie Civil - Acoustique**

**Spécialité/ discipline de doctorat** : Acoustique

Soutenue publiquement le 05/02/2018, par :  
**Florent GANET**

---

**Fabrication additive de matériaux électroactifs pour  
applications à la mécatronique**

---

Devant le jury composé de :

**Rapporteurs**

CARMONA, Jean-Claude  
CHARMETANT, Adrien  
DANTRAS, Éric

Professeur des Universités – ENSAM  
Docteur – Ingénieur de Recherche – NEXANS  
Maitre de Conférences – HDR – Université Paul Sabatier

**Présidente du jury**

VIDAL-SALLÉ, Emmanuelle

Professeure des Universités – INSA Lyon LaMCoS

**Représentant de l'école doctorale**

BOISSE, Philippe

Professeur des Universités – INSA Lyon LaMCoS

**Directeur de thèse**

LEBRUN, Laurent

Professeur des Universités – INSA Lyon LGEF

**Codirecteurs de thèse**

CAPSAL, Jean-Fabien  
COTTINET, Pierre-Jean

Maitre de Conférences – INSA Lyon LGEF  
Maitre de Conférences – HDR – INSA Lyon LGEF

## Département FEDORA – INSA Lyon - Ecoles Doctorales – Quinquennal 2016-2020

SIGLE	ÉCOLE DOCTORALE	NOM ET COORDONNEES DU RESPONSABLE
<b>CHIMIE</b>	<b>CHIMIE DE LYON</b> <a href="http://www.edchimie-lyon.fr">http://www.edchimie-lyon.fr</a> Sec. : Renée EL MELHEM Bât. Blaise PASCAL, 3e étage <a href="mailto:secretariat@edchimie-lyon.fr">secretariat@edchimie-lyon.fr</a> INSA : R. GOURDON	M. Stéphane DANIELE Institut de recherches sur la catalyse et l'environnement de Lyon IRCELYON-UMR 5256 Équipe CDFA 2 Avenue Albert EINSTEIN 69 626 Villeurbanne CEDEX <a href="mailto:directeur@edchimie-lyon.fr">directeur@edchimie-lyon.fr</a>
<b>E.E.A.</b>	<b>ÉLECTRONIQUE, ÉLECTROTECHNIQUE, AUTOMATIQUE</b> <a href="http://edeea.ec-lyon.fr">http://edeea.ec-lyon.fr</a> Sec. : M.C. HAVGOUDOUKIAN <a href="mailto:ecole-doctorale.eea@ec-lyon.fr">ecole-doctorale.eea@ec-lyon.fr</a>	M. Gérard SCORLETTI École Centrale de Lyon 36 Avenue Guy DE COLLONGUE 69 134 Écully Tél : 04.72.18.60.97 Fax 04.78.43.37.17 <a href="mailto:gerard.scorletti@ec-lyon.fr">gerard.scorletti@ec-lyon.fr</a>
<b>E2M2</b>	<b>ÉVOLUTION, ÉCOSYSTÈME, MICROBIOLOGIE, MODÉLISATION</b> <a href="http://e2m2.universite-lyon.fr">http://e2m2.universite-lyon.fr</a> Sec. : Sylvie ROBERJOT Bât. Atrium, UCB Lyon 1 Tél : 04.72.44.83.62 INSA : H. CHARLES <a href="mailto:secretariat.e2m2@univ-lyon1.fr">secretariat.e2m2@univ-lyon1.fr</a>	M. Fabrice CORDEY CNRS UMR 5276 Lab. de géologie de Lyon Université Claude Bernard Lyon 1 Bât. Géode 2 Rue Raphaël DUBOIS 69 622 Villeurbanne CEDEX Tél : 06.07.53.89.13 <a href="mailto:cordey@univ-lyon1.fr">cordey@univ-lyon1.fr</a>
<b>EDISS</b>	<b>INTERDISCIPLINAIRE SCIENCES-SANTÉ</b> <a href="http://www.ediss-lyon.fr">http://www.ediss-lyon.fr</a> Sec. : Sylvie ROBERJOT Bât. Atrium, UCB Lyon 1 Tél : 04.72.44.83.62 INSA : M. LAGARDE <a href="mailto:secretariat.ediss@univ-lyon1.fr">secretariat.ediss@univ-lyon1.fr</a>	Mme Emmanuelle CANET-SOULAS INSERM U1060, CarMeN lab, Univ. Lyon 1 Bâtiment IMBL 11 Avenue Jean CAPELLE INSA de Lyon 69 621 Villeurbanne Tél : 04.72.68.49.09 Fax : 04.72.68.49.16 <a href="mailto:emmanuelle.canet@univ-lyon1.fr">emmanuelle.canet@univ-lyon1.fr</a>
<b>INFOMATHS</b>	<b>INFORMATIQUE ET MATHÉMATIQUES</b> <a href="http://edinfomaths.universite-lyon.fr">http://edinfomaths.universite-lyon.fr</a> Sec. : Renée EL MELHEM Bât. Blaise PASCAL, 3e étage Tél : 04.72.43.80.46 Fax : 04.72.43.16.87 <a href="mailto:infomaths@univ-lyon1.fr">infomaths@univ-lyon1.fr</a>	M. Luca ZAMBONI Bât. Braconnier 43 Boulevard du 11 novembre 1918 69 622 Villeurbanne CEDEX Tél : 04.26.23.45.52 <a href="mailto:zamboni@maths.univ-lyon1.fr">zamboni@maths.univ-lyon1.fr</a>
<b>Matériaux</b>	<b>MATÉRIAUX DE LYON</b> <a href="http://ed34.universite-lyon.fr">http://ed34.universite-lyon.fr</a> Sec. : Marion COMBE Tél : 04.72.43.71.70 Fax : 04.72.43.87.12 Bât. Direction <a href="mailto:ed.materiaux@insa-lyon.fr">ed.materiaux@insa-lyon.fr</a>	M. Jean-Yves BUFFIÈRE INSA de Lyon MATEIS - Bât. Saint-Exupéry 7 Avenue Jean CAPELLE 69 621 Villeurbanne CEDEX Tél : 04.72.43.71.70 Fax : 04.72.43.85.28 <a href="mailto:jean-yves.buffiere@insa-lyon.fr">jean-yves.buffiere@insa-lyon.fr</a>
<b>MEGA</b>	<b>MÉCANIQUE, ÉNERGÉTIQUE, GÉNIE CIVIL, ACOUSTIQUE</b> <a href="http://edmega.universite-lyon.fr">http://edmega.universite-lyon.fr</a> Sec. : Marion COMBE Tél : 04.72.43.71.70 Fax : 04.72.43.87.12 Bât. Direction <a href="mailto:mega@insa-lyon.fr">mega@insa-lyon.fr</a>	M. Philippe BOISSE INSA de Lyon Laboratoire LAMCOS Bâtiment Jacquard 25 bis Avenue Jean CAPELLE 69 621 Villeurbanne CEDEX Tél : 04.72.43.71.70 Fax : 04.72.43.72.37 <a href="mailto:philippe.boisse@insa-lyon.fr">philippe.boisse@insa-lyon.fr</a>
<b>ScSo</b>	<b>ScSo*</b> <a href="http://ed483.univ-lyon2.fr">http://ed483.univ-lyon2.fr</a> Sec. : Viviane POLSINELLI Brigitte DUBOIS INSA : J.Y. TOUSSAINT Tél : 04.78.69.72.76 <a href="mailto:viviane.polsinelli@univ-lyon2.fr">viviane.polsinelli@univ-lyon2.fr</a>	M. Christian MONTES Université Lyon 2 86 Rue Pasteur 69 365 Lyon CEDEX 07 <a href="mailto:christian.montes@univ-lyon2.fr">christian.montes@univ-lyon2.fr</a>

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

## Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier mes encadrants, Laurent LEBRUN, Pierre-Jean COTTINET et Jean-Fabien CAPSAL du temps qu'ils m'ont consacré, de leur précieuse aide et de leurs encouragements. Je les remercie aussi d'avoir toujours été positifs et de m'avoir toujours orienté dans la bonne direction.

J'aimerais aussi remercier toute l'équipe du LGEF – en particulier Évelyne, Quyen et David – non seulement pour l'aide qu'ils ont pu m'apporter au fil de ces années, mais surtout pour l'ambiance qu'ils font régner au sein du laboratoire. Grâce à eux, c'est un endroit où il fait bon et travailler et échanger sur tous les sujets, même les moins sérieux.

Enfin, j'adresse un remerciement tout particulier à ma femme, Lucrece, pour ses encouragements, son aide et son soutien indéfectible de manière générale et un merci à tous mes proches – famille et amis.

## Table des matières

Remerciements .....	3
Introduction .....	9
Chapitre 1. Résumé des activités de recherche .....	10
I. Organisation des activités de recherche .....	10
II. Liste des publications .....	11
II.1. Revues Internationales à Comité de Lecture .....	11
II.2. Conférences Internationales avec Actes .....	11
III. Compétences développées dans le cadre de la recherche .....	12
III.1. Ingénieur maturation (octobre 2014-aout 2015) .....	12
III.1.1. Environnement technique .....	12
III.1.2. Contexte et objectifs du projet .....	12
III.1.3. Réalisations .....	13
III.1.4. Résultats .....	13
III.1.5. Bilan personnel .....	14
III.2. Ingénieur recherche (septembre 2015- janvier 2017) .....	14
III.2.1. Environnement technique .....	14
III.2.2. Contexte et objectifs du projet .....	14
III.2.3. Réalisations .....	14
III.2.4. Résultats .....	14
III.2.5. Bilan personnel .....	15
III.3. Ingénieur recherche (février 2017- en cours) .....	15
III.3.1. Environnement technique .....	15
III.3.2. Contexte et objectifs du projet .....	15
III.3.3. Réalisations .....	16
III.3.4. Résultats .....	16
III.3.5. Bilan personnel .....	16
IV. Synthèse sur la prise de compétences par la recherche .....	16
Chapitre 2. Fabrication additive de matériaux électroactifs pour la mécatronique.....	17
I. Fabrication additive et électronique, nouveaux vecteurs d'intégration pour la mécatronique .....	17
I.1. La fabrication additive et l'électronique imprimée : une nouvelle révolution pour la mécatronique ? .....	17
I.2. Pourquoi la fabrication additive ou l'impression pour la mécatronique ? .....	17
I.3. Objectif et démarche scientifique des travaux de recherche.....	19
Chapitre 3. L'impression de capteurs de grandeurs mécaniques de type résistif.....	21
I. Réalisation de capteurs de grandeur mécanique .....	21
I.1. Les besoins des acteurs du marché .....	21
I.2. Généralité sur les méthodes d'impression .....	21
II. Capteurs piézorésistifs.....	23
II.1.1. État de l'art sur les capteurs résistifs de déformation .....	23
II.1.2. Effet piézorésistif.....	23
II.1.3. Les matériaux à effet piézorésistif.....	24
II.1.3.1. Les matériaux semi-conducteurs.....	24
II.1.3.2. Les matériaux conducteurs .....	26
II.1.3.3. Comparaison des technologies.....	26
III. Mise en œuvre par impression et caractérisation .....	27
III.1. Les paramètres clés de l'impression par jet d'encre .....	27
III.1.1. Introduction à l'impression par jet d'encre .....	27
III.1.2. Sélection de la tête d'impression .....	28

III.1.2.1.	Configuration de l'actionneur piézoélectrique .....	29
III.1.2.2.	Configuration multibuses ou monobuse .....	29
III.1.2.3.	Les paramètres clés des têtes d'impression multibuses.....	30
III.1.2.4.	Les propriétés de l'encre et du substrat .....	32
III.1.2.5.	La plateforme d'impression du LGEF.....	33
III.2.	Encre conductrice .....	38
III.3.	Application des capteurs piézorésistifs imprimés .....	41
III.3.1.	Caractérisation des jauges résistives imprimées .....	41
III.3.2.	Contrôle de santé de structure type arme de poing .....	44
IV.	Synthèse sur l'impression d'encre conductrice .....	46
Chapitre 4.	Application au contrôle de forme .....	48
I.	Utilisation des polymères électroactifs pour le contrôle de forme.....	48
I.1.	Classification des polymères électroactifs .....	48
I.1.1.	La famille électronique .....	48
I.1.2.	La famille ionique.....	49
I.1.3.	Principales caractéristiques des deux familles.....	51
I.2.	Les paramètres rentrant en compte dans la conversion .....	52
II.	Développement d'un nouveau matériau.....	52
II.1.	Sélection de la matrice .....	53
II.1.1.	Synthèse des méthodes pour augmenter les propriétés électroactives .....	53
II.1.1.1.	Composite avec des particules dispersées aléatoirement.....	53
II.1.1.2.	Particules diélectriques .....	53
II.1.1.3.	Particules conductrices ou semi-conductrices .....	54
II.1.2.	Synthèse de nouveaux polymères .....	54
II.1.3.	Comparaison des méthodes .....	55
II.2.	Méthode développée au LGEF.....	55
III.	Mise en application autour de différents secteurs .....	58
III.1.	Application médicale pour la réalisation de cathéters et fils-guide intelligents. 58	
III.1.1.	État de l'art et besoin du monde médical en fonctions mécatroniques.....	58
III.1.1.1.	État de l'art synthétique sur la chirurgie mini-invasive cardiovasculaire	58
III.1.1.2.	Les besoins des chirurgiens cardiovasculaires .....	59
III.1.2.	Présentation du prototype de fil-guide à l'échelle laboratoire .....	61
III.1.2.1.	Principe de fonctionnement du fil-guide intelligent.....	61
III.1.2.2.	Réalisation pratique du fil-guide électroactif et analyse des résultats....	64
III.1.2.3.	Synthèse et futurs développements sur le projet de fil-guide intelligent	71
III.2.	Rendu haptique pour les interfaces personne-machine .....	71
III.2.1.	Contexte de l'étude sur le rendu haptique.....	71
III.2.2.	Évaluation des propriétés haptiques des matériaux du LGEF .....	74
IV.	Synthèse des actions effectuées autour des polymères électrostrictifs .....	79
Conclusion et synthèse sur les actions de recherche autour de la fabrication additive de matériaux électroactifs pour la mécatronique .....		81
Références Bibliographiques.....		82
Annexe 1 .....		87
Annexe 2 .....		103
Annexe 3 .....		113
Annexe 4 .....		126
Annexe 5 .....		127

## Liste des figures

Figure 1 : Présentation synthétique des activités de recherche .....	10
Figure 2 : Données bibliométriques .....	11
Figure 3 : représentation de la déformation d'une extrémité distale de fil-guide ou d'un cathéter en utilisation dans une procédure de chirurgie cardiaque. ....	12
Figure 4 : Visuel sur l'électronique imprimée : (a) substrat flexible, (b) substrat 3D (extrait de [3]).....	18
Figure 5 : Principe de fonctionnement de quelques techniques d'impression : (a) la méthode LIFT, (b) par aérosol, (c) par jet d'encre (extrait de [12]) .....	22
Figure 6 : Structure type composite métal-isolant (extrait de [14]) .....	24
Figure 7 : Coefficient de piézorésistance (en $10^{-11} \text{ Pa}^{-1}$ ) dans le plan (100) pour du silicium de type N (a) et P (b) (extrait de [16]).....	25
Figure 8 : Présentation des jauges semi-conductrices à brins découpés dans le monocristal de silicium (extrait de de [17]).....	25
Figure 9 : Exemple de structure à jauge diffusée (extrait de [18]).....	26
Figure 10 : Facteur de jauge en fonction de la gamme de déformation .....	27
Figure 11 : Organigramme des technologies Jet d'encre (extrait de [12]).....	28
Figure 12 : Principe de fonctionnement d'une tête piézoélectrique ( extrait de [19]) .....	28
Figure 13 : Les différentes architectures d'actionneurs piézoélectriques ( extrait de [21]).....	30
Figure 14 : Photographie de la plateforme d'impression du LGEF .....	34
Figure 15 : Plateforme d'impression du LP 50 du LGEF .....	35
Figure 16 : Tête d'impression Spectra S class .....	37
Figure 17 : Réservoir de la LP-50 .....	37
Figure 18 : Schéma illustrant la forme de l'impulsion électrique et la variation de la pression au niveau de l'orifice.....	38
Figure 19 : Illustration schématique du frittage des nanoparticules d'argent (extrait de [25])	40
Figure 20 : Évolution de la résistivité de l'encre de Cabot sur substrat Kapton© en fonction de la température et du temps de recuit.....	40
Figure 21 : Illustration d'impression d'encre conductrice sans recuit, mais à l'aide de traitement chimique, réalisée au LGEF .....	40
Figure 22 : Illustration du principe de fonctionnement des jauges imprimées, développé au LGEF.....	41
Figure 23 : Exemple de capteur imprimé de type résistif. (a) Capteur flexible sans déformation (à gauche) et avec déformation (à droite). (b) Capteur résistif après impression. ....	42
Figure 24 : Caractérisation de la jauge imprimée. (a) Sensibilité de la jauge intégrée dans un montage $\frac{1}{4}$ de pont. (b) Facteur de jauge en fonction de la déformation. (c) Essais d'endurance du capteur avec des déformations cycliques d'amplitude $1000\mu\text{déf}$ . (d) Analyse photographique du capteur avant et après cyclage. ....	43
Figure 25 : Facteur de jauge en fonction de la résolution en PPP (Point Par Pouce) .....	43
Figure 26 : Exemple de canon réalisé en acier et fibre de carbone pour le fusil AR-15 réalisé par la société PROOF (extrait de [28]).....	44
Figure 27 : Exemple de nouvelles pièces composites dans un AR-15.....	45
Figure 28 : Mesure de la déformation de la structure d'une arme de poing lors d'un tir.....	47
Figure 29 : Exemple de structure de polymère ionique (extrait de [34]) .....	49
Figure 30 : Structure typique des polymères électroniques .....	49
Figure 31 : Protocole d'élaboration du composite selon le procédé breveté par le LGEF .....	56
Figure 32 : (a) Déformation longitudinale (S33) et (b) densité d'énergie mécanique ( $E_m$ ) en fonction du champ électrique appliqué pour une fréquence de 100 mHz.....	57

Figure 33 : Photographie d'un actionneur type unimorphe réalisé avec les composites du LGEF .....	57
Figure 34 : Illustration schématique d'une application chirurgicale de fil-guide "intelligent" .....	61
Figure 35 : Principe de fonctionnement général du fil-guide développé au LGEF en partenariat avec les HCL .....	61
Figure 36 : Architecture du fil-guide intelligent pour disposer de la fonction contrôle de forme .....	62
Figure 37 : Modélisation par élément finis de la répartition du champ électrique dans la section du polymère.....	63
Figure 38 : Comparaison des compositions de matériaux à l'aide d'une modélisation par éléments finis réalisée sous ANSYS .....	63
Figure 39 : Évolution du profil de déplacement pour différents niveaux d'excitation électrique et de configuration de répartition du champ électrique.....	64
Figure 40 : Extrudeur de laboratoire du LGEF .....	65
Figure 41 : Tube extrudé de P(VDF-TrFE-CFE) avec 15%wt de DINP .....	65
Figure 42 : Mesure expérimentale de la courbure en fonction du rapport longueur/diamètre pour un champ électrique de 25V/μm .....	66
Figure 43 : Angle atteint en fonction du champ électrique .....	67
Figure 44 : Photographie du prototype de fil-guide pour deux niveaux d'excitation électrique .....	67
Figure 45 : Angle en fonction du temps à un champ de 20V/μm .....	68
Figure 46 : Évolution temporelle du courant et de la déformation en mode pseudo-piézoélectrique .....	69
Figure 47 : Évolution temporelle de la force et de la charge électrique en fonction du temps.....	69
Figure 48 : Évolution du coefficient piézoélectrique en fonction du champ statique.....	70
Figure 49 : Principe du fonctionnement de l'architecture avec les possibilités d'orientation et de retour de force.....	70
Figure 50 : Réponse du capteur intégré au fil-guide en mode pseudo-piézoélectrique .....	70
Figure 51 : Évolution entre les tablettes et les smartphones .....	72
Figure 52. Vue éclatée de smartphones (extrait de [78]) .....	72
Figure 53 : Schéma de principe des technologies d'écran (extrait de [81]).....	73
Figure 54 : Les récepteurs tactiles de la peau (extrait de [83]) .....	76
Figure 55 : Illustration schématique des zones de détection des différents récepteurs (extrait de [83]).....	76
Figure 56 : Illustration du seuil de détection du corps humain (extrait de [169]).....	76
Figure 57 : Illustration schématique de l'architecture caractérisée pour l'haptique. ....	77
Figure 58 : Analyse visuelle des échantillons imprimés sur un substrat de type Kapton, avec un motif imprimé avec une résolution de 2000 x 2000 ppp. (a)-(c) vitesse de dépôt 75 mm/s couche présentant des défauts importants et des effets de type coffee ring ; (d)-(f) vitesse d'impression 40 mm/s, couche non homogène dans l'épaisseur traduite par la présence d'interactions colorées ; (g)-(h) vitesse de 30 mm/s permet l'impression d'une couche homogène ; (i) exemple de structure imprimée pour la caractérisation diélectrique des matériaux imprimés. ....	77
Figure 59 : Mesure pratique de l'accélération en fonction de la fréquence et pour trois valeurs de champ électrique et un champ statique de $E_{DC}=15V/\mu m$ . ....	78
Figure 60 : Illustration schématique des solutions d'actionneurs utilisés pour la réalisation de fonction haptique dans les dispositifs électroniques grand public .....	79



## Liste des Tableaux

Tableau 1 : Comparaison du taux de production avec les techniques d'impression et le procédé silicium conventionnel (extrait de [3]).	19
Tableau 2 : Synthèse des différentes configurations d'actionneurs pour les têtes d'impression du commerce	29
Tableau 3 : Extrait de la documentation constructeur sur les caractéristiques de la LP-50	35
Tableau 4 : Extrait de la documentation constructeur sur les têtes d'impressions et les encres	36
Tableau 5 : Composition et propriétés de quelques encres commerciales à base de nanoparticules métalliques pour l'impression par jet d'encre.	39
Tableau 6 : Classification des polymères électroactifs (extrait de [35])	50
Tableau 7 : Principales caractéristiques des deux familles (extrait de [35])	51
Tableau 8 : Comparaison des matériaux classiquement utilisés.	53
Tableau 9 : Avantages et inconvénients des différentes méthodes utilisées pour augmenter les propriétés électromécaniques des polymères électroactifs.	56
Tableau 10 : Paramètres géométriques du fil-guide	62
Tableau 11 : Les grandes tendances dans le domaine des tablettes et des Smartphones	72
Tableau 12 : Comparaison entre les différentes technologies pour le rendu haptique dans l'électronique grand public.	79

## Introduction

Ce mémoire, qui s'organise en deux grandes parties, présente une synthèse de mes activités de recherche effectuées au sein du LGEF de l'INSA Lyon. Plus précisément, ces activités se sont développées d'une part, dans le cadre d'un contrat de maturation autour du développement d'instrument pour la chirurgie et l'application de technologie de fabrication additive pour le contrôle de santé des structures.

La première partie retrace mon parcours professionnel au cours de ces 3 dernières années. Plus qu'une simple notice individuelle présentant le Curriculum Vitae (CV) et un résumé des activités, l'objectif poursuivi est de décrire et de montrer la cohérence des missions développées. Une attention toute particulière est donc portée sur les principaux résultats que j'ai obtenus au LGEF concernant la thématique de la fabrication additive de matériaux électroactifs pour des applications mécatroniques. Cette partie permet également de rappeler l'ensemble des compétences développées, permettant de démontrer une prise de recul dans la gestion des travaux de recherche.

La seconde partie s'articule autour des deux thèmes principaux de recherche où j'ai eu le plaisir de participer, c'est-à-dire le contrôle de forme à l'aide de matériaux électroactifs et l'utilisation de la fabrication additive pour le contrôle de santé des structures

# Chapitre 1. Résumé des activités de recherche

## I. Organisation des activités de recherche

Les travaux de recherche effectués depuis 2014 sont tous similaires quant à leur approche multiphysique de problèmes, mais traitent de domaines distincts ; l'étude et la mise en œuvre de matériaux électroactifs pour le contrôle de forme et l'impression d'encre conductrice pour le contrôle de santé des structures.

Les premiers travaux de recherche réalisés depuis 2014 se sont orientés sur l'étude d'un polymère électroactif développé et breveté au LGEF, sur ses performances d'abord (en configurations « bender » et « diaphragme » en premier) puis sur sa mise en œuvre par divers moyens : *solvent cast*, extrusion puis impression (jet d'encre). La première année, dans le cadre d'une maturation de projet proposée et financée par Pulsalys (anciennement SATT), puis dans le cadre du projet européen INCITE. Le premier projet était en partenariat avec les Hospices Civiles de Lyon et avait pour objectif d'étudier la faisabilité de la réalisation de fil-guides pilotables pour une utilisation lors d'opérations de chirurgie vasculaire – en particulier. Le second est assez similaire, mais concerne non pas un fil-guide, mais un cathéter.

La seconde activité de recherche effectuée dans le cadre d'une collaboration entre le groupe SKF et le LGEF, concerne le contrôle et la surveillance in situ de l'état structural avec l'utilisation d'une méthode de fabrication additive pour réaliser des structures qualifiées d'intelligentes composées d'actionneurs et de capteurs fortement intégrés et intimement liés à la structure.

La Figure 1 donne une vue d'ensemble des activités de recherche.



Figure 1 : Présentation synthétique des activités de recherche

## Chapitre 1. Résumé des activités de recherche

La Figure 2 donne une synthèse de la production scientifique à partir de la source ISI Web of Knowledge, avec les données suivantes de bibliométrie

- nombre d'articles répertoriés : 3
- nombre total de citations : moyenne de 6 citations par référence
- h-index : 2

La liste des publications est disponible ci-dessous :

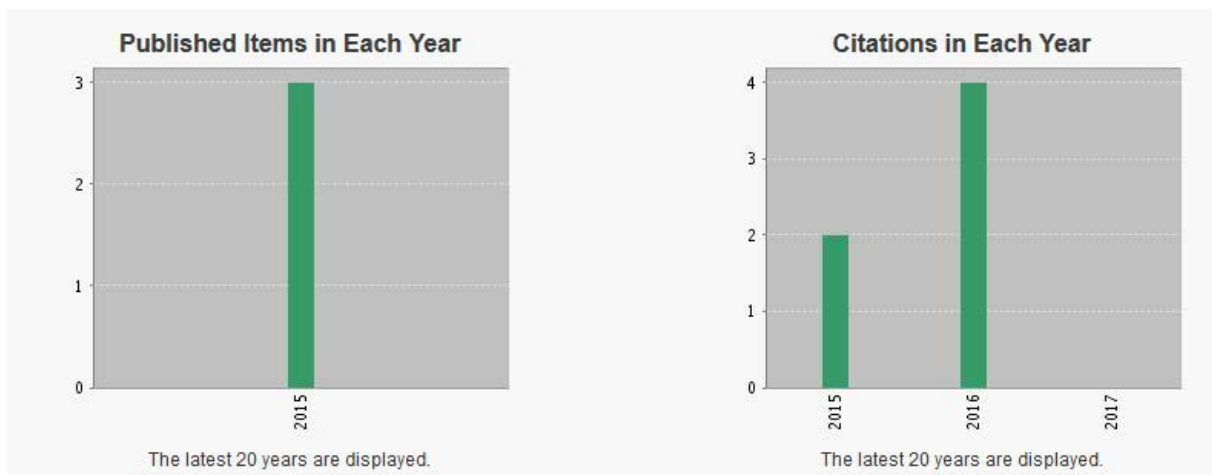


Figure 2 : Données bibliométriques

## II. Liste des publications

### II.1. Revues Internationales à Comité de Lecture

1. F. Ganet, M.Q. Le, JF. Capsal, P. Lermusiaux, L. Petit, A. Millon, and P.J. Cottinet, Development of a smart guide wire using an electrostrictive polymer: option for steerable orientation and force feedback, *Nature: Scientific Reports*, 5, Article Number 18593 (2015), DOI: 10.1038/srep18593
2. F. Ganet, M.Q. Le, JF. Capsal, J.F. Gérard, S. Pruvost, J. Duchet, S. Livi, P. Lermusiaux, A. Millon, P.J. Cottinet, Haptic feedback using an all-organic electroactive polymer composite, *Sensors and Actuators B: Chemical* Volume 220, 1 December 2015, Pages 1120–1130.
3. F. Ganet, M.Q. Le, JF. Capsal, L. Petit, P.-J. Cottinet, P. Lermusiaux, and A. Millon, “Morphing Control of Steerable Wire Guide Based Electroactive Material for Cardiovascular Surgery Application”, *European Journal of Vascular and Endovascular Surgery*, Volume 49, Issue 6, June 2015, Pages 744-745
4. M.Q. Le, J.F. Capsal, J. Galineau, F.Ganet, X. Yin, M. Yang et al. “All-organic electrostrictive polymer composites with low driving electrical voltages and micro-fluidic pump application” *Nature : Scientific Reports*, 5, Article number: 11814 (2015) doi:10.1038/srep11814 June 2015.

### II.2. Conférences Internationales avec Actes

1. N. Delle Schiava, M.Q. Le, J.F. Capsal, F. Ganet, L. Petit, P. Lermusiaux, A. Millon, P.-J. Cottinet, Inkjet printing based electroactive polymer for steerable and haptic feedback of guide wire, *European Journal of Vascular and Endovascular Surgery*, London May 2016.

3. F. Ganet, M.Q. Le, P.J. Cottinet, J.F. Capsal, “All Organic modified relaxor ferroelectric terpolymers : Towards Low Electric Field Dielectric Actuator”, *Advances In Functional Materials*, Stony Brook, 1th-3th July 2015.

4. F. Ganet, MQ Le, JF. Capsal, L. Petit, PJ Cottinet, P. Lermusiaux, A. Millon, “Mophing control of steerable wire guide based on electroactive material for cardiovascular surgery application”, *ESVS*, Frankfurt, 29-30 May 2015.

### III. Compétences développées dans le cadre de la recherche

Les compétences développées grâce aux travaux de recherche effectués au LGEF de l’INSA Lyon sont décrites sous la forme d’expériences de projets dans les prochains paragraphes.

#### III.1. Ingénieur maturation (octobre 2014-aout 2015)

##### III.1.1. Environnement technique

- Valorisation de brevets
- Robotique Médicale
- Mise en œuvre de matériaux électroactifs

##### III.1.2. Contexte et objectifs du projet

Les cathéters et les fil-guides sont aujourd’hui largement utilisés en chirurgie mini-invasive. Ce sont des instruments tubulaires et filaires, de diamètres et de souplesses variables, fabriqués en différentes matières (principalement à base de polymères et de métaux) selon les modèles ou les usages pour lesquels ils sont destinés. Le fil-guide est un instrument qui sert à naviguer dans le système sanguin pour aller se placer à un endroit voulu et à « s’ancrer ». Le cathéter, lui est destiné à être inséré, guidé par le fil-guide, dans la lumière d'une cavité du corps ou d'un vaisseau sanguin et permet l'accès à d'autres dispositifs médicaux tout en aidant aussi à la navigation en début de procédure (Figure 3) grâce à des extrémités distales qui peuvent avoir une courbure.

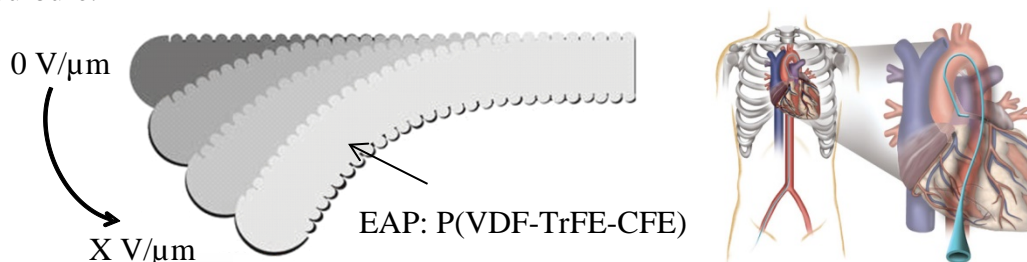


Figure 3 : représentation de la déformation d’une extrémité distale de fil-guide ou d’un cathéter en utilisation dans une procédure de chirurgie cardiaque.

Les travaux sur le fil-guide sont nés de la volonté du département de chirurgie vasculaire des Hospices Civiles de Lyon de travailler à réduire la durée des interventions de pose d’endoprothèse. En effet, les chirurgiens doivent *in fine* introduire un tube – large et très rigide – contenant la prothèse, jusqu’au site voulu (généralement là où il y a un anévrisme) pour la délivrer, c’est donc le fil-guide qui sert de support au guidage de cet introducteur. Or pour ce faire, le fil-guide doit être rigide lui aussi, malheureusement s’il est rigide il est impossible à guider dans les artères, du coup les chirurgiens utilisent plusieurs fil-guides et cathéters, de

rigidité croissante, les changeant tour à tour. Seulement pendant cette phase, il n'est pas rare que le fil-guide ou le cathéter – qui sert à guider le nouvel élément plus rigide – perde son ancrage, obligeant à recommencer depuis le début, menant à des interventions pouvant durer une demi-douzaine d'heures, tout ça sous angiographie (rayons X) et les lourdes protections que cela implique. Ainsi l'idée de base a été d'étudier la faisabilité de réduire le nombre nécessaire d'échanges de fil par l'une des deux voies suivantes : soit de rendre navigable un fil-guide rigide à l'aide d'une extrémité distale active, soit d'utiliser un matériau actif pour jouer sur la rigidité du fil. J'ai été intégré dans ce projet en tant qu'ingénieur par le biais de la SATT/Pulsalys pour une durée de 11 mois.

À plus long terme, le projet consiste à étudier la robotisation de la procédure. Le but est d'en faire ce qu'on appelle des instruments dextres actifs de chirurgie mini-invasive. Concrètement, il s'agit de parvenir à motoriser et à asservir les mouvements de la structure pour :

- Permettre un maniement sans effort et à une seule main par le biais de commandes électriques à la poignée (mini-joystick, bouton...).
- Coordonner les mouvements articulaires dans l'esprit d'un contrôle des déplacements de l'effecteur dans l'espace de tâche.
- Automatiser certains gestes, par exemple le suivi d'outil ou la compensation des mouvements physiologiques.

### III.1.3. Réalisations

- Modélisation de l'architecture d'actionneur et des réponses électromécaniques pour différentes compositions et architectures.
- Optimisation des propriétés de conversion des matériaux, pour une mise en œuvre par extrusion.
- Montage de banc de caractérisation et analyses des résultats obtenus.
- Validation de la possibilité de réaliser un retour d'information haptique (retour de force) à l'aide du matériau.
- Rédaction de rapports d'avancement et d'articles dans des revues à comité de lecture international.

### III.1.4. Résultats

- Les actions de recherche ont permis de démontrer le potentiel d'utilisation des polymères électroactifs développés au LGEF, pour la réalisation de fonctions mécatroniques fortement intégrées en vue d'applications pour la chirurgie mini-invasive. Possibilité de générer des angles compris entre 0 et 90° pour un champ électrique variant de 0 à 30V/μm.
- Actuellement, les travaux concernent l'optimisation du matériau et du procédé de mise en œuvre grâce à un partenariat avec la société ZEUS spécialisée dans l'extrusion de polymère fluoré pour des applications médicales. Ces travaux sont effectués dans le cadre de la thèse de Nellie Della Schiava avec une optimisation du design et une recherche d'un plastifiant biocompatible permettant au final de déboucher sur les premiers tests cliniques programmés normalement pour l'année 2018.

### III.1.5. Bilan personnel

- Participation à un projet impliquant différentes institutions avec des cultures et esprits scientifiques très différents, débouchant sur de l'innovation.
- Développement de l'expertise dans la mise en œuvre et la modélisation de polymères électroactifs pour leurs mises en application autour de la mécatronique.

## III.2. Ingénieur recherche (septembre 2015- janvier 2017)

### III.2.1. Environnement technique

- Projet de recherche européen.
- Robotique Médicale.
- Impression de matériaux électroactifs.

### III.2.2. Contexte et objectifs du projet

- Projet européen INCITE en collaboration avec la société Philips et différentes institutions (VTT, Reden, TNO, Arkema, etc).
- L'objectif concerne le développement de nouveaux outils pour la chirurgie mini-invasive.
- Développement et conception d'un cathéter contrôlable à l'aide de matériaux électroactifs. Ce projet est dans la continuité du projet de maturation réalisé avec les Hospices Civils de Lyon voir paragraphe III.1.

### III.2.3. Réalisations

- Développement et conception des actionneurs à intégrer sur le cathéter :
  - Prise en compte des contraintes dans la conception de la commande.
  - Simulation de différentes approches proposées.
  - Sélection du matériau de conversion rentrant en compte avec les besoins applicatifs
  - Réalisation des prototypes à l'échelle laboratoire.
  - Tests et validation expérimentale.
- Participation et organisation des réunions interéquipes (France, Pays-Bas, Finlande), afin de discuter des attentes des praticiens, et du développement de robots.
- Étude de la sureté de fonctionnement du système :
  - Étude de la stabilité et de la robustesse.
  - Prise en compte des aspects de biocompatibilité.
- Rédaction de rapports d'avancement.

### III.2.4. Résultats

- Les matériaux développés correspondent aux procédés de mise en œuvre par impression ou sérigraphie, correspondant aux attentes des acteurs du monde socioéconomique TNO et Arkema.

- Les caractéristiques électromécaniques démontrent la possibilité d'effectuer du contrôle de forme.

### III.2.5. Bilan personnel

- Participation à un projet européen impliquant un grand nombre d'intervenants.
- Développement de l'expertise dans le domaine des procédés de fabrication additive et des matériaux électroactifs.

## *III.3. Ingénieur recherche (février 2017- en cours)*

### III.3.1. Environnement technique

- Projet de collaboration entre la société SKF et le LGEF.
- Transfert de compétences.

### III.3.2. Contexte et objectifs du projet

Le contrôle et la surveillance in situ de l'état structurel (Structural Health Monitoring, SHM) ont bénéficié des récents progrès dans la caractérisation de dommages matériels (étude de la durabilité et du vieillissement des matériaux) et structurels et des technologies des capteurs/actionneurs. Ces avancées technologiques ont favorisé l'émergence de nouvelles structures dites "structures intelligentes" (smart structures). Ce sont des structures qui se composent d'un réseau de capteurs et/ou d'actionneurs (ex. de matériaux piézoélectriques), d'une architecture d'acquisition et de commande en temps réel ou non qui assurent le traitement des signaux, ces capteurs et actionneurs devant perturber le moins possible l'intégrité du système. Ils peuvent être collés sur la structure ou intégrés à l'intérieur lorsqu'il s'agit de structures en composites. Actuellement la majorité des recherches académiques et universitaires s'attendant à cette thématique est orientée sur les problèmes d'optimisation de leur forme, de leur taille et de leur positionnement. Sans oublier, leur durée de vie afin d'être en adéquation avec la durée de vie de la structure monitorée.

Les roulements se prêtent particulièrement au SHM, car il y en a partout, des robots ménagers aux compresseurs, en passant par les roues de véhicules, un très grand nombre de systèmes en rotation en sont équipés. Ce sont des composants stratégiques des machines tournantes : situés entre les parties fixes et les parties mobiles de la structure, ils assurent la transmission des efforts radiaux (dans les cas classiques) tout en permettant la rotation de l'arbre par rapport au moyeu ou inversement. Mais s'ils sont très courants, ces composants sont aussi parmi les plus fragiles d'un système, justement parce qu'ils transmettent des efforts par des surfaces très localisées tout en tournant à des vitesses qui peuvent être élevées. À titre d'exemple, des études statistiques ont montré que les pannes imputables aux roulements à billes sont prépondérantes, quelle que soit la gamme de puissance des machines asynchrones [1]. C'est autour de cette problématique que ces travaux de recherche se sont focalisés. L'objectif affiché est de disposer de roulements instrumentés capables de renseigner sur leur propre état de santé.



### III.3.3. Réalisations

- Veille technologique sur les roulements instrumentés, leur impact sociétal et économique.
- Conception et dimensionnement de roulements avec des réseaux de capteurs intégrés :
  - Définition d'un cahier des charges.
  - Choix instrumentation (capteurs de force, de déplacement).
  - Réalisation des plans.
  - Simulation de leurs comportements en termes de stabilité, robustesse, suivi de force et de vibration.
  - Désign de la carte de commande des électrovannes, permettant de gérer les différentes phases de fonctionnement.
- Test et validation :
  - Définition des tests à réaliser.
  - Comparaison avec les approches classiques.

### III.3.4. Résultats

- Les études ont montré la possibilité de remplacer un capteur de type accéléromètre fixé sur le carter des machines à contrôler par des dépôts de revêtement électroactifs dans le but de réduire les coûts ainsi que le poids et le volume du système global et aussi d'augmenter la fiabilité sur le diagnostic.
- L'ensemble des travaux réalisés a démontré le potentiel de la fabrication additive de matériaux électroactifs pour la réalisation de fonction mécatronique.

### III.3.5. Bilan personnel

- Développement de connaissances transverses passant des sciences de la mécanique, des matériaux à celle du génie électrique, avec un accent sur les aspects matériaux fonctionnels, et leur application pour le contrôle de santé des structures.
- Gestion d'un projet avec un transfert de compétences.
- Développement de compétence humaine comme l'autonomie, l'esprit de synthèse, etc.

## IV. Synthèse sur la prise de compétences par la recherche

Les précédentes parties ont permis de mettre en avant les compétences acquises et développées au cours de mes expériences de recherche rentrant en compte dans mon projet professionnel. La prochaine partie concerne la présentation des résultats de recherche et la méthodologie mise en œuvre pour y arriver autour de la problématique de recherche de la fabrication additive de matériaux électroactifs pour la mécatronique.

## **Chapitre 2. Fabrication additive de matériaux électroactifs pour la mécatronique**

Le but de cette partie est de présenter les actions de recherches effectuées autour de la fabrication additive de matériaux électroactifs pour la réalisation de fonction mécatronique. Le point commun concerne le lien intime entre les matériaux développés au laboratoire et leur mise en application pour différents domaines.

### **I. Fabrication additive et électronique, nouveaux vecteurs d'intégration pour la mécatronique**

#### ***1.1. La fabrication additive et l'électronique imprimée : une nouvelle révolution pour la mécatronique ?***

Les produits mécatroniques exploitant de l'électronique associée à des capteurs et actionneurs prennent une place de plus en plus importante dans des applications variées allant du contrôle de santé des structures à des applications médicales. En raison des contraintes de coût et de performances, la stratégie de réalisation de circuits électroniques sur des substrats en silicium est toujours guidée par la fameuse loi de Moore, ou plus récemment par les approches « More than Moore », ouvrant la voie à des architectures dites tridimensionnelles[2]. Les récents développements autour de nouvelles classes de matériaux imprimables, tels que les polymères conducteurs ou semi-conducteurs ou bien les nanoparticules métalliques, ont permis l'émergence de l'électronique imprimée. Tirant profit de la maturité des procédés conventionnels d'impression, comme la sérigraphie ou le jet d'encre, la réalisation de nouveaux dispositifs portables et flexibles a été ainsi rendue possible. De plus, une approche d'intégration hybride est en train d'émerger pour associer les hautes performances des composants à base de silicium avec les capacités de l'impression grande surface pour le développement de produits communicants sans fil sur support souple, que ce soit pour des applications autour de la sécurité ou du médical.

Mais pour arriver au développement de ces systèmes dits communicants, certains points restent à développer autour de l'impression de capteur et d'actionneur sur support souple ou non-plan. À titre d'exemple, cela permet de disposer de transducteurs possédant une liaison intime avec la structure évitant les étapes de collages. C'est autour de cette problématique que les travaux développés au LGEF ont été poursuivis, mêlant science des matériaux et leur mise en application.

#### ***1.2. Pourquoi la fabrication additive ou l'impression pour la mécatronique ?***

Le point de départ de l'intérêt porté aux techniques d'impression est un développement encourageant, durant les dernières années, de matériaux organiques et inorganiques, utilisable en solution, avec des propriétés électroniques accrues : cela a d'ailleurs d'ores et déjà conduit aux premières applications commerciales, comme les encres conductrices. En dehors du développement des matériaux, dans la mise au point de technologies de production, la contrainte de coût est prépondérante. Jusqu'à aujourd'hui, la plupart des technologies utilisées

provenaient de la microélectronique classique, adaptées aux conditions spécifiques du silicium. Les polymères possèdent des propriétés de mise en œuvre complètement différentes : ils sont notamment manipulables en solution. Cette propriété offre de nouvelles possibilités pour leur mise en œuvre et la réalisation de transducteurs. L'impression est une de ces nouvelles opportunités. Elle permet, à partir d'un matériau en solution, de réaliser de manière additive un motif structuré, réduisant ainsi le nombre d'étapes de fabrication et la quantité de matériau consommé, en comparaison avec la photolithographie, par exemple. De plus, l'impression s'applique aux substrats souples ou non-plans pour la réalisation de dispositifs électroniques flexibles ou des pièces en 3D (Figure 4).

L'intérêt pour l'impression est énorme en raison de son potentiel de productivité. Le Tableau 1 donne une comparaison des taux de production entre les presses standards utilisées en imprimerie et une ligne moderne de microélectronique silicium [3]. En considérant que l'impression (graphique conventionnelle) comme un procédé de fabrication, il est clair que ce devrait être un des procédés permettant de produire les plus grands volumes tout en ayant un coût des plus faibles qu'il soit. Les presses d'impression peuvent fonctionner à des vitesses de plusieurs centaines de mètres par minute sur des substrats de plusieurs mètres de largeur. L'utilisation de ces techniques d'impression pour le dépôt de matériaux fonctionnels pourrait mener, à terme, à la production de dispositifs électroniques sur de grandes surfaces à très bas coût.

Une presse de gravure, par exemple, imprime en seulement 35 minutes une surface équivalente à celle produite en un an sur une ligne silicium (Tableau 1). Il est évident que de telles vitesses constituent un objectif lointain ; de fait, il sera difficile d'obtenir des vitesses équivalentes à l'impression papier dans un premier temps, d'autant plus que plusieurs couches seront nécessaires pour la réalisation d'un circuit. Néanmoins, la comparaison met en évidence la rupture totale que pourrait être l'impression en production microélectronique. Par contre pour les pièces mécaniques le gain en productivité qu'apporte la fabrication additive est encore sujet à débats. Mais il reste que la combinaison de ces deux domaines pour la réalisation de fonction mécatronique apporte un gros potentiel d'innovation.

De plus, les procédés d'impression présentent l'avantage d'être reconfigurables plus facilement que les procédés classiques utilisés sur les lignes de production silicium ou de pièces mécaniques (forge, etc.), ouvrant la voie à des produits dont les caractéristiques sont pilotées par les préférences du consommateur plutôt que par les contraintes de la ligne de production (*application driven*).

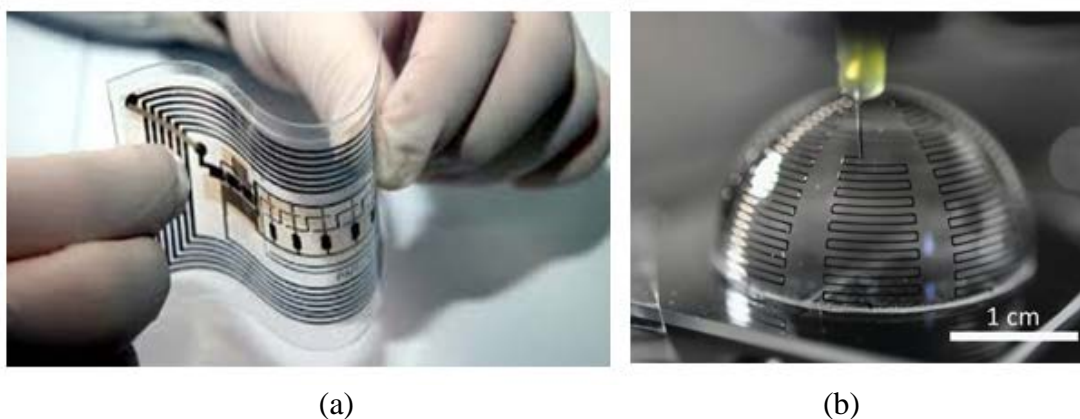


Figure 4 : Visuel sur l'électronique imprimée : (a) substrat flexible, (b) substrat 3D (extrait de [3])

	Procédé silicium	Impression	
Substrat	Wafer (W)	Offset	Gravure
Taille du substrat	Diamètre 0.3m	Largeur 1.2m	Largeur 3.8m
Vitesse de production	6000 W/semaine	15 m/s	15 m/s
Surface produite	88 000 m <sup>2</sup> /an	68 000 m <sup>2</sup> /h	205 000 m <sup>2</sup> /h
Temps d'impression d'une surface équivalente à un an de production		1.9h	0.6h

Tableau 1 : Comparaison du taux de production avec les techniques d'impression et le procédé silicium conventionnel (extrait de [3]).

Ainsi, le succès d'une fabrication additive pour la réalisation de fonctions mécatroniques résidera inévitablement dans l'utilisation combinée des différentes méthodes actuellement sur le marché. Pour parvenir à cet objectif, des efforts de développement, non seulement sur de nouveaux matériaux, mais aussi sur leur intégration et les procédés utilisés pour leur mise en œuvre sont nécessaires.

### ***1.3. Objectif et démarche scientifique des travaux de recherche***

Pour le développement de cette thématique, certains progrès majeurs sont encore nécessaires. Ainsi dans un premier temps une analyse du besoin pour le développement de diverses applications visées sera réalisée. Puis une explication sur l'approche mise en œuvre au cours des dernières années en réponse à ce besoin.

Les opportunités d'utiliser les matériaux électroactifs, pour la réalisation de fonction mécatronique pour diverses applications innovantes, se développent grâce aux nouvelles fonctionnalités offertes par ces matériaux. Néanmoins, leur implémentation sera dictée par la possibilité de produire des dispositifs avec un cout significativement inférieur à celui nécessaire pour intégrer les fonctions de façon conventionnelle (collage, surmoulage, etc.). Des polymères organiques et composites organique-inorganiques performants ont été développés dans le passé, désormais un certain nombre d'avancées technologiques sont requises pour parvenir aux applications. De fait, le principal défaut restant de l'état de l'art concerne les techniques de fabrication qui ne tirent pas parti du bas cout potentiel de la technologie, par exemple réalisation de systèmes multicouches dans le cadre de la fabrication d'actionneurs ou encore concernant des capteurs, le dépôt direct sur le substrat afin de court-circuiter de coûteuses opérations de mises en position, collage, connexion... Or, la contrainte de cout est essentielle pour l'émergence de la technologie.

De plus, la majorité des matériaux actuellement disponibles, ne possède pas de propriétés couplées. L'élaboration de matériaux multifonctionnels sous forme d'encre, ou de fibre ainsi que leur mise en œuvre et en application est un projet de fond effectué lors de mes travaux de thèse au LGEF. En effet l'impression de matériaux possédant des propriétés de couplages multiphysiques est rendue possible grâce à un accès aisé depuis ces dernières années à différents types de nanoparticules (ferroélectrique, magnétique, conductrice, etc.), mais aussi de matériaux organiques présentant des propriétés spécifiques. Pour répondre à cette problématique, les points suivants sont traités :

- développement d'encres électroactives (ferroélectrique, piézorésistive, magnétoélectrique)

## Chapitre 2. Fabrication additive de matériaux électroactifs pour la mécatronique

- caractérisation de leurs couplages
- mise en application avec la définition des nouvelles règles d'intégration

Par contre cela soulève un certain nombre de verrous scientifiques et technologiques, à savoir :

- la possibilité d'obtenir des composites avec une bonne dispersion par une méthode d'impression,
- rendre piézoélectrique ou piézorésistif les composites,
- la tenue en température des propriétés de conversion,
- l'adhérence de l'encre sur des substrats non-plans métalliques,
- la réponse électromécanique du capteur suffisante pour correspondre aux attentes applicatives,
- la conservation des propriétés à l'échelle du micromètre.

Pour répondre aux questionnements inhérents autour des « challenges » scientifiques et techniques, une approche expérimentale est mise en œuvre. En effet les matériaux à développer ayant un cout économique faible, il est possible de faire des séries de tests pour obtenir une encre ou fibre viable.

Dans le but de mettre en perspective les travaux effectués, les principaux résultats seront présentés sous forme de deux axes à savoir :

- Le contrôle de forme à l'aide d'un polymère électroactif pour la chirurgie (Chapitre 3)
- Le contrôle de forme (Chapitre 4)

## **Chapitre 3. L'impression de capteurs de grandeurs mécaniques de type résistif**

Dans le but de comprendre les actions de recherche entreprises autour de la réalisation de capteurs de grandeur mécanique spécifiques de type résistif ou piézoélectrique, la première partie de ce chapitre est consacrée à une introduction à la problématique de recherche. Ensuite on verra une présentation sur la technologie d'impression par jet d'encre en se focalisant sur la mise en œuvre d'encre conductrice pour enfin passer à l'application aux capteurs adaptés au contrôle de santé des structures.

### **I. Réalisation de capteurs de grandeur mécanique**

#### ***I.1. Les besoins des acteurs du marché***

Pour se différencier et conquérir des marchés, les industriels cherchent à faire évoluer leurs produits vers plus de valeur ajoutée. Cela passe généralement par l'intégration de capteurs – pour réaliser diverses fonctions allant du contrôle de santé des structures à la fonction spécifique (mesure de pression, etc.) – couramment nommés produits mécatroniques. Cet engouement a pris de l'ampleur en réponse à l'émergence de l'internet des objets (*Internet Of Things*), consistant à doter d'une communication de haut niveau des objets de la vie de tous les jours. En effet, les nouveautés en matière de fonctions mécatroniques naissent de la pluridisciplinarité. Ainsi, le système intelligent de demain semble tirer sa force de plusieurs disciplines complémentaires, notamment dans le domaine médical, où médecins, physiciens, chercheurs, informaticiens et ingénieurs mettent en œuvre leurs connaissances pour développer des dispositifs, capables d'être implantés directement à l'intérieur du corps humain pour réaliser – par exemple – un cœur [4].

Actuellement, les axes de recherche communs aux différents secteurs d'activités concernent le développement de capteurs les moins invasifs possible et à faible coût. L'objectif étant de diminuer l'impact de l'intégration de nouvelles fonctions sur le désign actuel, souvent fruit de longues années d'étude, de coûts de production importants (moule, etc.) et de contraintes applicatives spécifiques. Cette demande rentre en adéquation avec les spécificités de l'impression.

#### ***I.2. Généralité sur les méthodes d'impression***

Les technologies d'écriture directe englobent toutes les approches pouvant être exploitées pour la production de dispositifs électroniques ou, dans le cas le plus général, d'architectures contrôlées à l'échelle du millimètre ou du micromètre. Une telle technologie permet de dispenser un matériau donné avec une grande précision sur des substrats de différentes natures (polymères, céramiques, métaux, textiles, etc.) selon un motif prédéfini. En se fondant sur le transfert direct des encres fonctionnelles, ces technologies ne nécessitent pas le développement et la réalisation, qui sont très coûteux, de masques ou la mise en œuvre d'étapes de photolithographie et de gravure, limitant ainsi le gaspillage de matériaux actifs. À l'heure actuelle, les techniques additives les plus développées s'appuient sur l'utilisation du transfert de matière par laser [5], par flux aérosol ou par jet d'encre [6] (Figure 5).

La technologie laser a été largement étudiée pour la réalisation de structures conductrices en électronique imprimée via l'ablation partielle de surfaces entièrement métallisées. Si plusieurs techniques ont été étudiées par le passé [60], [61], deux approches ont reçu un soutien important de la communauté : le transfert induit par laser dit LIFT (*Laser-Induced Forward Transfer*) (Figure 5.a) et l'écriture directe par guidage laser dite LGDW (*Laser-Guided Direct Writing*). Dans le cas de la méthode LIFT, une petite quantité de matériau est propulsée depuis un substrat donneur, métallisé à l'aide du matériau à déposer, vers le substrat receveur situé à une distance comprise entre 25 et 100 mm, dont le déplacement dans le plan XY permet la réalisation des motifs [9]. L'inconvénient de cette méthode est que le type de matériau est limité à des matériaux conducteurs.

En utilisant un atomiseur ultrasonore ou pneumatique, il est également possible de produire un aérosol à partir d'une encre à base de nanoparticules. L'impression de l'aérosol développé par la société Optomec (Figure 5.b) peut alors être réalisée en concentrant le faisceau de microgouttelettes, par exemple, à l'aide d'un flux annulaire de gaz inerte [6]. Cette technique est compatible avec une grande variété de matériaux dont la viscosité peut aller de 0,7 à 2 500 mPa.s. Son avantage réside surtout dans sa capacité à réaliser des structures dont l'épaisseur peut aller de 100 nm jusqu'à 10 mm, et ce, sur des surfaces planes ou courbes, ou présentant des « marches ». Cette solution reste toutefois limitée en raison de sa difficulté à réaliser des formes complexes, présentant des lignes droites et des arrondis, avec une résolution suffisante (de l'ordre de la centaine de microns). Ce dernier point n'étant pas bloquant pour les applications envisagées qui correspondent plus à une échelle millimétrique. Cette technologie est utilisée dans le cadre de thèses en codirection avec le *High Performance Material Institute* de *Florida State University*.

La technique la plus courante d'impression directe à l'heure actuelle est fondée sur le jet d'encre. Celle-ci a connu un essor important dans les années 1980 avec les imprimantes graphiques qui ont été exploitées, par la suite, pour la fabrication de produits électroniques, notamment grâce au développement d'encres fonctionnelles. Ce concept a été adopté pour la réalisation de transistors organiques sur des substrats flexibles, de diodes électroluminescentes organiques, d'antennes et de circuits d'interconnexions [10], [11]. Le principe de base de l'impression par jet d'encre est la formation et l'éjection de gouttelettes, de manière continue ou intermittente, en surpassant la tension superficielle du liquide [10], [11]. Si le jet d'encre permet d'imprimer de grandes surfaces avec une vitesse d'écriture assez élevée (jusqu'à 10 m/s), des défis restent associés au contrôle et à la stabilité du jet lui-même. Des artefacts indésirables, tels que des jets déviés ou la génération non désirée de gouttelettes supplémentaires, également connues sous le terme de gouttes satellites, peuvent en effet se produire et provoquer des courts-circuits dans la structure si l'espacement entre les lignes est trop réduit. C'est cette technologie qui est utilisée au LGEF pour la réalisation de fonctions mécatroniques. Plus de détails sur cette méthode seront donnés dans le paragraphe III.

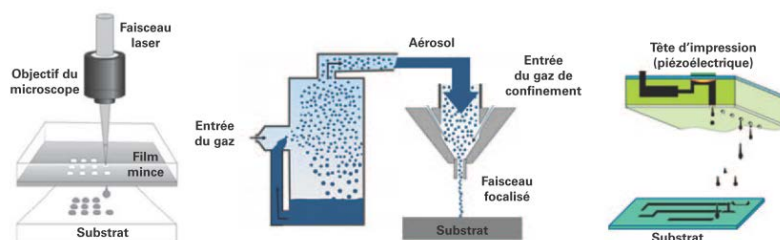


Figure 5 : Principe de fonctionnement de quelques techniques d'impression : (a) la méthode LIFT, (b) par aérosol, (c) par jet d'encre (extrait de [12])

Par contre il faut bien noter que, quelle que soit la technique utilisée, l'adhésion des structures déposées suscite quelques interrogations et requiert parfois l'utilisation de traitements de surface adéquats. En tout état de cause, la combinaison des différentes technologies d'impression associant à la fois les opérations de traitement de surface et celles de recuit rapide apparaît comme un élément clé dans une approche multiéchelles et grande surface de l'électronique imprimée.

Les prochains paragraphes s'attacheront à présenter les travaux effectués autour de la réalisation de capteurs de grandeurs mécaniques et d'actionneurs. La première technologie mise en œuvre est celle des capteurs résistifs basés sur le dépôt de matériaux conducteurs. En effet le dépôt de matériaux conducteurs correspond à une brique technologique importante nécessaire aux autres types de couplages, par exemple la réalisation des électrodes pour les matériaux ferroélectrique ou les pistes conductrices.

## II. Capteurs piézorésistifs

### II.1.1. État de l'art sur les capteurs résistifs de déformation

#### II.1.2. Effet piézorésistif

La piézorésistance est la propriété exprimant la modification de la conductivité électrique d'un matériau sous l'effet d'une déformation. Pour un fil en traction et pour une variation relative de longueur  $\Delta l/l$ , la variation relative de la résistance est [13] :

$$\frac{\Delta R}{R} = G \frac{\Delta l}{l} \quad (1)$$

Avec  $G$  grandeur sans dimension appelée facteur de jauge.

Cette variation de conductivité est liée à des effets purement géométriques (cas des conducteurs usuels) et à une modification des propriétés électroniques des matériaux dans le cas des semi-conducteurs ou de couches métalliques très minces (moins du micromètre).

Les exemples suivants permettent d'illustrer les différents effets à la base du fonctionnement des capteurs piézorésistifs [13] :

- Effet purement géométrique : dans le cas d'un fil métallique de diamètre très supérieur au micromètre, la variation de résistance est proportionnelle à l'élongation et à la réduction de section en résultant (qui dépend du coefficient de Poisson). Le facteur de jauge est alors compris entre 1 et 2.
- Effet essentiellement électronique : le silicium monocristallin présente un facteur de jauge dépendant de l'orientation cristalline, du dopage et de la température. À 300 K la valeur maximale ( $G = 150$ ) est obtenue pour les directions  $\langle 100 \rangle$  avec du silicium faiblement dopé  $P$  ( $< 10^{17}$  atomes/cm<sup>3</sup>).
- Effet de grain ou de discontinuité électrique : outre un effet purement géométrique (facteur de jauge égal à  $1 + 2\nu$ , avec  $\nu$  coefficient de Poisson), un facteur de jauge supérieur peut être obtenu en utilisant des matériaux inhomogènes.

Pour le principe utilisant la discontinuité électrique, cela se traduit, par exemple, par l'utilisation de couches minces (quelques dizaines de nanomètres d'épaisseur) réalisées par pulvérisation réactive, les films peuvent révéler une structure discontinue métal-isolant. Si les îlots



métalliques sont isolés par un isolant de bonne qualité (un oxyde par exemple) et si la distance inter-ilots est de quelques nanomètres, un effet quantique (effet tunnel) régit alors le mode de conduction en le rendant ainsi particulièrement sensible à l'élongation du film (Figure 6). Ce type de conduction présente en revanche une forte sensibilité thermique [14]. Si l'isolant n'est pas parfait, mais est plus déformable que les clusters conducteurs, une sensibilité à la déformation, donc un facteur de jauge élevé, peut apparaître du fait de l'amplification des contraintes dans les zones de chute de potentiel (cas des nitrures du tantale par exemple) [14].

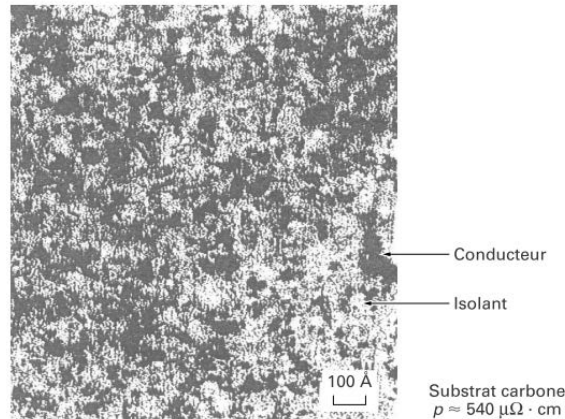


Figure 6 : Structure type composite métal-isolant (extrait de [14])

### II.1.3. Les matériaux à effet piézorésistif

Il existe donc différents effets pour réaliser des capteurs piézorésistifs, mais la majorité utilise des matériaux conducteur ou semi-conducteur.

#### II.1.3.1. Les matériaux semi-conducteurs

La résistivité du silicium dopé varie sous l'action de déformations mécaniques. Cet effet piézorésistif dépend de la nature du dopant, de la température, de la direction des déformations mécaniques et du courant par rapport au réseau cristallin. On utilise en général les coefficients de piézorésistance longitudinale ( $F_l$ ) et transversale ( $F_t$ ) qui traduisent la variation relative de résistivité suivant deux axes, respectivement parallèle et orthogonal à la direction de la déformation mesurée [13] :

$$F_l = \frac{1}{p} \left( \frac{d\rho}{\rho} \right)_{\text{longitudinal}}, \quad F_t = \frac{1}{p} \left( \frac{d\rho}{\rho} \right)_{\text{transversal}} \quad (2)$$

avec  $p$  pression unilatérale appliquée (mesurée positivement pour une compression),  $\rho$  et  $d\rho$  résistivité et sa variation.

$F_l$  et  $F_t$  dépendent évidemment de la direction cristalline suivant laquelle la déformation est appliquée, comme l'illustre la Figure 7.

La piézorésistivité intrinsèque du silicium peut s'expliquer simplement par le fait que le transport électrique dans un semi-conducteur est conditionné par sa structure de bande d'énergie. La structure de bande résulte, quant à elle, de la géométrie du cristal considéré (structure diamant pour le silicium). La contrainte mécanique qui déforme le cristal déforme donc également la structure des bandes d'énergie [15]. Le transport électrique, en particulier la mobilité des porteurs et la distribution des porteurs dans les bandes est alors modifié. La Figure

7 montre l'effet de la contrainte sur les bandes de valence du silicium. Il est intéressant de noter que la déformation des bandes dans l'espace réciproque dans les directions [100] et [110]. Que la déformation soit en compression ou en traction, elle a pour effet de lever la dégénérescence de la bande de valence [15].

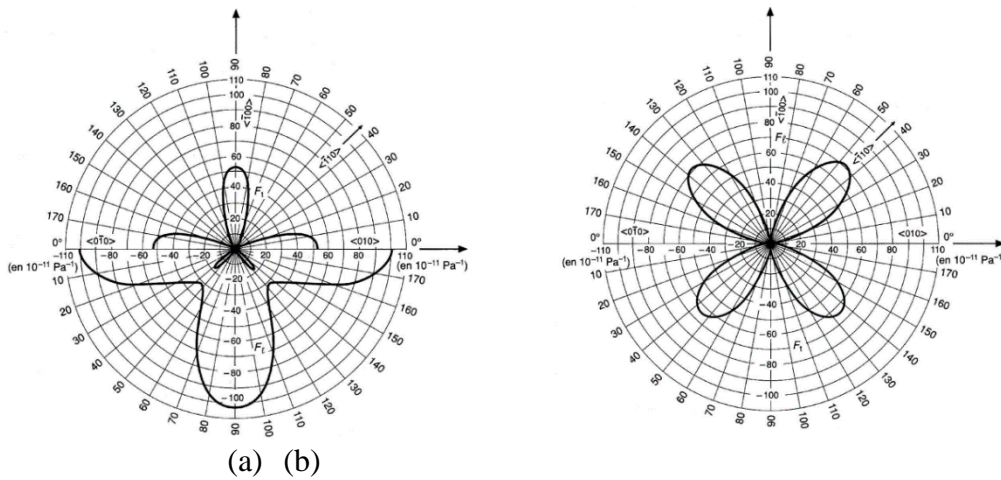


Figure 7 : Coefficient de piézorésistance (en  $10^{-11} \text{ Pa}^{-1}$ ) dans le plan (100) pour du silicium de type N (a) et P (b) (extrait de [16])

Il y a deux présentations différentes des jauges semi-conductrices, qui sont la conséquence de leur mode de fabrication : les jauges découpées et les jauges diffusées.

Pour les jauges découpées, elles sont formées d'un brin unique découpé mécaniquement ou photochimiquement dans un monocristal de silicium dopé (Figure 8). Le brin est parallèle à la diagonale de la maille cristalline pour le silicium P et au côté de la maille pour le silicium N. Le brin est ensuite collé sur un substrat de polymère. Étant formées d'un brin unique, ces jauges ont une sensibilité transversale pratiquement nulle.

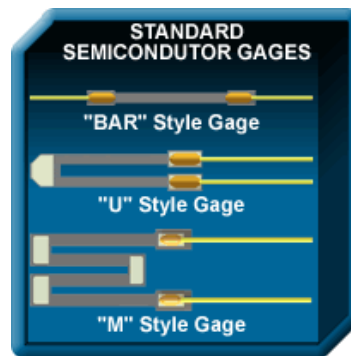


Figure 8 : Présentation des jauges semi-conductrices à brins découpés dans le monocristal de silicium (extrait de de [17])

Dans le cas des jauges diffusées, la résistance de jauge est réalisée par diffusion d'impuretés dans une partie d'un substrat silicium monocristallin déjà dopé. Une résistance de type N est obtenue par la diffusion d'impuretés de la 5<sup>e</sup> colonne de la classification périodique (P, Sb) dans un substrat de silicium P. Une résistance de type P résulte de la diffusion d'impuretés de la 3<sup>e</sup> colonne (Ga, In) dans un substrat de silicium N.

La jonction du substrat et de la résistance forme une diode dont la polarisation doit toujours être dans le sens bloquant afin d'isoler la résistance de la jauge d'un substrat. L'ensemble est protégé par une couche de silice,  $\text{SiO}_2$ , à travers laquelle des ouvertures permettent le contact de la résistance avec les liaisons métalliques déposées sur la silice (Figure 9).

Une application importante de ce procédé de fabrication est la diffusion simultanée sur un même substrat de quatre résistances identiques qui forment, après leur connexion par métallisation, un pont de Wheaston complet. Le substrat silicium sert alors de corps d'épreuve. Cette technologie est couramment employée pour la réalisation de capteurs de type MEMS.

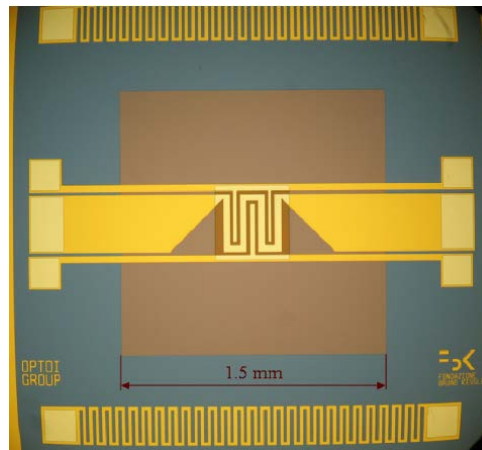


Figure 9 : Exemple de structure à jauge diffusée (extrait de [18])

### II.1.3.2. Les matériaux conducteurs

Contrairement aux semi-conducteurs, de type silicium, la piézorésistance dans le cas des métaux, est liée à un changement de la géométrie du conducteur. En effet la résistivité de la plupart des métaux décroît quand la pression à laquelle ils sont soumis augmente. Cela est causé par la diminution du volume et donc de la distance interatomique entraînée par la pression qui est à l'origine de la décroissance de la résistivité [13]. Car de façon générale, la résistivité d'un métal est due, en particulier, à la diffusion des électrons libres entre les atomes du réseau. La probabilité de diffusion est d'autant plus élevée que l'amplitude des oscillations des atomes est grande. Une réduction de la maille du réseau cristallin, en rapprochant les atomes, entraîne un accroissement de leurs forces de liaisons et par conséquent une diminution de l'amplitude de leurs oscillations : la probabilité de diffusion des électrons libres diminuant, il en est de même de la résistivité. Actuellement les matériaux les plus couramment utilisés sont des alliages à base de Nickel, en raison de sa très bonne linéarité.

### II.1.3.3. Comparaison des technologies

Les deux technologies de jauges se complètent parfaitement. D'un côté les jauges métalliques possèdent des facteurs de jauges plus faibles 2 à 4 contre 10 à 100 pour celle semi-conducteur, mais en contrepartie elles ont une linéarité plus élevée ainsi qu'une dépendance linéaire avec la température, rendant leur instrumentation plus facile. Actuellement les jauges semi-conductrices sont généralement sélectionnées pour être intégrées dans des transducteurs à l'échelle MEMS type capteur de pression, où les niveaux de déformations sont bien maîtrisés, permettant de profiter des hauts facteurs de jauges et de limiter les non-linéarités du capteur.

La Figure 10 donne une synthèse des domaines de fonctionnement des deux technologies, en fonction des niveaux de déformation mécanique.

Il est intéressant de noter qu'il existe un gap entre les deux méthodes de réalisation des jauges. L'impression par jet d'encre pourrait être une solution pour combler le besoin de capteur avec des facteurs de jauge corrects (6 à 15) et une bonne linéarité sur une gamme de sollicitation mécanique importante. Cet axe sera exploré dans les prochains paragraphes.

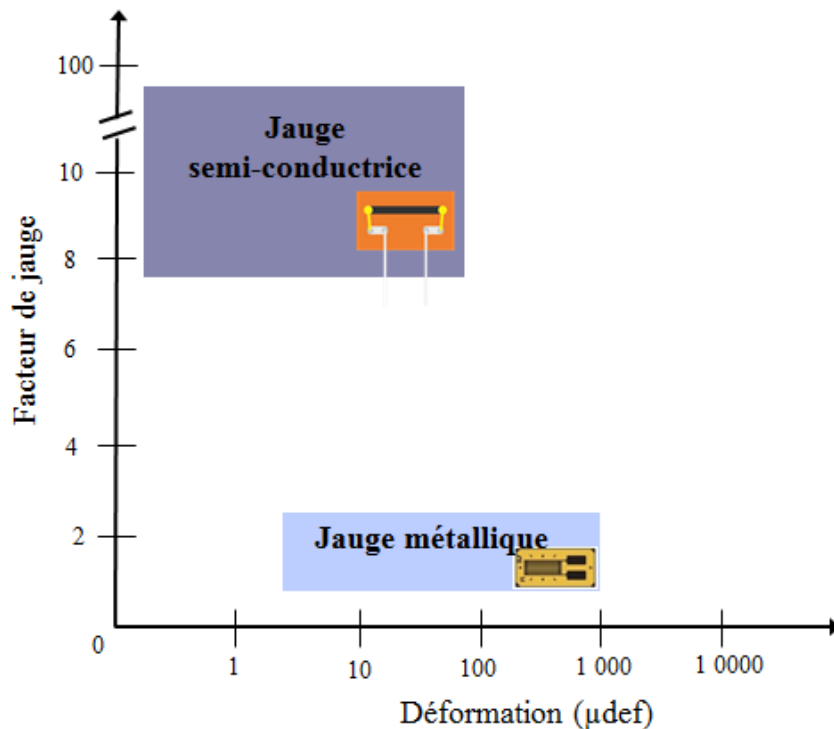


Figure 10 : Facteur de jauge en fonction de la gamme de déformation

### III. Mise en œuvre par impression et caractérisation

Le développement récent d'encre fonctionnalisées constituées de nanoparticules métalliques, associé à la maîtrise du procédé d'impression par jet d'encre a rendu possible l'émergence de l'électronique imprimée. Cette partie aborde les différents aspects liés à la réalisation de pistes métalliques en vue de l'obtention de jauges de déformation sur substrat souple ou non-plan. Dans un premier temps une présentation sur l'impression par jet d'encre sera réalisée, avant de passer à la mise en œuvre pour la réalisation de capteurs résistifs.

#### III.1. Les paramètres clés de l'impression par jet d'encre

##### III.1.1. Introduction à l'impression par jet d'encre

L'impression par jet de matière est un procédé d'impression sans contact reposant sur la formation de gouttes par rupture d'un jet de fluide continu, sous l'effet d'une petite perturbation telle qu'une onde de pression.

Le jet d'encre (ou plus généralement de matière), principalement utilisé dans l'industrie du graphisme, est actuellement en plein essor dans de nombreux autres domaines de haute technologie. Les possibilités qu'offre ce procédé additif sont intéressantes pour diverses applications industrielles, notamment en microélectronique où la non-pollution, la précision et l'économie de matière sont des éléments primordiaux. Ainsi, il existe deux grandes catégories de procédés jet d'encre, comme l'illustre la Figure 11.

Dans le cas des travaux de recherche effectués, seule la technologie DOD (Drop On Demand) sera étudiée. Contrairement au procédé par jet continu, le procédé à la demande forme uniquement les gouttes nécessaires à l'impression, en créant une onde de pression dans un canal contenant un liquide, ce qui entraîne l'expulsion d'une goutte à travers une buse. Les trois principales méthodes d'éjection à la demande sont le procédé thermique, le procédé piézoélectrique et la thermofusion. Les impressions seront réalisées à l'aide d'éléments piézoélectriques. Ce procédé, actuellement le plus développé des trois, est basé sur le phénomène de piézoélectricité inverse, lors duquel un matériau se déforme mécaniquement sous l'effet d'un champ électrique (Figure 12). De nombreuses têtes d'impression, dites piézoélectriques, ont été développées sur ce principe. Les murs des buses, taillées dans la céramique piézoélectrique, se déforment sous l'effet d'un champ, ce qui crée une surpression dans le liquide et permet la formation et l'éjection d'une goutte au niveau de la buse de sortie. Le chauffage du matériau dans ce procédé n'est pas indispensable, ce qui réduit son coût énergétique. Cependant, il peut être nécessaire pour abaisser la viscosité du fluide afin de rentrer dans les spécifications d'utilisation de la machine. Ce procédé utilise une approche purement mécanique pour l'éjection des gouttes, et impose moins de limitations sur les liquides pouvant être employés [19], à l'inverse du procédé thermique qui est en général limité aux encres à base aqueuse.

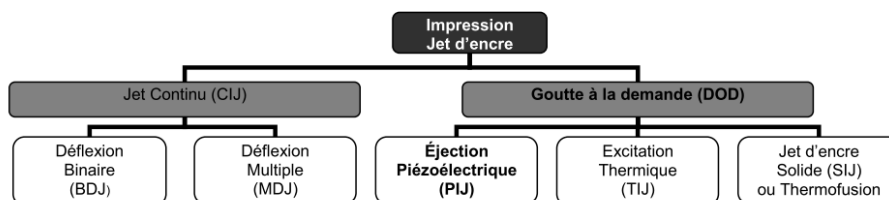


Figure 11 : Organigramme des technologies Jet d'encre (extrait de [12])

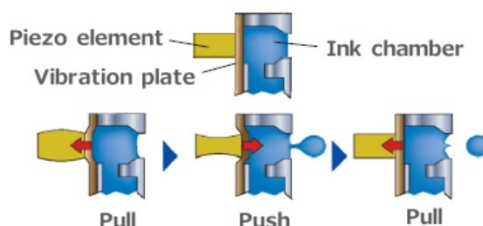


Figure 12 : Principe de fonctionnement d'une tête piézoélectrique ( extrait de [19])

### III.1.2. Sélection de la tête d'impression

Il a été choisi de privilégier la qualité du dépôt, plutôt que la cadence, c'est pourquoi il a été décidé de travailler avec des têtes d'impression à la demande, plutôt qu'en jet d'encre continu. De plus, le procédé continu étant moins stable et robuste, un bon nombre de fabricants de têtes d'impression industrielles concentrent actuellement tous leurs efforts de recherche sur le procédé à la demande. Comme indiqué dans le paragraphe précédent, il a été choisi de travailler

sur des têtes d'impression piézoélectrique. Différents fabricants produisent ce type de tête, il est possible de citer, XAAR, DIMATIX, KONICA, EPSON, ou MICROFAB. Par contre, chaque fabricant met sur le marché des têtes ayant des propriétés différentes, qu'il est intéressant de détailler.

### *III.1.2.1. Configuration de l'actionneur piézoélectrique*

La majorité des têtes d'impression utilise des éléments piézoélectriques de type PZT (Titanio-Zirconate de Plomb). Généralement les buses d'impression sont taillées dans un bloc de PZT, et ont la faculté de se déformer sous excitation électrique entre 0,05 à 0,5 nm pour des tensions de 10 à 150V), et de créer une surpression dans le canal permettant la formation d'une goutte au niveau de la buse de sortie [20]. Actuellement les têtes d'impression exploitent deux modes de déformation à savoir en cisaillement (shear) ou dans l'épaisseur (thickness). Le Tableau 2 présente un comparatif des technologies utilisées par différents fabricants de têtes d'impression, dont les schémas de principe utilisant les deux modes de fonctionnement sont présentés dans la Figure 13. Il est couramment admis que les têtes d'impression fonctionnant en cisaillement (shear-mode), ont généralement une durée de vie plus longue, en raison des plus faibles contraintes mécaniques engendrées. Le fabricant DIMATIX et XAAR donne une durée de vie de  $10^{13}$  cycles d'éjection.

Marque	Mode de déformation
SHARP	Bend-Mode
EPSON	Bend-Mode
KONICA	Shear mode
DIMATIX	Shear mode
XAAR	Shear mode
MICROFAB	Squeeze mode

Tableau 2 : Synthèse des différentes configurations d'actionneurs pour les têtes d'impression du commerce

### *III.1.2.2. Configuration multibuses ou monobuse*

Il existe deux grandes catégories de tête jet d'encre : les monobuses et les multibuses.

La première catégorie permet d'avoir une très bonne reproductibilité du volume déposé et une excellente précision de dépôt. La société MICROFAB en est le fabricant principal et propose des buses de diamètre allant de 20 à 80 $\mu$ m. Ces têtes sont très flexibles : l'impulsion électrique, utilisée pour activer l'éjection, peut être totalement contrôlée par l'utilisateur permettant ainsi une meilleure maîtrise des caractéristiques des gouttes déposées. De plus, le corps des têtes est en quartz et donne une très grande tolérance vis-à-vis du choix des liquides à éjecter et la gamme de viscosité des liquides utilisables est plutôt large (20-70cP pour une température allant jusqu'à 250°C). Ces têtes sont des outils de recherche très pratiques, puisqu'elles laissent beaucoup de liberté à l'utilisateur.

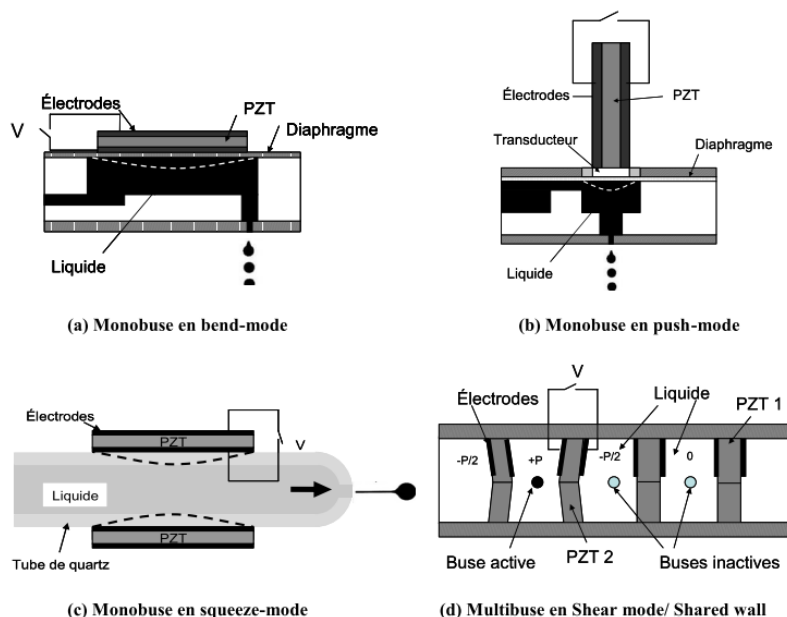


Figure 13 : Les différentes architectures d'actionneurs piézoélectriques ( extrait de [21])

Cependant, le plus petit volume de gouttes pouvant être formées est de l'ordre de 10 pl, cela peut être un frein pour certains domaines, de plus leurs cadences de remplissage sont faibles, limitant ainsi l'impression à des petites surfaces.

La seconde catégorie de têtes présente plusieurs dizaines voire centaines de buses parallèles, ce qui permet d'éjecter un grand nombre de gouttes en même temps et donc d'avoir une cadence de remplissage élevée. Cependant, l'éjection stable et simultanée de centaines de gouttes est complexe et a pour conséquence de baisser grandement les performances en termes d'uniformité et de précision. Ces têtes sont en général moins flexibles, du point de vue de la compatibilité chimique, en raison de la nature chimique de leurs constituants. Par ailleurs, la gamme de viscosité de la plupart des têtes est assez restreinte (6-14cP pour une température inférieure à 70°C), réduisant considérablement le nombre de liquides utilisables. Enfin, la précision spatiale de dépôt des gouttes est bien entendu moins facile à maîtriser que pour la première catégorie. Mais cette technologie est la plus utilisée dans le monde socioéconomique.

Malgré l'augmentation du niveau de complexité des multibuses, l'objectif des travaux de recherche consiste à démontrer le potentiel des capteurs à imprimer, avec une bonne productivité, sur une surface importante.

### III.1.2.3. Les paramètres clés des têtes d'impression multibuses

Le but de cette partie est d'indiquer les propriétés clés à regarder lors de la sélection d'une tête d'impression. En effet de nombreuses fabrications existent avec de multiples dessins de têtes et modes de déformations. Les paramètres sont aux nombres de trois :

- Compatibilité chimique
- Résolution, nombre de buses et précision mécanique
- Viscosité
- Volume des gouttes

#### **III.1.2.3.1. Compatibilité chimique**

Il s'agit d'une propriété importante, afin de garantir par exemple que l'encre ne soit pas un solvant d'un des matériaux constituant la tête d'impression. À titre d'exemple, les têtes EPSON utilisent une technologie dans laquelle le liquide n'entre jamais en contact avec les électrodes. Ceci permet d'utiliser des liquides qui ont une conductivité ionique assez élevée comme les solutions aqueuses ou des solvants ioniques. Dans les têtes XAAR où les électrodes sont à l'intérieur des canaux en contact direct avec le liquide, il n'est pas possible d'utiliser de tels liquides dont les ions vont réagir sur les électrodes sous l'effet du champ électrique. Par ailleurs, un certain nombre de têtes sont sensibles aux solvants à cause de la faible résistance de leurs constituants plastiques qui se détériorent et provoquent des fuites de liquides vers les composants électroniques des têtes. Généralement la majorité des fabricants protège leur système à l'aide d'un film mince de Parylène-C.

#### **III.1.2.3.2. Résolution, nombre de buses et précision mécanique**

Ces trois paramètres dépendent de la précision de la méthode de fabrication des têtes. La tête DMC de chez DIMATIX est fabriquée par des méthodes développées dans le domaine de la microélectronique pour la fabrication de microsystèmes électromécaniques (MEMS : Micro Electro Mechanical System) [22]. Ce nouveau mode de fabrication ultra précis offre la possibilité à l'utilisateur de la tête d'ajuster les buses une à une afin d'avoir une meilleure maîtrise de leurs performances et de leur homogénéité.

La précision de positionnement des gouttes imprimées est due en grande partie au positionnement des buses les unes par rapport aux autres sur la tête et à la déviation des gouttes en sortie de buse. Cette déviation est généralement causée par la présence de résidus de fabrication gênant l'éjection et par des défauts de fabrication de l'orifice, mais est aussi intrinsèquement liée la motorisation de la tête d'impression.

#### **III.1.2.3.3. Viscosité**

Les gammes de viscosité utilisables sur les têtes de type multibuses sont à peu près les mêmes chez les différents fabricants. Les forces de frottement lors de l'éjection augmentent fortement avec l'augmentation de la viscosité du fluide et sont dues au cisaillement imposé par le passage du liquide à travers l'orifice de sortie des buses, dont le diamètre est de l'ordre de la dizaine de micromètres. Il est possible de réguler la température de certaines têtes d'impression, afin de contrôler la viscosité du liquide par exemple chez DIMATIX.

#### **III.1.2.3.4. Volume d'une goutte**

Le volume indiqué dans les documentations du constructeur correspond à un volume moyen, il dépend de la taille des buses, des propriétés rhéologiques du fluide et de l'impulsion électrique appliquée au PZT. Cette propriété est importante concernant la rapidité d'impression, mais aussi la résolution.

#### **III.1.2.3.5. Synthèse sur l'aspect matériel de l'impression jet d'encre**

Les précédents paragraphes ont permis de mettre en avant les caractéristiques des têtes d'impression à prendre en compte. La prochaine partie s'attachera à introduire les propriétés de l'encre et du substrat.



#### **III.1.2.4. Les propriétés de l'encre et du substrat**

Le principe du jet de matière repose sur la génération d'une onde de pression dans un canal rempli de fluide. À l'orifice, le fluide est retenu par sa tension de surface à l'interface air/fluide. L'action de l'onde de pression surpasse la tension de surface et projette une goutte. Il est nécessaire de comprendre comment les propriétés du fluide et les paramètres d'impression affectent la morphologie et le contrôle spatial (résolution) des dépôts. Aussi bien la taille que la vitesse des gouttes définissent la taille du motif imprimé après impact et l'étalement de la goutte. L'objectif de ce paragraphe est d'étudier l'influence des différents paramètres mis en jeu lors de l'impression : paramètres physiques, propriétés physicochimiques de l'encre et du substrat.

##### **III.1.2.4.1. Les propriétés physicochimiques de l'encre**

Les points cruciaux de la technologie d'impression par jet d'encre sont, sans aucun doute, l'encre et ses propriétés physiques, notamment sa viscosité et sa tension de surface. La tension de surface est responsable de la forme sphérique du fluide à l'extrémité de la buse d'éjection couramment nommée ménisque. De plus, la mouillabilité de l'encre sur le matériau constituant la buse est très importante et dépend en partie de cette tension. Si l'encre mouille les parties externes de la buse, la formation d'un spray risque de se produire lors de l'impression [10]. De façon générale il est nécessaire d'avoir un ménisque concave en jouant sur la pression, ce qui a tendance à améliorer la stabilité du jet et à réduire la fréquence de bouchage des têtes. La viscosité quant à elle va influencer sur la facilité à éjecter des gouttelettes et une viscosité trop importante rendra l'impression impossible.

La solubilité du matériau est un autre paramètre à prendre en compte, qui consiste à sélectionner le solvant en adéquation avec le matériau à imprimer afin d'assurer la stabilité de la solution, mais surtout pour assurer une bonne solubilité du matériau à déposer. Cela implique que l'épaisseur déposée sera directement liée à la concentration initiale de l'encre et donc de concentrer l'encre au maximum. Cependant, il faut néanmoins être attentif à la fiabilité de l'impression, car une concentration trop élevée augmente la fréquence de bouchage de la tête. En raison de la faible fraction volumique en solvant, lors de son évaporation, le dispositif atteint plus rapidement une concentration critique de l'encre au niveau de l'orifice, et celui-ci se bouche. Cela augmente aussi la viscosité de l'encre, rendant la formation de gouttelettes plus difficile.

Pour résumer, les propriétés nécessaires à un fluide pour être mis en œuvre par un système de jet de matière type multibuses, sont les suivantes :

- une viscosité comprise entre 0,5 et 40 cP à la température à laquelle la tête d'impression opère
- une tension de surface comprise entre 0.02-0.07 N/m
- une bonne solubilité.

Certains fluides en dehors de ces intervalles peuvent être dispensés par jet de matière, mais cela génère des difficultés supplémentaires ou nécessite d'autres types de dispositifs.

#### **III.1.2.4.2. Les propriétés d'impression du substrat**

L'imprimabilité d'un substrat représente sa capacité à produire une impression de qualité. Elle dépend donc des propriétés de ce substrat, mais également de l'encre utilisée. Il n'est possible de qualifier l'imprimabilité d'un substrat que par rapport à une encre. Les paramètres du substrat influençant le séchage de l'encre sont déterminants pour définir l'imprimabilité de celui-ci : sa porosité, sa perméabilité, sa rugosité vont notamment définir son aptitude au mouillage relativement aux propriétés de l'encre (sa composition, sa viscosité, sa tension de surface ...). D'autre part, l'impact et l'étalement d'une goutte sur un substrat sont des paramètres physiques importants pour le procédé d'impression par jet [23].

#### **III.1.2.4.3. Synthèse sur les aspects encre/substrat**

Pour une tête d'impression donnée, les paramètres d'impression constituent un ensemble propre à chaque couple encre/substrat : par exemple, la forme d'onde est propre à l'encre utilisée, alors que la température du substrat et le pas de l'impression sont en lien aussi bien avec le substrat qu'avec l'encre. Trois principaux facteurs influent sur la résolution de la ligne : la taille de la goutte, son étalement sur le substrat et l'interaction entre gouttes voisines. Le taux d'évaporation du solvant, la viscosité et la tension de surface affectent à la fois l'éjection de la goutte et l'interaction avec le substrat.

#### **III.1.2.5. La plateforme d'impression du LGEF**

Les précédents paragraphes ont permis de mettre en avant les facteurs clés à prendre en compte lors de l'impression de matériaux. L'objectif de cette partie est de présenter la plateforme d'impression qui a été développée au LGEF lors des activités de recherche.

La photographie disponible en Figure 14 donne une vue d'ensemble de la plateforme d'impression du LGEF, elle est constituée de trois équipements de base pour l'impression disposant chacun de leurs spécifications à savoir :

- L'imprimante LP 50 de chez PIXDRO pour le développement des encres
- L'imprimante BR-8000 de chez BROTHER-JET pour l'impression sur des structures avec un encombrement important
- Le microdispenser de chez Sonoplot pour l'impression d'encre dense avec des particules de tailles importantes.

Les autres équipements permettant des traitements de surface type Corona et UV Ozone, un viscosimètre et microscope de table. De plus la plateforme dispose d'imprimante sur le principe de la fusion de polymère.



Figure 14 : Photographie de la plateforme d'impression du LGEF

Afin de ne pas alourdir le manuscrit, seule une présentation du principe de fonctionnement de l'imprimante LP-50 sera effectuée. En effet l'ensemble des imprimantes de la plateforme fonctionne sur la technologie jet d'encre piézoélectrique.

#### **III.1.2.5.1. Vue d'ensemble de l'imprimante LP-50**

La machine d'impression jet d'encre utilisée pour le développement des encres électroactives est proposée par l'entreprise PIXDRO, avec une plateforme spécifique pour la R&D à savoir la LP50. Elle est constituée des éléments suivants (Figure 15):

- une table motorisée chauffante (90°C) sur laquelle le substrat est maintenu par aspiration (Tableau 3) ;
- de têtes d'impression de la société DIAMATIX, il est possible d'adapter des têtes de différents fabricants (Tableau 4) ; chaque tête est pourvue d'un élément chauffant permettant de contrôler la température de l'encre dans la tête d'impression (jusqu'à 70°C) et est alimentée en matériau par un réservoir (où est stockée la solution à imprimer) qui est relié à une pompe à vide ;
- d'un ordinateur permettant de gérer les déplacements mécaniques de la table et les paramètres d'impression des têtes.

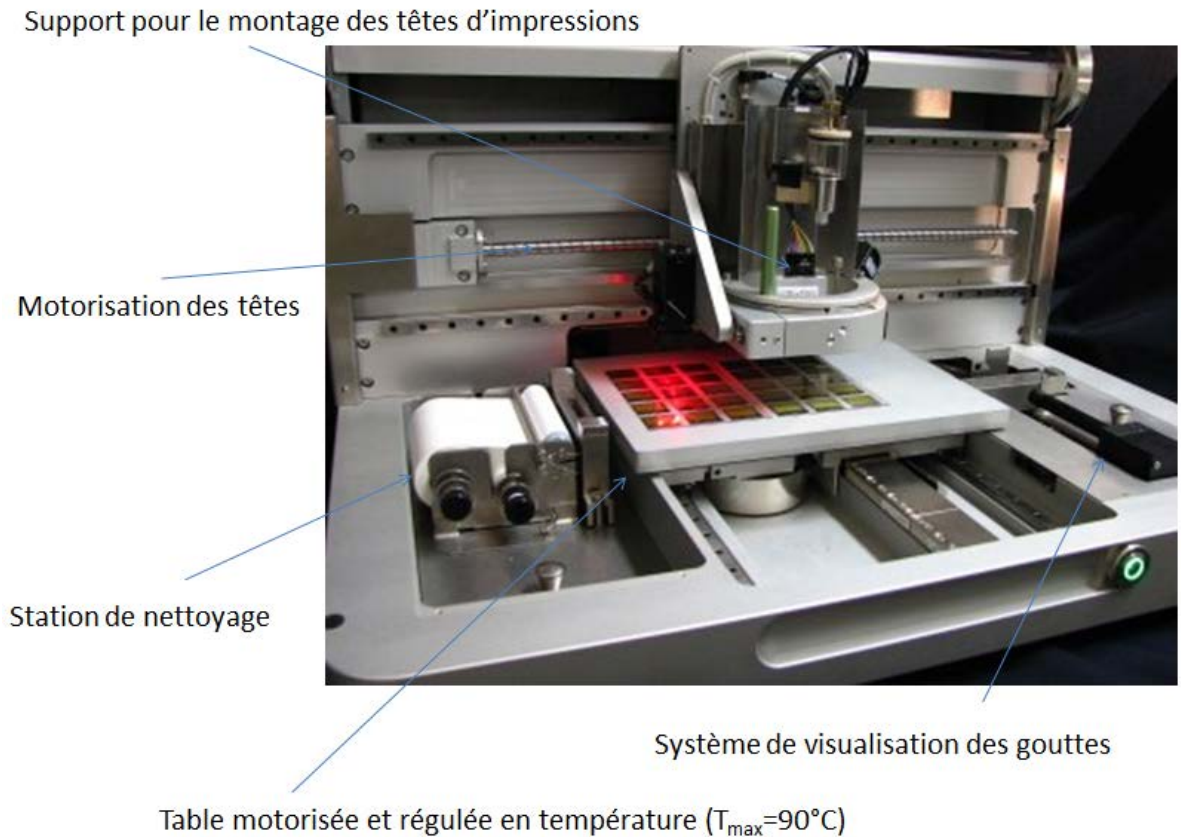


Figure 15 : Plateforme d'impression du LP 50 du LGEF

Equipment	
Substrate	- Table A4 (210 x 310 mm)
	- Conditioning 50°C standard and 90°C optional
	- Clamping Vacuum clamping
System	- Accuracy 5µm 3 sigma
	- Footprint 768 x 621 x 457 mm without PC and monitor
	- Weight Approx. 90 Kg
	- Power input Single phase, 100-240 VAC, 1000 W, 50/60 Hz
5 axis motion	x, y, z, phi print head and phi substrate table
Exhaust utilities	10 m <sup>3</sup> /hr at 120 Pa backpressure
Head exchange time	< 3 minutes
Vision systems	Standard Dropview and Printview, optional Advanced Drop Analysis
Maintenance functions	Jetting, vacuum capping, print head purge and wiping
Software	
Advanced drop analysis	Calculation of drop volume, speed and angle
PrintGen	Influence nozzle usage and printing sequence
Open source scripting	Free programmable recipes
Range of image formats	Over 120 file formats possible

Tableau 3 : Extrait de la documentation constructeur sur les caractéristiques de la LP-50

Inkjet specifications	
Available print heads	Spectra, Konica Minolta, Trident, Xaar
Ink types	Solvent based (incl. nanoparticles, silver), water based (incl. KOH), acidic, hotmelt, UV curable
Viscosity range	1 - 20 Centipoise
Nozzle range	1 - 1000 nozzles
Drop volume range	4 - 200 pico liter
Feature sizes	Down to 5 - 20 $\mu\text{m}$
Printing speed	X-axis, 200 mm/s, 400 mm/s

Tableau 4 : Extrait de la documentation constructeur sur les têtes d'impressions et les encres

#### III.1.2.5.2. Tête d'impression SPECTRA de la société DIAMATIX

La majorité des impressions a été réalisée avec les produits de la gamme SPECTRA disposant de propriété proche des têtes utilisées dans la machine de chez BROTHER JET permettant donc de passer rapidement de l'imprimante pour le développement des encres à leur mise en application.

La société DIAMATIX a développé un grand nombre de têtes d'impression. La majorité de leurs produits fonctionnent en « shear mode » ou « bend mode » (Figure 12). La tête d'impression utilisée est une Spectra S class (Figure 16), composée de 128 buses espacées de 0.508 mm et commandées par deux ensembles de 64 actionneurs piézoélectriques. Il est donc possible de commander les deux ensembles de façon indépendante. Dans la configuration de tests, le diamètre des buses de 10 $\mu\text{m}$ .

Le fluide est stocké au-dessus de la tête d'impression dans des réservoirs reliés à un système de pompe à vide (Figure 17). Au repos, la pression dans la buse est maintenue légèrement inférieure à la pression atmosphérique, afin de garder un ménisque concave au niveau de l'orifice. Ceci permet de stabiliser l'éjection, de réduire l'évaporation des liquides volatils à la sortie des buses, d'éviter la formation de flaque à la sortie des buses et bien sûr d'éviter un écoulement de l'encre par gravité. Le niveau de vide peut être modifié en fonction de la densité du fluide à déposer, de la hauteur de liquide dans la seringue et de la tension de surface du liquide.

Les sorties des buses sont en métal avec un traitement spécifique. Dans le but de réduire la mouillabilité et donc d'avoir un ménisque bien formé pour favoriser la formation et l'éjection de gouttes bien séparées. De plus, cela facilite aussi le nettoyage du surplus de liquide lors des séquences de maintenance.

Pour stimuler le cristal piézoélectrique, il est nécessaire d'envoyer aux électrodes une impulsion électrique. L'amplitude et la durée de chaque phase de cette impulsion peuvent être modulées afin de contrôler l'éjection des gouttes [22]. La Figure 18 illustre la forme de l'impulsion utilisée par Diamatix [22] et présente l'influence que cette impulsion peut avoir sur l'onde acoustique formée et sur la pression appliquée au fluide au niveau de l'orifice [20]. En ce qui concerne les têtes Spectra, il n'est pas possible de modifier la forme générale de l'impulsion électrique. Seules l'amplitude, la fréquence et la durée de l'impulsion sont accessibles à l'utilisateur.

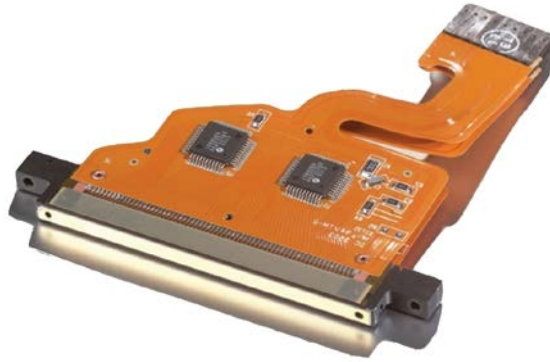


Figure 16 : Tête d'impression Spectra S class



Figure 17 : Réservoir de la LP-50

La formation de la goutte peut être décomposée de la manière suivante :

- Étape 1.
  - Une impulsion électrique positive déforme la céramique piézoélectrique. Ceci provoque une contraction du canal qui va accentuer le phénomène de surpression au sein du liquide et initier l'éjection de la goutte.
  - L'onde se déplace vers l'orifice et va pousser par surpression le ménisque de liquide vers l'extérieur pour former une colonne de liquide, pendant une période acoustique.
  - Le débit de liquide diminue: la différence de vitesse entre la tête de la goutte et la queue, au niveau de l'orifice, provoque l'amincissement de la colonne de liquide.
- Étape 2.
  - La réflexion de l'onde acoustique inverse la pression à l'orifice, ce qui permet la rupture nette du ligament. La dépression, à l'autre extrémité, permet aussi d'aspirer le liquide du réservoir pour remplir à nouveau le canal.

- Enfin l'annulation de l'impulsion électrique permet l'atténuation des ondes acoustiques et élimine progressivement les oscillations de pression (insuffisantes pour éjecter du liquide) jusqu'à un retour à la pression atmosphérique.

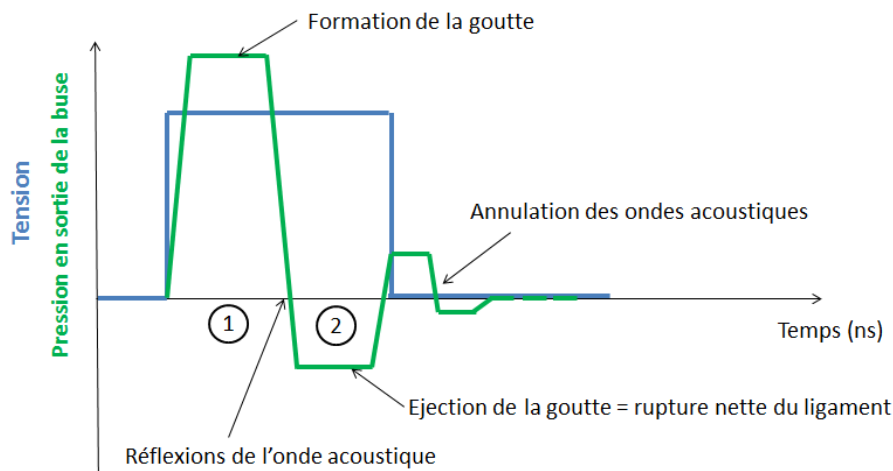


Figure 18 : Schéma illustrant la forme de l'impulsion électrique et la variation de la pression au niveau de l'orifice<sup>1</sup>

Ainsi, il est important de noter que la durée de l'impulsion électrique est primordiale et dépend de la période de propagation acoustique à travers le liquide. Il existe donc une durée optimale d'impulsion électrique, qui dépend notamment de la densité du fluide.

Les principaux paramètres à prendre en compte pour l'impression de matériaux ayant été énoncés, la prochaine partie se focalisera sur la mise en œuvre d'encre conductrice pour la réalisation de capteurs de déformation de type piézorésistif.

### III.2. Encre conductrice

L'objectif applicatif étant la réalisation de capteur résistif, de façon simpliste cela revient à la mise en œuvre d'encre conductrice. Il en existe deux, soit à base de polymères conducteurs ou à base de métaux, cette partie se concentrera sur ces dernières.

La formulation d'encres fonctionnelles à partir de nanoparticules doit répondre à des spécifications en termes de viscosité, de stabilité dans le temps, de taille, de charge massique des nanoparticules notamment (Tableau 5) et il existe une large gamme d'encre. En effet, afin de pouvoir s'écouler à travers les canaux de la tête d'impression, l'encre doit avoir une viscosité comprise entre 1 et 20 mPa.s. Il faut noter que cette viscosité dépend de la température et elle sera d'autant plus importante que la concentration en nanoparticules dans le solvant le sera. Néanmoins, une charge massique importante de nanoparticules conduira également à une augmentation de la probabilité de création d'agglomérats. Cette concentration en nanoparticules doit donc être considérée avec attention pour permettre une couverture suffisante et homogène du substrat après l'évaporation des solvants, tout en limitant les risques d'agglomération et de

---

<sup>1</sup> [http://www.fujifilm.com/about/research/report/059/pdf/index/ff\\_rd059\\_007\\_en.pdf](http://www.fujifilm.com/about/research/report/059/pdf/index/ff_rd059_007_en.pdf)  
[http://doc.utwente.nl/58366/1/thesis\\_Wijshoff.pdf](http://doc.utwente.nl/58366/1/thesis_Wijshoff.pdf)  
<http://www.diva-portal.org/smash/get/diva2:9351/FULLTEXT01.pdf>

sédimentation. La sédimentation peut être minimisée si la taille des nanoparticules – et donc leur masse – est réduite. Par conséquent, la quantité d'encapsulant organique nécessaire pour maintenir une particule en suspension sera plus faible. Néanmoins, à contenu massique identique, les nanoparticules de plus faible taille seront d'autant plus nombreuses dans un volume d'encre donné, développant alors une plus grande surface libre : la quantité d'encapsulant utilisé sera alors proportionnellement plus élevée pour prévenir les agglomérations d'autant plus fréquentes que les particules ont une petite dimension. Par ailleurs, l'utilisation de nanoparticules dont la taille est de l'ordre de 5 nm permet de réduire considérablement la quantité de chaleur à fournir pour initier leur coalescence. Ceci est d'autant plus intéressant quand des substrats polymères avec de faibles températures de fusion sont considérés [24].

Fournisseur	Diamètre moyen (nm)	Contenu massique (%m)	Solvants	Viscosité (mPa.s)	Tension superficielle (nN/m)
Cabot	60-80	20	Éthanol, éthylène glycol	11-15	30-33
Sun Chemical	30-50	20	Éthanol, éthylène glycol, glycérol	10-13	27-37
ANP	10	40-45	Éther de glycol	2-16	28-37
Harima	5-12	52-27	Tétradécane	8-15	-
Bayer	60	22	Éthylène glycol, eau	3-4	28
NanoMas	2-10	10-30	-	10-13	-
Ulvac	3-7	55-60	-	3-12	28-35
UTDot	7-10	10-50	Xylène, alpha terpinéol	1-10	-

Tableau 5 : Composition et propriétés de quelques encres commerciales à base de nanoparticules métalliques pour l'impression par jet d'encre.

Lors des travaux de recherche, différentes encres ont été testées, seuls les tests sur les encres de la société Cabot seront présentés, l'objectif étant de comprendre le principe de mise en œuvre de cette technologie. Ce système colloïdal est constitué de nanoparticules d'argent, d'un diamètre moyen de 30-50 nm, recouvertes d'une couche polymère et dispersées dans un mélange de solvants éthanol/éthylène glycol/glycérol. Une fois imprimée, l'encre peut être recuite à une température largement inférieure à la température de fusion de l'argent massif (900°C) pour former un conducteur métallique continu. Les nanoparticules commencent à fritter (coalescent) à partir de 100°C (Figure 19). Lors du frittage, la coalescence des nanoparticules crée un chemin de percolation continu pour le passage des électrons à travers le matériau. L'encre présente une viscosité de 14,4 cP à 22°C et une excellente imprimabilité. La conductivité est d'autant plus élevée que la température et le temps du recuit sont élevés comme l'illustre la Figure 20. Après évaporation du solvant, l'encapsulant polymère devient un obstacle au frittage et au transport de charges. Si on élève la température (100-150°C), la couche polymère n'est pas volatilisée, mais le contact entre nanoparticules, et donc le frittage, s'effectue (Figure 19). La couche polymère joue alors le rôle de promoteur d'adhérence, essentiel lors d'une impression sur support polymère. Si la température de recuit est dans la gamme (300-550°C), la couche polymère est détruite et volatilisée. Ainsi, le frittage est plus rapide et un film plus dense se forme, ce qui accroît la conductivité du matériau. Il est aussi possible d'éviter le recuit pour certains substrats sensibles ne supportant pas des températures élevées, en utilisant des traitements de surface spécifiques, mais cela implique l'impression d'une couche supplémentaire. À titre d'exemple la photographie disponible en Figure 21 donne



### Chapitre 3. L'impression de capteurs de grandeurs mécaniques de type résistif

une vue de piste conductrice imprimée sur substrat PET sans recuit, par contre la conductivité est plus faible.

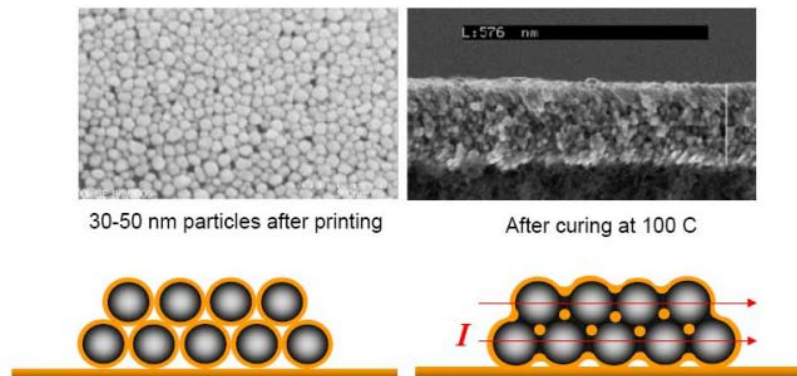


Figure 19 : Illustration schématique du frittage des nanoparticules d'argent (extrait de [25])

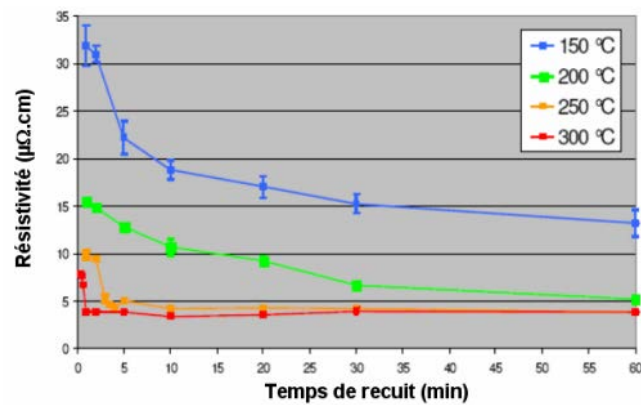


Figure 20 : Évolution de la résistivité de l'encre de Cabot sur substrat Kapton® en fonction de la température et du temps de recuit

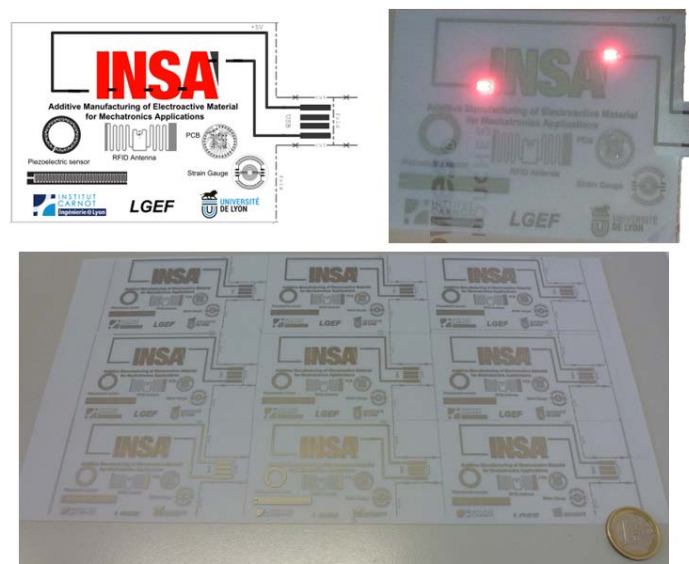


Figure 21 : Illustration d'impression d'encre conductrice sans recuit, mais à l'aide de traitement chimique, réalisée au LGEF

### III.3. Application des capteurs piézorésistifs imprimés

Les précédents paragraphes ont démontré la possibilité d'imprimer des encres conductrices sur la plateforme du LGEF. Cette section est divisée en deux grandes parties, la première est consacrée à la mesure et à l'analyse des propriétés des jauges de déformations résistives imprimées. Quant à la seconde, elle est consacrée à leur mise en application autour du contrôle de santé des structures.

#### III.3.1. Caractérisation des jauges résistives imprimées

Dans le but d'obtenir les caractéristiques structurelles dans le cas de la réalisation de jauges de déformations, une architecture classique a été imprimée, comme l'illustre la Figure 22, donnant le principe de fonctionnement des jauges.

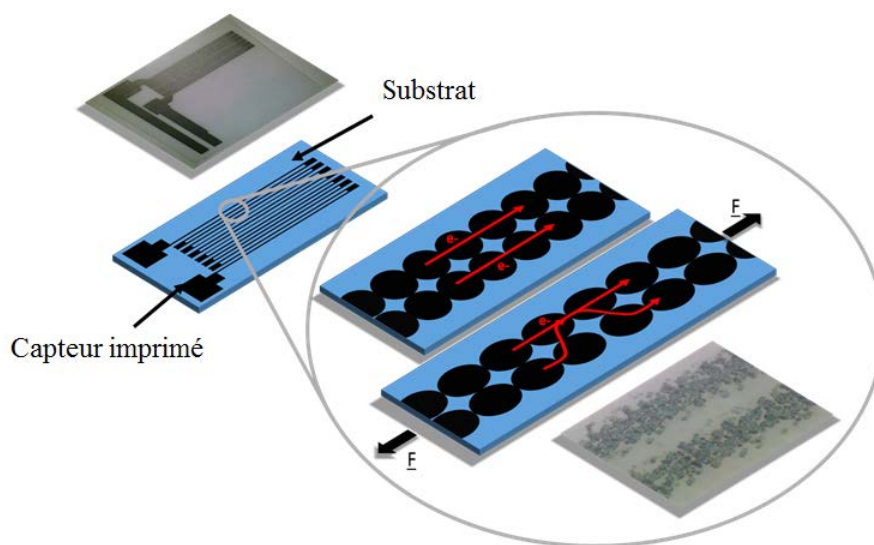


Figure 22 : Illustration du principe de fonctionnement des jauges imprimées, développé au LGEF

Dans un premier temps les capteurs sont imprimés sur un substrat en polyamides (PET) (Figure 23), afin de disposer de systèmes fonctionnel et rapides à mettre en place. Elles sont ensuite collées sur une éprouvette en PVC avec une jauge du commerce servant de référence. Cette structure est ensuite intégrée dans un dispositif et sollicitée par un actionneur linéaire NITEK (GDI 350ES500S) capable d'avoir des courses de 300 mm et une force de 1kN. L'ensemble des capteurs est ensuite connecté à une centrale d'acquisition DEWE disposant de ponts de Wheatstone intégrés permettant de remonter aux propriétés clés de cette technologie.

La Figure 24 résume les principales mesures effectuées. Il est intéressant de noter sur la Figure 24.a une excellente linéarité de la réponse pour une sollicitation en traction. Le facteur de jauge a été mesuré sur une large gamme de déformation allant de  $1\mu\text{def}$  à  $10\,000\mu\text{def}$ . Celui-là est resté constant sur cette gamme indiquant toujours une linéarité acceptable. De plus le facteur de jauge est au-dessus de la technologie métallique limitée à des coefficients en général de 2 [18]. Par contre les jauges de types semi-conductrices disposent de facteurs plus élevés, mais leur domaine de linéarité est limité à des déformations inférieures à  $500\mu\text{def}$ , limitant l'utilisation de cette technologie généralement à la réalisation de transducteurs spécifiques. Des études préliminaires de tenue en fatigue ont aussi été entreprises comme l'illustre la Figure 24.c où une faible variation ( $<5\%$ ) a été notée au bout de 10 000 cycles correspondant *a priori* au

travail de la colle. De plus une inspection au microscope n'a pas révélé de défauts visibles dans la structure de la piste (Figure 24.d).

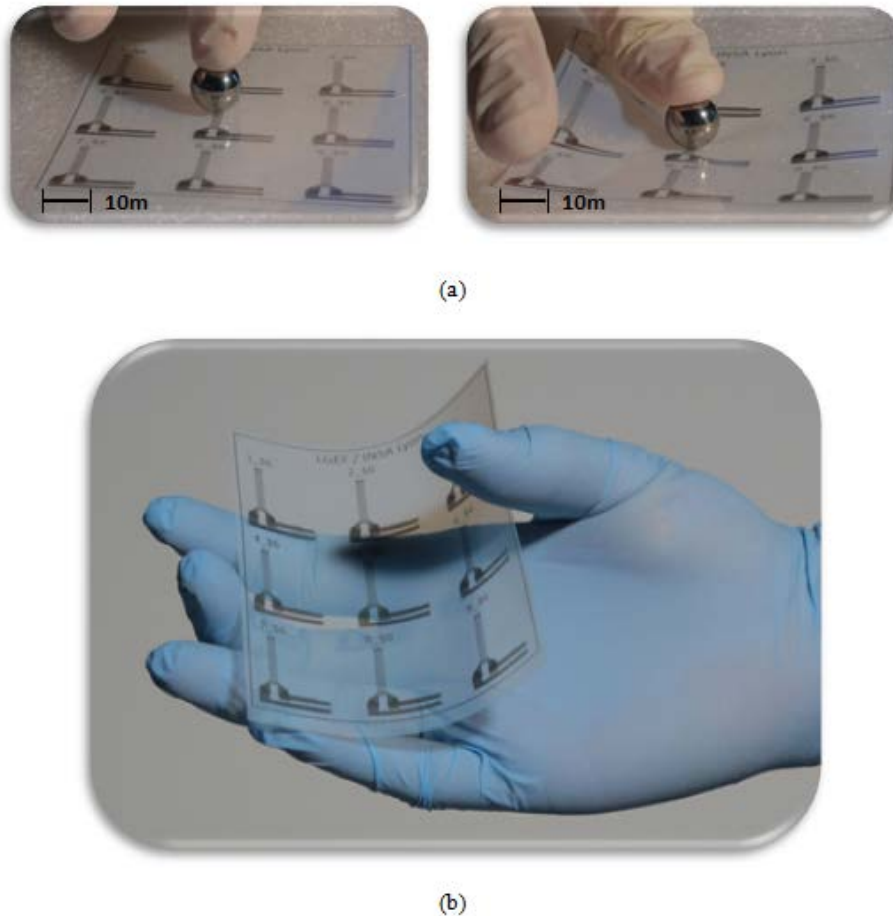


Figure 23 : Exemple de capteur imprimé de type résistif. (a) Capteur flexible sans déformation (à gauche) et avec déformation (à droite). (b) Capteur résistif après impression.

L'impression par jet d'encre offre la possibilité de modifier la résolution et donc la densité de points imprimés, couramment nommé PPP pour Point Par Pouce. Une étude de la sensibilité en fonction des paramètres d'impression, comme le montre la Figure 25, donne l'évolution du facteur de jauge en fonction de la résolution d'impression. Les mesures indiquent la possibilité d'avoir des coefficients de 7, soit quasiment trois fois plus importantes que les jauges métalliques du commerce. Il est intéressant de remarquer en première approche que les meilleures sensibilités ne sont pas obtenues pour la plus grande résolution. En effet lorsque cette dernière devient trop importante, le dépôt a tendance à être équivalent à une ligne continue est homogène, se rapprochant de la technologie métallique. Alors que pour une résolution plus faible il y a augmentation de la variation de résistance, hypothétiquement causée par la structure du dépôt sous forme de points, comme l'illustre schématiquement la Figure 25. Il est possible d'imaginer que l'impression par jet d'encre permet de microstructurer le dépôt, augmentant ainsi le facteur de jauge.

Les premiers résultats démontrent le potentiel de la technologie de l'impression par jet d'encre pour la réalisation de jauges de déformations. La prochaine partie concerne leur mise en application.

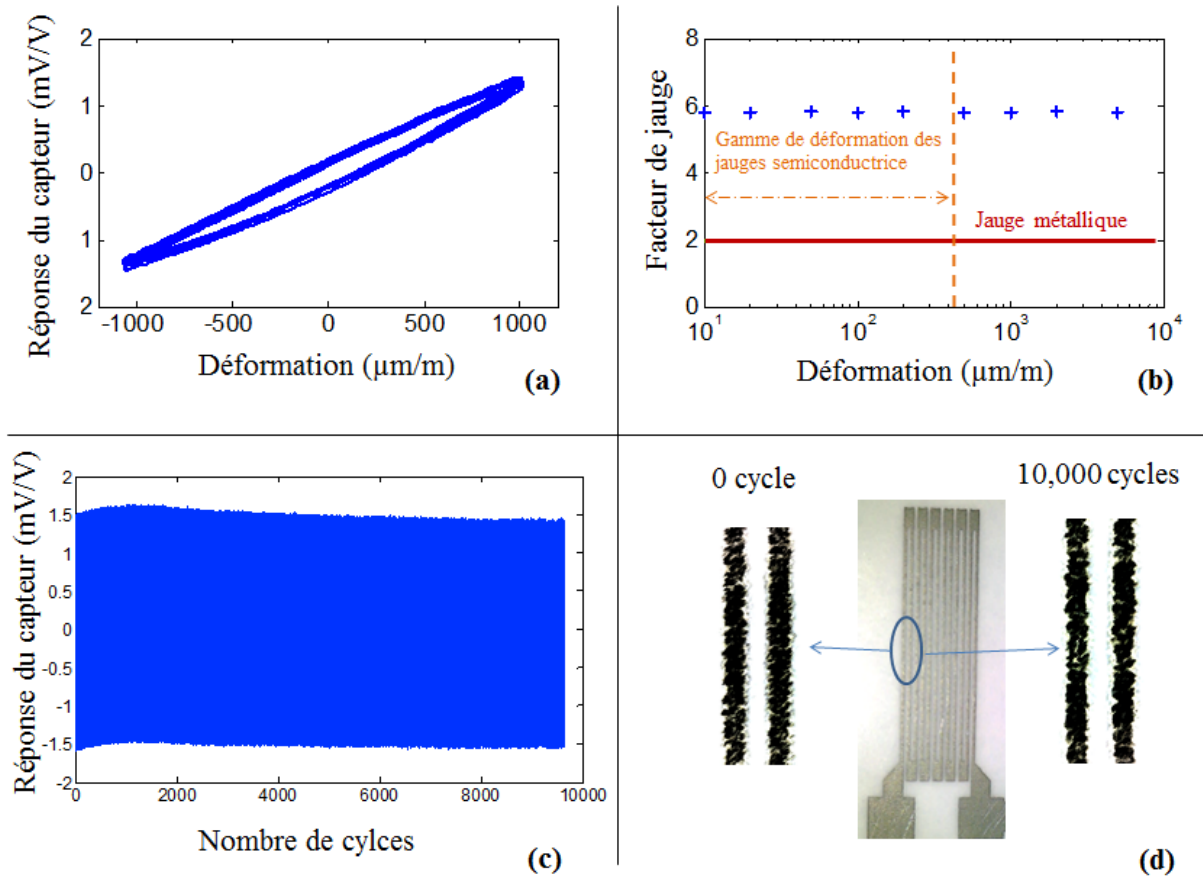


Figure 24 : Caractérisation de la jauge imprimée. (a) Sensibilité de la jauge intégrée dans un montage ¼ de pont. (b) Facteur de jauge en fonction de la déformation. (c) Essais d'endurance du capteur avec des déformations cycliques d'amplitude 1000μdéf. (d) Analyse photographique du capteur avant et après cyclage.

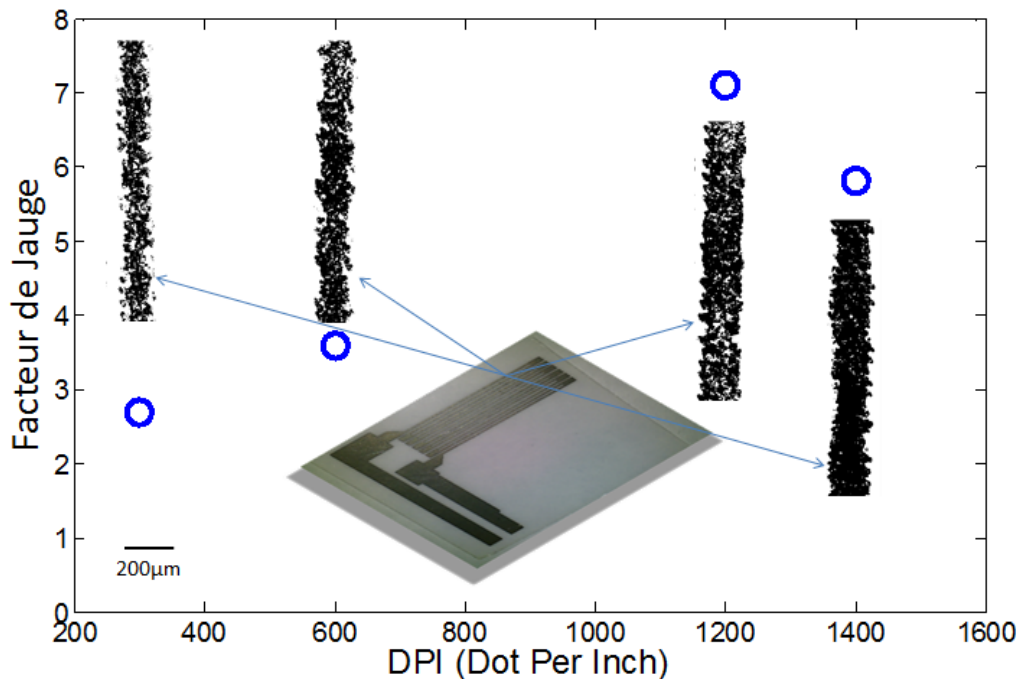


Figure 25 : Facteur de jauge en fonction de la résolution en PPP (Point Par Pouce)

### III.3.2. Contrôle de santé de structure type arme de poing

Les matériaux intelligents se prêtent très bien au contrôle de santé des structures en raison de leur fort potentiel d'intégration et la possibilité d'avoir des coûts modérés. Ainsi, l'impression par jet d'encre ouvre des perspectives intéressantes pour cette thématique. En effet il est possible de mettre en œuvre les éléments sensibles par un dépôt direct évitant ainsi les étapes de collage. En outre, il est possible de réaliser des impressions sur des structures planes ou non.

Pour démontrer le potentiel de la technologie, celle-là a été appliquée au contrôle de santé d'armes de poing en carbone correspondant à un besoin d'un acteur de la défense [26], [27]. Ce besoin est né dans le contexte suivant : la recherche sur la défense vise généralement à développer des armes plus résistantes, plus légères et plus durables en utilisant des matériaux composites. La majorité des armes sont encore presque entièrement construites en alliages métalliques (en ce qui concerne les éléments autres qu'esthétiques ou ergonomiques), comme elles l'ont été depuis des siècles. Cependant, les acteurs de la défense commencent à avoir recours à des matériaux composites (matrice céramique et fibre de carbone), permettant un gain évident en matière de légèreté. Par contre, un des plus grands problèmes avec les composites est de faire adhérer ce type de matériau à la structure qui continue à être en acier, comme dans le cas des canons (Figure 26) avec les problèmes de délaminations induites par les chocs à répétition et les cycles de déformation thermique. Un autre verrou technologique concerne la réalisation de crosses en fibres de carbone, afin de disposer de systèmes plus robustes, par exemple des AR-15 sont équipés de ces nouvelles crosses (Figure 27). Ce besoin est né des études menées sur le terrain indiquant un nombre important de défaillances causées par une rupture de la crosse qui était réalisée en polymère.

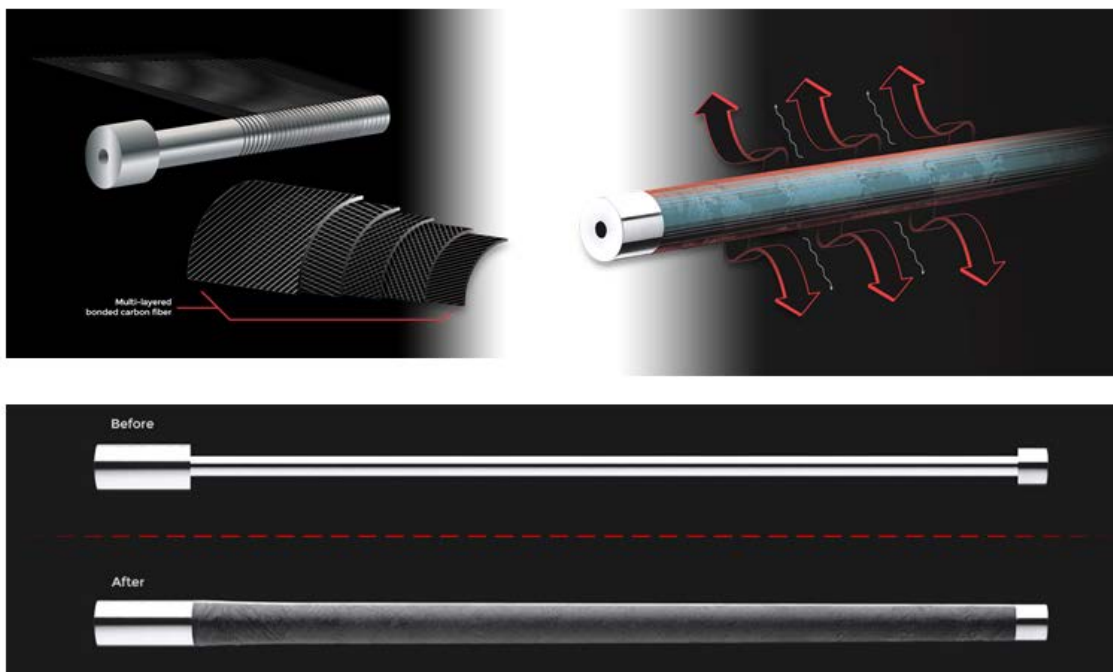


Figure 26 : Exemple de canon réalisé en acier et fibre de carbone pour le fusil AR-15 réalisé par la société PROOF (extrait de [28])

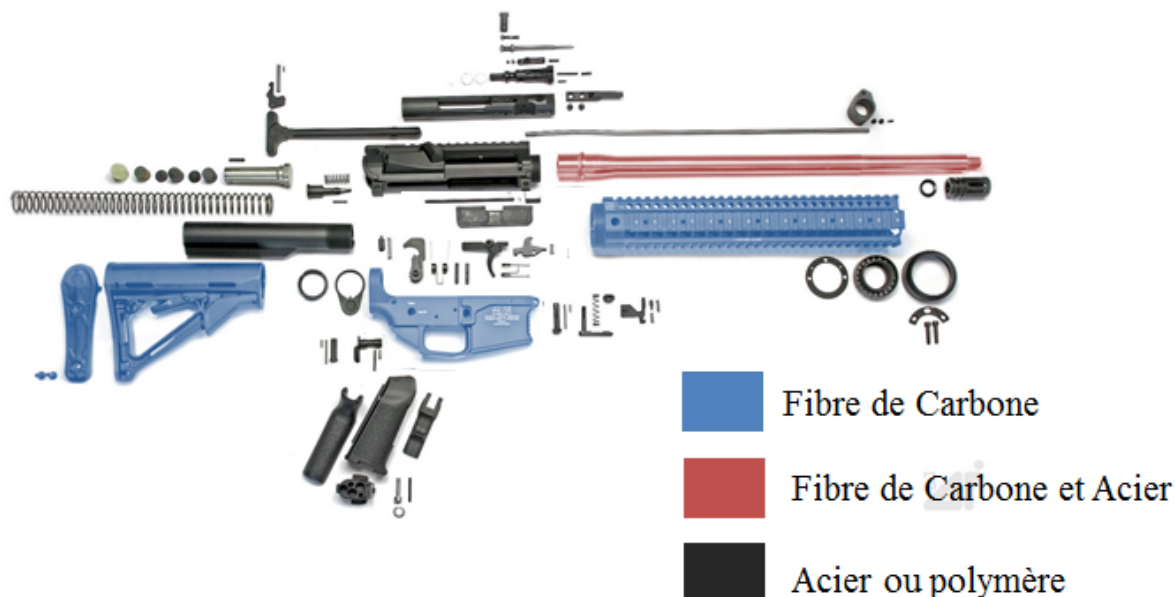


Figure 27 : Exemple de nouvelles pièces composites dans un AR-15

Ces phases de développement impliquent souvent de repartir de zéro au lieu de réajuster des plateformes existantes avec des pièces légères. Afin de prendre en compte l'ensemble des contraintes applicatives lors de la conception, il est nécessaire d'intégrer des capteurs pour pouvoir les mesurer. C'est autour de cet axe que l'impression de capteurs résistifs parvient à trouver une de ses applications, afin de réaliser des réseaux de capteurs pour la détection de délamination produite par des déformations répétées.

Différentes mesures ont été réalisées au LGEF, la Figure 28 synthétise un essai de mesure représentatif sur une arme de poing type Walther PPQ special Navy. Les capteurs ont été directement imprimés sur la structure où un traitement de surface spécifique a été réalisé pour augmenter la mouillabilité du substrat (paragraphe III.1.2.4 page 32). Une jauge métallique de chez HBM a été aussi intégrée par collage sur l'arme, dans le but de servir de référence. De plus, un microphone est installé pour enregistrer la pression acoustique générée lors du tir. L'ensemble des mesures est enregistré et synchronisé avec une caméra haute vitesse grâce à des cartes de chez DEWE. Cela dans le but d'avoir la possibilité de reconstruire la cinématique de tir, afin de pouvoir corréliser les déformations mesurées avec celle-là.

Les résultats indiquent que lors de la détonation obtenue à partir de l'explosion de l'amorce et du propulseur, la déformation est maximale avec une amplitude de  $500\mu\text{déf}$ . Ce niveau est important à mesurer afin de connaître les sollicitations mécaniques subies par la structure. En effet, de par le principe de fonctionnement des armes de poing classiques, seulement 30% de l'énergie chimique contenue dans une cartouche est convertie en énergie cinétique transférée au projectile [29]. Cela signifie que la majorité de l'énergie est libérée dans un mélange gazeux qui accompagne la sortie du projectile du canon et entraîne la cinématique de mécanique afin de réamorcer un nouveau projectile ainsi que dans le mouvement de recul de l'ensemble de l'arme, voire du bras du tireur. L'ensemble des paramètres ainsi mesurés permet à l'ingénieur de connaître les sollicitations mécaniques subies par l'arme lors d'un fonctionnement classique (pas de chute, etc.) et donc d'optimiser la structure et/ou les procédés pour éviter les cas de délamination qui peuvent arriver rapidement lorsque les niveaux de déformation dépassent les  $1000\mu\text{déf}$ .

De plus, d'un point de vue du transducteur, le potentiel des capteurs imprimés par jet d'encre pour le contrôle de santé des structures est visible sur la Figure 28, où les deux caractéristiques électriques sont comparées en normalisant par rapport à la réponse de la technologie imprimée. Le gain en sensibilité est notable, en raison du plus grand facteur de jauge.

## **IV. Synthèse sur l'impression d'encre conductrice**

Cette partie a permis de montrer les actions de recherche réalisées au LGEF, autour de la fabrication additive de matériaux électroactifs pour la mécatronique en introduisant le principe de fonctionnement de l'impression par jet d'encre. De plus une brique technologique fondamentale a été mise en œuvre, à savoir la réalisation d'une encre conductrice, nécessaire par exemple pour réaliser les électrodes et les pistes électriques de connexion. En fin de compte, les résultats ont montré la possibilité d'appliquer ces matériaux au contrôle de santé de structure sous la forme de jauges de déformation résistives. Cette technologie sera aussi employée pour la réalisation de capteurs spécifiques pour le domaine de la médecine comme cela sera exposé dans le Chapitre 4.

Les résultats des travaux ont été publiés dans la revue Applied Physics A, « Printing of Microstructure Strain Sensor for Structural Health Monitoring », DOI: 10.1007/s00339-017-0970-x, l'article est disponible en ANNEXE 2 page 87.

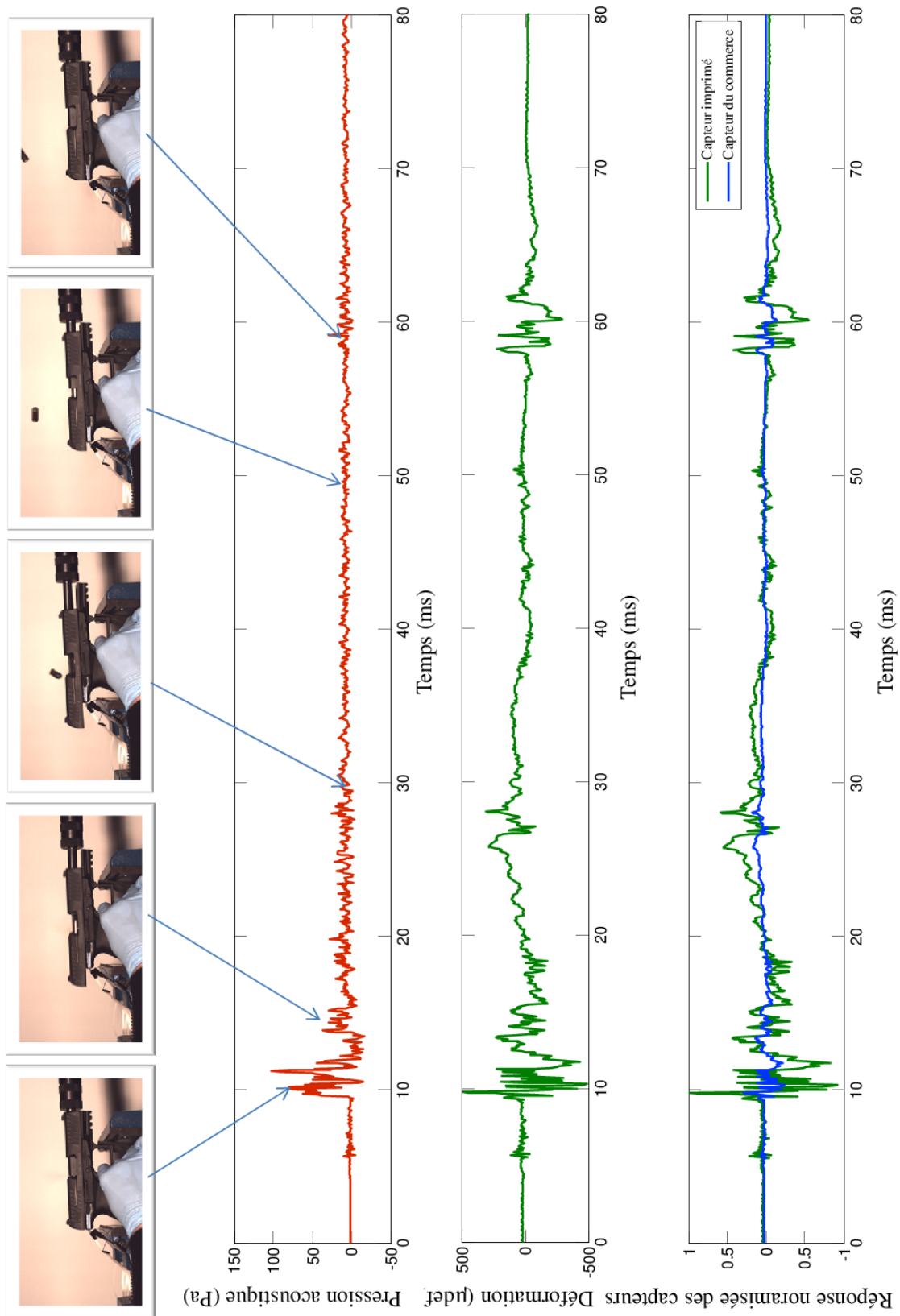


Figure 28 : Mesure de la déformation de la structure d'une arme de poing lors d'un tir.



## Chapitre 4. Application au contrôle de forme

Créer des « muscles artificiels » est une ambition qui n'est pas nouvelle. Depuis plus de vingt ans, les céramiques piézoélectriques et les alliages métalliques à mémoire de forme (AMF) ont déjà stimulé cette recherche. Mais ceux-là souffrent d'un grand nombre d'inconvénients comme les faibles amplitudes de déformation, pour les céramiques et un temps de réponse très important pour les alliages à mémoire de forme. Les polymères électroactifs pourraient apporter une solution au problème grâce à leurs propriétés. Dans le but de comprendre les actions de recherche effectuées au LGEF dans le cadre d'un contrat de maturation financé par Pulsalys et du projet européen INCITE, un état de l'art sera réalisé avant de passer à l'optimisation des propriétés de conversion et leurs mises en application autour du contrôle de forme d'instruments de chirurgie et des interfaces haptiques.

### I. Utilisation des polymères électroactifs pour le contrôle de forme

Dans le but de comprendre le choix technologique fait par le LGEF, cette partie est dédiée dans un premier temps à énoncer les différents types de polymères électroactifs avec leurs avantages et leurs inconvénients. Puis une figure de mérite introduisant les paramètres macroscopiques rentrant en compte dans la conversion sera proposée.

#### *I.1. Classification des polymères électroactifs*

Les polymères électroactifs sont définis comme des composés organiques légers, flexibles et capables de répondre à une stimulation électrique par un changement de dimension et de forme.

Historiquement, les premiers matériaux électroactifs durs ont été découverts en 1880 (Pierre et Jacques Curie) avec la piézoélectricité. Mais, il faut attendre 1949 et Katchalsky pour obtenir des polymères stimulés chimiquement. Mais ce n'est que depuis la fin des années 90 [30][31] que les scientifiques et industriels s'intéressent aux polymères stimulés électriquement. Bar-Cohen [30] a développé une classification de ces polymères, adoptée depuis par la communauté scientifique et qui sert de base à notre étude. La classification est reportée dans le Tableau 6.

##### **I.1.1. La famille électronique**

Définis par Bar-Cohen [1] en anglais comme « Electronics EAP », les polymères de cette famille sont activés par un champ électrique extérieur.

La structure typique de ce type de polymère est composée d'un matériau électroactif pris en sandwich entre deux électrodes (Figure 30). Il faut noter que le couplage peut être linéaire (piézoélectrique) ou non linéaire, par exemple avec une dépendance quadratique (électrostriction, force électrostatique).

Au sein de cette famille, il est possible de discriminer en classes, chacune se référant à un phénomène particulier d'activation dû à des propriétés électriques intrinsèques différentes (Tableau 6).

### I.1.2. La famille ionique

Nommé « Ionic EAP » en anglais par Bar-Cohen [30], le principe de fonctionnement de cette famille est basé sur une diffusion d'ions ou de molécules au sein du matériau. L'application d'un champ électrique entre les électrodes entraîne un déplacement d'ions à l'intérieur du matériau qui, au final, change la répartition du solvant près de chaque électrode : les cations (ions positifs) migrent vers la cathode (électrode négative) alors que les anions (ions négatifs), qui sont immobiles dans le polymère, subissent une force attractive de l'anode (électrode positive). Au même instant, les molécules d'eau se diffusent vers les régions de grande concentration d'ions positifs, soit près de l'anode, pour équilibrer la distribution de charge. En conséquence, la région proche de la cathode voit son volume augmenter alors que celle proche de l'anode voit son volume, à l'inverse, diminuer. La conjugaison de ces deux phénomènes entraîne une flexion de l'échantillon du polymère ionique vers l'anode [32], [33].

Leur architecture est équivalente à celui d'une pile, soit deux électrodes séparées par un électrolyte. La Figure 29 donne un exemple de polymère ionique, il s'agit d'un polymère polyélectrolyte réticulé rempli d'eau. Les deux faces opposées contiennent du métal en grains fins sur une épaisseur d'environ 20  $\mu\text{m}$ . Les particules métalliques, réparties au hasard, se concentrent essentiellement en surface, formant par percolation deux électrodes à large surface de contact (Figure 30).

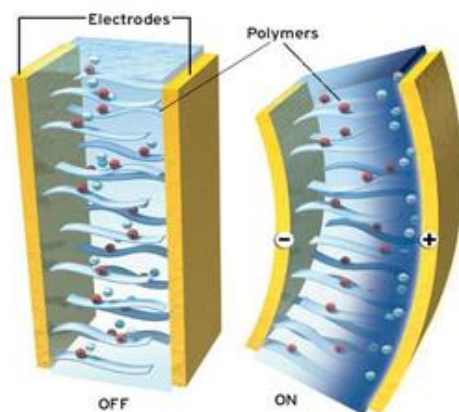


Figure 29 : Exemple de structure de polymère ionique (extrait de [34])

[1]

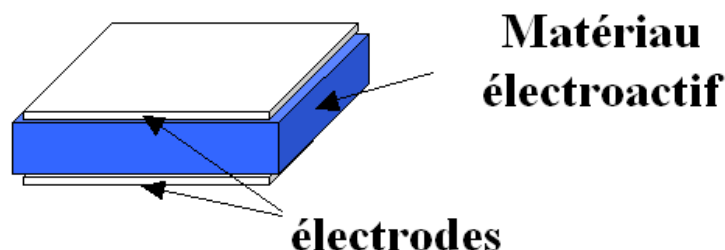


Figure 30 : Structure typique des polymères électroniques

[2]

## Chapitre 4. Application au contrôle de forme

	Nom	Principe physique	Exemple de matériau
Famille électronique	Polymère ferroélectrique	matériau qui possède, à l'échelle des domaines élémentaires, un moment dipolaire permanent (exemple : piézoélectricité).	<ul style="list-style-type: none"> <li>● piézoélectrique : PZT, PVDF</li> </ul>
	Électret	matériau ayant une polarisation électrique non nulle après exposition à un fort champ électrique ou après injection de charges (Corona poling)	<ul style="list-style-type: none"> <li>● PVDF, Polypropylène (PP) ou PTFE chargé</li> </ul>
	Élastomère diélectrique	matériau fonctionnant sur le principe d'une capacité variable : effet électrostatique entre charges.	<ul style="list-style-type: none"> <li>● acrylate : VHB 4910 de 3M®</li> <li>● silicone : HS3 de Dow Corning®</li> </ul>
	Élastomère électrostrictif	matériau électrostrictif qui a la particularité d'être composé d'une matrice flexible et d'un polymère greffé sous forme cristalline.	<ul style="list-style-type: none"> <li>● matrice : copolymère du chlorotrifluoroéthylène ou trifluoroéthylène</li> <li>● greffe : P(VDF-TrFE)</li> </ul>
	Papier électroactif	matériau type papier composé d'une multitude de particules (fibre naturelle) formant un réseau et combinant des propriétés piézoélectriques à une migration ionique	<ul style="list-style-type: none"> <li>● cellulose prise en sandwich entre deux électrodes métalliques (or, platine...)</li> </ul>
	Élastomère électroviscoélastique	matériau composé d'un élastomère en silicone et d'une phase polaire. Il se comporte comme un fluide électrorhéologique.	
	Élastomère LCE (liquid cristal elastomer)	matériau qui possède des propriétés piézoélectriques et qui se déforme en réponse à un gradient thermique (Effet Joule pour une activation électrique)	
Famille ionique	Gel ionique	matériau qui devient dense (contraction) ou gonflé (étirement) lors du passage d'un environnement acide à un environnement alcalin.	<ul style="list-style-type: none"> <li>● polyacrylonitrile</li> </ul>
	Composite ionique (IPMC)	matériau qui se courbe en réponse à un champ électrique par migration ionique au sein d'une membrane sélective d'ions.	<ul style="list-style-type: none"> <li>● membrane sélective : Nafion® ou Flemion®</li> <li>● électrode : platine, or</li> </ul>
	Polymère conducteur ionique (CP)	matériau sujet à des réactions d'oxydoréduction qui induisent des variations de volume.	<ul style="list-style-type: none"> <li>● CP : polypyrrole, polyaniline</li> </ul>
	Nanotubes de carbone	matériau dont la balance électronique entre le nanotube et l'électrolyte est modifiée par injection de charges, ce qui induit des changements de dimensions.	
	Fluide Electrorhéologique	matériau sujet à des migrations de particules, qui fait varier les propriétés rhéologiques du fluide comme la viscosité	<ul style="list-style-type: none"> <li>● LID 3354 de ER Fluid Developments Ltd.</li> </ul>

Tableau 6 : Classification des polymères électroactifs (extrait de [35])

### I.1.3. Principales caractéristiques des deux familles

Aucun polymère ne surpasse les autres dans tous les domaines, chacun a ses avantages et ses inconvénients, les principaux sont résumés dans le Tableau 7 extrait de [35].

Famille	Avantages	Inconvénients
Famille électronique	+ efforts générés importants + temps de réponse faible + fonctionne dans des conditions ambiantes + durée de vie importante	- champ électrique d'actionnement élevé (de 20MV/m à 150MV/m) - sens de la déformation unique pour les couplages quadratiques
Famille ionique	+ déplacements importants + champ électrique d'alimentation faible 10MV/m + sens de la déformation en fonction de la polarité de la tension	- temps de réponse élevés - faibles efforts générés - conditions d'utilisation particulières (milieux humides...) - couplage électromécanique faible

Tableau 7 : Principales caractéristiques des deux familles (extrait de [35])

Trois caractéristiques importantes ressortent du tableau précédent pour les polymères électroniques (Tableau 7), il s'agit de :

- la haute tension nécessaire à l'actionnement
- leur temps de réponse faibles
- les efforts générés important (comparativement aux autres).

Trois autres pour les polymères ioniques :

- faible tension d'alimentation
- importantes déformations
- temps de réponse élevés, car basés sur un phénomène de diffusion.

Ces contraintes propres à chaque famille indiquent un domaine d'application distinct pour chacune d'elles. Les polymères électroniques conviennent mieux pour des applications nécessitant de hautes densités d'énergie, tandis que la famille ionique est plus adaptée aux applications basses tensions.

Les études antérieures réalisées sur la faisabilité d'utiliser les polymères électroactifs ont montré l'avantage de la technologie de type polymère électrostrictif en raison des densités énergétiques délivrées par ce type de matériau. La prochaine partie s'attache à détailler les paramètres macroscopiques du matériau rentrant en compte dans la conversion électromécanique, afin de comprendre le principe du nouveau matériau développé au LGEF pour contourner certains verrous technologiques.

## 1.2. Les paramètres rentrant en compte dans la conversion

L'équation comportementale d'un matériau électrostrictif est disponible en équation

$$(3) \quad \begin{cases} \underline{\underline{S}} = \underline{\underline{M}} \underline{\underline{E}}^2 + \underline{\underline{s}}^E \underline{\underline{T}} \\ \underline{\underline{D}} = \underline{\underline{\varepsilon}} \underline{\underline{E}} + 2 \underline{\underline{M}} \underline{\underline{E}} \underline{\underline{T}} \end{cases} \quad (3)$$

Avec  $S$  correspondant au tenseur de déformation,  $T$  au tenseur de contrainte,  $D$  au tenseur de déplacement,  $E$  au tenseur du champ électrique,  $M$  au tenseur de couplage électrostrictif,  $\varepsilon$  au tenseur de permittivité et  $s$  au tenseur de souplesse.

La déformation à vide (i.e.  $T_{ij} = 0$ ) pour des faibles amplitudes de champ électrique s'exprime sous la forme (4) [35].

$$S_0 = M_{ij} \cdot E_i^2 \quad (4)$$

Des études antérieures [35], [36] ont démontré que le coefficient d'électrostriction est proportionnel à la permittivité et à l'inverse du module d'Young ( $Y$ ) :

$$M_{ij} \propto \frac{\varepsilon_0 \cdot \varepsilon_r}{Y} \quad (5)$$

Avec  $\varepsilon_r$  la permittivité relative du polymère et  $\varepsilon_0$  la permittivité du vide.

Un autre critère important est la densité d'énergie mécanique ( $W_{mécanique}$ ), celle-ci s'exprime en régime quasi statique sous la forme [33], [35] :

$$W_{mécanique} = \frac{1}{2} Y \cdot S^2 \quad (6)$$

En combinant les équations (4), (5) et (6), l'expression de l'énergie mécanique devient :

$$W_{mécanique} = \frac{1}{2} \frac{(\varepsilon_0 \cdot \varepsilon_r)^2}{Y} E^4 \quad (7)$$

Des équations (5) et (7) il ressort que le matériau idéal doit disposer d'une grande permittivité tout en garantissant un module Young faible pour conserver le caractère souple des polymères. La Figure de Mérite en énergie ( $FdM_{énergie}$ ) s'écrit donc :

$$FdM_{énergie} = \frac{(\varepsilon_0 \cdot \varepsilon_r)^2}{Y} \quad (8)$$

## II. Développement d'un nouveau matériau.

L'objectif de cette partie est de présenter le choix technologique effectué par le LGEF pour l'augmentation des propriétés électromécaniques. Dans un premier temps, le choix de la matrice polymère sera effectué. Puis un état de l'art des solutions disponibles pour accroître les caractéristiques en termes de conversion électromécanique sera entrepris. Au final la solution développée au LGEF sera réalisée.

## II.1. Sélection de la matrice

Le paragraphe III.1.2 a permis de mettre en avant les paramètres à optimiser pour améliorer les propriétés de conversion électromécanique des polymères électrostrictifs. Le Tableau 8 donne la  $FdM_{\text{energie}}$  pour différents matériaux couramment utilisés pour l'actionnement.

Type	PDMS	PU	Nylon	P(VDF-TrFE-CFE)
$FdM_{\text{energie}}$	$4.88.10^{-28}$	$4.68.10^{-28}$	$1.95.10^{-30}$	$19.5.10^{-28}$

Tableau 8 : Comparaison des matériaux classiquement utilisés.

La matrice de type P(VDF-TrFE-CFE) semble la plus prometteuse avec une FdM quatre fois plus grande que le PDMS et mille fois plus que le Nylon, c'est pour cette raison que les travaux d'optimisation se sont focalisés sur cette matrice. En plus de paramètres purement intrinsèques au matériau, des aspects dépendants du monde socioéconomique sont aussi entrés en ligne de compte. En effet deux chimistes synthétisent des matrices de terpolymère (Arkema et Solvay) et la société Danfoss a annoncé en 2013 l'arrêt de son activité sur les polymères électroactifs réalisés en élastomères type Silicone.

### II.1.1. Synthèse des méthodes pour augmenter les propriétés électroactives

Différentes méthodes sont en cours d'investigation pour augmenter les propriétés diélectriques des polymères. Elles peuvent être classées en deux catégories :

- composite avec particules dispersées aléatoirement (Random composite) ;
- synthèse de nouveau polymère (New synthetic polymer).

La première approche consiste à disperser des particules de manière aléatoire dans une matrice polymère. La seconde consiste à synthétiser des nouveaux polymères pour obtenir les caractéristiques désirées.

#### II.1.1.1. Composite avec des particules dispersées aléatoirement

Depuis plus d'une trentaine d'années, en raison de leurs nombreux atouts, les matériaux composites sont étudiés afin de remplacer les matériaux traditionnels. Ils apportent de nombreux avantages fonctionnels qui vont de l'augmentation de la résistance mécanique à la durée de vie. Cette recherche a été étendue au monde des polymères électroactifs, dans le but d'améliorer la permittivité diélectrique. Pour cela, des particules avec une grande permittivité diélectrique ou conductrice sont généralement introduites dans une matrice polymère. Les composites obtenus donnent des valeurs de propriété électrique comprise entre celle de la matrice de départ et celle des charges.

#### II.1.1.2. Particules diélectriques

L'utilisation des matériaux inorganiques, avec de grandes permittivités diélectriques, est une technique largement développée depuis une vingtaine d'années pour accroître la permittivité d'un composite [37]. Les poudres à base de céramique ferroélectrique ou piézoélectrique en font des candidats de choix pour leur grande permittivité (2000 PMN). Les résultats d'études récentes ont montré un accroissement de la permittivité d'un facteur 4 pour une matrice silicone chargée à 30% en volume par de la poudre de PMN-PT à 10Hz [38].

Malgré une augmentation importante de la permittivité en utilisant des particules de céramiques, cette méthode n'est pas optimale pour améliorer les propriétés en actionneurs des films polymères [39]. L'inconvénient majeur de ce procédé réside dans les propriétés mécaniques intrinsèques des particules. En effet les céramiques ferroélectriques sont très rigides en comparaison des polymères, provoquant alors une diminution de la souplesse du composite au fur et à mesure de l'augmentation de la proportion de particules. Ce phénomène limite donc l'ajout de particules à de faibles pourcentages afin d'obtenir une altération modérée du module de Young.

### ***II.1.1.3. Particules conductrices ou semi-conductrices***

L'utilisation de particules conductrices est une solution intéressante pour l'augmentation de la permittivité. La dispersion de particules conductrices provoque une accumulation de charges à la frontière entre les deux milieux (matrice/particules). Ces charges libres présentes dans le polymère ne contribuent pas seulement à la conduction, mais elles augmentent la polarisation interfaciale, donc la permittivité. L'étude expérimentale de la conduction d'un milieu statistiquement aléatoire, avec des inclusions conductrices et non conductrices, indique qu'en dessous d'une certaine concentration de ces inclusions, le milieu est isolant et au-dessus de cette concentration, le système est conducteur. Pour une fraction  $v_f$  d'inclusions conductrices, plus faible que la fraction critique  $v_{f,perc}$ , il peut y apparaître seulement des amas conducteurs localisés, isolés les uns des autres. Lorsque le dopage atteint la valeur critique  $v_{f,perc}$ , appelée "seuil de conduction ou de percolation", déterminé expérimentalement, un amas conducteur continu apparaît [40]. Ce seuil dépend fortement de la taille des particules et de leur forme [41]. Malheureusement le maximum de permittivité est obtenu pour les valeurs proches de la percolation.

### **II.1.2. Synthèse de nouveaux polymères**

L'approche optimale pour obtenir le polymère désiré (grande permittivité), consiste à synthétiser de nouvelles architectures moléculaires. Actuellement les voies explorées concernent le mélange de matrices polymères déjà disponibles ou par copolymérisation, ou encore l'ajout d'une chaîne très polarisée afin d'exciter les molécules [42]. Les résultats et méthodes les plus adoptées pour développer des nouveaux polymères électroactifs jusqu'à présent sont résumés dans le prochain paragraphe.

Butkewitsh et Scheinbeim utilisent un thermoplastique poly(styrène-éthylène/butylène-styrène) sulfone hydraté, qui présente une variation de permittivité de quatre ordres de grandeur (5 à 50 000). Elle dépend de la quantité d'eau absorbée [42]. L'inconvénient de cette méthode provient de l'augmentation des pertes, qui rend impossible l'application d'un champ électrique assez élevé pour fonctionner en actionneur à cause de l'eau nécessaire dans le processus [42].

Une méthode plus intéressante pour modifier les propriétés diélectriques consiste à synthétiser un élastomère liquide-cristallin, contenant des chaînes hautement polarisables [43]. Lors du phénomène de polarisation, il y a création de régions cristalline d'où une augmentation de la permittivité [43].

Le mélange de différentes matrices semble tout aussi prometteur, avec les travaux de Chiou et al. [44] consacrés à la réalisation d'un polymère à base de silicone et de polyuréthane, qui forme un système avec deux phases physiquement liées, mais chimiquement indépendantes. Cette structure a encore été modifiée par l'ajout de particules de cuivre, qui permettent d'après les

auteurs d'avoir une meilleure interface entre les deux matrices [44]. À titre d'exemple pour un composite PU-PDMS 50-50 vol% avec 16 vol% de cuivre, une constante diélectrique de 40 à 10GHz a été mesurée [44].

### II.1.3. Comparaison des méthodes

Comme le montre l'état de l'art synthétique réalisé dans les précédents paragraphes, les solutions pour augmenter la permittivité des polymères électroactifs sont variées et nécessaires pour démontrer le potentiel des polymères pour les applications en actionneur (diminution du champ électrique nécessaire pour obtenir des grandes déformations). Le Tableau 9 résume les principaux avantages et inconvénients de chaque technique. Les composites basés sur la dispersion de charges sont actuellement la technique la plus mature. Par contre elle souffre d'un certain nombre d'inconvénients, en effet l'ajout de particules dans une matrice influe fortement sur les caractéristiques mécaniques des polymères. Les interactions entre les charges et la matrice se matérialisent par deux effets : l'existence d'élastomère liée aux charges et la présence d'une couche d'élastomère immobilisée au voisinage de la surface des charges. D'autres phénomènes sont également importants, comme la gomme occluse au sein des charges et la percolation des charges dans le matériau. L'ensemble des phénomènes se conjugue et renforce la matrice de départ, la rendant ainsi plus rigide, mais aussi plus fragile tout en diminuant les champs de rupture diélectrique. Ce dernier effet est l'inconvénient majeur de cette approche pour augmenter les propriétés électromécaniques.

La solution à partir de mélanges de plusieurs matrices organiques semble la plus prometteuse. Mais cela passe par le développement de connaissances sur les matrices seules afin de trouver les paramètres optimaux de chacune. De manière générale, lors des phases d'amélioration des propriétés électromécaniques, il est important de veiller à trouver le juste équilibre entre les différents paramètres, la course n'étant pas à l'obtention du plus grand coefficient d'électrostriction.

À la vue de ces conclusions et remarques, le LGEF a développé en 2013 une méthode permettant d'augmenter les densités énergétiques d'un facteur 500 pour une matrice de P(VDF-TrFE-CFE) en limitant l'influence sur le champ de claquage, permettant de lever un certain nombre de verrous technologiques. La prochaine partie décrit la procédure d'élaboration du nouveau matériau.

## II.2. Méthode développée au LGEF

Les activités de recherche effectuées par Jean-Fabien CAPSAL et Pierre-Jean COTTINET au début des années 2010 ont débouché sur le développement d'un procédé de fabrication et d'amélioration des performances électrostrictives de terpolymères fluorés, qui a été breveté <sup>2</sup>. Le principe de ce procédé repose sur la plastification de la matrice polymère à l'aide d'un agent plastifiant. La méthode d'élaboration de ces composites organiques par voie solvant est présentée sur le schéma de la Figure 31. Dans un premier temps, la matrice polymère est dissoute dans un solvant et la solution est agitée pendant 2 heures minimum. L'agent plastifiant

---

<sup>2</sup> Brevet N°1353537 déposée le 18 avril 2013 en France au nom de l'INSA de Lyon, et intitulée "Procédé de fabrication de matériau composite polarisable sous l'action d'un faible champ électrique"



## Chapitre 4. Application au contrôle de forme

est alors introduit et mélangé pendant plusieurs heures. La solution finale ainsi obtenue est alors déposée sur une plaque en verre afin de permettre l'évaporation du solvant. Le film obtenu est ensuite décollé de la plaque et mis à recuire pendant plusieurs heures afin d'éliminer les traces résiduelles de solvants et ensuite permettre la cristallisation du terpolymère [45].

	Type de charges	Avantages	Inconvénients
Composite aléatoire	Diélectriques	+ Possibilité d'obtenir de grandes permittivités	-Perte du caractère ductile de la matrice (renforcement mécanique de la matrice) - Nécessite un taux de charge élevé
	Conductrices	+ Possibilité d'obtenir de grandes permittivités pour des faibles taux de charges	- augmentation de la conductivité pour les taux de charge importants
Mélange de polymères	Sans charge	+ grande permittivité sans risque de rigidification excessive ou de rendre le système conducteur	- élaboration à développer - recherche des matrices adéquates
	Diélectriques ou Conductrices	+ Très grande permittivité	- risque pour des taux de charges élevées du renforcement mécanique, et de l'augmentation de la conductivité - processus de fabrication complexe

Tableau 9 : Avantages et inconvénients des différentes méthodes utilisées pour augmenter les propriétés électromécaniques des polymères électroactifs

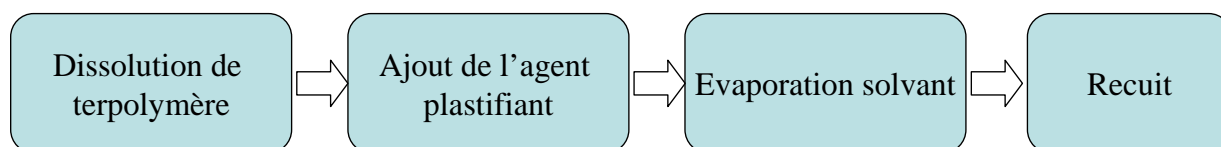


Figure 31 : Protocole d'élaboration du composite selon le procédé breveté par le LGEF

L'influence de l'ajout de l'agent plastifiant sur les propriétés électrostrictives longitudinales du terpolymère fluoré est présentée sur la Figure 32. Pour un champ électrique de  $12 \text{ V}/\mu\text{m}$ , le nouveau composite tout organique présente une déformation longitudinale 28 fois plus importante que celle du terpolymère pur. À ce champ électrique, la déformation longitudinale du composite est de 2.5% contre 0.09% pour le terpolymère pur. Cela représente une augmentation d'un facteur 215 de la densité d'énergie mécanique et une diminution d'un facteur 6 du champ nécessaire pour obtenir une déformation équivalente avec le terpolymère pur. Cet accroissement des propriétés électromécaniques est induit par une augmentation de la permittivité induite et une légère diminution du module d'Young provoqué par la plastification. Différents plastifiants ont été étudiés par les équipes du LGEF afin de comprendre leurs interactions avec la matrice, les résultats ont été publiés dans les références suivantes[45]–[48].

La photographie disponible en Figure 33 illustre les propriétés en actionnement du matériau dans une configuration de type unimorphe, le substrat étant du PET avec une épaisseur de  $100\mu\text{m}$ .

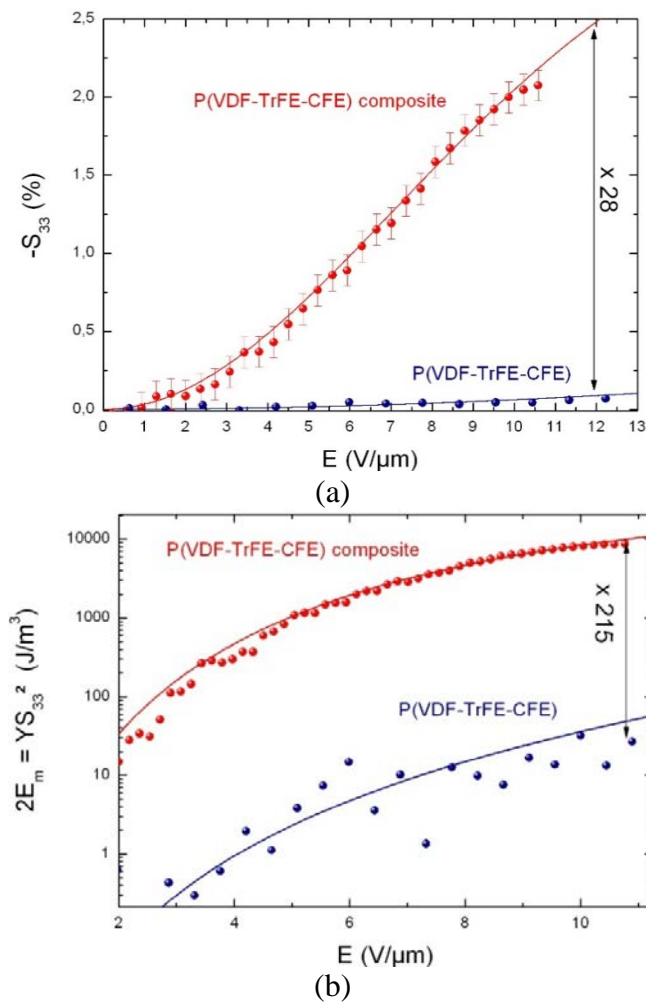


Figure 32 : (a) Déformation longitudinale ( $S_{33}$ ) et (b) densité d'énergie mécanique ( $E_m$ ) en fonction du champ électrique appliqué pour une fréquence de 100 mHz

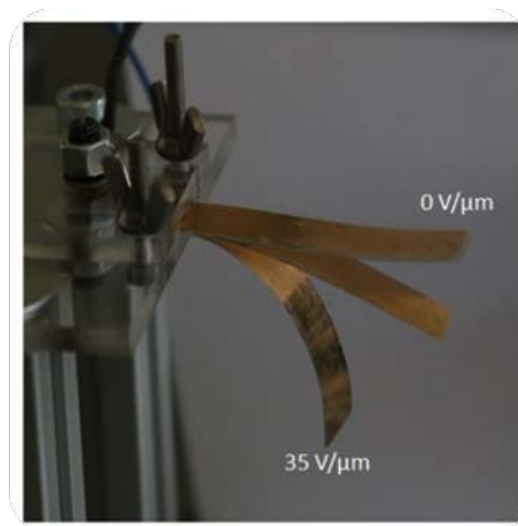


Figure 33 : Photographie d'un actionneur type unimorphe réalisé avec les composites du LGEF

### **III. Mise en application autour de différents secteurs**

L'augmentation des propriétés électromécaniques ouvre un potentiel intéressant pour la mise en application des matériaux développés au LGEF. En effet le verrou technologique majeur concerne le champ électrique de fonctionnement qui a été réduit de façon drastique sans pour autant influencer fortement sur la rupture diélectrique. Cette partie présentera les travaux effectués avec les acteurs du marché pour juger de la technologie pour réaliser du contrôle de forme d'instrument de chirurgie ou du rendu haptique.

#### ***III.1. Application médicale pour la réalisation de cathéters et fils-guide intelligents***

Cette partie portera sur une synthèse des actions de recherche réalisées pour juger de la possibilité d'appliquer les polymères électrostrictifs – modifiés à l'aide d'un plastifiant – à la réalisation d'instruments destinés à la chirurgie cardiovasculaire. Cela a été mené au sein du projet européen INCITE ENIAC ainsi que dans le cadre d'un projet de maturation de la SATT Pulsalys pour la valorisation du brevet FR1453423A. La structure est la suivante : dans un premier temps elle se focalisera sur les besoins spécifiques des acteurs du domaine, puis sur les travaux effectués pour répondre à ces attentes.

##### **III.1.1. État de l'art et besoin du monde médical en fonctions mécatroniques**

###### ***III.1.1.1. État de l'art synthétique sur la chirurgie mini-invasive cardiovasculaire***

La chirurgie mini-invasive a profité d'un important gain de popularité dernièrement parmi les pratiques cliniques. Les études scientifiques montrent que ces interventions sont plus intéressantes sur les plans de la mortalité et des coûts que les opérations traditionnelles – ouvertes[50]. La plupart des opérations impliquent l'utilisation de fils-guide et de cathéters flexibles, guidés par le chirurgien dans les artères ciblées au moyen d'imagerie sous rayons X en temps réel (angiographie) [51]–[53]. Ainsi la manœuvrabilité des fils-guide et des cathéters lors de la navigation intravasculaire est un élément central de la durée d'une procédure et donc de son succès et de son coût. De plus, la difficulté à guider et manœuvrer le fil-guide augmente les risques de complications telles que rupture de vaisseaux, thrombose...[54] Certaines de ces complications peuvent être réduites par l'emploi d'héparinisation générale, utilisée aujourd'hui de manière habituelle en chirurgie endovasculaire, cependant cela entraîne un risque d'hémorragie par la même occasion.

Pour nombre d'opérations, le couple fil-guide/cathéter est dirigé depuis un point d'entrée dans une artère facile d'accès (souvent l'artère fémorale) jusqu'à une artère cible potentiellement éloignée dans le corps et reliée par des vaisseaux tortueux et des embranchements [54]. Avec un fil-guide traditionnel, l'extrémité distale est dirigée en effectuant des rotations manuelles du fil et/ou du cathéter afin d'exploiter leurs courbures d'origine pour naviguer en enfonçant l'un puis l'autre au fil des embranchements et autres obstacles jusqu'à l'artère ciblée [54], [55]. Ainsi il est difficile de faire progresser l'extrémité distale au niveau de courbures importantes, tout particulièrement si c'est en plus un embranchement – un angle de plus de 90° s'avère être un important obstacle qui apparaît régulièrement [56] (par exemple l'embranchement de l'aorte à l'artère rénale droite chez certains patients).

Face à ces obstacles, différents mécanismes de guidage ont été développés et sont maintenant utilisés par des praticiens, parmi lesquels ceux à guidage manuel et « pullwire » [57]. Cela a donné naissance à énormément de designs de cathéters différents [54], [57].

Les actionneurs en matériaux dits « intelligents » permettent d'envisager une alternative aux moyens de guidage classiques. Les polymères à mémoire de forme (PMF) ont été étudiés durant ces dernières années dans cette optique de guidage. Le moyen d'activation de ces propriétés mécaniques le plus répandu pour permettre à un PMF de reprendre sa configuration initiale est le chauffage direct de celui-ci, cependant d'autres méthodes ont été étudiées telles que les rayons UV ou infrarouges, le changement de pH ou encore des champs magnétiques [58]. Une étude de Buckley et al. a exploré la possibilité d'apporter de l'énergie calorifique au PMF par induction magnétique en chargeant un polymère avec des particules ferromagnétiques puis en l'exposant à un champ magnétique alternatif [59]. Les alliages à mémoire de forme (AMF) sont plus étudiés que les PMF et ont des temps de réponse inférieurs, cependant leurs densités sont supérieures, ainsi que leurs couts alors que les déformations atteignables restent inférieures [60].

Un cathéter actionné par un alliage à mémoire de forme est défini comme étant un tube – en polymère – parcouru par des fils en AMF, colinéaires à l'axe du cathéter, dont la courbure est obtenue en chauffant l'un des fils entraînant son rétrécissement en dehors de l'axe neutre du cathéter, courbant celui-ci [54]. Une fois l'apport calorifique coupé, l'AMF refroidit et retrouve sa configuration initiale [54]. Cependant plusieurs points posent problème quant à ces méthodes, tels que la sécurité du patient lors du chauffage des matériaux, la vitesse de refroidissement des AMF/PMF (afin d'avoir des temps de réponse acceptables), la gestion de plusieurs fils d'AMF, le contrôle de la courbure malgré les phénomènes d'hystérésis [60].

Des systèmes hydrauliques/pneumatiques ont aussi été étudiés comme, par exemple, le design breveté par Miles consistant en un cathéter en polymère, parcouru par des tubes pour acheminer le fluide – pneumatique ou hydraulique [61]. Cependant, la miniaturisation requise pour les applications de chirurgie mini invasive (CMI) rend la tâche très complexe, là où un matériau électroactif peut facilement avoir des dimensions submillimétriques.

### ***III.1.1.2. Les besoins des chirurgiens cardiovasculaires***

Les besoins des chirurgiens en termes de performances peuvent être variés, cependant les principaux à prendre en compte pour la réalisation d'un fil-guide piloté à distance sont : la courbure maximale atteignable et le temps nécessaire pour l'obtenir cela avec un diamètre le plus faible possible. Le design est un facteur déterminant pour les performances délivrées par le dispositif ; il influence les courbures atteignables, la maniabilité ainsi que la difficulté de réalisation ou la fiabilité [62]. L'objectif des travaux de recherche est d'étudier la possibilité de réaliser un tel dispositif, actionnable à l'aide d'un polymère électroactif en vérifiant que les critères suivants ne poseraient pas problème [62] : angle représentatif dans les vaisseaux humains et temps de réponse.

Hutchins *et al.* ont publié une étude sur les courbures des vaisseaux sanguins dans le corps humain [63], des mesures ont été faites des diamètres de vaisseaux à des embranchements ainsi que les angles formés à ces embranchements par des vaisseaux d'artères coronaires. Les résultats montrent l'absence de corrélation entre les diamètres des vaisseaux et l'angle des embranchements, ces angles variant entre 32 et 124°. Valeurs corrélées aux designs des fils-guide et cathéters vendus dont les extrémités distales peuvent se trouver courbées par défaut à

des angles compris entre 30 et 120° [64]. Cette amplitude étant très importante, l'utilité d'un dispositif permettant de faire varier la géométrie de l'extrémité distale d'un fil-guide apparaît évidente.

En ce qui concerne le temps de réponse du dispositif, il est conditionné par les capacités du chirurgien et celles de l'électronique de contrôle du fil-guide ; étant donné que le fil-guide est contrôlé par le chirurgien (Figure 34). Le temps de réaction des humains se situe typiquement aux alentours de 180ms [65]. Ce délai est composé de deux phases distinctes, la première étant l'acquisition et le traitement de l'information visuelle par l'organe de vision et le cerveau, la seconde est la durée nécessaire pour amorcer le mouvement de correction avec l'influx nerveux et l'action musculaire. En ce qui concerne l'électronique, un temps de réponse de 10ms est pris en compte. De cette manière, un temps de réponse du matériau en dessous de 100ms devrait assurer un ressenti sans retard gênant du chirurgien et ainsi limiter les situations où le chirurgien pourrait exercer un effort sur le fil-guide alors que celui-là n'est pas encore dans l'orientation finale.

Bien que les actionneurs traditionnels utilisés dans le domaine de la robotique médicale comme les actionneurs électromagnétiques, les actionneurs hydrauliques ou pneumatiques, ont été étudiés en profondeur et présentent des performances parfois exceptionnelles, ils présentent des défauts rédhibitoires quand il est question de chirurgie mini-invasive ; ils sont rigides et par-dessus tout complexes, ce qui rend leur miniaturisation à ces échelles un challenge pour l'instant insurmontable dans le contexte de ce genre d'application. Défaut que l'on ne retrouve pas avec les polymères électroactifs dont les dimensions de la partie active ne sont pas limitées par la réalisation de pièces complexes, étant simplement un sandwich de 3 couches (électrode/polymère/électrode) pouvant assez facilement atteindre quelques micromètres d'épaisseur avec la bonne technologie de mise en œuvre.

D'un point de vue plus général, l'obtention d'un fil-guide contrôlable électriquement apporterait de nouvelles perspectives pour la robotique médicale. En effet de nombreuses équipes travaillent à la robotisation de ce genre d'instrument. Le but est d'en faire ce que l'on appelle des instruments dextres actifs de chirurgie mini-invasive. Concrètement, il s'agit de parvenir à motoriser et à asservir les mouvements de la structure pour :

1. Permettre un maniement sans effort et à une seule main par le biais de commandes électriques à la poignée (mini-joystick, bouton...)
2. Coordonner les mouvements articulaires dans l'esprit d'un contrôle des déplacements de l'effecteur dans l'espace de tâche.
3. Automatiser certains gestes, par exemple le suivi d'outil, la compensation des mouvements physiologiques (tremblements ...).

Dans la littérature de nombreux instruments dextres actifs actionnés par des moteurs électriques extracorporels ont été proposés. Ces moteurs peuvent être incorporés dans une poignée [66] ou bien en déport sur un robot porte-instrument (DaVinci) ou sur la table d'opération [67]. Cependant, dans le but de minimiser l'encombrement extracorporel et de simplifier la chaîne de transmission mécanique, l'intégration de matériaux électroactifs semble une solution prometteuse. L'objectif étant l'application des polymères électrostrictifs pour le morphing et le retour haptique. La Figure 34 illustre de façon schématique le fonctionnement attendu de la structure.

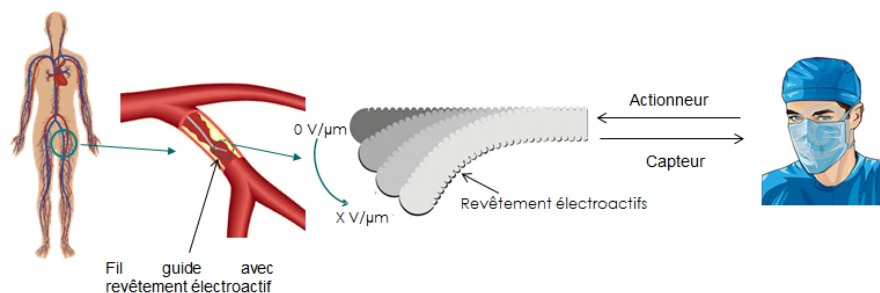


Figure 34 : Illustration schématique d'une application chirurgicale de fil-guide "intelligent"

### III.1.2. Présentation du prototype de fil-guide à l'échelle laboratoire

Cette partie est décomposée en deux sous-parties :

- principe de fonctionnement de la structure et modélisation
- réalisation du prototype et analyses des résultats de caractérisation.

#### III.1.2.1. Principe de fonctionnement du fil-guide intelligent

Un fil-guide est par nature cylindrique, comme l'illustre la Figure 35, le but du projet est de réaliser un revêtement électroactif autour d'un fil-guide afin de rajouter des fonctions de changement de forme et de retour d'information. D'un point de vue applicatif, il est suffisant dans un premier temps de disposer d'un actionneur à un degré de liberté. En effet il est possible d'obtenir, par simple rotation du fil autour de son axe, les autres degrés de liberté (Figure 35).

Le principe de fonctionnement de cette architecture est illustré de façon schématique dans la Figure 36. Dans ce cas le fil-guide au centre représente l'électrode commune, il est alors possible en fonction de la zone alimentée de réaliser les mouvements correspondant à un degré de liberté. Pour résumer, la structure de base de l'actionneur consiste en une ossature à base d'un fil-guide conducteur entouré d'une matrice polymère.

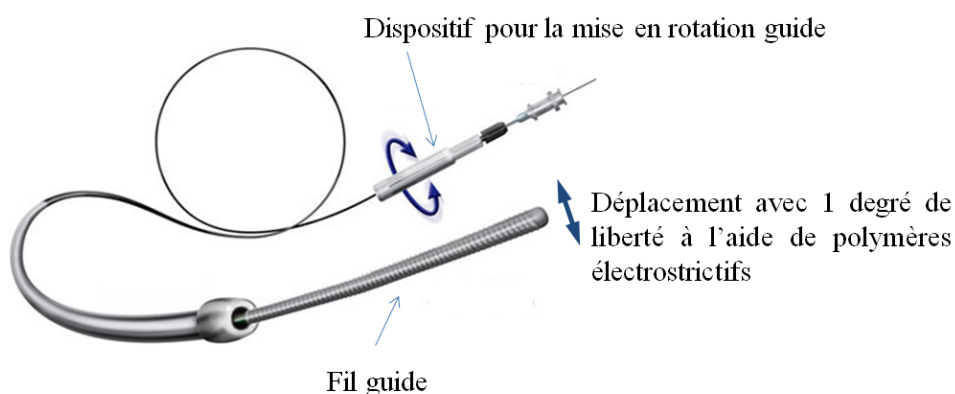


Figure 35 : Principe de fonctionnement général du fil-guide développé au LGEF en partenariat avec les HCL

L'architecture étudiée n'étant pas simpliste, l'approche par un modèle analytique n'est pas envisagée, une solution par élément fini est préférée. Cet outil est utilisé pour modéliser les phénomènes physiques de base, le couplage multiphysique étant considéré comme direct – le

comportement électrostrictif affecte le comportement mécanique, mais pas l'inverse – la résolution des problèmes électrique et mécanique se fait donc séquentiellement, la déformation d'électrostriction étant calculée en premier puis ajoutée comme chargement mécanique élastique lors de la résolution du problème mécanique [68]. La géométrie du modèle de fil-guide "intelligent" est donc celle d'un cylindre à base circulaire, recouvert sur chaque moitié d'une couche uniforme d'un matériau conducteur et parcouru en son centre par une âme en matériau, lui aussi conducteur. Ce modèle géométrique a été réalisé à l'aide de l'outil de modélisation intégré à ANSYS, permettant de modifier aisément les dimensions afin de tester plusieurs configurations possibles (Figure 36). Les dimensions typiques sont disponibles dans le Tableau 10.

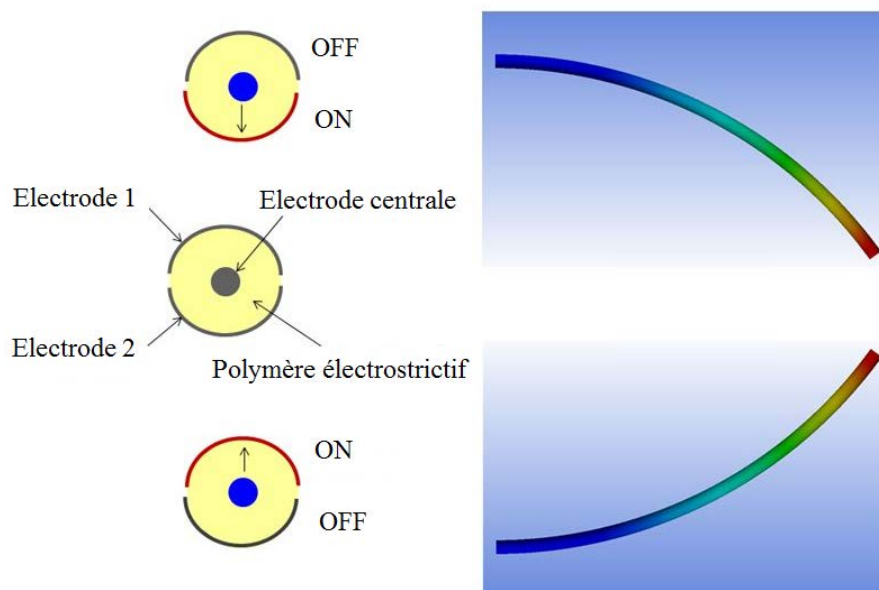


Figure 36 : Architecture du fil-guide intelligent pour disposer de la fonction contrôle de forme

Name	Value	Description
$D_{outer}$	1.4 mm	Diamètre extérieur
$D_{inner}$	1 mm	Diamètre intérieur
L	60 mm	Longueur de polymère électrostrictif
E	30V/ $\mu$ m	Champ électrique

Tableau 10 : Paramètres géométriques du fil-guide

La Figure 37 donne la répartition du champ électrique lorsque l'électrode 1 est alimentée par un champ électrique de 30V/ $\mu$ m. On observe que le champ électrique est réparti de manière symétrique entre l'électrode centrale et l'électrode 1 à travers la couche de polymère électrostrictif. Le champ électrique entre l'électrode 2 et l'électrode centrale est nul, car aucun champ électrique n'est appliqué. Cette configuration d'électrode permet donc de sectoriser la répartition du champ électrique dans la structure. Ceci est nécessaire pour le développement d'un fil de guidage orientable.

Afin de connaître les résultats attendus en termes de déformation et le gain obtenu grâce à l'ajout de plastifiant, des simulations ont été réalisées sur deux compositions de matériaux, les résultats sont disponibles en Figure 38. L'avantage d'utiliser un composite tout organique est clairement démontré dans la simulation où l'angle de flexion généré est plus élevé que pour le

## Chapitre 4. Application au contrôle de forme

polymère pur. Pour obtenir un angle équivalent avec le matériau non modifié un champ électrique six fois supérieur sera nécessaire, ce qui correspond au champ de rupture diélectrique du matériau pure [48], [69] limitant ainsi le domaine d'application de ce dernier.

De manière à valider complètement le fonctionnement de la structure du point de vue de la simulation, l'évolution du profil de déplacement en fonction du champ électrique et de l'électrode alimentée a été simulée et est représentée dans la Figure 39.

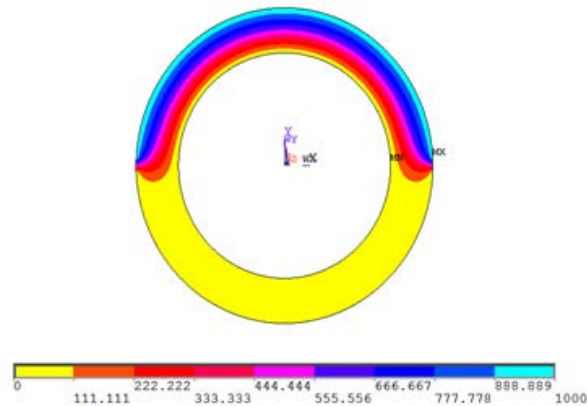


Figure 37 : Modélisation par élément finis de la répartition du champ électrique dans la section du polymère

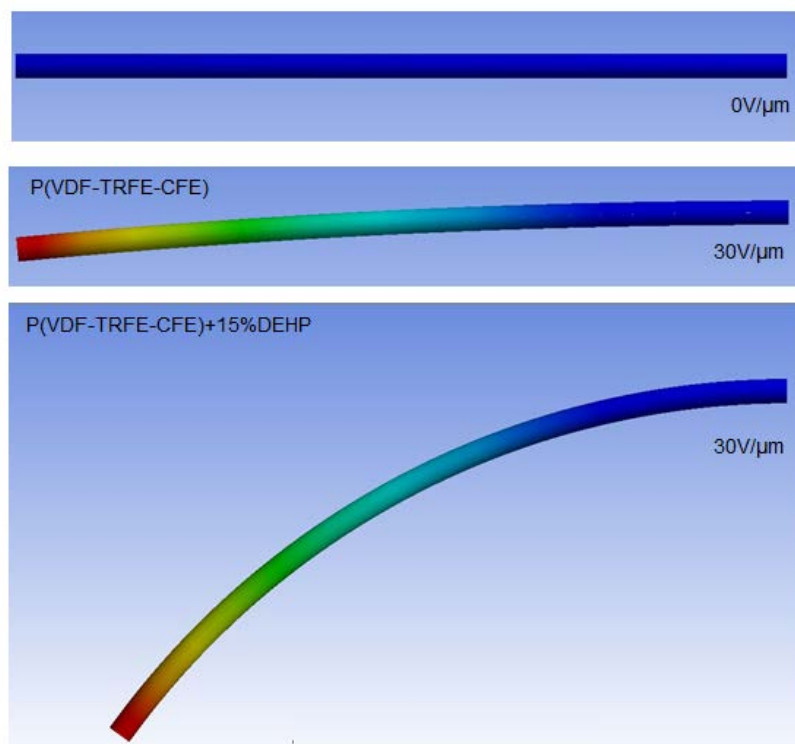


Figure 38 : Comparaison des compositions de matériaux à l'aide d'une modélisation par éléments finis réalisée sous ANSYS



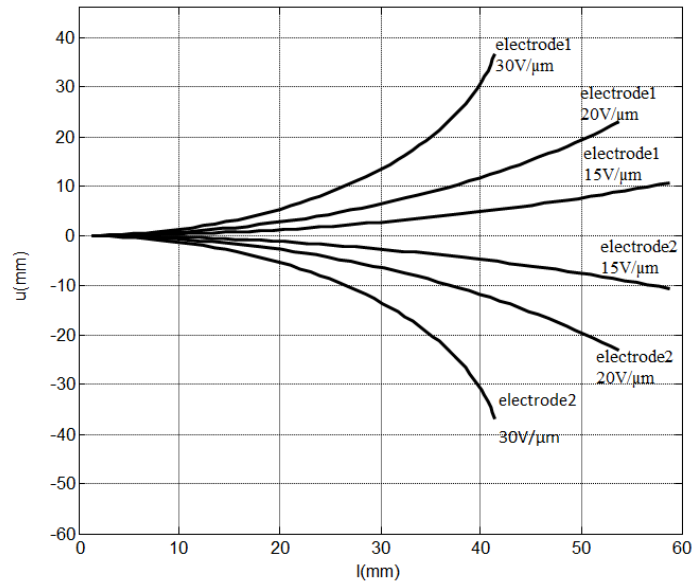


Figure 39 : Évolution du profil de déplacement pour différents niveaux d'excitation électrique et de configuration de répartition du champ électrique

Les résultats de simulation montrent le potentiel applicatif du matériau composite développé au LGEF pour répondre au besoin de contrôle de forme de fil-guides utilisés en chirurgie mini-invasive. La prochaine partie présente la validation expérimentale des concepts avancés.

### *III.1.2.2. Réalisation pratique du fil-guide électroactif et analyse des résultats*

#### **III.1.2.2.1. Réalisation du prototype à l'échelle laboratoire**

Au vu de l'architecture envisagée, à savoir un tube, il semble que l'extrusion soit la méthode la plus en adéquation avec le besoin applicatif. Celle-là est courante dans l'industrie des thermoplastiques et connaît un essor important depuis ces dernières années avec le développement des procédés de fabrications additives et les machines d'impression 3D. Démontrer la possibilité d'extruder un polymère électroactif permettrait de répondre aux besoins applicatifs, mais ouvrirait aussi d'autres perspectives avec la possibilité d'imprimer des pièces en matériaux électroactifs directement en 3D.

Pour répondre à ces challenges scientifique et technique, une synthèse spécifique a été demandée à l'entreprise Arkema afin de disposer de poudre avec une MFI (Melt Flow Index) ou IFC (Indice de Fluidité à Chaud) importante. En effet cette valeur rend compte de la propulsion d'un polymère à être extrudé.

De façon générale, l'extrusion est de loin le plus important des procédés de mise en forme des polymères. Le principe de base de l'extrusion monovis est l'utilisation d'une vis sans fin, qui tourne à l'intérieur d'un fourreau cylindrique. Procédé continu, l'extrusion est utilisée pour fabriquer des produits finis ou des semi-produits de section constante (films, plaques, tubes, profilés...) par passage au travers d'un outillage appelé filière. Dans ce cas, les fonctions principales du procédé sont d'assurer la fusion du polymère solide (généralement introduit sous forme de granulés), puis la mise en pression et le mélange du polymère fondu, afin d'alimenter dans de bonnes conditions la filière qui donnera son profil au produit fabriqué. L'extrusion est

## Chapitre 4. Application au contrôle de forme

aussi utilisée en dehors de la mise en forme pour des étapes de granulation, de *compoundage* ou de polymérisation.

Dans le cas de l'étude, les opérations d'extrusion ont été réalisées à l'aide d'un extrudeur de laboratoire permettant de mettre en œuvre de faibles quantités de matériau (Figure 40) à des températures entre 150 et 170°C et à une vitesse de rotation variable. Une fois les paramètres réglés, une longueur de tube de 50cm environ est extrudée, puis elle est sectionnée en tronçons de diamètre régulier, puis ces tronçons étaient à nouveau sectionnés en échantillons de 5-6cm de longueur tout en écartant ceux dont la qualité n'était pas satisfaisante. La Figure 41 montre un échantillon retenu pour faire des mesures.

### III.1.2.2.2. Résultats et discussions sur les propriétés électromécaniques du tube

Pour mesurer les performances du terpolymère modifié extrudé, plusieurs tubes ont été réalisés, dans différentes dimensions. La Figure 42 montre la courbure mesurée, à 25 V/ $\mu\text{m}$  en fonction du rapport Longueur/Diamètre du tube. Il est important de noter que la courbure maximale atteignable par un tube augmente avec le ratio L/D [70].

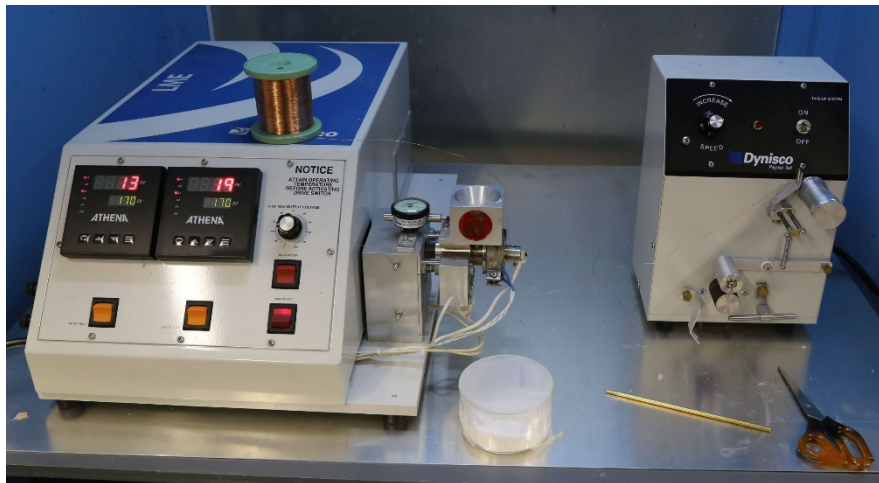


Figure 40 : Extrudeur de laboratoire du LGEF



Figure 41 : Tube extrudé de P(VDF-TrFE-CFE) avec 15%wt de DINP

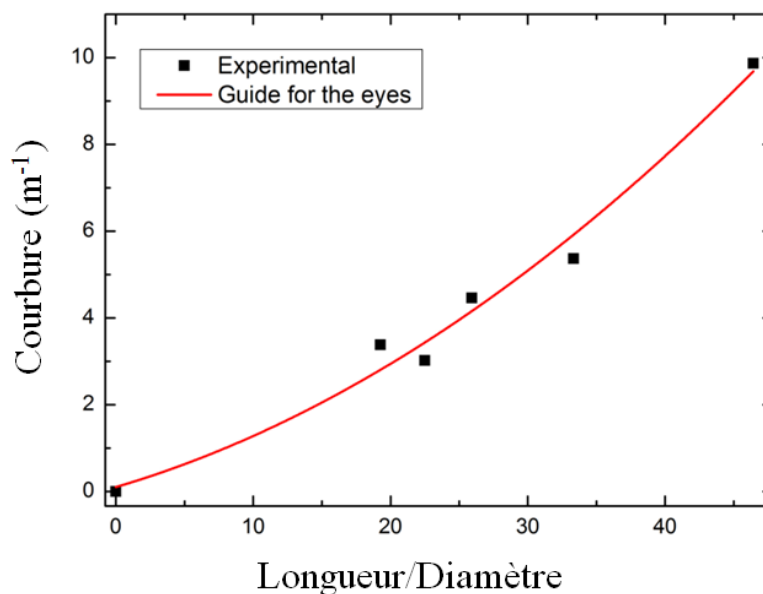


Figure 42 : Mesure expérimentale de la courbure en fonction du rapport longueur/diamètre pour un champ électrique de 25V/μm

La Figure 43 représente l'angle de courbure résultant d'un champ électrique statique pour un échantillon d'une longueur utile de 65mm, d'un diamètre intérieur de 1mm et d'un diamètre extérieur de 1.4mm. En raison de la nature du matériau, une dépendance quadratique de la déformation intrinsèque en fonction du champ appliqué est observée. L'angle obtenu avec ce désign correspond à une valeur typique d'angle de vaisseau sanguin dans le corps [64], rendant ainsi normalement possible une navigation plus aisée du fil-guide « intelligent » dans le système vasculaire. Cette fonction de pilotage de la courbure de l'extrémité distale d'un fil-guide est particulièrement importante dans le cadre du développement des procédures de chirurgie mini-invasive [62]. Pour illustrer les courbures obtenues, deux clichés disponibles en Figure 44 montrent l'échantillon dans l'état non excité puis soumis à un champ de 50V/μm.

La Figure 45 montre la réponse temporelle du matériau à un échelon de tension de 20V/μm, réponse que l'on peut scinder en deux parties : une première phase de réponse rapide de l'ordre de 20ms, responsable de la moitié de la courbure, puis d'une phase plus lente d'environ 150ms pour le reste de la déformation, attribuée à un phénomène de fluage [46], [68]. Le temps de réponse de la structure est inférieur à ceux d'autres matériaux électroactifs tels que des polymères ioniques, dont les temps de réponse dépassent la seconde [71]. Ainsi, le terpolymère modifié est compatible avec les contraintes applicatives énoncées dans le paragraphe III.1.1.2 (page 59), en effet le temps de réaction d'un humain est d'environ 200 ms.

Pour résumer, les prototypes réalisés au laboratoire démontrent que le matériau et la structure sont à même de correspondre aux besoins applicatifs de la chirurgie mini-invasive en termes de capacité d'orientation et de temps de réponse.

La capacité de changement de forme n'est pas la seule propriété demandée pour l'élaboration d'un fil-guide « intelligent ». En effet, les opérations de chirurgie mini invasive sont de plus en plus réalisées à l'aide de robots [72]. Ainsi, un retour de force est indispensable afin de limiter les risques de perforation et ainsi permettre l'automatisation. Cependant, même sans cette capacité de retour d'information dans les systèmes actuels, des chirurgiens ont montré leur capacité à effectuer des opérations délicates tels que des pontages coronariens [73], [74].

Malgré tout, les performances ne sont pas encore optimales avec les dispositifs de chirurgie mini-invasive. De plus, les technologies actuelles de capteurs sont très chères à intégrer, ce qui est principalement dû au fait que les contraintes techniques – de dimension en particulier – sont importantes, en particulier dans le cas du fil-guide [75]. L'objectif est de juger de la possibilité d'utiliser le matériau déjà intégré au fil-guide pour réaliser la fonction de retour d'information d'effort appliqué en faisant fonctionner le dispositif en mode pseudo-piézoélectrique. En effet, en mode pseudo-piézoélectrique – ce qui consiste à appliquer un champ statique de polarisation  $E_{DC}$  au polymère actif – il est possible d'écrire que le déplacement électrique  $D$  est égal à :

$$D = 2.M.E_{DC}.T \quad (9)$$

Avec  $M$  le coefficient d'électrostriction et  $T$  la contrainte mécanique

Il ressort de l'équation que le déplacement électrique est proportionnel à l'excitation mécanique subie par le matériau, d'où la possibilité de remonter à l'information d'effort. De plus, il est courant d'indiquer que le produit  $2.M.E_{DC}$  correspond au coefficient pseudopiézoélectrique équivalent  $d_{equ}$ .

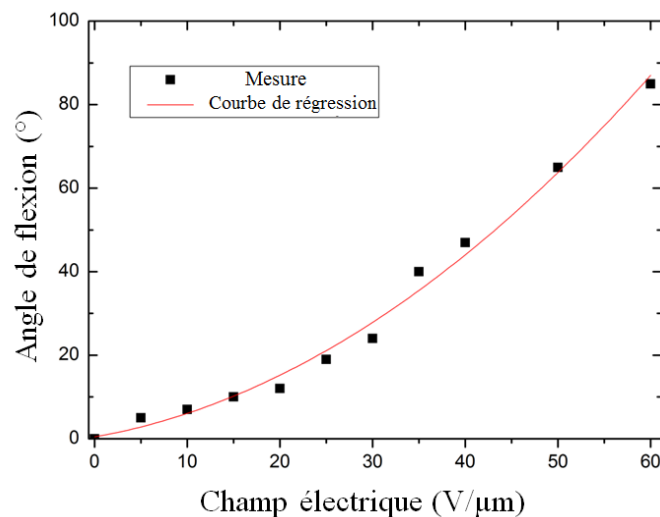


Figure 43 : Angle atteint en fonction du champ électrique



Figure 44 : Photographie du prototype de fil-guide pour deux niveaux d'excitation électrique

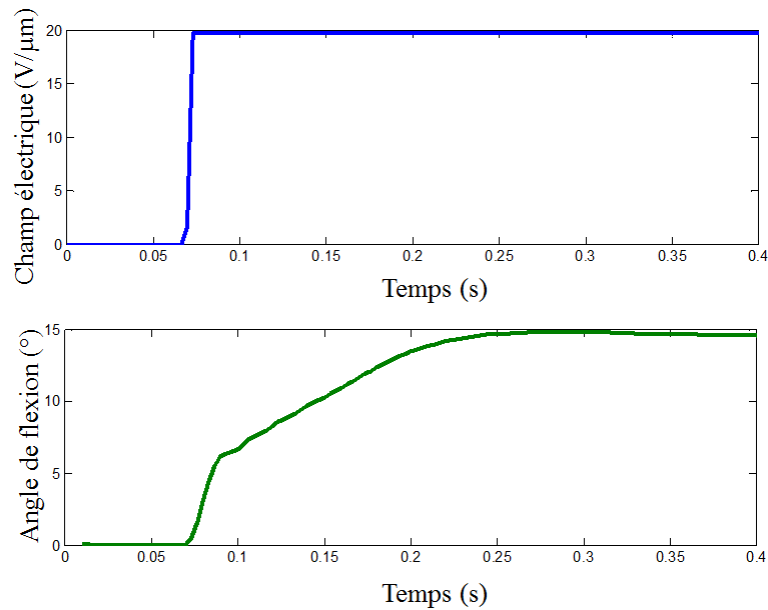


Figure 45 : Angle en fonction du temps à un champ de 20V/μm

Pour caractériser la réponse en capteur du matériau, le film de polymère a été fixé dans le banc de caractérisation spécifique. L'échantillon est placé entre deux mors : l'un fixe et l'autre en encastrement sur un actionneur linéaire Ironless XM550. Ainsi il était possible de soumettre l'échantillon à un profil de déformation donné, dans le plan du film. Le courant circulant était mesuré à l'aide d'un amplificateur de courant Stanford (SR-570). L'effort appliqué à l'échantillon a été mesuré avec un capteur d'efforts d'une sensibilité de 48 mV/N et la déformation élastique a été, elle, déduite à partir de la mesure de déplacement de l'actionneur. Les éprouvettes de traction mesuraient 60 mm de longueur et 10 mm de largeur, avec une longueur effective (avec électrode) de 40 mm.

La Figure 46 expose l'évolution temporelle de courant et de l'excitation mécanique pour une éprouvette de polymère électrostrictif, en mode pseudo-piézoélectrique ( $E_{DC}=6V/\mu m$ ). Il existe un déphasage entre la déformation et le courant généré. Ce déphasage apparaît clairement dans l'Équation (10), le courant étant proportionnel à la dérivée temporelle de la déformation.

$$I = 2 \cdot A \cdot M_{31} \cdot E_{DC} \cdot Y \cdot \frac{\partial S_1}{\partial t} \quad (10)$$

Avec  $A$  la surface de l'électrode et  $Y$  le module de Young

En intégrant le courant, il est possible de remonter à l'information de charge électrique, comme l'illustre la Figure 47 donnant l'évolution temporelle de la force et de la quantité de charge, dans ce cas les deux grandeurs sont en phase. De plus une bonne dépendance linéaire entre la déformation imposée et la réponse électrique, démontrant ainsi le potentiel d'utilisation du matériau comme capteur de déformation.

Le coefficient piézoélectrique équivalent ( $d_{equ}$ ) est utilisé pour faciliter la comparaison des performances électromécaniques d'un matériau électrostrictif à celles d'un matériau piézoélectrique classique. La Figure 48 représente l'évolution du coefficient piézoélectrique en fonction du champ électrique statique ( $E_{DC}$ ). On observe en premier que pour un champ électrique inférieur à 10 V/μm tous les composites organiques possèdent des coefficients piézoélectriques comparables à ceux de céramiques piézoélectriques. À ces valeurs de champ, le terpolymère pur P(VDF-TrFE-CFE) présente seulement un coefficient du niveau du P(VDF-

TrFE). Ces résultats montrent l'avantage d'utiliser le matériau en mode pseudo-piézoélectrique, permettant d'utiliser le même élément pour l'actionnement et la mesure, facilitant le design, réduisant les coûts, tout en offrant des performances en sensibilité semblables à celles de matériaux piézoélectriques. De plus l'architecture du fil-guide se prête bien à cette fonction, en raison de la présence des deux électrodes, où il est possible d'utiliser une électrode pour l'orientation et la seconde comme capteur de déformation, comme l'illustre la Figure 49.

Afin de valider le principe, le prototype de fil-guide a été excité manuellement pour simuler par exemple la navigation du fil à travers les vaisseaux sanguins du corps. La réponse temporelle du déplacement en bout du fil-guide est mesurée à l'aide d'un capteur laser et la réponse électrique du capteur situé sur le fil-guide est disponible en Figure 50. Les résultats démontrent bien la possibilité de remonter à l'information mécanique en utilisant une partie du fil-guide comme corps d'épreuve pour la réalisation du retour d'information de déformation.

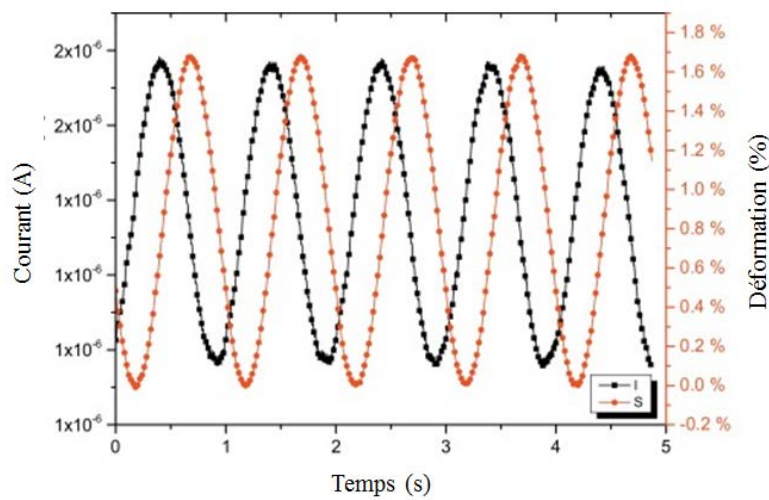


Figure 46 : Évolution temporelle du courant et de la déformation en mode pseudo-piézoélectrique

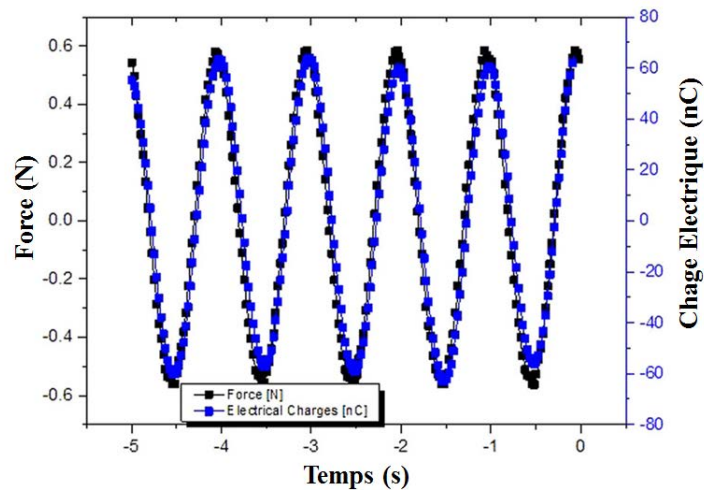


Figure 47 : Évolution temporelle de la force et de la charge électrique en fonction du temps.

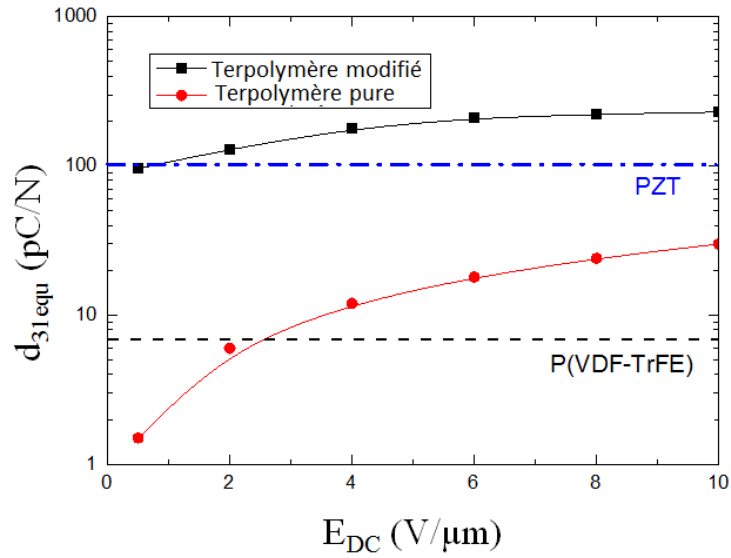


Figure 48 : Évolution du coefficient piézoélectrique en fonction du champ statique

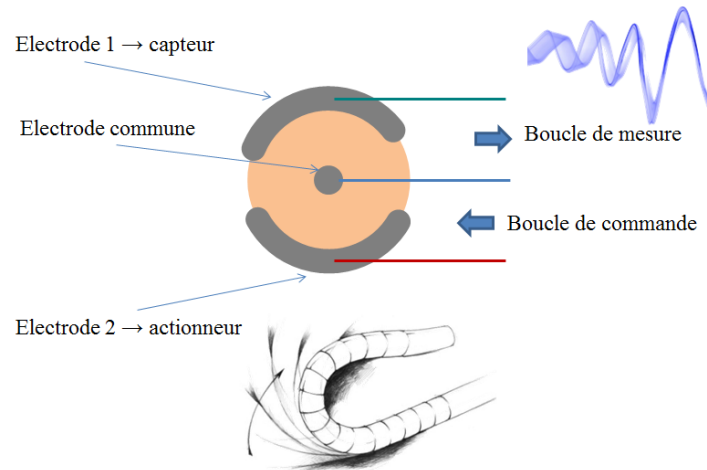


Figure 49 : Principe du fonctionnement de l'architecture avec les possibilités d'orientation et de retour de force

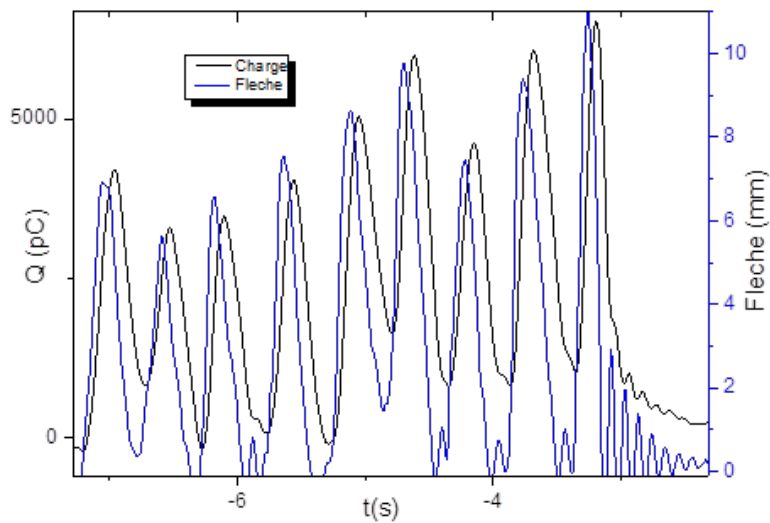


Figure 50 : Réponse du capteur intégré au fil-guide en mode pseudo-piézoélectrique

### ***III.1.2.3. Synthèse et futurs développements sur le projet de fil-guide intelligent***

Les actions de recherche ont permis de démontrer le potentiel d'utilisation des polymères électroactifs développés au LGEF, pour la réalisation de fonctions mécatroniques fortement intégrées en vue d'applications pour la chirurgie mini-invasive.

Actuellement, les travaux concernent l'optimisation du matériau et du procédé de mise en œuvre grâce à un partenariat avec la société ZEUS spécialisée dans l'extrusion de polymère fluoré pour des applications médicales. Cela est effectué dans le cadre de la thèse de Nellie Della Schiava avec une optimisation du design et une recherche de plastifiant biocompatible permettant au final de déboucher sur les premiers tests cliniques programmés normalement pour l'année 2018.

Les résultats de recherche ont été publiés dans la revue Nature Scientific Reports sous le titre « Development of a smart guide wire using an electrostrictive polymer: option for steerable orientation and force feedback », Article Number 18593 (2015), DOI: 10.1038/srep18593, disponible en ANNEXE 3 page 103, et a fait aussi l'objet d'une conférence publié dans le European Journal of Vascular and Endovascular Surgery, Volume 49, Issue 6, June 2015, Pages 744-745, sous le titre Morphing Control of Steerable Wire Guide Based Electroactive Material for Cardiovascular Surgery Application.

## ***III.2. Rendu haptique pour les interfaces personne-machine***

Une autre application où les propriétés des matériaux développés au LGEF à base d'une matrice de type terpolymère a été jugée prometteuse, concerne le rendu haptique pour l'électronique grand public. Ce besoin de caractérisation est né de la demande de certains gros acteurs du domaine de connaître le potentiel de cette technologie. Afin de comprendre le besoin du secteur, la première partie est consacrée au contexte autour des dispositifs haptiques, puis sur les résultats de caractérisation obtenus sur les matériaux.

### **III.2.1. Contexte de l'étude sur le rendu haptique**

La question « où sont les matériaux électroactifs dans l'électronique grand public : exemples des produits connectés ? » sert de point d'entrée pour expliquer le contexte d'actions de recherche réalisées.

Il existe peu de différence entre les tablettes et les Smartphones comme l'illustre la Figure 51. Il suffit de prendre les exemples d'Apple (iPad et iPhone) et de Samsung pour s'en convaincre. Chez Samsung, il est vraiment très compliqué de dire où commence la tablette et où se termine le Smartphone. Il en est de même au niveau de la technologie utilisée. Par contre chez Apple entre un iPhone et un iPad, il y a un rapport de surface de 5, ce qui implique l'utilisation de cinq fois plus de matériaux pour fabriquer l'écran.





Figure 51 : Évolution entre les tablettes et les smartphones

Le Tableau 11 résume les grandes tendances du marché des tablettes et des Smartphones. Les utilisateurs veulent toujours plus de performances, mais aussi un matériel plus fin, plus léger et plus robuste. Ainsi, il est nécessaire pour le fabricant de trouver un bon compromis entre toutes ces demandes et le prix [76], [77].

Demandes	Solutions envisagées
Écran plus performant	Substitution LCD → OLED
Plus fin	Nouvelles batteries
Plus léger	Substitution métal → Polymère
Incassable (voire flexible)	Substitution verre → Polymère
Moins cher	Substitution dépôt sous vide → Impression

Tableau 11 : Les grandes tendances dans le domaine des tablettes et des Smartphones

La Figure 52 représente la vue éclatée d'une tablette, Apple à gauche et Samsung à droite, avec toutes les pièces composant le téléphone, auxquelles sont associées des fonctionnalités à optimiser. Il est intéressant de se focaliser sur l'écran qui représente le lien intime entre l'utilisateur et le produit.



Figure 52. Vue éclatée de smartphones (extrait de [78])

La première fonction de l'écran est de fournir l'image, ce qui fait intervenir de nombreux composants, comme l'illustre la Figure 53 en fonction de la technologie envisagée (LCD à gauche OLED à droite). Le retour tactile est une autre fonction importante de l'écran, notamment pour le clavier virtuel. Ce n'est pas le cas chez tous les fabricants, mais certains proposent ce qu'on appelle le retour haptique, c'est-à-dire que lorsque l'utilisateur touche une touche, un retour de vibrations qui permet de confirmer que l'information a bien été enregistrée. Cela est actuellement réalisé avec de petits moteurs qui vibrent. Le problème est que ces moteurs prennent de la place, augmentent le poids et consomment beaucoup d'énergie, mais surtout, la vibration n'est pas localisée.

Pour pallier à ce problème, les industriels du secteur comme Arkema ou Solvay proposent des matériaux de type polymère piézoélectrique, c'est-à-dire qu'une pression sur les matériaux génère une réponse électrique, et vice versa : lorsque qu'un champ électrique est appliqué, le matériau se déforme engendrant une vibration si le champ est variable<sup>3</sup>. Cette vibration peut donc ne se faire que sur la lettre qui a été touchée, rendant le retour haptique plus précis. Par contre, pour les matériaux actuellement envisagés de type copolymères ferroélectriques [79] [80], les amplitudes de déformation sont faibles pour correspondre aux contraintes applicatives, rendant le retour haptique limité (fonctionne pour une seule fréquence). L'utilisation des polymères électroactifs de type électrostrictif à base de P(VDF-TrFE-CFE) semble une solution prometteuse en raison des déformations et densités énergétiques relativement importantes comparativement. Actuellement, des sociétés comme VIVITouch ou Novasentis travaillent sur le sujet. Par contre le champ électrique nécessaire pour fonctionner impose de réaliser des structures sous forme de multicouches, pour réduire les tensions à appliquer afin de disposer du retour d'information. Mais le fait de réaliser des couches induit un coût supplémentaire qui reste souvent un frein dans un secteur où chaque procédé doit être optimisé au plus juste, les marges opérationnelles étant faibles.

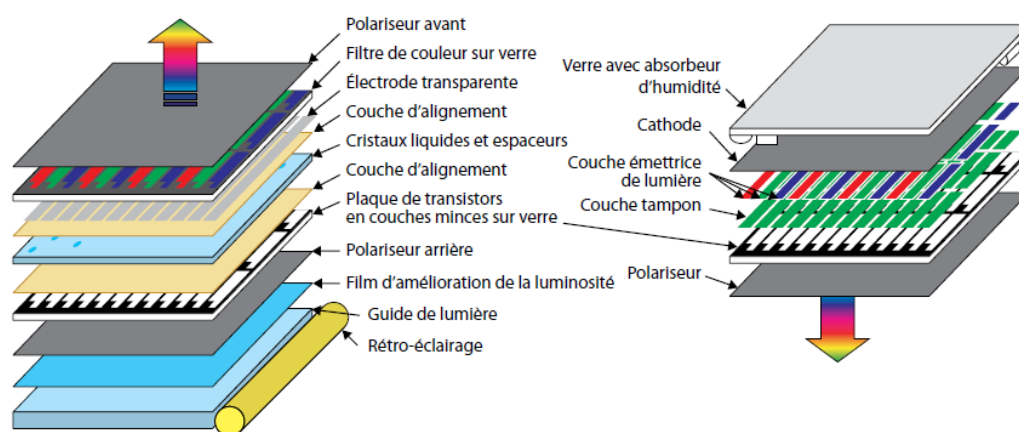


Figure 53 : Schéma de principe des technologies d'écran (extrait de [81])

En raison de l'optimisation des propriétés électromécaniques de la matrice de terpolymère effectuée au LGEF (paragraphe II.2 page 55), il semble donc intéressant de tester ceux-là pour les applications dites haptiques. En effet, cela permettrait de soulever certains verrous technologiques à l'intégration des polymères électroactifs.

3 <http://www.usinenouvelle.com/article/la-chimie-en-tablettes.N194839>

Les besoins concernant un dispositif de type écran ou bouton haptique peuvent être résumés en trois points :

- la distance interactionneurs
- amplitude vs fréquence
- fonctionnement en capteur.

La distance interactionneurs peut être décrite comme la densité d'actionneurs individuels, commandés indépendamment et est donnée par le seuil de discrimination tactile. Il décrit la distance minimale entre deux stimulations indépendantes pour laquelle le cerveau parvient toujours à les discriminer indépendamment. Cette distance dépend de la zone du corps humain stimulée et atteint son paroxysme au niveau des mains. La main elle-même comprend différentes zones : le seuil de discernement est de 10 mm dans la paume et augmente lorsqu'on se rapproche du bout des doigts pour atteindre 1-2 mm au plus bas [82]. Pour stimuler entièrement la main de l'humain au seuil de discrimination tactile, plus de 1000 stimulateurs indépendants seraient nécessaires.

L'amplitude de déplacement nécessaire pour l'actionneur est directement conditionnée par l'intensité du signal perçu à un niveau de stimulation donné. Pour des stimulations dynamiques, cela varie avec la fréquence [83]. La déformation minimale perceptible dépend du mouvement relatif entre le bout des doigts et la surface. Quand le doigt bouge par stimulus, des déformations d'environ 0.07  $\mu\text{m}$  peuvent être perçues, alors qu'elles ne sont que de 2  $\mu\text{m}$  lorsque le doigt est immobile [84]. Pour arriver à déformer la peau, les actionneurs doivent appliquer des efforts d'environ 100 mN. La fréquence maximale perceptible de vibrations pénétrantes est d'environ 1 kHz [85] tandis que la sensibilité maximale est atteinte aux environs de 250 Hz [86].

Le matériau devrait aussi pouvoir fonctionner comme capteur pour assurer l'interface personne-machine et faciliter l'intégration, le même matériel servant à la fois d'actionneur et de capteur.

### III.2.2. Évaluation des propriétés haptiques des matériaux du LGEF

La vibration est le principal moyen de transmettre de l'information via une surface tactile et dépend du nombre de récepteurs sensoriels activés (Figure 54). En effet, logés dans les différentes couches de la peau, de minuscules récepteurs tactiles sont toujours en alerte. Il en existe plusieurs types, ayant des fonctions plus ou moins spécialisées : certains captent la température (bulbe de Krause, corpuscule de Ruffini), d'autres la pression ou la texture (dont le disque de Merkel, corpuscule de Meissner, corpuscule de Pacini), ou encore la douleur (terminaisons nerveuses libres et disque de Merkel, par exemple) [83].

Dans le cas du retour haptique en termes de texture, il est donc possible de stimuler quatre récepteurs possédant des propriétés de détection différentes (Figure 55):

- Disque de Merkel : sensible à des sources constantes de stimulation sur une petite zone, comme par exemple le fait de porter une charge.
- Corpuscule de Meissner : Dispositif répondant le mieux au toucher actif, relatif à l'exploration d'objets.
- Corpuscule de Ruffini : sensible à la stimulation constante sur une plus grande surface et détecte également l'étirement de la peau.

- Corpuscule de Pacini : Extrêmement sensible sur un grand champ réceptif par exemple en soufflant doucement sur la paume de votre main ce sont ces récepteurs qui sont stimulés.

La Figure 56 illustre la limite de la détection par l'humain en fonction de la fréquence, les données ont été extraites du livre de Kandel [83]. Il est intéressant de noter que la détection des vibrations est optimale à environ 250 Hz, à cette fréquence une amplitude de seulement 1  $\mu\text{m}$  étant suffisante pour stimuler un corpuscule de Pacini. Pour les autres fréquences, une amplitude plus importante est nécessaire. Il est donc primordial de juger de la possibilité du polymère électrostrictif modifié d'avoir une réponse supérieure au seuil de détection.

L'accélération subie par l'échantillon lors d'une vibration est facilement mesurable et permet de rendre compte de la puissance délivrée par le matériau ; elle est liée à la fréquence et à l'amplitude du mouvement, ainsi dans l'haptique, l'accélération est considérée comme un paramètre pertinent pour rendre compte des performances d'un système. L'accélération développée par l'échantillon est déterminée à partir de mesures de vitesse effectuées à l'aide d'un vibromètre laser. Afin d'être le plus proche de la configuration réelle, l'échantillon à caractériser est intégré dans un cadre, bloquant ainsi les mouvements sur les côtés. L'illustration schématique de la structure caractérisée est disponible en Figure 57, la surface active de chaque zone est de 1  $\text{cm}^2$ , le film de polymère avec le motif d'électrode est déposé sur un substrat en PET recouvert d'oxyde mixte d'étain et d'indium (ITO), la couche d'ITO servant d'électrode inférieure. En alimentant les actionneurs de manière indépendante, il est possible d'exciter localement la structure.

Le matériau électroactif a été déposé par la méthode d'impression par jet d'encre. En effet il s'agit d'une des techniques envisagées pour les acteurs du marché pour réaliser des dispositifs. L'élaboration de cette encre électroactive consiste à passer par une méthode par voie solvant. Les pellets de terpolymères sont dissouts dans un solvant de type TEP et la solution agitée pendant 2 heures. Avant d'être injectée dans les réservoirs de l'imprimante, la solution est passée dans un filtre de 1 $\mu\text{m}$ . Le choix du solvant est une importance cruciale, car il doit être un bon solvant du matériau à imprimer : tout d'abord, pour assurer la stabilité de la solution, mais surtout, pour assurer une bonne solubilité du matériau à déposer. De fait, l'épaisseur déposée sera directement liée à la concentration initiale de l'encre, de façon générale il faut chercher à concentrer l'encre au maximum. Cependant, il faut néanmoins être attentif à la fiabilité de l'impression, car une concentration trop élevée augmente la fréquence de bouchage des buses. Cela provient du fait que pour une faible fraction volumique en solvant, lors de son évaporation, l'encre atteint plus rapidement une concentration critique au niveau de l'orifice de la buse et celle-ci se bouche. De plus il est important de noter que la taille des motifs imprimés diminue avec la concentration de l'encre en polymère. Ce comportement résulte de la plus faible mobilité de la goutte sur le substrat pour des concentrations importantes en polymère. Un autre phénomène à prendre en compte dans la sélection du solvant est la faible pression de vapeur de celui-ci, afin de limiter l'évaporation du solvant au niveau de la buse et donc le bouchage des têtes. Cette pression de vapeur est d'autant plus faible que la température d'ébullition du solvant est grande. Une préoccupation majeure est le « problème de la première goutte », le bouchage de la tête par de l'encre partiellement sèche. Dans les premiers tests la concentration en TEP est de 40% correspond à un compromis entre la fiabilité de l'impression et l'épaisseur du dépôt.

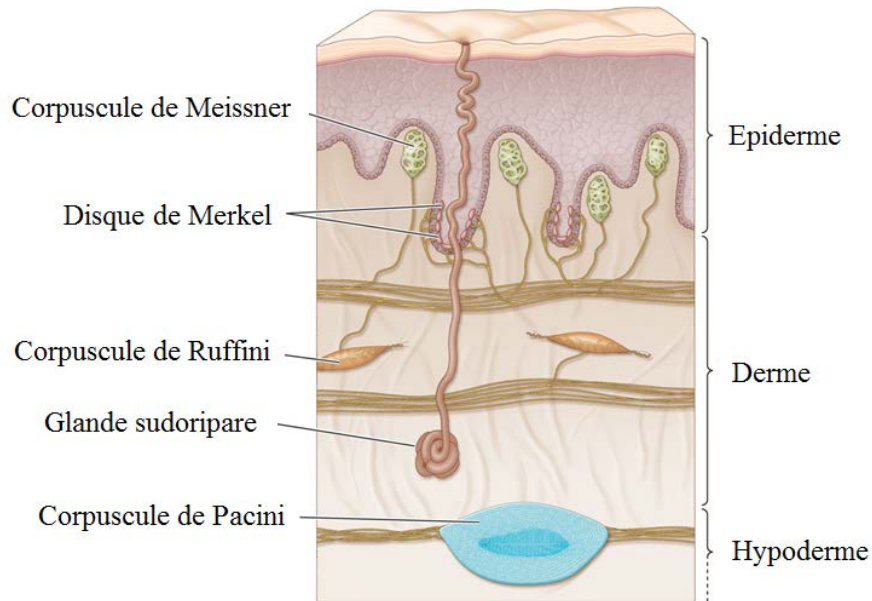


Figure 54 : Les récepteurs tactiles de la peau (extrait de [83])

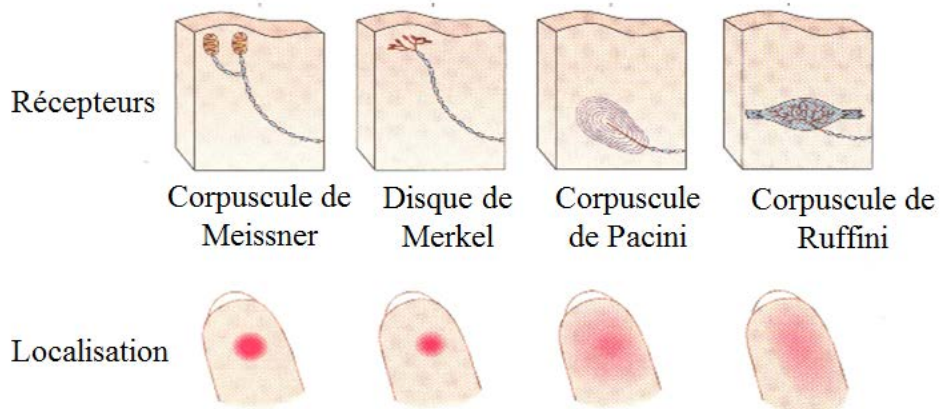


Figure 55 : Illustration schématique des zones de détection des différents récepteurs (extrait de [83])

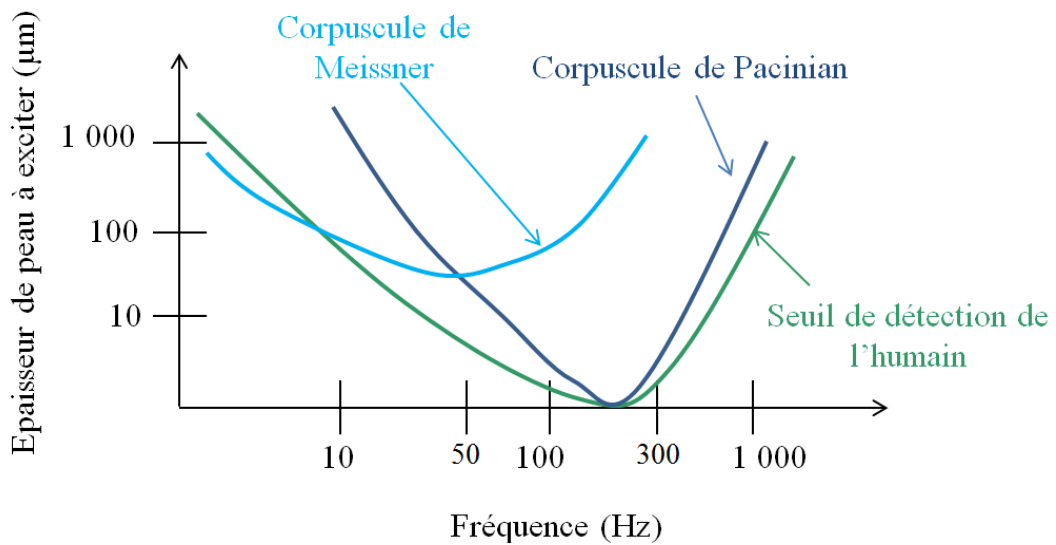


Figure 56 : Illustration du seuil de détection du corps humain (extrait de [169])

## Chapitre 4. Application au contrôle de forme

En parallèle du travail sur la mise sous forme d'une encre électroactive, les paramètres d'impression ont été optimisés comme l'illustre la Figure 58, afin d'aboutir à un dépôt homogène sur différents types de substrat envisagés pour l'application (PET ou polyimide « KAPTON »). Dans le cas de la Figure 58 il s'agit de mesures sur du polyimide, les paramètres mesurés indiquent un dépôt homogène pour une vitesse d'impression de 30 mm/s.

La Figure 59 donne l'évolution de l'accélération mesurée au centre d'une surface active sur la plage de fréquence entre 10Hz et 300Hz correspondant aux fréquences typiques requises pour les dispositifs haptiques et pour trois valeurs de champs électriques. Pour la gamme de fréquences de 30Hz à 300Hz, les valeurs mesurées sont supérieures au seuil minimum humain de détection. Par contre pour les fréquences dans la gamme 10Hz à 30Hz, les réponses électromécaniques sont en limite de détection, il faudrait donc appliquer plus de champ électrique pour dépasser le seuil. De manière globale, les résultats prouvent que le matériau est à même de correspondre aux spécifications de l'application haptique en termes de réponses.

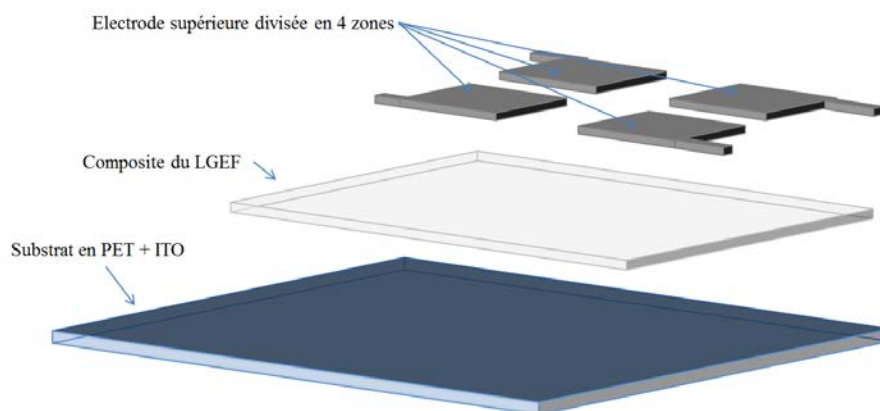


Figure 57 : Illustration schématique de l'architecture caractérisée pour l'haptique.

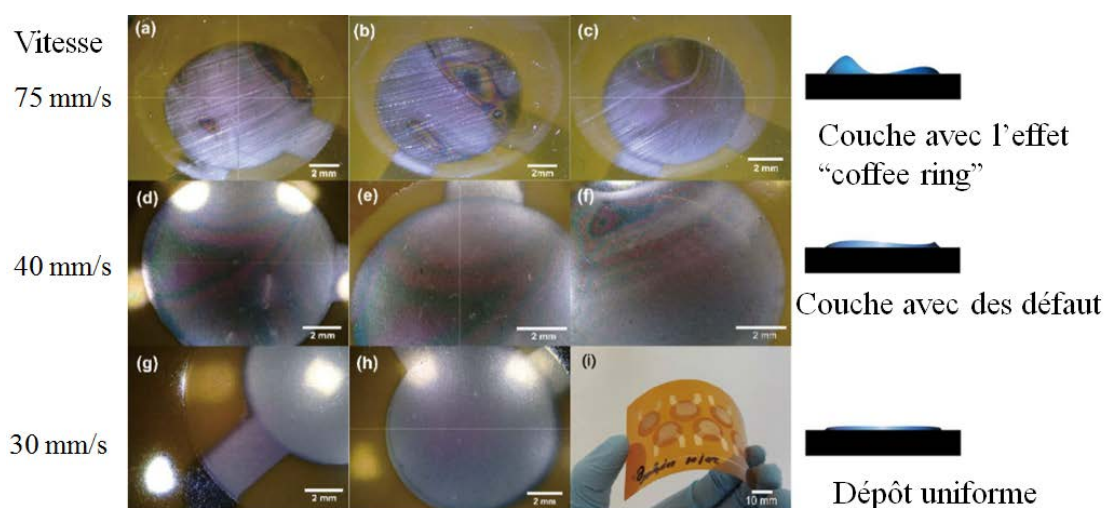


Figure 58 : Analyse visuelle des échantillons imprimés sur un substrat de type Kapton, avec un motif imprimé avec une résolution de 2000 x 2000 ppp. (a)-(c) vitesse de dépôt 75 mm/s couche présentant des défauts importants et des effets de type coffee ring ; (d)-(f) vitesse d'impression 40 mm/s, couche non homogène dans l'épaisseur traduite par la présence d'interactions colorées ; (g)-(h) vitesse de 30 mm/s permet l'impression d'une couche homogène ; (i) exemple de structure imprimée pour la caractérisation diélectrique des matériaux imprimés.

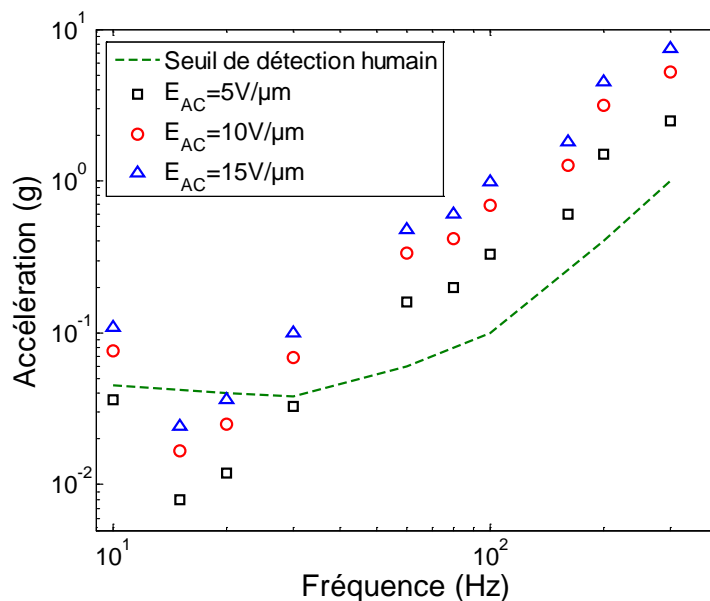


Figure 59 : Mesure pratique de l'accélération en fonction de la fréquence et pour trois valeurs de champ électrique et un champ statique de  $E_{DC}=15V/\mu m$ .

L'autre aspect concerne la possibilité d'utiliser la structure comme capteur, par exemple pour connaître l'effort exercé par l'utilisateur pour augmenter l'immersion de celui-ci pour certaines applications. Les expériences effectuées sur le fil-guide ont démontré la possibilité d'obtenir cette fonction avec des coefficients, en termes de sensibilité, supérieurs à ceux des céramiques de type PZT. Afin d'éviter la redondance d'informations, les résultats obtenus sur la structure ne sont pas présentés, mais ont été effectués.

Dans l'objectif de comparer cette technologie par rapport aux solutions qui sont actuellement utilisées de façon classique à savoir (Figure 60) :

- Un moteur à courant continu avec une masse excentrée ou Eccentric Rotating Mass (ERM).
- Un actionneur résonant électromagnétique ou Linear Resonant Actuator (LRA).
- Actionneur piézoélectrique électrique de type céramique.

Le Tableau 12 présente une comparaison entre ces technologies actuelles et l'approche proposée dans le cadre des activités de recherche. La réponse haptique est le principal avantage des polymères électrostrictifs, mais aussi la possibilité d'utiliser le même matériau pour réaliser les fonctions de capteur et d'actionneur. Comme il s'agit d'un nouveau matériau uniquement synthétisé sur commande en petites quantités, le coût est actuellement élevé, mais il peut être diminué pour de grandes quantités. En outre, ce matériau peut être facilement imprimé, ce qui est très intéressant avec le développement de l'électronique organique et peut aussi être aisément empilé en plusieurs couches. En comparaison avec les matériaux piézoélectriques, les polymères électrostrictifs ont une bande de fréquence correspondant aux contraintes applicatives de l'haptique car ils peuvent générer de grands déplacements pour de faibles fréquences. Leur nature flexible, qui commence à être un nouveau vecteur d'intégration avec le développement de l'électronique flexible, est un autre avantage, sachant qu'ils sont généralement, comme dans le cas du P(VDF-TrFE-CFE/CTFE), transparents, ce qui est crucial pour une application par-dessus un écran.

Au final les actions de recherche actuelles sur cette thématique au laboratoire se focalisent sur deux aspects à savoir :

- L'impression du matériau développé sous forme de multicouches par différentes méthodes jet d'encre ou sérigraphie.
- L'établissement des règles de dimensionnement pour optimiser le rendu haptique.

Des travaux autour de cet axe ont été publiés dans la revue Sensors and Actuators B, sous le titre « Haptic feedback using an all-organic electroactive polymer composite », Volume 220, 1 December 2015, Pages 1120–1130. Le papier est disponible en Annexe 4 page 113.

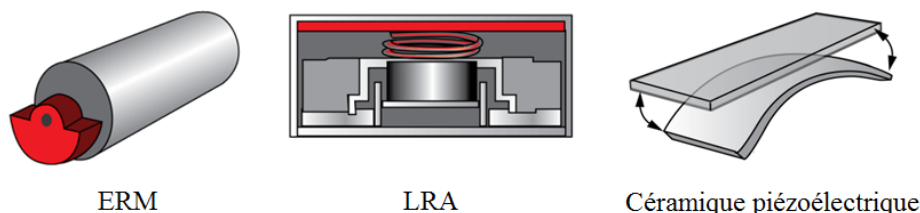


Figure 60 : Illustration schématique des solutions d'actionneurs utilisés pour la réalisation de fonction haptique dans les dispositifs électroniques grand public

Critère	ERM	LRA	Piézoélectrique	Électrostrictive
Réponse haptique	Faible	Moyen	Bon	Bon
Accélération	~1g	~1-2g	~1-5g	~1-3g
Bruit audible	Très bruyant	Bruit modéré	Silencieux	Silencieux
Temps de réponse	~50ms	~30ms	0.5ms	~10ms
Consommation	Importante	Moyenne	Faible	Faible
Fonction en capteur	Non	Non	Oui	Oui
Flexible	Non	Non	Oui	Oui
Cout économique	Faible	Modéré	Important	Modéré

Tableau 12 : Comparaison entre les différentes technologies pour le rendu haptique dans l'électronique grand public

## IV. Synthèse des actions effectuées autour des polymères électrostrictifs

Dans ce chapitre, les propriétés en transducteur (actionneur et capteur) des films de polymères électroactifs de type électrostrictif ont été analysées selon deux points de vue :

- Matériau, en optimisant les propriétés de conversion pour de faibles champs électriques, permettant de lever le verrou technologique majeur à leur mise en application.
- Système, en travaillant sur l'intégration pour la réalisation de fonctions mécatroniques correspondant aux besoins exprimés par différents acteurs du monde socioéconomique.

Les résultats démontrent bien le potentiel de cette technologie pour répondre à une demande de matériaux capables d'avoir des déformations de l'ordre de quelques pourcents et de pouvoir être mis en œuvre par différents procédés (impression, extrusion). D'un point de vue général, sur le marché émergent des systèmes réalisés à l'aide de matériaux intelligents, cette nouvelle classe de polymères électroactifs complète de façon astucieuse celle des matériaux ferroélectriques qui présentent quelques inconvénients bloquant leur utilisation comme : le



## Chapitre 4. Application au contrôle de forme

risque de dépolarisation, leur grande fragilité et un processus de réalisation complexe et onéreux. Les polymères électrostrictifs de type terpolymère amènent une rupture technologique importante dans la vision des nouveaux systèmes intelligents qui va de pair avec le développement de la fabrication additive et de l'électronique imprimée.

## **Conclusion et synthèse sur les actions de recherche autour de la fabrication additive de matériaux électroactifs pour la mécatronique**

Les deux chapitres de cette partie présentent la thématique de la fabrication additive de matériaux électroactifs pour la réalisation de fonctions mécatroniques. Ils ont permis de réaliser une synthèse des actions de recherche effectuées, en présentant les verrous scientifiques et techniques inhérents et les solutions mises en œuvre pour les résoudre.

Si les techniques de fabrication additive (impression par jet d'encre, extrusion de fibre pour l'impression 3D, etc.) sont d'ores et déjà exploitées sur des machines industrielles, de nombreux challenges subsistent néanmoins pour leur utilisation à grande échelle et le développement de fonctions innovantes. À ce titre, l'augmentation de la résolution des structures imprimées est bien évidemment jugée comme prioritaire par les acteurs du domaine, mais le principal challenge pour constituer une alternative sérieuse aux procédés actuels de sérigraphie, de lithographie ou d'usinage conventionnel réside surtout dans la réduction significative des coûts de réalisation des composants électroactifs imprimés. Cette réduction des coûts passe à la fois par le choix des matières premières, que ce soit au niveau des encres métalliques ou des matériaux de conversion et par une optimisation des procédés utilisés.

De fait, dans les années à venir, la fabrication additive de matériaux électroactifs sera de plus en plus employée pour la réalisation de fonctions mécatroniques hybrides qui combineront à la fois la structure mécanique, des circuits intégrés en silicium, des pistes conductrices et des matériaux couplés imprimés, intégrant ainsi des fonctionnalités telles que des capteurs, des affichages ou des sources d'énergie. Les avancées en plastronique, notamment vers les approches élaborées de System-on-Chip ou de System-in-Package, conduiront ainsi inévitablement à l'utilisation des technologies de fabrications additives sur des structures tridimensionnelles ou pour la fabrication de composants multicouches.

Concernant les perspectives, étant une famille de procédés relativement jeunes, il est certain que le manque de visibilité de la fabrication additive parmi l'ensemble des procédés explique – en partie – sa faible utilisation, mais aussi l'existence d'un certain nombre de verrous scientifiques et techniques. Seule la levée de ces verrous permettra, réellement, une exploitation généralisée de la fabrication additive. L'un des objectifs envisagés dans la suite des travaux de recherche est de montrer que la fabrication additive apporte d'autres libertés au niveau de la conception et donc aussi de l'innovation. En effet, elle permet d'apporter une complexité d'échelle au sein de la pièce en disposant des matériaux fonctionnels (électroactifs) et de structure pouvant alors être directement fabriquée. Ces atouts permettront le regroupement et l'intégration, au sein d'une même pièce, de plusieurs fonctionnalités initialement dépendantes d'un assemblage. Il est alors possible d'imaginer l'obtention d'une structure monobloc multifonctionnelle (pièce de structure, et fonction mécatronique).

Mais pour arriver au développement de ces dispositifs, certains points restent à développer autour des matériaux électroactifs et de leurs règles d'intégrations, par exemple pour les rendre compatibles avec les processus de fabrication additive. Mais aussi par une recherche en amont plus fondamentale, pour comprendre les interactions mises en jeu dans le couplage multiphysique. Sans oublier leur mise en application pour démontrer le potentiel aux acteurs du marché. Cette orientation vise à être l'interface entre les deux thématiques (matériaux et systèmes) afin de prendre en compte les contraintes et attentes inhérentes à chacune d'elles.

## Références Bibliographiques

- [1] “Report of Large Motor Reliability Survey of Industrial and Commercial Installations, Part I,” *IEEE Trans. Ind. Appl.*, vol. IA-21, no. 4, pp. 853–864, Jul. 1985.
- [2] A. Sydney Gladman, E. A. Matsumoto, R. G. Nuzzo, L. Mahadevan, and J. A. Lewis, “Biomimetic 4D printing,” *Nat. Mater.*, vol. 15, no. 4, pp. 413–418, Apr. 2016.
- [3] S. R. Forrest, “The path to ubiquitous and low-cost organic electronic appliances on plastic,” *Nature*, vol. 428, no. 6986, pp. 911–918, Apr. 2004.
- [4] P. Mohacsi and P. Leprince, “The CARMAT total artificial heart,” *Eur. J. Cardiothorac. Surg.*, vol. 46, no. 6, pp. 933–934, Dec. 2014.
- [5] “Hot melt ink technology for crystalline silicon solar cells - IEEE Xplore Document.” [Online]. Available: <http://ieeexplore.ieee.org/document/1190531/>. [Accessed: 28-Jan-2017].
- [6] B. Kahn, “The M3D aerosol jet system, an alternative to inkjet printing for printed electronics,” *Org. Print. Electron.*, pp. 14–17, 2007.
- [7] J.-H. Jun *et al.*, “Laser-induced thermoelastic effects can evoke tactile sensations,” *Sci. Rep.*, vol. 5, p. 11016, Jun. 2015.
- [8] J. R. Lawrence and D. Waugh, *Laser Surface Engineering: Processes and Applications*. Elsevier, 2014.
- [9] “Direct writing technology—Advances and developments.” [Online]. Available: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0007850608001935>. [Accessed: 28-Jan-2017].
- [10] B.-J. de Gans, P. C. Duineveld, and U. S. Schubert, “Inkjet Printing of Polymers: State of the Art and Future Developments,” *Adv. Mater.*, vol. 16, no. 3, pp. 203–213, Feb. 2004.
- [11] “Inkjet Printing of Functional and Structural Materials: Fluid Property Requirements, Feature Stability, and Resolution,” *Annu. Rev. Mater. Res.*, vol. 40, no. 1, pp. 395–414, 2010.
- [12] S. Poirier, *Étude et mise en œuvre de liquides fonctionnels par procédé jet d’encre pour la réalisation de microdispositifs optiques*. Toulouse, INPT, 2009.
- [13] A. A. Barlian, W.-T. Park, J. R. Mallon, A. J. Rastegar, and B. L. Pruitt, “Review: Semiconductor Piezoresistance for Microsystems,” *Proc. IEEE Inst. Electr. Electron. Eng.*, vol. 97, no. 3, pp. 513–552, 2009.
- [14] B. Dieny, S. Sankar, M. R. McCartney, D. J. Smith, P. Bayle-Guillemaud, and A. E. Berkowitz, “Spin-dependent tunneling in discontinuous metal/insulator multilayers,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 185, no. 3, pp. 283–292, Jun. 1998.
- [15] V. Aubry-Fortuna, K. Huet, T. T. Trang, A. Bournel, J. Saint-Martin, and P. Dollfus, “Strain Effects in p-type Devices using Full-Band Monte Carlo Simulations,” in *Applications of Monte Carlo Methods in Biology, Medicine and Other Fields of Science*, C. J. Mode, Ed. InTech, 2011.
- [16] Y. Kanda and Y. Kanda, “A graphical representation of the piezoresistance coefficients in silicon,” *IEEE Trans. Electron Devices*, vol. 29, no. 1, pp. 64–70, Jan. 1982.
- [17] “Semiconductor Strain Gages at Micron Instruments.” [Online]. Available: <http://www.microninstruments.com/c-2-standard-gages.aspx>. [Accessed: 28-Jan-2017].
- [18] “Review: Semiconductor Piezoresistance for Microsystems.” [Online]. Available: <https://www.ncbi.nlm.nih.gov/pmc/articles/PMC2829857/>. [Accessed: 28-Jan-2017].
- [19] M. He *et al.*, “Drop-on-Demand Inkjet Printhead Performance Enhancement by Dynamic Lumped Element Modeling for Printable Electronics Fabrication, Drop-on-Demand Inkjet Printhead Performance Enhancement by Dynamic Lumped Element Modeling for Printable Electronics Fabrication,” *Math. Probl. Eng. Math. Probl. Eng.*, vol. 2014, 2014, p. e270679, Dec. 2014.

## Références bibliographiques

- [20] A.-S. Yang, C.-H. Cheng, and C.-T. Lin, "Investigation of Droplet-Ejection Characteristics for a Piezoelectric Inkjet Printhead," *Proc. Inst. Mech. Eng. Part C J. Mech. Eng. Sci.*, vol. 220, no. 4, pp. 435–445, Apr. 2006.
- [21] "Optimisation des paramètres d'impression pour l'électronique imprimée sur supports souples." [Online]. Available: <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00176225/en/>. [Accessed: 22-Apr-2016].
- [22] T. H. J. van Osch, J. Perelaer, A. W. M. de Laat, and U. S. Schubert, "Inkjet Printing of Narrow Conductive Tracks on Untreated Polymeric Substrates," *Adv. Mater.*, vol. 20, no. 2, pp. 343–345, Jan. 2008.
- [23] H. Park, W. W. Carr, J. Zhu, and J. F. Morris, "Single drop impaction on a solid surface," *AIChE J.*, vol. 49, no. 10, pp. 2461–2471, Oct. 2003.
- [24] K. Black, J. Singh, D. Mehta, S. Sung, C. J. Sutcliffe, and P. R. Chalker, "Silver Ink Formulations for Sinter-free Printing of Conductive Films," *Sci. Rep.*, vol. 6, p. 20814, Feb. 2016.
- [25] "Printing Inks | Cabot Corporation." [Online]. Available: <http://www.cabotcorp.com/solutions/applications/printing-and-packaging/printing-inks>. [Accessed: 28-Jan-2017].
- [26] R. N. Katz, L. A. Bracamonte, J. C. Withers, and S. Chaudhury, "Hybrid Ceramic Matrix/Metal Matrix Composite Gun Barrels," *Mater. Manuf. Process.*, vol. 21, no. 6, pp. 579–583, Sep. 2006.
- [27] "'Army Researchers Working to Lower Weight of Emerging Infantry Weapons' by Pappalardo, Joe - National Defense, Vol. 89, Issue 611, October 2004 | Online Research Library: Questia." [Online]. Available: <https://www.questia.com/magazine/1G1-123080178/army-researchers-working-to-lower-weight-of-emerging>. [Accessed: 29-Jan-2017].
- [28] "Proof Research Aerospace and Defense Carbon Fiber Barrel Manufacturer." [Online]. Available: <https://proofresearch.com/>. [Accessed: 29-Jan-2017].
- [29] G. Klingenberg, "Gun Muzzle Blast and Flash," *Propellants Explos. Pyrotech.*, vol. 14, no. 2, pp. 57–68, Apr. 1989.
- [30] Y. Bar-Cohen, *Biomimetics: biologically inspired technologies*. CRC Press, 2006.
- [31] Z.-Y. Cheng, T.-B. Xu, V. Bharti, S. Wang, and Q. M. Zhang, "Transverse strain responses in the electrostrictive poly(vinylidene fluoride–trifluoroethylene) copolymer," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 74, no. 13, pp. 1901–1903, Mar. 1999.
- [32] I.-W. P. Chen *et al.*, "Improved performance of carbon nanotube buckypaper and ionic-liquid-in-Nafion actuators for rapid response and high durability in the open air," *Sens. Actuators B Chem.*, vol. 171–172, pp. 515–521, Aug. 2012.
- [33] P.-J. Cottinet *et al.*, "Nonlinear strain-electric field relationship of carbon nanotube buckypaper/Nafion actuators," *Sens. Actuators Phys.*, vol. In Press, Corrected Proof.
- [34] Y. Bar-Cohen and C. L. Breazeal, *Biologically inspired intelligent robots*. SPIE Press, 2003.
- [35] P.-J. Cottinet, *Actionnement et récupération d'énergie à l'aide de polymères électro-actifs*. 2010.
- [36] J.-F. Capsal, M. Lallart, J. Galineau, P.-J. Cottinet, G. Sebald, and D. Guyomar, "Evaluation of macroscopic polarization and actuation abilities of electrostrictive dipolar polymers using the microscopic Debye/Langevin formalism," *J. Phys. -Appl. Phys.*, vol. 45, no. 20, May 2012.
- [37] J.-F. Capsal, "Élaboration et analyse des propriétés physiques de nanocomposites hybrides ferroélectriques," phd, Université de Toulouse, Université Toulouse III - Paul Sabatier, 2008.

- [38] G. Gallone, F. Carpi, D. De Rossi, G. Levita, and A. Marchetti, “Dielectric constant enhancement in a silicone elastomer filled with lead magnesium niobate–lead titanate,” *Mater. Sci. Eng. C*, vol. 27, no. 1, pp. 110–116, Jan. 2007.
- [39] J. P. Szabo *et al.*, “Elastomeric composites with high dielectric constant for use in Maxwell stress actuators,” pp. 180–190, Jul. 2003.
- [40] S. R. Broadbent and J. M. Hammersley, “Percolation processes,” *Math. Proc. Camb. Philos. Soc.*, vol. 53, no. 03, p. 629, Oct. 2008.
- [41] F. Carmona, F. Barreau, P. Delhaes, and R. Canet, “An experimental model for studying the effect of anisotropy on percolative conduction,” *J. Phys. Lett.*, vol. 41, no. 22, pp. 531–533, 1980.
- [42] S. Butkewitsch and J. Scheinbeim, “Dielectric properties of a hydrated sulfonated poly(styrene–ethylene/butylenes–styrene) triblock copolymer,” *Appl. Surf. Sci.*, vol. 252, no. 23, pp. 8277–8286, Sep. 2006.
- [43] W. Lehmann *et al.*, “Giant lateral electrostriction in ferroelectric liquid-crystalline elastomers,” *Nature*, vol. 410, no. 6827, pp. 447–450, Mar. 2001.
- [44] B.-S. Chiou, A. R. Lankford, and P. E. Schoen, “Modifying tubule distribution in tubule-filled composites by using polyurethane–polydimethylsiloxane interpenetrating polymer networks,” *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 89, no. 4, pp. 1032–1038, 2003.
- [45] J.-F. Capsal, J. Galineau, M. Lallart, P.-J. Cottinet, and D. Guyomar, “Plasticized relaxor ferroelectric terpolymer: Toward giant electrostriction, high mechanical energy and low electric field actuators,” *Sens. Actuators Phys.*, vol. 207, pp. 25–31, Mar. 2014.
- [46] J.-F. Capsal, J. Galineau, M.-Q. Le, F. Domingues Dos Santos, and P.-J. Cottinet, “Enhanced electrostriction based on plasticized relaxor ferroelectric P(VDF-TrFE-CFE/CTFE) blends,” *J. Polym. Sci. Part B Polym. Phys.*, vol. 53, no. 19, pp. 1368–1379, Oct. 2015.
- [47] X. Yin, Q. Liu, J. Galineau, P.-J. Cottinet, D. Guyomar, and J.-F. Capsal, “Enhanced electromechanical performances in plasticizer modified electrostrictive polymers,” *Eur. Polym. J.*, vol. 76, pp. 88–98, 2016.
- [48] N. Della Schiava, M.-Q. Le, J. Galineau, F. Domingues Dos Santos, P.-J. Cottinet, and J.-F. Capsal, “Influence of Plasticizers on the Electromechanical Behavior of a P (VDF-TrFE-CTFE) Terpolymer: Toward a High Performance of Electrostrictive Blends,” *J. Polym. Sci. Part B Polym. Phys.*, vol. 55, no. 4, pp. 355–369, 2017.
- [49] F. Domingues Dos Santos, T. Lannuzel, J.-F. Capsal, P.-J. Cottinet, J. Galineau, and M.-Q. Le, “Composition Based on Electroactive Terpolymer,” WO/2016/113492, 22-Jul-2016.
- [50] J. Ederle *et al.*, “Endovascular treatment with angioplasty or stenting versus endarterectomy in patients with carotid artery stenosis in the Carotid and Vertebral Artery Transluminal Angioplasty Study (CAVATAS): long-term follow-up of a randomised trial,” *Lancet Neurol.*, vol. 8, no. 10, pp. 898–907, Oct. 2009.
- [51] A. D. Losey *et al.*, “Magnetically assisted remote-controlled endovascular catheter for interventional MR imaging: in vitro navigation at 1.5 T versus X-ray fluoroscopy,” *Radiology*, vol. 271, no. 3, pp. 862–869, Jun. 2014.
- [52] M. Saeed, S. W. Hetts, J. English, and M. Wilson, “MR fluoroscopy in vascular and cardiac interventions (review),” *Int. J. Cardiovasc. Imaging*, vol. 28, no. 1, pp. 117–137, Jan. 2012.
- [53] S. W. Hetts *et al.*, “Endovascular catheter for magnetic navigation under MR imaging guidance: evaluation of safety in vivo at 1.5T,” *AJNR Am. J. Neuroradiol.*, vol. 34, no. 11, pp. 2083–2091, Dec. 2013.
- [54] Y. Fu, H. Liu, W. Huang, S. Wang, and Z. Liang, “Steerable catheters in minimally invasive vascular surgery,” *Int. J. Med. Robot. Comput. Assist. Surg. MRCAS*, vol. 5, no. 4, pp. 381–391, Dec. 2009.

## Références bibliographiques

- [55] T. p. I. Roberts, W. v. Hassenzahl, S. w. Hetts, and R. I. Arenson, "Remote control of catheter tip deflection: An opportunity for interventional MRI," *Magn. Reson. Med.*, vol. 48, no. 6, pp. 1091–1095, Dec. 2002.
- [56] F. Settecase *et al.*, "Magnetically-assisted remote control (MARC) steering of endovascular catheters for interventional MRI: a model for deflection and design implications," *Med. Phys.*, vol. 34, no. 8, pp. 3135–3142, Aug. 2007.
- [57] M. A. Zenati and M. Mahvash, "4 - Robotic systems for cardiovascular interventions," in *Medical Robotics*, P. Gomes, Ed. Woodhead Publishing, 2012, pp. 78–89.
- [58] C. Liu, H. Qin, and P. T. Mather, "Review of progress in shape-memory polymers," *J. Mater. Chem.*, vol. 17, no. 16, pp. 1543–1558, Apr. 2007.
- [59] "Inductively Heated Shape Memory Polymer for the Magnetic Actuation of Medical Devices - IEEE Xplore Document." [Online]. Available: <http://ieeexplore.ieee.org/document/1703759/>. [Accessed: 29-Jan-2017].
- [60] I. A. Rousseau, "Challenges of shape memory polymers: A review of the progress toward overcoming SMP's limitations," *Polym. Eng. Sci.*, vol. 48, no. 11, pp. 2075–2089, Nov. 2008.
- [61] R. R. Miles, D. L. Schumann, M. A. Pearson, and D. Hilken, "Steerable catheter with distending lumen-actuated curling catheter tip," US20100010437 A1, 14-Jan-2010.
- [62] I. M. Nordon, R. J. Hinchliffe, P. J. Holt, I. M. Loftus, and M. M. Thompson, "The requirement for smart catheters for advanced endovascular applications," *Proc. Inst. Mech. Eng. [H]*, vol. 224, no. 6, pp. 743–749, 2010.
- [63] G. M. Hutchins, M. M. Miner, and J. K. Boitnott, "Vessel caliber and branch-angle of human coronary artery branch-points," *Circ. Res.*, vol. 38, no. 6, pp. 572–576, Jun. 1976.
- [64] P. Breedveld, J. S. Scheltes, E. M. Blom, and J. E. I. Verheij, "A new, easily miniaturized steerable endoscope. Squid tentacles provide inspiration for the Endo-Periscope," *IEEE Eng. Med. Biol. Mag. Q. Mag. Eng. Med. Biol. Soc.*, vol. 24, no. 6, pp. 40–47, Dec. 2005.
- [65] T. Brown, K. Brown, and V. Barnot, "Exploration of Reaction Time: Ideas for an Inquiry Investigation in Physics Education," *Sci. Act. Classr. Proj. Curric. Ideas*, vol. 49, no. 3, pp. 82–87, Jun. 2012.
- [66] K. M. H. Yamashita, "Two-DOFs Bending Forceps Manipulator of 3.5-mm diameter for Intrauterine Fetus Surgery: Feasibility Evaluation," 2006.
- [67] O. Korner and R. Männer, "Implementation of a haptic interface for a virtual reality simulator for flexible endoscopy," in *11th Symposium on Haptic Interfaces for Virtual Environment and Teleoperator Systems, 2003. HAPTICS 2003. Proceedings, 2003*, pp. 278–284.
- [68] "Actuating abilities of electroactive carbon nanopowder/polyurethane composite films." [Online]. Available: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0924424708004238>. [Accessed: 29-Jan-2017].
- [69] S. Bauer, "Piezo-, pyro- and ferroelectrets: soft transducer materials for electromechanical energy conversion," *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, vol. 13, no. 5, pp. 953–962, 2006.
- [70] Y. Song, Z. Guan, Y. Nie, and X. Guan, "The analysis of the bending stiffness and intensity of cylindrical tubes," *Sci. China Ser. E Technol. Sci.*, vol. 50, no. 3, pp. 268–278, Jun. 2007.
- [71] "Fast low-voltage electroactive actuators using nanostructured polymer electrolytes : Nature Communications." [Online]. Available: <http://www.nature.com/articles/ncomms3208>. [Accessed: 29-Jan-2017].
- [72] M. Q. Le, M. T. Pham, M. Tavakoli, R. Moreau, J. P. Simon, and T. Redarce, "Bilateral Control of Nonlinear Pneumatic Teleoperation System With Solenoid Valves," *IEEE Trans. Control Syst. Technol.*, no. 99, pp. 1–8, 2012.

## Références bibliographiques

- [73] E. R. Stephenson, S. Sankholkar, C. T. Ducko, and R. J. Damiano, “Robotically assisted microsurgery for endoscopic coronary artery bypass grafting,” *Ann. Thorac. Surg.*, vol. 66, no. 3, pp. 1064–1067, Sep. 1998.
- [74] H. Shennib, A. Bastawisy, M. J. Mack, and F. H. Moll, “Computer-assisted telemanipulation: an enabling technology for endoscopic coronary artery bypass,” *Ann. Thorac. Surg.*, vol. 66, no. 3, pp. 1060–1063, Sep. 1998.
- [75] L. A. Sanchez *et al.*, “A Case Study of Safety in the Design of Surgical Robots: The ARAKNES Platform,” in *Intelligent Autonomous Systems 12*, S. Lee, H. Cho, K.-J. Yoon, and J. Lee, Eds. Springer Berlin Heidelberg, 2013, pp. 121–130.
- [76] “Smartphone chemistry: the secret materials that make your handset tick,” *Phone Arena*. [Online]. Available: [http://www.phonearena.com/news/Smartphone-chemistry-the-secret-materials-that-make-your-handset-tick\\_id60746](http://www.phonearena.com/news/Smartphone-chemistry-the-secret-materials-that-make-your-handset-tick_id60746). [Accessed: 29-Jan-2017].
- [77] “A Discussion on Material Choices in Mobile.” [Online]. Available: <http://www.anandtech.com/show/7984/discussion-on-material-choices-in-mobile>. [Accessed: 29-Jan-2017].
- [78] “Smartphone Electronics Design Intelligence Service - IHS Technology.” [Online]. Available: <https://technology.ihs.com/Services/509147/smartphone-electronics-design-intelligence-service>. [Accessed: 29-Jan-2017].
- [79] B. M. Schena, “Haptic stylus utilizing an electroactive polymer,” US7679611 B2, 16-Mar-2010.
- [80] “Systems and methods for piezo-based haptic feedback.”
- [81] “Écran souple – flexible Technologie OLED - explications.” [Online]. Available: <http://www.ecranflexible.com/definition-technologie-oled>. [Accessed: 29-Jan-2017].
- [82] K. A. Kaczmarek, J. G. Webster, P. Bach-y-Rita, and W. J. Tompkins, “Electrotactile and vibrotactile displays for sensory substitution systems,” *IEEE Trans. Biomed. Eng.*, vol. 38, no. 1, pp. 1–16, Jan. 1991.
- [83] “Principles of Neural Science, Fifth Edition (Principles of Neural Science (Kandel)): 9780071390118: Medicine & Health Science Books @ Amazon.com.” [Online]. Available: <https://www.amazon.com/Principles-Neural-Science-Fifth-Kandel/dp/0071390111>. [Accessed: 29-Jan-2017].
- [84] T. P. Way and K. E. Barner, “Automatic visual to tactile translation--Part I: Human factors, access methods, and image manipulation,” *IEEE Trans. Rehabil. Eng. Publ. IEEE Eng. Med. Biol. Soc.*, vol. 5, no. 1, pp. 81–94, Mar. 1997.
- [85] “Haptics: Generating and Perceiving Tangible Sensations, | Astrid M. L. Kappers | Springer.” [Online]. Available: <http://www.springer.com/gp/book/9783642140631>. [Accessed: 29-Jan-2017].
- [86] “Haptic display of realistic tool contact via dynamically compensated control of a dedicated actuator - IEEE Xplore Document.” [Online]. Available: <http://ieeexplore.ieee.org/abstract/document/5354607/>. [Accessed: 29-Jan-2017].

Annexe 1. Development of a smart guide wire using an electrostrictive polymer: option for steerable orientation and force feedback

## Annexe 1

Received: 04 August 2015

Accepted: 20 November 2015

Published: 17 December 2015

# Development of a smart guide wire using an electrostrictive polymer: option for steerable orientation and force feedback

F. Ganet<sup>4,2</sup>, M. Q. Le<sup>1</sup>, J. F. Capsal<sup>1</sup>, P. Lermusiaux<sup>3,4</sup>, L. Petit<sup>1</sup>, A. Millon<sup>3,4</sup> & P. J. Cottinet<sup>1</sup>

**The development of steerable guide wire or catheter designs has been strongly limited by the lack of enabling actuator technologies. This paper presents the properties of an electrostrictive actuator technology for steerable actuation. By carefully tailoring material properties and the actuator design, which can be integrated in devices, this technology should realistically make it possible to obtain a steerable guide wire design with considerable latitude. Electromechanical characteristics are described, and their impact on a steerable design is discussed.**

Image-guided endovascular interventions have gained in popularity in clinical practice as studies have consistently shown that these minimally invasive interventions are of equivalent or greater efficiency and offer lower mortality rates when compared to traditional open surgical techniques<sup>1–3</sup>. A majority of interventions involve the use of flexible guide wires and catheters that are guided by the surgeon into the appropriate vessels under real-time X-ray imaging<sup>4–6</sup>. Maneuverability of a guide wire for intravascular navigation is the key to reaching the targeted area; the ability to steer a guide wire thus affects to a great extent the duration and success of the procedure. The difficulty of steering and controlling the guide wire increases the risks for complications, including vascular dissection, perforation, and thrombosis<sup>7</sup>. Some of these risks can be offset by systemic heparinization, which is routinely used in clinical endovascular procedures performed today, though this may itself increase the risk of procedural hemorrhage.

For many procedures the guide wire is guided from a safe entrance vessel (e.g., the common femoral artery) to a target that is relatively far away in the body via branched or tortuous vessels<sup>7</sup>. With a traditional guide wire, its tip is steered by manually rotating the wire about its axis and pushing it forward into the desired vessel. After the guide wire has been navigated through several vascular turns, the torque at the proximal end is hindered<sup>7,8</sup>.

---

<sup>4</sup> Université de Lyon - INSA de Lyon – LGEF, 8 rue de la Physique, 69 621 Villeurbanne – France. <sup>2</sup>Pulsalys, 47 Boulevard du 11 Novembre 1918, CS 90170, 69625 Villeurbanne – France. <sup>3</sup>Groupement Hospitalier Edouard Herriot - Chirurgie Vasculaire – Pav. M – France. <sup>4</sup>Université de Lyon – Université Claude Bernard Lyon 1, 8 Avenue Rockefeller Lyon – France. Correspondence and requests for materials should be addressed to P.J.C. (email: pierre-jean.cottinet@insa-lyon.fr)



## Annexe 1. Development of a smart guide wire using an electrostrictive polymer: option for steerable orientation and force feedback

Moreover, it is difficult to manipulate a guide wire tip through sharp turns, for instance when entering a recurrent branch vessel whose origin is directed at an orientation greater than 90 degrees to the parent vessel<sup>9</sup>.

With these evident challenges, various guidance mechanisms for guide wire and catheter navigation have been designed and are in clinical use. Manual and pullwire guidance were the first to be used. Guide wires for manual direction are flexible, small-diameter wires placed through the patent lumens of catheters and are manually navigated into branch vessels before the functional catheter tip to serve as a stable track for the catheter to follow<sup>10</sup>. Manually controlled, shapeable, metallic guide wires of variable stiffness placed through variably stiff plastic catheters have been the mainstay of endovascular catheter guidance under X-ray fluoroscopic imaging for decades, and the number of guide wires and catheters available for specific applications throughout the body is huge<sup>7,10</sup>.

Smart material actuators provide an alternative to the classical mechanisms of guidance. Shape memory polymers (SMPs) have during the past 10 years been investigated for this purpose. Direct heat is the most commonly used trigger for an SMP to resume its original shape, although ultraviolet and infrared radiation, electrical current, pH changes, and magnetic fields have also been used<sup>11</sup>. In a study by Buckley *et al.*, inductive heating was used to induce a change in SMP shape by loading ferromagnetic particles into the polymer and exposing it to an alternating magnetic field, as could be used in conjunction with MRI<sup>12</sup>. Shape memory alloys (SMAs) are better studied than SMPs and have a shorter response time, but also a higher density, higher cost, and lower attainable strains<sup>13</sup>.

A shape memory alloy actuated catheter has been designed such that tubes of the SMA were distributed about the central axis of the catheter and could be heated to achieve bending due to shrinking of the SMA material<sup>7</sup>. When the heating stops, the material is naturally cooled and reforms its original shape<sup>7</sup>. Some major considerations when it comes to these methods include safe heating, efficient cooling, the use of many lead wires if the catheter assumes a multi-link style and a complex position control due to the hysteresis<sup>13</sup>. Hydraulic systems have also been investigated; for example, Miles patented a pneumatic or hydraulic catheter design in which tubing runs on either side of a catheter to an elastomeric cylinder<sup>14</sup>. However, the size of such devices makes them complex when it comes to their future utilization with Minimally Invasive Methods (MIS) of surgery.

Ionic Polymer Composite (IPMC) actuators have also been suggested for the design of active catheters or guide wires<sup>15-17</sup>. These actuators can generate large displacements at relatively low electrical field and moderate speed; however, their manufacturing process is often relatively expensive and additional energy is usually consumed in order to hold the actuator in position<sup>18</sup>. Electrostrictive polymer actuators, especially poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene-chlorotrifluoroethylene), namely terpolymer P(VDF-TrFE-CTFE), have shown attractive properties, which make them promising for extensive employment in active guide wire applications<sup>19</sup>. Some of their characteristics include a high energy density, ease of fabrication, and a relatively high strain<sup>20</sup>. However, in order to generate large deformations, electrostrictive polymers require very high electrical fields which block the development of steerable guide wire. Recently, a novel approach enabling to drastically improve the mechanical energy density of an electrostrictive polymer at low electrical fields has been investigated in<sup>21,22</sup>. This should make it possible to overcome this technological issue.

Recently, Capsal *et al.* proposed a simple and efficient solution to improve the electromechanical performances of the P(VDF-TrFE-CTFE) fluorinated terpolymer by reducing the required electric field<sup>22</sup>. The results demonstrated that a doping of the polymer with bis(2-ethylhexyl) phthalate (DEHP) plasticizer leads to improved molecular mobility and large Maxwell Wagner Sillars interfacial polarization effects, resulting in decrease Young modulus as well as increase dielectric permittivity of the material<sup>23</sup>. Hence, choosing an

## Annexe 1. Development of a smart guide wire using an electrostrictive polymer: option for steerable orientation and force feedback

adequate polymer matrix/plasticizer combination would enable the generation of large macroscopic dipoles combined with phase heterogeneities while reducing the Young's modulus of the polymer and increasing its dielectric permittivity.

As a result of the improved dielectric permittivity and the decreased Young modulus, a great enhancement of the low-frequency electrostrictive transverse strain (a twenty-eight-fold increase compared to the neat fluorinated-polymer at 10 V/ $\mu\text{m}$ ) was achieved. More importantly, compared to traditional composites, the developed plasticizer-polymers exhibited a decreased dielectric breakdown strength which is very important for practical actuator applications<sup>24,25</sup>. Consequently, the approach proposed herein, using a low-cost plasticizer bis(2-ethylhexyl) phthalate (DEHP), is promising for the development of new all-organic composites with excellent electrostrictive properties for steerable guide wires.

The present paper is divided into four parts. The first part is dedicated to the requirements and working principal of steerable guide wires. The second presents the material properties and the elaboration of devices used in this work. The third part concerns the medialization of the "smart" guide wire, using finite element modeling. Finally, the last part is dedicated to the analysis of the results.

### Requirements and Working Principals

The requirements for actuators to be used for "smart" guide wires can be very broad. However, the major performances to take into account when designing remotely steerable guide wires are the bending angles achievable by the guide wire, the time to obtain bending, the degree of rotation that can be achieved, and the capacity for miniaturization of the design<sup>26</sup>. The design of the guide wire shaft is a significant factor in determining the formation of curves, the angles of deflection and the levels of steerability. The choice of material determines the level of pushability, torque and flexibility and can be manipulated along the length of the guide wire through a variety of means to achieve the desired results. The objective of this study was to demonstrate the possibility of using an electroactive polymer for a steerable guide wire, and the overriding constraints were related to the following points<sup>26</sup>:

- Typical angle in human vessels. -
- Time response.

Hutchins *et al.* realized a study on the typical curvature and angle in human vessels<sup>27</sup>. Measurements were made of parent and branch vessel diameters and of the included angles of branch-points from postmortem human coronary arteries. The results demonstrate no relationship between the branch-angle and the vessel caliber. The included angle between branches varied from 32 degrees to 124 degrees regardless of the relative or absolute vessel calibers. It was hence necessary to develop "smart" wire guides able to generate these bending angle values. Moreover, it is interesting to note that most medical device suppliers propose catheters or guide wires that have been pre-bent between 30° and 120°<sup>28</sup>.

The time response of the actuator is directly linked to the physical property of the surgeon, since the "smart" guide wire is controlled by the surgeon as illustrated in Fig. 1. The typical reaction time of humans is about 180 ms<sup>29</sup>. Two effects contribute to this delay. The first is the time that elapses between photons arriving at the retina and the surgeons perceiving that the guide wire is not in a good position (in other words, the time delay in human vision). The second is the time that elapses between nerve impulses leaving the brain and movement in the muscles. There is another delay concerning the electronic control of the guide wire (10 ms), so typically it is necessary that the time response of the actuator does not exceed 100 ms. It is easy to understand this value since visualizing the guide wire tip while navigating vessels is important in order to avoid that the guide wire tip is undesirably forced through a vessel or tissue, causing

Annexe 1. Development of a smart guide wire using an electrostrictive polymer: option for steerable orientation and force feedback

perforation. Consequently, the time response of the actuator needs to be lower than the time response of the surgeon.

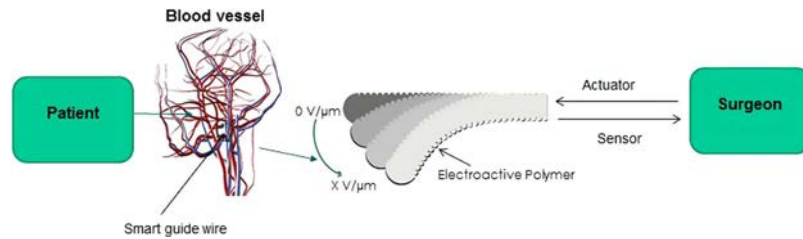


Figure 1: Schematic illustration of the “smart” guide wire

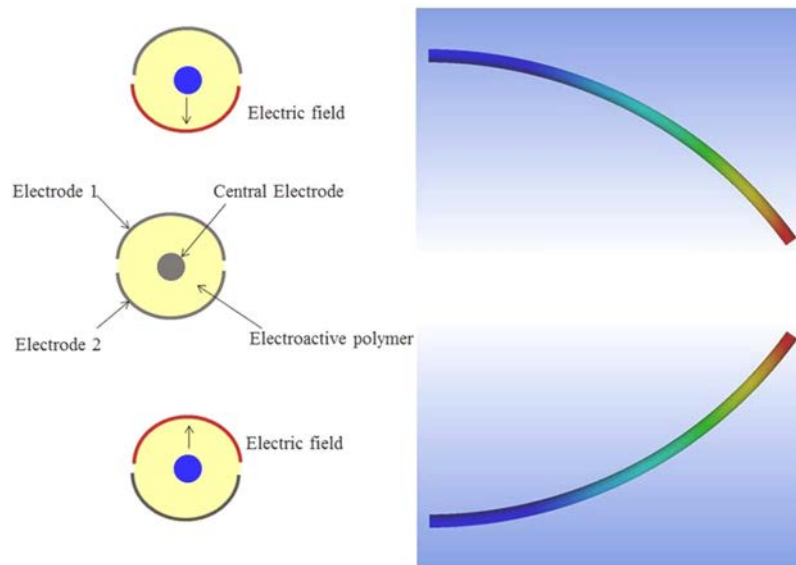


Figure 2: Principle of a “smart” guide wire freedom.

Although the traditional robotic actuators which are currently used in robotic surgical devices, such as electro-magnetic drives and hydraulic/pneumatic machines, have all been extensively investigated and have advanced performances which can, in some aspects, surpass that of humans, they simply do not have the capabilities and diversity required to meet the demand for new actuation systems in the proposed application. They are stiff, noncompliant and mechanically complex, which makes scalability and miniaturization difficult. To meet the technical requirements, electrostrictive polymers could be used for solid-state actuators. They can be realized by sandwiching a polymer dielectric layer between electrodes. When applying an electrical field to the electrodes, the dielectric material contracts due to electrostatic forces and expands in the lateral directions.

This work has focused on the modeling, design and realization of a cylindrical guide wire with two degrees of freedom (DOF). The 2-DOF functionality was achieved by uniquely sectored electrodes on the surface of a cylindrical electrostrictive polymer as illustrated in Fig. 2. Such a design allows the smart guide wire to bend in both directions. In fact, there exists a quadratic relationship between the strain and the electrical field; hence, the generated displacement is independent of the sign of the electrical field. If an electrical field is applied between the central electrode and electrode 1, the polymer is, due to the electrostatic force, compressed in the thickness direction, causing the structure to bend. If the electrical field is applied between the central electrode and electrode 2, the smart catheter bends in the opposite direction.

### Modeling of the Structure

In view of the architecture of the actuator, an analytical approach was deemed too complex for modeling the electromechanical behavior of the “smart” guide wire. Therefore, finite element modeling was chosen. The multi-physics finite element model was developed using Ansys. This tool is used to model the basic physics occurring within an electrostrictive polymer. The models are developed to track the geometric variation of the electroactive polymer in the presence of an electrical field. These variations of geometries are then correlated to a mechanical generated stress<sup>30</sup>.

To produce this model, the geometry of the “smart” guide wire was idealized as a perfect circle with constant electrode shapes. These geometries were created using the built-in Ansys tools. The use of these built-in geometry tools made it possible to input the dimensions as Ansys parameters and easily adjust them throughout the modeling process.

Name	Value	Description
D <sub>outer</sub>	1.4 mm	Outer diameters
D <sub>inner</sub>	1 mm	Inner diameters
L	60 mm	Extrusion Length
E	30 V/μm	Electric field

Table 1. Ansys parameters and variables.

Type	Y (MPa)	ε <sub>r</sub> at 0.1Hz and E = 20 V/μm	M <sub>31</sub> (m <sup>2</sup> /V <sup>2</sup> )
P(VDF-TrFE-CTFE)	100	30	3.10 <sup>-18</sup>
P(VDF-TrFE-CTFE) + 15wt%DEHP	30	400	38.10 <sup>-18</sup>

Table 2. Electromechanical properties of electroactive polymers at room temperature.

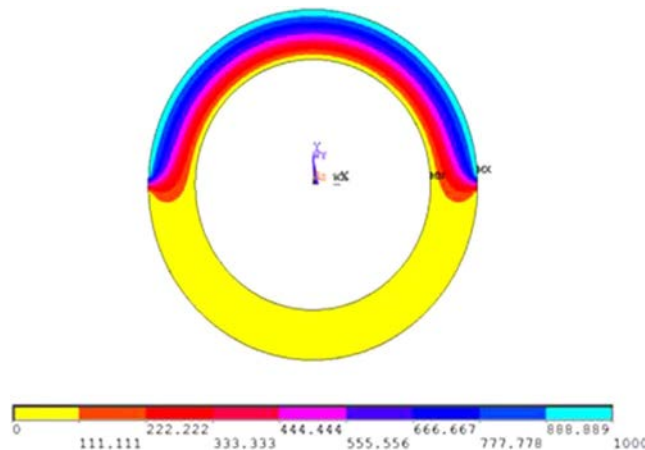


Figure 3: Electrostatic repulsion in the in cross-section

To create the three-dimensional shape, a two-dimensional electroactive polymer cross-section was drawn and then extruded to create the length of the guide wire.

The mesh was defined on the face of the EAP and then extended along the length of the EAP. It was designed to be fine near the electrode polymer interface which was accomplished using a distribution boundary condition. This condition guaranteed that the number of elements in this critical region remained constant even when the whole size in the middle was varied. The region was considered critical since it was where the largest changes in concentration were seen.

## Annexe 1. Development of a smart guide wire using an electrostrictive polymer: option for steerable orientation and force feedback

To perform the simulation, two physics packages were simultaneously used: electro-statics, and solid mechanics<sup>30</sup>. The electro-statics analysis focuses on the input of the electrical field to the EAP, and this physics package is governed by Poisson's law. The last physics package used in the simulation was the structural mechanics model. The bending in the tube-type EAP was modeled using a linear elastic model. The simulation parameters can be seen in Table 1. Two compositions of the electroactive polymer were used, a neat terpolymer and a modified terpolymer; the data was extracted from the literature<sup>22</sup> and is presented in Table 2.

For the first simulation, an electrical field of  $30 \text{ V}/\mu\text{m}$  was applied between electrode 1 and the central electrode. The electric potential in the cross-section of the EAP is shown in Fig. 3. The electrical field spread across the EAP in a symmetric manner between the central electrode and electrode 1. Due to geometric inconsistencies in the real sample, this is not always the case. The electrical field between electrode 2 and the central electrode appeared to be null, which was logical since no electrical field was applied. This electrode configuration allows a sectoring of the electrical field distribution in the structure. This was necessary for the development of a steerable guide wire.

The second set of simulations that were realized concerned the electromechanical activities of the "smart" guide wire. The simulation showed that the strain occurring mainly in the section near the base of the electrical field was the highest, and therefore corresponded to the electrostatic force. A comparison between the different compositions of the electroactive polymer under a constant electrical field of  $30 \text{ V}/\mu\text{m}$  is presented in Fig. 4. The advantage of using an all-organic composite is clearly demonstrated in the simulation, where the generated bending angle was higher than for the neat polymer. An electrical field six times higher will be needed to obtain the same strain for a pure polymer, which corresponds to the dielectric breakdown of the materials<sup>21</sup>. Figure 5 shows the generated displacement along the length of the guide wire, for different electrical fields and when the electrical excitation is applied to electrode 1 or 2.

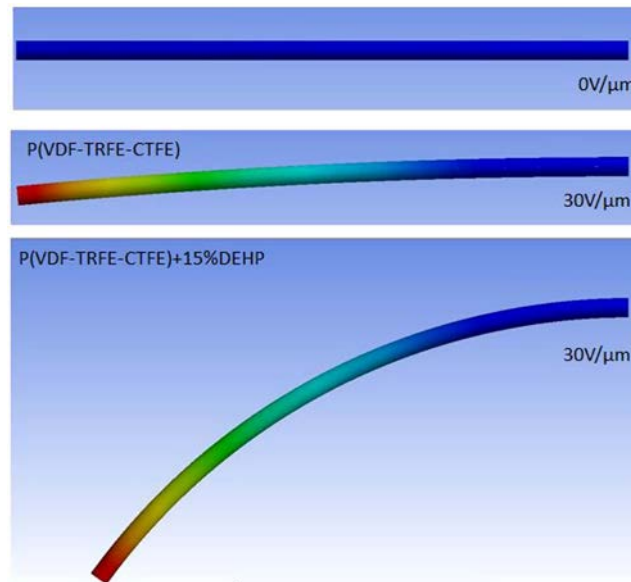


Figure 4. Bending displacement of two compositions of a terpolymer under a constant electrical field of  $30 \text{ V}/\mu\text{m}$ .

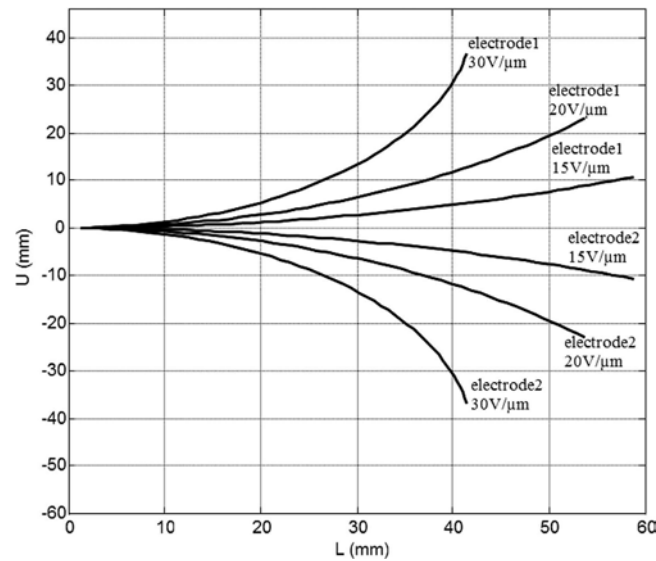


Figure 5: Bending displacement along the guide wire length for a modified terpolymer.

The simulation demonstrates the possibility to generate displacement in both directions, when the electrode has been sectorized.

### Materials and Characterization

The validity of the proposed design was investigated using a prototype guide wire developed to explore control and sensing approaches for use in medical procedures, especially for cardiac applications. The prototype of the “smart” guide wire was designed to achieve a workspace sufficient for this application.

In this study, a fluorinated terpolymer P(VDF-TrFE-CTFE) was used due to its high mechanical energy density. However, a large electrical field was needed ( $E > 150 \text{ V}/\mu\text{m}$ ) in order to reach sufficient strain levels ( $> 2\%$ )<sup>19</sup>, as is demonstrated by the simulation. The major drawback of electrostrictive polymers lies in the high electrical fields required. On the one hand, high electrical fields can be achieved at low voltages if the films are thin. On the other hand, the electromechanical transduction properties of any electrostrictive polymers are intrinsically regulated by the dielectric permittivity and Young modulus,  $Y$ , of the material<sup>31</sup>. These parameters directly control both the achievable active stresses and strains. In order to increase the dielectric permittivity of polymer materials, different methods have been developed. The main approach is based on the dispersion of filler in the polymer matrix. However, one of the typical drawbacks of the composite approach lies in a substantial decrease of the material's dielectric strength ( $E_{break}$ )<sup>32</sup>.

## Annexe 1. Development of a smart guide wire using an electrostrictive polymer: option for steerable orientation and force feedback



Figure 6: Extruded tube of P(VDF-TrFE-CTFE) with 15% wt

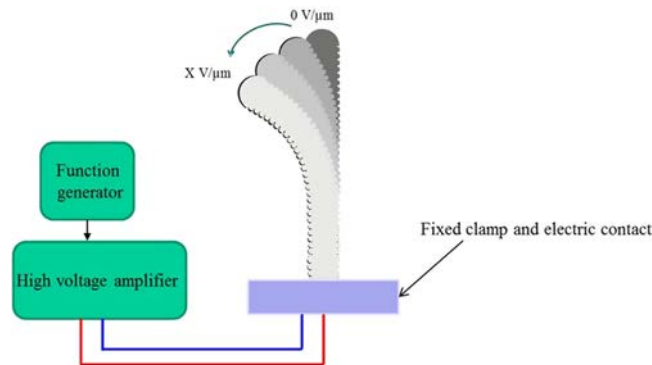


Figure 7: Schematic of the electromechanical characterization test setup of the “smart” guide wire.

The architecture of the “smart” guide wire can be described as a tube, and can thus be realized by extrusion. Commercially available terpolymer products do not comprise a plasticizer. In order to extrude an all-organic composite tube, a terpolymer with plasticizer was thus fabricated using a solution casting method. First, a glass plate was covered with a film of lecithin dissolved in cyclohexane (5 w/w% solution). A doctor blade (Elcometer) was then employed to create a film with a thickness typically between 80  $\mu\text{m}$  and 180  $\mu\text{m}$ . After drying at room temperature, the film was heated during 1 h at 70  $^{\circ}\text{C}$  to ensure complete evaporation of the solvent. Then, the film was cut in small pieces of 5  $\cdot$  5  $\text{mm}^2$ . The tubings were extruded through a Laboratory Mixing Extruder (LME, Dynisco, Inc.) with a 0.476 cm outer die (o.d.) head and a 0.3175 cm mandrel tip at a mandrel temperature of 150  $^{\circ}\text{C}$  and a die temperature of 130  $^{\circ}\text{C}$  at 180 RPM. Next, the tube was cut into the desired length and recrystallized in an oven at the onset of the melting peak determined by a Setaram EVO 131 Dynamic Scanning Calorimetry (DSC). To realize a sufficient strain with the applicable voltages (lower than 10 kV), the thickness of the polymer had to be in the range of a few hundred microns. Figure 6 shows a picture of an extruded tube of P(VDF-TrFE-CTFE) with 15% wt DEHP. According to previous works, the highest electrostrictive behavior was found in 15% wt. modified DEHP samples<sup>22</sup>. Thus, this DEHP content was used in this study.

To evaluate the steerable properties of the fluorinated terpolymer films, a dedicated test setup, was built. On one side of the tube, a gold electrode was deposited by sputtering (Cressington 208 HR) through a mask. This made it possible to realize electrode 1 and 2. The inner electrode was created with the help of conductive grease. The sample was then connected to a commercially available guide wire in which an electric wire was manually integrated. The electric contact between the guide wire and the tube was assured with conductive glue.

The setup developed for characterizing the transverse vibration response of the polymer is shown schematically in Fig. 7. As seen in the Fig. 7, the “smart” guide wire to be tested was clamped in one end at a solid base (fixed) near the electric contact whereas the other end was free. When the polymer film was subjected to an electrical field, its expansion and contraction caused the free end of the tube to move and the movement was detected using an optical technique. In the current setup, a high-resolution camera was used to monitor the deflection

Annexe 1. Development of a smart guide wire using an electrostrictive polymer: option for steerable orientation and force feedback

(Canon 6D). The electrical field application was carried out with the Agilent 33220 A Function Generator and Trek power amplifier. All measurements were recorded in an open air environment (22 °C).

## Results and Discussion

In order to validate the design developed in Section 2, the electromechanical response was measured as a function of different stimuli.

**Morphing.** To demonstrate the device performances of the all-organic composites, several tube actuators were fabricated with different ratios between their length and outside diameter. Figure 8 shows the measured curvature for an electrical field of 25 V/ $\mu\text{m}$  as a function of the length (L)/outer diameter ( $D_{\text{outer}}$ ) ratio of the tube. It is interesting to note that the achievable curvature for a constant electrical field was higher when the length/ diameter ratio was maximal. This dependence was logical since the global stiffness of the structure was lower when the ratio was high<sup>33</sup>.

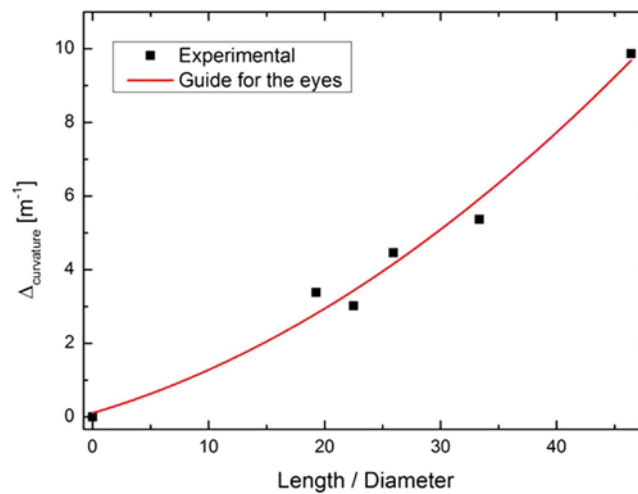


Figure 8: Experimental bending angles as a function of the electrical

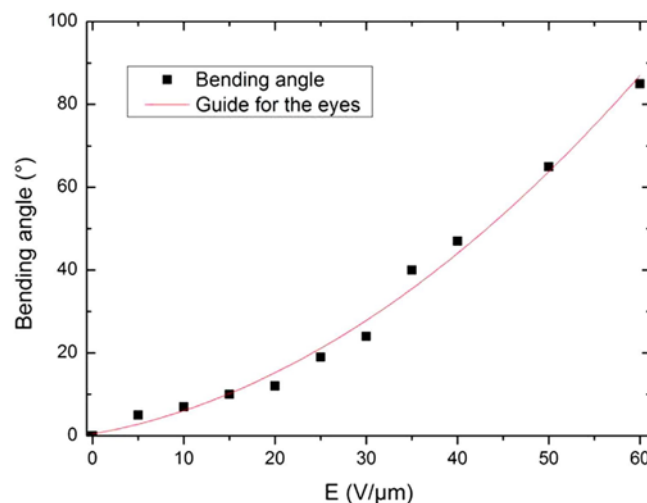


Figure 9: Smart guide wire for two electrical

Figure 9 shows the bending angles generated as a function of a static electrical field at room temperature for a sample with a length of 65 mm, an inner diameter of 1 mm and an outer



## Annexe 1. Development of a smart guide wire using an electrostrictive polymer: option for steerable orientation and force feedback

diameter of 1.4 mm. A quadratic dependence between the bending angles and the electrical field can be noted. This observation corresponds to the theory that shows such a dependence between the strain and the electrical field in electrostrictive materials<sup>34,35</sup>. Moreover the bending angle produced by the proposed design corresponds to the typical angle available in the human body<sup>28</sup>, making it possible to easily navigate the “smart” guide wire through the blood vessels. This function of steerability is relatively important to the development of the MIS procedure<sup>26</sup>. To illustrate the generated displacement, pictures of the “smart” guide wire for two electrical fields are given in Fig. 10. It should be noted that the maximum electric field used in experiment equal  $50 \text{ V}/\mu\text{m}$  resulting in a voltage of 10 kV cannot be considered to be safe for human body. A simple solution is to reduce the thickness of the electrostrictive material in order to significantly decrease the applied voltage. This can be achieved based on a multilayer structure consisting several thin electrostrictive polymers sandwiched between the electrodes. The multilayer architecture allows to considerably decrease the thickness of the whole actuator compared to the tube architecture. A fabrication of such multi-electrostrictive layers can be carried out using ink-jet printing technology<sup>36</sup>. This aspect should be investigated in future work.

Figure 11 shows the step response of the prototype that was actuated by an electrical field of  $20 \text{ V}/\mu\text{m}$ . There were clearly two parts to the response. The fast part accounted for about 52% of the total measured bending angle. The slow part took about 100 ms to reach 90% of the total measured bending angle and was attributed to creep<sup>30,37,38</sup>. The time response of the material was higher than for other electrostrictive polymer such as IPMC or conductive polymers with typical time responses above  $2\text{s}$ <sup>39</sup>. Moreover, the time response was compatible with the application since the reaction time for humans is about 180 ms as presented in section 2 (Requirements and working principles).



Figure 10: Bending angle as a function of time under a step electrical field of

Annexe 1. Development of a smart guide wire using an electrostrictive polymer: option for steerable orientation and force feedback

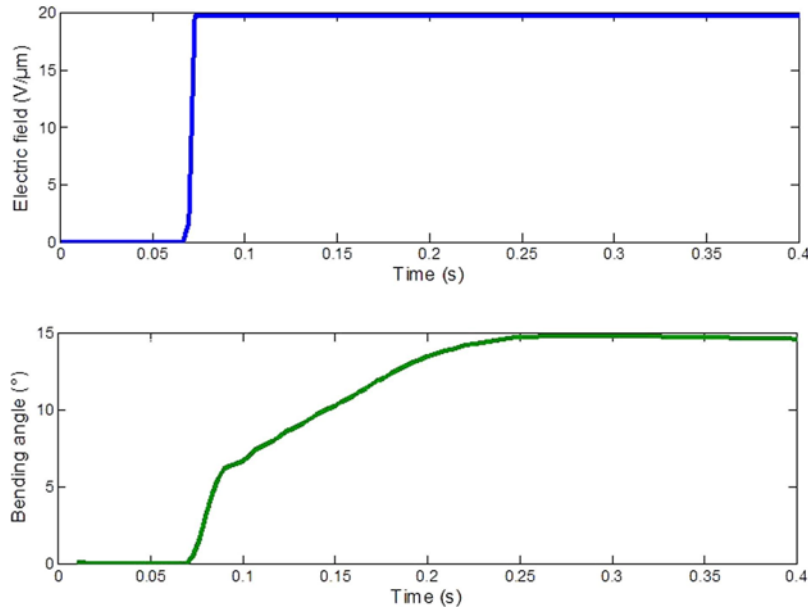


Figure 11: Temporal evolution of the mechanical stress and generated

**Force feedback.** A steerable property is not the only function requested for the development of a “smart” guide wire. For example, minimally invasive surgery operations are more and more often performed using a robot through small incisions<sup>40</sup>. Force feedback is widely assumed to enhance performances in robotic surgery. However, current commercial robotic surgery systems provide no force feedback from the instruments, yet surgeons have demonstrated the ability to use these systems to perform delicate procedures such as coronary artery bypass grafting<sup>41,42</sup>. Despite this demonstrated ability to work without force information, the dexterity with current minimally invasive instruments, whether manual or robotic, is clearly less than optimal. Furthermore, the implementation cost of force sensors that allow force feedback is prohibitive, due to the stringent design requirements imposed by the surgical environment<sup>43</sup>. Due to its unique properties, the P(VDF-TrFE-CTFE) composite employed to realize the “smart” guide wire can be used as a force sensor. In fact, by assuming a linear relationship between the electrical field  $I$  and the polarization ( $P = (\epsilon \epsilon_0)E$ , where  $\epsilon$  is the dielectric constant), it can be shown that the linearized constitutive equations for a pure electrostrictive material, i.e., without piezoelectric behavior, can be expressed using the Voigt notation<sup>31,44</sup> according to

$$S_1 = s_{11}E + M_{31}E^2 \quad (1)$$

$$D_3 = \sum_{33} 3TE + 2ME_{31}$$

where,  $S$ ,  $T$  and  $D$  denote the total strain in the material, the stress component, and the electric displacement, respectively,  $s_{11}^E$  is defined as the elastic compliance under constant stress and  $M_{31}$  is the electrical field-related electrostrictive coefficient. It should be noted that the above assumption is fully valid for the investigated fluorinated terpolymer since a linear variation in the polarization versus electrical field magnitude up to 50 V/μm has been demonstrated<sup>45</sup>.

Annexe 1. Development of a smart guide wire using an electrostrictive polymer: option for steerable orientation and force feedback

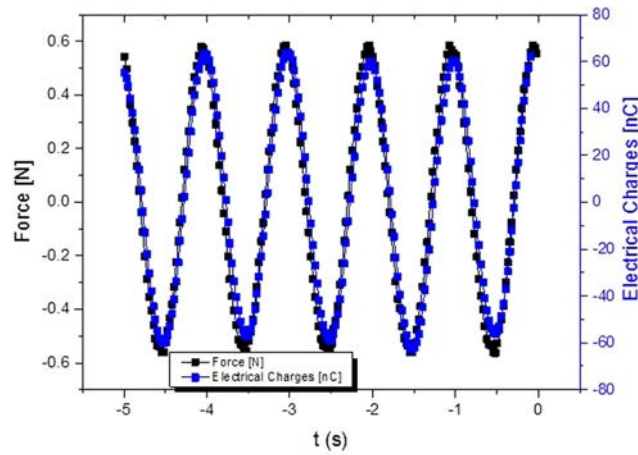


Figure 12: Electrical response in pseudo-piezoelectric mode as a function of the mechanical force.

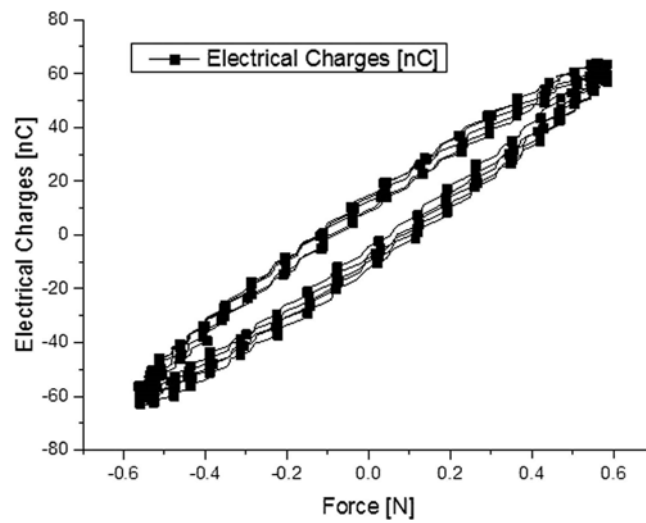


Figure 13: Electrical response in pseudo-piezoelectric mode as a function of the mechanical force.

As shown in Eq. 1, electrostriction is generally defined as a quadratic coupling between the strain and the polarization. When working in sensor mode, the electrostrictive polymer is subjected to a DC-biased electrical field. Since the polymer is not piezoelectric, it is necessary to induce polarization with this DC bias in order to obtain a pseudo-piezoelectric behavior<sup>35,46</sup>. The current induced by the mechanical stress can be expressed as:

$$I_{sens} = A \left[ 2M_{31} E_{DC} \frac{\partial T_1}{\partial t} \right] \quad (2)$$

The product “ $2.M_{31}.E_{DC}$ ” corresponds to the pseudo-piezoelectric coefficient. The generated current is proportional to the mechanical excitation, and it is thus possible to measure the force applied by the surgeon to the patient so as to obtain force feedback information.

Figure 12 displays the temporal evolution of the stress and the electrical response of an electrostrictive polymer, working in pseudo-piezoelectric mode ( $E_{DC} = 6 \text{ V}/\mu\text{m}$ ). The generated electrical charge and the force were in phase; in fact, the transported charge was the key

## Annexe 1. Development of a smart guide wire using an electrostrictive polymer: option for steerable orientation and force feedback

governing the electromechanical conversion. It can be clearly seen in equation (Eq. 1) since the electrical displacement was proportional to the time derivative of stress.

Figure 13 plots the electrical charge as a function of the force. The amount of transported charge was calculated by the time-integration of the measured current. A linear dependence between the electrical charge response and the mechanical force solicitation is clearly visible. This linear dependence exists theoretically as demonstrated in Eq. 2.

The equivalent piezoelectric coefficient was provided to facilitate the comparison of the electromechanical activities of an electrostrictive material with a common piezoelectric material. It is related to the electrostrictive coefficient according to  $d_{31} = 2.M_{31}.E_{DC}$ . Figure 14 gives the evolution of the piezoelectric coefficient as a function of the static electrical field ( $E_{DC}$ ).

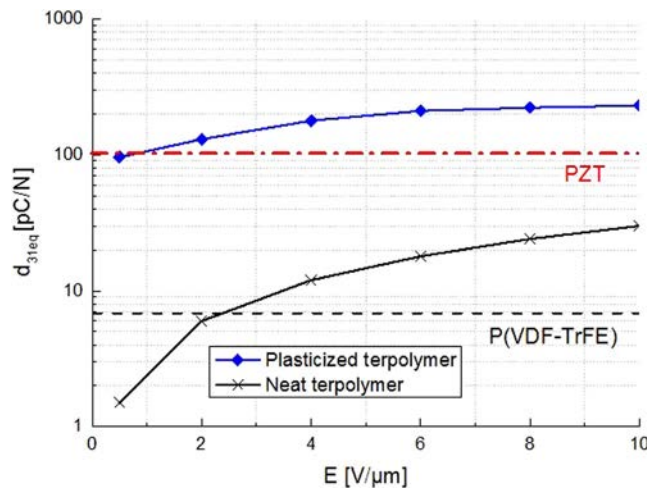


Figure 14: Pseudo-piezoelectric coefficient at 1Hz as a function of the static electrical

One can see that all organic composites exhibited substantial piezoelectric coefficients equivalent to those of the piezoelectric ceramics for an electrical field lower than 10 V/μm. At this value of the electrical field, the neat polymer only had a piezoelectric coefficient equivalent to that of P(VDF-TrFE). These results demonstrate the pros of operating in pseudo-piezoelectric mode as this facilitates the design (same material for sensing and actuating) and the sensor sensitivity is equivalent to that of a piezoelectric ceramic. For example, a typical amplitude of force applied in the case of MIS is comprised between 1N and 10N<sup>47</sup>, so the quantities of generated electrical charges are enough to be detected by the material for an electrical field of 1 V/μm.

## Conclusion

This article presents the modeling and development of an electrostrictive tube for the steering and force feedback of a guide wire. An electrostrictive tube was desired to equip with the distal tip of a guide wire for endovascular navigation in order to reach the target regions inside blood vessels and through the tortuously curved pathways of blood vasculature. The proposed material is considered to be an excellent candidate for endovascular navigation thanks to its high flexibility and low current consumption. Furthermore, the developed electrostrictive polymer can be configured in both sensor and actuator modes, giving it a possibility of miniaturization to very small endovascular sizes. Such properties are extremely interesting for performing a multifunctional medical tool, especially in minimally invasive surgery where force or curvature sensor can be easily incorporated.

Future works focus on fabrication process of multi-electrostrive layers using ink-jet printing. This method allows to drastically decrease the material thickness, leading to enhanced electromechanical response under lower applied electric field. Another aspect of this work is to

Annexe 1. Development of a smart guide wire using an electrostrictive polymer: option for steerable orientation and force feedback

take into account the patient's safety by choosing biocompatible plasticizers or adding a protection system into the catheter.

## References

1. Ederle, J. *et al.* Endovascular treatment with angioplasty or stenting versus endarterectomy in patients with carotid artery stenosis in the Carotid And Vertebral Artery Transluminal Angioplasty Study (CAVATAS): long-term follow-up of a randomised trial. *Lancet Neurol.* **8**, 898–907 (2009).
2. Qureshi, A. I. Endovascular treatment of cerebrovascular diseases and intracranial neoplasms. *Lancet* **363**, 804–813 (2004).
3. Razavi, M. K. *et al.* Abdominal myomectomy versus uterine fibroid embolization in the treatment of symptomatic uterine leiomyomas. *AJR Am. J. Roentgenol.* **180**, 1571–1575 (2003).
4. Saeed, M., Hetts, S. W., English, J. & Wilson, M. MR fluoroscopy in vascular and cardiac interventions (review). *Int. J. Cardiovasc. Imaging* **28**, 117–137 (2012).
5. Losey, A. D. *et al.* Magnetically Assisted Remote-controlled Endovascular Catheter for Interventional MR Imaging: *In Vitro* Navigation at 1.5 T versus X-ray Fluoroscopy. *Radiology* **271**, 862–869 (2014).
6. Hetts, S. W. *et al.* Endovascular Catheter for Magnetic Navigation under MR Imaging Guidance: Evaluation of Safety *In Vivo* at 1.5T. *Am. J. Neuroradiol.* **34**, 2083–2091 (2013).
7. Fu, Y., Liu, H., Huang, W., Wang, S. & Liang, Z. Steerable catheters in minimally invasive vascular surgery. *Int. J. Med. Robot.* **5**, 381–391 (2009).
8. Roberts, T. P. L., Hassenzähl, W. V., Hetts, S. W. & Arenson, R. L. Remote control of catheter tip deflection: an opportunity for interventional MRI. *Magn. Reson. Med. Off. J. Soc. Magn. Reson. Med. Soc. Magn. Reson. Med.* **48**, 1091–1095 (2002).
9. Settecase, F. *et al.* Magnetically-assisted remote control (MARC) steering of endovascular catheters for interventional MRI: A model for deflection and design implications. *Med. Phys.* **34**, 3135–3142 (2007).
10. Gomes, P. *Medical Robotics: Minimally Invasive Surgery.* (Elsevier, 2012).
11. Liu, C., Qin, H. & Mather, P. T. Review of progress in shape-memory polymers. *J. Mater. Chem.* **17**, 1543–1558 (2007).
12. Buckley, P. R. *et al.* Inductively heated shape memory polymer for the magnetic actuation of medical devices. *IEEE Trans. Biomed. Eng.* **53**, 2075–2083 (2006).
13. Rousseau, I. A. Challenges of shape memory polymers: A review of the progress toward overcoming SMP's limitations. *Polym. Eng. Sci.* **48**, 2075–2089 (2008).
14. Miles, R. R., Schumann, D. L., Pearson, M. A. & Hilken, D. Steerable catheter with distending lumen-actuated curling catheter tip. (2010). US patent US20100010437.
15. Guo, S. *et al.* Micro catheter system with active guide wire-structure, experimental results and characteristic evaluation of active guide wire catheter using ICPF actuator. In, *1994 5th International Symposium on Micro Machine and Human Science, 1994. Proceedings* 191– (1994). doi: 10.1109/ISMMHS.1994.512923.
16. Guo, S., Nakamura, T., Fukuda, T., Oguro, K. & Negoro, M. Micro active catheter using ICPF actuator-characteristic evaluation, electrical model and operability evaluation. In, *Proceedings of the 1996 IEEE IECON 22nd International Conference on Industrial Electronics, Control, and Instrumentation, 1996* **2**, 1312–1317 vol.2 (1996).
17. Sewa, S., Onishi, K., Asaka, K., Fujiwara, N. & Oguro, K. Polymer actuator driven by ion current at low voltage, applied to catheter system. In, *The Eleventh Annual International Workshop on Micro Electro Mechanical Systems, 1998. MEMS 98. Proceedings* 148–153 (1998). doi: 10.1109/MEMSYS.1998.659745.
18. Daneshvar, E. D. & Smela, E. Characterization of Conjugated Polymer Actuation under Cerebral Physiological Conditions. *Adv. Healthc. Mater.* **3**, 1026–1035 (2014).
19. Bauer, F. Relaxor fluorinated polymers: novel applications and recent developments. *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.* **17**, 1106–1112 (2010).
20. Choi, S. T., Kwon, J. O. & Bauer, F. Multilayered relaxor ferroelectric polymer actuators for low-voltage operation fabricated with an adhesion-mediated film transfer technique. *Sens. Actuators Phys.* **203**, 282–290 (2013).

## Annexe 1. Development of a smart guide wire using an electrostrictive polymer: option for steerable orientation and force feedback

21. Capsal, J.-F., Galineau, J., Le, M.-Q., Domingues Dos Santos, F. & Cottinet, P.-J. Enhanced electrostriction based on plasticized relaxor ferroelectric P(VDF-TrFE-CFE/CTFE) blends. *J. Polym. Sci. Part B Polym. Phys.* **53**, 1368–1379 (2015).
22. Capsal, J.-F., Galineau, J., Lallart, M., Cottinet, P.-J. & Guyomar, D. Plasticized relaxor ferroelectric terpolymer: Toward giant electrostriction, high mechanical energy and low electric field actuators. *Sens. Actuators Phys.* **207**, 25–31 (2014).
23. Capsal, J.-F., Dantras, E. & Lacabanne, C. Molecular mobility interpretation of the dielectric relaxor behavior in fluorinated copolymers and terpolymers. *J. Non-Cryst. Solids* **363**, 20–25 (2013).
24. Le, M. Q. *et al.* All-organic electrostrictive polymer composites with low driving electrical voltages for micro-fluidic pump applications. *Sci. Rep.* **5**, 11814 (2015).
25. Ganet, F. *et al.* Haptic feedback using an all-organic electroactive polymer composite. *Sens. Actuators B Chem.* **220**, 1120–1130 (2015).
26. Nordon, I. M., Hinchliffe, R. J., Holt, P. J., Loftus, I. M. & Thompson, M. M. The requirement for smart catheters for advanced endovascular applications. *Proc. Inst. Mech. Eng. [H]* **224**, 743–749 (2010).
27. Hutchins, G. M., Miner, M. M. & Boitnott, J. K. Vessel caliber and branch-angle of human coronary artery branch-points. *Circ. Res.* **38**, 572–576 (1976).
28. Breedveld, P., Sheltes, J. S., Blom, E. M. & Verheij, J. E. I. A new, easily miniaturized steerable endoscope. *IEEE Eng. Med. Biol. Mag.* **24**, 40–47 (2005).
29. Willey, D. G. Measuring reaction time. *Phys. Teach.* **23**, 314 (1985).
30. Petit, L., Guiffard, B., Seveyrat, L. & Guyomar, D. Actuating abilities of electroactive carbon nanopowder/polyurethane composite films. *Sens. Actuators Phys.* **148**, 105–110 (2008).
31. Lallart, M., Capsal, J.-F., Sebald, G., Cottinet, P.-J. & Guyomar, D. Converse electrostrictive effect in dielectric polymers. *Sens. Actuators B Chem.* **190**, 259–264 (2014).
32. Huang, C. & Zhang, Q. Enhanced Dielectric and Electromechanical Responses in High Dielectric Constant All-Polymer Percolative Composites. *Adv. Funct. Mater.* **14**, 501–506 (2004).
33. Song, Y., Guan, Z., Nie, Y. & Guan, X. The analysis of the bending stiffness and intensity of cylindrical tubes. *Sci. China Ser. E Technol. Sci.* **50**, 268–278 (2007).
34. Guyomar, D., Yuse, K., Cottinet, P.-J., Kanda, M. & Lebrun, L. Focus on the electrical field-induced strain of electroactive polymers and the observed saturation. *J. Appl. Phys.* **108**, 114910 (2010).
35. Cottinet, P.-J., Guyomar, D., Guiffard, B., Lebrun, L. & Putson, C. Electrostrictive polymer composite for energy harvesters and actuators. *J. Polym. Eng.* **31** (2011).
36. Calvert, P. Inkjet Printing for Materials and Devices. - *Chem. Mater. ACS Publ.* **13**, 3299–3305 (2001).
37. Cottinet, P.-J. *et al.* Nonlinear strain–electric field relationship of carbon nanotube buckypaper/Nafion actuators. *Sens. Actuators Phys.* **170**, 164–171 (2011).
38. Guyomar, D. *et al.* The compressive electrical field electrostrictive coefficient M33 of electroactive polymer composites and its saturation versus electrical field, polymer thickness, frequency, and fillers: THE ELECTROSTRICTIVE COEFFICIENT OF POLYMER COMPOSITES. *Polym. Adv. Technol.* **23**, 946–950 (2012).
39. Liu, Y. *et al.* Enhanced Electromechanical Response of Ionic Polymer Actuators by Improving Mechanical Coupling between Ions and Polymer Matrix. *Macromolecules* **45**, 5128–5133 (2012).
40. Le, Q. M. *et al.* Bilateral Control of Nonlinear Pneumatic Teleoperation System With Solenoid Valves. *IEEE Trans. Control Syst. Technol.* **21**, 1463–1470 (2013).
41. Shennib, H., Bastawisy, A., Mack, M. J. & Moll, F. H. Computer-assisted telemanipulation: an enabling technology for endoscopic coronary artery bypass. *Ann. Thorac. Surg.* **66**, 1060–1063 (1998).
42. Stephenson, E. R., Sankholkar, S., Ducko, C. T. & Damiano, R. J. Robotically assisted microsurgery for endoscopic coronary artery bypass grafting. *Ann. Thorac. Surg.* **66**, 1064–1067 (1998).
43. Sanchez, L. A., Le, M. Q., Rabenoroso, K., Liu, C., Zemiti, N., Poignet, P., Dombre, E., Menciassi, A. & Dario, P. “A Case Study of Safety in the Design of Surgical Robots: The ARAKNES platform”, International Conference on Intelligent Autonomous Systems, Korea, 2012.
44. Lallart, M., Cottinet, P.-J., Guyomar, D. & Lebrun, L. Electrostrictive polymers for mechanical energy harvesting. *J. Polym. Sci. Part B Polym. Phys.* **50**, 523–535 (2012).

Annexe 1. Development of a smart guide wire using an electrostrictive polymer: option for steerable orientation and force feedback

45. Capsal, J.-F. *et al.* Evaluation of macroscopic polarization and actuation abilities of electrostrictive dipolar polymers using the microscopic Debye/Langevin formalism. *J. Phys. Appl. Phys.* **45**, 205401 (2012).
46. Belhora, F. *et al.* Optimization of energy harvesting conversion using the hybridization of electrostrictive polymers and electrets. *Sens. Actuators Phys.* **189**, 390–398 (2013).
47. Faraz, A. & Payandeh, S. *Engineering Approaches to Mechanical and Robotic Design for Minimally Invasive Surgery (MIS)*. (Springer Science & Business Media, 2012).

## Annexe 2

Sensors and Actuators B 220 (2015) 1120–1130



Contents lists available at ScienceDirect

Sensors and Actuators B: Chemical

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/snb](http://www.elsevier.com/locate/snb)

## Haptic feedback using an all-organic electroactive polymer composite

F. Ganet<sup>a,b</sup>, M.-Q. Le<sup>a</sup>, J.F. Capsal<sup>a</sup>, J.F. Gérard<sup>c</sup>, S. Pruvost<sup>c</sup>, J. Duchet<sup>c</sup>, S. Livi<sup>c</sup>, P. Lermusiaux<sup>d,e</sup>, A. Millon<sup>d,e</sup>, P.-J. Cottinet<sup>a,\*</sup><sup>a</sup> Université de Lyon – INSA de Lyon – LGEF, 8 rue de la Physique, 69621 Villeurbanne, France<sup>b</sup> Pulsalys, 47 Boulevard du 11 Novembre 1918, CS 90170, 69625 Villeurbanne, France<sup>c</sup> Université de Lyon – INSA de Lyon – IMP – UMR CNRS 5223, Bâtiment Jules Verne, 17, avenue Jean Capelle, 69621 Villeurbanne, France<sup>d</sup> Groupement Hospitalier Edouard Herriot – Chirurgie Vasculaire – Pav. M, France<sup>e</sup> Université de Lyon – Université Claude Bernard Lyon 1, 8 Avenue Rockefeller, Lyon, France

## ARTICLE INFO

## Article history:

Received 18 April 2015

Received in revised form 10 June 2015

Accepted 17 June 2015

Available online 26 June 2015

## Keywords:

Electroactive polymer

All organic composite

Organic electronic

Haptic device

## ABSTRACT

The development of mobile haptics and multimodal designs has been strongly limited by the lack of enabling actuator technologies. This paper presents the properties of an electrostrictive actuator technology for haptic feedback. By carefully tailoring material properties and actuator designing which can be integrating in devices, this technology should provide a realistic possibility of haptic design with considerable latitude. Haptic characteristics are described and realized and their impact on haptic design is discussed.

© 2015 Elsevier B.V. All rights reserved.

## 1. Introduction

Finger-operated touchscreen interfaces are currently in use in numerous applications like information kiosks, point-of-sale systems, automation systems, and even mobile phones [1,2]. The handling of these devices is very intuitive as they can be operated directly with one or several fingers. But they all have one big deficiency: no matter what interface element the user touches, the touch is the same and corresponds to unresponsive glass [3–5].

Devices stimulating the tactile sense – so-called tactile displays – consist of independently controllable arrayed actuators to generate feedback to the human skin [6]. The requirements for these actuators are very challenging, especially in terms of power consumption in mobile applications (e.g., smartphones or tablets) [7]. Furthermore, tactile feedback improves haptic impression in virtual reality and telemanipulation systems. For example, in computer-aided minimal invasive surgery, the implementation of tactile and kinesthetic feedback in addition to visual information can restore the real and intuitive feeling to the doctor [8].

Electrostrictive polymers can sustain very large strain and can generate relatively large forces when an electric field is applied [9]. These ones have numerous advantages, i.e. for actuation

application: lightweight, inexpensive, fracture-tolerant and compliant [10,11]. However, in order to generate large deformations, electrostrictive polymers require very high electric fields which block the development of haptic interfaces using this type of material [12]. Recently, Capsal et al. [13] demonstrated a new way to hugely improve the mechanical energy density of electrostrictive polymers for low electric fields which should make it possible to overcome this technological gap. The approach seems promising for the application of haptic devices.

The present paper is divided into three parts. The first part is dedicated to the working principal of electrostrictive polymers for haptic devices. The second presents the materials and the devices used for the characterization, whereas the last part is an analysis of the results.

## 2. Requirements and functioning principals

Requirements for actuators can be very broad. Since all these displays are used to interact with humans, some important requirements are influenced by the high sensitivity of humans to tactile stimulation. The technical consequences can be divided into three parts [14,15]:

- Spacing
- Displacement versus frequency
- Operate as a sensor

\* Corresponding author. Tel.: +33 472438833.

E-mail address: [pjcottinet@gmail.com](mailto:pjcottinet@gmail.com) (P.-J. Cottinet).<http://dx.doi.org/10.1016/j.snb.2015.06.071>

0925-4005/© 2015 Elsevier B.V. All rights reserved.



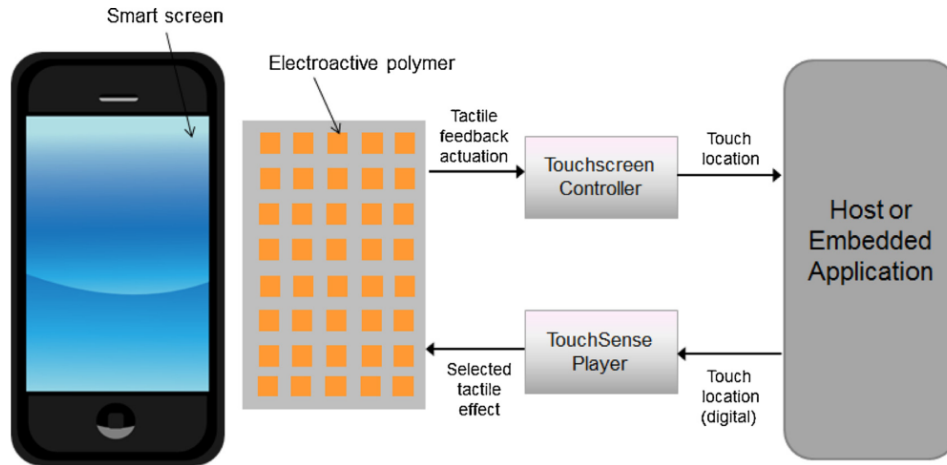


Fig. 1. Typical architecture of a haptic device.

The spacing can be described as the actuator density and is given by the two-point discrimination threshold. It describes the minimum space between two independent stimulations that can be perceived as different points of penetration. This resolution depends on the considered region of the human body and reaches its peak value in the hands. But even there different regions exist: the two-point discrimination threshold is 10 mm in the palm and enhances toward the fingertips where it is as low as 1–2 mm [16]. To stimulate the whole human hand close to the discrimination threshold, more than 1000 stimulators would be necessary.

The displacement range of the actuator is directly linked to the intensity caused by a deflection of the skin at certain amplitude. For dynamic simulations, it varies with the frequency [17]. The minimum perceptible deflection depends on the relative movement between fingertip and surface. When moving the finger across a stimulus, deflections of about 0.07  $\mu\text{m}$  can be perceived, whereas this value is only 2  $\mu\text{m}$  in the static state [18]. Static displays have typical heights in the range of 0.15–0.5 mm. To achieve the deflection of the skin, the actuators need to apply forces of about 100 mN. The maximum perceptible frequency of vibrating penetration is about 1 kHz [19] whereas the maximum sensitivity is at 250 Hz [20].

The material must also be able to work as a sensor, to ensure the human–machine interface and facilitate integration, since the same material works as both an actuator and a sensor (Fig. 1).

Electrostrictive polymers could be used for solid-state actuators. They can be realized by sandwiching a polymer dielectric layer between electrodes. When applying an electric field to the electrodes, the dielectric material contracts due to electrostatic forces and expands in the lateral directions.

Assuming a linear relationship between the electric field and the polarization ( $P = (\epsilon - \epsilon_0)E$ , where  $\epsilon$  is the dielectric constant), it can be shown that the linearized constitutive equations for a pure electrostrictive material, i.e., without piezoelectric behavior, can be expressed using the Voigt notation [21,22] as

$$\begin{aligned} S_1 &= s_{11}^E T_1 + M_{31} E_2^2 \\ D_3 &= \epsilon_{33}^T E_3 + 2M_{31} E_3 T_1 \end{aligned} \quad (1)$$

where  $S$ ,  $T$  and  $D$  denote the total strain in the material, stress component, and electric displacement, respectively,  $s_{11}^E$  is defined as the elastic compliance under constant stress and  $M_{31}$  is the electric field-related electrostrictive coefficient. It should be noted that the above assumption is fully valid for the investigated fluorinated

terpolymer since a linear variation in the polarization versus electric field magnitude up to 50 V/ $\mu\text{m}$  has been demonstrated [10].

In view of the specifications of haptic actuators, it is necessary that the material can generate static ( $S_{DC}$ ) and dynamic deformation ( $S_{AC}$ ) while being able to work as a sensor. The electric field generating the actuation properties can be expressed as:

$$E_3 = E_{DC} + E_{AC} \cos(\omega_{act} t) \quad (2)$$

where  $E_{DC}$  is the amplitude of the static electric field,  $E_{AC}$  the amplitude of the dynamic electric field and  $\omega_{act}$  the pulsation of the electric field.

Eq. (1) thus becomes:

$$\begin{aligned} S_1 &= s_{11}^E T_1 + M_{31} \left[ E_{DC}^2 + \frac{E_{AC}^2}{2} + 2E_{DC}E_{AC} \cos(\omega_{act} t) \right. \\ &\quad \left. + \frac{E_{AC}^2}{2} \cos(2 \cdot \omega_{act} t) \right] \end{aligned} \quad (3)$$

In view of Eq. (3), it is clear that both static and dynamic strain can be generated by the material:

- Static strain equal to  $S_{static} = M_{31} \left[ E_{DC}^2 + \frac{E_{AC}^2}{2} \right]$
- Dynamic strain equal to  $S_{dynamic} = M_{31} \left[ 2E_{DC}E_{AC} \cos(\omega_{act} t) + \frac{E_{AC}^2}{2} \cos(2 \cdot \omega_{act} t) \right]$

The dynamic strain is non-linear due to the component at  $2 \cdot \omega_{act}$ . However, it is possible to assume a linear relation in the case of  $E_{DC} \gg E_{AC}$ .

As shown in Eq. (1), electrostriction is generally defined as a quadratic coupling between the strain and the polarization. When working in sensor mode, the electrostrictive polymer is subjected to a DC-biased electric field. Since the polymer is not piezoelectric, it is necessary to induce polarization with a DC bias to obtain a pseudo-piezoelectric behavior [23,24].

The current induced by the mechanical stress can be expressed as:

$$I_{sens} = A \cdot \frac{\partial D_3}{\partial t} \quad (4)$$

where  $A$  is the surface of the electroactive polymer.

**Table 1**

The parameters that govern the haptic properties.

Properties	Parameters
Dynamic strain	$2 \cdot M_{31} \cdot E_{DC} \cdot E_{AC}$
Static strain	$M_{31} (E_{DC} + 0.5 \cdot E_{AC})$
Sensor mode	$2 \cdot M_{31} \cdot E_{DC}$

The current produced by the strain of the polymer can thus be related to the stress and electric field by:

$$I_{sens} = A \cdot \left[ \varepsilon_{33}^T \frac{\partial E_3}{\partial t} + 2M_{31} \frac{\partial E_3}{\partial t} T_1 + 2M_{31} E_3 \frac{\partial T_1}{\partial t} \right] \quad (5)$$

where  $\partial E_3/\partial t$  and  $\partial T_1/\partial t$  are the time derivatives of the electrical field and strain, respectively. Since a DC electric field ( $E_{DC}$ ) was applied to the sample so that  $\partial E_3/\partial t = 0$ , the short-circuit current can be given by

$$I_{sens} = A \cdot \left[ 2M_{31} E_{DC} \frac{\partial T_1}{\partial t} \right] \quad (6)$$

The product “ $2 \cdot M_{31} \cdot E_{DC}$ ” corresponds to the pseudo-piezoelectric coefficient.

To sum up, the analytic study shows the possibility of using electrostrictive material in order to develop haptic devices. Table 1 summarizes the different parameters that influence the haptic response.

### 3. Materials and characterization

Recently, new electrostrictive polymers known as poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene-chlorofluoroethylene-chlorotrifluoro ethylene) P(VDF-TrFE-CFE/CTFE) fluorinated terpolymers have been greatly investigated due to their very high electromechanical and ferroelectric responses [22,25,26]. Table 2 presents the electromechanical properties for some electrostrictive polymers and composites.

The fluorinated terpolymer P(VDF-TrFE-CFE/CTFE) is a semi-crystalline polymer which shows the highest level of conversion from electrical to mechanical energy. However, a large electrical field is needed ( $E > 150 \text{ V}/\mu\text{m}$ ) to reach sufficient strain levels ( $>2\%$ ) [27]. The major drawback of electrostrictive polymer comes from the high electric field requirement. On the one hand, high electric fields can be achieved at low voltages if the films are thin. On the other hand, the electromechanical transduction properties of any electrostrictive polymers are intrinsically regulated by the dielectric permittivity and Young modulus of the material [28]. These parameters directly control both the achievable active stresses and strains. In order to increase the dielectric permittivity of polymer materials, different methods have been developed. The main approach is based on the dispersion of filler in the polymer matrix. However, one of the typical drawbacks of the composite approach lies in a substantial decrease of the material's dielectric strength ( $E_{break}$ ) [22].

Capsal et al. [13] proposed a simple and efficient solution to improve the electromechanical performances of a fluorinated

**Table 2**

Comparison of electromechanical properties of electrostrictive polymers.

Materials	$Y$ (GPa)	$S_m$ (%)	$YS_m^2/2$ (J/cm <sup>3</sup> )	$E$ (V/ $\mu\text{m}$ )
PDMS	0.001	35	0.062	100
PU	0.01	6	0.019	100
Irradiated P(VDF-TrFE)	0.38	4	0.3	150
P(VDF-TrFE-CFE)/CuPc	0.75	1.91	0.13	13
P(VDF-TrFE-CFE)	0.3	4.5	1.1	130
P(VDF-TrFE-CTFE)	0.4	4	0.32	150

terpolymer by reducing the required electric field. The preliminary work considered the fact that the doping of the polymer with a plasticizer led to an increased molecular mobility of the polymer chains, resulting in the decrease of the Young modulus of the material. From an electrical point of view, since these polymers are heterogeneous systems by nature (semi-crystalline), the increased molecular mobility enabled – above the glass transition temperature and under an applied electric field – the trapping of charges at the boundaries of the heterogeneous morphology. One can suppose that the charges trapped at the amorphous/crystalline phase boundaries and/or confined in the crystalline regions (lamellae in spherulites) induced large Maxwell Wagner Sillars polarization effects. The relationships between the microstructure of the fluorinated terpolymer, i.e. its crystalline state, and morphology in the presence of the phthalate plasticizer will be detailed in other work.

This type of interfacial polarization is associated with a significant increase in dielectric permittivity under a low excited frequency [13]. Hence, choosing an adequate polymer matrix/plasticizer combination would enable the generation of large macroscopic dipoles combined with phase heterogeneities while reducing the Young's modulus of the polymer and increasing its dielectric permittivity. As a result of the improved dielectric permittivity and the decreased Young modulus, a great enhancement of the low-frequency electrostrictive transverse strain (a 28-fold increase compared with the neat fluorinated-polymer at  $10 \text{ V}/\mu\text{m}$ ) was achieved. More importantly, compared with traditional composites, the modified terpolymers P(VDF-TrFE-CFE/CTFE) incorporated bis(2-ethylhexyl) phthalate DEHP exhibited a decreased dielectric breakdown strength which is very important for practical actuator applications. Consequently, the approach proposed herein is promising for the development, using low-cost plasticizers, of new all-organic composites with excellent electrostrictive properties for haptic applications.

In experiment, 5 g of P(VDF-TrFE-CFE/CTFE) were dissolved in 30.7 g of 2-butanone at  $80^\circ\text{C}$  and stirred for 1 h to ensure complete dissolution. The 14 w/w% solution was then cool down to room temperature before adding the plasticizer DEHP. Afterwards, all solutions were kept at  $4^\circ\text{C}$ . Polymer films were then fabricated using a solution casting method. First, a glass plate was covered with a film of lecithin dissolved in cyclohexane (5 w/w% solution). A doctor blade (Elcometer) was then employed to create a film with a thickness typically between  $80 \mu\text{m}$  and  $180 \mu\text{m}$ . After drying at room temperature, the film was heated during 1 h at  $70^\circ\text{C}$  to ensure complete evaporation of the solvent. Next, recrystallization was performed in an oven at the onset of the melting peak determined by a Setaram EVO 131 Dynamic Scanning Calorimetry (DSC). Recrystallization temperatures of the modified terpolymer are equal to around  $105^\circ\text{C}$ . A schematic of the temperature annealing process is shown in Fig. 2.

The DSC method was carried out as follow: the samples were heated up to  $200^\circ\text{C}$  for 5 min. After that, they were cooled down to the room temperature at rate of  $10^\circ\text{C}/\text{min}$ , and keep at the room temperature during 5 min. Next, the samples were heated again to  $180^\circ\text{C}$  at rate of  $10^\circ\text{C}/\text{min}$  and the measurement could be finally recorded. The whole procedure was performed twice to confirm the reproducibility of measurements.

To realize a sufficient strain with applicable voltages (lower than 5 kV) the thickness of the polymer had to be in the range of a few microns, causing a further loss of absolute deformation. In order to increase the absolute deflection values at limited voltages, certain designs have been proposed [29–31]. The majority of these designs currently work in bender mode. A bending actuator consists of electrostrictive layers carrying electrodes on top of a passive layer. In operation, the electrostrictive elongation generates a tensile stress onto the passive layer causing the deflection.

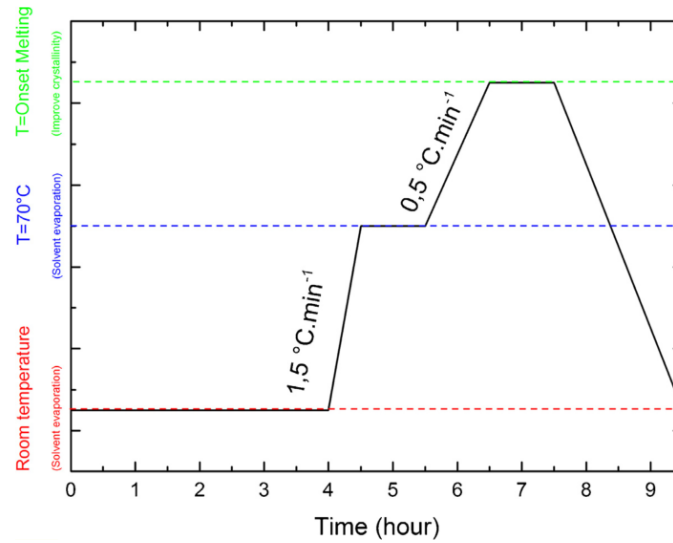


Fig. 2. Schematic of the temperature annealing process of polymers.

To evaluate the haptic properties of the fluorinated terpolymer films, a dedicated test setup, based on a cantilever theory, was built. The cantilever was assembled in three layers, i.e., polyethylene terephthalate (PET), adhesive and electroded electroactive films. After deposition of a gold electrode by sputtering (Cressington 208 HR) through a mask, the electroactive film was bonded to a 100  $\mu\text{m}$ -thick PET film using a transfer adhesive (50  $\mu\text{m}$ -thick Scotch 3M ATG 924). The samples were then laminated at room temperature for 15 min using a D&K 4468H laminator in order to optimize the bonding of the polymer to the substrate.

The setup developed for characterizing transverse vibration response of the polymer is shown schematically in Fig. 3. The key part of the setup was the unimorph structure, with the active layer glued to a passive substrate. As seen in Fig. 3, the actuator film to be tested was clamped in one end at a solid base (fixed) whereas the other end was free. The typical size of the sample used in this experiment was also performed in Fig. 3. When the polymer film was subjected to an electric field, its expansion and contraction caused the free end of the unimorph to move and the movement was detected using an optical technique. In the current setup, a photonic sensor was used to monitor the deflection (Polytech OFV-5000). The field application was carried out with the Agilent 33220A Function Generator and Treck power amplifier. All measurements were recorded in an open air environment (22 °C).

In order to characterize the sensor response of the material, the polymer film was mounted in a sample holder composed of two parts: one fixed and a second that could be moved in the 1st direction with the help of an XM550 Ironless Linear Motor. As a consequence, the film was driven with a given strain profile and assumed to be strained along the 1st direction. The generated current was monitored with the help of a Stanford (SR-570)

detected by a load cell with a sensitivity of 48 mV/N, and the elastic strain was measured by monitoring the displacement of the linear actuator. Tensile specimens were 60 mm total length and 10 mm width with an effective length of 40 mm.

#### 4. Results and discussion

In order to validate the model developed in Section 2, the electromechanical response was measured as a function of different stimuli.

##### 4.1. Morphing

To demonstrate the device performances of the all-organic composites, several unimorph actuators were fabricated. Fig. 5 shows the field-induced actuation of a unimorph made of an electrostrictive polymer P(VDF-TrFE-CFE) + 15 wt%DEHP and an inactive polymer substrate. The electrode area of the active film was 10 mm  $\times$  40 mm long. To prevent any possible edge discharge when operating under high voltage, there was an unelectroded area, approximately 1.5 mm wide, at the edge of the active layer. The thickness of the active layer was 80  $\mu\text{m}$  and the substrate was 100  $\mu\text{m}$ . Fig. 5 shows the unimorph for different amplitudes of the electric field. Clearly, there was a large actuation of the unimorph for the high transverse strain.

Fig. 6 shows the static displacement measured as a function of the static electric field. For low electric fields below 50 V/ $\mu\text{m}$ , the induced strain displayed a quadratic dependence, whereas at higher values, a saturation of the strain [10] could be observed.

For a unimorph, it has been derived that the tip displacement ( $\delta$ ) depends on the geometry of the device and material properties according to [32]:

$$\delta = \frac{3 \cdot L^2}{2t} \frac{2 \cdot ((Y_{\text{substrat}}/Y_{\text{EAP}}) \cdot (t_{\text{substrat}}/t_{\text{EAP}}))(1 + (t_{\text{substrat}}/t_{\text{EAP}}))^2}{(Y_{\text{substrat}}/Y_{\text{EAP}})^2 \cdot (t_{\text{substrat}}/t_{\text{EAP}})^4 + 2 \cdot (Y_{\text{substrat}}/Y_{\text{EAP}}) \cdot (t_{\text{substrat}}/t_{\text{EAP}})(2 + 3 \cdot (t_{\text{substrat}}/t_{\text{EAP}}) + 2 \cdot (t_{\text{substrat}}/t_{\text{EAP}})^4) + 1} M_{31} \cdot E_3^2 \quad (7)$$

current amplifier. Fig. 4 illustrates the principle of the test setup, depicted a schematic of the experimental implementation. All measurements were performed at a 1 Hz frequency at which the electromechanical characterization is performed. The stress was

Here,  $L$  and  $t$  are the length and thickness of the unimorph, and  $Y$  is the Young modulus.

It is thus possible to determine the electrostrictive coefficient  $M_{31}$  by measuring the displacement of the tip of the unimorph. Table 3 summarizes the  $M_{31}$  coefficient of the neat polymer and

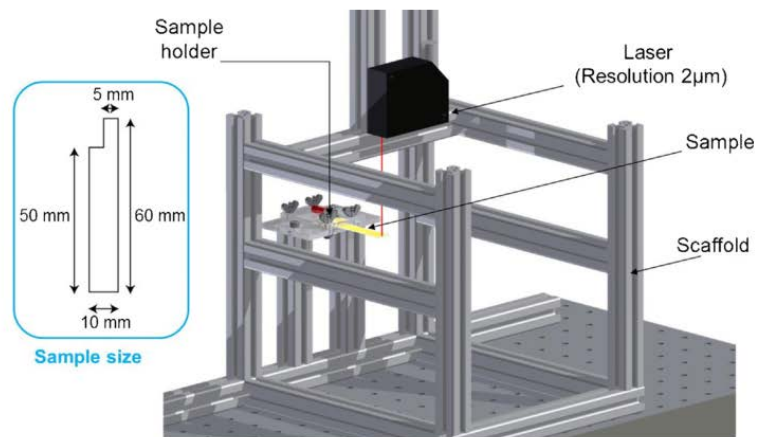


Fig. 3. Schematic of the setup for measuring the actuation response.

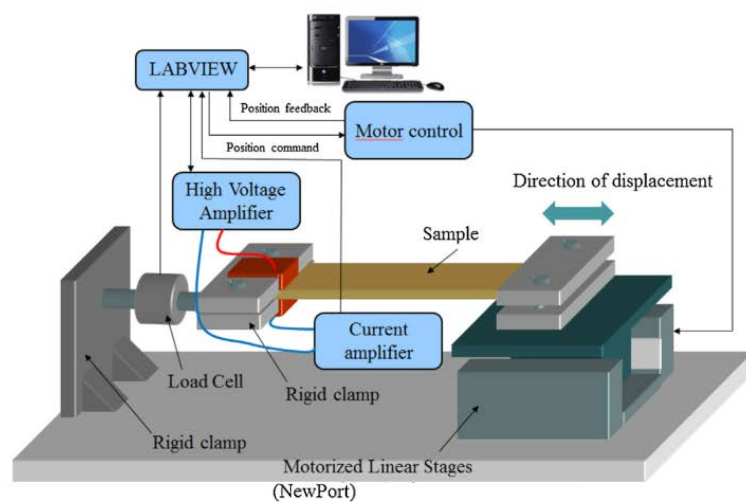


Fig. 4. Schematic of the test setup for characterization of the sensor.

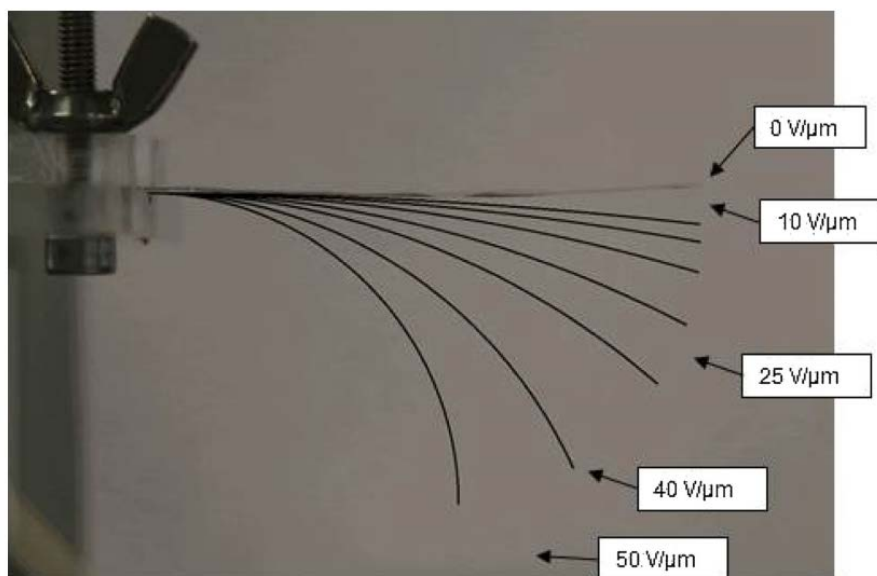


Fig. 5. Photograph of the unimorph for different electric fields.

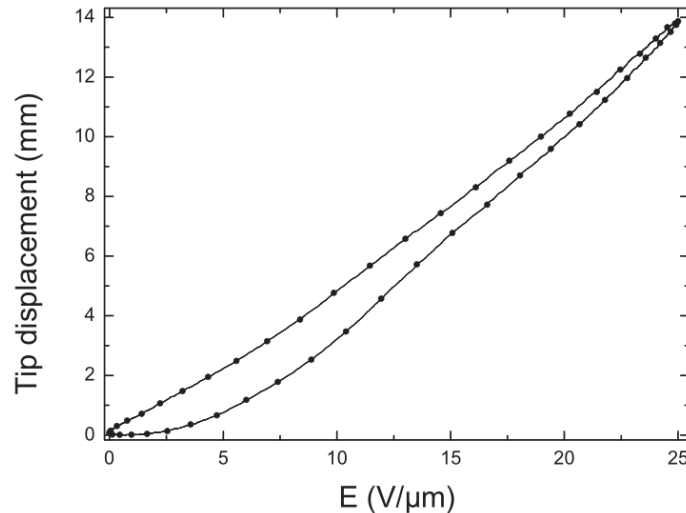


Fig. 6. Static displacement as a function of the electric field.

Table 3

Electromechanical properties of electroactive polymers at room temperature.

Type	Y (MPa)	$\epsilon_r$ at 0.1 Hz	$M_{31}$ ( $m^2/V^2$ )
P(VDF-TrFE-CTFE)	100	30	$3 \cdot 10^{-18}$
P(VDF-TrFE-CTFE) + 15 wt%DEHP	30	400	$38 \cdot 10^{-18}$

the composite. The value of the electrostrictive coefficient was 12 times larger than that for neat P(VDF-TrFE-CTFE).

The static strain generated under a low electric field of the composite material seems to be interesting for the applications of haptic devices working in static mode. It was possible to make a dense array consisting of pixels of electrodes and address the appropriate pixels to create an out-of-plane display. Typically, in static mode, a displacement of 1 mm is sufficient to be detected by a human finger [17].

#### 4.2. Haptics

Because vibration is the main means of communication in this tactile touch screen, it was deemed interesting to determine how the vibration is received: the intensity of vibrations is signaled by the total number of sensory nerve fibers that are active. Fig. 7 illustrates the human detection threshold as a function of frequency.

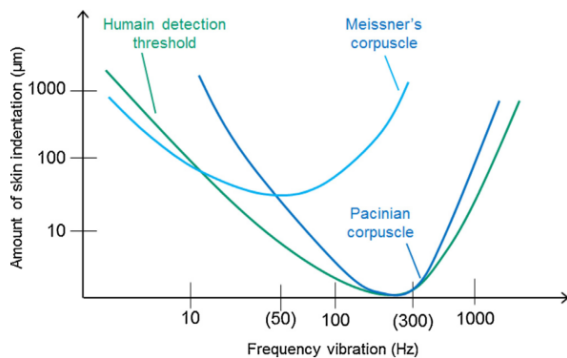


Fig. 7. Human detection threshold as a function of the vibration frequency.

The data were extracted from the book of Kandel [17]. It is interesting to note that the detection of vibrations works best at around 250 Hz since a skin indentation of 1  $\mu m$  is enough to stimulate a Pacinian corpuscle at this frequency. For other frequencies, more indentation is required.

Human perception or touch sensing is sensible to vibration which is well described by acceleration. Hence, in haptic area acceleration can be defined as vibration that is considered one of pertinent parameters reflecting haptic device performance. As the developed actuator is excited by only one frequency mode, it is easy to deduce the acceleration from the measure of the vibration speed using laser vibrometer (Polytech OFV-505) according to the relationship (acceleration =  $\omega_{ac}$  · vibration speed). Fig. 8 shows the acceleration generated by the actuator as a function of the frequency of the electric field as well as the amplitude of the electric field. For the frequency bandwidth between 10 Hz and 300 Hz, amplitude of 5  $V_{ppAC}/\mu m$  was sufficient for human detection since the acceleration corresponded to the human detection threshold.

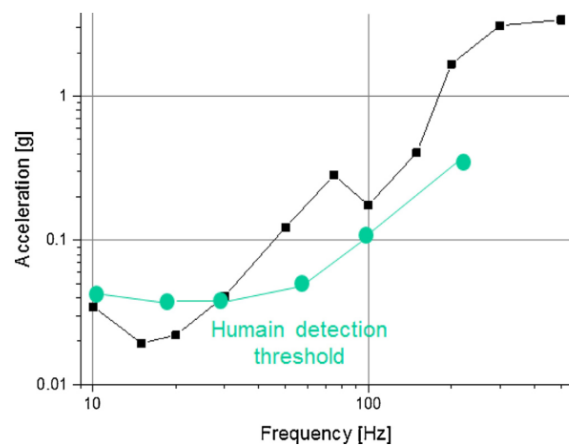


Fig. 8. Mechanical acceleration generated by the actuator as a function of the frequency, an actuator excited for an electric field of 15  $V_{DC}/\mu m + 5 V_{ppAC}/\mu m$  and comparison with the human threshold.

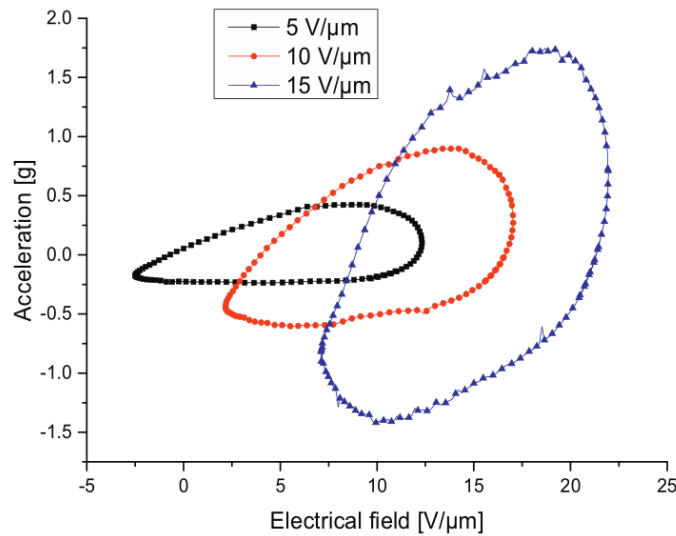


Fig. 9. Amplitude of the vibration function of a static electric field and for a frequency of 70 Hz and an amplitude of a dynamic electric field of  $E_{AC} = 7.5 \text{ V}/\mu\text{m}$ .

There are two ways to increase the amplitude of the vibrations, for a constant frequency. The first one is illustrated in Fig. 9, where the amplitude of vibrations is plotted as a function of the static electric field ( $E_{DC}$ ). In this case, the amplitude of  $E_{AC}$  was  $7.5 \text{ V}/\mu\text{m}$  and the frequency was equal to 70 Hz. When the static electric field increased, the slope reflecting the conversion of electric into mechanical energy also increased. This fits well with the theory, since the dynamic strain generated by the active material was equal to:

$$S_{dynamic} = M_{31} \left[ 2E_{DC}E_{AC} \cos(\omega_{act}t) + \frac{E_{AC}^2}{2} \cos(2 \cdot \omega_{act}t) \right] \quad (8)$$

By assuming that the ratio  $E_{DC} \cdot E_{AC}$  is higher than  $E_{AC}^2$ , the electromechanical strain can be expressed as

$$S_{dynamic} \approx M_{31} [2E_{DC}E_{AC} \cos(\omega_{act}t)] \quad (9)$$

So, for a constant  $E_{AC}$  the generated displacement is proportional to the  $E_{DC}$ . Hence, it is possible to tune the electrodynamic properties by adapting the DC field.

Another solution for increasing the vibration response of the actuator consists in raising the amplitude of the dynamic electric field ( $E_{AC}$ ), as illustrated in Fig. 10. This leads to a wide range of vibration amplitudes, more than 2 g for a moderate electric field.

For the data displayed in Figs. 9 and 10, the output–input relationship shows a hysteresis as there is a significant gap between the ascending branch and the descending one. Like for other materials (e.g., magnetic materials, magnetostrictive, piezoceramics, shape memory alloys, etc.), an electrostrictive materials can be considered as a type of piezoelectric actuator that with the disadvantage of hysteresis and creep (or drift) behaviors [33]. They are inherent in piezoelectric actuators and may deteriorate the system performance and lead to oscillation vibration, and even instability,

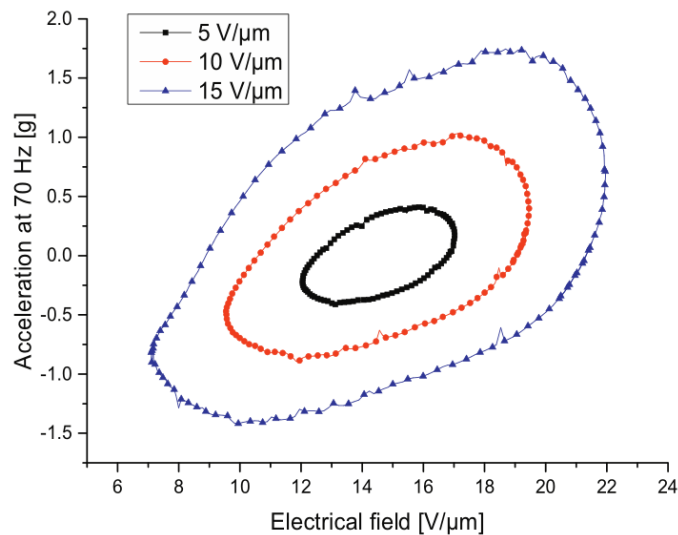


Fig. 10. Amplitude of vibration as a function of a dynamic electric field and for a frequency of 70 Hz and amplitude of dynamic electric field  $E_{DC} = 15 \text{ V}/\mu\text{m}$ .

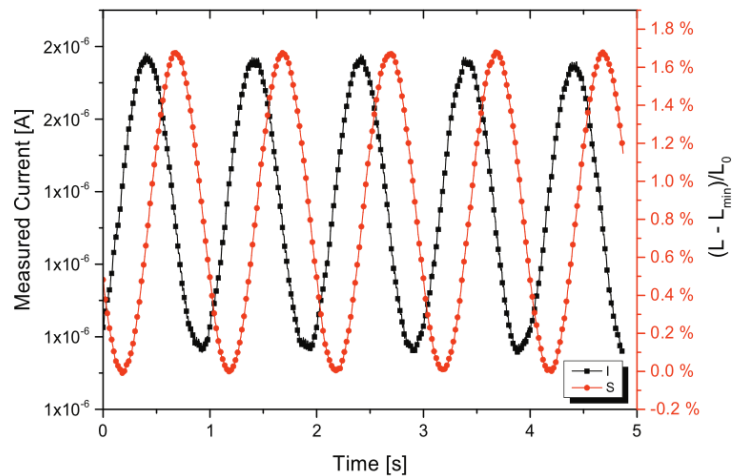


Fig. 11. Temporal evolution of the mechanical strain and generated current.

especially in cases that require precision positioning, such as atomic force microscopes and micro-manipulators [34]. In the case of haptic application, this phenomenon is not crippling, but it indicates the presence of electrical and mechanical loss in the structure. As reported in [35,36], it is possible to reduce the hysteresis effect by using a specific control approach, leading to improved accuracy of haptic device.

#### 4.3. Sensors

Assuming a human-machine interface using an electrostrictive polymer technology to present tactile information, a sensor system is essential to ensure interaction. The common solutions consist in adding a ferroelectric or piezoresistive electroactive layer [35,36]. However, this implies an additional cost for realizing the structure. The goal here is to use the same material for both the sensor and

actuator. As demonstrated in Section 2, it is possible to work in pseudo-piezoelectric mode. Consequently, the material can generate electric charges when a mechanical stress is applied.

Fig. 11 displays the temporal evolution of strain and the electric response of an electrostrictive polymer, working in pseudo-piezoelectric mode ( $E_{DC} = 6 \text{ V}/\mu\text{m}$ ). There was a phase-shift between the strain and the generated current; in fact, the transported charge was the key governing the electromechanical conversion. This phase-shift was clearly visible in Eq. (6) since the current was proportional to the time derivative of stress.

Fig. 12 plots the current and charge function of the mechanical excitation. The amount of transported charge was calculated by the time-integration of the measured current. A linear dependence between the electric response and the mechanical solicitation is clearly shown. This linear dependence exists theoretically as demonstrated in Eq. (6) of Section 2.

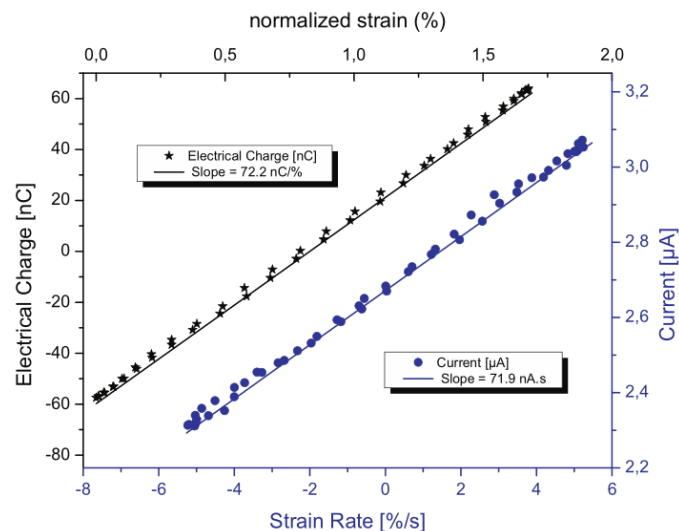


Fig. 12. Electric response in pseudo-piezoelectric mode as a function of the mechanical excitation.

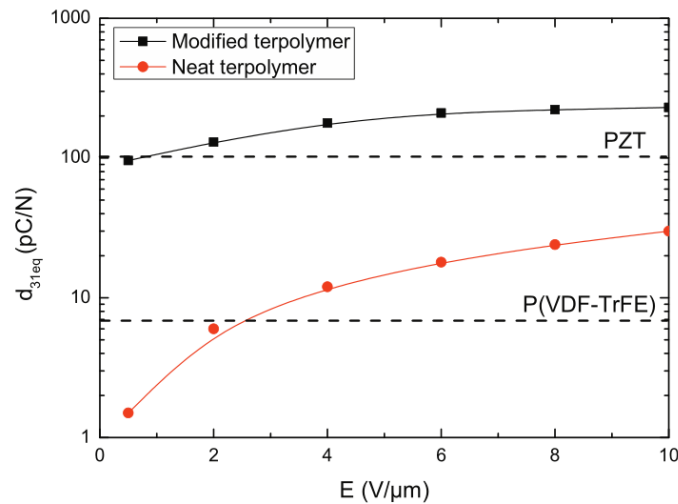


Fig. 13. Pseudo-piezoelectric coefficient at 1 Hz as a function of the static field ( $E_{DC}$ ).

**Table 4**  
Comparison with current technologies.

Criterion	ERM	LRA	Piezoelectric	Electrostrictive
Haptic response	Poor	Average	Good	Good
Acceleration	~1 g	~1–2 g	~1–5 g	~1–3 g
Audible noise	Very noisy	Moderate noise	Silent	Silent
Response time	~50 ms	~30 ms	0.5 ms	~10 ms
Energy consumption	High	Medium	Low	Low
Sensor mode	No	No	Yes	Yes
Flexible (printable)	No	No	Yes	Yes
Cost	Low	Medium	High	Medium

The equivalent piezoelectric coefficient was provided to facilitate the comparison of the electromechanical activities of an electrostrictive material with a common piezoelectric material. It is related to the electrostrictive coefficient according to  $d_{31} = 2 \cdot M_{31} \cdot E_{DC}$ . Fig. 13 gives the evolution of the piezoelectric coefficient as a function of the static electric field ( $E_{DC}$ ). One can see that all organic composites exhibit substantial piezoelectric coefficients equivalent to those of piezoelectric ceramics for an electric field lower than  $10 V/\mu m$ . At this value of the electric field, the neat polymer has only a piezoelectric coefficient equivalent to that of P(VDF-TrFE). These results demonstrate the advantage of operating in pseudo-piezoelectric mode as this facilitates the design (same material for sensing and actuating) and the sensor sensitivity is equivalent to that of a piezoelectric ceramic.

#### 4.4. Comparison

The goal of this part was to compare the current solution with other technologies. As it has been explained before, haptics provide mechanical feedback through the use of vibrations to simulate specific events, surfaces, and effects. It can simulate various surfaces and effects by varying the frequency, amplitude, duration, and direction of a vibration. Currently, three types of actuators have been investigated [37,38]:

- Eccentric rotating mass (ERM),
- Linear resonant actuator (LRA),
- Piezo actuator.

Table 4 provides a comparison between these current technologies and the approach proposed in this paper. The main advantage of electrostrictive polymers concerns the haptic response and the possibility of using the same material as the sensor and actuator. Since it is a new material, the cost is currently high, but it can be decreased for large quantities. Moreover this material can be easily printed, which is very interesting with the development of organic electronics. Compared with piezoelectric materials, electrostrictive polymers have a large frequency bandwidth of working, since they can generate large displacements at low frequencies.

#### 5. Conclusion

The unimorph technology of electrostrictive polymer actuators is well suited to actuate tactile displays. The results show that dynamically generated strain by the all-organic composite corresponded to the range of vibration amplitude detected by human fingers. Moreover, working in pseudo-piezoelectric mode offers the possibility to determine the actual state of deformation. Hence, information of user interaction can easily be derived and tactile feedback can be realized. The use of the new all-organic composite should overcome the major technological barrier, since the electric field required to obtain the same excitation can be reduced sixfold. The next step in this work will be to perform tests with individual persons to determine the subjective impression of perception.

#### Acknowledgement

This research was supported by the Pulsalys company.



## References

- [1] E. Hoggan, S.A. Brewster, J. Johnston, Investigating the effectiveness of tactile feedback for mobile touchscreens, in: *Proceedings of the SIGCHI Conference on Human Factors in Computing Systems*, New York, NY, USA, 2008, pp. 1573–1582.
- [2] S. Lee, S. Zhai, The performance of touch screen soft buttons, in: *Proceedings of the SIGCHI Conference on Human Factors in Computing Systems*, New York, NY, USA, 2009, pp. 309–318.
- [3] H. Nishino, R. Goto, T. Kagawa, K. Utsumiya, J. Hirooka, T. Osada, N. Nagatomo, E. Aoki, An electronic voting system for haptic touchscreen interface, in: 2010 International Conference on Complex, Intelligent and Software Intensive Systems (CISIS), 2010, pp. 1164–1169.
- [4] J.L. Toennies, J. Burgner, T.J. Withrow, R.J. Webster, Toward haptic/aural touchscreen display of graphical mathematics for the education of blind students, in: 2011 IEEE World Haptics Conference (WHC), 2011, pp. 373–378.
- [5] M.J. Pitts, M.A. Williams, T. Wellings, A. Attridge, Assessing subjective response to haptic feedback in automotive touchscreens, in: *Proceedings of the 1st International Conference on Automotive User Interfaces and Interactive Vehicular Applications*, New York, NY, USA, 2009, pp. 11–18.
- [6] M. Jungmann, H.F. Schlaak, Miniaturised electrostatic tactile display with high structural compliance, in: *Proc. of the Eurohaptics 2002*, 2002, pp. 12–17.
- [7] M. Fritschi, M.O. Ernst, M. Buss, Integration of kinesthetic and tactile display: a modular design concept, in: *Proceedings of the EuroHaptics 2006 International Conference*, Paris, France, 2006, pp. 607–612.
- [8] Q.M. Le, M.T. Pham, M. Tavakoli, R. Moreau, J. Simon, T. Redarce, Bilateral control of nonlinear pneumatic teleoperation system with solenoid valves, *IEEE Trans. Control Syst. Technol.* 21 (4) (2013) 1463–1470.
- [9] S.-J. Kim, I. Kymissis, An electrostrictive high dielectric constant fluorinated terpolymer sheet fabricated by a melt and stretch extrusion process, *J. Mater. Sci.* 45 (24) (2010) 6834–6836.
- [10] J.-F. Capsal, M. Lallart, J. Galineau, P.-J. Cottinet, G. Sebald, D. Guyomar, Evaluation of macroscopic polarization and actuation abilities of electrostrictive dipolar polymers using the microscopic Debye/Langevin formalism, *J. Phys. Appl. Phys.* 45 (20) (2012) 205401.
- [11] D. Guyomar, P.-J. Cottinet, L. Lebrun, C. Putson, K. Yuse, M. Kanda, Y. Nishi, The compressive electrical field electrostrictive coefficient M33 of electroactive polymer composites and its saturation versus electrical field, polymer thickness, frequency, and fillers: the electrostrictive coefficient of polymer composites, *Polym. Adv. Technol.* 23 (6) (2012) 946–950.
- [12] D. Guyomar, K. Yuse, P.-J. Cottinet, M. Kanda, L. Lebrun, Focus on the electrical field-induced strain of electroactive polymers and the observed saturation, *J. Appl. Phys.* 108 (11) (2010) 114910.
- [13] J.-F. Capsal, J. Galineau, M. Lallart, P.-J. Cottinet, D. Guyomar, Plasticized relaxor ferroelectric terpolymer: toward giant electrostriction, high mechanical energy and low electric field actuators, *Sens. Actuators Phys.* 207 (2014) 25–31.
- [14] S.K. Kane, M.R. Morris, J.O. Wobbrock, Touchplates: low-cost tactile overlays for visually impaired touch screen users, in: *Proceedings of the 15th International ACM SIGACCESS Conference on Computers and Accessibility*, New York, NY, USA, 2013, pp. 22:1–22:8.
- [15] I. Poupyrev, S. Maruyama, Tactile interfaces for small touch screens, in: *Proceedings of the 16th Annual ACM Symposium on User Interface Software and Technology*, New York, NY, USA, 2003, pp. 217–220.
- [16] K.A. Kaczmarek, J.G. Webster, P. Bach-y-Rita, W.J. Tompkins, Electrotactile and vibrotactile displays for sensory substitution systems, *IEEE Trans. Biomed. Eng.* 38 (1) (1991) 1–16.
- [17] E. Kandel, *Principles of Neural Science*, fifth edition, McGraw Hill Professional, 2013.
- [18] T.P. Way, K.E. Barner, Automatic visual to tactile translation – part I: human factors, access methods, and image manipulation, *IEEE Trans. Rehabil. Eng. Publ. IEEE Eng. Med. Biol. Soc.* 5 (1) (1997) 81–94.
- [19] A.M.L. Kappers, Haptics: Generating and Perceiving Tangible Sensations: International Conference, EuroHaptics 2010, Amsterdam, July 8–10, 2010: *Proceedings*, Springer, 2010.
- [20] W. McMahan, K.J. Kuchenbecker, Haptic display of realistic tool contact via dynamically compensated control of a dedicated actuator, in: *IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems*, 2009. IROS 2009, 2009, pp. 3170–3177.
- [21] Y. Liu, K. Ren, H.F. Hofmann, Q. Zhang, Electrostrictive Polymers for Mechanical Energy Harvesting, vol. 5385, 2004, pp. 17–28.
- [22] C. Huang, Q. Zhang, Enhanced dielectric and electromechanical responses in high dielectric constant all-polymer percolative composites, *Adv. Funct. Mater.* 14 (5) (2004) 501–506.
- [23] L. Wang, M. Lallart, L. Petit, L. Lebrun, P.-J. Cottinet, D. Guyomar, Low-cost charge of electrostrictive polymers for efficient energy harvesting, *J. Intell. Mater. Syst. Struct.* (2014), 1045389X14549866.
- [24] F. Belhora, P.-J. Cottinet, D. Guyomar, L. Petit, L. Lebrun, A. Hajjaji, M. Mazroui, Y. Boughaleb, Optimization of energy harvesting conversion using the hybridization of electrostrictive polymers and electrets, *Sens. Actuators Phys.* 189 (2013) 390–398.
- [25] P.-J. Cottinet, D. Guyomar, B. Guiffard, L. Lebrun, C. Putson, Electrostrictive polymer composite for energy harvesters and actuators, *J. Polym. Eng.* 31 (2–3) (2011).
- [26] P.-J. Cottinet, M. Lallart, D. Guyomar, B. Guiffard, L. Lebrun, G. Sebald, C. Putson, Analysis of AC-DC conversion for energy harvesting using an electrostrictive polymer P(VDF-TrFE-CFE), *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* 58 (1) (2011) 30–42.
- [27] F. Bauer, Relaxor fluorinated polymers: novel applications and recent developments, *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.* 17 (4) (2010) 1106–1112.
- [28] M. Lallart, J.-F. Capsal, G. Sebald, P.-J. Cottinet, D. Guyomar, Converse electrostrictive effect in dielectric polymers, *Sens. Actuators B Chem.* 190 (2014) 259–264.
- [29] S.T. Choi, J.Y. Lee, J.O. Kwon, S. Lee, W. Kim, Varifocal liquid-filled microlens operated by an electroactive polymer actuator, *Opt. Lett.* 36 (10) (2011) 1920–1922.
- [30] S.T. Choi, J.O. Kwon, F. Bauer, Multilayered relaxor ferroelectric polymer actuators for low-voltage operation fabricated with an adhesion-mediated film transfer technique, *Sens. Actuators Phys.* 203 (2013) 282–290.
- [31] G. Kofod, H. Stoyanov, R. Gerhard, Multilayer coaxial fiber dielectric elastomers for actuation and sensing, *Appl. Phys. A* 102 (3) (2010) 577–581.
- [32] T.-B. Xu, Z.-Y. Cheng, H. Xu, W. Chen, K. Uchino, Q.M. Zhang, Electrostrictive P(VDF-TrFE) copolymer-based high-performance micromachined unimorph actuators, *SPIE Proc.* (2001) 133–140.
- [33] H. Richter, E.A. Misawa, D.A. Lucca, H. Lu, Modeling nonlinear behavior in a piezoelectric actuator, *Precis. Eng.* 25 (2) (2001) 128–137.
- [34] P.-J. Cottinet, M.-Q. Le, J. Degraff, C. Souders, Z. Liang, B. Wang, C. Zhang, Strain phenomenon in carbon nanotube buckpaper actuator: experiments and modeling, *Sens. Actuators Phys.* 194 (2013) 252–258.
- [35] M.R. Cutkosky, J. Ulmen, Dynamic tactile sensing, in: R. Balasubramanian, V.J. Santos (Eds.), *The Human Hand as an Inspiration for Robot Hand Development*, Springer International Publishing, 2014, pp. 389–403.
- [36] D.D. Rossi, Artificial tactile sensing and haptic perception, *Meas. Sci. Technol.* 2 (11) (1991) 1003.
- [37] M. Lowe, A. King, E. Lovett, T. Papakostas, Flexible tactile sensor technology: bringing haptics to life, *Sens. Rev.* 24 (1) (2004) 33–36.
- [38] N. Marquardt, M.A. Nacenta, J.E. Young, S. Carpendale, S. Greenberg, E. Sharlin, The haptic tabletop puck: tactile feedback for interactive tabletops, in: *Proceedings of the ACM International Conference on Interactive Tabletops and Surfaces*, New York, NY, USA, 2009, pp. 85–92.

## Annexe 3

# SCIENTIFIC REPORTS

OPEN

## All-organic electrostrictive polymer composites with low driving electrical voltages for micro-fluidic pump applications

Received: 12 March 2015

Accepted: 08 June 2015

Published: 03 July 2015

Minh Quyen Le<sup>1</sup>, Jean-Fabien Capsal<sup>1</sup>, Jérémy Galineau<sup>1</sup>, Florent Ganet<sup>1</sup>, Xunqian Yin<sup>1</sup>, Mingchia (Dawn) Yang<sup>4</sup>, Jean-François Chateaux<sup>2</sup>, Louis Renaud<sup>2</sup>, Christophe Malhaire<sup>3</sup>, Pierre-Jean Cottinet<sup>1</sup> & Richard Liang<sup>4</sup>

This paper focuses on the improvement of a relaxor ferroelectric terpolymer, i.e., poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene-chlorofluoroethylene) [P(VDF-TrFE-CFE)], filled with a bis(2-ethylhexyl) phthalate (DEHP). The developed material gave rise to a significantly increased longitudinal electrostrictive strain, as well as an increased mechanical energy density under a relatively low electric field. These features were attributed to the considerably enhanced dielectric permittivity and a decreased Young modulus as a result of the introduction of only small DEHP plasticizer molecules. In addition, the plasticizer-filled terpolymer only exhibited a slight decrease of the dielectric breakdown strength, which was a great advantage with respect to the traditional polymer-based electrostrictive composites. More importantly, the approach proposed herein is promising for the future development and scale-up of new high-performance electrostrictive dielectrics under low applied electrical fields through modification simply by blending with a low-cost plasticizer. An experimental demonstration based on a flexible micro-fluidic application is described at the end of this paper, confirming the attractive characteristics of the proposed materials as well as the feasibility of integrating them as micro-actuators in small-scale devices.

Actuators are controllable work-producing devices, based on various physical principals, exhibiting a wide array of performance capabilities<sup>1-3</sup>. The choice of a particular material for an actuator application depends on several performance metrics<sup>1</sup>. Electroactive polymers (EAPs) are materials capable of realizing energy conversion between electrical and mechanical energy, and have attracted great attention from researchers during the past decades for their potential applications in the fields of artificial muscles, actuators and energy harvesting<sup>3,4</sup>. Furthermore, EAPs possess numerous advantages such as low densities, mechanical flexibility, ease of processing, excellent electrical insulation properties and low cost, making them good candidates for practical applications<sup>5,6</sup>.

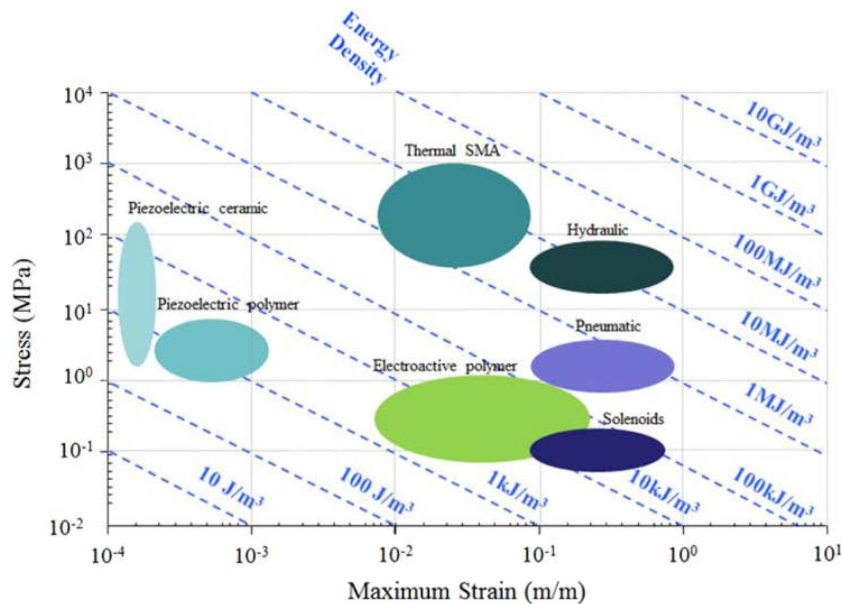
Among all EAPs, ferroelectric PVDF, its copolymers poly(vinylidene fluoride-co-trifluoroethylene) [P(VDF-TrFE)], and the terpolymer poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene-chlorofluoroethylene) [P(VDF-TrFE-CFE)] have been intensively investigated due to their very high electromechanical and electrocaloric responses<sup>7-10</sup>. Table 1 presents the electromechanical properties of such ferroelectric

<sup>1</sup>Laboratoire de Génie Electrique et Ferroélectricité (LGEF), INSA Lyon, 69621 Villeurbanne, France. <sup>2</sup>Université de Lyon, Institut des Nanotechnologies de Lyon INL-UMR5270, CNRS, Université Lyon 1, Villeurbanne, F-69622, France. <sup>3</sup>Université de Lyon, Institut des Nanotechnologies de Lyon INL-UMR5270, CNRS, INSA de Lyon, 7 av. Jean Capelle, bât. Blaise Pascal, Villeurbanne, F-69621, France. <sup>4</sup>High-Performance Materials Institute (HPMI) Florida State University Materials Research Building 2005 Levy Ave, Tallahassee, FL 32310, USA. Correspondence and requests for materials should be addressed to J.-F.C. (email: jean-fabien.capsal@insa-lyon.fr)

### Annexe 3. All-organic electrostrictive polymer composites with low driving electrical voltages for micro-fluidic pump applications

Materials	Y(Gpa)	S <sub>m</sub> (%)	YS <sub>m</sub> <sup>2</sup> /2 (J/cm <sup>3</sup> )	E(V/μm)
Irradiated P(VDF-TrFE) [11]	0.38	4	0.3	150
P(VDF-TrFE-CFE)/CuPc [12]	0.75	1.91	0.13	13
P(VDF-TrFE-CFE) [13]	0.3	4.5	1.1	130
P(VDF-TrFE-CTFE) [14]	0.4	4	0.32	150

**Table 1.** Comparison of electromechanical properties of ferroelectric relaxor polymers.



**Figure 1.** Typical stress and strain characteristics of actuation technologies.

polymers. However, a requirement is currently unmet in actuation technologies: actuators do not provide the soft, smooth motions<sup>2,3</sup> needed for mimicking the flow and pumping of blood in veins.

The property chart in Fig. 1 provides a comparison of electrostrictive polymers as well as other common actuators for two important actuation metrics including actuation stress and strain. As is known, smart materials like piezoceramics, magnetostrictive materials, shape memory alloys, etc. are usually used in the construction of low-strain actuators<sup>11,12</sup>. For instance, magnetostrictive or piezoelectric materials exhibit a typical actuation strain of only 10<sup>-3</sup>%<sup>13</sup>. Shape Memory Alloys, SMAs, on the other hand, allow significant actuation stress and strain but their typical working frequency is below 1 Hz<sup>14</sup>. Electrostrictive polymers, which can provide larger strain values and better dynamic properties as well as a sensing mechanism, are therefore interesting candidates for transducer applications.

However, most current actuation mechanisms depend on the electromagnetic devices, resulting in difficult fabrication at small length scales<sup>11</sup>. Typically, in magnetic MEMS devices, the maximum achievable displacement is between 10<sup>-5</sup> and 10<sup>-3</sup> m and the maximum force is between 10<sup>-7</sup> and 10<sup>-4</sup> N<sup>15</sup>. Hence, an existing challenge today is the development of electrostrictive systems with high mechanical energy density making it possible to attain greater work and force output at the microscale.

Electrostrictive polymers are attractive candidates for micro-actuator applications due to an easy manufacturing and a high mechanical energy density. Previous research has demonstrated a feasibility of employing an electrostrictive polymer as an actuator; showing that the actuation stress values of electrostrictive polymer surpasses the maximum sustainable stress values of mammalian skeletal muscles<sup>8,16</sup>. Recently, improvements in electrostrictive performance have significantly increased its competitiveness, especially among high electric field-driven actuators. It is clear from Fig. 1 that the main limitation of

### Annexe 3. All-organic electrostrictive polymer composites with low driving electrical voltages for micro-fluidic pump applications

electrostrictive polymers is the level of actuation stress, which needs to be considerably improved, and, as well, the electric field in order to obtain large strains.

For dielectric polymers, the electrostrictive strain under an electric field can be mainly attributed to Maxwell forces induced by dipolar orientation within the material<sup>17,18</sup>. In the longitudinal direction, the compressive Maxwell strain and the mechanical energy density under the electric field are given by equations (1) and (2), respectively:

$$S_{33} = -\frac{\varepsilon\varepsilon_0}{2Y}(1+2\nu)E^2 = -M_{33}\frac{(1+2\nu)}{2}E^2 \quad (1)$$

$$E_m = \frac{1}{2}YS_{33}^2 \quad (2)$$

where  $S_{33}$  is the longitudinal strain along the thickness direction,  $E_m$  is the mechanical energy density,  $\varepsilon$  is the relative dielectric permittivity of the material,  $\varepsilon_0$  is the vacuum dielectric permittivity,  $\nu$  is the Poisson ratio,  $Y$  is the Young modulus,  $E$  is the applied electric field and  $M_{33}$  is the longitudinal electrostrictive strain constant.

It can be easily deduced from equation (1) that the large electric fields required to achieve sufficient electrostrictive strains (a few percent) can be overcome by reducing the Young modulus of the polymer and/or increasing the dielectric permittivity. However, for low frequencies, typically below 10 Hz for actuator applications, the mechanical energy density, determined by equation (2), must also be enhanced. As a result, the increase in strain must be more significant than the decrease in the material's elasticity modulus.

Recently, Capsal<sup>16</sup> *et al.* proposed an easy solution to increase the electromechanical performances of a fluorinated terpolymer. The results showed that the doping of the polymer with a plasticizer led to an increase in molecular mobility of the macromolecule, inducing a decrease of the material's Young modulus. Since many polymers are heterogeneous systems by nature, an increased molecular mobility enables - above the glass transition temperature and under an applied electric field - the trapping of charges at the boundaries of the heterogeneities within the polymer due to chain movement and morphological changes<sup>19</sup>.

In the case of semi-crystalline polymers, the charges trapped at the amorphous/crystalline phase boundaries induce large Maxwell-Wagner-Sillars polarization effects. This kind of interfacial polarization is associated with a significant increase of the dielectric permittivity at low frequency. Thus, choosing an adequate polymer matrix/plasticizer combination will enable the generation of large macroscopic dipoles associated with phase heterogeneities while reducing the Young modulus of the polymer, and thus increasing its dielectric permittivity. As a consequence, as shown in Equations (1) and (2), such phase engineering enhances both the electrostrictive strain and the generated mechanical energy density.

Here we first propose an all-organic polymer based on the P(VDF-TrFE-CFE) terpolymer matrix filled with the DEHP plasticizer to achieve an adequate heterogeneous morphology to enhance the actuation performance. Subsequently, such a material is applied in the development of a micro-fluidic pump.

Figure 2 shows DSC thermograms of the P(VDF-TrFE-CFE)/DEHP composites around their melting peaks. Each thermogram was normalized based on the mass of P(VDF-TrFE-CFE). As expected, it can be seen in Fig. 2 that the introduction of DEHP resulted in a significant linear decrease of the melting temperature from 129 °C for the pure terpolymer to 122 °C for a P(VDF-TrFE-CFE)/DEHP composite with a DEHP mass fraction of 15wt%. This effect can be interpreted as plasticization of a polymer matrix<sup>20</sup>.

The melting peak enthalpy of the composites was normalized based on the amount of pure polymer and the melting peak width was taken at the half-peak height. An increase of the melting enthalpy of up to 15wt% was observed with the presence of DEHP, which implies that the addition of DEHP improved the crystallinity of the polymer to an extent of 15wt%. This can be explained by the enhanced molecular mobility of the macromolecular chains when incorporating a small quantity of plasticizer molecules.

Moreover, the composites displayed the same melting peak width of 13 °C as the pure terpolymer. The lack of dependence of the melting peak width on the DEHP content indicates that the DEHP molecules did not significantly affect the heterogeneity of the crystalline phase.

Figure 3 presents the stress versus strain curves from the measurements on the pure terpolymer and the composites with a DEHP mass fraction of 15wt%. The Young modulus of the terpolymers was extracted from the linear dependence of the stress on the strain (Fig. 3). The elasticity modulus of the neat terpolymer was calculated at  $E = 110$  MPa. As observed in Fig. 3, a 2.5-fold decrease of the Young modulus was obtained for the P(VDF-TrFE-CFE) terpolymer filled with a 15wt% mass fraction of DEHP (Fig. 3b). Compared with other organic/inorganic electrostrictive polymer approaches, the advantage of using the DEHP plasticizer was its ability to largely maintain flexibility and toughness in the neat polymer.

Figure 4 depicts the influence of the doping agent on the low-frequency dielectric properties of the composites through dynamic dielectric spectroscopy measurements in a frequency range of 0.1 Hz to 100 Hz. The relative dielectric permittivity of the neat terpolymer remained almost constant at  $\varepsilon = 50$  over the whole investigated frequency range. The doping of the fluorinated terpolymer with DEHP

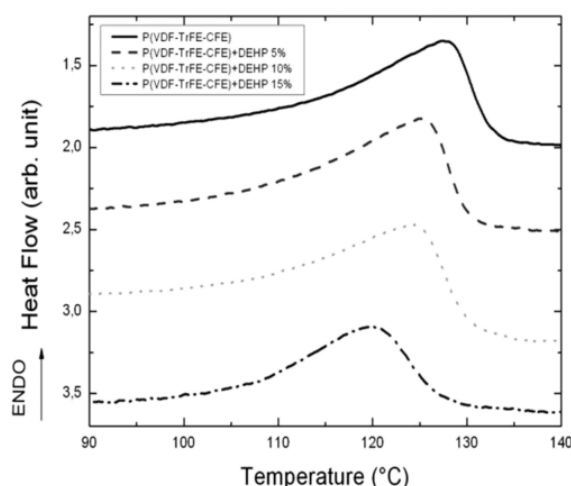


Figure 2. DSC thermograms for P (VDF-TrFE-CFE) polymers with different mass fractions of DEHP.

resulted in a significant enhancement of the low-frequency dielectric permittivity. For example at 0.1 Hz, the dielectric permittivity of the composites increased from 120 to 820 for the composites with a DEHP mass fraction between 5wt% and 15wt%. As expected, when the frequency decreased, the dielectric permittivity of the P(VDF-TrFE-CFE) composites increased. However, such an enhancement of the dielectric permittivity at low-frequency is usually accompanied by an amplification of the dielectric losses within the material.

As is illustrated in Fig. 4b, an increased dielectric loss of the materials with DEHP was observed at lower frequency range. The dramatically enhanced dielectric permittivity and the increased dielectric losses at low frequency were in accordance with the interfacial polarization according to the well-known Maxwell-Wagner-Sillars (MWS) polarization model<sup>21,22</sup>. The introduced plasticizer tended to improve the molecular mobility and thus enhance the probability of the charges becoming trapped at the heterogeneous boundaries within the polymer matrix. For all the samples, the increase of the dielectric losses at high frequency, i.e., above  $10^3$  Hz, was ascribed to the dipolar orientation of the semi-crystalline terpolymer matrix<sup>8,23</sup>.

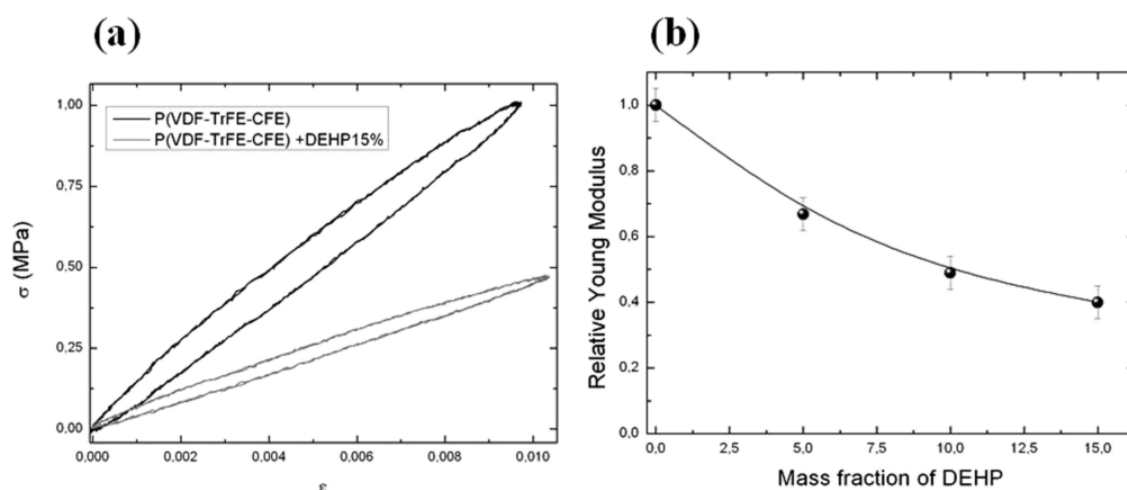
Figure 5 presents the electric field-induced longitudinal strain as a function of the applied electric field for both the pure terpolymer and its plasticizer-modified counterparts at a frequency of 0.1 Hz. As can be seen in Fig. 5a, the incorporation of DEHP largely improved the longitudinal electrostrictive strain of the terpolymer. Under an electric field of  $10 \text{ V}/\mu\text{m}$ , a thickness strain of  $S_{33} = 1.8\%$  was achieved, which was 28 times higher than the strain observed in the pure terpolymer control sample. Meanwhile, the field-induced strain exhibited a quadratic dependence with the applied electric field, determined by equation (1).

It has been found that, in addition to the applied electric field, the electrostrictive strain is mainly determined by the dielectric permittivity and the Young modulus of the dielectric polymers. The greatly improved longitudinal strain at low frequency presented here was primarily caused by the aforementioned significantly increased dielectric permittivity and decreased Young modulus of the polymers with the introduction of DEHP.

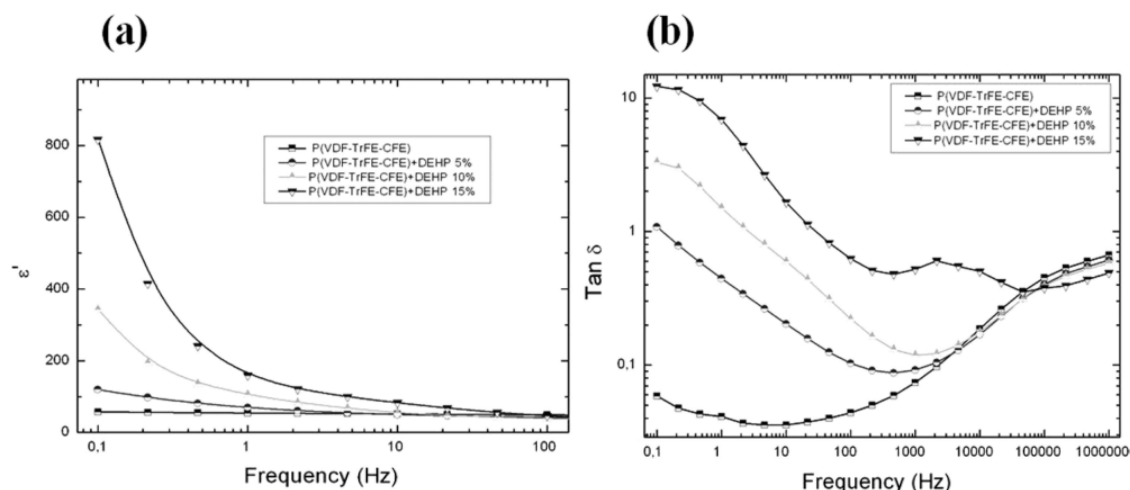
However, this 28-fold increase of  $S_{33}$  did not match the ratio between the longitudinal electrostrictive strain constant ( $M_{33}$ ) of the filled and neat terpolymers, which was calculated from Equation 1 using the measured values of the dielectric permittivity (at a 0.1 Hz frequency) and the Young modulus. According to the theory, a twofold increase should be achieved. Consequently, another effect must be taken into account in order to precisely describe and predict the real electrostrictive strain of such materials.

Figure 5b shows the longitudinal electrostrictive strain of the P(VDF-TrFE-CFE) +15wt% DEHP composite versus the square of the electric field. A linear relationship was found to exist between the longitudinal electrostrictive strain and the square of the applied electric field under a  $6.7\text{-V}/\mu\text{m}$  electric field. This phenomenon depicts a pure Maxwell strain behavior due to a constant dielectric permittivity. In other words, the longitudinal electrostrictive strain constant  $M_{33}$  was no longer a constant above the electric field of  $6.7 \text{ V}/\mu\text{m}$ , and a saturation of the electrostrictive strain occurred.

This interesting aspect can be interpreted as a saturation of the dipolar orientation. It has previously been shown that the dipolar saturation of the neat terpolymer leads to a non-quadratic dependence of the longitudinal electrostrictive strain. For the neat terpolymer<sup>17,18</sup>, the saturation electric field was nearly  $E_{sat} = 50 \text{ V}/\mu\text{m}$  and was closely related to the dipolar orientation saturation of the dipoles of the crystalline phase within the terpolymer. Such dipolar orientation saturation is associated with a decrease of the



**Figure 3.** (a) Longitudinal stress-strain curves and (b) relative Young modulus (normalized to the Young modulus of the neat terpolymer) for P(VDF-TrFE-CFE) polymers with different mass fractions of DEHP.

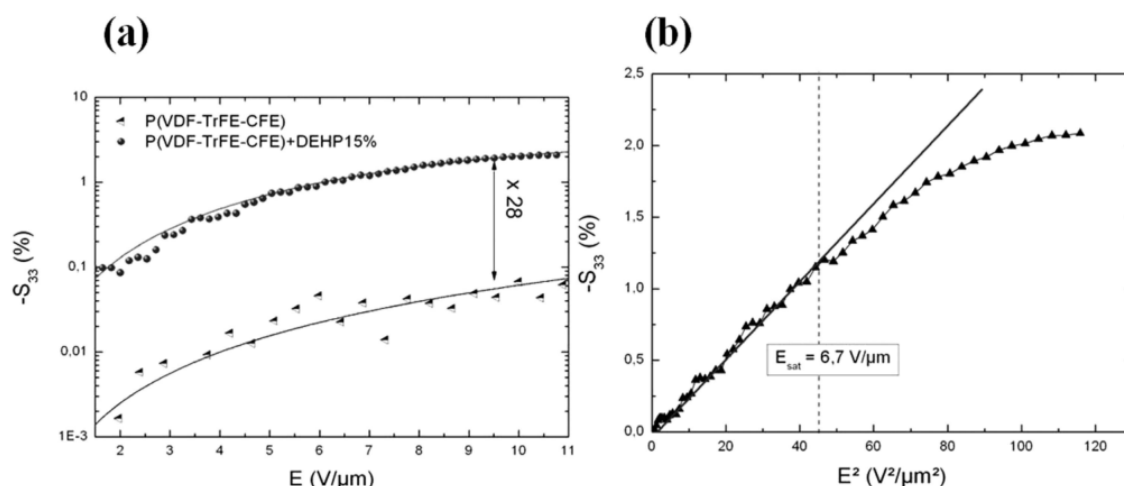


**Figure 4.** (a) Dielectric permittivity and (b) dielectric loss as functions of frequency at room temperature for the P(VDF-TrFE-CFE) polymers with different mass fractions of DEHP.

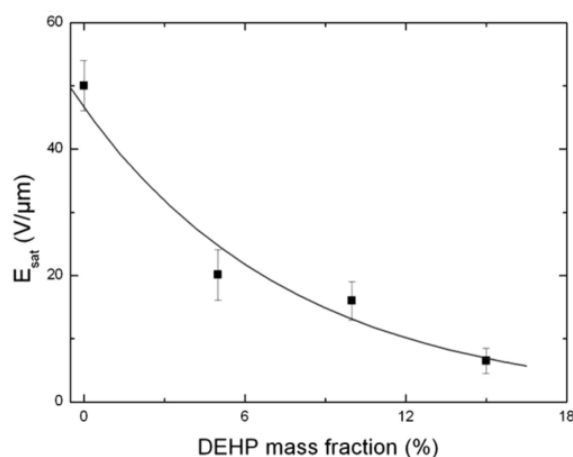
dielectric permittivity above this electric field. For the filled terpolymer, the saturation electric field was abnormally low compared to the classical dipolar orientation. Since the increase of the dielectric permittivity is associated with charges trapped at heterogeneities - inducing large dipoles moments - the very low saturation electric field seemed related to the saturation of interfacial phenomena above a saturation electric field of  $6.7 \text{ V}/\mu\text{m}$ .

In order to further understand the saturation effect, Fig. 6 illustrates an estimation of the electric field saturation ( $E_{sat}$ ) of polymers with different mass fractions of DEHP from the strain versus electric field measurements. It has been shown that the saturation electric field of the P(VDF-TrFE-CFE) + 15wt% of DEHP decreased exponentially to the amount of doping agent from  $E_{sat} = 50 \text{ V}/\mu\text{m}$  for the neat terpolymer to  $E_{sat} = 6.7 \text{ V}/\mu\text{m}$ . As the DEHP content was raised, the molecular mobility within the polymer increased, leading to a higher mobility of the charge carriers<sup>22,24</sup>. Above the saturation electric field of the interfacial polarization phenomena, trapped charges impeded the movement of the carriers thus causing a lower dielectric permittivity of the composite and as a result, a saturation of the electric field-induced electrostrictive strain.

Based on the physical properties of the composites, it became possible to predict the electrostrictive performances of the filled fluorinated terpolymers as a function of the applied electric field and DEHP



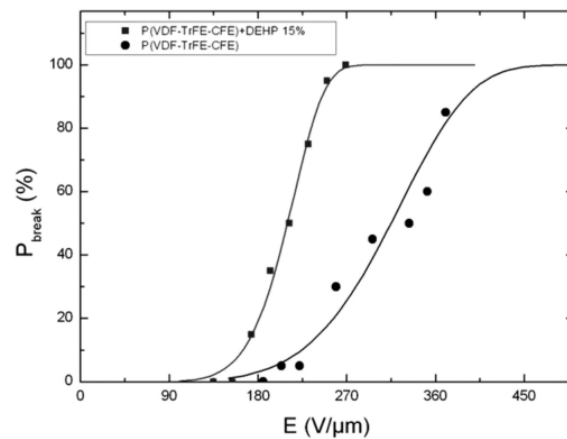
**Figure 5.** (a) Longitudinal electrostrictive strain versus the applied electric field for P(VDF-TrFE-CFE) and its composites with a DEHP mass fraction of 15wt% (scatter) (the lines serve as guides to the eye). (b) Longitudinal electrostrictive strain versus the squared applied electric field for the terpolymer and its composites with a DEHP mass fraction of 15wt% at 0.1 Hz. The solid line represents the theoretical values described with the Maxwell effect using eq. (1).



**Figure 6.** Evolution of the saturation electric field for the P (VDF-TrFE-CFE) polymers with different mass fractions of DEHP.

content in order to tailor the electroactive polymer for practical applications. At a low electric field, the electrostrictive strain increased with the DEHP content until  $E = 6.7 V/\mu m$ . Above this value, the strain of the terpolymer +15wt% plasticizer leveled off whereas the one with 10% continued to increase. Thus, for practical applications, the terpolymer with 15wt% DEHP provided a more suitable fit to the requirements at a low electric field whereas in the case of higher electric fields, the 10% composite seemed more appropriate.

The dielectric breakdown strength plays a crucial role in the electrostrictive properties of dielectric polymers since it determines the practical operation electric field. During the past decades, various organic or inorganic filler-based composites have been developed to improve the electrostrictive strain of dielectric polymers<sup>24,25</sup>. However, most of these composites exhibit a large increase of the dielectric properties as well as a dramatic decrease of the dielectric breakdown strength. This is due to dispersion and surface charge accumulation between the fillers and the polymer matrix thus limiting the number of practical applications.



**Figure 7.** Weibull probability analysis for the dielectric breakdown strength of P (VDF-TrFE-CFE) and its composites with a DEHP mass fraction of 15wt%.

One of the main benefits of the approach proposed in this study is the limited effect of the doping agent on the dielectric breakdown strength of the polymer. Fig. 7 illustrates the dielectric breakdown strength of the investigated polymers using Weibull analysis. A small decrease of the dielectric voltage breakdown was achieved from  $E = 180 \text{ V}/\mu\text{m}$  for the neat terpolymer to  $E = 150 \text{ V}/\mu\text{m}$  for the terpolymer filled with 15wt% DEHP. The two curves shown in Fig. 7 indicate the top and bottom bounds of the electric field that can be applied. The composites with 5wt% and 10 wt% are between these two bounds. Moreover, the mechanism of dielectric breakdown for solid dielectrics is extremely complicated as it depends on a number of factors including molecular structure, material impurity, sample geometry, type of electrodes, ambient conditions as well as the frequency and duration of the applied electric field.

The most common breakdown mechanisms are intrinsic breakdown, thermal breakdown, electromechanical breakdown and internal discharges<sup>26</sup>. Compared with the same electrostrictive performances, the dielectric voltage breakdown of P(VDF-TrFE-CFE) filled with CuPc<sup>3</sup> was reported to be  $E_{breakdown} = 13 \text{ V}/\mu\text{m}$ . The solution proposed by Zhang *et al.*<sup>3</sup> demonstrates the possibility to use conductive fillers to increase the dielectric permittivity by the fact that free charges not only contribute to conduction, but can also give rise to Maxwell-Wagner polarization. Nevertheless, as a drawback, such insulator-conductive composite systems tend to show losses with a percolative behavior, which may result in a dramatic increase of their conductivity for filler concentrations exceeding the percolation threshold.

Unfortunately, the maximum increase of the composite permittivity is achieved close to the percolation threshold. The parallel increases of both the dielectric permittivity and the overall losses are, of course, antagonistic. This effect seriously compromises the applicability of such types of systems as electromechanical transduction materials, due to their typically low dielectric strengths. Hence, the doping effect of (2-ethylhexyl) phthalate does not only hugely enhance the electrostrictive performances of the terpolymer but also limits its electrical and mechanical fragility, compared to conventional composites. The physical properties of this new all-organic composite make this polymer one of the most suitable dielectric materials for actuators and devices. In addition, the economic cost of CuPc is 1000-fold that of the plasticizer used, making application of the composite proposed by Zhang *et al.* very complex with regard to the socio-economic world<sup>3</sup>.

To further demonstrate the potential of the new all-organic composite, a specific micro-pump has been designed and tested. Indeed, micro-pumps have been studied for decades and have received much attention and interest due to a great number of applications for a broad range of modern technologies such as microfluidic techniques, biosensors, chemical analysis and delivery<sup>27,28</sup>. Various micro-pumps have been manufactured using several actuation methods including electrostatic<sup>29</sup>, piezoelectric<sup>30</sup>, thermopneumatic<sup>31</sup>, shape memory alloy<sup>32</sup> and electromagnetic<sup>32</sup> technologies. Nonetheless, all current solutions present technological challenges, for example a sometimes insufficient displacement generated by the piezoelectric element, or SMA and thermopneumatics limited to a very low frequency range, etc<sup>30-32</sup>.

The micro-pump investigated in this study is displayed in Fig. 8 and a schematic of the nozzle diffuser architecture with the pumping chamber is given in Fig. 9. A unimorph type of diaphragm actuator consisting of electrostrictive P(VDF-TrFE-CFE) with 15wt% of DEHP was used. A 50- $\mu\text{m}$  thick all-organic composite was metalized on both sides with 25nm of a gold electrode which was patterned using a shadow mask (Cressington High Resolution Sputter Coater (208HR)). The sizes of the polymer films and gold electrodes were 4.5 cm  $\times$  0.5 cm and 2.5 cm  $\times$  0.5 cm, respectively (Fig. 10b). An overlapping region



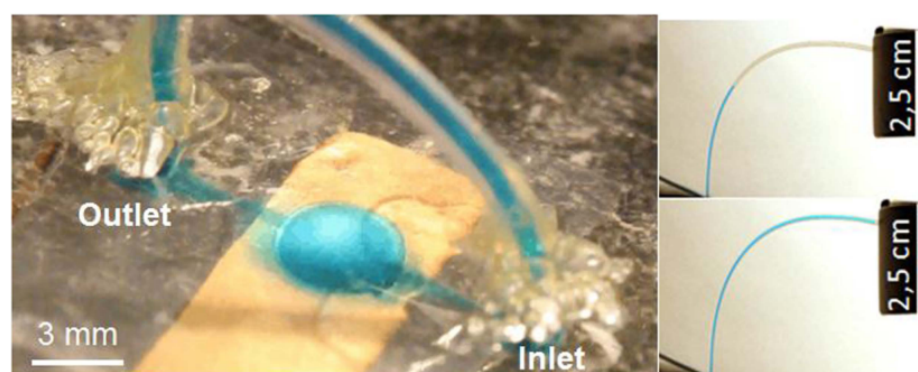


Figure 8. Photographs of the micro-pumping system (left) and outlet tube (right) before and after actuation of the pumping membrane.

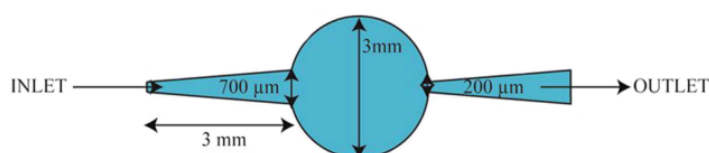


Figure 9. Schematic of the nozzle/diffuser architecture.

of the top and bottom electrodes with a size of  $0.5\text{ cm} \times 0.5\text{ cm}$  was used as the driving membrane for micropumps, as clearly illustrated in Fig. 10c.

A circular pump chamber with a 3-mm diameter was used. This chamber dimension is typical of a fluidic pump using an electroactive material<sup>28</sup>. A rectangular nozzle/diffuser design with two parallel walls (top and bottom) and two converging/diverging walls (sides) was selected and is illustrated in Fig. 9. It was chosen since Olson *et al.* demonstrated that a planar diffuser can give a more compact micro-pump than a conical diffuser, due to the length for the length for the conical diffuser with the best performance being 10%–80% longer than that of its planar counterpart.

The pumping chamber, the nozzle/diffuser and the inlet and outlet chambers were engraved in PMMA using a micro-milling machine (Roland EGX 350). The depth of the channel, nozzle and pump chamber was  $100\text{ }\mu\text{m}$ . The choice of nozzle and diffuser dimensions was based on results reported in the literature<sup>33,34</sup>. The as-prepared pump without a driven membrane is illustrated in Fig. 10a (Plate A). Two through-holes were drilled at the inlet and outlet and plastic tubes with an inner diameter of  $380\text{ }\mu\text{m}$  were attached to these holes from the back using epoxy glue as displayed in Fig. 8.

Figure 10d presents the assembly process of the micropump system. The metalized electrostrictive film was bonded to the engraved plate A with the electrode-overlapping region coinciding with the pumping chamber using an acrylic pressure-sensitive adhesive (3M ATG 969). The top electrode can be connected to the applied electric field through hole 2 and the bottom electrode can be connected to the ground via hole 1 (as shown in Fig. 10a). Subsequently, plate A and plate B were clamped with screws through holes 3–10. When the actuator was electrically actuated, the diaphragm bent up and down, pumping the fluid through the channel along the preferred flow direction determined by the nozzle and diffuser structures. This fabrication process is relatively low-cost and allows single-step integration of multiple active membranes into a microfluidic chip. As a promising perspective, the proposed electro-active polymer can also be integrated by thermoforming.

The implementation of the new all-organic electroactive polymer into an active pumping membrane made it possible to get a flow rates as high as  $8\text{ }\mu\text{l}\cdot\text{min}^{-1}$  with almost 250 Pa back pressure under only  $15\text{-V}\cdot\mu\text{m}^{-1}$  electric fields at 1 Hz (Fig. 11). Pumping efficiency values were measured according to the pumping characterization developed by Zhang *et al.*<sup>35</sup>. Similar orders of magnitude for the flow rates ( $25\text{ }\mu\text{l}\cdot\text{min}^{-1}$  at 63 Hz) and the pressure (350 Pa) were achieved by Zhang *et al.*<sup>35</sup> but with much a higher electric field of  $90\text{ V}\cdot\mu\text{m}^{-1}$  for the same nozzle diffuser architecture. Thanks to the considerably lower electric field applied to our new electroactive polymer, the probability of electrical failure was significantly reduced, resulting in an enhanced reliability at the integration time and an improved lifetime, as well as a lower voltage power supply.

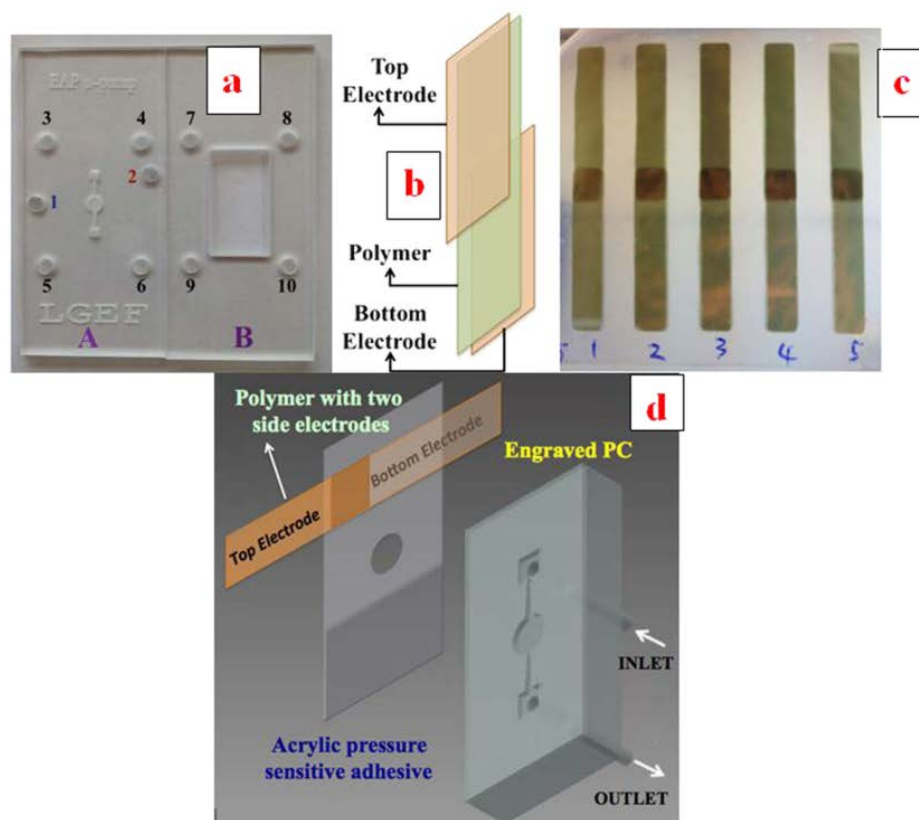


Figure 10. Split schematic of the assembly process of the micro-pumping system.

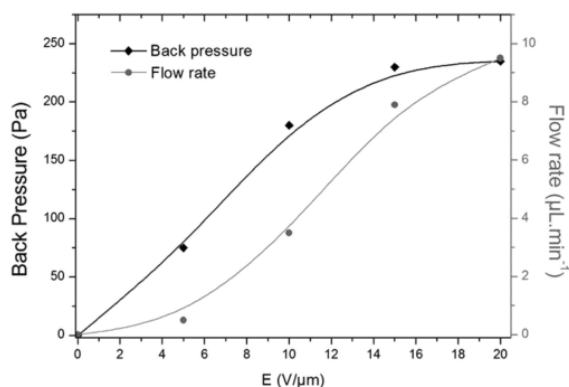


Figure 11. Flow rate and back pressure function of the electric field at 1 Hz (the lines serve as guides to the eye).

The materials developed via a simple mixing process could potentially lead to a low-cost fabrication and the complete integration into microfluidic devices. Only one application, i.e., that of a micro-pump, has been demonstrated in this paper but other microfluidic applications such as valves could be also envisioned. This new material potential breaks the technological limitations of high voltage needed for actuation of “electronic” EAPs in microfluidic and micro-electromechanical systems (MEMS).

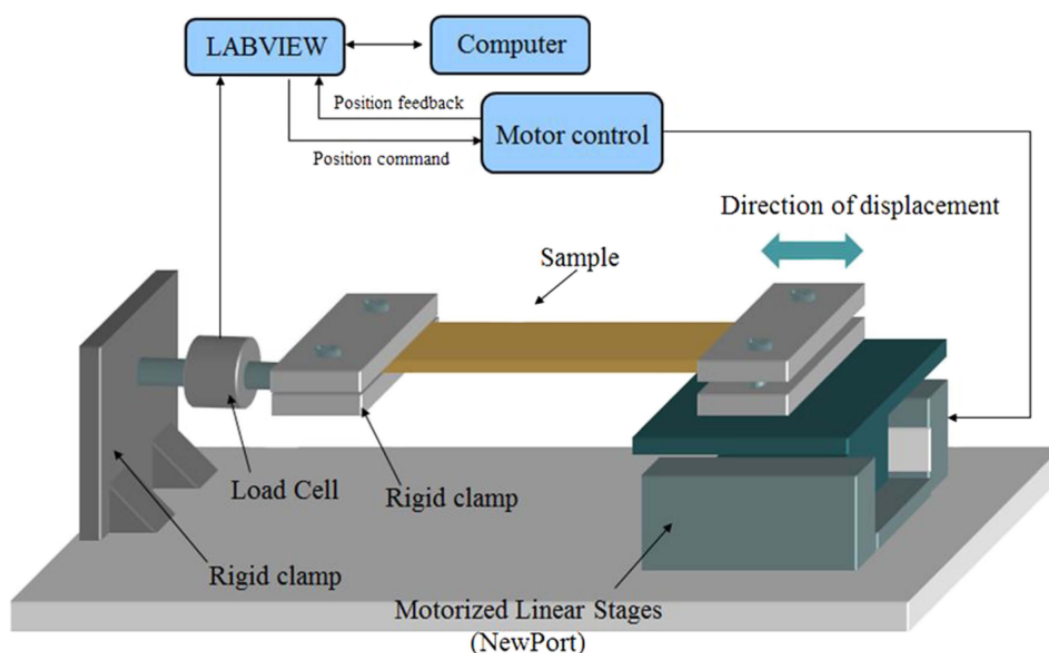


Figure 12. Schematic of the equipment for the stress-strain measurements.

### Experimental section

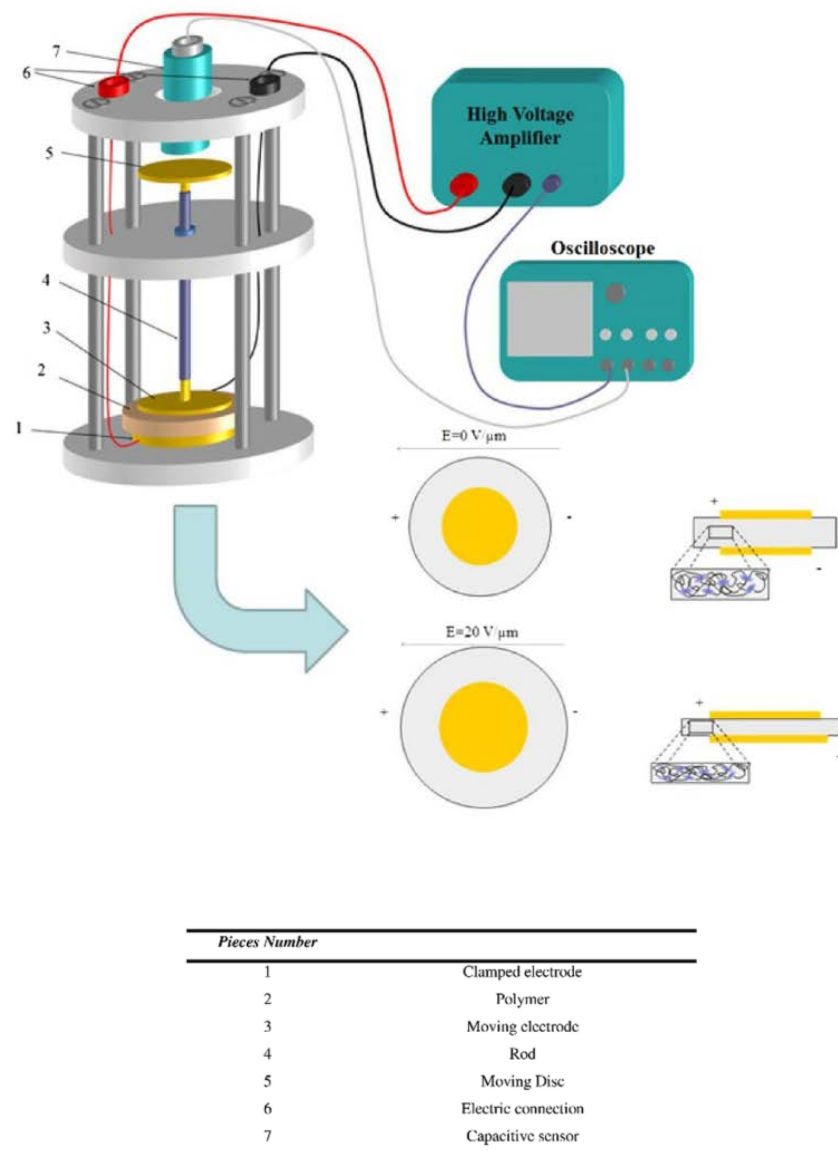
**Sample preparation.** The P(VDF-TrFE-CFE) 56.2%/36.3%/7.5% terpolymer powder was purchased from Piezotech S.A.S (Arkema Group). Films were fabricated via a solution-casting process. P(VDF-TrFE-CFE) was first dissolved in methyl ethyl ketone (MEK, Sigma Aldrich) with a polymer mass fraction of 14% and the solution was cooled at room temperature for 2 hours. Subsequently, the required quantity of bis (2-ethylhexyl) phthalate (DEHP, Sigma Aldrich) was added to the as-prepared solution and stirred for 1 hour. Finally, the mixture was cast onto a glass substrate using an Elcometer Doctor Blade film applicator and the solvent was allowed to evaporate. The films were placed in an oven at 60 °C for 12 hours to totally remove the residual solvent and were subsequently annealed at 103 °C for 1 hour to improve the crystallinity of the samples. The thickness of the final films was 50 μm. For the electrical measurements, 25-nm electrodes were gold-sputtered on each side using a Cressington High Resolution Sputter Coater (208HR).

**DSC characterization.** Differential Scanning Calorimetry (DSC) measurements of the polymers with varying contents of DEHP were performed using a DSC131 evo calorimeter (Setaram Instrumentation) under a nitrogen atmosphere. For each measurement, a sample (~20 mg) was placed in a hermetic aluminum pan, heated to 160 °C where it was kept for 5 minutes, then cooled down to room temperature and kept there for another 5 minutes, and finally heated to 160 °C. Both the heating and cooling ramps were performed at 10 °C/min. Each measurement was carried out twice to ensure the reproducibility of the results. The melting enthalpy was calculated by integrating the total surface of the melting peak.

**Mechanical properties.** The mechanical properties of the polymers were investigated using the system illustrated in Fig. 12. Films with a size of 4 cm × 1 cm × 50 μm were mounted in the sample holder: one side was fixed and the other side was free to move in one direction at a frequency of 100 mHz. The displacement and force were measured by a Newport table microcontroller and a force sensor, respectively, and then converted into the strain and stress of the samples. Additionally, the Young modulus of the samples was determined by the slope of the linear dependence of the stress versus strain.

**Dielectric properties and breakdown strength measurements.** The dielectric properties of the polymers were determined with an SI 1296 (Solartron) impedance analyzer system in a frequency range of 0.1 Hz to 1 MHz at room temperature. The electrodes had a diameter of 2 cm, a thickness of 25 nm and were gold-sputtered on both sides for the dielectric measurements

By definition, the dielectric strength is the maximum voltage required to produce a dielectric breakdown through the material and is expressed in volts per unit thickness. In other words, the dielectric strength is a measure of the electrical strength of a material as an insulator and the higher its value, the



**Figure 13. Principle of the electromechanical characterization setup using a displacement sensor.** The operational principle of a conventional electrostrictive polymer before and after actuation. Developing an electrostatic stress between oppositely charged electrodes squeezes the electrostrictive polymer, thereby causing a lateral displacement of the specimen.

better is the insulating quality. Three basic procedures can be used to determine the dielectric strength including a short-time method, a slow rate-of-rise method, and a step-by-step method<sup>26</sup>. All of them depend on the same basic set-up consisting of the test specimen placed between two electrodes in air or oil.

In this study, the short-time method was employed. For this, the voltage was applied across the two electrodes and increased at a uniform rate (0.5 kV/s) from zero until dielectric breakdown. Breakdown can be observed when an electrical burn-through punctures the sample, or decomposition occurs in the specimen. The rate of the increase in voltage is determined by the time it takes the sample to reach dielectric breakdown. In the preparation of test specimens, great care was taken to get the surfaces adjacent to the electrodes parallel and as plane and smooth as the material would permit.

The dielectric strength of an insulating material varies with the thickness of the test specimen. Therefore, tests on specimens of different thicknesses are not comparable. In this paper, dielectric breakdown strength characterizations were carried out on 30- $\mu\text{m}$  thick films metalized with round electrodes that were 8 mm in diameter. Since the thickness of the specimens was low, the test could be carried out in air. In fact, specimens over 1 mm thick are typically tested in oil to decrease the chance of flashover before breakdown.

For each type of composite, 30 samples were used to determine the probability of voltage breakdown. A tip connected to the high voltage amplifier (Trek 10/10) was used to apply the voltage to the samples (Trek 10/10). The current and voltage measurements of the high-voltage amplifier were recorded on an oscilloscope. The breakdown field was identified when the voltage source switched to a current source supplying a short-circuit current set to 10 mA. The maximum voltage supplied was also recorded using a voltmeter connected to the source via a HV probe and was considered as the breakdown voltage.

**Electromechanical characterization.** Figure 13 shows the setup for measuring the strain versus electric field in compression mode. The strain was determined with the help of a non-contact capacitive measurement sensor (FOGALE MC 940) with a precision on the order of 10 nm. Since the P(VDF-TrFE-CFE) sample is elastically much softer than ceramics and the samples were formed into very thin films, great care had to be taken during the strain measurements to ensure the accuracy of the data when an electric field was applied. For such soft films, flexure motion and mechanical clamping of a sample are two major causes of error in the strain measurements.

The film samples were placed on horizontal stainless steel discs (20 mm in diameter) in order to avoid measuring a parasitic flexure motion, and a second brass disc was positioned on top of the films, thus rendering it possible to apply a bipolar electric field. The total weight of parts 3, 4 and 5 shown in Fig. 12 was 5 g (equivalent to 156 Pa), which was a suitable small stress ensuring that clamping of the sample could be avoided. The sample was subjected to an electric field with the help of a waveform generator (Agilent 33220A) for which the output was amplified through a high-voltage amplifier (model 10/10, Trek Inc.). The displacement and voltage were monitored with the help of an oscilloscope (Agilent - DSO7034A). The strain was deduced by dividing the displacement by the initial thickness.

### Conclusion

This paper reports on a DEHP-plasticized P(VDF-TrFE-CFE) composite (polymer alloy) with very attractive electrostrictive properties. The insertion of a small quantity of plasticizer molecules resulted in the improvement of the molecular mobility of the macromolecules and a decrease of the Young modulus and melting temperature. Meanwhile, the increase in molecular mobility also enabled the trapping of charges at the boundaries of heterogeneities within the polymer leading to a greatly enhanced dielectric permittivity and increased dielectric losses within a low frequency range. As a result, a significant improvement of the electrostrictive longitudinal strain at low frequency was observed, 28-fold that in the pure terpolymer (control sample) at a 10 V/ $\mu\text{m}$  applied field.

For polymers with a higher content of DEHP, saturation of the electrostrictive strain was obtained earlier due to the saturation of the dipolar orientation inside the polymer. The relationship between the strain saturation and DEHP contents was revealed. Furthermore, compared with traditional composites, the DEHP-modified polymers exhibited a slightly decreased dielectric breakdown strength, which was considered a great advantage for practical actuator applications. The effectiveness of using the developed material for a micro-pump application was demonstrated. The proposed all-organic composites with excellent electrostrictive properties are promising for developing high-performance actuators with low stimulation electrical voltages.

### References

1. Janocha H. *Actuators - Basics and Applications* (ed Springer) Ch. 5, 316–345 (Springer Berlin Heidelberg, 2004).
2. Kim, O., Shin, T. J. & Park, M. J. Fast low-voltage electroactive actuators using nanostructured polymer electrolytes. *Nat. Commun.* **4**, doi: 10.1038/ncomms3208 (2013).
3. Zhang, Q. M. *et al.* An all-organic composite actuator material with a high dielectric constant. *Nature* **419**, 284–287 (2002).
4. Punning, A. *et al.* Ionic electroactive polymer artificial muscles in space applications. *Sci. Rep.* **4**, doi: 10.1038/srep06913 (2014).
5. Janocha, H. *et al.* in *Adaptronics and Smart Structures* (ed Springer), Ch. 7 95–300 (Springer Berlin Heidelberg, 2007).
6. Choi, S. T., Kwon, J. O. & Bauer, F. Multilayered relaxor ferroelectric polymer actuators for low-voltage operation fabricated with an adhesion-mediated film transfer technique. *Sens. Actuators Phys.* **203**, 282–290 (2013).
7. Ren, K., Liu, S., Lin, M., Wang, Y. & Zhang, Q. M. A compact electroactive polymer actuator suitable for refreshable Braille display. *Sens. Actuators Phys.* **143**, 335–342 (2008).
8. Bauer, F. Relaxor fluorinated polymers: novel applications and recent developments. *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.* **17**, 1106–1112 (2010).
9. Kim, S.-J. & Kyymissis, I. An electrostrictive high dielectric constant fluorinated terpolymer sheet fabricated by a melt and stretch extrusion process. *J. Mater. Sci.* **45**, 6834–6836 (2010).
10. Sebald, G., Seveyrat, L., Capsal, J.-F., Cottinet, P.-J. & Guyomar, D. Differential scanning calorimeter and infrared imaging for electrocaloric characterization of poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene-chlorofluoroethylene) terpolymer. *Appl. Phys. Lett.* **101**, 022907 (2012).
11. Leo, D. J. in *Engineering Analysis of Smart Material Systems* (ed. John Wiley & Sons), Ch. 4 553–556 (John Wiley & Sons, Inc., 2007).

12. Zupan, M., Ashby, M. f., Fleck & N. a. Actuator Classification and Selection—The Development of a Database. *Adv. Eng. Mater.* **4**, 933–940 (2002).
13. Barsoum, R. G. S. Active materials and adaptive structures. *Smart Mater. Struct.* **6**, 117 (1997).
14. Kim, B., Kim, D.-H., Jung, J. & Park, J.-O. A biomimetic undulatory tadpole robot using ionic polymer–metal composite actuators. *Smart Mater. Struct.* **14**, 1579 (2005).
15. Bell, D. J., Lu, T. J., Fleck, N. A. & Spearing, S. M. MEMS actuators and sensors: observations on their performance and selection for purpose. *J. Micromechanics Microengineering* **15**, S153 (2005).
16. Capsal, J.-F., Galineau, J., Lallart, M., Cottinet, P.-J. & Guyomar, D. Plasticized relaxor ferroelectric terpolymer: Toward giant electrostriction, high mechanical energy and low electric field actuators. *Sens. Actuators Phys.* **207**, 25–31 (2014).
17. Lallart, M. *et al.* Actuation abilities of multiphase electroactive polymeric systems. *J. Appl. Phys.* **112**, 094108 (2012).
18. Capsal, J.-F. *et al.* Evaluation of macroscopic polarization and actuation abilities of electrostrictive dipolar polymers using the microscopic Debye/Langevin formalism. *J. Phys. Appl. Phys.* **45**, 205401 (2012).
19. Kremer, F. & Róžański, S. A. in *Broadband Dielectric Spectroscopy* (eds. Kremer, & Schönhals), **Ch. 1** 475–494 (Springer Berlin Heidelberg, 2003).
20. Capsal, J.-F., Pousserot, C., Dantras, E., Dandurand, J. & Lacabanne, C. Dynamic mechanical behaviour of polyamide 11/Barium titanate ferroelectric composites. *Polymer* **51**, 5207–5211 (2010).
21. Xu, P. & Zhang, X. Investigation of MWS polarization and dc conductivity in polyamide 610 using dielectric relaxation spectroscopy. *Eur. Polym. J.* **47**, 1031–1038 (2011).
22. Tseng, J.-K. *et al.* Interfacial polarization and layer thickness effect on electrical insulation in multilayered polysulfone/poly(vinylidene fluoride) films. *Polymer* **55**, 8–14 (2014).
23. Xia, F. *et al.* High Electromechanical Responses in a Poly(vinylidene fluoride–trifluoroethylene–chlorofluoroethylene) Terpolymer. *Adv. Mater.* **14**, 1574–1577 (2002).
24. Klein, R. J. *et al.* Modeling electrode polarization in dielectric spectroscopy: Ion mobility and mobile ion concentration of single-ion polymer electrolytes. *J. Chem. Phys.* **124**, 144903 (2006).
25. Miyamoto, T. & Shibayama, K. Free-volume model for ionic conductivity in polymers. *J. Appl. Phys.* **44**, 5372–5376 (1973).
26. Tony Blythe & David Bloor. *Electrical Properties of Polymers*. (Cambridge University press), **Ch. 3** 216–268 (Cambridge University, 2008).
27. Nguyen, N.-T., Huang, X. & Chuan, T. K. MEMS-Micropumps: A Review. *J. Fluids Eng.* **124**, 384–392 (2002).
28. Amirouche, F., Zhou, Y. & Johnson, T. Current Micropump Technologies and Their Biomedical Applications. *Microsyst Technol* **15**, 647–666 (2009).
29. François, O. & Dufour, I. Enhancement of elementary displaced volume with electrostatically actuated diaphragms: application to electrostatic micropumps. *J. Micromechanics Microengineering* **10**, 282 (2000).
30. Cui, Q., Liu, C. & Zha, X. F. Simulation and optimization of a piezoelectric micropump for medical applications. *Int. J. Adv. Manuf. Technol.* **36**, 516–524 (2008).
31. Wego, A., Glock, H.-W., Pagel, L. & Richter, S. Investigations on thermo-pneumatic volume actuators based on PCB technology. *Sens. Actuators Phys.* **93**, 95–102 (2001).
32. Xu, D. *et al.* Novel micropump actuated by thin film shape memory alloy. in **3891**, 369–375 (1999).
33. Olsson, A., Enoksson, P., Stemme, G. & Stemme, E. Micromachined flat-walled valveless diffuser pumps. *J. Microelectromechanical Syst.* **6**, 161–166 (1997).
34. Oosterbroek, E. & Berg, A. van den. *Lab-on-a-Chip: Miniaturized Systems for (Bio)Chemical Analysis and Synthesis*. (Elsevier, 2003).
35. Xu, T.-B. & Su, J. Development, characterization, and theoretical evaluation of electroactive polymer-based micropump diaphragm. *Sens. Actuators Phys.* **121**, 267–274 (2005).

## Acknowledgements

This work has received financial support. i.e., “Bonus Qualité Recherche”, from the National Institute of Applied Sciences (INSA) of Lyon.

## Author Contributions

J.F.C.a., J.G., F.G. and X.Y. prepared the all-organic composite. J.-F.C., C.M. and L.R. fabricated the micro-pump. M.C.Y. and R.L. performed the data analysis. X.Y. and J.G. realized the micro-pump characterization. M.Q.L., J.F.C.a. et P.J.C. planned the experiment and wrote the text. J.F.C.a. and P.J.C. supervised respectively the material and systems parts of the research. All authors reviewed the manuscript.

## Additional Information

**Competing financial interests:** The authors declare no competing financial interests.

**How to cite this article:** Le, M. Q. *et al.* All-organic electrostrictive polymer composites with low driving electrical voltages for micro-fluidic pump applications. *Sci. Rep.* **5**, 11814; doi: 10.1038/srep11814 (2015).



This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License. The images or other third party material in this article are included in the article's Creative Commons license, unless indicated otherwise in the credit line; if the material is not included under the Creative Commons license, users will need to obtain permission from the license holder to reproduce the material. To view a copy of this license, visit <http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>

## Annexe 4

Eur J Vasc Endovasc Surg (2015) 49, 744e750

### ABSTRACTS

## Abstracts Accepted for Oral Presentation at the ESVS Spring Meeting on Vascular Biology and Basic Science

The following abstracts were accepted for oral presentation at the ESVS Spring Meeting on Vascular Biology and Basic Science.

---

### Morphing Control of Steerable Wire Guide Based Electroactive Material for Cardiovascular Surgery Application

F. Ganet, M.-Q. Le, J.-F. Capsal, L. Petit, P.-J. Cottinet, P. Lermusiaux, A. Million Université de Lyon, France

**Introduction:** Current steerable wire guide used in clinical practice employs a complex mechanism at the handle, where the wire is configured to be pushed or pulled along a longitudinal axis to bend the wire tip. The main drawback of the existing procedure is the time needed to achieve the task, as the control of such architecture is challenging and complicated. For this reason, the goal of our proposed concept involves in developing electric steerable wire guide based electroactive material (Figure 1).

**Methods:** Electroactive polymers (EAP) are considered as one of the latest flexible actuator's generations enabling to provide new approaches to propulsion and manoeuvrability. The recent advances in the field of EAP consisting a development of all organic composite have been investigated by LGEF's team. The main advantages of the developed polymers are easy preparation, simple process, high strain, and high electro-mechanical activities under relatively moderate actuation voltages, making them appropriate materials for future application in active wire guide. The proposed material probably allows to overcome some of the current technological issues relating to the development and control of the steerable wire guide; for instance, high cost and complex integration of micro-motor, delay response of SMA, etc.

**Results:** The wire guide (TERUMA Radiofocus Guide Wire M e REF-GA18263M) used in the experiment is a cardiovascular tool with a thin and flexible tip, allowing to manipulate through narrow and curved arteries. The wire guide tip is coated with the electroactive polymer based P(VDF-TrFE-CFE) actuator. This substantially increases the tip stiffness, leading to satisfactory axial rigidity to prevent the wire guide from buckling during insertion and to enable passage through highly curved regions.

Our initial design demonstrated that the polymer can provide adequate displacement to achieve the desired bending. A bending of 11 mm during less than 1s has been attained, which is largely sufficient for manoeuvring the wire guide through most blood vessels (Figure 2).

**Conclusion:** The development of a low-cost active-tip bending system for steerable wire guide, including proof-of-concept fabrication and implementation test bench, has been carried out. The new actuator chosen for the design in this study is an electrostrictive material P(VDF-TrFE-CFE), one kind of electroactive polymers (EAP). The resulting displacement of the actuator is experimental measured and demonstrated to be adequate to lift the rigid tip of the wire guide.

## Annexe 5

Materials and Design 133 (2017) 47–53



Contents lists available at ScienceDirect

Materials and Design

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/matdes](http://www.elsevier.com/locate/matdes)



### Printable low-cost and flexible carbon nanotube buckypaper motion sensors



Joshua DeGraff<sup>a</sup>, Richard Liang<sup>a,\*</sup>, Minh Quyen Le<sup>b</sup>, Jean-Fabien Capsal<sup>b</sup>,  
Florent Ganet<sup>b</sup>, Pierre-Jean Cottinet<sup>b,\*</sup>

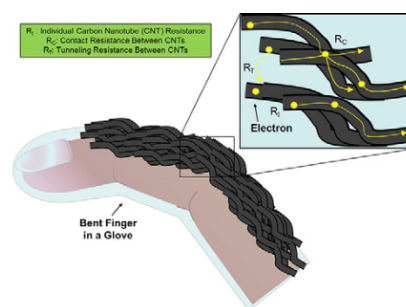
<sup>a</sup> High Performance Materials Institute (HPMI), Florida State University, Tallahassee, FL, United States

<sup>b</sup> Laboratoire de Génie Électrique et Ferroélectricité (LGEF), INSA Lyon, Villeurbanne, France

#### HIGHLIGHTS

- Low-profile tactile sensors can be manufactured using low-cost printing technology and ultra-thin carbon nanotube buckypaper.
- The printed buckypaper sensor can sense tensile and compressive strains as low as 0.005% and as high as 1%.
- The printed buckypaper sensors are flexible and can be designed to conform to surfaces on the body.
- Finger movements were easily detected using a glove that was integrated with sensors.

#### GRAPHICAL ABSTRACT

















FOLIO



**INSA**

ADMINISTRATIF

THÈSE DE L'UNIVERSITÉ DE LYON OPEREE AU SEIN DE L'INSA LYON

NOM : **GANET** époux **GANET-MATTEI**

DATE de SOUTENANCE : 05/02/2018

Prénoms : **Florent**

TITRE : Fabrication Additive de Matériaux Electroactifs pour Applications à la Mécatronique

NATURE : **Doctorat**

Numéro d'ordre : 2018LYSEI011

École doctorale : N° **ED162 Mécanique – Énergétique - Génie Civil - Acoustique**

Spécialité : **Acoustique**

RÉSUMÉ :

La Fabrication Additive (FA) est un procédé de fabrication qui a commencé à se développer dans les années 80 et qui atteint actuellement une maturité qui lui permet d'être utilisé de manière rentable et fonctionnelle par les industriels. La fabrication additive est définie comme étant le procédé de mise en forme d'une pièce par ajout de matière, à l'opposé de la mise en forme traditionnelle par enlèvement de matière (usinage). Cette nouvelle technologie est une réelle révolution et permet de relever de nouveaux défis technologiques sans précédent. Que ce soit sur un axe matériau ou plus largement dans le cadre de l'usine du futur, la fabrication additive est un réel levier de croissance, mais de nombreux travaux de recherche sont encore à mener afin de perfectionner cette nouvelle technologie. C'est autour de cette problématique que les travaux de thèses se sont focalisés avec un accent sur l'intégration de matériaux électroactifs pour la réalisation de fonction mécatronique tirant profit des procédés de Fabrication Additive.

Les actions de recherche montrent que la fabrication additive de matériaux électroactifs sera de plus en plus employée pour la réalisation de fonctions mécatroniques hybrides qui combineront à la fois la structure mécanique, des circuits intégrés en silicium, des pistes conductrices et des matériaux couplés imprimés, intégrant ainsi des fonctionnalités, telles que des capteurs, des affichages ou des sources d'énergie. Les travaux montrent le potentiel applicatif autour du contrôle de santé des structures en composites, mais aussi du contrôle de forme d'instrument pour la chirurgie. Pour arriver au développement de ces dispositifs, les points suivants ont été développés autour des matériaux électroactifs et de leurs règles d'intégrations et d'optimisation.

MOTS-CLÉS : Fabrication Additive, Polymères Électroactifs, Fonction mécatronique, Robotique médicale, Contrôle de santé des structures, Couplage Multiphysique

Laboratoire(s) de recherche : Laboratoire de Génie Électrique et Ferroélectricité

Directeur de thèse: **LEBRUN Laurent, COTTINET Pierre-Jean, CAPSAL Jean-Fabien**

Président de jury :

Composition du jury :

**BERNARD Yves**  
**CALEYRON Fabien**  
**DANTRAS Eric**  
**VIDAL-SALLÉ Emmanuelle**  
**BOISSE Philippe**  
**LEBRUN Laurent**  
**CAPSAL Jean-Fabien**  
**COTTINET Pierre-Jean**