

# Influence de la précontrainte et de la température sur les propriétés électriques du VHB4910

S.Hammami<sup>a, c</sup>, C. Jean-Mistral<sup>b</sup>, F.Jomni<sup>c</sup>, A. Sylvestre<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Univ. Grenoble Alpes, G2ELAB, F-38000 Grenoble France

<sup>b</sup> Univ. Lyon, LaMCoS, INSA-Lyon, CNRS UMR5259, F-69621, France

<sup>c</sup> Univ. de Tunis El Manar, Laboratoire Matériaux, Organisation et Propriétés (LMOP), El Manar, 2092 Tunis, Tunisie;

**RESUME**—Les élastomères diélectriques sont de plus en plus utilisés pour créer des transducteurs dans de nombreux domaines industriels : interface haptique, robotique, biomimétisme, énergie. Dans le domaine de l'énergie, le développement de générateurs électrostatiques souples tient une large place. Toutefois, le courant de fuite diminue l'efficacité et la durée de vie des dispositifs utilisant ces matériaux. Cette étude concerne donc l'influence des facteurs externes (étirement, température) sur les propriétés électriques du polyacrylate VHB4910, un des matériaux largement utilisés pour créer des générateurs. Nous relevons que le courant de fuite augmente avec l'augmentation de l'étirement. Ce comportement peut se combiner avec l'effet de la température.

**Mots-clés**—Polyacrylate, élastomère diélectrique, courant de fuite, haute tension, propriétés électriques.

## 1. INTRODUCTION

L'utilisation des polymères électroactifs constitue une voie particulièrement innovante pour la génération et la récupération d'énergie. Ces matériaux sont souples, modelables à façon (possibilité de réaliser des géométries 3D complexes) [1], peu chers, biocompatibles et permettent de récupérer des densités d'énergie 100 fois plus élevées que celles obtenues avec des polymères piézoélectriques [2]. Toutefois, ces matériaux sont passifs et nécessitent une haute tension de polarisation pour réaliser des cycles énergétiques. L'étude théorique montre que la densité d'énergie récupérable est d'environ 146mJ g<sup>-1</sup>[3].

Les élastomères diélectriques fonctionnent sur le principe d'une capacité variable. Lorsque l'on applique une tension, une pression électrostatique appelée pression de Maxwell, apparaît aux bornes des électrodes. Le matériau idéal pour convertir l'énergie mécanique en énergie électrique doit avoir peu de pertes mécaniques, peu de pertes électriques et une forte densité d'énergie récupérable. Afin d'augmenter les performances de l'application, un pré-étirement, communément appelé précontrainte est appliqué à l'élastomère. La diminution de l'épaisseur qui en résulte permet donc d'imposer un champ électrique plus important au niveau de l'élastomère.

Un courant de fuite est naturellement présent au sein de l'élastomère soumis à un champ électrique. Il va en résulter des pertes électriques et une dégradation de la fiabilité des transducteurs électrostatiques souples réalisés. Il est donc souhaitable d'étudier les mécanismes de courant de fuite afin

d'améliorer la modélisation de ces matériaux mais aussi pour agir sur les propriétés électriques de ces matériaux. Dans cette étude, nous étudions la dépendance temporelle du courant de fuite de polyacrylates du commerce (*3M<sup>TM</sup> VHB<sup>TM</sup> Tape 4910* que nous nommerons VHB4910) couramment utilisés pour la réalisation de capteurs, actionneurs et générateurs souples. L'étude est menée de l'ambiante à 80°C sous des niveaux de champ électrique allant jusqu'à 64 MV m<sup>-1</sup>. Ces travaux sont réalisés pour des matériaux non précontraints et d'autres ayant subi une précontrainte. Nous discutons en particulier de l'effet de la précontrainte sur les changements opérés dans le courant de fuite.

## 2. EXPERIENCES

### 2.1. Matériaux et électrodes

Parmi tous les élastomères diélectriques utilisables pour créer des transducteurs, le polyacrylate VHB4910 est un candidat intéressant : haute densité d'énergie [2], souple, rigidité diélectrique importante. Ce matériau est un polymère isotrope [4], amorphe avec une longue chaîne carbonée [5].

Les applications utilisant ces polymères électroactifs fonctionnent généralement sous de grandes déformations mécaniques [6]. A ce titre, les électrodes utilisées doivent être les plus souples possibles afin de suivre correctement les mouvements du matériau diélectrique. Pour cela, nous avons choisi des électrodes constituées d'une graisse conductrice silicone/carbone de la société MG Chemical assurant de très grandes déformations (100%). Cette graisse est appliquée de part et d'autre du polymère diélectrique par sérigraphie manuelle.

### 2.2. Fabrication des échantillons

Afin d'étudier l'influence de l'étirement sur le courant de fuite, le matériau VHB4910 d'épaisseur 1mm est étiré biaxialement et symétriquement grâce à une machine de traction biaxiale Zwick (figure 1). Le processus d'étirement a été effectué sous une vitesse de sollicitation lente afin d'obtenir une contrainte quasi-uniforme au sein de l'échantillon et éviter ainsi toute instabilité et anisotropie.

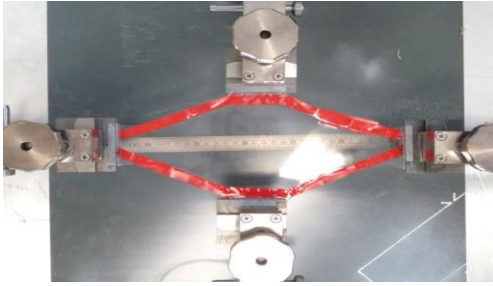


Fig.1 Dispositif de pré-étirement du matériau

Le même coefficient d'étirement  $\lambda$  est présent dans chaque direction d'étirement et le coefficient d'extension de surface est ainsi  $\lambda^2$ . Après étirement, l'épaisseur de l'échantillon est  $1\text{ mm}/\lambda^2$ . Une fois que l'élastomère a été étiré et que toutes les relaxations mécaniques se sont produites (attente d'environ 30 minutes), ce dernier est pris en sandwich entre deux cadres rigides permettant de maintenir la précontrainte créée. Pour supprimer toute déformation induite par le champ électrique appliqué, l'échantillon est fixé à la surface du cadre par un scotch adhésif. Puis, il est retiré du dispositif de traction biaxiale. Les électrodes sont alors déposées au milieu de la membrane de chaque côté. Des chemins d'amenées réalisés par un ruban adhésif conducteur en cuivre permettent de déporter l'application de la tension et la mesure du courant électrique. La figure 2 représente l'échantillon électrode/VHB/électrode.

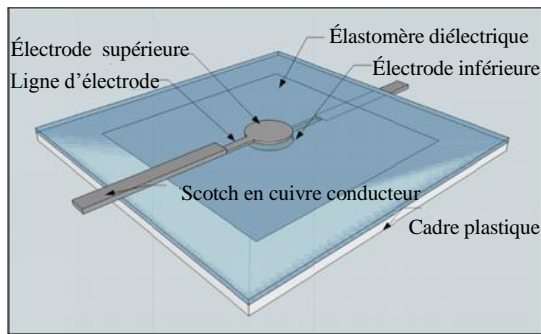


Fig.2 Image de l'empilement électrode/VHB/électrode (d'après [7])

### 2.3. Dispositif de mesure électrique

Le polyacrylate VHB4910 peut être modélisé par une capacité variable  $C_p$  en parallèle avec une résistance  $R_p$  représentant les pertes volumiques, et une résistance de surface des électrodes  $R_e$ . Une haute tension continue est appliquée au transducteur, et le courant est mesuré en fonction du temps (figure 3). L'échantillon est placé dans une enceinte thermique à température réglable afin d'étudier le comportement des courants en fonctions de la température.

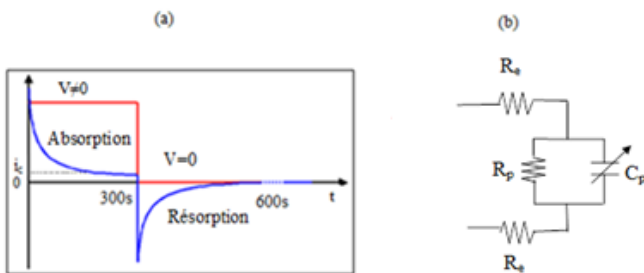


Fig.3 Courant transitoire dans un matériau isolant et modèle électrique du transducteur

Un générateur haute tension (Power Supply PS365) impose une tension constante comprise entre 1kV et 10kV aux échantillons non précontraints (correspondant donc à des champs électriques compris entre  $1\text{MVm}^{-1}$  et  $10\text{MVm}^{-1}$ ), et ceci pendant 300s (test à temps court) ou 20000s (test à temps long). Ce temps sera appelé temps de polarisation dans le reste de ce papier. Une fois la mesure finie, la structure est court-circuitée pour la même durée afin que l'échantillon puisse se relaxer. Pour les échantillons précontraints de  $4*4$  en surface, la tension appliquée est plus faible ( $<4\text{kV}$ ) afin de prévenir tout claquage électrique. L'échantillon ayant dans ce cas une épaisseur de  $62.5\mu\text{m}$ , le champ électrique maximal appliqué est de  $64\text{MVm}^{-1}$ .

La réponse transitoire des courants est mesurée grâce à un électromètre Keithley 6517B et traduit l'évolution de l'échantillon d'un état de polarisation à un autre et permet de comprendre les mécanismes s'opérant au sein de l'échantillon : conduction, diffusion, transport de charges.

Les tests ont été réalisés sur 3 échantillons pour chaque cas d'étude et seul un cas (le cas médian) est présenté. Les mesures sont reproductibles avec une erreur relative inférieure à 5%.

## 3. CARACTÉRISATION ÉLECTRIQUE

### 3.1 Référence

La figure 4 présente l'évolution temporelle du courant à l'ambiante pour un échantillon non précontraint.

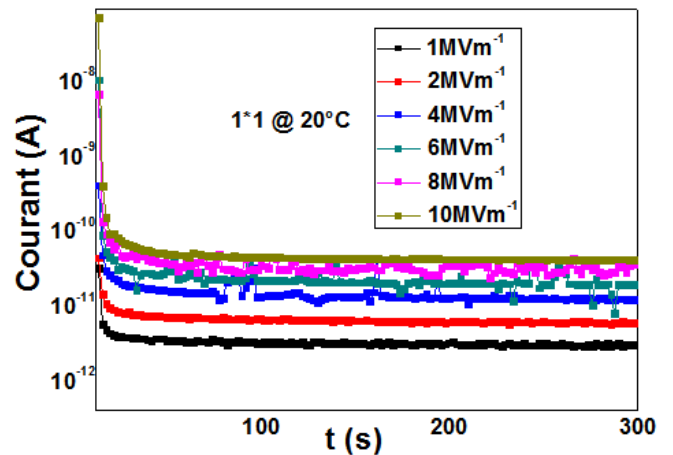


Fig.4 Mesure de courant de fuite pour différentes valeurs de champ électrique à température fixe (20°C)

Après une première chute rapide, le courant décroît très lentement jusqu'à une valeur stable atteinte au bout de 300s de polarisation. Ce comportement est constaté pour tous les champs électriques appliqués étudiés. La décroissance du courant en fonction du temps obéit à la loi bien connue de Curie-Von Schweidler [8].

La figure 5 trace  $\ln(J) \cdot E^{-1/2}$  permettant de mettre en lumière un mécanisme de conduction de type Schottky du fait d'une approximation des points expérimentaux par une droite dans ce type de représentation.

En effet, le courant par effet Schottky est décrit par l'équation suivante [9]:

$$J = A \cdot T^2 \exp\left(-\frac{\varphi_0 - \beta E^2}{k_B T}\right)$$

Où  $A$  est la constante de Richardson et vaut  $120 \text{ Acm}^{-2}$ ,  $\beta$  est le coefficient de Schottky, sa valeur dépend de matériau diélectrique et  $\phi_0$  est la hauteur de la barrière de potentiel.

Cette représentation linéaire est valide pour des temps expérimentaux relevés dans la gamme 100 - 300 secondes après la mise sous tension. Pour le temps à 50 secondes, le comportement linéaire est moins vrai traduisant qu'un mécanisme transitoire est encore en train de se produire au sein du matériau.

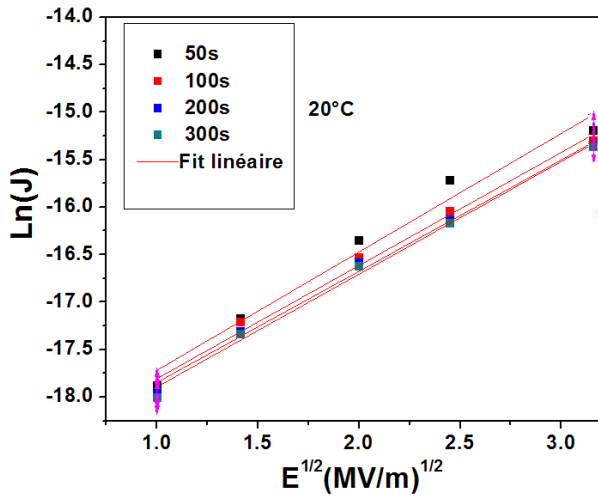


Fig.5 Représentation pour un mécanisme d'injection Schottky

La figure 6 présente la variation de la conductivité électrique en fonction du champ électrique pour différents temps de polarisation.

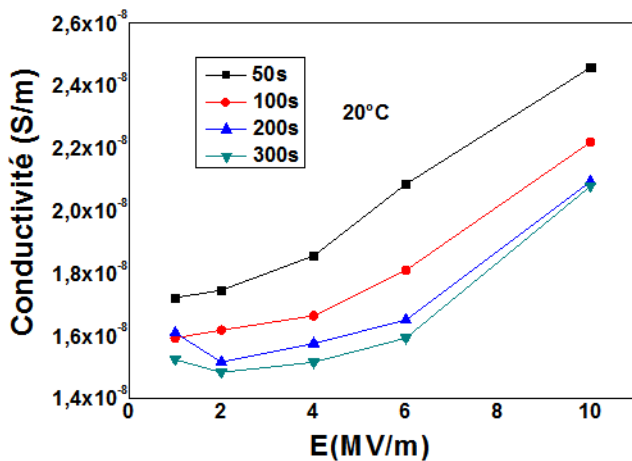


Figure 6 Variation de la conductivité électrique en fonction du champ électrique appliqué pour différents temps de mesure

La conductivité augmente avec le champ électrique appliqué, un comportement exponentiel a été observé.

La valeur de la conductivité varie entre  $1,510^{-8} \text{ S m}^{-1}$  et  $2,45 \cdot 10^{-8} \text{ S m}^{-1}$ . Cette valeur est plus élevée que celle mesurée pour un échantillon avec une électrode métallique (or)  $3,310^{-13} \text{ S m}^{-1}$  [10]. Cette augmentation peut s'expliquer par l'accroissement de la barrière de potentiel pour l'électrode métallique. En effet, cette barrière pour une électrode en graisse MG Chemical est de  $0,26 \text{ eV}$  alors qu'elle est de  $0,43 \text{ eV}$  pour une électrode en or [10]. Finalement, notons sur la figure 6 que le temps de polarisation impacte la valeur de la conductivité de nos échantillons. Pour un temps court (50s), la conductivité est plus importante que pour un temps long (300s) du fait d'une stabilisation du courant effective à 300 secondes mais que l'on peut considérer comme

quasi-stable après 200 secondes, en tous cas aux champs élevés du fait de conductivités proches.

### 3.2 Effet de la température sur les échantillons non précontraints

La température a une influence significative sur les propriétés diélectriques mais aussi sur l'instabilité électromécanique du système [11]. Dans [12], l'augmentation de la température entraîne une augmentation de la stabilité de la structure. Nous avons tracé sur la figure 7 les caractéristiques I-t pour l'échantillon VHB4910 non précontraint ( $1^*1$ ) à différentes températures pour deux tensions de polarisation. Cette fois-ci, les mesures sont effectuées sur des temps longs (6 heures).

A  $60^\circ\text{C}$  et sous faible tension, le courant  $I$  mesuré décroît classiquement jusqu'au régime permanent. Mais sous haute tension (5kV), une augmentation rapide du courant, non conventionnelle, est d'abord observée sur une période de temps courte avant d'atteindre le régime permanent. À  $80^\circ\text{C}$ , l'effet inverse est observé. Les pics relevés sur la figure 7(b) sont des artefacts de mesures et ne correspondent pas à des claquages électriques au sein de l'échantillon.

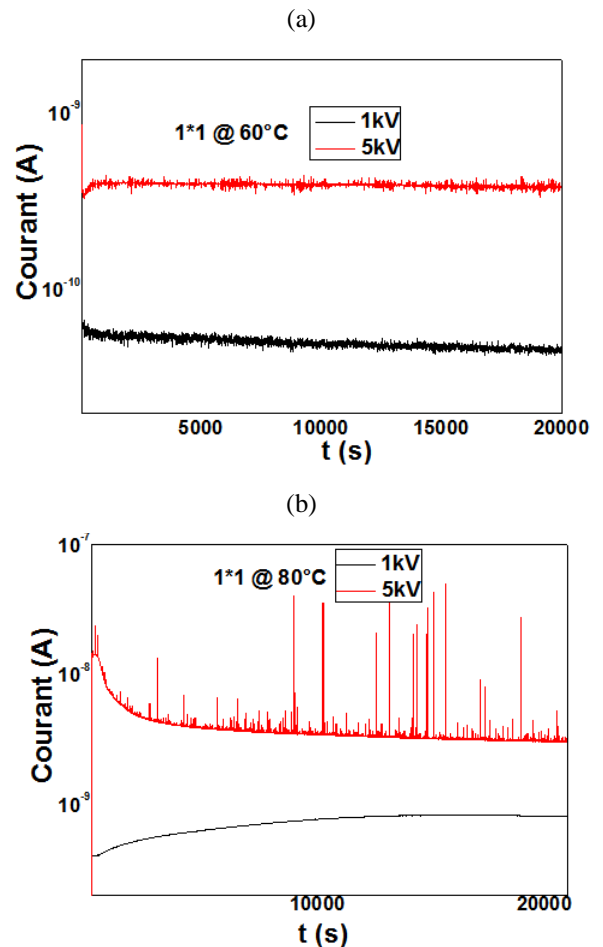


Fig.7 Évolution du courant de fuite pour deux températures de mesure et pour deux tensions de polarisation continue.

Avec l'augmentation de la température, le niveau de courant mesuré augmente. Le courant mesuré à  $60^\circ\text{C}$  pour une tension appliquée de 1kV est de  $57 \text{ pA}$  à  $t=200 \text{ s}$ , et pour haute température ( $80^\circ\text{C}$ ) avec la même tension appliquée la valeur mesurée est de  $404 \text{ pA}$ . Le courant mesuré est 134 fois plus élevé que celui à l'ambiante ( $3 \text{ pA}$ ). La température favorise l'injection de porteurs et donc la conduction électrique.

Il est à noter que les mesures disponibles dans la littérature sont rarement aussi longues et les interprétations sont donc généralement faites sur des temps courts.

Ce changement de comportement avec la température souligne de potentielles modifications dans les mécanismes de conduction à long terme. Des investigations plus poussées devraient permettre de déterminer l'origine de ces changements de comportements.

### 3.3 Effet de la précontrainte

La précontrainte imposée à un élastomère diélectrique permet d'améliorer les performances de ce dernier en augmentant la rigidité diélectrique du film [13]. Nous avons représenté sur la figure 8, les caractéristiques I-t à l'ambiante pour un échantillon précontraint 4\*4.

Pour un champ électrique comparable de  $8\text{MVm}^{-1}$  (1kV), l'intensité du courant augmente de 34,4pA pour l'échantillon non précontraint ( $1^*1$ ) à 55,6pA pour l'échantillon étiré, soit une variation de 61%.

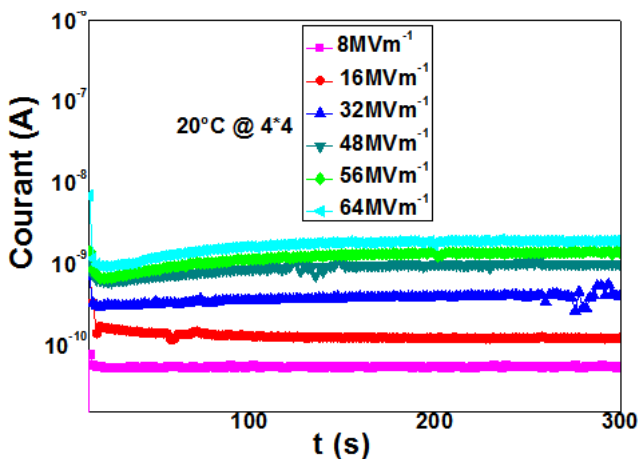


Fig.8 Caractéristiques I-t sous l'effet d'une précontrainte symétrique pour différents champs électriques appliqués à l'ambiante.

L'origine physique de l'augmentation du courant de fuite est très complexe, plusieurs phénomènes peuvent participer à cette augmentation comme par exemple l'orientation des chaînes de polymère ou la cristallisation sous contrainte [6].

Lorsqu'on applique un champ électrique supérieur à  $16\text{MVm}^{-1}$ , l'évolution du courant change radicalement : on observe initialement une diminution pendant les dix premières secondes puis une augmentation jusqu'à l'établissement du régime permanent.

Nous avons observé le même comportement avec une électrode en or pour l'étirement 3\*3[10], Di Lillo *et al* ont également observé la même évolution pour un champ électrique appliquée  $125\text{MVm}^{-1}$  pour l'étirement 5\*5. Dans [14], De Lillo suggère qu'un fort champ électrique peut entraîner un effet thermique local induisant une augmentation du courant de fuite.

### 3.4 Effet combiné de la température et de la précontrainte

La figure 9 reporte les caractéristiques I-t pour différents champs électriques appliqués ( $8\text{MVm}^{-1}$  à  $64\text{MVm}^{-1}$ ), différentes température ( $40^{\circ}\text{C}$  et  $80^{\circ}\text{C}$ ) et pour un échantillon précontraint bi-axialement (coefficient d'extension  $4^*4$ ).

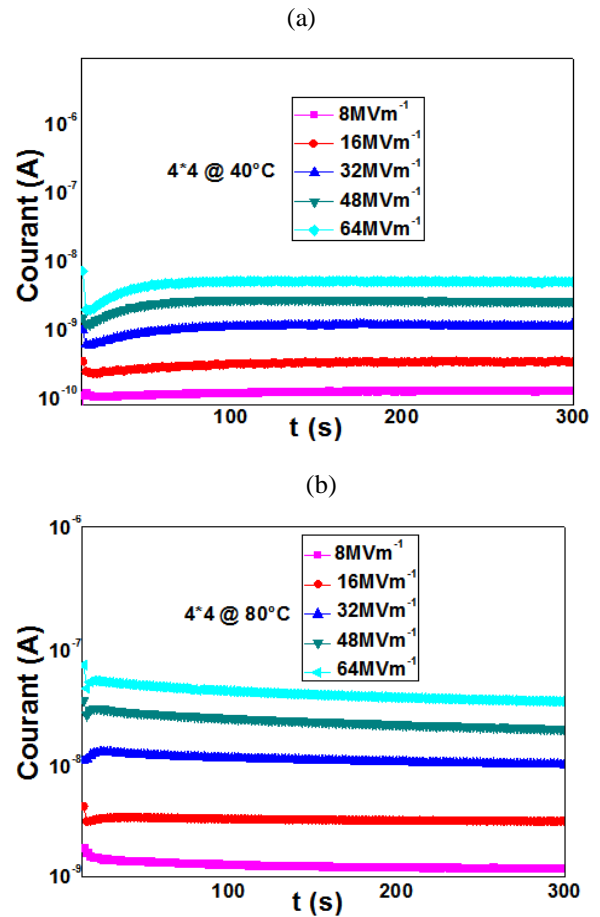


Fig.9 Caractéristiques I-t sous l'effet d'une précontrainte symétrique pour différents champs appliqués

A  $40^{\circ}\text{C}$  (figure 9.a), dans le cas de faibles tensions, le courant mesuré ( $0,13\text{nA}$ ) décroît en suivant la loi de Curie-Von Schweidler. Pour de hautes tensions, on observe une augmentation du courant et la loi de Curie-Von Schweidler n'est plus satisfaite. Pour un champ électrique de  $64\text{MVm}^{-1}$ , le courant de conduction vaut  $5,09\text{nA}$ , soit 39 fois plus qu'à faible champ électrique.

A haute température ( $80^{\circ}\text{C}$ ), on observe le même comportement en fonction du champ électrique imposé à l'échantillon. Sous un champ électrique de  $64\text{MVm}^{-1}$ , à  $t=70\text{s}$ , le courant mesuré est égal à  $48,4\text{nA}$  et à  $300\text{s}$  le courant est quasi constant et vaut  $40,9\text{nA}$ , soit une valeur 8 fois supérieure à celle obtenue à  $40^{\circ}\text{C}$  et 34 fois supérieure à celle obtenue à  $20^{\circ}\text{C}$ . Comme relevé au paragraphe 3.2, la température favorise la migration des charges dans le matériau et se traduit par l'augmentation du courant de fuite au sein du polymère. Soulignons enfin qu'à haute température la caractéristique I-t atteint très vite le régime stable.

Si on compare avec la mesure de référence (non précontrainte et à température ambiante), on observe que la combinaison de la température et de la précontrainte entraîne un changement sur l'évolution de courant : à fort champ électrique le courant augmente puis diminue jusqu'à une valeur constante. L'étirement imposé au matériau provoque une orientation notable des chaînes de polymères dans les directions de l'étirement,

La température et la pré-contrainte favorisent toutes les deux l'augmentation du courant de fuite au sein du matériau. Pour les échantillons non précontraints à température ambiante (figure 4), l'allure du courant de fuite évolue classiquement. Pour des échantillons non précontraints soumis à une

température de 60°C ou 80°C (figure 7), l'allure du courant de fuite change en fonction du champ électrique appliqué (faible champ 5MV.m<sup>-1</sup>). Pour des échantillons précontraints à température ambiante (figure 8), l'évolution du courant dépend du champ électrique imposé. Cette évolution est classique pour de faibles champs (<32MVm<sup>-1</sup>). Pour des échantillons précontraints et soumis à une haute température 80°C (figure 9.b), l'évolution du courant est classique pour de faibles champs (<16MV.m<sup>-1</sup>). Pour les échantillons non pré-contraints, la température influe fortement sur l'évolution du courant même sous de faibles champs électriques. Pour les échantillons précontraints, la température influe sous des forts champs électriques appliqués.

Il est intéressant de noter que pour des champs plus élevés le régime permanent (stable) est atteint rapidement notamment à haute température. Cela renforce notre hypothèse que l'effet combiné de la température et de la précontrainte entraîne une augmentation de la stabilité de la structure MG-VHB4910-MG.

La précontrainte change nécessairement l'orientation des chaînes moléculaires. Après étirement, les chaînes moléculaires deviennent probablement de plus en plus séparées ce qui peut entraîner une diminution de l'entropie [15]. A haute température les chaînes commencent à bouger ainsi le nombre des charges qui se libèrent augmente et par conséquent le courant de fuite devient plus élevé et atteint rapidement le régime permanent.



Fig.10 Schéma d'orientation des chaînes moléculaires sous l'effet de la précontrainte

### 3.5 Modèle dissipatif

En se basant sur la modélisation présentée sur la figure 13, l'expression du courant de fuite s'écrit sous la forme suivante [16] :

$$I = A * E * \exp\left(\frac{E}{E_B}\right)$$

Où A, E<sub>B</sub> sont deux paramètres empiriques constants.

La figure 11 reporte l'évolution du courant de conduction I en fonction du champ électrique appliqué pour l'échantillon non précontraint et celui précontraint 4\*4 et pour différentes températures (20°C et 40°C°), ainsi que le modèle théorique déduit.

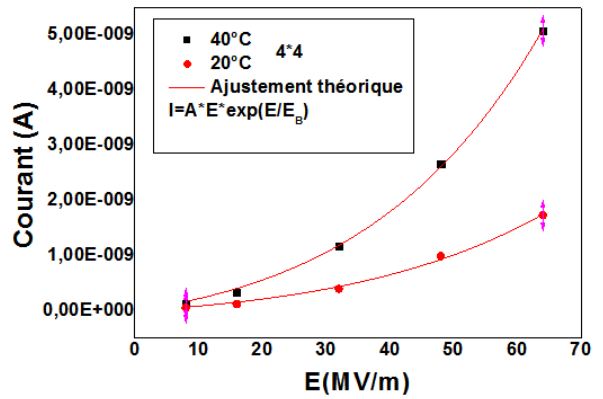
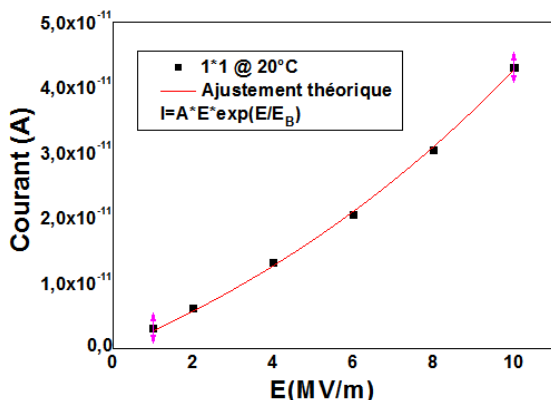


Fig.11 Courant de fuite en fonction du champ électrique appliqué et ajustement théorique selon le modèle dissipatif.

L'étirement entraîne une augmentation de courant comme on l'a déjà noté. On observe que les valeurs de A et E<sub>B</sub> sont plus élevées pour l'échantillon précontraint. La valeur de A pour l'échantillon non précontraint est égale à 2,61 10<sup>-12</sup> et 6,89 10<sup>-12</sup> pour l'échantillon étiré. La valeur de E<sub>B</sub> augmente deux fois par rapport à l'état non précontraint, elle passe de 20 MVm<sup>-1</sup> (1\*1@20°C) à 46Mm<sup>-1</sup>(4\*4@ 20°C). Ces lois analytiques déduites de mesures expérimentales peuvent être intégrées dans des modèles d'actionneur ou de générateur utilisant ces matériaux afin de prédire au mieux les pertes dues au courant de fuites.

## 4. CONCLUSIONS

A travers ce travail nous avons mis en évidence l'influence de la précontrainte et de la température sur l'évolution temporelle du courant de fuite du VHB 4910. Ce dernier peut être attribué à un mécanisme Schottky. Sous précontrainte mécanique, une modification dans l'orientation des chaînes moléculaires du polymère est à l'origine d'un changement de comportement et de valeur du courant électrique. Une loi de comportement du courant électrique en fonction du champ électrique appliqué à l'échantillon sous contrainte nous a permis de déterminer les paramètres caractéristiques constituant cette loi empirique que nous avons également reporté pour différentes températures de fonctionnement. Ces lois peuvent maintenant être incorporées dans des modèles de conception de générateurs électrostatiques souples pour mieux approcher la réalité de leurs performances.

## 5. REMERCIEMENTS

Je remercie Messieurs Paul Valverde et Phillippe Chaudet au LaMCoS-INSA de Lyon, pour leur aide et pour m'avoir fait partager leur expérience dans la maîtrise de tests mécaniques. Le financement de ce travail a été assuré par le Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique de Tunisie (bourse d'alternance) et également le programme CNRS-DGRS 14R/ 1301.

## 6. REFERENCES

- [1] R.Perline, R.Kornbluh, G.Kofod, "High-Strain Actuator Materials Based on Dielectric Elastomers," *Adv. Mater.* 12, 1223 2000
- [2] R.Perline, R.Kornbluh, EckerleJ, P.Jeuck,S.Oh, Q.Pei and Stanford "Dielectric elastomers: generators model fundamentals and its applications" *Proc.SPIE* 4329 148-56 2001
- [3] T.Vu Cong, C.Jean-Mistral, A.Sylvestre, « New operating limits for application with electroactive elastomer:Effect of the drift of the dielectric permittivity and the electrical breakdown», *Proceeding of SPIE*.8687.page 86871S, (San Diego, USA), 2013



- [4] J. Sheng, H.Chen, B.Li, Y.Wang « Influence of the temperature and deformation-dependent dielectric constant on the stability of dielectric elastomers»,*J.Appl.Polym.*, , 2402 .2012
- [5] Kunanuruksapong, R.; Sirviat, A. *Appl.Phys*, 44, 365406.2011
- [6] G. Kofod, R. Kornbluh, R. Pelrine, P. Sommer-Larsen, “Actuation Response of Polyacrylate Dielectric Elastomers,” *Proc. of SPIE* 141, 4329. (2001).
- [7] Sze Hsien Low, Gih Keong Lau « High actuation strain in silicone dielectric elastomers actuators with silver electrodes », *Proceeding of SPIE*.7976,page 797636, 2011
- [8] Jonscher A K 1977 The ‘universal’ dielectric response *Nature* 267, 673
- [9] Fu-Chui. Chui 2014 Review on conduction Mechanism n dielectric films. *Advance in Materials Science and Enginnering*, ID578168
- [10] S. Hammami, C. Jean-Mistral, F. Jomni, A. Sylvestre, « Leakage current and stability of acrylic elastomer subjected to high dc voltage»,*Proceeding of SPIE*, 9430, page 943015-8.2015
- [11] L.Liu,Y.Liu,B.Li,K.Yang,T.Li&J.Leng.Thermoelectromechanicalinstabilityofdielectricelastomers.*SmartMaterialsandStructures*,vol.20,no.7,page 075004,2011.
- [12] J.Sheng, H. Chen, B. Li, Effect of temperature on the stability of dielectric elastomers. *Journal of Phys D:Appl Phys*, 44(36), 365,2011 no.36,page365406,2011.
- [13] Carpi F, De Rossi D, Kornbluh R, Perline R and Sommer-Larsen P 2008 Dielectric elastomers as electromechanical transducers *Elsevier publisher* 344
- [14] Di Lillo L, Schmidt A, Carneli D A, Ermani P, Kovacs G, Mazza E, and Bergamini A 2012 Measurement of Insulating and Dielectric Properties of Acrylic Elastomer Membranes at High Electric Fields *Proc. of SPIE*, **9430** 943015-8 2012.
- [15] P. Jean Cottinet, D. Guyomar, J. Galineau, G. Sebald « Electro-thermo-elastomer for artificial muscles », *Sensors and Actuators.*, vol.180,pp105, 2012
- [16] Choo Chiang. Foo, Shengqiang. Cai, Soo Jin. Adrian Koh, Siegfried. Bauer and Zhigang. Suo ”Model of Dissipative Dielectric Elastomers,” *J. Appl. Phys.* 111, 034102 2012