Université de Toulouse

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Institut National Polytechnique de Toulouse (Toulouse INP)

Discipline ou spécialité :

Génie Électrique

Présentée et soutenue par :

M. JORDAN STEKKE

le lundi 13 juillet 2020

Titre :

Contribution au perfectionnement de transformateurs piézoélectriques dédiés à la génération de plasma froid pour applications biomédicales

---

Ecole doctorale :

Génie Electrique, Electronique, Télécommunications (GEET)

Unité de recherche :

Laboratoire Plasma et Conversion d'Energie (LAPLACE)

Directeur(s) de Thèse :

M. FRANCOIS PIGACHE

M. CHRISTIAN COURTOIS

Rapporteurs :

M. ELIE LEFEUVRE, UNIVERSITE PARIS 11

M. FRÉDÉRIC GIRAUD, UNIVERSITE LILLE 1

Membre(s) du jury :

M. ADRIEN BADEL, UNIVERSITE DE SAVOIE CHAMBERY-ANNECY, Président

M. CHRISTIAN COURTOIS, UNIVERSITE DE VALENCIENNES, Membre

M. FRANCOIS PIGACHE, TOULOUSE INP, Membre

Mme GUYLAINE POULIN-VITTRANT, UNIVERSITE DE TOURS, Membre

Résumé

Face à l'évolution de notre compréhension des plasmas froids, leur spectre d'exploitation n'a cessé de croître durant ces dernières décennies. Même si dans le domaine biomédical, l'intérêt s'est aujourd'hui étendu à diverses applications telles que la thérapie cellulaire, le soin des plaies, la chirurgie dentaire ou le traitement cornéen, la désinfection par plasma froid reste un sujet d'étude prépondérant dans le domaine. De nombreux générateurs plasma ont été développés dans le but de répondre aux exigences de désinfection des outils thermosensibles ou chimiosensibles. De nombreuses difficultés telles qu'un niveau de désinfection élevé, une durée de traitement minimale, un rapport de forme ou une géométrie complexe des outils doivent être prises en compte. Leur caractéristique commune est la nécessité d'une source de haute tension en entrée. Elle se justifie par l'obligation d'atteindre la valeur de tension de claquage du gaz de plusieurs kVolts. Dans certaines applications, cette source de haute tension peut représenter un problème de sécurité pour les personnes (choc électrique) et les appareils électriques (interférences électromagnétiques).

Les propriétés d'un matériau piézoélectrique se traduisent par sa capacité à se déformer sous l'effet d'un champ électrique et inversement à générer un champ électrique sous l'action d'une contrainte mécanique. On retrouve son emploi dans des domaines variés tels que la micromécanique (moteur à onde progressive, vaporisateur à ultrason...), l'instrumentation (microphone de contact, jauge de contrainte...) ou l'électronique (isolateur galvanique, transformateur électrique...). Les structures d'amplification de tension basée sur l'association mécanique de deux (ou plusieurs) cellules piézoélectriques et l'apparition de céramiques synthétiques aux performances accrues ont permis l'émergence d'une nouvelle gamme de transformateur à très fort gain électrique massique.

Depuis une vingtaine d'années, un certain nombre de recherches ont étudié la possibilité d'utiliser des transformateurs piézoélectriques comme source de plasma froid. Leur fort gain électrique et leurs propriétés diélectriques naturelles en font un support privilégié à la génération de plasma froid (Piezoelectric Direct Discharge Plasma (PDDP)) et le cœur d'un dispositif sécurisé grâce à leurs faibles niveaux d'alimentation (quelques

volts). L'objectif de ma thèse se porte sur le développement et le perfectionnent de ces dispositifs de désinfection par plasma froid.
Dans l'objectif d'une optimisation du transformateur piézoélectrique pour une utilisation en générateur de plasma froid, il est nécessaire d'en modéliser le comportement. Ainsi, principalement deux modèles ont été développés : un modèle analytique linéaire unidimensionnel permettant une étude globale sur son dimensionnement et un modèle numérique tridimensionnel par éléments finis permettant une étude plus précise de l'impact d'une topologie complexe sur les champs électriques générés. Pour définir les conditions d'utilisation de ces transformateurs, des études de stress mécanique et thermique ont étés menés, principaux facteurs limitant en puissance.
Afin de conforter les capacités de désinfection de plasmas générés par PT (Piezoelectric Transformer), différentes campagnes d'essais bactéricides ont été menées en laboratoire biomédical. Les transformateurs piézoélectriques ont été montés dans des supports de décharge sous flux d'Argon générant des plumes plasma de plusieurs centimètres auxquelles sont exposées les souches bactériennes suivant une adaptation du protocole EN 13697. Si les résultats pour le Staphylococcus aureus se sont montrés plus mitigés avec des performances dépassant difficilement les 4log de réduction, tous les tests effectués avec la bactérie Pseudomonas aeruginosa ont permis d'atteindre le facteur de réduction maximal mesurable (plus de 6,73 log) dans des conditions sèches et humides pour des temps d'exposition de plus de 15min.

Faced with the evolution of our understanding of cold plasmas, their spectrum of exploitation has continued to increase over the past decades. Even if in the biomedical field, the interest has now extended to various applications such as cell therapy, wound care, dental surgery or corneal treatment, cold plasma disinfection remains a major subject of study in this field. Many plasma generators have been developed to meet the disinfection requirements of heat-sensitive or chemosensitive tools. Many difficulties such as a high level of disinfection, a minimum treatment time, a shape ratio or complex tool geometry must be taken into account. Their common feature is the need for a high voltage input source. It is justified by the obligation to reach the gas breakdown voltage value of several kVolts. In some applications, this high voltage source can be a safety problem for people (electric shock) and electrical equipment (electromagnetic interference).

The properties of a piezoelectric material are reflected in its ability to deform under the effect of an electric field and conversely to generate an electric field under the action of mechanical stress. It is used in various fields such as micromechanics (progressive wave motor, ultrasonic vaporizer...), instrumentation (contact microphone, strain gauge...) or electronics (galvanic isolator, electrical transformer...). Voltage amplification structures based on the mechanical association of two (or more) piezoelectric cells and the emergence of synthetic ceramics with increased performances have led to the emergence of a new range of transformers with very high electrical mass gain.

Over the past twenty years, a number of studies have investigated the possibility of using piezoelectric transformers as a source of cold plasma. Their high electrical gain and natural dielectric properties make them a preferred medium for cold plasma generation (Piezoelectric Direct Discharge Plasma (PDDP)) and the heart of a secure device thanks to their low power supply levels (a few volts). The objective of my thesis is to develop and perfect these cold plasma disinfection devices.

In order to optimize the piezoelectric transformer for use in cold plasma generators, it is necessary to model its behaviour. Thus, mainly two models have been developed: a unidimensional linear analytical model allowing a global study on its dimensioning and a three-dimensional numerical model by finite elements allowing a more precise study of the impact of a complex topology on the generated electric fields. To define the operating conditions of these transformers, mechanical and thermal stress studies were carried out, the main factors limiting power.

In order to strengthen the disinfection capacities of plasmas generated by PT, various bactericidal test campaigns were conducted in biomedical laboratories. The piezoelectric transformers were mounted in Argon sub-flow discharge supports generating plasma

feathers of several centimetres to which the bacterial strains are exposed according to an adaptation of the EN 13697 protocol. While the results for Staphylococcus aureus were more mixed with performances that hardly exceeded the 4log reduction, all tests performed with the bacterium Pseudomonas aeruginosa reached the maximum measurable reduction factor (more than 6.73 log) under dry and wet conditions for exposure times of more than 15min.

Remerciements

Cette thèse a été réalisée dans le cadre du projet ANR *Piézobio* au sein du laboratoire LAboratoire PLAsma et Conversion d'Énergie (LAPLACE) à l'École Nationale Supérieure d'Électrotechnique, d'Électronique, d'Informatique, d'Hydraulique et des Télécommunications (ENSEEIHT) de l'Institut National Polytechnique de Toulouse au sein du Groupe de Recherche en Électrodynamique, Matériaux, Machines et Mécanismes Électroactifs (GREM3).

En premier lieu, je souhaite sincèrement remercier François Pigache, Maître de Conférences à l'ENSEEIHT, de m'avoir accepter sur ce sujet de thèse. Merci pour la patience dont tu as fait preuve en me supportant durant ces plus de quatres années. Patience qui m'aura permis d'avoir l'honneur d'être ton premier doctorant officiel après l'obtention de ton HDR. Merci pour tous ces conseils qui m'ont construit et guidé durant cette aventure. Merci pour ces instants privilégiés au café du matin. Simplement merci pour tout !

Je tiens de même à remercier Christian courtois, Professeur à l'Université de Valenciennes, d'avoir accepter le co-encadrement de cette thèse. Merci pour nos échanges qui m'auront sensibilisé à la rigoureuse science des matériaux céramiques.

Je souhaitais également remercier les membres du jury : Adrien Badel, Elie Lefeuvre, Frédéric Giraud et Guylaine Poulin-Vittrant pour le temps qu'ils ont consacré à l'examen de mes travaux et pour les discussions très enrichissantes que nous avons pu avoir lors de la soutenance.

Un grand merci à Pascal Tierce, Président de SinapTec, de m'avoir accueilli à plusieurs reprises au sein de son entreprise, et surtout un grand merci à Philippe Appleton, Responsable Dev Electronique chez SinapTec, pour son accueil indéfectible et sa bonne humeur à chaque voyage à Lille qui ne font que confirmer l'image d'hospitalité des gens du Nord.

Merci aussi à tous les membres actuels et anciens du LMCPA : Mohamed Rguiti, Rafatou Takpara et surtout Jean-Francois Trelcat, toujours à fond investi dans tout ce que tu touches et sans qui j'en serais encore à me contenter de dessins sur ordinateur.

Mes remerciement vont également à Gaetan Rauwel, Vice President R&D des laboratoires ANIOS, et ses équipes pour leurs multiples accueils au sein de leur laboratoire et pour leur temps et la rigueur qui ont permis de mener à bien les différents essais bactéricides.

À tout le reste des membres du consortium que je n'ai pas encore pu citer, je pense notamment à Claire Tendero, Maître de conférence à l'ENSIACET, pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce projet et pour nos différents échanges au combien prolifiques.

À Clément Nadal, Maître de conférence à l'ENSEEIHT, de qui j'ai hérité l'énorme travail de débroussaillage sur le sujet PiézoPlasma méné quelques années auparavant. Merci pour ces discussions enrichissantes autour de bonnes bières toujours animées par la curiosité que tu as conservée sur ce sujet.

Et le reste de l'équipe du GREM3 : Dominique Harribey, Jean-François Llibre, Frédéric Messine, Yvan Lefevre et Carole Hénaux de m'avoir accueilli au sein du groupe et à qui je souhaite bonne continuation pour leurs recherches.

Je tiens tout particulièrement à saluer tous les membres du bureau E312: Alberto Rossi, Gurvan Jodin, Youness Rtimi, Théo Carpi, Matheus Carvalho, Oussama Filali et Jakub Nečásek pour la bonne ambiance qui a toujours pu subsister dans le bureau année après année même après la grande crise des calendriers. A ces parties de Quake et de Haxball mémorables qui ont rythmé nos pauses déjeuner. Je souhaite bonne chance aux prochains qui soutiendront bientôt.

Et à tout le reste de l'étage dont le bureau E314: Pedro Rynkiewicz, Alexandre Giraud, Julien Fontaine, Maxime Bonnet, Jessica Neumann, mais aussi Nicolas Rivière et Priscillia Daquin et tous ceux que je n'ai pu citer pour la bonne humeur que vous apportiez chaque jour à notre étage. Merci pour ces apéros du vendredi soir qui nous ont régalé.

Enfin, je remercie mes amis, ma famille et en particulier Claire qui partage aujourd'hui ma vie de n'avoir cesser de me soutenir dans cette aventure qui s'est avérée bien plus longue que prévue. Un grand merci à tous sans qui aujourd'hui je ne pourrais pas dire "je suis docteur".

Liste des abréviations

APPJ	Atmospheric Pressure Plasma Jet
DBD	Dielectric Barrier Discharge
FEAPS	FerroElectric Atmospheric Plasma Source
FEE	Ferroelectric Electron Emission
FEPT	FerroElectric Plasma Thruster
FPS	Ferroelectric Plasma Source
IEEE	Institute of Electrical and Electronics Engineers
LEAPP	Low-Energy Atmospheric-Pressure Plasma
LMCPA	Laboratoire des Matériaux Céramiques et Procédés Associés
MEB	Microscope Electronique à Balayage
N-APPJ	Non-thermal Atmospheric Pressure Plasma Jet
PSBD	Piezoelectric Surface Barier Discharge
PT	Piezoelectric Transformer
PTAD	Transformateur Piézoélectrique Avec Dent
PTSD	Transformateur Piézoélectrique Sans Dent
PTGD	Transformateur Piézoélectrique Grandes Dimensions
PZT	Plomb Zirconate Titanium
RNS	Reactive Nitrogen Species
ROS	Reactive Oxygen Species
TCS	Tripton-Caséine-Soja

Table des matières

Liste des abréviations **ix**

Introduction Générale **1**

1 Contexte, positionnement et objectifs **5**

1.1 Procédés plasmas froids pour applications biomédicales 6

1.1.1 Introduction à la physique des plasmas 6

1.1.2 Mécanismes de l'action biocide 9

1.1.3 Modélisation des plasmas 11

1.1.4 Dispositifs de mesure 15

1.1.5 Architectures conventionnelles des générateurs basse fréquence . 20

1.2 Génération de plasma froid par effet piézoélectrique 22

1.2.1 Introduction à la piézoélectricité 23

1.2.2 Modélisation du comportement piézoélectrique 28

1.2.3 Couplage piézo/plasma 34

1.2.4 Émission électronique ferroélectrique 38

1.2.5 Application de la FEE à la génération de plasma 40

1.3 Positionnement de la problématique 44

1.3.1 Augmentation de la surface active 46

1.3.2 Intensification du champ électrique 48

1.3.3 Montée en puissance du générateur 50

1.4 Conclusion 52

2 Modélisation et dimensionnement du générateur piézoélectrique **55**

2.1 Introduction 56

2.2 Modélisation analytique du potentiel de surface 57

2.2.1 Prise en compte de l'état de charge 57

2.2.2 Validation du modèle 69

2.2.3 Discussion 75
2.3 Étude du comportement thermique 75
2.3.1 Modèle du comportement thermique fonction de la charge . . . 76
2.3.2 Validation du modèle sur transformateur complet 83
2.3.3 Discussions 87
2.4 Contribution à la conception optimisée 89
2.4.1 Définition du problème d'optimisation 90
2.4.2 Étude du comportement paramétrique à partir du modèle analytique 91
2.5 Conclusion 97

3 Études expérimentales 99
3.1 Introduction 100
3.2 Réalisation de prototypes 100
3.2.1 Variation de dimensions 100
3.2.2 Variations géométriques aux extrémités du secondaire 101
3.2.3 Récapitulatif 109
3.3 Caractérisation électrique de générateur en décharge 110
3.3.1 Description du dispositif expérimental 111
3.3.2 Comparaison des admittances primaires en décharge 113
3.3.3 Caractérisation électrique de la décharge 119
3.4 Évaluation des capacités bactéricides 124
3.4.1 Mise en œuvre spécifique du dispositif 124
3.4.2 Essai de décontamination 129
3.5 Conclusion 138

Conclusion Générale 141

Références 145

Appendix A Relevé des caractéristiques primaires des différents PT 157

Appendix B Propriétés matériaux 165
B.1 Céramique SM112 de Steminc 166
B.1.1 Datasheet 166
B.1.2 Construction des matrices matériaux du SM112 167
B.2 Céramique PZT-FJ réalisée par le LMCPA 170

Appendix C Identification Paramètres électriques équivalents 171

Introduction Générale

Durant les dernières décennies, les matériaux piézoélectriques n'ont cessé de voir leurs performances croître depuis le simple morceau de quartz jusqu'aux nouvelles céramiques synthétiques actuelles. Cet élan de recherche dans les matériaux dit intelligents est porté par les perspectives de nouvelles solutions technologies toujours plus intégrées, toujours plus polyvalentes et toujours plus proches du matériau.

L'objet de cette thèse s'inscrit dans cette nouvelle mouvance. Elle porte sur le développement et l'étude d'une solution technologique faisant appel aux matériaux piézoélectriques pour la génération de décharges plasmas à pression atmosphérique. La réalisation envisagée s'attelle à répondre aux besoins spécifiques de décontamination du matériel médical et plus particulièrement le matériel à corps creux tel que les endoscopes ou cathéters. Le domaine biomédical s'intéresse activement depuis plusieurs décennies aux plasmas froids en raison de ses propriétés non-thermiques et réactives qui leur permettent d'interagir à la fois avec des tissus vivants, des cellules et des bactéries. Le plasma froid est une solution efficace, indolore dans le cas des traitements directs des cibles médicales et également utilisée pour le traitement de surfaces sans en dégrader les caractéristiques essentielles.

Si des études se consacrent effectivement à la dimension électrique des générateurs, leur architecture comme voie d'amélioration est peu traitée, notamment pour les dispositifs de petite taille (à usage manuel ou de type endoscopique). Les besoins de fortes tensions, d'intégration, de fortes densités électroniques, associés à des contraintes opérationnelles inhérentes au milieu médical peuvent restreindre les techniques conventionnelles de génération. Devant ces contraintes techniques et face à la demande de solutions spécifiques au traitement des systèmes endoscopiques, la génération de décharges plasma par effet piézoélectrique constitue une alternative technologique tout à fait séduisante et originale. Les caractéristiques propres de cette solution telles que la basse tension d'alimentation, son comportement diélectrique, la capacité de minia-

turisation, ou encore la commandabilité, la prédisposent favorablement au domaine visé. L'aptitude à la génération de ces matériaux piézoélectriques est connue depuis longtemps et mise à profit dans des systèmes d'allumage élémentaires (allume-gaz). Il s'agit à présent de tirer profit de cette technologie pour maintenir un gaz environnant dans un état de plasma froid aux propriétés biocides.

Le chapitre 1 s'attelle à poser le contexte des chapitres suivants. En premier lieu, il revient sur les notions de plasma et des différents régimes de décharges atteignables pour des plasmas froids. Il en aborde notamment les différents mécanismes d'allumage et conditions associées pour initier la décharge, puis ses actions biocides sur le vivant. Dans un second temps, un état de l'art sur les céramiques piézoélectriques est effectué. Il en présente les couplages électromécaniques élémentaires et les différentes applications courantes qui en sont faites. L'intérêt se portera alors essentiellement sur l'impact du couplage fort subsistant entre une décharge et un transformateur piézoélectrique utilisé en tant que générateur plasma et toutes les solutions technologiques qui ont pu être apportées pour améliorer le transfert de puissance entre les deux.

Les conditions de génération d'une décharge plasma s'appuie sur différents paramètres tels que la pression, la nature du gaz ou l'intensité du champ électrique. L'impact du générateur piézoélectrique va alors se caractériser par sa capacité à fournir une tension suffisante à l'allumage et au maintien de la décharge. Le chapitre 2 entreprend de modéliser le comportement d'un transformateur piézoélectrique dans le cadre de son association à une décharge plasma élémentaire. Il aborde les notions d'échauffement thermique et de couplage fort entre générateur et décharge étant les deux principales causes de limitation du transfert de puissance pour ce type de générateur. L'objectif est de fournir un outil qui sera le cœur de l'étude paramétrique de fin de chapitre qui dégagera les critères géométriques permettant de tirer le meilleur parti de ces générateurs.

Le chapitre 3 s'attache à la vérification expérimentale de la montée en puissance des nouveaux designs de transformateurs et à la confirmation de leurs performances biocides. Les axes d'amélioration paramétriques fournis au chapitre 2 ont conduit à l'élaboration de jeux de transformateurs qui sont testés sous différentes conditions de gaz. Au delà des variations paramétriques, ces essais permettront aussi d'évaluer les améliorations qu'apportent l'ajout d'une zone non-polarisée ou de dentures au secondaire en condition de décharge du transformateur. Enfin, différents prototypes

exploitant des générateurs piézoélectriques répondant aux besoins de désinfection aussi bien cavitaire qu'en surface seront présentés et testés, afin d'entamer une qualification préliminaire des possibilités applicatives de ces concepts au domaine biomédical.

Enfin, à l'issue de ces trois chapitres et des résultats qui y sont présentés, les conclusions et les perspectives découlant de ces études seront formulées afin d'ouvrir la voie à de futurs travaux.

Chapitre 1

Contexte, positionnement et objectifs

Sommaire

1.1 Procédés plasmas froids pour applications biomédicales . 6

1.1.1 Introduction à la physique des plasmas 6

1.1.2 Mécanismes de l'action biocide 9

1.1.3 Modélisation des plasmas 11

1.1.4 Dispositifs de mesure 15

1.1.5 Architectures conventionnelles des générateurs basse fréquence 20

1.2 Génération de plasma froid par effet piézoélectrique . . . 22

1.2.1 Introduction à la piézoélectricité 23

1.2.2 Modélisation du comportement piézoélectrique 28

1.2.3 Couplage piézo/plasma 34

1.2.4 Émission électronique ferroélectrique 38

1.2.5 Application de la FEE à la génération de plasma 40

1.3 Positionnement de la problématique 44

1.3.1 Augmentation de la surface active 46

1.3.2 Intensification du champ électrique 48

1.3.3 Montée en puissance du générateur 50

1.4 Conclusion 52

Ce chapitre débute par une brève introduction aux actions biocides des plasmas froids. Les principes physiques à l'œuvre dans le procédé de décontamination sont explicités en s'appuyant sur une large bibliographie construite progressivement depuis les années 90. Les dispositifs d'alimentation conventionnelle haute tension sont présentés pour ensuite aborder le principe et les particularités des générateurs par effet piézoélectrique. Cet usage singulier est détaillé et positionné au travers d'un état de l'art, puis la problématique est finalement formulée.

1.1 Procédés plasmas froids pour applications biomédicales

1.1.1 Introduction à la physique des plasmas

S'il est courant de qualifier la matière suivant trois états différentiés (le solide, le liquide et le gazeux) par le niveau d'énergie des particules qui la composent, le plasma peut être considéré comme le quatrième état. Plus énergétique que l'état gazeux, il en conserve les propriétés mécaniques mais se caractérise par un phénomène d'ionisation, lui valant le qualificatif de gaz ionisé.

Un gaz atteint l'état plasmique à la suite d'un apport d'énergie, tel qu'un échauffement thermique, un champ électromagnétique accélérant les quelques électrons libres naturellement présents dans ce gaz neutre [1] ou directement par la collision de particules de haute énergie issues par exemple de la présence d'un autre plasma. Si l'énergie cinétique E_c de ces électrons libres s'avère suffisante à l'impact de particules neutres, dépassant le seuil d'énergie d'ionisation E_i propre à la nature du gaz à ioniser, ils vont arracher un second électron au neutre. S'en suit alors une réaction d'avalanche électronique donnant naissance au plasma. Cette ionisation du gaz par un principe de formation par paire électron-ion maintient l'électroneutralité globale du gaz. Cependant la présence de ces porteurs de charge modifie les propriétés du gaz telles que sa conductivité ou son indice de réfraction.

Le plasma est donc un mélange d'une quantité d'ions n_i, d'électrons libres n_e et de neutres n_0 dont le ratio, le degré d'ionisation $\alpha = n_e/(n_i + n_0)$ et les températures de gaz T_g et électronique T_e (exprimées en degré Kelvin ou en électronvolt) permettent de classer les plasmas suivant différentes catégories propres aux conditions, à la nature et au procédé de génération du plasma [2]. Deux grands types de plasma se distinguent :

- les plasmas chauds de fort degré d'ionisation ($\alpha > 0,1$) et forte température ($T_g = T_e \approx 10.000K$) composant les étoiles et la majeure partie de notre univers,
- les plasmas froids ou plasma hors-équilibre thermodynamique. De degré d'ionisation faible (classiquement entre 10^{-7} et 10^{-4}), ils se caractérisent par la présence de plusieurs niveaux d'énergie au sein des particules : les électrons à $Te \approx 10.000 - 100.000K$ et les éléments lourds proches de la température ambiante $T_g = 300 - 1000K$.[3]

1.1.1.1 Présentation des principales variétés de plasmas froids par source électromagnétique

La source d'énergie la plus commune employée en laboratoire et dans l'industrie pour la génération de plasma froid est la voie électromagnétique. Cette solution est favorisée par sa facilité de mise en œuvre et de pilotage. Les propriétés des plasmas ainsi générés et leur régime de décharge vont alors dépendre d'un ensemble de paramètres tels que la nature du gaz, sa pression, l'intensité du champ électromagnétique, sa fréquence d'excitation ou encore la géométrie du dispositif. Pour certaines catégories de gaz (ex: le dioxygène) difficilement ionisable notamment à pression atmosphérique, un gaz vecteur à énergie d'ionisation plus faible (tel que l'argon ou l'hélium) peut lui être ajouté pour faciliter le procédé. Ainsi, quatre principales classes de décharge se distinguent (fig. 1.1)[4].

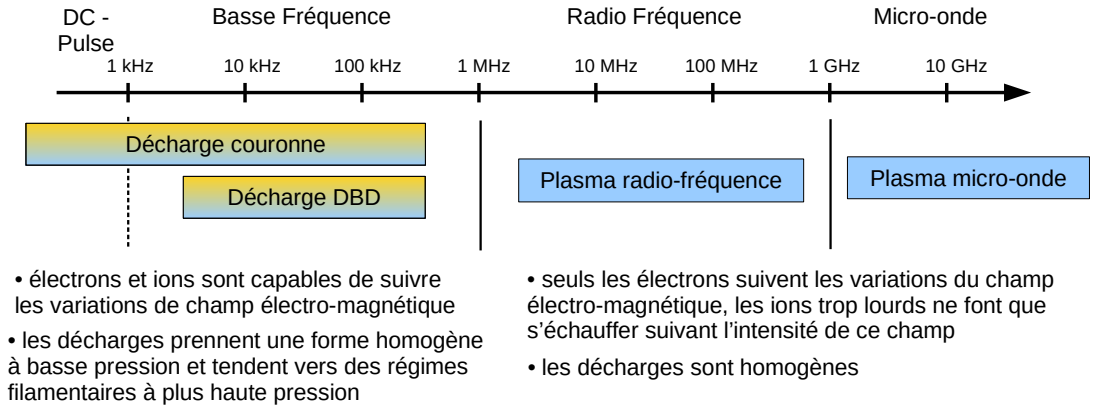


Fig. 1.1 Principales variétés de plasma froid obtenues à l'aide d'une source électromagnétique

La décharge couronne présente la plus large gamme de fréquences de fonctionnement pouvant s'étendre de la tension continue jusqu'au courant alternatif de quelques

centaines de kHertz en passant par les commandes par impulsion. Elle se caractérise par la présence d'une électrode haute tension (plusieurs kV) à faible rayon de courbure, constituée d'une ou de plusieurs pointes. Ce faible rayon de courbure permet de générer à l'extrémité de la pointe un fort champ électrique local initiant la décharge, qui se propage ensuite dans le voisinage proche de l'électrode. Ce type de décharge n'apparaît généralement qu'à partir de moyenne pression ($\approx 10 - 50mbar$) suivant la nature du gaz) avec des régimes homogènes tendant vers des régimes filamentaires en se rapprochant de la pression atmosphérique. Un pilotage par impulsion de très faible durée est parfois employé pour maintenir la durée de chaque décharge en dessous du temps de formation d'un arc électrique. Cette disposition permet de se prémunir des régimes de haute température lorsqu'il ne sont pas souhaitables.

La décharge à barrière diélectrique (DBD) se présente sous la forme de deux électrodes soumises à une haute différence de potentiel (plusieurs kV) le plus souvent en vis à vis (typiquement électrodes coplanaires ou cylindres coaxiaux) et séparées par un isolant diélectrique évitant ainsi le passage au régime d'arc. La décharge se produit suite à l'accumulation des charges à la surface du diélectrique, par conséquent ce type de plasma ne peut être maintenu qu'à la condition d'une alimentation sous tension alternative. A faible pression ($< 10mbar$), ce procédé permet d'obtenir des plasmas diffus dans tout l'espace inter-électrode. En montant en pression, comme pour le régime couronne, la décharge tend vers des régimes filamentaires.

Les plasmas radiofréquences se présentent sous la forme de structures proches de celles des DBD. Cependant, la montée en fréquence rend plus difficile la circulation des électrons d'une électrode à l'autre et maintient la décharge en état transitoire. Un arc électrique n'a donc pas le temps de se former et permet de s'affranchir d'un diélectrique entre les deux électrodes. Il est possible de trouver pour ce type de décharge, des générateurs dit à couplage inductif (à l'inverse des générateurs à couplage capacitif précédents), se présentant sous la forme d'une bobine alimentée par un courant RF, générant un champ magnétique alternatif capable d'initier une décharge au cœur de la bobine.

Les plasmas micro-ondes sont des plasmas obtenus à partir de systèmes à cavité résonnante, à guide d'onde ou à onde de surface, alimentés par des générateurs de type magnétron ou surfatron. Cette très haute fréquence d'excitation permet de générer des plasmas froids très homogènes à très haute densité électronique leur assurant un meilleur niveau de diffusion au-delà de la zone de décharge.

Les transformateurs piézoélectriques utilisés dans cette étude et présentés par la suite, sont alimentés par une tension alternative autour de la centaine de kHertz. La propriété diélectrique des matériaux employés et leur fréquence d'alimentation peuvent permettre la génération de décharge de type corona ou DBD suivant leur mise en œuvre.

1.1.2 Mécanismes de l'action biocide

L'intérêt industriel pour les plasmas s'est vu s'accroître durant les deux dernières décennies. Leurs fortes activités chimique et électrique maintenues pour des températures de gaz basses en font une solution séduisante notamment pour le traitement de matériaux thermosensibles ou chimiosensibles ne pouvant être traités par autoclave ou solutions chimiques acides [5]. Le traitement de produits alimentaires [6], la préparation de surface [7], le contrôle de combustion pour les moteurs thermiques [8], le contrôle d'écoulement fluide pour la réduction de pertes aérodynamiques [9] la gravure micrométrique[10] et plus particulièrement le domaine biomédical en raison des capacités d'interaction du plasma avec le vivant [11] constituent les principaux champs applicatifs.

Dans le domaine médical tirant profit de l'application directe du plasma froid sur le vivant, les dispositifs les plus largement étudiés sont les N-APPJ (Non-thermal Atmospheric Pressure Plasma Jet)[12][13], dont différentes structures sont illustrées en fig.1.13 dans la section traitant des structures de générateurs. Cette solution technologique a provoqué un large intérêt en raison de la praticité de fonctionnement à pression atmosphérique, de l'étendue de la zone de post-décharge ainsi que la faible température du gaz limitant ses effets destructeurs sur le matériel ou les tissus vivants. Depuis quelques années, les plasmas froids à pression atmosphérique (ou LEAPP Low-Energy Atmospheric-Pressure Plasma) ont su trouver leur place pour des applications dermatologiques [14], de cicatrisation, désinfection[15][16], traitement cancéreux[12] [17] ou coagulation [18]. Par ailleurs, des solutions à plasmas haute température ont également été développées pour le domaine chirurgical à des fins de découpe de tissus ou de cautérisation[19].

Le plasma froid est un milieu de forte activité électronique débouchant sur de multiples capacités d'action sur le vivant. Dans le cas des plasmas générés pour la désinfection comme présenté sur la fig. 1.2, de nombreux mécanismes se combinent et concourent à l'effet bactéricide.

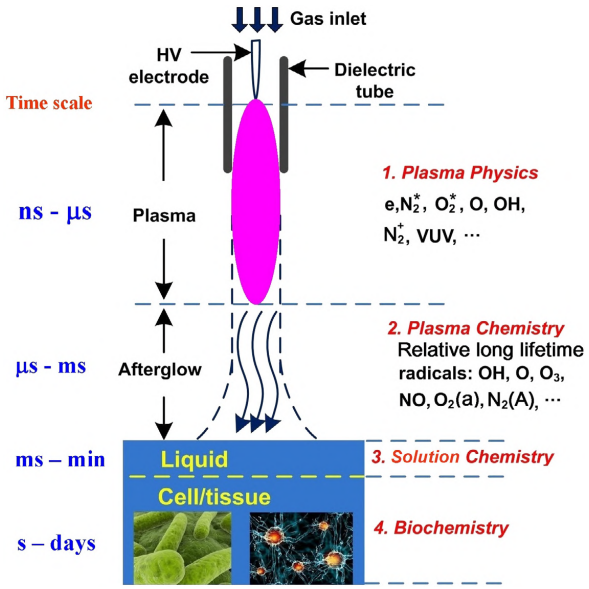


Fig. 1.2 Génération, transport et interactions des espèces réactives impliquées dans les interactions plasmatiques avec des sujets biologiques suivant différentes zones spatiales. [20]

Le bombardement électronique ou ionique , correspondant à l'impact des électrons ou ions à la surface de la cellule, peut entraîner un effet de gravure physique de la paroi cellulaire pouvant mener à sa rupture[21]. De plus, l'accumulation de ces charges sur la paroi entraîne une pression par force électrostatique pouvant aussi entraîner une lyse (destruction de la paroi cellulaire)[22].

L'action chimique participe également à une action spécifique sur la paroi cellulaire [23], par la multiplicité des atomes et radicaux libres synthétisés au sein du plasma et en interaction avec le gaz ambiant. Pour des applications bactéricides, les concentrations en ROS (Reactive Oxygen Species) et RNS (Reactive Nitrogen Species) telles que O, O_2^*, O_3, OH, NO ou NO_2 font partie des espèces produites par le plasma les plus étudiées[24][25].

Le rayonnement UV semble également provoquer des effets mutagènes irréversibles sur l'ADN de la cellule [25][26]. De plus, son action peut aussi se traduire par une érosion photo-induite de la paroi cellulaire ou une oxydation des protéines et lipides nécessaires à la cellule[26].

L'échauffement thermique localisé peut également participer à l'action de détérioration cellulaire [27]. Bien que dans le cas des plasmas froids les températures gaz restent faibles, il peut arriver, par l'intermédiaire de réactions chimiques exothermiques à la surface de la cellule ou de l'échauffement par effet Joule d'un support métallique exposé aux flux d'électrons, que la cellule s'échauffe jusqu'à la lyse. Ce mécanisme n'est pas souhaité pour ses conséquences possiblement destructrices sur le support traité, mais n'est pas à négliger lors de l'évaluation des performances d'un dispositif de désinfection par plasma.

1.1.3 Modélisation des plasmas

Le comportement d'une décharge plasma est fortement non-linéaire, très dépendante des conditions opératoires et de l'agencement. Par conséquent il n'existe pas de modèles simples génériques susceptibles de modéliser le plasma dans toutes ses variétés. A titre illustratif, le Fig. 1.3 donne le comportement d'une décharge dîte de Townsend (décharge homogène) dans le plan V-I à l'aide d'un générateur DBD dans l'azote. Il apparait de manière évidente le comportement asymptotique vers une valeur de tension (dîte tension seuil) et le trajet hystérétique de la caractéristique.

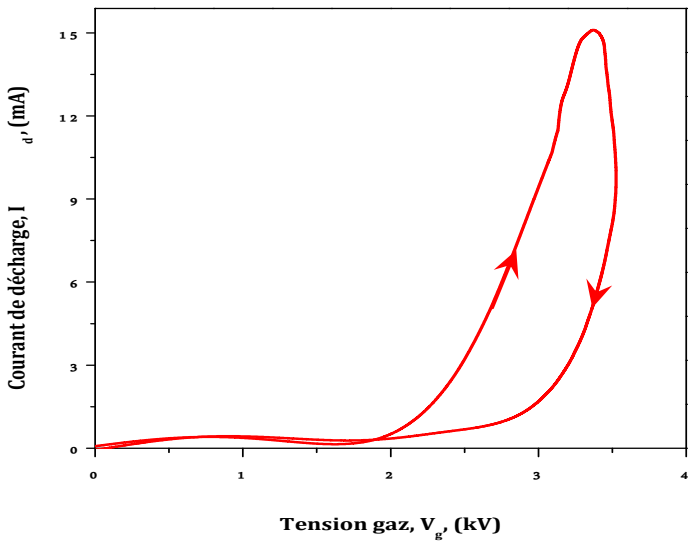


Fig. 1.3 Caractéristique $Id = f(Vg)$ d'une décharge de Townsend dans l'azote $V = 15kV_{CC}$, $f = 2kHz$) [28]

Plusieurs approches de modélisation sont brièvement décrites ci-dessous.

1.1.3.1 Loi de Paschen

La loi de Paschen est une loi empirique permettant de décrire les conditions d'allumage d'une décharge plasma entre deux électrodes coplanaires éloignées d'une distance d. La démonstration actuelle de son expression se base sur les équations d'un régime particulier décrit sous le nom de décharge de Townsend créé dans le cas d'une alimentation continue [1]. Le plasma est initié sous l'effet d'avalanche décrite par la loi de Townsend qualifiant la quantité d'électrons issue de la cathode et s'accroissant vers l'anode à l'issue de collisions électron/ion:

$$\gamma\left[exp(\alpha d) - 1\right] = 1 \tag{1.1}$$

où α représente la probabilité de collision d'un électron émis par la cathode avec un neutre et générant un nouvel électron (inversement proportionnel au libre parcours moyen de cet électron). γ est la probabilité d'émission secondaire d'électrons dûe à l'impact des ions sur la cathode et d la distance entre les 2 électrodes. Cette relation mène à l'expression classique de la courbe de Paschen

$$V_{igni} = \frac{Bpd}{C + ln(pd)} \tag{1.2}$$

avec p la pression du gaz et V_{igni} la tension de claquage. Cette dernière peut être employée dans le cas d'une DBD, en interprétant la grandeur de claquage comme étant la tension pic à pic de ce signal [1][29].

1.1.3.2 Modèles de décharge en DBD

Une cellule de décharge DBD se caractérise par trois principales parties : les électrodes métalliques, la barrière diélectrique et le volume de gaz. L'accès aux grandeurs électriques étant difficile au sein de la cellule de décharge sans en affecter le comportement, les modèles sont le plus souvent élaborés à partir des grandeurs mesurables aux électrodes [30]. La nature et les caractéristiques physiques et chimiques des décharges sont fortement liées aux conditions de leur génération. Dans les cas des DBD, des paramètres tels que la forme des électrodes, la pression du gaz, l'épaisseur de diélectrique ou encore la vitesse d'écoulement gaz ont un impact considérable [31][3]. Par conséquent il est indispensable d'en maîtriser la modélisation pour favoriser par exemple l'intensité des décharges ou leur stabilité. Ainsi, la modélisation numérique est devenue un axe de recherche et un outil indispensable à la compréhension [32][33][34]. Ces modèles à formulation locale intégrant les relations de propagation-diffusion présentent des

résolutions très lourdes en calcul. Ils sont mal adaptés pour la conception de dispositifs, notamment en raison de l'absence de prise en compte du couplage fort existant entre générateur et plasma. Un modèle simplifié peut en revanche s'avérer suffisant pour estimer la puissance transmise à la décharge. Un modèle filaire du générateur associé à la décharge permet d'apprécier globalement le comportement électrique, sous réserve d'un domaine de validité restreint. La difficulté à modéliser la décharge tient à sa forte non-linéarité comme visible sur la figure 1.4 dépendante des conditions de décharge [35].

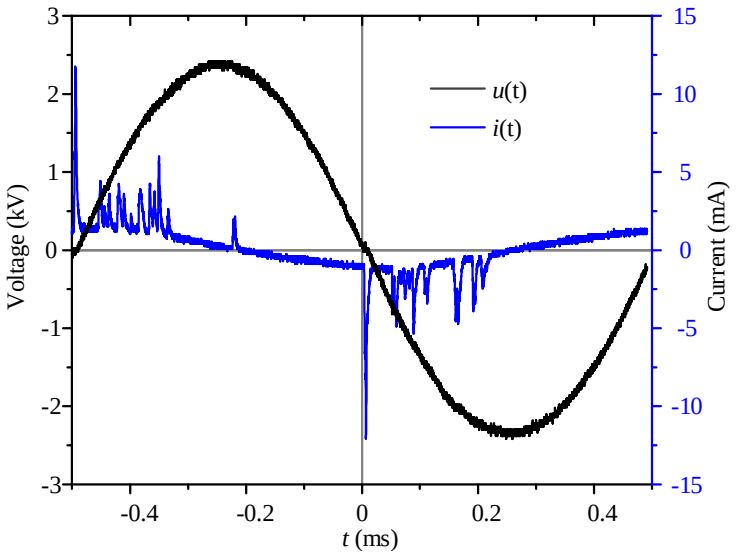


Fig. 1.4 Exemples de courant de décharge obtenu en DBD sous argon à $100mbar$ présentant plusieurs pics de décharge à chaque demi-période [36]

Un premier modèle élémentaire filaire pour rendre compte du comportement dynamique d'une décharge en régime périodique est détaillé ci-après. Ce dernier prend la forme de deux diodes Zener idéales en antiparallèle permettant de modéliser le franchissement de la tension de claquage du gaz V_g au-delà du seuil d'ionisation (V_{igni})[37] . En supposant une configuration d'électrodes symétriques, le module de ces valeurs seuil seront identiques sur les alternances positives et négatives de la tension d'alimentation. Le modèle se complète de plusieurs éléments capacitifs : la capacité de la barrière diélectrique C_{bd} (si il y a lieu) et la capacité de l'espace gazeux C_g qui agit comme un milieu isolant.

López [38], en se basant sur les travaux de Roth[39] et Fang[40], propose une variante au modèle précédent. A pression atmosphérique, des régimes filamentaires peuvent apparaître. Ce circuit équivalent de la décharge, présenté figure 1.6, se décompose

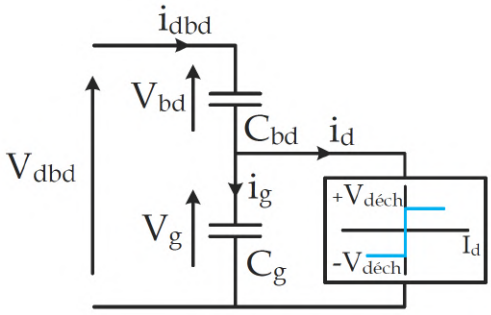


Fig. 1.5 Modèle filaire équivalent élémentaire d'un dispositif DBD classique en régime homogène [37]

en deux branches : la branche $i_h(t)$ traduit le comportement en régime diffus de la décharge, assimilable au fonctionnement de la diode Zener précédente, à laquelle s'ajoute la branche $i_f(t)$ modélisant les micro-décharges filamentaires.

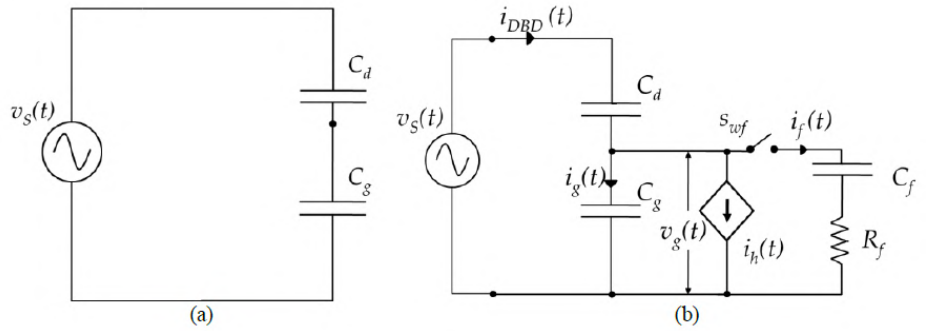


Fig. 1.6 Modèle filaire équivalent d'une DBD à pression atmosphérique proposée par Lopez [38] (a) hors décharge et (b) en décharge

La branche $i_h(t)$ est composée d'une source de courant pilotée par la tension gaz $v_g(t)$ de loi :

$$i_h(t) = i_0 \left(\frac{v_g(t)}{V_{igni}} \right)^{\alpha} \tag{1.3}$$

avec i_0 l'émission continue d'électrons et α le coefficient propre à la fréquence de variation du courant de décharge $di_h(t)/dt$. Pour des fréquences basses correspondant à un coefficient α élevé (classiquement 12), cette source de courant tend vers le comportement de la diode Zener du précédent modèle. Pour des régimes plus rapides et un coefficient α moindre (typiquement 2), les transitions non-linéaires sont réduites. L'auteur propose d'ajouter une branche $i_f(t)$ de type RC série pour représenter la

formation rapide de micro-décharges. La commande de l'interrupteur qui commute cette branche obéit à une loi rendant compte des micro-décharges et se compose d'un hacheur de l'ordre de la nanoseconde couplé à une cellule de contrôle ne se déclenchant que lorsque la tension gaz dépasse les tensions de claquage positive ou négative.

Fang [41] propose un modèle évolutif de décharge pour générateur d'APPJ sous flux de gaz, composé d'un tube de quartz Fig.1.7 et assimilable à une structure DBD. Suivant le niveau de tension atteint, le plasma s'étend différemment depuis l'électrode "aiguille" vers l'électrode de masse. Ce modèle rend compte de trois comportements distincts à l'aide des modèles électriques équivalents présentés figure 1.7 suivant la propagation de la décharge :

- la décharge n'atteint pas l'électrode de masse : celle-ci est assimilable à un régime couronne traduite par une résistance R_g et une capacité gaz C_g représentative du niveau d'ionisation du gaz et donc dépendant du niveau de tension primaireV_p, avec C_g croissant avec V_p et inversement R_p décroissant.

- la décharge s'étend entre électrode haute tension et électrode de masse : la décharge est en régime DBD simulé par l'ajout d'une source de courant modélisant le courant de décharge.

- la décharge s'étend au-delà de l'électrode de masse : la décharge prend la forme d'un plasma jet. Dans l'espace DBD (entre les deux électrodes), le régime et le niveau d'ionisation sont stabilisés, par conséquent l'impédance équivalente du gaz devient indépendante du niveau de tension source. Une résistance R_p et une capacité C_p sont ajoutées pour modéliser la part externe du plasma jet, suivant un modèle comparable à la décharge couronne observée en première phase.

1.1.4 Dispositifs de mesure

Les trois grandeurs qui caractérisent un plasma sont : la température électronique T_e, la densité électronique n_e et la température gaz T_g qui dans le cas des plasmas froids sera généralement prise égale à la température ambiante soit 300°K. Les implications de ces trois grandeurs dans la physique d'un plasma qu'elles soient mécaniques, chimiques ou électriques, amènent à l'utilisation d'une variété tout aussi large de dispositifs pour mesurer et qualifier les différentes facettes physiques d'une décharge permettant de remonter indirectement à ces trois grandeurs caractéristiques.

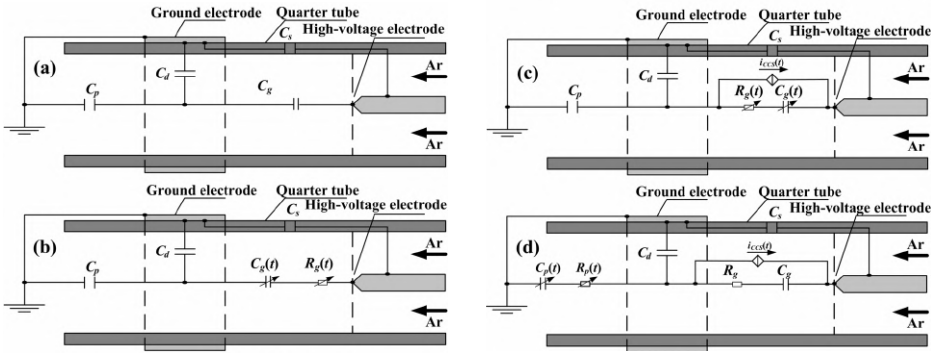


Fig. 1.7 Modèle électrique équivalent de la décharge (a) avant allumage, (b) durant décharge couronne, (c) durant DBD, (d) durant plasma jet.[41]

Les deux approches complémentaires les plus fréquemment employées pour l'étude des plasmas froids sont la mesure du courant de décharge et la spectrométrie optique [35][42][43].

Le courant de décharge détermine l'activité électrique dans un plasma, qui se caractérise dans le cas des plasmas hors-équilibre essentiellement par le déplacement des électrons. Pour le diagnostic du plasma à pression atmosphérique, la méthode privilégiée est l'emploi d'une sonde de Langmuir [44]. Elle se compose d'une ou plusieurs sondes conductrices de petite taille plongée dans le plasma à partir desquelles est établie la caractéristique courant-tension. Pour des sondes suffisamment petites au regard de l'étendue spatiale de la décharge et en considérant la décharge homogène sur toute la surface de la sonde, il est possible de remonter à la densité électronique n_e suivant l'expression :

$$j_{dRMS} = n_e e \mu_e E_{gRMS} \tag{1.4}$$

où e est la charge élémentaire, j_{dRMS} la densité de courant de décharge efficace liée à la surface de la sonde, E_{gRMS} le champ électrique efficace et μ_e la mobilité des électrons dans le gaz à pression atmosphérique (typiquement $0,11 m^2 V^{-1} s^{-1}$ dans de l'hélium)[35]. Pour les basses fréquences et la plupart des modes de décharge en haute fréquence, Boisvert [35] montre que la densité électronique croit strictement avec la puissance de décharge comme l'illustre les résultats de la figure 1.8.

Le déplacement des électrons peut aussi se mesurer par l'intermédiaire d'une contre-électrode conductrice en vis-à-vis du générateur. Cette électrode prend généralement la forme d'une électrode plane [45] ou bien encore d'une cavité de Faraday [46] comme illustré en figure 1.9(a). Une résistance de shunt faible impédance ou une capacité

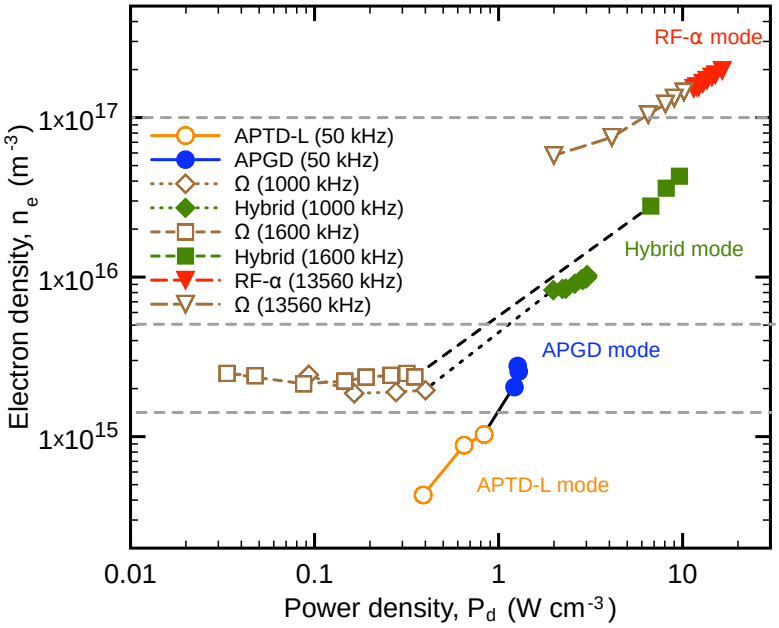
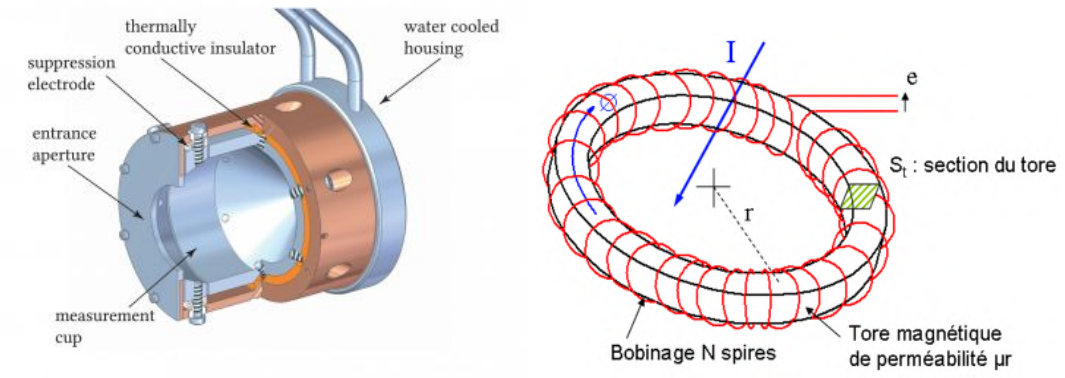


Fig. 1.8 Densité électronique calculée depuis l'équation 1.4 fonction de la densité de puissance de la décharge pour différents modes de décharge à différentes fréquences [35].

est alors connectée à cette sonde conductrice pour évaluer le courant de décharge et la quantité de charges collectées. Les dimensions de ces électrodes "collectrices" sont généralement trop importantes pour justifier l'hypothèse d'homogénéité de la décharge permettant l'évaluation de la densité électronique, néanmoins elles s'avèrent être un moyen efficace pour permettre l'évaluation globale de la puissance de décharge.

Malgré l'avantage indéniable d'être facile à mettre en œuvre, cette solution d'électrode collectrice reste invasive et ajoute une référence de potentiel dans l'environnement de la décharge plasma, pouvant affecter considérablement son comportement [47], ce qui peut s'avérer préjudiciable pour certaines configurations de générateurs. D'autres dispositifs moins invasifs tels que des boucles de Rogowski peuvent être utilisés pour mesurer le flux de porteurs de charge comme illustré en figure 1.9. Elles consistent à déployer une spire bobinée autour du jet plasma qui va induire un courant dans le bobinage image du flux d'électrons [48].

Dans le cas des dispositifs à structure DBD possédant par nature un couplage capacitif, il est possible d'évaluer le courant de décharge par une double mesure du courant de contre-électrode en condition hors-décharge et en décharge (suivant un jeu sur la nature du gaz) pour un niveau de tension équivalent, correspondant respectivement



(a) Cavité de Farraday (dreebit-ibt.com) (b) Boucle de Rogowski

Fig. 1.9 Dispositifs de mesure électrique d'une décharge plasma

au courant de déplacement ou capacitif et courant total [49], le courant de décharge correspondant alors à la différence des deux derniers. Ce courant de décharge I_d et la tension d'excitation de la sonde haute tension U_{DBD} sont alors généralement ramenés aux deux paramètres électriques suivants [41] [50]:

- la puissance de décharge :

$$P = \frac{1}{T}\int_0^T U_{DBD}(t)I_d(t)dt \tag{1.5}$$

- le débit de charge Q :

$$Q = \int_0^T I_d(t)dt \tag{1.6}$$

valeurs qui pourront être classiquement représentées sous forme de cycles de Lissajoux $Q(V_{DBD})$ sur une période T (dans le cas des décharges périodiques) dont la surface interne est image de la puissance de décharge P, elle même image de la densité électronique, comme illustré en figure 1.10. Suivant leur allure, les courbes de Lissajoux permettent également de distinguer les différents régimes de décharge plasma. [40]

La spectrométrie optique complète la mesure électrique par une observation du comportement des particules lourdes (atomes, ions et molécules) trop lentes pour être perceptibles et distinguées par des mesures électriques.

La forte activité des électrons libres présents dans le plasma entraîne des collisions avec des atomes lourds, qui acquièrent de l'énergie cinétique lors de collisions dites *élastiques* et de l'énergie interne lors de collisions *non-élastiques*. La particule peut sortir

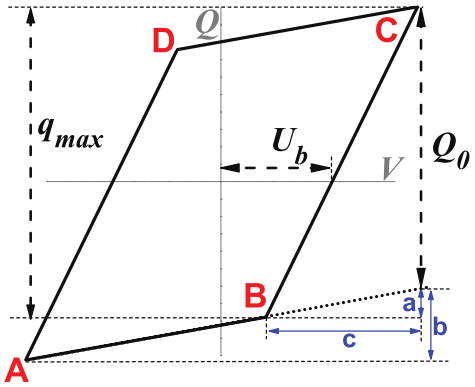
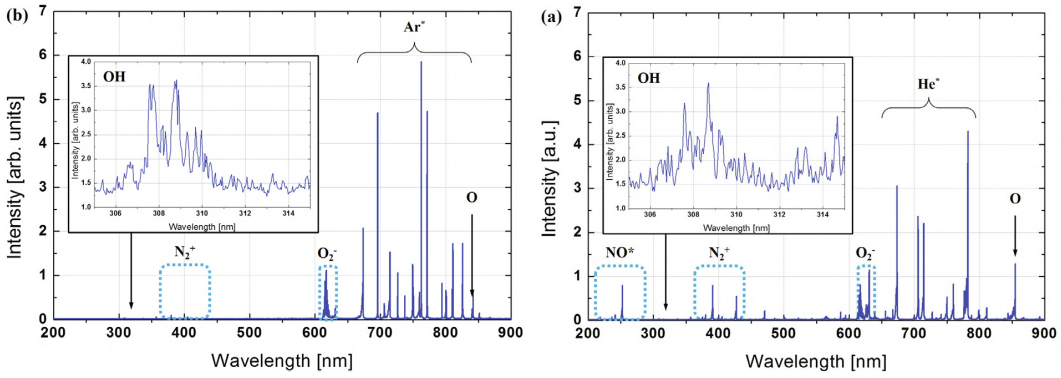


Fig. 1.10 Présentation schématique du cycle de Lissajoux $Q - V$ d'une DBD [30]

de son état fondamental pour atteindre des états dit excités lorsque l'un de ses électrons monte d'une couche énergétique ou se voit arraché. Sous l'action d'une recombinaison par collision avec un électron depuis un état dit métastable ou spontanément depuis un état dit radiatif, la particule se désexcite et baisse en niveau d'énergie. Cette désexcitation dans le cas radiatif se traduit par l'émission d'un photon de longueur d'onde inversement proportionnelle à la chute d'énergie entre les deux états énergétiques de cette particule. Chacune de ces transitions radiatives est caractérisée par une différence d'énergie et donc de longueur d'onde qui lui est propre, permettant une mesure de la composition chimique du plasma et de ses espèces excitées. Ces principales transitions sont synthétisées dans un modèle de collision-propagation. Température gaz et densité électronique ayant été identifiées par la méthode électrique précédente, un spectre d'émission théorique, calculé classiquement par la méthode de dite de Boltzmann sur réseau [42] depuis ce modèle de collision-propagation utilisant la température électroniques (Te) comme seul paramètre ajustable est comparé aux relevés expérimentaux permettant ainsi l'identification de cette température électronique (Te)[51][52] [35].

Connaissant préalablement la signature spectrale de chacune des réactions, il est alors possible d'analyser qualitativement la composition chimique d'un plasma à partir de son spectre d'émission tel que les exemples présentés en figure 1.11.

Enfin, si la technique de la sonde électrique n'est absolument pas adaptée au diagnostic d'un plasma, la spectroscopie d'émission optique permet aussi d'identifier les paramètres de température gaz et de densité électronique par une méthode dite de fluorescence induite par laser [54]. La base de travail pour la détermination de T_g et n_e sont les déplacements et les élargissements des pics d'émission dits par fluorescence des atomes, après excitation par un laser, dus aux effets Doppler et Stark liés à la vitesse de déplacement de ces mêmes atomes dans la décharge. [42]



(a) argon (b) hélium

Fig. 1.11 Spectre d'émission de dispositif APPJ à $6kVpp$ d'alimentation sous flux d'argon (a) et d'hélium (b) [53]

.

1.1.5 Architectures conventionnelles des générateurs basse fréquence

Dans le cadre des générateurs plasma froid basse fréquence, différentes structures ont pu être développées, avec comme point commun la nécessité d'un fort champ électrique local. Comme expliqué précédemment, la chimie et la cinétique d'un plasma froid sont fortement liées à l'intensité du champ électrique. A titre d'exemple, la plume des APPJ se compose de *plasma bullet* dont la vitesse et l'intensité lumineuse se trouvent directement corrélées à l'intensité du champ électrique local [55].

1.1.5.1 DBD

La première architecture de DBD a été réalisée par W. von Siemens au XIXe siècle pour de la production d'ozone. Une large variété d'architectures DBD ont vu le jour par la suite dont quelques exemples sont présentés figure 1.12. La structure la plus élémentaire et toujours largement utilisée à basse pression est l'architecture à double électrodes coplanaires en vis à vis (fig.1.12.a). Elle offre dans son espace inter-électrode un champ électrique intense et homogène. Cependant, si ce type d'architecture permet une décharge diffuse et homogène à basse pression ($\approx> 50mbar$), les décharges tendent vers des régimes filamentaires à haute pression. Dans ce cas, la décharge est hétérogène dans son volume avec des zones de haute densité énergétique susceptible d'être dommageables.

Pour éviter cette transition au régime filamentaire à pression atmosphérique, une électrode ou les deux peuvent être couvertes d'une couche isolante diélectrique (fig.1.12.b), ce qui permet d'étendre la plage de pression pour laquelle la décharge

demeure homogène. Enfin, pour s'affranchir de la limite induite par ces types d'architectures qui contraignent à fonctionner dans un faible espace inter-électrodes, des solutions à ionisation radiale sont apparues. Leur principe consiste à grouper les deux hauts potentiels électriques au sein d'un même bloc de diélectrique (fig.1.12.c-e) et d'exploiter le champ électrique au-delà de l'espace inter-électrodes. De part cet aménagement les champs électriques pénétrant le gaz sont plus faibles que dans la solution coplanaire, mais il facilite largement leur emploi notamment pour les applications de traitement des surfaces.

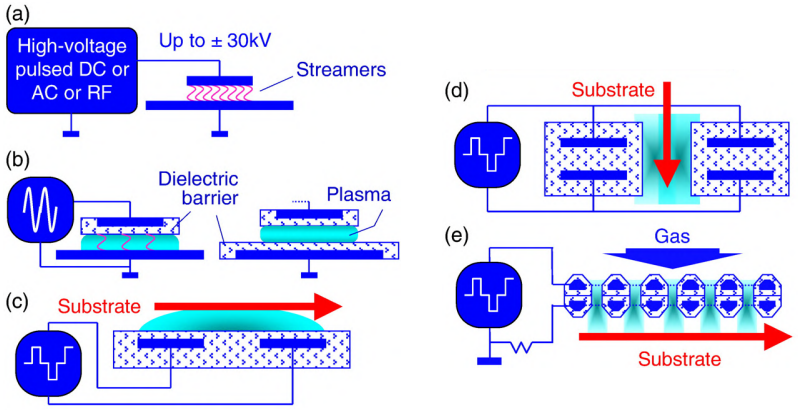


Fig. 1.12 Dispositifs de décharge à effet corona et à barrière diélectrique (DBD). a) Corona avec banderoles ; b) barrières diélectriques sur les électrodes ; c) dispositif DBD pour le traitement de substrats plans de grande surface ; d) dispositif DBD pour les traitements des deux côtés ; et e) dispositif DBD à grilles multiples (200 $\mu m \times 200 \mu m$ fenêtres). Les flèches (c), (d) et (e) indiquent la direction de déplacement de la pièce traitée [1]

1.1.5.2 APPJ

L'architecture des APPJ basse fréquence s'apparente à celle des DBD comme présentée sur la figure 1.13; elle consiste à maintenir un flux de gaz ionisable transitant par la zone de décharge de la DBD, propageant la zone de décharge suivant l'écoulement de gaz en zone dite de *post-décharge*. Le plasma jet n'est plus à proprement parler soumis au champ électrique mais présente encore une forte activité électro-chimique. L'architecture des APPJ se compose généralement d'un tube isolant dans lequel transite le gaz à ioniser. Les électrodes peuvent être disposées de diverses manières autour ou à l'intérieur de ce tube diélectrique. Pour faciliter l'expulsion des espèces chargées, chacune des solutions cherche à obtenir un champ électrique axial dans le tube. La

première fait appel à une électrode "aiguillon" interne à l'instar des DBD à effet corona (fig.1.13.c-d). La seconde solution utilise un anneau à l'extérieur du tube à l'image des DBD à ionisation radiale(fig.1.13.a-b) provoquant une décharge moins intense mais plus homogène [56][57][58].

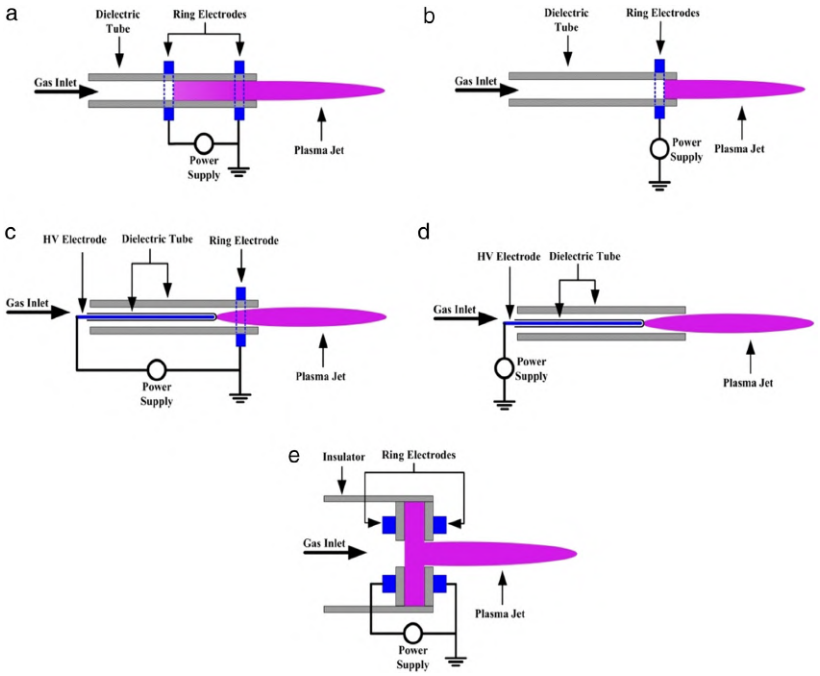


Fig. 1.13 Architectures classiques d'APPJ basse fréquences[56]

1.2 Génération de plasma froid par effet piézoélectrique

Face à la multitude d'applications pouvant mettre en œuvre des plasmas froids, la recherche se poursuit activement pour élaborer de nouveaux générateurs ou de nouveaux moyens de contrôle. Parmi les différentes voies explorées au début des années 2000, Itoh et Teranishi s'engagent dans l'étude des transformateurs piézoélectriques pour des ozoneurs[59]. Le principe de fonctionnement, les propriétés diélectriques et le fort gain électrique de ces transformateurs s'avèrent être des atouts singuliers pour la génération plasma. L'effet piézoélectrique est brièvement rappelé ci-après.

1.2.1 Introduction à la piézoélectricité

Un matériau piézoélectrique est un diélectrique qui se définit par sa capacité à se polariser sous l'effet d'une contrainte mécanique, dit effet piézoélectrique direct, et inversement à se déformer sous l'action d'un champ électrique, dit effet piézoélectrique inverse comme illustré sur la figure1.14.

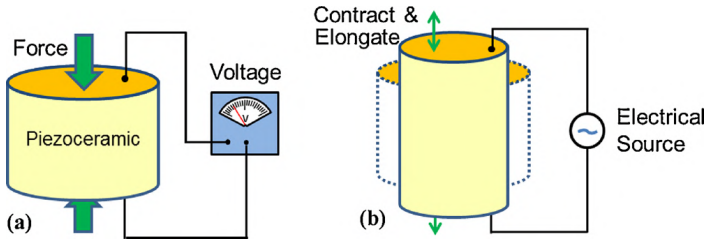


Fig. 1.14 Illustration de l'effet piézoélectrique (a) direct; (b) inverse [60]

.

Bien que la première observation de l'effet piézoélectrique soit attribué à Haüy en 1817, les premières études sur l'effet piézoélectricité remontent aux travaux des frères Pierre et Jacques Curie sur les propriétés piézoélectriques des cristaux de quartz en 1880 [61]. A la suite de la formalisation des modèles des phénomènes piézoélectriques proposée par Voigt vers 1890, Langevin proposera en 1917 la première application pratique de matériaux piézoélectriques par la réalisation de sonar à quartz. Le principal essor des matériaux piézoélectriques a eu lieu dans les années 40-50 avec l'apparition des céramiques synthétiques basées sur des structures pérovskites de formulation ABO_3 (fig.1.15)[62].

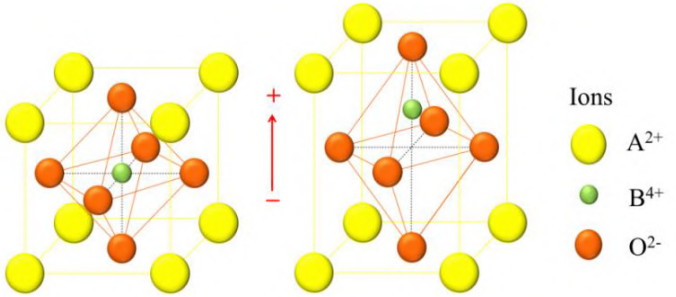


Fig. 1.15 Maille élémentaire d'une structure pérovskite ABO_3 (avec A et B des cations et O l'anion oxygène)A gauche : structure cubique non polarisée (phase paraélectrique au-dessus de la température de Curie) ; à droite : structure tétragonale polarisée (phase ferroélectrique en-dessous de la température de Curie)[63]

L'effet piézoélectrique est propre aux cristaux à structure élémentaire dissymétrique. Dans ces structures, une déformation mécanique de la maille entraîne un déplacement asymétrique des barycentres positifs et négatifs induisant une polarisation. Dans le cas des pérovskites, cette asymétrie n'apparaît qu'en-dessous de la température de Curie. A cette température, la maille octaèdrale se déforme, transitant de structure cubique à celle d'octaèdre déformée (type tétragone ou rhomboèdre). Les barycentres des charges positives et négatives se voient alors déplacés et éloignés formant un dipôle élémentaire défini suivant l'axe de cette polarisation spontanée. A l'inverse des cristaux à structure hexagonale comme les quartz aux propriétés isotropiques, cet axe privilégié donne aux pérovskites des propriétés piézoélectriques anisotropes.

A l'état "dépolarisé" (admis en deça de la température de Curie), les domaines élémentaires polarisés qui composent la céramique sont orientés aléatoirement lui conférant un moment diélectrique et des propriétés piézoélectriques macroscopiquement nulles. L'étape de polarisation va consister en l'application d'un fort champ électrique afin de favoriser l'alignement des domaines élémentaires, créant ainsi une polarisation rémanente orientée, propre aux matériaux ferroélectriques. Il est fréquent que le matériau soit au préalable échauffé au-delà de sa température de Curie avant d'imposer le champ électrique pour faciliter sa polarisation en profitant de la transition de phase paraélectrique-ferroélectrique au refroidissement.

Les pérovskites les plus répandues, notamment à l'usage dans ces travaux de thèse, sont les titano-zirconates de plomb ou PZT, reconnues pour leurs hauts coefficients piézoélectriques et leur température de Curie élevée (suivant leur formulation). Il s'agit d'un oxyde mixte de formulation complète $Pb(Zrx, Ti1-x)O_3$ où le site A est occupé par le plomb et le site B par du titane. Suivant ce ratio Zr/Ti, les propriétés du matériau peuvent fortement varier. Les propriétés piézoélectriques de la céramique PZT sont exacerbées au voisinage de la zone morphotropique où l'oxyde se trouve entre les phases quadratique et rhomboédrale [64], dictant ainsi le ratio optimal entre titane et zirconate aux alentours de 52% comme visible sur le diagramme de phase de la figure 1.16. De plus, des dopants peuvent être ajoutés pour modifier les propriétés électromécaniques du matériau suivant les applications souhaitées, pour accentuer le coefficient diélectrique, la rigidité ferroélectrique ou bien encore la compliance mécanique [60].

Dans le cadre des directives européennes RoHS visant à limiter l'utilisation de substances dangereuses dans les composants électroniques, dont le plomb, de nouvelles céramiques sans plomb ("lead-free") ont pu se développer. Malgré des performances encore inférieures à celles des formulations PZT (température de Curie T_C, de coefficient

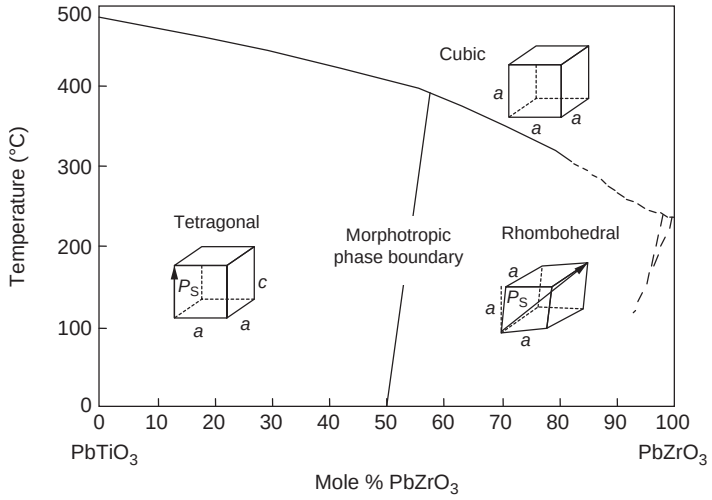


Fig. 1.16 Diagramme de phase du PZT [62]

piézoélectrique d_{33}) (fig.1.17), les composés comme les titanate de baryum (BN), titanate de sodium-bismuth (BNT) ou niobate de potassium-sodium (KNN) présentent des performances aujourd'hui viables et susceptibles de devenir une alternative dans des applications peu contraintes [60][65].

1.2.1.1 Fonctionnement d'un transformateur piézoélectrique de type Rosen

Leur couplage électro-mécanique font des matériaux piézoélectriques d'excellents transducteurs électromécaniques et mécanoélectriques. Depuis les sonars, les transducteurs électromécaniques basés sur l'effet piézoélectrique inverse ont su trouver leur place dans le domaine de la mécanique (micro-actionneurs de précision ou micro-machine, electrospray[67]), de l'acoustique (générateurs ultra-son ou filtre acoustique [68]) ou de l'électronique (horloge à quartz).

L'effet direct a lui aussi justifié sa mise en œuvre de diverses manières comme dans les systèmes de récupération d'énergie mécanique[69][70], de multiples capteurs tels que des capteurs accoustiques ou de déformation, mais également pour la génération de décharges plasma, allant du simple allume-gaz aux micro-propulseurs plasma ferroélectrique [71][72].

Les transformateurs piézoélectriques tirent profit de la réversibilité de l'effet piézoélectrique. Ils se composent au minimum de deux éléments piézoélectriques mécaniquement couplés faisant respectivement intervenir l'effet inverse et l'effet direct. En 1927, Alexander Mc Nicolson propose pour la première fois un dispositif de conversion d'énergie électrique basé sur l'association de deux transducteurs piézoélectriques

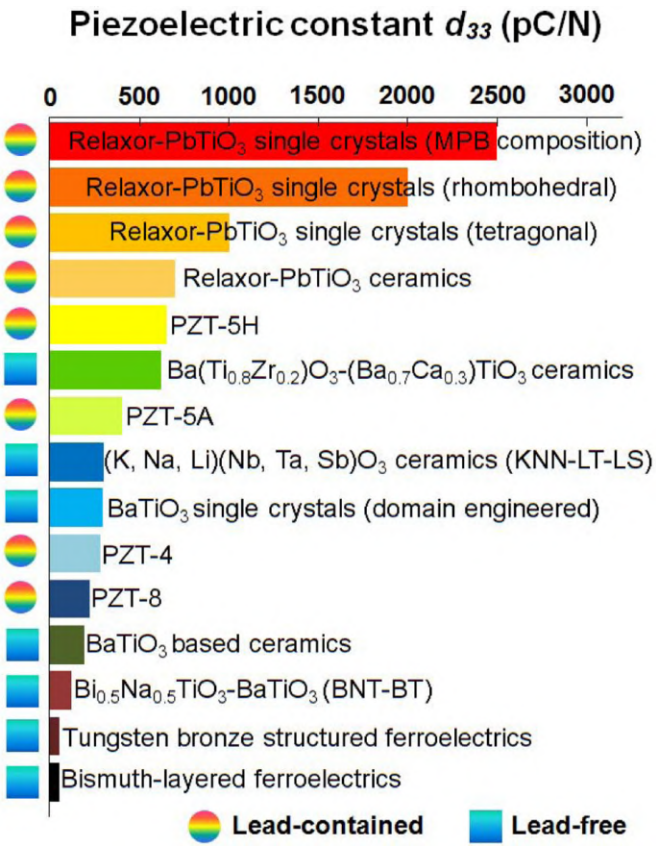


Fig. 1.17 Comparaison des coefficients piézoélectriques longitudinaux de différents types de céramiques ferroélectriques [66].

[73]. Le principe repose sur l'alimentation d'une première cellule piézoélectrique qui, par effet inverse, provoque une onde mécanique, celle-ci est partagée avec un second élément produisant à son tour un potentiel électrique. La preuve de concept s'étant appuyée à l'époque sur le sel de Rochelle, les performances de ces transformateurs furent initialement très modestes. Il faudra attendre le développement des premières céramiques ferroélectriques et des structures pérovskites, notamment le titanate de baryum ($BaTiO_3$) en 1942 par Wainer et Salomon, et les travaux de Charles A. Rosen dans les années 1950 pour démontrer le potentiel applicatif de ces dispositifs. Ce dernier proposa diverses architectures de transformateurs exploitant différents modes de couplage piézoélectrique (fig.1.18) et notamment celle qui attirera le plus l'attention, le transformateur rectangulaire à déformation longitudinale, qui prendra le nom de son inventeur : le transformateur Rosen (fig.1.19a).

L'architecture de ce transformateur est basée sur l'association de deux cellules piézoélectriques aux polarisations orthogonales l'une de l'autre (fig.1.19b). Le primaire,

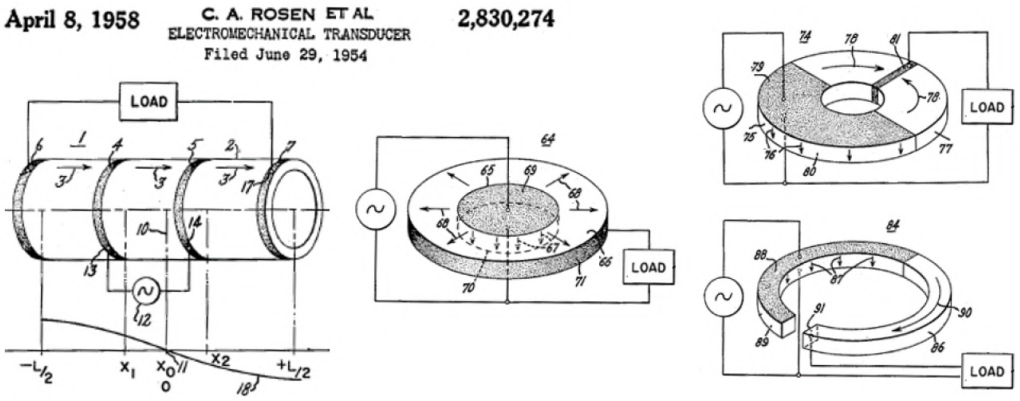
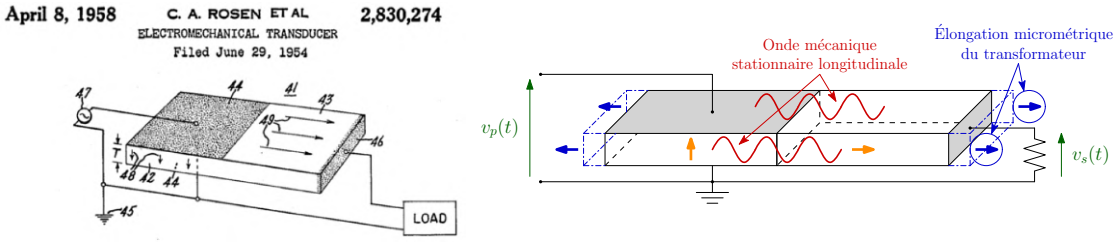


Fig. 1.18 Transformateurs piézoélectriques proposées par Rosen en 1954



(a) Architecture proposée en 1954 (b) Principe de fonctionnement

Fig. 1.19 Transformateur piézoélectrique Rosen

partie polarisée transversalement, sous excitation électrique, produit une onde mécanique longitudinale[74]. En se propageant, elle vient exciter la seconde cellule, le secondaire, suivant son axe de polarisation lui-même longitudinal. Ainsi, en se plaçant à l'une des fréquences de résonance du mode longitudinal, l'onde mécanique se voit amplifiée, favorisant ainsi le transfert de puissance. Le rapport de transformation tension primaire/secondaire dépend des dimensions et des propriétés du matériau, mais essentiellement du rapport des longueurs primaire et secondaire.

Les transformateurs piézoélectriques offrent des performances remarquables quant au rendement et à l'isolation galvanique, utiles pour des applications nécessitant une adaptation de tension, de courant ou d'impédance, et parfaitement adaptés aux applications de faible puissance à haut rendement [75]. De plus, ils présentent de nombreux avantages par rapport aux transformateurs magnétiques [76] : des densités de puissance plus importantes, des rendements supérieurs à densité de puissance équivalente, l'absence d'enroulement limitant les risques de court-circuit, une isolation galvanique naturelle et faiblement sensible aux perturbations électromagnétiques. Leur

première application concrète fut imaginée par Berlincourt en 1972 pour l'alimentation de lampe à décharge avec la double fonction de ballast et starter. Par la suite, ils seront envisagés dans l'alimentation des lampes à cathode froide pour les écrans LCD[77] dans les années 1990, puis les applications se diversifient en intégrant divers convertisseurs haute tension à onde stationnaire, plus récemment des générateurs polyphasés à onde progressive[78] ou bien encore de générateurs de plasma froid[79].

1.2.2 Modélisation du comportement piézoélectrique

1.2.2.1 Équations constitutives de la piézoélectricité

Les différentes interactions et couplages physiques au sein d'un cristal piézoélectrique opèrent entre les domaines électrique, mécanique et thermique. Ainsi, on peut distinguer différentes grandeurs intensives et extensives :

- ☐ les paramètres électriques
  - **E** : le tenseur du champ électrique en $[V/m]$
  - **D** : le tenseur de l'induction électrique en $[C/m^2]$
- ☐ les paramètres mécaniques
  - **T** : le tenseur de contrainte mécanique en $[N/m^2]$
  - **S** : le tenseur de déformée sans unité car correspondant à la dérivée spatiale du déplacement **U**
- ☐ les paramètres thermiques
  - θ : la température en $[K]$
  - σ : l'entropie en $[J/K]$

Les relations entre ces quantités sont schématiquement décrites par le diagramme de Heckmann en figure 1.20, traduisant ainsi les principales propriétés de ces matériaux : la piézoélectricité, la pyroélectricité et la thermoélasticité[80].

Suivant l'importance des termes de couplage, tout particulièrement dans les applications visées par notre étude, il est courant de négliger les phénomènes pyroélectrique et thermoélastique au privilège de l'effet piézoélectrique. L'effet de la température pourra se traduire par un impact sur les coefficients piézoélectriques qui seront alors considérés au premier ordre comme des constantes isothermes.

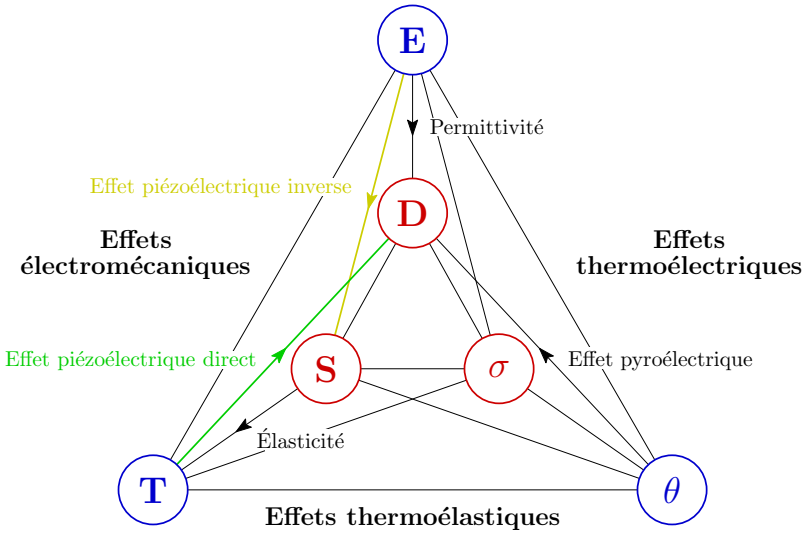


Fig. 1.20 Diagramme de Heckmann des relations électro-thermo-mécaniques dans une céramique piézoélectrique (valeurs intensives sur les sommets extérieurs et extensives sur les sommets intérieurs

Les relations constitutives de la piézoélectricité peuvent alors être déterminées depuis une étude thermodynamique par dérivation de l'équation d'énergie libre du système formulée par Ikeda dans [81]. Selon le couple de variables électromécaniques indépendantes choisies, les relations peuvent s'exprimer suivant quatre couples de variables, explicités dans le tableau 1.1.

Chacune des constantes électromécaniques se définit par une matrice rendant compte de la possible anisotropie du matériau suivant les 6 degrés de liberté mécaniques (3 d'élongation et 3 de cisaillement, respectivement notés de 1 à 3 et 4 à 6) et les 3 dimensions cartésiennes pour l'électrique. Ainsi, les constantes purement mécaniques (c et s) se traduiront par une matrice 6×6, les constantes électriques (ε et β) par des matrices 3×3 et les constantes piézoélectriques couplant électrique et mécanique(e, d, g et h) par des matrices 3×6.

Suivant une étude des symétries d'un réseau cristallin, il est possible de réduire le nombre de coefficients indépendants des matrices de paramètres suivant le principe de Neumann : *Les éléments de symétrie de toute propriété physique d'un cristal doivent inclure les éléments de symétrie du groupe ponctuel de symétrie de ce cristal (ou groupe au centre du cristal).* C'est à dire que toute symétrie au sein de la structure même de la maille cristalline se traduira par la même symétrie dans les propriétés physiques du matériau (ferroélectrique, optique ...). Ainsi, les pérovskites, dont font partie les PZT,

Tableau 1.1 Équations constitutives de la piézoélectricité et constantes associées [80]

	Constantes associées		
	Notation	Définition	Unité
e-form $(\mathbf{S}, \mathbf{E})$	ε^S	Permittivité à **S** constant	$[F/m]$
$\mathbf{T}=[c^E]\mathbf{S}-[e]^T\mathbf{E}$	c^E	Rigidité à **E** constant	$[N/m^2]$
$\mathbf{D}=[e]\mathbf{S}+[\varepsilon^S]\mathbf{E}$	e	Constante piézoélectrique	$[C/m^2]$ ou $[N/Vm]$
d-form $(\mathbf{T}, \mathbf{E})$	ε^T	Permittivité à **T** constant	$[F/m]$
$\mathbf{S}=[s^E]\mathbf{T}+[d]^T\mathbf{E}$	s^E	Souplesse à **E** constant	$[m^2/N]$
$\mathbf{D}=[d]\mathbf{T}+[\varepsilon^T]\mathbf{E}$	d	Constante piézoélectrique	$[C/N]$ ou $[m/V]$
g-form $(\mathbf{T}, \mathbf{D})$	β^T	Impermittivité à **T** constant	$[m/F]$
$\mathbf{S}=[s^D]\mathbf{T}+[g]^T\mathbf{D}$	s^D	Souplesse à **D** constant	$[m^2/N]$
$\mathbf{E}=-[g]\mathbf{T}+[\beta^T]\mathbf{D}$	g	Constante piézoélectrique	$[m^2/C]$ ou $[Vm/N]$
h-form $(\mathbf{S}, \mathbf{D})$	β^S	Impermittivité à **S** constant	$[m/F]$
$\mathbf{T}=[c^D]\mathbf{S}-[h]^T\mathbf{D}$	c^D	Rigidité à **D** constant	$[N/m^2]$
$\mathbf{E}=-[h]\mathbf{S}+[\beta^S]\mathbf{D}$	h	Constante piézoélectrique	$[N/C]$ ou $[V/m]$

avec leur structure tétragonale polarisée possédant un axe d'isotropie correspondant à l'axe de polarisation conventionnellement placé suivant l'axe x_3, font partie du groupe ∞m de la classification de Curie [80]. Cette propriété structurelle se traduit sur les matrices de constantes par les simplifications suivantes :

$$[s] = \begin{pmatrix} s_{11} & s_{12} & s_{13} & 0 & 0 & 0 \\ s_{12} & s_{11} & s_{13} & 0 & 0 & 0 \\ s_{11} & s_{13} & s_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & s_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & s_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 2(s_{11}-s_{12}) \end{pmatrix} \tag{1.7}$$

$$[c] = \begin{pmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & 0 & 0 & 0 \\ c_{12} & c_{11} & c_{13} & 0 & 0 & 0 \\ c_{11} & c_{13} & c_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & c_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & c_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1/2(c_{11}-c_{12}) \end{pmatrix} \tag{1.8}$$

$$[d] = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \tag{1.9}$$

$$[\varepsilon] = \begin{pmatrix} \varepsilon_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{33} \end{pmatrix} \tag{1.10}$$

Le coefficient de couplage k se définit comme un paramètre adimensionnel caractérisant la capacité de conversion électromécanique du matériau. Typiquement, dans le cas d'un transducteur piézoélectrique, il traduit le rapport entre énergie mécanique produite et énergie électrique reçue par le transducteur ou inversement [80]. Dans le cas général linéaire, il se calcule en régime quasi-statique d'après l'énergie interne U du système

$$U = \frac{1}{2}\mathbf{S}.\mathbf{T}^t + \frac{1}{2}\mathbf{D}.\mathbf{E}^t \tag{1.11}$$

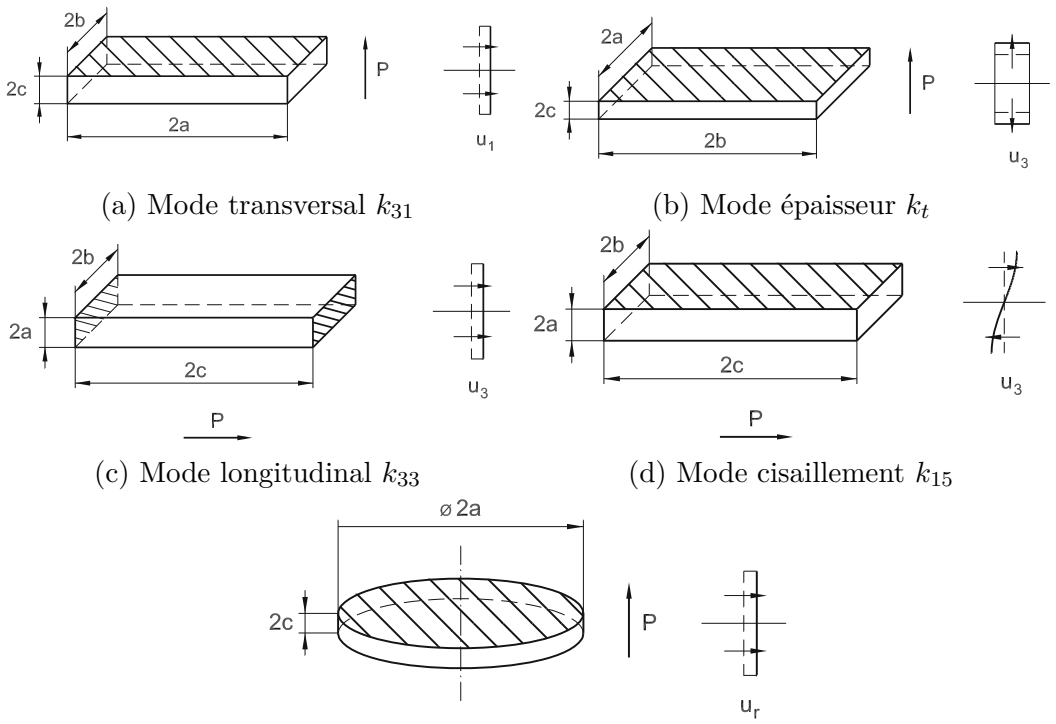
qui d'après les équations constitutives de la piézoélectricité 1.1 peut se décomposer en une part mécanique U_m, une part électrique U_e et une part piézoélectrique U_p :

$$U = \frac{1}{2}[s^E]\mathbf{T}.\mathbf{T}^t + \frac{1}{2}[\varepsilon^T]\mathbf{E}.\mathbf{E}^t + 2\frac{1}{2}[d]\mathbf{T}.\mathbf{E}^t = U_m + U_e + 2U_p \tag{1.12}$$

Le coefficient de couplage se définit alors comme le rapport entre ces énergies suivant l'expression :

$$k = \frac{U_p}{\sqrt{U_e U_m}} \tag{1.13}$$

Dans un cas quelconque, ce coefficient s'avère très complexe à calculer, cependant à l'aide d'un choix judicieux des dimensions géométriques des éléments, favorisant un seul mode de déformation, il est possible d'isoler les différents coefficients de couplage du matériau. Ainsi, les coefficients de couplage électromécaniques intrinsèques d'une céramique piézoélectrique peuvent être déduits à partir de 3 coefficients de couplage chacun propre à un mode de déformation. On dénombre ainsi 3 modes de déformation principaux, classiquement l'élongation longitudinale k_{33}, transversale k_{31} et le cisaillement k_{15} souvent repris pour qualifier les céramiques mais pouvant arbitrairement être remplacés par des coefficients d'autres modes de couplage listés de manière exhaustive dans [80]. Pour la suite de la thèse, 5 modes de déformation seront nécessaires à l'établissement des différents modèles. Ils sont présentés en figure 1.21.



(a) Mode transversal k_{31} (b) Mode épaisseur k_t

(c) Mode longitudinal k_{33} (d) Mode cisaillement k_{15}

(e) Mode planaire k_p

Fig. 1.21 Illustrations des 5 principaux modes de déformation abordés dans la thèse[80]

Les coefficients de couplage s'expriment alors à partir des paramètres matériau de la manière suivante

$$k_{31}^2 = \frac{d_{31}^2}{\varepsilon_{33}^T s_{11}^E} \ , \quad k_{33}^2 = \frac{d_{33}^2}{\varepsilon_{33}^T s_{33}^E} \ , \quad k_{15}^2 = \frac{d_{15}^2}{\varepsilon_{11}^T s_{55}^E}$$
$$k_t^2 = \frac{e_{33}^2}{\varepsilon_{33}^S c_{33}^D} \ , \quad k_p^2 = \frac{d_{31}^2}{\varepsilon_{33}^T s_{11}^E \dfrac{1-\sigma^E}{2}} \tag{1.14}$$

avec $\sigma = -s_{12}^E / s_{11}^E$ le coefficient de Poisson dans le plan (x_1,x_2).

Ces coefficients étant établis en régime quasi-statique, ils ne sauraient servir de critère de performance du matériau lors de sa sollicitation à la résonance. Ils ne conservent qu'une fonction indicative des paramètres matériaux de la céramique pour l'établissement des modèles qui eux, pourront rendre compte des performances de la céramique à la résonance.

Bien que les relations constitutives énumérées dans le tableau 1.1 soient linéaires, un certain nombre de phénomènes viennent affecter la constance et la linéarité des différents paramètres. Ainsi les non-linéarités du matériau piézoélectrique, à l'origine de pertes, peuvent être prises en compte en ajoutant des termes complexes aux paramètres

électromécaniques, identifiables à l'aide d'une étude énergétique de la céramique[82]. Typiquement dans le cas des équations constitutives e-form suivant le couple de variables indépendantes (**S**,**E**), les paramètres électromécaniques peuvent se décomposer de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \varepsilon^S &= \varepsilon^{S\prime} + j\varepsilon^{S\prime\prime} \\ c^E &= c^{E\prime} + jc^{E\prime\prime} \\ e &= e' + je'' \end{aligned} \tag{1.15}$$

Ces pertes peuvent aussi s'étendre à des termes complexes d'ordre supérieur (carré ou cubique) pour affiner les solutions ou étendre le domaine de validité. Par exemple, les coefficients du tenseur de contrainte mécanique pour le couple (**S**,**E**) peut adopter la formulation plus précise :

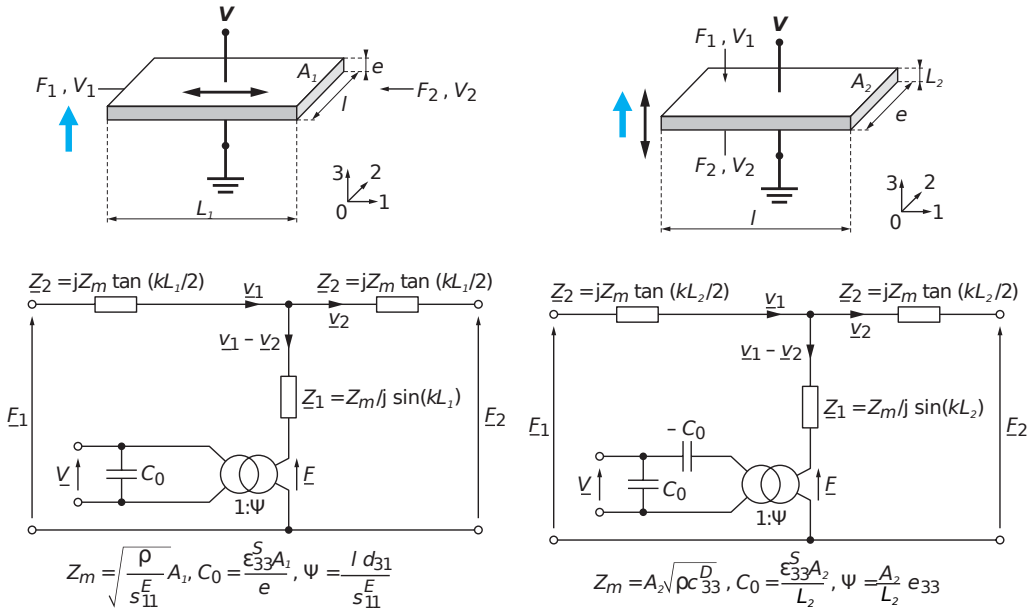
$$\begin{aligned} T_p = c_{pq}^{E\prime} S_q + jc_{pq}^{E\prime\prime} S_q + jc_{pq}^{E\prime\prime\prime} S_q^2 + jc_{pq}^{E\prime\prime\prime\prime} S_q^3 \\ - e_{kp}^{T\prime} E_k - je_{kp}^{T\prime\prime} E_k - je_{kp}^{T\prime\prime\prime} E_k^2 - je_{kp}^{T\prime\prime\prime\prime} E_k^3 \end{aligned} \tag{1.16}$$

Cependant en pratique, au regard de la part prépondérante des pertes mécaniques dans les transformateurs piézoélectriques, seule la non-linéarité mécanique au 1er ordre est généralement prise en compte.

1.2.2.2 Schéma électrique équivalent

Il est fréquent d'établir le modèle électromécanique d'un transducteur piézoélectrique à l'aide d'un schéma électrique équivalent par analogie d'équations. La méthode repose sur la définition d'un modèle unidimensionnel menant à l'établissement d'un composant hexapolaire comprenant 2 entrées mécaniques et 1 entrée électrique, de type schéma de Mason.

Un transformateur piézoélectrique est basé sur le couplage des effets piézoélectriques direct et inverse, ce qui se traduit par l'association mécanique de 2 transducteurs piézoélectriques en couplage transversal pour le primaire et en couplage longitudinal pour le secondaire, dans le cas d'un transformateur Rosen comme en figure 1.22. Du point de vue schématique, cette association mécanique rigide des deux transducteurs se traduit par un couplage direct de deux de leurs entrées mécaniques chacun, et suivant l'hypothèse de libre contrainte sur les extrémités du transformateur, les deux autres entrées mécaniques sont nulles. Pour un fonctionnement autour d'un mode de résonance longitudinal, le comportement électrique global du transformateur peut alors se simplifier par le schéma électrique de la figure 1.23. Les propriétés diélectriques



(a) Mode transversal (b) Mode longitudinal

Fig. 1.22 Schémas électriques équivalents, dit de Mason, des transducteurs primaire (mode transversal) et secondaire (mode longitudinal) composant un transformateur Rosen [83]

du transformateur sont symbolisées par les deux dipôles RC en entrée et en sortie du transformateur. Les capacités C_p et C_s représentent les capacités "bloquées" du primaire et du secondaire et R_p et R_s les résistances de pertes diélectriques associées. Ces dernières sont souvent négligées au vu de leur faible admittance vis à vis des capacités bloquées et de leur faible impact sur les pertes globales du transformateur vis à vis de la branche motionnelle à la résonance. Le dipôle RLC quant à lui, traduit les propriétés mécaniques du transformateur autour d'un mode de résonance. La résistance R_m représente les pertes par friction interne, L_m rend compte de la masse en déplacement et C_m de l'élasticité du matériau. Les conversions électromécaniques de chacun des transducteurs primaire et secondaire sont caractérisées par des gains en tension ramenés à un unique rapport de transformation ψ pour le transformateur.

1.2.3 Couplage piézo/plasma

Les générateurs traditionnels de plasma à pression atmosphérique font appel à des étages d'alimentation de très haute tension (généralement de plusieurs kV), pouvant être soit de basse fréquence, soit micro-ondes. Cela conduit potentiellement à des perturbations électromagnétiques, parfois préjudiciables aux domaines d'application, ou

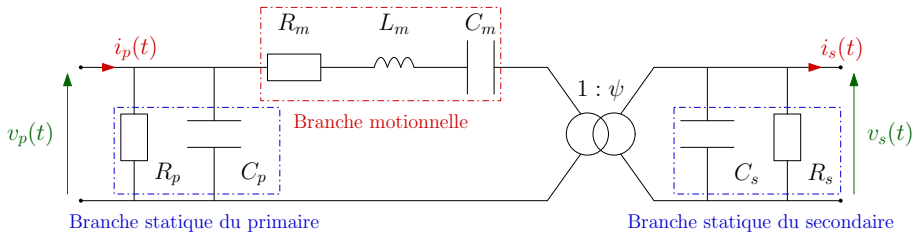


Fig. 1.23 Schéma électrique équivalent d'un transformateur piézoélectrique

à un risque élevé de choc électrique. En outre, les alimentations électriques nécessaires pour ces systèmes peuvent s'avérer complexes et coûteuses. De plus, leur potentiel de miniaturisation reste également limité. Pour de la génération de plasma faible puissance, les transformateurs piézoélectriques sont appréciés pour leurs capacités élévatrices de tension et de ballast à faible coût fonctionnant à des fréquences hors de la bande audible. Historiquement et encore aujourd'hui, ils sont intégrés dans des circuits d'alimentation de lampe à cathode froide ou lampe fluorescente pour l'éclairage domestique ou rétroéclairage d'écran en remplacement de circuit magnétique. Au début des années 2000, Itoh et Teranishi proposeront une nouvelle manière d'exploiter les propriétés ferroélectriques de ces transformateurs en générant la décharge directement à la surface de la cellule piézoélectrique.

1.2.3.1 Fonctionnement en ballast

En raison de leur grande efficacité et de leur durée de vie, les lampes fluorescentes sont devenues plus populaires que les lampes à incandescence pour les utilisations résidentielles et commerciales. Les circuits de ballast pour alimenter les lampes fluorescentes peuvent être classés en deux catégories : magnétiques ou électroniques. Le ballast magnétique est composé d'un bobinage de cuivre entourant un noyau de fer, trouvant une double fonction dans l'alimentation des lampes. Durant la phase d'allumage, il opère en série avec un starter dans un cycle d'ouverture et de fermeture brutales du circuit provoquant de fortes montées de tension à ses bornes suffisantes pour amorçer la décharge dans la lampe. Une fois en fonctionnement, alimenté par le réseau alternatif, sa forte impédance inductive va limiter le courant dans la lampe pour la préserver. Les ballasts magnétiques sont robustes et efficaces, mais le plus souvent encombrants et susceptibles d'émettre un bourdonnement audible à 100Hz. Les ballasts électroniques constituent une alternative à cette première solution. La figure 1.26 montre un circuit de ballast électronique basique s'appuyant sur un résonateur LC pour

générer la haute tension nécessaire à l'allumage et ensuite pour maintenir l'alimentation. Ce résonateur est composé d'une inductance résonante L, d'un condensateur C de filtrage DC, d'un transformateur élévateur de tension et d'un condensateur résonant haute tension C_{d2}. Le condensateur d'entrée C_{d1} fonctionne comme un condensateur d'amortissement supplémentaire pour les commutateurs de demi-pont S_1 et S_2.

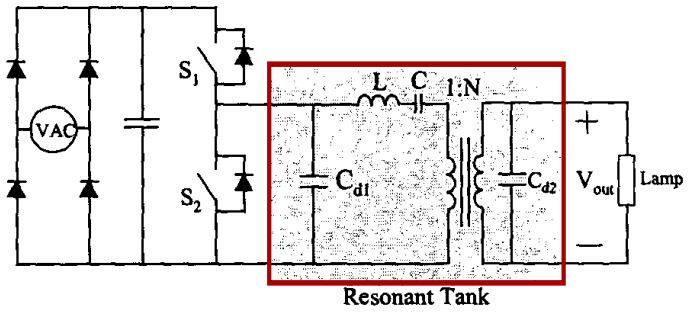


Fig. 1.24 Ballast électrique classique avec résonateur[84]

Il s'avère que le circuit équivalent du transformateur piézoélectrique s'apparente fortement à l'étage résonnant du ballast électronique conventionnel. Ainsi, le transformateur piézoélectrique s'avère être une alternative avantageuse en matière de compacité pour les applications commerciales d'alimentation de lampe fluorescente.

Stratégie d'alimentation De nombreuses technologies ont essayé d'utiliser des transformateurs piézoélectriques afin de développer des convertisseurs, des onduleurs ou des ballasts électroniques. Cependant, l'impédance d'entrée du transformateur piézoélectrique fortement capacitive rend son contrôle complexe. La solution la plus évidente pour le piloter est la compensation de son impédance d'entrée par une inductance montée en série, généralement une bobine montée sur un corps ferromagnétique [85]. Ainsi différentes architectures d'alimentation ont pu voir le jour comme présentées en figure 1.25. Des architectures mettant en œuvre des transformateurs associés en cascade ont également été envisagées [86] pour répondre à des besoins d'élévation en tension.

Cependant, l'emploi de cet élément magnétique de compensation de réactif pénalise les avantages d'intégration des transformateurs piézoélectriques. Pour résoudre cette contrainte, le VPEC de Virginia Tech s'est engagé au début des années 2000 dans l'étude de caractérisation du transformateur piézoélectrique Transoner. Le résultat principal de ces travaux fut le développement d'une commande des transformateurs piézoélectriques [73] par une méthode d'alimentation à commutation à tension nulle

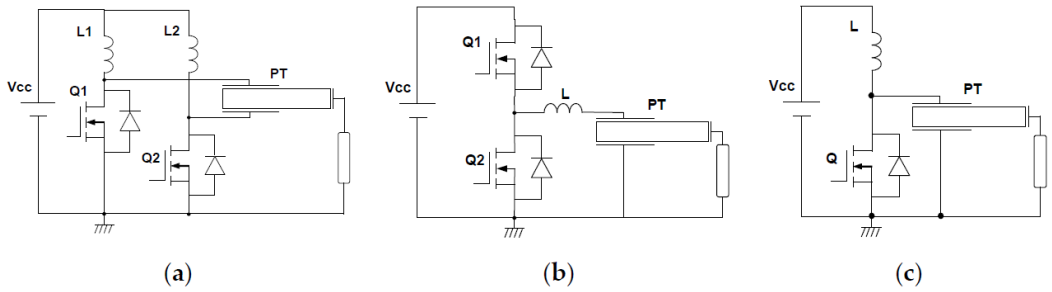


Fig. 1.25 Etage d'alimentation courant pour un transformateur piézoélectrique : (a) push-pull; (b) half-bridge; (c) Cass-E [73]

(Zero Voltage Switch) pour les interrupteurs de demi-pont. La figure 1.26 montre un onduleur en demi-pont entraînant un résonateur piézoélectrique. Cette méthode de pilotage n'apparaît viable que si la cellule résonante s'avère capable de générer un courant suffisant pour recharger le condensateur d'entrée C_{d1} sur les temps morts de chaque cycle. Lin présente dans [85], un exemple de calibrage d'un tel pilotage dans le cadre de l'alimentation d'une lampe linéaire de $600Hz$, allant chercher une fréquence de fonctionnement autour de la fréquence de résonance de son transformateur en charge et s'assurant de sa capacité à générer ce courant minimal.

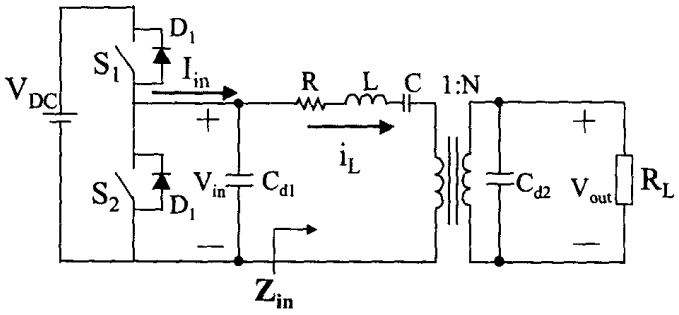


Fig. 1.26 Onduleur en demi-pont sans inductance de compensation pilotant un transformateur piézoélectrique[84]

Cette première association d'un transformateur piézoélectrique et d'une décharge plasma sépare très nettement l'un et l'autre. Le transformateur opère ici comme un simple composant électronique élévateur de tension qui, par ses propriétés résonantes, assure la condition d'amorçage puis de maintien de la tension. Mais les matériaux piézoélectriques peuvent être employés plus proches de la décharge plasma, tirant alors profit d'autres avantages comme par exemple les capacités d'émissivités électroniques.

1.2.4 Émission électronique ferroélectrique

Les céramiques ferroélectriques sont étudiées avec grand intérêt depuis une cinquantaine d'années pour leur grande capacité d'émission électronique ferroélectrique (FEE) pouvant contribuer à la génération de décharge plasma dans des dispositifs dits de sources de plasma ferroélectrique (FPS)[87].

Les matériaux ferroélectriques sont une sous-cétagorie des matériaux dîts piézoélectriques. Le moment dipolaire macroscopique P_s (polarisation spontanée) d'un ferroélectrique est stable sans l'application d'un champ électrique. Pour un cristal ferroélectrique de dimensions réduites, la polarisation spontanée est homogène dans la masse cristalline. En revanche des changements brusques se produisent au niveau des faces polaires où la polarisation s'annule $P_s = 0$. La distribution non homogène de P_s près de ces surfaces rend nécessaire la présence d'un fort champ de dépolarisation pour le compenser. Il est possible d'énoncer deux façons différentes de minimiser l'énergie de ce champ de dépolarisation qui permettent un état polarisé stable. Le premier mode de compensation peut apparaître dans des cristaux ferroélectriques à domaines divisés où la compensation du champ de dépolarisation se fait par la charge électrique de signe opposé dans des domaines ferroélectriques orientés à 180° les uns des autres. La seconde solution fait intervenir des charges extérieures dites "charges écrans". Il a été supposé qu'à l'état d'équilibre, les charges de polarisation aux frontières sont compensées par les charges écran, respectivement des électrons sur la face positive et des trous sur la face négative (cf: figure 1.27) [87].

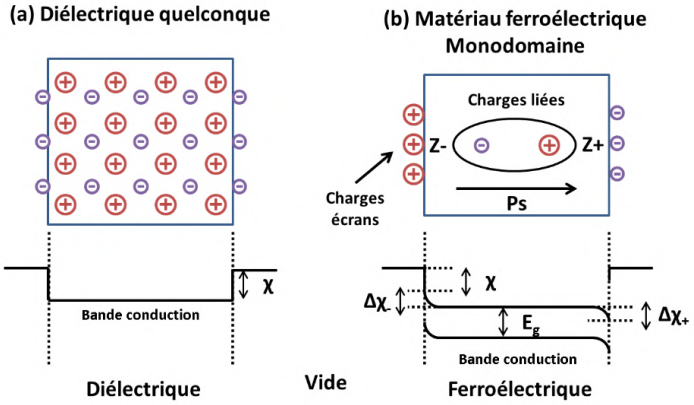


Fig. 1.27 Illustration de l'émission électronique et de la fonction de travail de sortie pour un matériau classique (a); pour un matériau ferroélectrique (b) [63]

S'il vient à survenir une variation brusque de la polarisation au sein du milieu, il apparait une rupture de l'état d'équilibre des charges à la surface et provoque

ainsi l'apparition d'un champ électrostatique conduisant à l'expulsion de ces charges écran et donc à une émission électronique. Alors que l'émission électronique dans un matériau classique est due à des changements dans le sous-système électronique du solide (modification de la fonction de travail, effet tunnel dans la barrière de potentiel, etc.) et n'implique aucune modification de la structure, dans le matériau ferroélectrique, elle sera liée à des interactions dans le réseau cristallin dues à la polarisation rémanente, sous l'effet pyroélectrique ou piézoélectrique. Les premières observations de ce phénomène remontent aux années 1974–1980 et sont attribuées à B. Rosenblum [88] et Rosenman [89] qui ont provoqué une émission électronique ferroélectrique par effet pyroélectrique (modification de la température du matériau), par effet piézoélectrique (application d'une contrainte mécanique), par l'application d'un champ électrique externe pour inverser la polarisation rémanente [90], ou bien encore une modification de la température conduisant à une transition de phase forcée [87].

Deux modes d'émission électronique ferroélectrique se distinguent [87]:

- Émission électronique faible se produit sur les surfaces polaires des matériaux ferroélectriques en phase ferroélectrique uniquement. Une source de champ électrique pour une excitation FEE "faible" est une charge non compensée, générée par une déviation de la polarisation spontanée macroscopique par rapport à son état d'équilibre, sous l'effet pyroélectrique, l'effet piézoélectrique ou la commutation de polarisation due à un champ électrique externe. Elle se traduit par l'apparition d'un courant d'émission par effet tunnel laissant passer les charges de polarisation non compensées par des charges écrans. Elle est caractérisée par une intensité de champ n'excédant pas $3.10^6 V/cm$ et une densité de courant d'émission électronique de l'ordre de 10^{-14} jusqu'à $10^{-9} A/cm^2$, quelle que soit la sollicitation. L'énergie électronique peut atteindre les $10^5 eV$ sans nécessité de source de tension externe.

- Émission électronique forte est 10 à 12 ordres de grandeur plus élevée que le FEE faible, pouvant atteindre $100 A/cm^2$ et est une émission d'électrons assistée par plasma. Elle apparaît elle aussi à la surface polaire des matériaux ferroélectriques mais les mécanismes à l'origine de l'émission sont différents, essentiellement dus à la présence d'une électrode de masse sur cette même surface créant des jonctions dites "triple point" [91] entre une zone de vide (ou de gaz), le ferroélectrique et le métal de l'électrode favorisant localement l'apparition d'un très fort champ électrique ($1 kV/mm$) initiant une décharge plasma [92].

1.2.5 Application de la FEE à la génération de plasma

Du point de vue applicatif des matériaux ferroélectriques pour le plasma, les propriétés d'émissivité ferroélectrique ont été exploitées pour la mise en œuvre de plusieurs dispositifs, notamment les diodes à cathode ferroélectrique assistées par plasma [93] ou des écrans plats émissifs ferroélectriques. Les travaux menés par Sullivan [51] sur une source plasma ferroélectrique opérant à pression atmosphérique (FEAPS) ont montré l'apport de l'effet piézoélectrique favorisant la génération d'une décharge excitée par une source RF et la génération d'un champ électrique suffisant pour expulser les ions, ayant ainsi conduit au développement de micro-propulseurs plasma ferroélectriques [94][95]. Dunaevky [29] étudie les capacités d'émissivité secondaire d'électrons. L'émissivité secondaire est un facteur crucial dans la génération d'un plasma froid. Elle traduit la capacité d'une électrode (ou d'un diélectrique) à émettre des électrons après l'impact d'électrons primaires incidents. Ainsi Dunaevsky démontre que la quantité d'électrons émis par émission secondaire (autrement dit le coefficient d'émission secondaire) est élevée par rapport aux diélectriques standards. En outre cette émissivité secondaire dépend de la polarisation intrinsèque du matériau. Ce taux de désorption particulièrement élevé conduit ainsi à un seuil de décharge de surface plus bas pour les ferroélectriques favorisant ainsi la génération de décharge plasma directe [93].

En raison de ces propriétés singulières, Itoh et Teranishi débutent des recherches sur l'utilisation de transformateurs piézoélectriques pour la génération de plasma froid produit directement à leur surface [96] [97]. Leur gain en tension potentiellement élevé, couplé à leurs propriétés ferroélectriques remarquables peuvent être mis à profit pour initier un plasma, les faisant passer de la fonction de transformateur élévateur de tension à celui de générateur.
Le transformateur piézoélectrique joue un rôle important non seulement comme source d'énergie à haute tension mais aussi comme électrode de décharge. Ainsi, une source haute tension séparée n'est pas nécessaire, et la fonction d'élévation de potentiel électrique s'effectue au plus près de la zone de décharge. Par conséquent il n'est plus nécessaire de véhiculer le haut potentiel électrique au travers d'un circuit. La taille globale du générateur de plasma peut être réduite et le recours à un réseau haute tension évité. Ainsi, diverses décharges de plasma, y compris la décharge luminescente, la décharge corona et la décharge à barrière diélectrique, peuvent être générées dans une large gamme de pression de gaz en ajustant la configuration [98] du générateur.

Depuis leurs premiers essais de nombreux travaux ont pu être menés pour caractériser ces différents régimes de décharge. Les premiers essais de décharge furent réalisés à faible

pression favorisant ainsi l'apparition de régimes luminescents plus stables. En figure 1.28, différents modes vibratoires d'un transformateur Rosen sont testés en présence de différents gaz et mélanges. Il apparait de façon évidente que les motifs produits par la décharge dépendent de la distribution de potentiel le long du transformateur, et par conséquent dépendent du mode vibratoire excité. Le motif obenu est image de la distribution de potentiel électrique [99] et de manière plus générale du champ électrique [100] au secondaire du transformateur liée à sa déformée mécanique par l'intermédiaire de l'effet piézoélectrique.

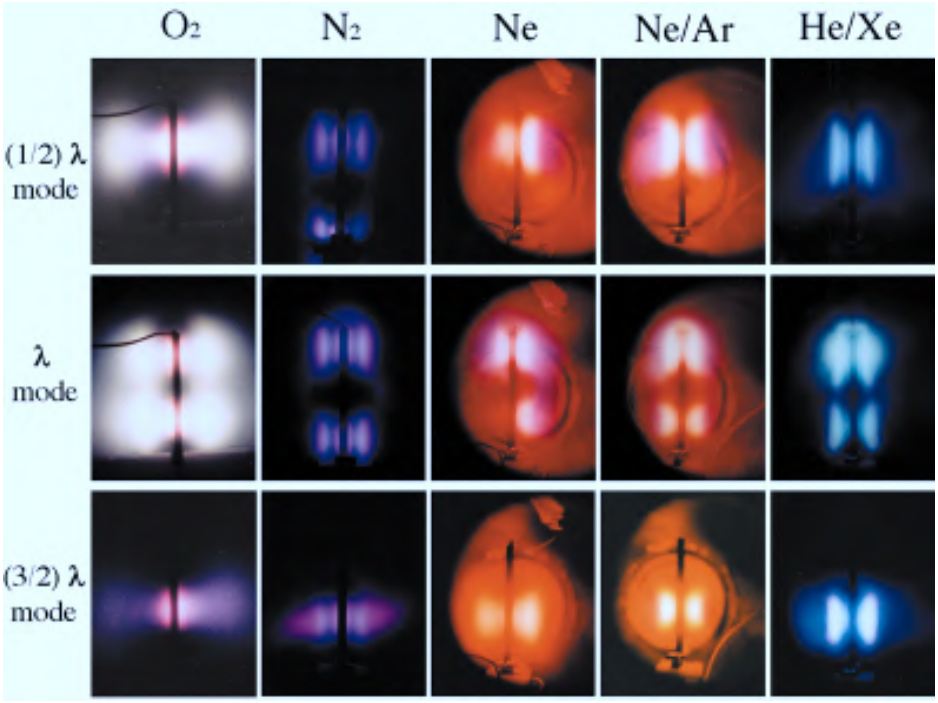


Fig. 1.28 Décharges luminescentes autour d'un transformateur piézoélectrique à 5 Torr [99]

Teranishi et Itoh étudient initialement cette nouvelle voie technologique dans le but de réaliser un ozoneur à bas coût, notamment capable de fonctionner à pression atmosphérique. L'architecture d'ozoneur présentée en figure 1.29 se compose d'une section d'alimentation en gaz et d'une section de décharge. La section de décharge se compose d'un conduit rectangulaire encadré par deux plaques de verre disposées parallèlement. Le générateur piézoélectrique est positionné en son centre et inséré dans le conduit. La zone de décharge entre les surfaces du générateur et les plaques de verre est maintenue à une distance de $0,5mm$. Les deux plaques de verre servent de couches diélectriques et sont recouvertes de fines couches d'aluminium sur leur face

extérieure comme électrodes conductrices. Un circuit de refroidissement liquide est également installé sur les deux électrodes diélectriques afin de maintenir un régime de micro-décharges nettes et éviter la transition vers un régime plus diffus sous l'effet de l'élévation de température moins productif en ozone [59].

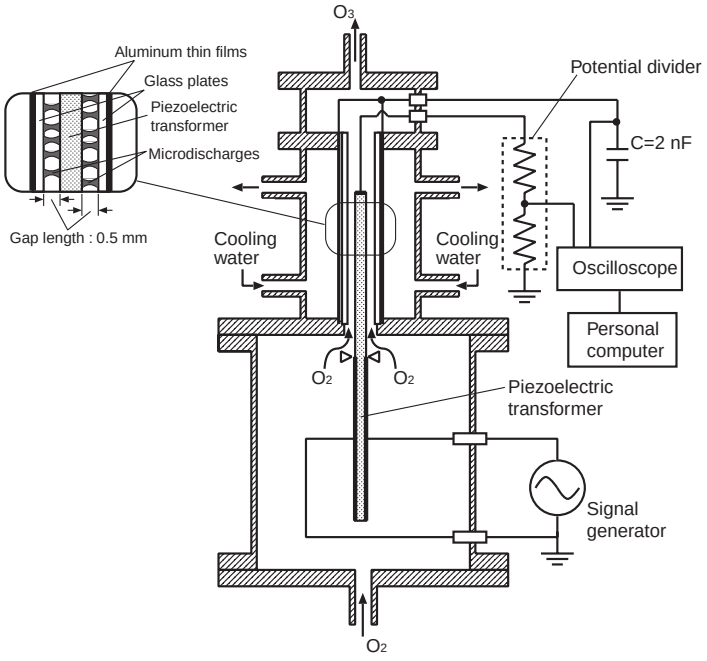


Fig. 1.29 Schéma d'ozoneur utilisant un transformateur piézoélectrique [59]

Ils seront amenés au cours de leur étude à caractériser le cycle de formation de la décharge à la surface d'un transformateur visible sur les relevés de caméra CCD en figure 1.30 et le chronogramme de courant et tension secondaire illustré figure 1.31 [59]. Sur la figure 1.31, le potentiel de surface augmente avec le temps de (a) à (f) dans la demi-période croissante de la tension secondaire. Si le potentiel électrique de surface près du sommet de la partie secondaire s'élève jusqu'à la tension de claquage, le DBD apparaît d'abord près du sommet, comme le montre l'image (b). Ensuite, la zone de décharge s'étend pendant la période de (b) à (f) par élévation du potentiel global de surface du secondaire et, de par sa répartition en quart sinus le long du secondaire (pour le mode vibratoire λ), déplacement du front de tension de claquage vers le bas du secondaire. Cependant, la tension gaz diminue même lorsque le potentiel de surface augmente, car les streamers (micro-décharges) s'accumulent sous forme de charges électriques sur le diélectrique, et ces charges forment un champ électrique inverse. Ainsi, le développement de nouveaux streamers est empêché et les micro-décharges disparaissent pendant le temps (d)-(f), ceci à chaque demi-période.

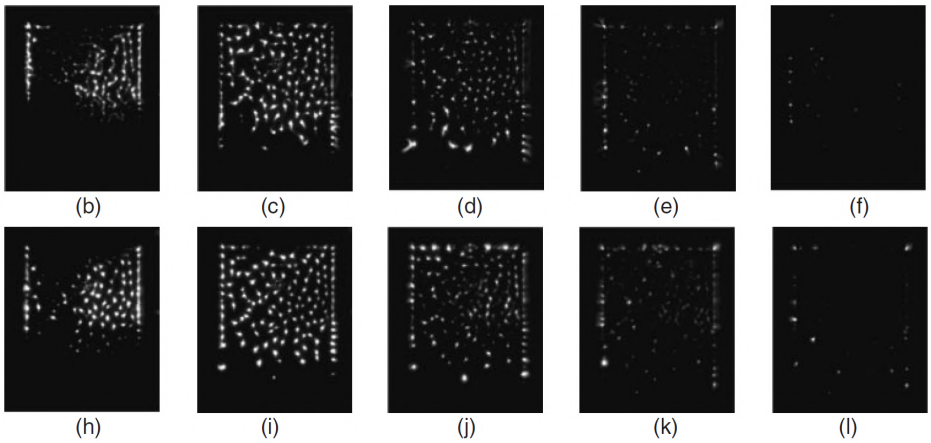


Fig. 1.30 Variation temporelle des motifs lumineux captés par une caméra CCD (temps d'exposition= $250ns$) la surface du transformateur piézoélectrique d'un ozoneur. [59]

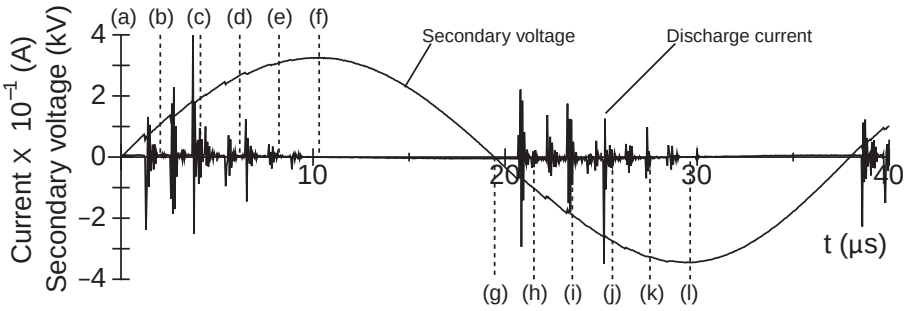


Fig. 1.31 Formes d'onde de la tension secondaire et du courant de décharge. Les temps (a)-(l) des formes d'onde correspondent au temps de capture des images (a)-(l) de la figure 1.30 [59]

L'une des principales difficultés à traiter de la génération de plasma par effet piézoélectrique repose dans le fort couplage existant entre la décharge et le générateur, principalement en raison de la valeur importante de l'impédance de sortie du transformateur piézoélectrique. Cette forte impédance est notamment matérialisée par l'impact d'une sonde de tension haute impédance (reliée à l'électrode du secondaire du transformateur) sur le comportement mécanique à la résonance. En figure 1.32, le potentiel de surface obtenu le long du secondaire apparaît nettement diminué lorsque la sonde (PD) est connectée en comparaison à la théorie. La conséquence de cet affaiblissement du potentiel de surface peut conduire à l'impossibilité d'amorcer des décharges et rend la présence de sonde de tension trop invasive. Pour palier cette

difficulté de mesure de tension de sortie, il sera nécessaire d'employer des méthodes indirectes.

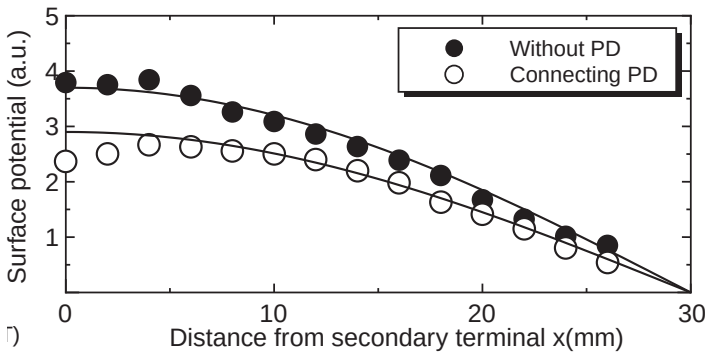


Fig. 1.32 Mesure du potentiel de surface avec et sans sonde de tension connectée

Parmi les effets indirects de la décharge sur le générateur piézoélectrique, le comportement thermique a également été étudié. Ainsi Kahaleras [101] a étudié l'échauffement du transformateur en régime de décharge suivant ses conditions de fonctionnement à tension d'alimentation maintenue constante et à la fréquence de résonance. Comme le montre la figure 1.33, en présence d'une décharge l'échauffement du transformateur reste modéré tandis qu'il devient critique en l'absence de décharge plasma. L'étude démontre que la décharge tend à amortir le comportement vibratoire du transformateur et réduit ainsi les pertes par frottement. Cette observation souligne l'importance de maitriser le régime de décharge du générateur car dans le cas d'un fonctionnement en circuit ouvert, les températures atteintes pourraient détériorer prématurément le générateur (dépolarisation du matériau).

1.3 Positionnement de la problématique

La première section de ce chapitre a permis d'introduire le potentiel applicatif des plasmas à pression atmosphérique, notamment dans le domaine biomédical et plus particulièrement pour la désinfection de matériaux thermosensibles ou chimiosensibles. En association avec la capacité de miniaturisation et de sécurisation des transformateurs piézoélectriques comme générateur de plasma froid, la rapidité et la facilité de traitement par l'action du plasma ont poussé l'intérêt pour cette technologie et la nécessité de mieux comprendre les mécanismes à l'œuvre. Différents dispositifs ont déjà pu voir le jour tel que celui de Engemann illustré figure 1.34. Si la preuve de concept de générateur plasma piézoélectrique a pu être faite, il persiste encore de nombreuses questions qui

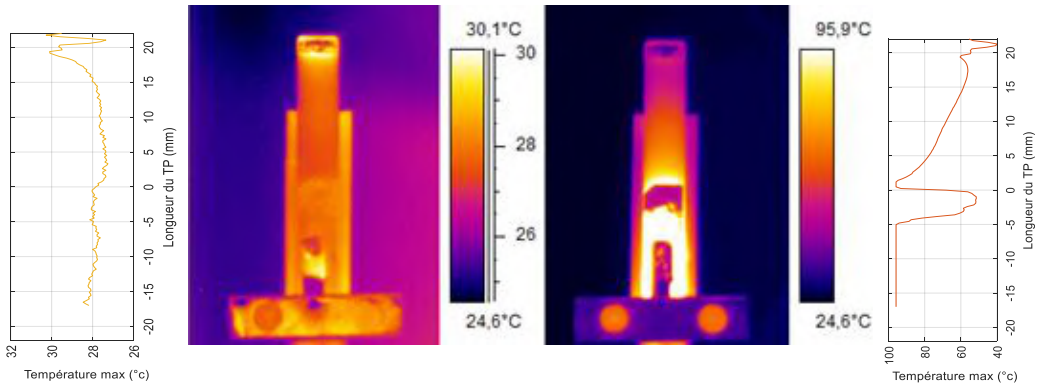


Fig. 1.33 Evolution de la température à la surface du générateur plasma monocouche opérant dans l'air à pression de 150 mbar en décharge luminescente (image de gauche) et à pression atmosphérique à vide (image de droite) après 10min de fonctionnement [101].

contraignent encore son déploiement technologique. L'une des dernières barrières à leur exploitation à grande échelle est la puissance de décharge encore limitée. L'activité électronique et les différentes actions électrochimiques (formation d'espèces réactives) sont évidemment liées à cette puissance. C'est dans cet objectif d'intensification du transfert de puissance et une meilleure compréhension des contraintes et limites intrinsèques que s'inscrit cette thèse. Trois grands axes d'étude se démarquent : l'augmentation de l'étendue de la décharge, l'intensification des champs électriques générés au secondaire et l'élévation globale de la puissance du transformateur. A noter que la nature des gaz porteurs constitue un élément crucial pour l'efficacité biocide du plasma et sur sa formation. Toutefois dans le cadre de cette thèse, l'étude se concentrera principalement sur les aspects électriques.

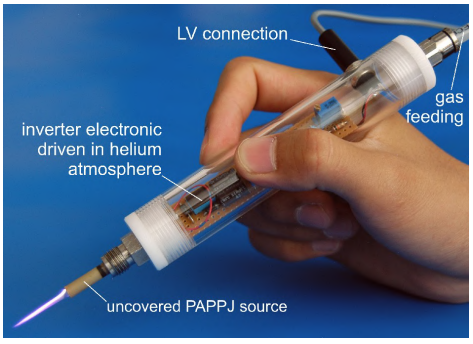


Fig. 1.34 Piezo-Plasma Pen de 6W fonctionnant sous flux d'hélium de 4L/min [102]

1.3.1 Augmentation de la surface active

L'augmentation de la surface de décharge a été abordée par Teschke et Engemann au cours de leurs travaux. Ils ont pu proposer différentes variantes de structures. Parmi de multiples géométries et agencements originaux, une proposition se distingue par sa simplicité apparente. Elle consiste en un couplage comparable à celui du transformateur Rosen à la différence près qu'elle adopte une géométrie tubulaire. Le gaz porteur circule au travers du transformateur rapprochant ainsi le gaz de la source d'excitation (cf : fig.1.35). Le gaz circulant à l'intérieur du tube est ainsi soumis à un champ électrique parfaitement axial dans le sens d'écoulement du gaz. Ce dernier voit alors le champ électrique grandir jusqu'à atteindre son seuil de claquage. Le gaz ionisé s'extrait alors du transformateur sous la forme d'un plasma jet que Kim [103] exploitera pour son dispositif visible en figure 1.36.



Fig. 1.35 Distribution de la polarisation d'un générateur piézoélectrique cylindrique de plasma jet à pression athmosphérique [96]

Cette géométrie tubulaire axisymétrique autorise uniquement un champ électrique dans le sens de l'axe de révolution. Par conséquent cela favorise l'ionisation dans le sens de l'écoulement du gaz. De plus, elle profite pleinement des capacités d'émission électronique ferroélectrique et présente également l'avantage de s'insérer simplement dans l'écoulement du gaz. En effet la propagation du jet de plasma est dépendant du flux de gaz. Un écoulement laminaire étendu dans la zone de post-décharge permet d'obtenir un jet extérieur avec une longueur utile de plusieurs centimètres. Lorsque le gaz ionisé conserve une excitation suffisante sur une zone étendue, il partage une large interface avec l'air ambiant permettant ainsi de favoriser de multiples réactions. A l'inverse, si le gaz s'échappe suivant un régime turbulent, il se mélange très rapidement dans un petit volume, raccourcissant la longueur d'action et réduisant les réactions aux interfaces gazeuses [104]. Si cette solution géométrique tubulaire semble présenter bien des avantages, sa fabrication s'avère complexe et implique des contraintes mécaniques internes qui limitent sa puissance transmissible.
Au cours de ses travaux de thèse [105], Valinattajomran a axé l'étude sur l'utilisation d'un réseau de "capillaires" (tube de moins de $2mm$ de section interne). Ainsi en

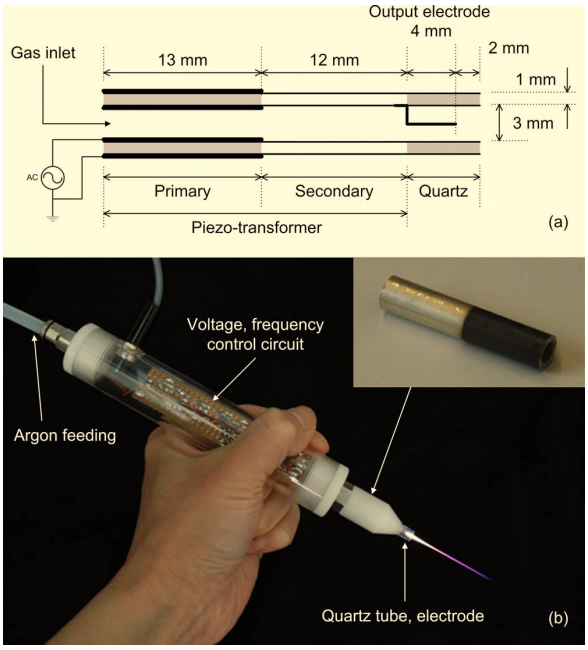
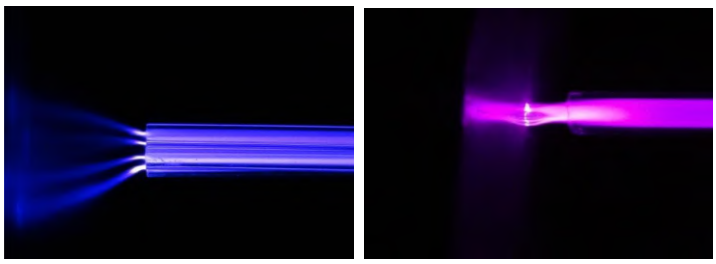


Fig. 1.36 (a)Schéma de principe du dispositif de Plasma Jet à pression atmosphérique équipé d'un transformateur piézoélectrique cylindrique (b)Photo du dispositif en fonctionnement sous flux d'argon alimenté sous $134V_{pp}$ à $134.7kHz$ [103].

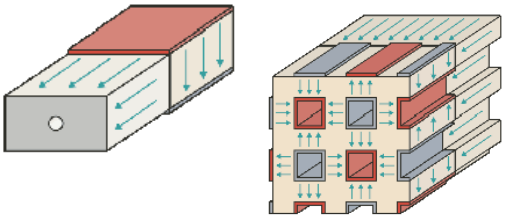
comparant des solutions mono-jet (fig.1.37.b) et multi-micro-jet (fig.1.37.a), à flux de gaz et à puissance d'entrée égales, il a pu doubler la puissance de sa décharge.



(a) (b)

Fig. 1.37 (a) Photographie de 4 micro-jets de plasma issus de capillaires de $2mm$, (b) mono-jet plasma issu d'un tube de $4mm$ [105]

Ainsi diverses structures de transformateurs ont pu être proposées comme illustré sur la figure 1.38, intégrant directement des cavités submillimétriques ou des capillaires au sein même d'une pièce massive ferroélectrique. La multiplicité de micro-jets peut s'avérer être une solution viable pour l'intensification et l'élargissement de la surface active de décharge.



(a) (b)

Fig. 1.38 Propositions de structure inspirées du transformateur Rosen standard allant du a) générateur microjet formé depuis un Rosen perforé au b) générateur multijet à structure en nid d'abeille [96]

1.3.2 Intensification du champ électrique

Le champ électrique est le vecteur d'excitation du gaz ionisé. Les températures et densités électroniques, ainsi que les concentrations en espèces réactives d'un plasma sont fortement liées à l'intensité du champ électrique dans lequel il est plongé, bien plus qu'ils ne le sont avec la vitesse d'écoulement gaz ou la fréquence d'alimentation[106]. Pour un générateur fournissant une tension donnée, intensifier le régime de décharge peut passer par l'élaboration d'un agencement particulier d'électrodes ou de générateurs, permettant d'en tirer les plus hauts niveaux de champ électrique possibles. La façon la plus simple est évidemment de tirer profit de l'effet de pointe, qui accentue très localement le champ électrique. De nombreux générateurs conventionnels pour les "Plasma Jet" à pression atmosphérique utilisent des électrodes haute tension en forme de pointe à faible rayon courbure pour faciliter le claquage. Liu a conduit une étude sur l'impact de la multiplication de ces pointes sur la puissance de décharge d'un dispositif [107]. Il a ainsi démontré expérimentalement avec un dispositif DBD équipé d'une électrode en pointes en acier (cf : fig 1.39), que malgré une diminution de la densité de puissance de la décharge avec le nombre de pointes, la surface couverte par les pointes entraîne une augmentation de la puissance globale de décharge.

Inspiré par cette même idée d'accroitre la puissance de décharge par la multiplication du nombre de micro-décharges, Teschke propose un agencement de transformateurs piézoélectriques aux polarisations de secondaire alternées de 180°, appelé structure PSBD (Piezoelectric Surface Barier Discharge)[96]. La structure consiste à disposer étroitement des transformateurs synchronisés dont les secondaires vont générer des tensions en opposition de phase, produisant ainsi des champs électriques théoriquement double entre les transformateurs. Cette proposition a fait l'objet d'un dépôt de

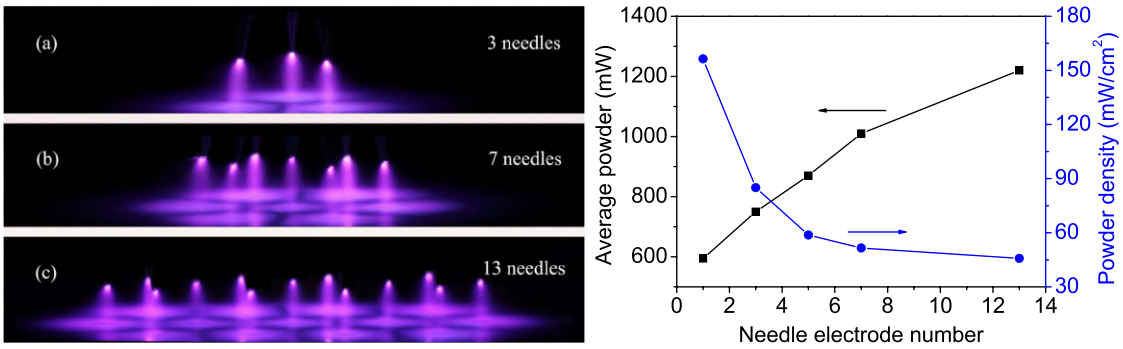


Fig. 1.39 Impact du nombre de pointes de $0.4mm$ de rayon de courbure sur la puissance moyenne et la densité de puissance du dispositif pour des pic de $30kV$ à $150Hz$ à une distance inter-électrodes de $5mm$ [107]

brevet [108]. Malheureusement, l'homogénéité du plasma est très difficile à obtenir en raison des performances faiblement reproductibles des transformateurs et l'instabilité des décharges. Il en résulte un régime filamentaire essentiellement localisé entre les extrémités secondaires. Pour améliorer l'efficacité, le contact mécanique entre les transformateur piézoélectrique est réduit au minimum par l'utilisation de bâtonnets de céramique. Le gaz présent dans l'espace entre les bâtonnets agit comme un isolant électrique, seul le gaz soufflé à l'extrémité des secondaires doit être ionisé. En outre l'isolation peut être améliorée en utilisant des gaz électronégatifs comme le SF6 [96].

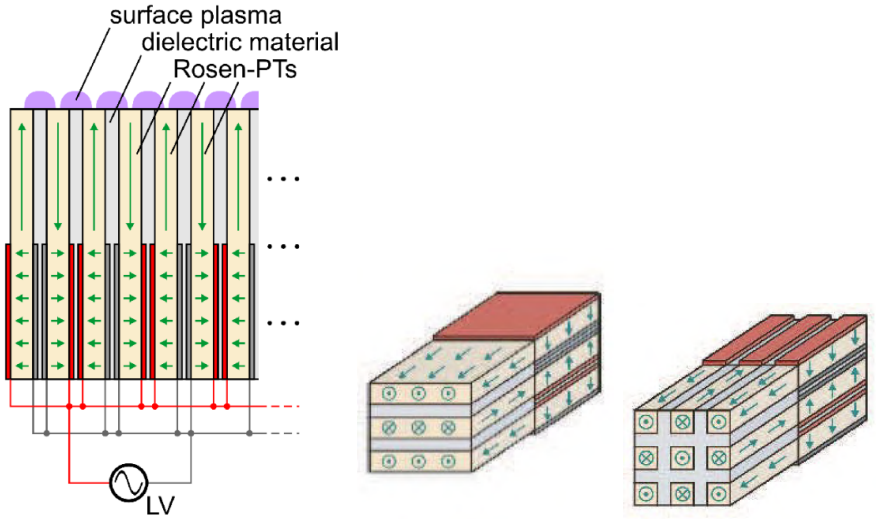


Fig. 1.40 (a)Schéma de principe d'une source PSBD, (b-c) Association mécanique de plusieurs transformateurs Rosen à polarisations secondaires alternées à 180° [96]

1.3.3 Montée en puissance du générateur

Enfin, la dernière solution pour augmenter la puissance transmise à la décharge consiste à augmenter la puissance du générateur lui-même. Un transformateur piézoélectrique se trouve limité en puissance par deux principales contraintes. D'une part, le transfert de puissance s'effectue par l'intermédiaire d'une onde mécanique qui s'accompagne de contraintes mécaniques internes. Des déformations et des contraintes mécaniques excessives conduisent à la cassure de la céramique. D'autre part, la conversion d'énergie s'accompagne de pertes qui vont échauffer le générateur. Un échauffement excessif entraine la dépolarisation (soit partielle soit totale) et la disparition de l'effet piézoélectrique. La figure 1.41 illustre cette réduction de la polarisation rémanente avec la montée en température pour une céramique PZT. L'origine de cet échauffement est principalement (mais pas exclusivement) lié aux pertes par friction internes dans la céramique [109]. Par conséquent, la contrainte thermique est également principalement liée aux contraintes mécaniques. Dans la mesure où la décharge plasma s'opère à la surface du générateur, la contribution de la décharge à l'échauffement sera également à évaluer.

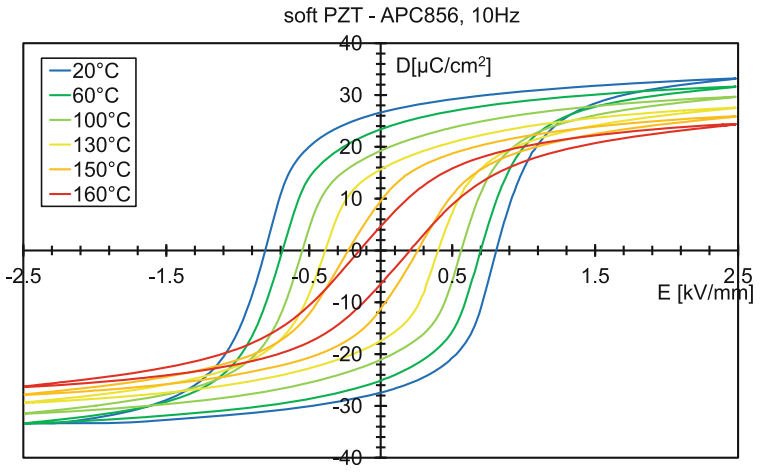


Fig. 1.41 Evolution de la boucle d'hystérésis fonction de la température pour une céramique PZT douce, type APC856 [80]

Les dimensions d'un transformateur piézoélectrique sont donc définies suivant chaque cas d'utilisation et de charge. En raison de ses excellentes performances dans des conditions de charge bien précises, ce dimensionnement s'établit le plus souvent à charge constante ou faiblement variable. Différentes études furent consacrées à l'influence de la variation d'une charge externe sur les non-linéarités de tension [110], la fréquence de résonance et le gain de tension [111], [112] ou plus récemment la

maximisation du rapport de transformation par adaptation d'impédance de la charge [113].

L'intérêt applicatif des générateurs plasmas piézoélectriques a conduit la société TDK-Epcos au développement d'un transformateur piézoélectrique d'environ 30W max, spécialement réalisé pour intégrer un dispositif portable pour le traitement des surfaces. Sa commercialisation fut lancée en 2015. Le transformateur est un simple modèle de type Rosen, au primaire multi-couche (qui participe à accroitre le gain en tension) et aux dimensions particulièrement élancées ($72 \times 6 \times 2.8mm$). Ce transformateur dénommé CeraPlas^{TM} intègre le seul générateur plasma piézoélectrique commercialisé aujourd'hui par Relyon plasma, le stylet PiezoBrush®.

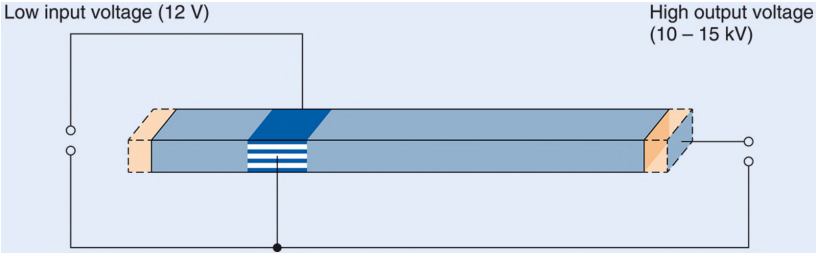
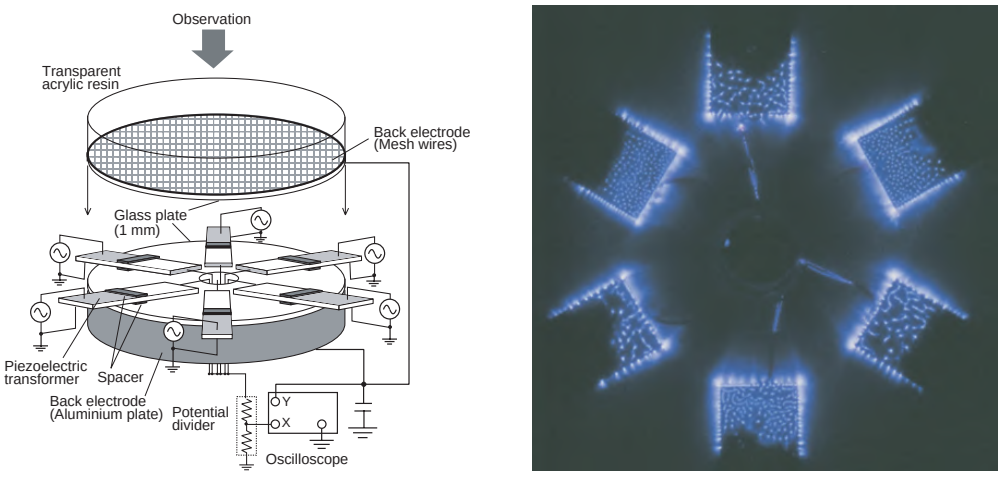


Fig. 1.42 Design du transformateur Rosen CeraPlas de Epcos

Pour finir, une autre solution envisagée pour accroitre la puissance de décharge est l'association d'un ensemble de générateurs. Ainsi, Itoh associe plusieurs transformateurs Rosen, sensiblement identiques, disposés en parallèle. Chaque transformateur est capable de fournir idéalement $4W$ sous $100V$ d'alimentation, sans craindre de franchir les seuils de contraintes mécaniques et thermiques irréversibles. Ainsi, il réalise un dispositif de décharge à 6 transformateurs piézoélectriques illustré en figure 1.43 [114]. Les transformateurs sont connectés en parallèle et alimentés par une même source de tension. Toutefois, la puissance totale n'excède pas $12W$, soit 3 fois la puissance d'un seul transformateur. La puissance globale de cette association n'obéit pas à une simple proportionnalité au nombre de transformateurs, que l'auteur explique par le sous-dimensionnement de l'étage d'alimentation unique. Une autre explication réside dans la difficulté à obtenir des transformateurs parfaitement identiques, qui disposeraient alors d'une même fréquence de résonance. Une alimentation à tension sinusoïdale harmonique et unique pour tous les générateurs ne peut satisfaire à l'optimum de fonctionnement simultanément pour tous.



(a) (b)

Fig. 1.43 (a)Schéma de principe d'un générateur 6 PT, (b) Photo du motif de décharge [114]

1.4 Conclusion

Au cours de ce premier chapitre, une brève introduction aux plasmas froids et à leurs interactions avec le vivant que ce soit par la production d'espèces chimiques réactives, le bombardement électronique ou l'émission UV, notamment dans des objectifs de désinfection pour le biomédical, a été présentée. Cet état de l'art témoigne de l'intérêt aujourd'hui croissant pour cet état de la matière dont la démocratisation des applications se voit malheureusement aujourd'hui freiner par l'emploi actuel dans leurs dispositifs de génération de sources de haute tension coûteuses, volumineuses et à risque pour les utilisateurs. Ainsi se manifeste le besoin de générateurs plus accessibles d'emploi et de fabrication.

Les transformateurs piézoélectriques et notamment les structures Rosen, de part leurs remarquables propriétés d'élévation de tension, représentent une alternative idéale à ces dispositifs. Leur comportement résonnant, assimilable à celui d'une ballast en électronique, leur vaut de pouvoir directement remplacer un élévateur magnétique de tension dans le circuit d'alimentation d'une cathode froide ou d'une DBD. De plus, la forte émissivité électronique des matériaux piézoélectriques a même permis d'aboutir à des structures exploitant les propriétés diélectriques du matériau et le fort champ électrique émis le long de son secondaire, en générant la décharge directement à sa surface, permettant d'atteindre des régimes homogènes stables même à pression atmosphérique.

La principale limite subsistant aujourd'hui est leur faible transmission de puissance à

la décharge. Différents axes d'intensification ont été présentés au cours de ce chapitre, s'appuyant notamment sur des propositions de variation de designs ou d'association des transformateurs. Les chapitres suivants prennent la continuité de l'étude de ces stratégies d'intensification de la décharge. Ils auront pour but de présenter les outils, les modèles et les protocoles expérimentaux employés pour réaliser et tester ces générateurs de plasma froid à visée de décontamination.

Chapitre 2

Modélisation et dimensionnement du générateur piézoélectrique

Sommaire

2.1 Introduction 56

2.2 Modélisation analytique du potentiel de surface 57

2.2.1 Prise en compte de l'état de charge 57

2.2.2 Validation du modèle 69

2.2.3 Discussion 75

2.3 Étude du comportement thermique 75

2.3.1 Modèle du comportement thermique fonction de la charge . 76

2.3.2 Validation du modèle sur transformateur complet 83

2.3.3 Discussions 87

2.4 Contribution à la conception optimisée 89

2.4.1 Définition du problème d'optimisation 90

2.4.2 Étude du comportement paramétrique à partir du modèle analytique 91

2.5 Conclusion 97

2.1 Introduction

Ce chapitre traite de la modélisation des transformateurs piézoélectriques dans le cadre de leur utilisation spécifique à la génération de plasma à leur surface. Pour tirer profit des propriétés diélectriques de la céramique, le secondaire du transformateur est dépourvu d'électrode secondaire. Dans une telle configuration, cela permet de s'affranchir d'une barrière diélectrique habituellement nécessaire dans les structures DBD. La décharge plasma est donc libre de se produire dans l'environnement proche du secondaire (voire à sa surface) si les conditions d'amorçage et de maintien sont satisfaites. Par conséquent, il est nécessaire d'évaluer la distribution du potentiel électrique tout au long de la surface du transformateur. La modélisation du potentiel électrique le long d'un transformateur de type Rosen est donc menée pour évaluer les valeurs atteintes avant l'amorçage d'une décharge, c'est-à-dire en condition de transformateur à vide. La valeur de la tension d'amorçage est attachée aux conditions de gaz, la géométrie et la disposition de l'environnement électrique autour du secondaire. Toutefois, son évaluation approximative peut être déterminée à partir des courbes de Paschen. Il s'agit donc de s'assurer de la capacité du transformateur à franchir cette valeur d'amorçage, puis à satisfaire les conditions de maintien de la décharge. Car une fois la décharge plasma amorcée, son maintien est obtenu à la condition d'atteindre une valeur de potentiel suffisante, sensiblement inférieure à celle de la tension d'amorçage. Or la difficulté inhérente au transformateur piézoélectrique est sa forte dépendance à la charge électrique qu'il alimente. Son potentiel électrique y est fortement couplé. Par conséquent, l'apparition de la décharge plasma pouvant s'interpréter par une évolution abrupte de charge au secondaire du transformateur, peut conduire à l'effondrement du potentiel électrique, à passer en deçà de sa valeur de maintien et finalement à s'éteindre. Cette dépendance est donc abordée en ajoutant à l'évaluation du potentiel électrique l'influence d'une charge résistive fictive reliée au secondaire du transformateur. Bien que cette approximation de la décharge par une charge résistive soit inappropriée au comportement dynamique, elle permettra néanmoins d'appréhender la capacité d'un transformateur à maintenir un potentiel suffisant, et donc à satisfaire à une condition de puissance transmissible à la décharge.

Une autre difficulté liée à l'instabilité des décharges plasma réside dans l'échauffement du transformateur lui-même. En effet suivant le régime de décharge, les sources de perte sont fortement variables. Celles-ci peuvent conduire le transformateur à s'échauffer à l'excès, pouvant entrainer sa détérioration partielle ou totale (vieillissement ou dépolarisation par franchissement de la température de Curie). Il est donc souhaitable de mieux connaitre l'origine de ces échauffements, d'évaluer ces pertes et la température

atteinte par le transformateur en fonctionnement. Une méthode d'identification des paramètres thermiques ainsi qu'un modèle thermique sont établis.

Pour finir ce chapitre consacré à la modélisation, un modèle de dimensionnement est élaboré puis exploité afin de mettre en évidence les paramètres géométriques et les propriétés des matériaux utiles à la conception d'un générateur plasma dans le but d'accroître la puissance transmissible à la décharge plasma tout en satisfaisant à la condition de maintien de la décharge.

2.2 Modélisation analytique du potentiel de surface

Cette partie présente le modèle analytique du transformateur piézoélectrique qui sera par la suite exploité pour son dimensionnement. L'étude du modèle du transformateur portera essentiellement sur un modèle de transformateur chargé d'une résistance de valeur fixée.

2.2.1 Prise en compte de l'état de charge

2.2.1.1 Géométrie et hypothèses de modélisation

Le transformateur de type Rosen, illustré sur la figure 2.1, est composé de deux sections : le primaire, dont la polarisation est orientée suivant l'épaisseur, et le secondaire polarisé suivant la longueur. La déformation souhaitée opérant suivant la longueur, le primaire et le secondaire sollicitent respectivement le couplage transversal et longitudinal. Ajoutons par ailleurs que pour accroître le champ électrique appliqué au primaire, celui-ci peut être réalisé à partir d'un empilement de couches. Afin d'aborder la susceptibilité du transformateur face à une variation de son état de charge, la distribution du potentiel électrique est évaluée pour une charge résistive variable Z_{load} connectée au secondaire du transformateur. Cette charge varie d'une valeur infiniment grande (transformateur hors-décharge) à quelques $k\Omega$ pour un PT en décharge. Cette approximation par une charge résistive ne rend pas compte de la dynamique de l'association transformateur et décharge mais permet d'apprécier la capacité à transmettre la puissance active. Afin de r les déformations longitudinales, celui-ci impose une longueur totale L du transformateur supérieure à sa largeur l et son épaisseur e. Ainsi les déformations suivant les axes (x_2) et (x_3) sont négligeables devant la déformation longitudinale

suivant (x_1). Par la suite, le terme unidimensionnel x sera utilisé pour décrire les différentes grandeurs distribuées sur l'axe (x_1).

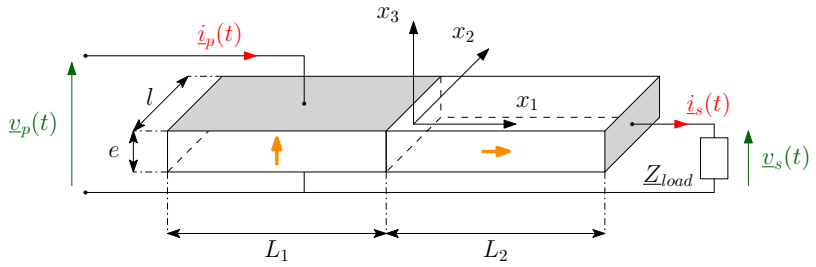


Fig. 2.1 Géométrie d'un transformateur de type Rosen associé à une charge résistive quelconque

Afin de différencier les expressions appartenant au primaire et au secondaire, chaque paramètre prend respectivement les indices X_p et X_s. De plus, la notation d'Einstein sera utilisée pour décrire les dérivées partielles. Ainsi, la dérivée spatiale suivant la variable (x_j) d'une composante i d'un tenseur sera notée $X_{\{p,s\}i,j}$.

Les hypothèses préalables à l'élaboration du modèle sont :

- le transformateur est alimenté au primaire par une source de tension harmonique qui délivre une quantité de charges q_p réparties sur les n couches du primaire se traduisant par un potentiel v_p appliqué à chacune d'elles. Le primaire est parcouru par un courant global i_p.

- le transformateur est alimenté à sa fréquence de résonance électrique, correspondant au maximum du module d'admittance primaire $|Y_p|$

- le secondaire du transformateur est relié à une charge d'impédance complexe $\underline{Z}_{load}$. On note respectivement v_s la tension aux bornes de la charge et i_s le courant qui la traverse.

- les déformations transverses à l'axe (x_1) sont négligeables :

$$S_2 = S_3 = 0 \quad \text{et} \quad T_2 = T_3 = 0 \tag{2.1}$$

De plus les contraintes en cisaillement sont également négligées :

$$T_4 = T_5 = T_6 = 0 \tag{2.2}$$

- le transformateur est mécaniquement libre de contrainte à ses extrémités :

$$T_{p1}(x = -L_p) = T_{s1}(x = L_s) = 0 \tag{2.3}$$

- la masse et l'épaisseur des électrodes sont négligées

- le modèle s'appuie sur les relations constitutives linéaires de la piézoélectricité présentées en première partie, sous l'hypothèse de déformations de faible amplitude, et sans considérer les propriétés non-linéaires du matériau.

- l'absence d'électrode sur les surfaces latérales présuppose une absence de charge libre à la surface des céramiques, et permet de négliger les composantes de l'induction électrique suivant les normales aux surfaces non-électrodées, si bien que :

$$\begin{aligned} D_p &= \begin{bmatrix} 0 & 0 & D_{p3} \end{bmatrix} \\ D_s &= \begin{bmatrix} D_{s1} & 0 & 0 \end{bmatrix} \end{aligned} \tag{2.4}$$

- D'après [115], si le nombre de couches au primaire reste inférieur à 20, l'influence mécanique de cet empilement est négligeable et simplement ramené à un gain d'amplification en entrée du transformateur proportionnel au nombre de couches.

2.2.1.2 Équations constitutives de la piézoélectricité

Les paramètres électriques et mécaniques sont définis pour une céramique piézoélectrique polarisée suivant l'axe (x_3) conformément à la convention de la norme IEEE (pour le secondaire, il est nécessaire d'appliquer les rotations de matrice en conséquence).

Suivant le mode de déformation privilégié, l'expression tensorielle des équations constitutives de la piézoélectrique, présentée dans le tableau 1.1, peut prendre une forme scalaire simplifiée [80].

Le mode d'élongation transversale du primaire s'exprime par le couple de relations :

$$\begin{cases} S_{p1} = s_{11}^E T_{p1} + d_{31} E_{p3} \\ D_{p3} = d_{31} T_{p1} + \varepsilon_{33}^T E_{p3} \end{cases} \tag{2.5}$$

Comme présenté dans [116], le primaire étant en mode émetteur, on utilisera préférentiellement le couple de variables indépendantes (S, E) tel que,

$$\begin{cases} T_{p1} = \bar{c}_{11}^E S_{p1} - \bar{e}_{31} E_{p3} \\ D_{p3} = \bar{e}_{31} S_{p1} + \bar{\varepsilon}_{33}^S E_{p3} \end{cases} \tag{2.6}$$

avec

$$\bar{c}_{11}^{E} = \frac{1}{s_{11}^{E}} \qquad \bar{e}_{31} = \frac{d_{31}}{s_{11}^{E}} \qquad \bar{\varepsilon}_{33}^{S} = \varepsilon_{33}^{T}(1 - k_{31}^{2})$$

Le secondaire étant polarisé suivant l'axe (x_1), on applique une rotation sur les indices des paramètres électromécaniques de la céramique . Ainsi au secondaire les équations constitutives prennent la forme :

$$\begin{cases} S_{s1} = s_{33}^{E} T_{s1} - d_{33} E_{s1} \\ D_{s1} = d_{33} T_{s1} + \varepsilon_{33}^{T} E_{s1} \end{cases} \tag{2.7}$$

Le secondaire intervient en mode récepteur, par conséquent le couple de variables indépendantes (S,D) est préférable, ce qui mène à à la forme suivante :

$$\begin{cases} T_{s1} = \bar{c}_{33}^{D} S_{s1} - \bar{h}_{33} D_{s1} \\ E_{s1} = -\bar{h}_{33} S_{s1} + \bar{\beta}_{33}^{S} D_{s1} \end{cases} \tag{2.8}$$

avec

$$\bar{c}_{33}^{D} = \frac{1}{s_{33}^{E}(1 - k_{33}^{2})} \qquad \bar{h}_{33} = \frac{1}{d_{33}} \frac{k_{33}^{2}}{1 - k_{33}^{2}} \qquad \bar{\beta}_{33}^{S} = \frac{1}{\varepsilon_{33}^{T}(1 - k_{33}^{2})}$$

Excitation électrique du transformateur La tension électrique primaire sert de référence de phase. Elle est homogène sur toutes les électrodes rendant le champ électrique primaire constant dans toute la section primaire (déformation des électrodes négligeable).

$$E_{p3} = -\frac{V_p}{e} e^{j\omega t} \quad \Rightarrow \quad E_{p3,\{1,2,3\}} = 0 \tag{2.9}$$

Équations d'équilibre de la céramique Les surfaces latérales aux axes de polarisation primaire et secondaire du transformateur n'étant pas électrodées, l'absence de charges libres sur ces surfaces est admise. Suivant l'équation de Maxwell-Gauss, l'induction peut être considérée non-divergente le long des axes de polarisation des céramiques.

$$\begin{cases} D_{p3,3} = 0 \\ D_{s1,1} = 0 \end{cases} \tag{2.10}$$

L'induction électrique peut donc être considérée homogène au primaire et au secondaire respectivement suivant (x_3) et (x_1), on prendra les expressions suivantes :

$$\begin{cases} D_{p3} = \dfrac{\underline{D}_p}{\bar{\beta}^S_{33}} e^{j\omega t} \\ D_{s1} = \dfrac{\underline{D}_s}{\bar{\beta}^S_{33}} e^{j\omega t} \end{cases} \tag{2.11}$$

De plus, l'équilibre mécanique de la céramique se traduit par l'équation suivante :

$$T_{\{p,s\}1,1} = \rho \frac{\partial^2 U_{\{p,s\}1}}{\partial t^2} \tag{2.12}$$

avec ρ, la densité massique de la céramique.
Suivent l'hypothèse de déformation unidirectionnelle, la déformée peut s'exprimer d'après le déplacement mécanique.

$$S_{\{p,s\}1} = U_{\{p,s\}1,1}$$

En injectant les expressions des contraintes mécaniques (2.6) et (2.8) dans l'équation d'équilibre mécanique (2.12) et en tenant compte des hypothèses sur le champ électrique primaire (2.9) et induction électrique secondaire (2.10), les équations différentielles vérifiées par l'induction au primaire et au secondaire du transformateur deviennent

$$\begin{cases} \bar{c}^E_{11} U_{p1,11} = \rho \dfrac{\partial^2 U_{p1}}{\partial t^2} \\ \bar{c}^E_{33} U_{s1,11} = \rho \dfrac{\partial^2 U_{s1}}{\partial t^2} \end{cases} \tag{2.13}$$

Les solutions harmoniques de ce type d'équations différentielles sont de la forme

$$\begin{cases} U_{p1}(x,t) = (\underline{A}_p e^{jk_1 x} + \underline{B}_p e^{-jk_1 x}) e^{j\omega t} \\ U_{s1}(x,t) = (\underline{A}_s e^{jk_2 x} + \underline{B}_s e^{-jk_2 x}) e^{j\omega t} \end{cases} \tag{2.14}$$

avec k_1 et k_2 les vecteurs d'onde

$$k_1^2 = \frac{\rho}{\bar{c}^E_{11}} \omega^2 \quad \text{et} \quad k_2^2 = \frac{\rho}{\bar{c}^D_{33}} \omega^2$$

Afin de prendre en compte les pertes par friction induites par la déformation du matériau, pertes majoritaires au voisinage de la fréquence de résonance [117], un angle

de perte complexe ϕ_m est ajouté au terme de raideur $\bar{c}_{11}^E$ et $\bar{c}_{33}^D$ dépendant du facteur de qualité mécanique $Q_m = \dfrac{1}{\tan(\phi_m)}$ [118]:

$$\underline{\hat{c}}_{11}^E = \bar{c}_{11}^E\,(1 + j\tan(\phi_m)) \quad \text{et} \quad \underline{\hat{c}}_{33}^D = \bar{c}_{33}^D\,(1 + j\tan(\phi_m)) \tag{2.15}$$

En considérant l'application de ce coefficient complexe, dans l'hypothèse d'un fort facteur de qualité Q_m, les vecteurs d'onde prennent la forme complexe suivante :

$$\underline{k}_1 = \sqrt{\frac{\rho}{\bar{c}_{11}^E}}\omega(1 - j\frac{\tan(\phi_m)}{2}) \qquad \underline{k}_2 = \sqrt{\frac{\rho}{\bar{c}_{33}^D}}\omega(1 - j\frac{\tan(\phi_m)}{2})$$

Ainsi, il est possible de déduire l'expression des contraintes mécaniques d'après les équations constitutives de la piézoélectricité (2.6) et (2.8) telles que,

$$\begin{cases} T_{p1}(x,t) = [j\underline{k}_1\underline{\hat{c}}_{11}^E(\underline{A}_p e^{j\underline{k}_1 x} - \underline{B}_p e^{-j\underline{k}_1 x}) + \dfrac{\bar{e}_{31}V_p}{e}]e^{j\omega t} \\ T_{s1}(x,t) = [j\underline{k}_2\underline{\hat{c}}_{33}^D(A_s e^{j\underline{k}_2 x} - \underline{B}_s e^{-j\underline{k}_2 x}) - \dfrac{\bar{h}_{33}}{\underline{\bar{\beta}}_{33}^{\bar{S}}}\underline{D}_s]e^{j\omega t} \end{cases} \tag{2.16}$$

Expression du potentiel électrique Le potentiel électrique au primaire est supposé homogène suivant (x_1) et imposé par la source externe. De plus sa valeur est considérée négligeable devant le potentiel au secondaire.
En l'absence de champ magnétique, d'après les équations de Maxwell, le champ électrique au secondaire se définit comme dérivé du potentiel électrique ϕ_s tel que :

$$E_{s1} = -\phi_{s,1}$$

A partir de l'équation piézoélectrique (2.8) et de la condition d'équilibre électrique (2.11) au secondaire, l'équation différentielle vérifiée par le potentiel électrique au secondaire s'écrit comme suit :

$$\phi_{s,1} = \bar{h}_{33}U_{1s,1} - \underline{D}_s e^{j\omega t}$$

A partir de cette nouvelle expression, s'en déduisent les expressions des potentiels électriques le long du transformateur

$$\begin{cases} \underline{\phi}_p(x,t) = 0 \\ \underline{\phi}_s(x,t) = \left(\underline{C}_s - \underline{D}_s x + \bar{h}_{33}(\underline{A}_s e^{j\underline{k}_2 x} + \underline{B}_s e^{-j\underline{k}_2 x})\right) e^{j\omega t} \end{cases} \tag{2.17}$$

Tension de sortie et impédance de charge La quantité de charge accumulée sur la surface Σ de l'électrode du secondaire peut s'exprimer par

$$q_s = \int_\Sigma -D_{s1} d\Sigma$$

Compte tenu de l'expression de l'induction électrique (2.11) elle se simplifie par l'expression

$$q_s = -\frac{le}{\bar{\beta}_{33}^S} \underline{D}_s e^{j\omega t}$$

et permet d'exprimer le courant débité dans la charge tel que

$$i_s = -q_s' = j\omega \frac{le}{\bar{\beta}_{33}^S} \underline{D}_s e^{j\omega t} = L_2 \frac{\underline{D}_s}{\underline{Z}_{Cd_2}} e^{j\omega t} \tag{2.18}$$

et la tension aux bornes de la charge au secondaire

$$V_s = \underline{Z}_{load} i_s = L_2 \frac{\underline{Z}_{load}}{\underline{Z}_{Cd_2}} \underline{D}_s e^{j\omega t} \tag{2.19}$$

avec $Z_{Cd_2} = \dfrac{1}{j\omega} \bar{\beta}_{33}^S \dfrac{L_2}{le}$: l'impédance de la capacité bloquée du secondaire.

Construction de la matrice caractéristique du système Les six facteurs complexes ($\underline{A}_p$, $\underline{B}_p$, $\underline{A}_s$, $\underline{B}_s$, $\underline{C}_s$ et $\underline{D}_s$) sont à déterminer pour résoudre l'équation d'onde. Ils s'obtiennent à partir de l'ensemble de conditions de passage et de conditions aux limites listées ci-après.

Conditions de continuité La continuité des contraintes mécaniques, de la déformée et du potentiel électrique est satisfaite à l'interface entre primaire et secondaire.

$$\begin{cases} \underline{U}_{p1}(x=0) = \underline{U}_{s1}(x=0) \\ \underline{T}_{p1}(x=0) = \underline{T}_{s1}(x=0) \\ \underline{\phi}_p(x=0) = \underline{\phi}_s(x=0) \end{cases} \tag{2.20}$$

Conditions aux limites Le transformateur étant mécaniquement libre aux extrémités, il vient,

$$\begin{cases} \underline{T}_{p1}(x=-L_1) = 0 \\ \underline{T}_{s1}(x=L_2) = 0 \end{cases} \tag{2.21}$$

La charge électrique connectée au secondaire du transformateur intègre le système d'équations par la relation

$$\underline{\phi}_s(x = L_2) = \underline{V}_s \tag{2.22}$$

Système de contraintes L'ensemble des relations (2.20), (2.21) et (2.22) se formule finalement en fonction des 6 facteurs complexes tel que,

$$\begin{cases} \underline{A}_p + \underline{B}_p - \underline{A}_s - \underline{B}_s = 0 \\ j\hat{\underline{c}}_{11}^E k_1(\underline{A}_p - \underline{B}_p) - j\hat{\underline{c}}_{33}^D k_2(\underline{A}_s - \underline{B}_s) + \dfrac{\bar{h}_{33}}{\bar{\beta}_{33}^S}\underline{D}_s = -\dfrac{V_p\bar{e}_{31}}{e} \\ \bar{h}_{33}(\underline{A}_s + \underline{B}_s) + \underline{C}_s = 0 \\ j\hat{\underline{c}}_{11}^E k_1(\underline{A}_p e^{-j\underline{k}_1 L_1} - \underline{B}_p e^{j\underline{k}_1 L_1}) = -\dfrac{V_p\bar{e}_{31}}{e} \\ j\hat{\underline{c}}_{33}^D k_2(\underline{A}_s e^{j\underline{k}_2 L_2} - \underline{B}_s e^{-j\underline{k}_2 L_2}) - \dfrac{\bar{h}_{33}}{\bar{\beta}_{33}^S}\underline{D}_s = 0 \\ \bar{h}_{33}(\underline{A}_s e^{j\underline{k}_2 L_2} + \underline{B}_s e^{-j\underline{k}_2 L_2}) + \underline{C}_s - L_2(\dfrac{\underline{Z}_{load}}{\underline{Z}_{Cd_2}} + 1)\underline{D}_s = 0 \end{cases} \tag{2.23}$$

L'expression de $\underline{C}_s$ se déduit directement à partir de la troisième relation

$$\underline{C}_s = -\bar{h}_{33}(\underline{A}_s + \underline{B}_s) \tag{2.24}$$

La relation matricielle caractéristique du système devient :

$$\boldsymbol{M}(\omega)\boldsymbol{X} = \boldsymbol{V_{excit}} \tag{2.25}$$

avec le vecteur des amplitudes complexes

$$\boldsymbol{X} = \left[\begin{array}{ccccc} \underline{A}_p & \underline{B}_p & \underline{A}_s & \underline{B}_s & \underline{D}_s \end{array} \right]^t$$

le vecteur d'excitation

$$\boldsymbol{V_{excit}} = \frac{V_p\bar{e}_{31}}{e}\left[\begin{array}{ccccc} 0 & 1 & 1 & 0 & 0 \end{array} \right]^t$$

et la matrice caractéristique :

$$\boldsymbol{M}(\omega) = \begin{bmatrix} 1 & 1 & -1 & -1 & 0 \\ -j\hat{\underline{c}}_{11}^{E}\underline{k}_1 & j\hat{\underline{c}}_{11}^{E}\underline{k}_1 & j\hat{\underline{c}}_{33}^{D}\underline{k}_2 & -j\hat{\underline{c}}_{33}^{D}\underline{k}_2 & -\dfrac{\bar{h}_{33}}{\bar{\beta}_{33}^{S}} \\ -j\hat{\underline{c}}_{11}^{E}k_1 e^{-jX_1} & j\hat{\underline{c}}_{11}^{E}k_1 e^{jX_1} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & j\hat{\underline{c}}_{33}^{D}\underline{k}_2 e^{jX_2} & -j\hat{\underline{c}}_{33}^{D}\underline{k}_2 e^{-jX_2} & -\dfrac{\bar{h}_{33}}{\bar{\beta}_{33}^{S}} \\ 0 & 0 & \bar{h}_{33}(1-e^{jX_2}) & \bar{h}_{33}(1-e^{-jX_2}) & L_2(1+\dfrac{\underline{Z}_{load}}{\underline{Z}_{Cd_2}}) \end{bmatrix} \tag{2.26}$$

avec $X_1 = \underline{k}_1 L_1$ et $X_2 = \underline{k}_2 L_2$

Les fréquences de résonance ω_r du système correspondent aux valeurs propres de sa matrice caractéristique tel que $det(M(\omega = \omega_r)) = 0$ pour le cas non-amorti ($Q_m \to \infty$), correspondant aux cas $\underline{k}_1 = k_1$ et $\underline{k}_2 = k_2$ et à l'annulation des pertes internes dues aux frictions mécaniques. Cependant si cette manipulation du système pour l'étudier dans le cas non-amorti est viable dans les cas extrêmes court-circuité et ouvert où la puissance transmise à la charge est nulle, pour des résistances de charge de valeur intermédiaire, cette condition peut rapidement être mise en défaut. La puissance transmise à la charge devient la cause d'un amortissement du transformateur rendant le déterminant de la matrice caractéristique impossible à annuler. Les fréquences de résonance électrique ne correspondront plus alors simplement aux fréquences d'annulation du déterminant de la matrice caractéristique mais aux différents minima locaux du module du déterminant. Une fois ces fréquences identifiées, la prise en compte du terme de frottement empêche l'annulation du déterminant et rende la matrice M inversible pour toute valeur de pulsation ω.
Ainsi, par inversion de l'équation caractéristique (2.25) à la fréquence de résonance ω_r, les 6 facteurs complexes peuvent être identifiés.

Grandeurs électriques au primaire Le courant primaire peut s'exprimer à partir de la charge sur les électrodes primaires et de l'équation piézoélectrique (2.6):

$$q_p = -\int_{\Sigma} D_{p3} d\Sigma = -\left[C_{d1}V_p + l\bar{e}_{31}^{D}\left(\underline{A}_p(1-e^{-jX_1}) + \underline{B}_p(1-e^{jX_1})\right)\right]e^{j\omega t}$$

avec $C_{d1} = \varepsilon_{33}^{S} \dfrac{lL_1}{e}$: la capacité bloquée primaire

$$i_p = -q'_p = \left[\frac{V_p}{\underline{Z}_{C_{d1}}} + j\bar{e}_{31} l\omega \left[A_p \left(1 - e^{-jX_1}\right) + B_p \left(1 - e^{jX_1}\right) \right] \right] e^{j\omega t} \tag{2.27}$$

avec $\underline{Z}_{C_{d1}} = \dfrac{1}{j\omega C_{d1}}$: l'impédance de la capacité bloquée primaire

2.2.1.3 Prise en compte d'un segment passif

Il est possible d'imaginer l'ajout d'un segment de céramique non polarisé entre les deux segments primaire et secondaire ceci afin de modifier la distribution du potentiel électrique et le champ électrique résultant, comme présenté en figure 2.2.

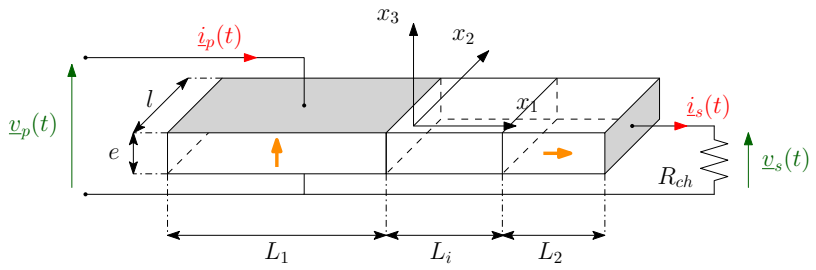


Fig. 2.2 Géométrie d'un transformateur de type Rosen avec une zone passive associé à une charge résistive quelconque

Lors de l'utilisation conventionnelle d'un transformateur piézoélectrique, la présence d'un segment passif entre primaire et secondaire n'offre pas d'intérêt particulier. En revanche, cette configuration s'avèrera intéressante pour la génération de plasma en permettant de modifier la distribution du potentiel en surface et le champ électrique environnant. Cet aménagement singulier sera discuté plus loin dans le chapitre. On prend l'hypothèse que cette absence de polarisation se caractérise simplement par des coefficients piézoélectriques et facteurs de couplages nuls.

$$d_{33} = d_{31} = 0 \quad \Rightarrow \quad k_{33} = k_{31} = 0 \tag{2.28}$$

ainsi les équations constitutives de cette zone peuvent être construites à partir des paramètres électromécaniques hors de l'axe de polarisation conventionnel (x_3) :

$$\begin{cases} S_{i1} = s_{11}^{E} T_{i1} \\ D_{i1} = \varepsilon_{11}^{T} E_{i1} \end{cases} \tag{2.29}$$

Au vu du fort coefficient de permittivité de la céramique et de l'absence d'excitation électrique dans le segment passif, le champ électrique peut être considéré négligeable devant celui mis en jeu dans le secondaire du transformateur, tout comme pour le primaire. Ainsi, un nouveau système d'expression du déplacement, du stress mécanique et du potentiel électrique pour tout le transformateur avec l'ajout de l'indice i caractéristique des grandeurs propre à la zone passive :

$$\begin{cases} U_{p1}(x,t) = (\underline{A}_p e^{j\underline{k}_1 x} + \underline{B}_p e^{-j\underline{k}_1 x})e^{j\omega t} \\ U_{i1}(x,t) = (\underline{A}_i e^{j\underline{k}_1 x} + \underline{B}_i e^{-j\underline{k}_1 x})e^{j\omega t} \\ U_{s1}(x,t) = (\underline{A}_s e^{j\underline{k}_2 x} + \underline{B}_s e^{-j\underline{k}_2 x})e^{j\omega t} \end{cases} \tag{2.30}$$

$$\begin{cases} T_{p1}(x,t) = [j\underline{k}_1 \hat{\underline{c}}^E_{11}(\underline{A}_p e^{j\underline{k}_1 x} - \underline{B}_p e^{-j\underline{k}_1 x}) + \dfrac{\bar{e}_{31} V_p}{e}]e^{j\omega t} \\ T_{i1}(x,t) = [j\underline{k}_1 \hat{\underline{c}}^E_{11}(\underline{A}_i e^{j\underline{k}_1 x} - \underline{B}_i e^{-j\underline{k}_1 x})]e^{j\omega t} \\ T_{s1}(x,t) = [j\underline{k}_2 \hat{\underline{c}}^D_{33}(\underline{A}_s e^{jvk_2 x} - \underline{B}_s e^{-j\underline{k}_2 x}) - \dfrac{\bar{h}_{33}}{\bar{\beta}^S_{33}} \underline{D}_s]e^{j\omega t} \end{cases} \tag{2.31}$$

$$\begin{cases} \phi_p(x,t) = \phi_i(x,t) = 0 \\ \phi_s(x,t) = \left(\underline{C}_s - \underline{D}_s x + \bar{h}_{33}(\underline{A}_s e^{jk_2 x} + \underline{B}_s e^{-jk_2 x})\right) e^{j\omega t} \end{cases} \tag{2.32}$$

Les conditions de continuité de la déformée et de contrainte mécanique s'appliquent à chaque interface du segment passif.

$$\begin{cases} \underline{U}_{p1}(x = -Li) = \underline{U}_{i1}(x = -Li) \\ \underline{U}_{i1}(x = 0) = \underline{U}_{s1}(x = 0) \\ \underline{T}_{p1}(x = -Li) = \underline{T}_{i1}(x = -Li) \\ \underline{T}_{i1}(x = 0) = \underline{T}_{s1}(x = 0) \end{cases} \tag{2.33}$$

Elles viennent s'ajouter au système de contrainte (2.23)

$$\begin{cases} (\underline{A}_p - \underline{A}_i)e^{-j\underline{k}_1 L_i} + (\underline{B}_p - \underline{B}_i)e^{j\underline{k}_1 L_i} = 0 \\ \underline{A}_i + \underline{B}_i - \underline{A}_s - \underline{B}_s = 0 \\ j\hat{\underline{c}}^E_{11}\underline{k}_1[(\underline{A}_p - \underline{A}_i)e^{-j\underline{k}_1 L_i} - (\underline{B}_p - \underline{B}_i)e^{j\underline{k}_1 L_i}] = -\dfrac{V_p \bar{e}_{31}}{e} \\ j\hat{\underline{c}}^E_{11}\underline{k}_1(\underline{A}_i - \underline{B}_i) - j\hat{\underline{c}}^D_{33}\underline{k}_2(\underline{A}_s - \underline{B}_s) + \dfrac{\bar{h}_{33}}{\bar{\beta}^S_{33}}\underline{D}_s = 0 \\ \bar{h}_{33}(\underline{A}_s + \underline{B}_s) + \underline{C}_s = 0 \\ j\hat{\underline{c}}^E_{11}\underline{k}_1(\underline{A}_p e^{-j\underline{k}_1 L_1} - \underline{B}_p e^{j\underline{k}_1 L_1}) = -\dfrac{V_p \bar{e}_{31}}{e} \\ j\hat{\underline{c}}^D_{33}\underline{k}_2(\underline{A}_s e^{j\underline{k}_2 L_2} - \underline{B}_s e^{-j\underline{k}_2 L_2}) - \dfrac{\bar{h}_{33}}{\bar{\beta}^S_{33}}\underline{D}_s = 0 \\ \bar{h}_{33}(\underline{A}_s e^{j\underline{k}_2 L_2} + \underline{B}_s e^{-j\underline{k}_2 L_2}) + \underline{C}_s - L_2(\dfrac{\underline{Z}_{load}}{\underline{Z}_{Cd_2}} + 1)\underline{D}_s = 0 \end{cases} \tag{2.34}$$

avec le vecteur des amplitudes complexes

$$\boldsymbol{X} = \begin{bmatrix} \underline{A}_p & \underline{B}_p & \underline{A}_i & \underline{B}_i & \underline{A}_s & \underline{B}_s & \underline{D}_s \end{bmatrix}^t$$

le vecteur d'excitation

$$\boldsymbol{V_{excit}} = \frac{V_p \bar{e}_{31}}{j\hat{\underline{c}}^E_{11} e}\begin{bmatrix} 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 \end{bmatrix}^t$$

et la matrice caractéristique :

$$\boldsymbol{M}(\omega) = \begin{bmatrix} e^{-j\underline{k}_1 L_i} & e^{j\underline{k}_1 L_i} & -e^{-j\underline{k}_1 L_i} & -e^{j\underline{k}_1 L_i} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 1 & -1 & -1 & 0 \\ -\underline{k}_1 e^{-j\underline{k}_1 L_i} & \underline{k}_1 e^{j\underline{k}_1 L_i} & \underline{k}_1 e^{-j\underline{k}_1 L_i} & -\underline{k}_1 e^{j\underline{k}_1 L_i} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -j\hat{\underline{c}}^E_{11}\underline{k}_1 & j\hat{\underline{c}}^E_{11}\underline{k}_1 & j\hat{\underline{c}}^D_{33}\underline{k}_2 & -j\hat{\underline{c}}^D_{33}\underline{k}_2 & -\dfrac{\bar{h}_{33}}{\bar{\beta}^S_{33}} \\ -\underline{k}_1 e^{-jX_1} & \underline{k}_1 e^{jX_1} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & j\hat{\underline{c}}^D_{33}\underline{k}_2 e^{jX_2} & -j\hat{\underline{c}}^D_{33}\underline{k}_2 e^{-jX_2} & -\dfrac{\bar{h}_{33}}{\bar{\beta}^S_{33}} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \bar{h}_{33}(1 - e^{jX_2}) & \bar{h}_{33}(1 - e^{-jX_2}) & L_2(1 + \dfrac{\underline{Z}_{load}}{\underline{Z}_{Cd_2}}) \end{bmatrix} \tag{2.35}$$

2.2.2 Validation du modèle

Ce modèle synthétise le comportement électro-mécanique globale d'un transformateur de type Rosen relié à une charge résistive de valeur quelconque. Pour en éprouver le domaine de validité, plusieurs essais sont effectués sur un large ensemble de transformateurs de la société STEMINC à différents niveaux de charge. Le transformateur utilisé pour l'étude présente les caractéristiques données tableau B.1. Tous les résultats de ces essais sont aussi croisés avec ceux de modélisations par éléments finis réalisées à l'aide du logiciel ANSYS®.

2.2.2.1 Évaluation de la variabilité des paramètres matériaux

La validation des modèles de générateurs piézoélectriques se pratiquant sur les générateurs de la société Steminc, une campagne d'évaluation de la disparité des valeurs de paramètres a été menée sur 40 transformateurs. Cette évaluation est réalisée à partir d'une caractérisation électrique petits signaux autour de leur fréquence de résonance du mode $\lambda/2$ ($\approx 55kHz$).

A la suite de cette campagne dont les résultats sont visibles en figure 2.3, les transformateurs présentent des capacités statiques primaire et secondaire très stables; Cela s'explique par la forte dépendance de ces paramètres à la géométrie et à la rectification du transformateur qui semblent bien maîtrisées. En revanche les paramètres de la chaîne motionnelle qui sont dépendants de la polarisation ne présentent pas la même stabilité. Des variations de plus de 8% voire de plus de 23% pour la résistance motionnelle ont pu être mesurées. Par conséquent les résultats des modèles seront à évaluer au regard de cette disparité des transformateurs réels.

2.2.2.2 Modélisation par éléments finis

Afin de conforter la pertinence des résultats et le domaine de validité du modèle analytique, un modèle par éléments finis en 3D est réalisé sous le logiciel ANSYS APDL. Il reprend les hypothèses de libres contraintes mécaniques aux extrémités, d'alimentation harmonique du primaire et de masse négligeable des électrodes comme pour le modèle analytique précédent.

Les matrices de paramètres du matériau PZT sont issues des données fournies par le fabricant et collectées dans le tableau B.1 en annexe B. L'angle de perte mécanique $\tan\phi_m$ est une composante dépendante du mode de résonance. Il doit être déduit expérimentalement depuis un relevé de l'admittance primaire, les données constructeur ne permettant pas de l'évaluer. Il se calcule depuis les fréquences quadrantales f_1

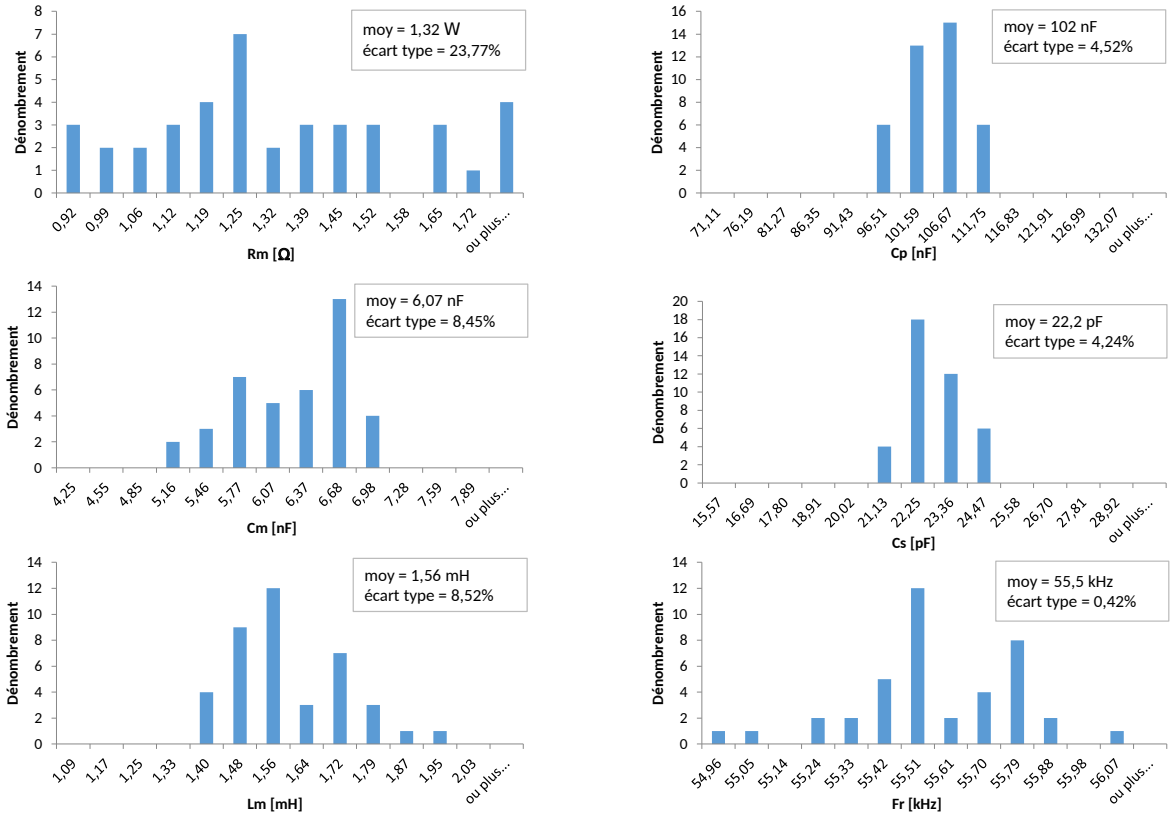


Fig. 2.3 Dénombrement des 5 paramètres issus de la caractérisation électrique de 40 transformateurs piézoélectriques SMMTF55P6S50 à leur mode de résonance $\lambda/2$ à secondaire ouvert

et f_2 pour lequel la phase vaut $\varphi = \pm\frac{\pi}{4}$ autour de la fréquence de résonance. Son expression prend alors la forme $Q_m = \dfrac{1}{\tan\phi_m} = \dfrac{\sqrt{f_1 f_2}}{f_2 - f_1}$. Pour ces essais, il est pris à $\tan\phi_m = 0.33\%$, soit $Q_m =\approx 300$, valeur avoisinant les facteurs de qualité des transformateurs qui seront utilisés par la suite.

Le facteur de qualité Q_m, et les phénomènes d'amortissement qui en découlent, s'intégre sous ANSYS par l'intermédiaire des coefficients d'amortissement de Rayleigh α et β, respectivement image de l'inertie et de la raideur du système.

Ils peuvent être définis par les équations suivantes [119] :

$$\begin{aligned} \alpha &= \frac{2\pi}{Q_m}\frac{f_1 f_2}{f_1 + f_2} \\ \beta &= \frac{1}{2\pi Q_m}\frac{1}{f_1 + f_2} \end{aligned} \tag{2.36}$$

avec f_1 et f_2 les deux fréquences quadrantales du système. Ces coefficients sont fixés à (600,0) correspondant aux valeurs classiquement rencontrées sur les transformateurs qui seront utilisés.

La modélisation se décompose en deux étapes. Le logiciel ne permettant pas de réaliser une étude modale sur un transformateur en charge, deux premières simulations modales sont réalisées afin d'identifier les modes d'élongation longitudinaux souhaités et leurs fréquences de résonance associées.Par la suite, une étude harmonique, fixant toutes les conditions de fonctionnement (niveau d'alimentation et résistance de charge) est menée pour une série de points dans cet intervalle de fréquence. Le point de résonance est finalement identifié à partir d'une recherche du maximum de potentiel électrique parmi les différentes valeurs de fréquences simulées.

2.2.2.3 Mesures électriques

Potentiel de surface Des essais à faible tension ($V_p = 0.7V_{rms}$), sur un transformateur multicouche sont réalisés à partir d'un dispositif de mesure de potentiel électrique de surface [120][63] présenté en figure 2.4. Il se compose de 10 électrodes placées en vis à vis du transformateur afin de réaliser une cartographie du potentiel électrique de surface. Une fois le transformateur alimenté, une carte d'acquisition vient recueillir les valeurs de crête du courant débité dans chacune de ces électrodes, image du potentiel électrique en vis à vis de celles-ci. Chacune de ces valeurs est moyennée sur 10 acquisitions chacune décomposée en 500 points d'échantillonnage relevés à une fréquence de $10kHz$. Ensuite, l'opération est renouvelée en déplaçant la position du transformateur piézoélectrique afin d'affiner la mesure. Ces relevés ont été menés pour différents niveaux de charge aux fréquences de résonance des modes $\lambda/2$ et λ et sont illustrés sur la figure 2.6.

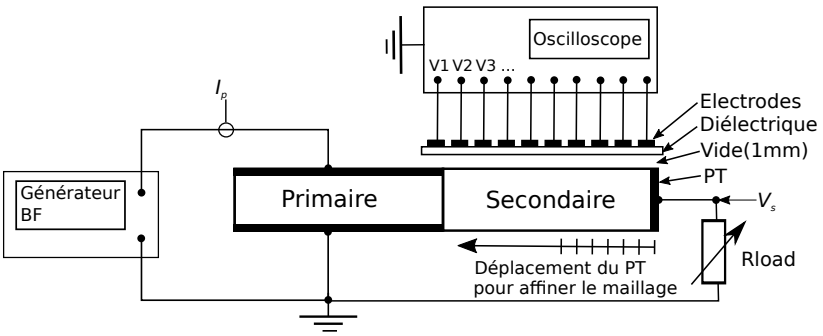


Fig. 2.4 Dispositif de mesure capacitive du potentiel électrique de surface d'un transformateur piézoélectrique [121]

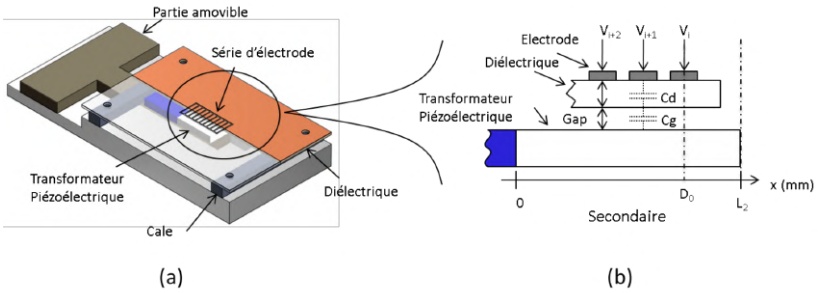
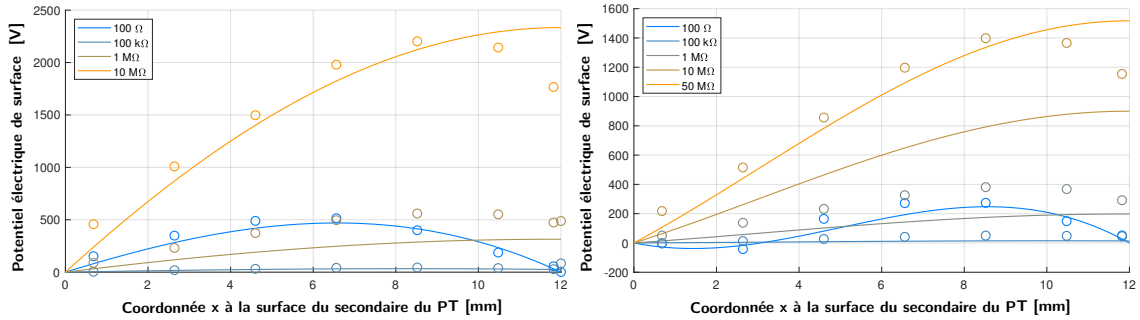


Fig. 2.5 Dispositif pour la mesure de potentiel électrique de surface par couplage capacitif [63]

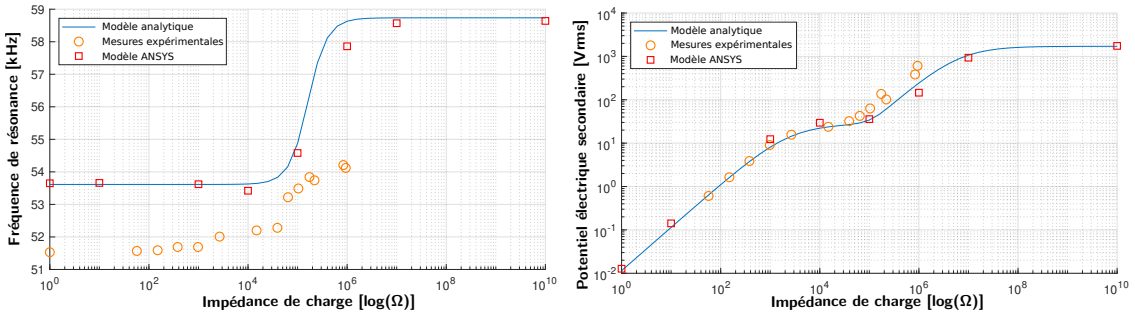


(a) mode $\lambda/2$ (b) mode λ

Fig. 2.6 Comparaison entre les potentiels électriques théoriques (traits pleins) et expérimentaux (points) à la surface du PT SMMTF55P6S50 alimenté à $Vp = 0.7V_{rms}$ pour différente valeurs de charge résistive

Les relevés du potentiel électrique de surface de la figure 2.6 sont réalisés sur un transformateur multicouche SMMTF55P6S50 de la société Steminc. Comprenant seulement 11 couches à son primaire, soit 6 paires d'électrodes, le modèle de transformateur lui est appliqué en intégrant un gain de 6 à la tension d'entrée. Différentes valeurs de charge résistive ont été appliquées allant de 100Ω à $10M\Omega$. La première observation entre la simulation et l'expérience est la chute de potentiel à l'extrémité du secondaire. Ce phénomène est raisonnablement imputable à un effet de bord [120] qui ne sera pas plus détaillé dans ce chapitre. Dans les cas limites, proche du court-circuit à 100Ω et du circuit ouvert à $10M\Omega$ (étendue à $50M\Omega$ au mode λ), les courbes présentent une bonne concordance. En revanche, il apparait un léger décalage sur les valeurs intermédiaires d'impédance de charge entre les comportements théoriques et expérimentaux. Le transformateur atteint un comportement similaire à celui à vide pour des valeur d'impédance plus faible en expérimental qu'en théorie. Cette différence est également observable sur les figures 2.7b et 2.8.

Grandeurs électriques Les valeurs de courant primaire, fréquence et tension secondaire sont relevées pour le mode $\lambda/2$, mode de fonctionnement privilégié pour ce PT. Pour la mesure au secondaire, au vu des très hauts niveaux de tension pour les valeurs de charge les plus élevées, des sondes haute impédance ($200k\Omega$ et $1M\Omega$) ont été utilisées afin de minimiser leur impact sur l'impédance de charge.



(a) fréquence de résonance (b) Tension à l'extrémité secondaire

Fig. 2.7 Relevé de la tension secondaire et de la fréquence de résonance d'un PT multicouche SMMTF55P6S50 alimenté à $Vp = 0.7V_{rms}$ à la résonance de son mode $\lambda/2$ pour différentes valeurs de charge résistive

L'évolution de la fréquence de résonance et de la tension secondaire en fonction de la charge résistive sont relevées et simulées pour un transformateur au mode $\lambda/2$ et représentées sur la figure 2.7. Il subsiste un écart relatif de la fréquence de résonance de $5,7\%$ dans le cas à secondaire ouvert entre expérience et simulation. Cet écart ne peut pas s'expliquer uniquement par la disparité des performances de transformateurs présenté en figure 2.3. Il pourrait être imputable à une méconnaissance de la cartographie exacte de polarisation du transformateur entraînant des variations locales de propriétés matériaux entre simulation et système réel notamment aux extrémités et à l'interface primaire-secondaire dues au protocole de fabrication.

Cette imprécision pourrait également expliquer le léger décalage observé sur les caractéristiques fonction de l'impédance de charge de la figure 2.7b.

Les relevés de la figure 2.8 sont effectués dans les mêmes conditions que précédemment pour des valeurs d'impédance de charge allant de 1Ω à $1M\Omega$. Ils rendent compte du comportement électrique global du transformateur. Comme pour la tension de sortie, modèle et système réel présentent une excellente cohérence pour de faibles valeurs d'impédance et un décalage de comportement pour de plus hautes valeurs d'impédance de charge.

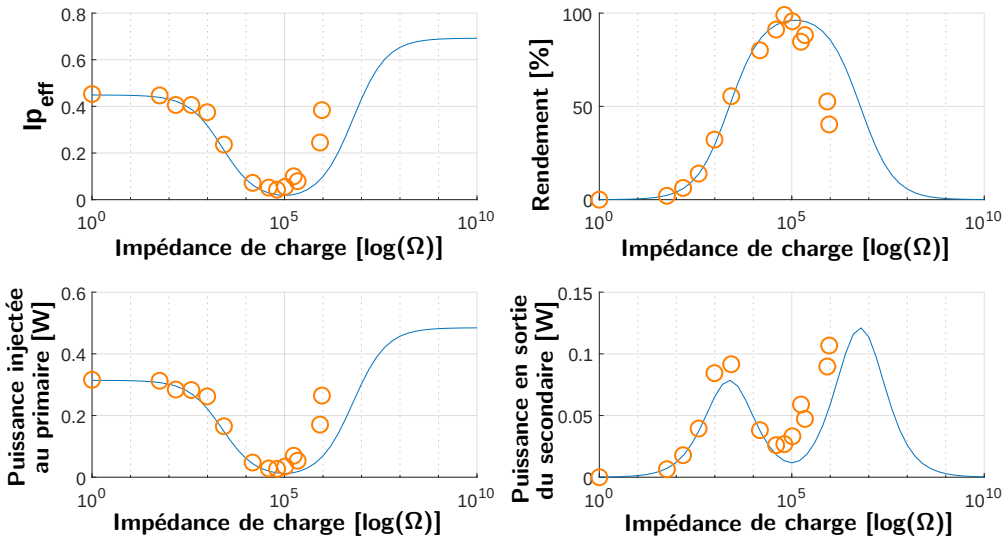


Fig. 2.8 Récapitulatif des grandeurs électriques absorbées au primaire du PT alimenté à sa fréquence de résonance pour $V_p = 0,7V_{rms}$

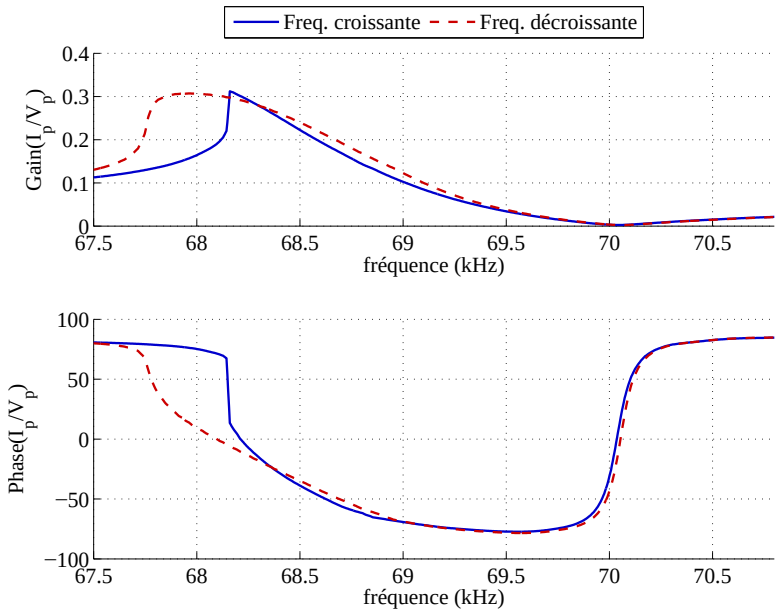


Fig. 2.9 Comparaison de l'admittance d'entrée d'un transformateur CMT-Noliac à Vp = 2V en fréquence croissante et décroissante [116]

2.2.3 Discussion

Les essais menés par Nadal [116] ont mis en évidence le phénomène d'hystérésis observable sur les courbes d'admittance au primaire du transformateur. C'est le balayage en fréquence croissante et décroissante pour des tensions d'alimentation primaires supérieures à $1V_{rms}$ qui révèle ce comportement non linéaire dans les cas faiblement amortis. Ce phénomène non-linéaire est nettement visible sur la figure 2.9 dans le cas d'une alimentation de $2V_{rms}$. Se situant dans le domaine des petites oscillations et sous une tension d'alimentation faible (< 1V), les essais entrepris et illustrés sur les figures 2.6 et 2.7 sont considérés cohérents avec l'hypothèse d'un comportement linéaire. Toutefois, il persiste un erreur notable sur l'estimation de la fréquence qui reste courante dans ce type de modélisation. De plus, un décalage en impédance de charge se dénote pour les essais à haute impédance. Ces différences n'étant pas visibles sur les cas à faible impédance, l'hypothèse d'une influence des sondes de tension, d'impédances capacitives proches des niveaux de celle des charges résistives pourraient expliquer ces écarts. Quoi qu'il en soit le modèle analytique est considéré suffisamment pertinent pour rendre compte du comportement du transformateur en charge, pour des valeurs de résistances s'étalant sur plusieurs ordres de grandeur.

2.3 Étude du comportement thermique

Si plusieurs travaux ont eu pour objectif la modélisation thermique d'une céramique piézoélectrique simple (avec plus ou moins de précision), il n'existe pratiquement aucuns travaux sur un dispositif plus complexe tel qu'un transformateur. On distingue différentes sources de pertes au sein d'une céramique piézoélectrique[122], cependant une fois mis en vibration autour de l'une de ses fréquences de résonance, les frictions mécaniques internes constituent la principale source d'échauffement [123], [101]. Afin de borner l'utilisation du transformateur à une zone de fonctionnement non destructive, il faut en définir le comportement thermique. Les échauffements locaux au-delà de la température de Curie représentent la première source de vieillissement par dépolarisation de la céramique. En outre, dans le cas d'une utilisation comme générateur plasma en surface du secondaire du transformateur, il apparait nécessaire de s'assurer que l'activité de la décharge ne contribue pas elle-même à l'échauffement. Une connaissance approfondie du comportement thermique du transformateur pourrait permettre de discriminer la contribution du plasma.

Des modèles reposant sur des procédés itératifs développés par [124] ont permis d'aborder la modélisation de la distribution thermique en y intégrant la dépendance

des paramètres à la température. Cependant une première approximation et compte tenu des faibles variations de paramètres électromécaniques de la céramique, elles sont négligées pour les domaines de températures considérées [125] [126]. Le modèle de diffusion thermique sera développé à partir d'un profil de puissance interne à la céramique lui-même indépendant du profil thermique. L'identification des pertes et du profil de température permettra pour la suite de discriminer la part d'échauffement induite par la décharge plasma en surface.

Rappelons que l'approche thermodynamique permet d'établir les expression des coefficients électriques et mécaniques sous l'hypothèse d'un système adiabatique et isotherme, telles que:

$$\begin{aligned} s_{ij}^{E,\sigma} &= s_{ij}^{E,\theta} - \theta \alpha_i^E \alpha_j^E / \rho c_p^E \\ d_{im}^{\sigma} &= d_{im}^{\theta} - \theta \alpha_i^E p_m^T / \rho c_p^E \\ \varepsilon_{mn}^{T,\sigma} &= \varepsilon_{mn}^{T,\theta} - \theta p_m^T p_n^T / \rho c_p^E \end{aligned} \tag{2.37}$$

avec σ l'entropie, θ la température, α_i^E le coefficient d'expansion thermique, $s_{ij}^{E,\theta}$ la compliance à champ électrique et température constante, d_{im}^{θ} le coefficient piézoélectrique, c_p^E la capacité thermique massique, p_m^T le coefficient pyroélectrique, $\varepsilon_{mn}^{T,\theta}$ la constante de permittivité.

L'hypothèse d'invariance des coefficients en fonction de la température revient à négliger l'influence du terme soustractif à ces relations

2.3.1 Modèle du comportement thermique fonction de la charge

Afin d'établir le modèle thermique efficace, deux hypothèses initiales majeures sont prises en compte :

- Au vu des faibles épaisseur et largeur des transformateurs employés, les vitesses de diffusion sur les sections transversales peuvent être considérées bien supérieures à la dynamique thermique globale du PT. Ainsi, les températures peuvent être prises homogènes sur les sections transversales du transformateur. Cette hypothèse se confirmera ultérieurement sur les relevés de la figure 2.19.

- Le milieu de diffusion au sein de la céramique est considéré isotrope. Ainsi, les coefficients de diffusion au primaire et secondaire sont considérés égaux.

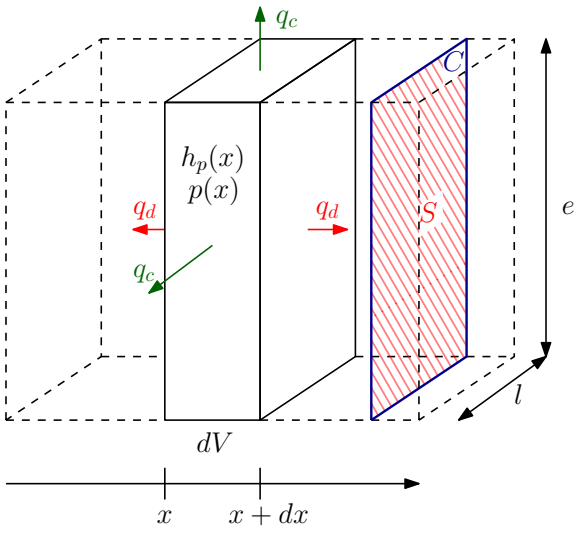


Fig. 2.10 Bilan thermique sur un volume élémentaire de céramique

Le bilan énergétique pour un élément de volume présenté en figure 2.10 prend la forme suivante :

$$\frac{\partial h_p(x,t)}{\partial t} = p(x) - \nabla \vec{q} \tag{2.38}$$

avec : h_p l'enthalpie volumique en $[J/m^3]$, p la chaleur volumique générée en $[W/m^3]$ et $\vec{q}$ le flux thermique aux frontières du domaine en $[W/m^2]$.

Les températures étant considérées suffisamment faibles pour ne pas dénaturer le matériau, l'enthalpie se retrouve directement proportionnelle à la température θ fonction de la densité ρ et de la capacité thermique massique c_p

$$h_p = \rho c_p \theta \tag{2.39}$$

Trois types d'échange thermique se distinguent aux frontières du volume élémentaire dV du schéma de principe 2.10. Sur les faces transversales, le volume élémentaire échange par conduction avec le reste de la céramique et sur les faces latérales, il échange par convection et rayonnement avec son environnement.
Les échanges par conduction $\vec{q}_d$ s'expriment à partir du coefficient de conduction λ et prennent la forme suivante

$$\vec{q}_d = -\lambda \vec{\nabla} \theta \tag{2.40}$$

Sur les surfaces latérales, le flux thermique se décompose en un flux de convection et un flux de rayonnement prenant respectivement les formes simplifiées $h(\theta(x) - \theta_a)$ et

$\sigma\varepsilon(\theta^4(x) - \theta_a^4)$ avec h le coefficient de convection, σ la constante de Stefan-Boltzmann, ε l'émissivité de la céramique et θ_a la température ambiante. Il est courant [123] de linéariser le terme de perte par rayonnement pour de faibles écarts thermiques vis à vis de l'environnement. Ainsi les pertes par convection et rayonnement peuvent se regrouper sous un même coefficient linéarisé que l'on nommera $h' = h + \sigma\varepsilon\theta_a^3$ et tel que

$$\vec{q_c} = h'(\theta(x,t) - \theta_a)\vec{n} \tag{2.41}$$

avec $\vec{n}$ la normale en tout point de la surface libre.

Ainsi, intégrée sur le volume élémentaire $dV = Sdx$,l'équation de la chaleur (2.38) prend la forme

$$Sdx\rho c_p \frac{\partial\theta}{\partial t}(x,t) = Sdxp(x) - \iiint_{dV} \nabla\vec{q}\, dV \tag{2.42}$$

avec S l'aire de circonférence C de la section transversale du barreau céramique.
Par application du théorème d'Ostrograsky sur le volume élémentaire dV et son contour fermé $d\Sigma$, le terme de perte de l'équation (2.42) devient

$$\iiint_{dV} \nabla\vec{q}\, dV = \iint_{d\Sigma} \vec{q}.\vec{n}d\vec{\Sigma} = \iint_{d\Sigma_{transv}} \vec{q_d}.\vec{n}d\vec{\Sigma} + \iint_{d\Sigma_{latéral}} \vec{q_c}.\vec{n}d\vec{\Sigma} \tag{2.43}$$

Finalement d'après 2.40 et 2.41, l'équation de chaleur 2.42 prend la forme

$$\rho c_p \frac{\partial\Delta\theta}{\partial t}(x,t) = p(x) + \lambda\frac{\partial^2\Delta\theta}{\partial x^2}(x,t) - \frac{C}{S}h'\Delta\theta(x,t) \tag{2.44}$$

2.3.1.1 Identification des paramètres thermiques

Afin d'identifier les trois paramètres thermiques précédents (capacité thermique c_p, coefficient de conduction λ et coefficient mixte de perte h'), des essais sont menés sur des échantillons de céramique. Ces échantillons, visibles en figure 2.11, possèdent les mêmes propriétés matériau (tableau B.1) que le SMMTF55P6S50. Les profils thermiques sont relevés à l'aide d'une caméra infrarouge (FLIR SC655, 320×256 pixel) orientée sur une surface latérale non électrodée du transformateur afin de mesurer les émissions infra-rouge directement à la surface de la céramique sans subir la faible émissivité IR des électrodes en argent.

L'étude thermique débute par une analyse dynamique abordée avec un relevé de température sur 500s, réalisé sur cet échantillon alimenté à $15V_p$ à la fréquence de résonance du mode $\lambda/2$ (69-70kHz). Sa température moyenne sur toute la surface latérale est relevée en figure 2.12. Son comportement se révèle être assimilable à une réponse du 1er ordre de constante de temps thermique $\tau_{therm} \approx 80s$.

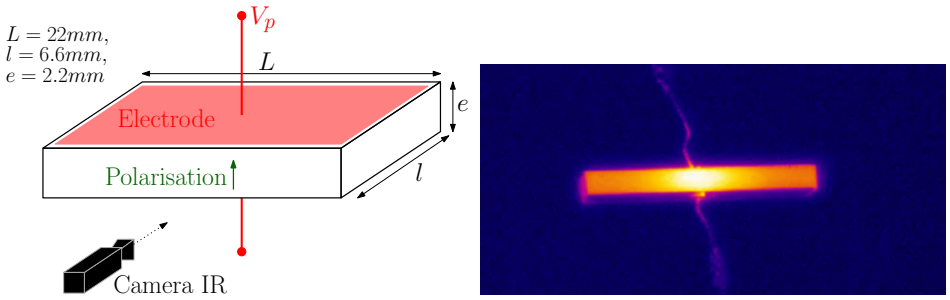


Fig. 2.11 Échantillon de céramique utilisé pour l'identification des paramètres thermiques, accompagné d'un exemple illustratif de relevé thermique infra-rouge

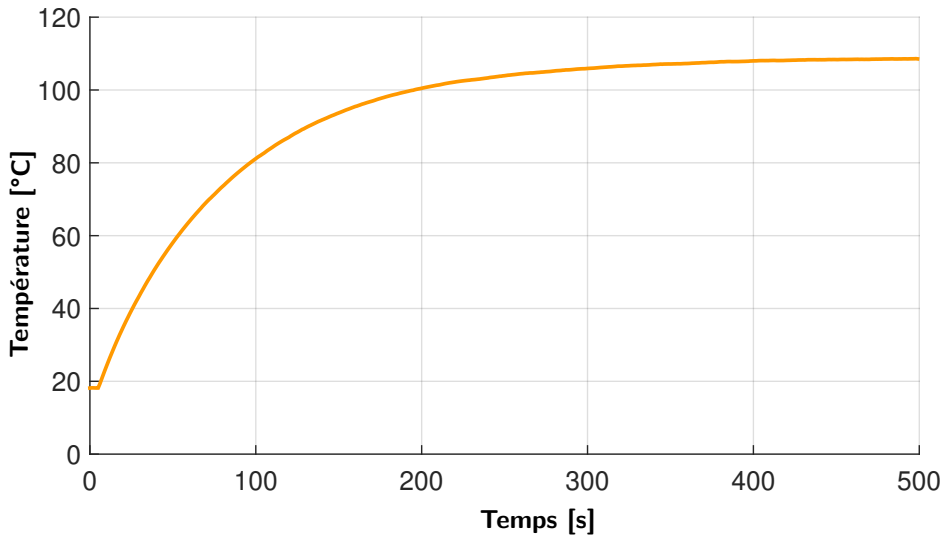


Fig. 2.12 Évolution de la température moyenne dans l'échantillon de céramique excité à $15V_p$ à la fréquence de résonance de son mode $\lambda/2$ (70-69kHz)

2.3.1.2 Capacité thermique massique

Pour un instant t suffisamment court ($t << \tau_{therm}$), les dynamiques des phénomènes de diffusion et convection peuvent être négligées. L'équation de diffusion (2.44) se simplifie autour de l'instant initial par l'expression

$$\rho c_p \frac{\partial \Delta\theta}{\partial t}(x,t) = p(x) \tag{2.45}$$

Par conséquent, en considérant la céramique à température ambiante à l'instant initial, l'équation de diffusion (2.45) se linéarise autour de l'instant δt proche de l'instant initial

$$\rho c_p \Delta\theta(x, \delta t) = p(x)\delta t \tag{2.46}$$

A cet instant, le profil thermique est donc l'image de la répartition des sources thermiques internes à la céramique. La capacité massique du matériau peut alors être calculée depuis un bilan de puissance sur l'intégralité de l'échantillon à partir de la mesure de puissance électrique active injectée dans la céramique, puisque sans autre moyen de dissipation, l'intégralité de la puissance absorbée est convertie en chaleur. Intégrée sur tout l'échantillon, l'expression (2.46) devient

$$V\rho c_p \Delta\theta_{moy}(\delta t) = P\delta t \tag{2.47}$$

avec θ_{moy} la température moyenne de l'échantillon et P la puissance active injectée dans l'échantillon de volume V. En reprenant les résultats de l'essai présenté figure 2.12, l'échantillon de céramique est alimenté à sa fréquence de résonance correspondant à un déphasage courant/tension primaire nulle ($\phi_{V_p/I_p} = 0$) soit $f \approx 70kHz$ à $V_p = 15V_p$ et $I_p = 306mA_p$, soit une puissance efficace $P = 2,3W$. Ainsi au bout de $\delta t = 5s$ d'essai, la température moyenne s'est élevée de $\Delta\theta_{moy} = 4,76K$. Depuis l'expression (2.47), pour une densité de $\rho = 7900kg/m^3$, la capacité thermique massique peut être estimée à $c_p = 477J/kg/K$, ce qui est cohérent avec les valeurs de $420J/kg/K$ classiquement utilisées [123].

En supposant les paramètres matériau invariants dans la plage de température de ces essais et en connaissant la densité et la capacité massique du matériau, la répartition des puissances thermiques internes de la céramique peuvent être évaluées expérimentalement depuis un relevé du profil thermique à $5s$ d'après la relation 2.46, comme présenté en figure 2.13 pour un échantillon de céramique excité à $15V_p$.

La densité de puissance se retrouve naturellement centrée dans l'échantillon.

2.3.1.3 Coefficient de convection

Les termes de convection et de rayonnement s'unissent sous un même coefficient mixte noté h'. En régime stationnaire, l'équation de chaleur (2.44) se simplifie

$$0 = p(x) + \lambda \frac{\partial^2 \Delta\theta}{\partial x^2}(x, t) - \frac{C}{S} h' \Delta\theta(x, t) \tag{2.48}$$

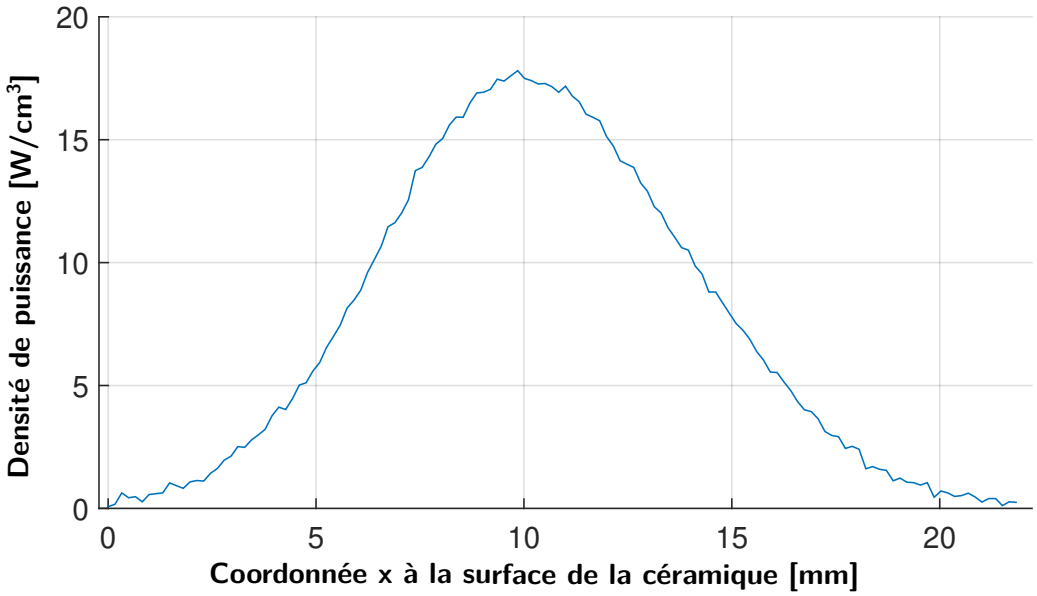


Fig. 2.13 Mesure de la densité de puissance thermique au sein d'une céramique PZT excitée à $15V_p$ à la fréquence de résonance de son mode $\lambda/2$ ($\approx 70kHz$) depuis un relevé thermique à 5s

Un bilan de puissance sur le transformateur complet mène donc à l'équilibre entre chaleur générée au cœur de la céramique et chaleur dissipée par convection et rayonnement à la surface de la céramique se traduisant par l'équation suivante

$$\int_V p(x)dV = \int_V \frac{2(l+e)}{le} h'\Delta\theta(x,t)dV$$

$$P = V\frac{2(l+e)}{le} h'\Delta\theta_{moy}(t) \tag{2.49}$$

Ainsi, toujours dans le cas de l'échantillon de céramique alimentée à sa fréquence de résonance ($\phi_{V_p/I_p} = 0$) à $V_p = 15V_p$ et $I_p = 306mA_p$, en régime stabilisé, la température s'est élevée de $\Delta\theta_{moy} = 90,6K$. Ainsi, d'après l'expression (2.49), le coefficient convectif/radiatif vaut $h' = 32,7W/m^2/K$, ce qui s'avère cohérent mais légèrement élevé en comparaison des coefficients de convection à l'air libre classiquement fixés entre 5 et $30W/m^2/K$

2.3.1.4 Identification du coefficient de diffusion

Comme le montre l'équation d'équilibre thermique (2.49), le coefficient de diffusion n'a pas d'impact sur la température moyenne globale de la céramique. Le coefficient

de diffusion régit la répartition du profil thermique autour des différentes sources de chaleur.
Son identification est rendue possible à partir de l'équation de diffusion thermique dans la céramique (2.48) à l'aide d'une boucle d'optimisation jouant sur le coefficient de diffusion pour faire correspondre au mieux le modèle et le relevé du profil thermique. Sur la figure 2.14 est illustrée l'issue de l'identification de λ sur l'échantillon et la distribution de température sur sa longueur. Ainsi, le coefficient de diffusion identifié vaut $\lambda = 5,02 W.m^{-1}.K^{-1}$.

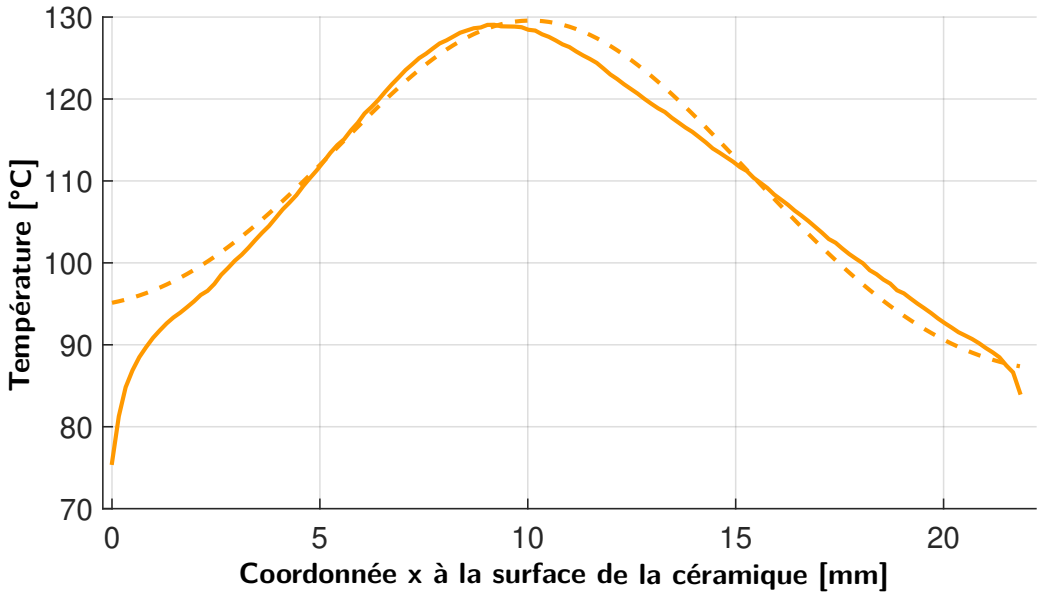


Fig. 2.14 Profil thermique en régime thermique stabilisé relevé sur l'échantillon alimenté à $V_p = 15V_p$ à sa fréquence de résonance (trait plein) et modèle de diffusion issu de l'identification du coefficient de diffusion (pointillé)

2.3.1.5 Coefficients de perte mécaniques et diélectriques

Trois sources de chaleur internes principales sont à distinguer pour les céramiques piézoélectriques [123]:

- les frictions internes correspondant aux pertes du cycle de déformation mécanique
- les pertes diélectriques correspondant aux pertes du cycle électrique
- les pertes piézoélectriques correspondant aux pertes par couplage électromécanique

Ces pertes peuvent se déduire de l'expression du travail interne de la céramique :

$$dW = TdS + EdD \tag{2.50}$$

Le travail dW se décompose en un terme mécanique fonction de la déformée dS et d'un terme électrique fonction de l'induction électrique dD. La composante piézoélectrique, étant propre au couplage électromécanique, se retrouve conjointement dans les deux termes. L'ajout des tangentes d'angle de pertes mécanique $tan\phi_m$ et électrique $tan\delta$ présenté à la section précédente dans les équations constitutives de la piézoélectricité, a pour effet d'introduire des hystérésis dans les cycles TdS et EdD dont l'aire correspond à ces pertes. La densité de puissance globale P est obtenue par dérivation temporelle du travail (2.50).

$$P = \frac{\partial W}{\partial t} = T\frac{\partial S}{\partial t} + E\frac{\partial D}{\partial t} \tag{2.51}$$

La densité volumique de puissance des pertes correspond alors à la part efficace de cette puissance interne et prend alors les expressions suivantes respectivement au primaire et au secondaire.

$$\begin{aligned} p_{mp}(x) &= \frac{1}{2}\,\mathrm{Re}(j\omega T_{1p}(x){S_{1p}}^{*}(x)) + \frac{1}{2}\,\mathrm{Re}(j\omega E_{3p}(x){D_{3p}}^{*}(x)) \\ p_{ms}(x) &= \frac{1}{2}\,\mathrm{Re}(j\omega T_{1s}(x){S_{1s}}^{*}(x)) + \frac{1}{2}\,\mathrm{Re}(j\omega E_{1s}(x){D_{1s}}^{*}(x)) \end{aligned} \tag{2.52}$$

En première approximation, à la résonance les pertes peuvent être imputées majoritairement à la force de friction dans le matériau et donc à la déformée [123]. Ainsi les équations de densité de puissance peuvent être simplifiées ainsi

$$\begin{aligned} p_{mp}(x) &= \frac{1}{2}j\omega tan(\phi_m)\hat{\underline{c}}^{E}_{11}|S_1(x)|^2 \\ p_{ms}(x) &= \frac{1}{2}j\omega tan(\phi_m)\hat{\underline{c}}^{D}_{33}|S_1(x)|^2 \end{aligned} \tag{2.53}$$

2.3.2 Validation du modèle sur transformateur complet

A présent que les constantes du modèle thermique sont identifiées et afin d'éprouver le modèle thermique, des essais expérimentaux sur un transformateur monocouche (SMSTF74P6S8) de la société Steminc (matériau aux propriétés similaires à l'échantillon de céramique employé précédemment) sont entrepris. Ces relevés suivent la même procédure que celle appliquée sur les échantillons de céramique précédent. Des relevés thermiques pour différents niveaux de charge sont alors effectués.

2.3.2.1 Densité de puissance

Des relevés thermiques après 5 secondes d'allumage (temps bien inférieur au temps de réponse thermique du matériau de $80s$), sont effectués sur le transformateur pour différents niveaux de charge résistive. A partir des différents paramètres thermiques identifiés précédemment, la distribution de densité de puissance est calculée pour les niveaux de charge présentés en figure 2.16 : $0,5\Omega$, $1k\Omega$, à vide. Ils sont comparés au modèle de pertes théorique basé sur le calcul de la déformée présenté en figure 2.15 à l'aide du modèle électromécanique analytique.

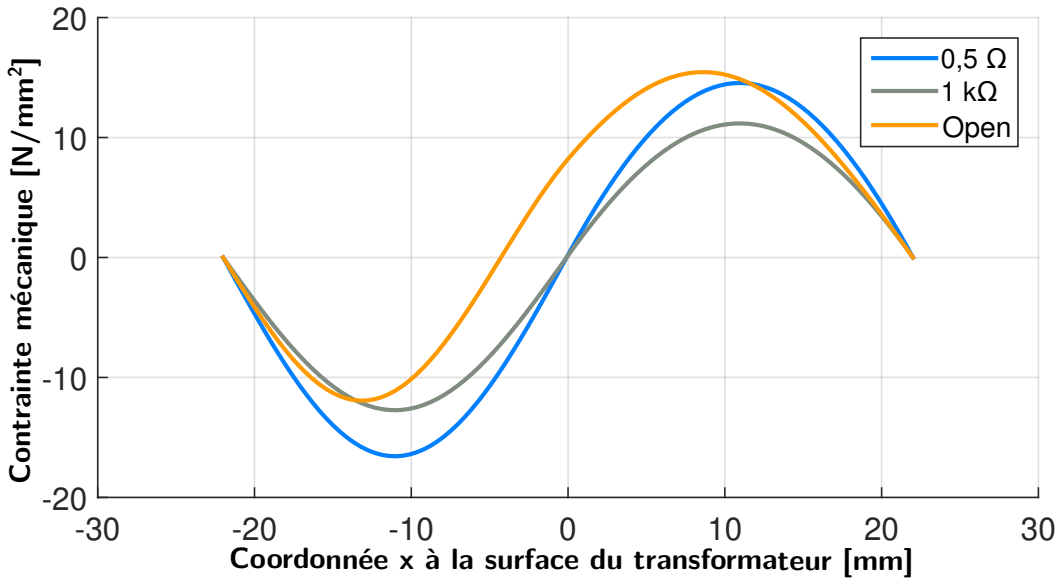


Fig. 2.15 Densité de contrainte mécanique le long du PT Rosen au mode de résonance λ pour 10,6Vrms d'alimentation et différentes impédances de charge

Le modèle en figure 2.17 retrouve, pour les cas $0,5\Omega$, $1k\Omega$, une bonne approximation du profil et de l'amplitude de la densité de puissance le long du transformateur en figure 2.16. Notamment, il met en évidence l'impact de la différence de raideur entre les parties primaire et secondaire sur le niveau de pertes. Malgré une répartition équitable du niveau de contrainte entre les parties primaire et secondaire (cf : fig. 2.15), le coefficient de raideur plus élevé du primaire suivant l'axe (x_1) entraîne un plus fort niveau de pertes au primaire qu'au secondaire. Pour le cas ouvert, il subsiste un fort écart d'amplitude de densité de puissance entre modèle et expérience provenant d'une source que le modèle ne prend pas en compte.

Une origine possible à l'imprécision du modèle, plus particulièrement au primaire, pourrait s'expliquer par des sources thermiques non prises en compte. A ce propos,

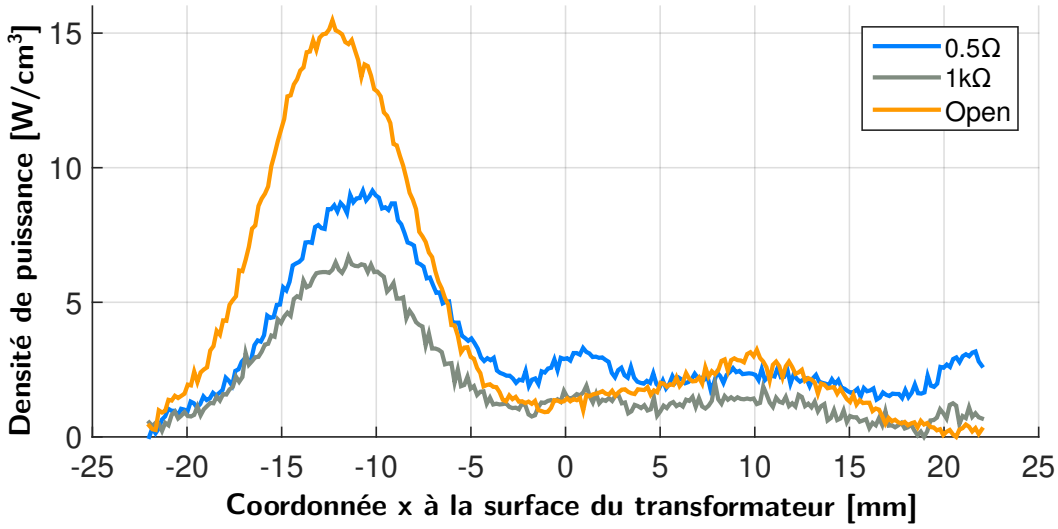


Fig. 2.16 Mesure de la densité de puissance thermique au sein d'un PT Rosen au mode de résonance λ pour 10,6Vrms d'alimentation et différentes impédances de charge

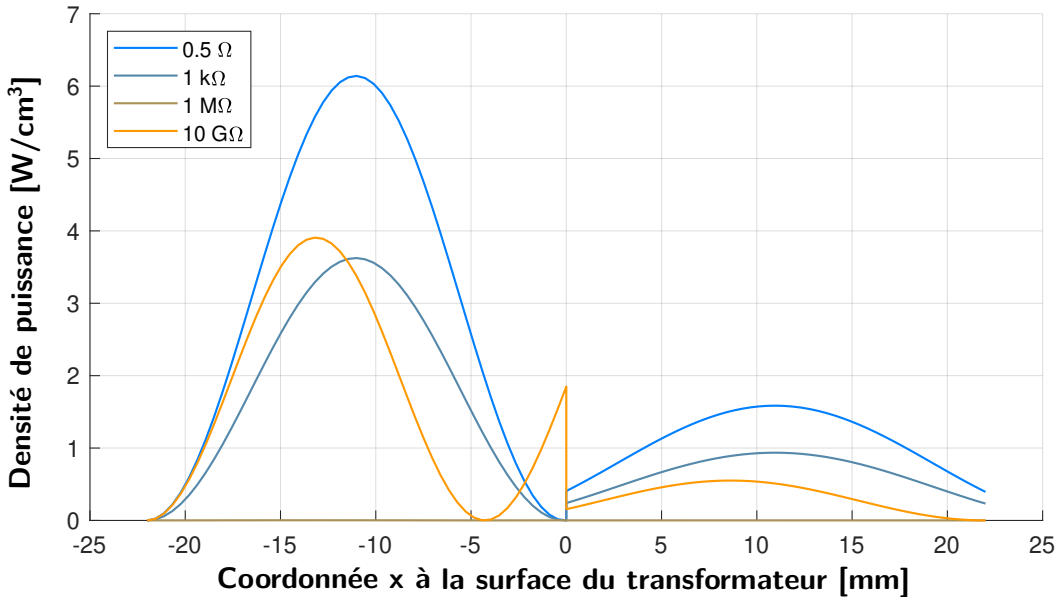


Fig. 2.17 Calcul de la densité de puissance thermique au sein d'un PT Rosen au mode de résonance λ pour 10,6Vrms d'alimentation et différentes impédances de charge à partir du modèle électromécanique

la conduction et l'échauffement au point de soudure des électrodes peuvent s'avérer une source singulière. Ainsi dans [127] ce point est modélisé. Toutefois, dans notre cas l'essai en circuit ouvert admet un courant primaire de $244mA_p$ tandis qu'il est de $206mA_p$ pour l'essai à $0,5\Omega$. Une si faible différence ne permet pas de justifier à

elle seule l'écart des températures observé. Une autre explication pourrait se trouver dans les phénomènes non-linéaires couplés, modifiant simultanément les paramètres électriques, mécaniques et électro-mécaniques du matériau suivant la température. L'identification des variations de paramètres en fonction de la température requiert une étude très spécifique. Celle-ci ne constituant pas l'objectif de ce travail de thèse, le modèle thermique n'est pas approfondi en ce sens et son élaboration au premier ordre permettra tout de même d'évaluer convenablement le comportement du transformateur en fonctionnement.

2.3.2.2 Profil thermique en régime établi

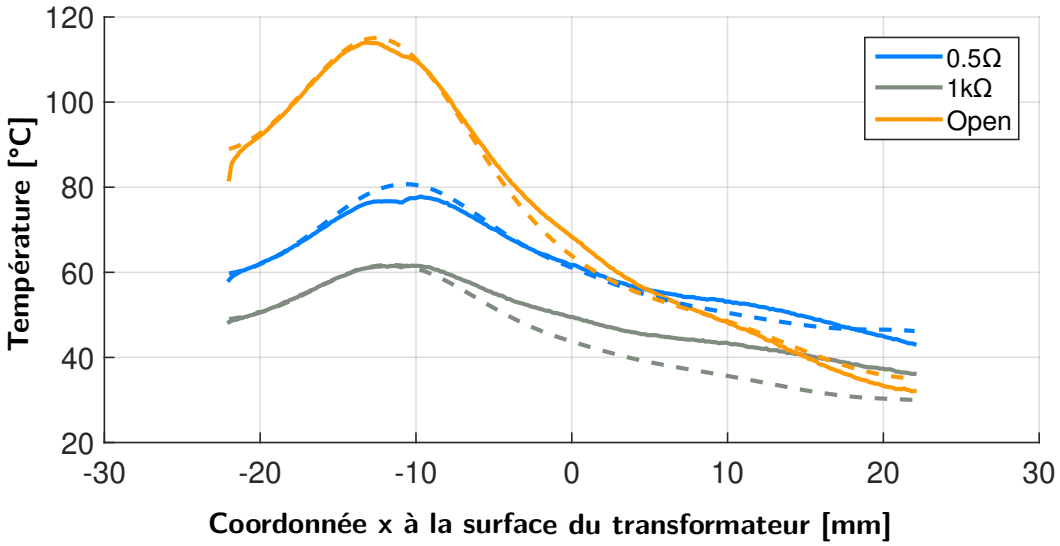


Fig. 2.18 Comparaison du profil thermique expérimental d'un PT Rosen au mode de résonance λ pour 10,6Vrms d'alimentation en régime stationnaire (ligne pleine) vis à vis de celui issu du modèle de diffusion thermique (ligne en pointillé) pour différentes impédances de charge

Des relevés sont effectués dans les mêmes conditions que précédemment, après plus de 500 secondes présentés en figure 2.18, ceci afin d'éprouver le modèle thermique en régime établi avec la prise en compte des conditions de diffusion et rayonnement. Afin de ne pas y ajouter l'imprécision précédemment identifiée sur la distribution de la densité de puissance, les calculs sont menés à partir des relevés de densité de puissance obtenus expérimentalement. Les résultats sont présentés sur la figure 2.16 en s'appuyant sur l'équation de la chaleur en régime établi (2.48). De légères différences de température à l'état final sont observables aux maxima atteints au

primaire. Celles-ci sont probablement imputables à la connectique créant un flux thermique par conductivité au niveau des soudures et des fils. Les cas à $0,5\Omega$ et à vide présentent une très bonne adéquation avec le modèle tandis que le cas à $1k\Omega$ montre un écart sensible le long du secondaire. L'évaluation reste néanmoins cohérente et acceptable.

2.3.3 Discussions

L'étude précédente a donc pu mettre en évidence les phénomènes d'échauffement du transformateur, variables suivant son état de charge. Le modèle rend convenablement compte du fait que le transformateur s'échauffe excessivement lorsqu'il est en circuit ouvert, tandis qu'il atteint des températures non destructives en fonctionnement et en court-circuit. Cette observation laisse entendre que des dispositions de contrôle de tension (ou de courant) sont nécessaires pour éviter que le transformateur ne se retrouve en situation dommageable lorsqu'il est hors charge.
Pour confronter ces résultats au cas de l'utilisation en générateur de plasma, des mesures thermiques en décharge ont été menées sous différents conditions de pression pour en modifier le régime de décharge. Ces relevés sont présentés sur la figure 2.19.

Pour réaliser ces essais, le transformateur a été placé dans une enceinte à vide (dont l'équipement est détaillé au chapitre suivant) et alimenté à $15Vpeak$ soit le même niveau d'alimentation que celui employé lors des essais thermiques précédents sur charge résistive. Quatre essais sont réalisés. Le premier dans l'air à pression athmosphérique, afin de comparer le profil de température avec celui réalisé précédemment en condition hors charge de la figure 2.18. Le profil s'avère identique pour ces deux essais. Les trois essais suivants sont menés sous argon pour 3 niveaux de pression : 1bar, 50mbar et 5mbar. Le principal intérêt de plonger le transformateur dans l'argon est de permettre le déclenchement d'une décharge dès 1bar de pression. Ainsi le premier constat est la forte baisse du niveau de température du transformateur une fois une décharge allumée. Ce phénomène s'explique par l'amortissement mécanique qu'induit la décharge sur le transformateur comme a pu le montrer Kahaleras dans [37]. Cette diminution de température est d'autant plus remarquable qu'elle va à l'encontre du coefficient convectif attendu dans l'Argon. En effet l'argon est un gaz faiblement caloporteur ($\approx 0,01772 W m^{-1} K^{-1}$) en comparaison de l'air sec ($\approx 0,0262 W m^{-1} K^{-1}$). Par conséquent les échanges thermiques par convection sont plus mauvais dans l'argon, et pourtant l'échauffement du transformateur est moindre. Cela s'explique donc bien par l'amortissement induit par la présence de la décharge en présence d'argon. De

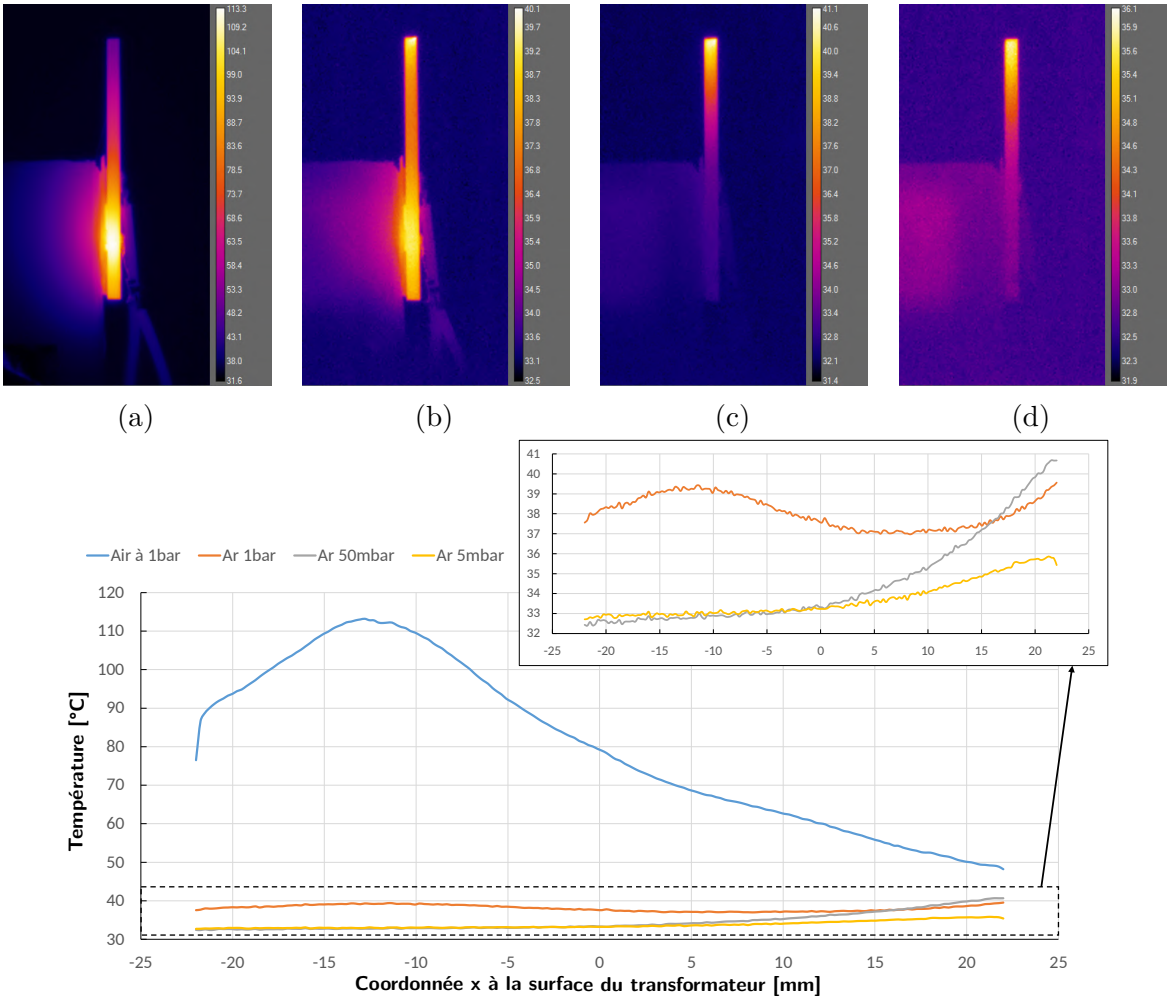


Fig. 2.19 Profil thermique d'un transformateur monocouche Steminc en régime stabilisé (après 500s de fonctionnement) sous 15Vpeak d'alimentation primaire dans différentes conditions de gaz a) en air à pression atmosphérique (absence de décharge) alimenté à $850mW$ b) en argon pur à pression atmosphérique (décharge couronne) alimenté à $380mW$ c) en argon à 50mbar (décharge homogène) alimenté à $80mW$ d) en argon à 5mbar (décharge homogène) alimenté à $45mW$

la même manière pour les essais suivants, la diminution de la pression dégrade le coefficient d'échange convectif.

Le deuxième phénomène remarquable est l'échauffement à l'extrémité du secondaire lorsque le transformateur est en décharge. Le transformateur étant libre à ses extrémités, il n'est soumis à aucune contrainte mécanique pouvant justifier cet échauffement, ce qui se confirme sur les courbes de stress mécanique en figure 2.15 ne présentant aucune tendance commune avec les profils de température des courbes à 5 et $50mbar$. Ces échauffements sont donc imputables à la présence de la décharge elle-même. Un autre fait observable est la température légèrement supérieure à l'extrémité du secondaire du transformateur en décharge homogène dans $50mbar$ d'argon (c) en comparaison de l'essai en décharge couronne à pression atmosphérique (b). L'échauffement est supérieur dans la configuration (c) alors que la puissance injectée est 5 fois plus faible. Cette observation montre que le régime de décharge et sa puissance ont un impact particulier sur l'échauffement produit à l'extrémité du transformateur et que cette influence ne peut pas être directement quantifiée par la puissance d'entrée du transformateur.

Si, dans les cas étudiés ici, l'échauffement à l'extrémité du transformateur reste tout à fait raisonnable pour ne pas risquer une dépolarisation locale du transformateur, cette contribution à l'échauffement localisé pourrait devenir un critère limitant pour une montée en puissance de la décharge ou du régime. Ainsi, dans une démarche de dimensionnement thermique, deux critères doivent être pris en compte: les pertes par frictions internes qui représentent la principale source d'échauffement au sein du primaire et l'échauffement issu de la charge plasma venant s'ajouter à l'extrémité du secondaire. Cette dernière requiert une étude approfondie de la décharge plasma afin de permettre l'évaluation théorique de la source de chaleur.

Notons par ailleurs que la condition de fonctionnement la plus critique pour le générateur est celle à vide, conduisant à des échauffements susceptibles de dépolariser tout ou partie d'un transformateur. Par conséquent, il apparait primordial d'introduire des stratégies de commande ou des conditions opérationnelles afin de préserver le dispositif d'un tel régime de fonctionnement destructif.

2.4 Contribution à la conception optimisée

L'application des transformateurs piézoélectriques à la génération de décharge plasma change significativement de l'utilisation courante qui en est faite. Par conséquent son dimensionnement en est singulièrement différent. La première particularité de la décharge plasma est sa très large variation d'impédance et son influence sur le gain

du transformateur. Cette propriété a d'ailleurs été mise à profit dans les années 2000 en employant le transformateur piézoélectrique pour alimenter les lampes à cathode froide. Dans cette configuration, le transformateur remplit simultanément la fonction de transformateur élévateur de tension et de ballast [85]. Le transformateur doit donc être en mesure d'atteindre le niveau de tension nécessaire à l'amorçage de la décharge, puis une fois cette dernière allumée, être capable de maintenir un niveau de tension suffisant. Ces deux niveaux de tension, respectivement d'allumage et de maintien, sont fortement dépendantes des conditions environnementales (nature du gaz, configuration géométrique et électrique, pression,...). La difficulté s'avère encore accrue dans le cadre de notre étude, puisque l'objectif est de promouvoir des décharges à pression atmosphérique sous condition de flux de gaz, dont la composition peut varier en raison de l'objectif bactéricide de la décharge. La forte variabilité de ces conditions peut entraîner le transformateur piézoélectrique à fonctionner d'un état hors décharge (équivalent à fonctionnement à vide) jusqu'à une très faible impédance. Si par leur principe, les PT supportent parfaitement de fonctionner en court-circuit au secondaire, il est en revanche préjudiciable et potentiellement destructif de fonctionner à vide, tout particulièrement alimenté à leur fréquence de résonance. Les risques dans un tel cas de fonctionnement sont thermiques, comme cela a pu être démontré dans la partie précédente, mais également mécanique pour la concentration de contraintes aux nœuds de l'onde mécanique. Au delà d'une valeur critique de contrainte, la céramique peut se rompre et s'endommager définitivement. L'amplitude des contraintes étant dépendantes des propriétés mécaniques du matériau, des dimensions et de l'excitation, il est nécessaire d'introduire une condition dans la procédure d'optimisation pour contenir le dimensionnement dans un domaine opérationnel non destructif. Ces conditions aux limites thermiques et mécaniques se traduisent finalement par 2 conditions d'inégalité telles que : la température du transformateur ne dépasse en aucun point sa température de Curie (avec une marge de sécurité de 2 pour éviter les phénomènes de vieillissement prématuré) où la céramique perdrait sa polarisation, et la contrainte mécanique ne dépasse en aucun point le seuil de casse de la céramique.

2.4.1 Définition du problème d'optimisation

Le dimensionnement étendu aux transformateurs de type Rosen à polarisation partielle (cf : fig.2.1) repose sur 5 paramètres :

- sa longueur primaire : L_1
- sa longueur secondaire : L_2

- sa largeur : l
- son épaisseur : e
- son ratio de polarisation du secondaire : α_i

La tension d'alimentation v_p est considérée constante pour l'ensemble des configurations, de plus la fréquence d'alimentation est toujours fixée au point de résonance du transformateur.

2.4.1.1 Contraintes de design

Afin d'assurer un fonctionnement privilégié en mode d'élongation longitudinale, il est nécessaire de respecter des rapports de forme sur les différentes dimensions : $e \ll l \ll L$. La montée en charge du transformateur doit être limitée de façon à ne pas dépasser les contraintes mécaniques acceptables. Ces maxima de contraintes se situent au niveau des nœuds d'onde que l'on imposera inférieurs à la valeur de rupture du matériau. Enfin, comme explicité précédemment, la température de la céramique ne doit dépasser en aucun point la température de Curie.

2.4.2 Étude du comportement paramétrique à partir du modèle analytique

La nature fortement non-linéaire des décharges plasma à pression atmosphérique et leur couplage fort avec le transformateur nous conduisent à considérer deux critères pour optimiser le dimensionnement du transformateur piézoélectrique à objectif de décharge plasma : d'une part, le maintien en tension du transformateur soumis à une décharge et d'autre part la puissance transmise à cette décharge. Une fois la décharge initiée, elle se traduit électriquement par une charge électrique amortissant le transformateur vu du primaire et par un phénomène de pics de courant pouvant être multiples à chaque période d'alimentation du coté secondaire (cf : fig 3.17). Un transformateur capable de maintenir sa tension secondaire au-dessus de la tension de maintien de la décharge le plus longtemps possible permettrait d'allonger la durée et donc la puissance transmise à la décharge. De plus, un transformateur capable d'assurer une tension secondaire maximale sur une étendue de valeur de charge la plus large possible assurerait un maximum de puissance transmise à la décharge.

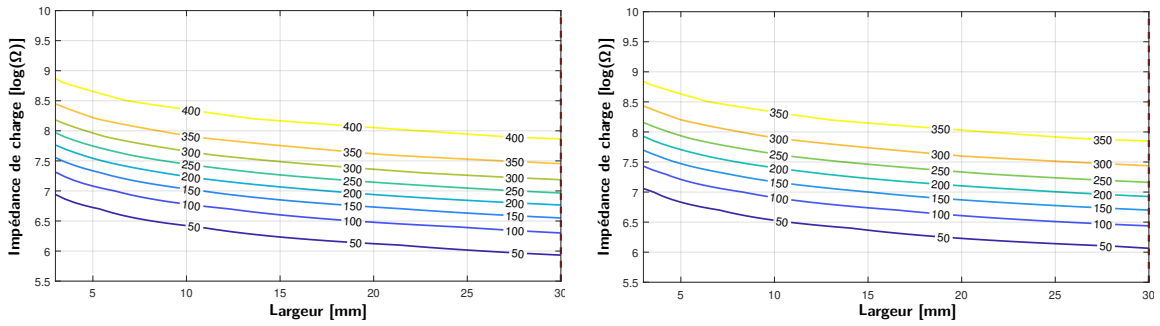
Ainsi, on cherche le dimensionnement permettant de minimiser la valeur de charge résistive, tout en maintenant une tension secondaire supérieure à la valeur de maintien,

ce qui revient bien à maximiser la puissance de sortie. La procédure d'optimisation part initialement des dimensions du transformateur monocouche de Steminc (dont les dimensions sont rappelées en annexe B).

Le problème d'optimisation paramétrique se décrit finalement par la fonction objectif et les conditions d'inégalité suivantes :

$$\begin{cases} \min\limits_{(L_1,L_2,l,e)} R_{load} | v_s = V_{maintien} \\ \begin{pmatrix} L_{max} - (L_1 + L_2) \\ L_{i\in\{1,2\}} - 2l \\ l - 2e \\ e - e_{min} \\ T_{rupture} - T_{max} \\ \theta_{Curie}/2 - \theta_{max} \end{pmatrix} \geqslant 0 \end{cases} \tag{2.54}$$

Afin de mieux comprendre la dépendance paramétrique du gain en tension avec l'impédance de charge et les différents paramètres, les figures 2.20, 2.21, 2.22 et 2.23 illustrent les courbes isoplèthes en fonction de la variation d'un paramètre, tous les autres maintenus constants par ailleurs.

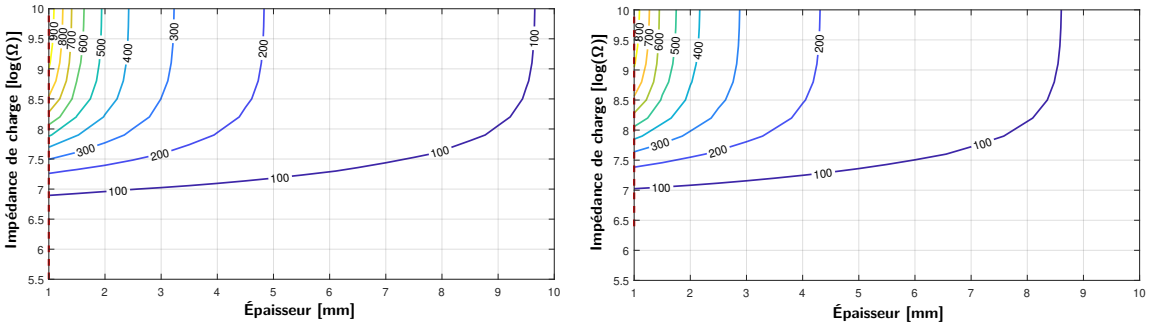


(a) mode $\lambda/2$ (b) mode λ

Fig. 2.20 Évolution du gain d'un transformateur de type Rosen suivant sa largeur. (en pointillés rouges, la courbe optimale fonction de l'impédance de charge)

Les courbes de tendance en figure 2.20 représentent l'évolution du gain du transformateur en fonction de sa largeur. Pour les deux premiers modes longitudinaux de résonance, l'évolution est continûment décroissante. Le modèle tend à augmenter la largeur pour maximiser le gain.

La courbe de gain en fonction de l'épaisseur (fig.2.21) montre, pour les deux modes de résonance, une évolution continûment croissante. Par conséquent il est nécessaire de minimiser l'épaisseur pour maximiser le gain aux valeurs d'impédance les plus



(a) mode $\lambda/2$ (b) mode λ

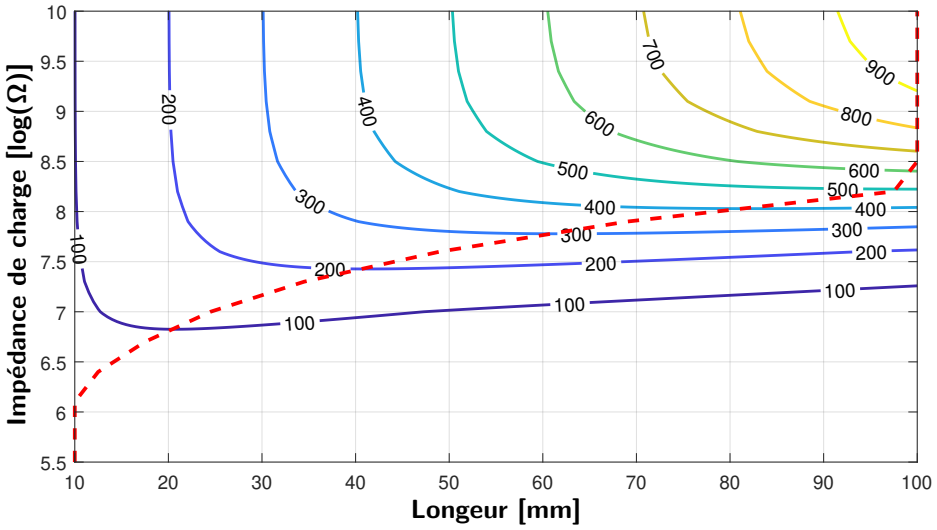
Fig. 2.21 Évolution du gain d'un transformateur de type Rosen suivant son épaisseur. (en pointillés rouges, la courbe optimale suivant le maximum de gain pour chaque niveau d'impédance)

faibles. A tension primaire fixée, la réduction de ce paramètre réduit l'intervalle entre les deux électrodes primaires et par conséquent amplifie le champ électrique perçu par le primaire, augmentant ainsi le gain global du transformateur. Cette diminution d'épaisseur doit néanmoins tenir compte d'une valeur bornée par la limite de claquage diélectrique du matériau.

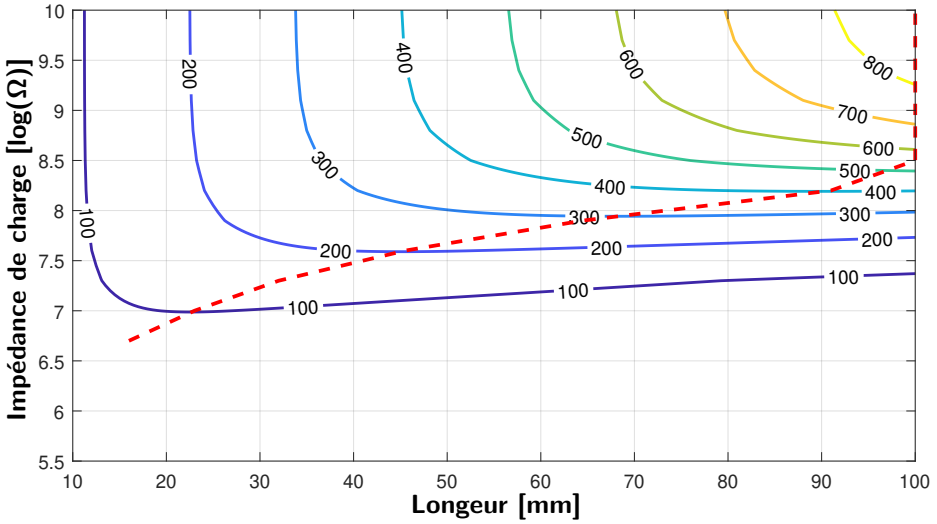
La figure 2.22 présente les courbes isoplèthes du gain suivant la variation de longueur globale du transformateur (en conservant le rapport de 1/2 entre les longueurs primaire et secondaire) et de l'impédance de charge. Pour les 2 premiers modes et des valeurs élevées d'impédance (tendant vers un fonctionnement en circuit ouvert), le gain devient fortement sensible à la longueur. En revanche pour des impédances plus faibles, l'optimal de gain se déplace vers des longueurs plus courtes, laissant supposer une amélioration de puissance pour des dimensions réduites.

Par ces résultats, il apparait clairement qu'une longueur maximale permet de répondre aisément à la condition d'allumage de la décharge (fort gain à impédance élevée). En revanche la puissance transmissible se retrouve limitée une fois la décharge amorçée. Il se déduit de ces observations qu'une longueur optimale peut être déterminée suivant l'impédance équivalente de la décharge plasma, la valeur de la tension de maintien et la valeur de tension admissible au primaire.

Les courbes 2.23 présentent le comportement du gain suivant une variation du rapport de longueur entre secondaire et primaire, à longueur globale fixée. Au mode λ, il existe un point optimal de ce ratio à 61% pour les valeurs d'impédance les plus élevées sur l'intervalle étudié. En revanche cette valeur n'est pas aussi franche au mode $\lambda/2$, s'étalant de 64% à vide jusqu'à 18% aux alentours du $M\Omega$. Au vu de cette

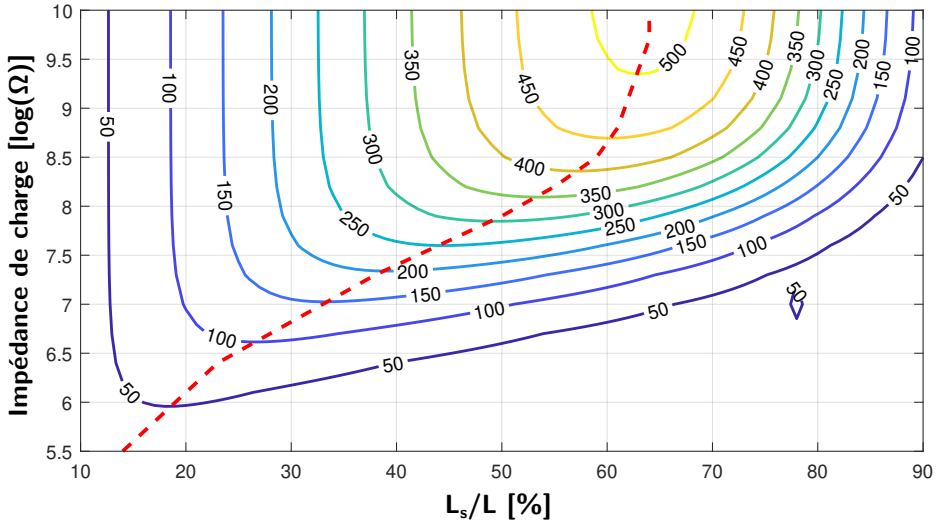


(a) mode $\lambda/2$

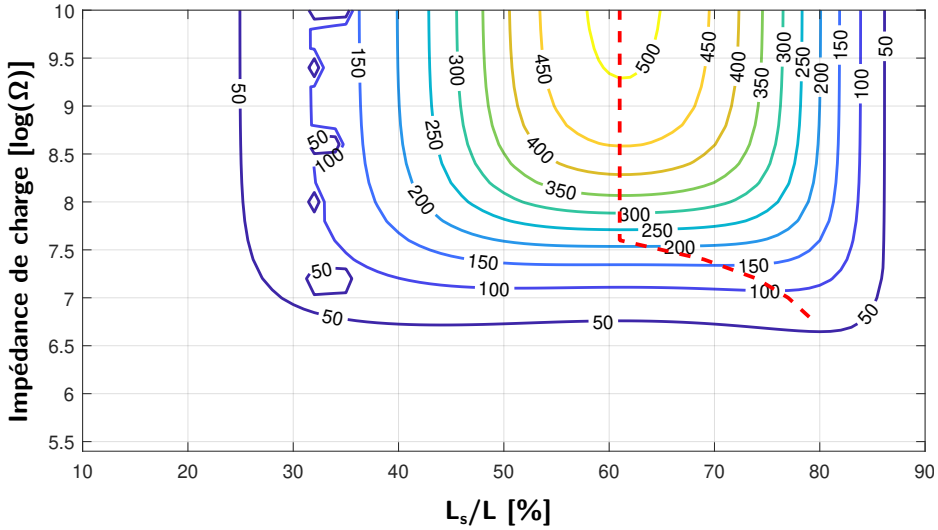


(b) mode λ

Fig. 2.22 Évolution du gain d'un transformateur de type Rosen suivant sa longueur totale. (en pointillés rouges : la courbe de maximum de gain pour chaque niveau d'impédance)



(a) mode $\lambda/2$



(b) mode λ

Fig. 2.23 Évolution du gain d'un transformateur de type Rosen suivant le rapport des longueurs secondaire et primaire. (en pointillés rouges : la courbe de maximum de gain pour chaque niveau d'impédance)

différence nette entre ces 2 modes, il apparaît souhaitable de privilégier le mode λ pour assurer le gain le plus élevé sur la plus large variation d'impédance.

2.4.2.1 Polarisation partielle

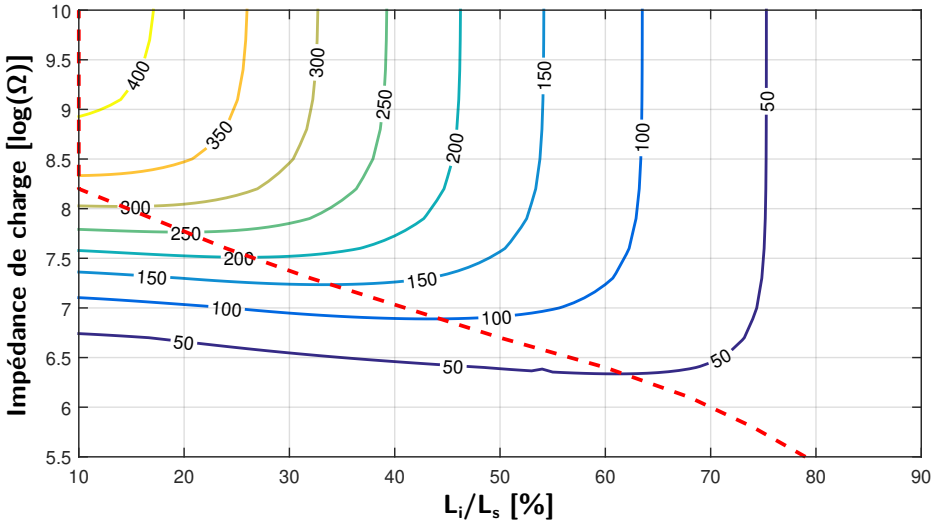


Fig. 2.24 Évolution du gain d'un transformateur de type Rosen suivant la proportion de zone non polarisée du secondaire. (en pointillés rouges : la courbe de maximum de gain pour chaque niveau d'impédance)

La courbe 2.24 présente le gain pour une variation du ratio entre segment non polarisé et longueur du secondaire. A l'instar de l'étude paramétrique en longueur (cf: fig 2.22), le gain obéit à la même tendance à maximiser la polarisation du secondaire du transformateur pour les hautes impédances. Et dans le même temps, il apparait un rapport optimal pour maximiser le gain pour les impédances plus faibles.

2.4.2.2 Discussion

Ainsi, cette étude a pu souligner l'influence des différents paramètres géométriques sur les capacités à maintenir un gain en tension suffisant pour assurer l'amorçage et le maintien d'une décharge. Elle a pu notamment mettre en évidence l'importance du ratio des longueurs secondaire/primaire, l'existence d'un optimum de longueur ou bien encore la contribution d'un segment passivé au secondaire. Bien que cette méthode, n'utilisant pas de modèle explicite de la décharge et de son couplage avec la céramique, ne peut pas justifier d'un dimensionnement optimal précis, elle a permis de mettre en relief l'existence d'un possible dimensionnement optimal ne tendant pas simplement

vers l'accroissement global des dimensions de la pièce. Ces hypothèses seront testées expérimentalement au chapitre suivant.

2.5 Conclusion

Au cours de ce chapitre, des modèles analytiques du transformateur de type Rosen ont pu être développés. Un premier modèle a permis d'introduire la dépendance des performances électromécaniques à son état de charge résistif. En outre le modèle a également introduit la possibilité d'intégrer un segment passivé à la base du secondaire du transformateur. Cette possibilité, a priori inutile pour la réalisation de transformateur conventionnel, peut s'avérer nécessaire dans le cas d'application en décharge, celle-ci étant particulièrement sensible au champ électrique et donc à la distribution du potentiel de surface. Cette disposition sera abordée plus en détail au chapitre suivant. Le dimensionnement des transformateurs piézoélectriques s'effectue généralement pour une valeur d'impédance donnée. Or la nature de la décharge plasma impose de prendre en compte simultanément la capacité à franchir la valeur de tension d'allumage et également de se maintenir au dessus de la valeur de maintien. Si ces conditions peuvent être probablement résolues (dans une certaine mesure) par la valeur de tension au primaire, il semble judicieux de l'aborder également dès la phase de conception par un dimensionnement approprié.

En outre la nature singulièrement non-linéaire de la décharge plasma a conduit à aborder l'aspect thermique du générateur. Cette étude a permis tout d'abord de souligner le risque d'échauffement excessif qui apparaît lorsque le générateur n'est plus amorti par la présence de la décharge. Elle a permis ensuite de discriminer la contribution de la décharge à l'échauffement au secondaire du transformateur. Ces contraintes thermiques doivent, à terme, être prises en compte compte pour le dimensionnement du générateur, mais également pour l'élaboration de stratégies de commande nécessaire pour en préserver l'intégrité et le bon fonctionnement.

Le chapitre suivant aborde la partie expérimentale de notre étude, notamment l'influence de la géométrie de la terminaison du secondaire avec l'ajout de microstructures favorisant les effets de pointe.

Chapitre 3

Études expérimentales

Sommaire

3.1 Introduction 100

3.2 Réalisation de prototypes 100

3.2.1 Variation de dimensions 100

3.2.2 Variations géométriques aux extrémités du secondaire . . . 101

3.2.3 Récapitulatif 109

3.3 Caractérisation électrique de générateur en décharge . . . 110

3.3.1 Description du dispositif expérimental 111

3.3.2 Comparaison des admittances primaires en décharge 113

3.3.3 Caractérisation électrique de la décharge 119

3.4 Évaluation des capacités bactéricides 124

3.4.1 Mise en œuvre spécifique du dispositif 124

3.4.2 Essai de décontamination 129

3.5 Conclusion 138

3.1 Introduction

Le chapitre précédent a mis en hypothèse des critères théoriques d'évaluation des capacités de différents designs de générateurs piézoélectriques à promouvoir une décharge. Elles se résument en deux principaux critères : la capacité de ces transformateurs piézoélectriques à générer un champ électrique au secondaire suffisamment élevé pour allumer la décharge puis à lui transmettre un maximum de puissance en lui assurant de maintenir le potentiel secondaire au delà de la tension de maintien le plus longtemps possible à chaque période. L'objectif de ce chapitre est double. Dans un premier temps, il est de conforter les tendances observées dans le chapitre précédent sur l'amélioration de qualité des décharges par le jeu du design, puis dans un second temps d'aborder la conception et l'évaluation des dispositifs exploitant ce procédé de génération de plasma froid pour des applications bactéricides.

3.2 Réalisation de prototypes

Sur les bases des modèles analytiques et numériques étudiés au chapitre précédent, le Laboratoire des Matériaux Céramiques et Procédés Associés (LMCPA) de l'Université polytecnique des Hauts-de-France a réalisé des générateurs à façon. Ces réalisations ont tout d'abord nécessité la synthèse de matériaux piézoélectriques durs. En raison des performances attendues (notamment des pertes par frottement réduites et un coefficient piézoélectrique élevé), le choix s'est porté sur une synthèse nommée PZT-FJ de composition $Pb((Zr_{0,49}Ti_{0,51})_{0,94}Mn_{0,0252}Sb_{0,0192}W_{0,0156})O_3$ inspirée de la thèse de Nathalie Texier [128]. Afin de modéliser plus précisemment le comportement des générateurs, cette synthèse a fait l'objet d'une caractérisation complète afin d'identifier les différentes matrices de propriétés électriques, mécaniques et piézoélectriques. Cette part d'identification des propriétés matériaux présentée en annexe B.

3.2.1 Variation de dimensions

Pour conforter les tendances supposées à la partie précédente sur le comportement en décharge et hors décharge des générateurs piézoélectriques et les critères objectifs de design à prendre en compte pour améliorer la décharge, trois dimensionnements de transformateurs ont été réalisés : deux transformateurs Rosen de référence (PTSD), deux transformateurs de plus grande dimension (PTGD) à la section primaire plus allongée que les PTSD et un générateur (PTSD1) aux dimensions des PTSD mais

intégrant une partie non polarisée (segment passif) à la base de sa section secondaire. Les trois dimensionnements de générateurs sont présentés dans le tableau récapitulatif 3.1.

3.2.2 Variations géométriques aux extrémités du secondaire

En vue d'étendre les zones de décharge et d'exploiter au mieux le potentiel électrique développé au secondaire du transformateur, l'étude s'oriente sur la structuration de l'extrémité du secondaire. Cette idée s'inspire largement de solutions envisagées dans certains dispositifs DBD qui exploitent des électrodes texturées [129]. Au lieu d'exposer une électrode lisse à la zone de décharge, des variations géométriques de structures sont ajoutées à sa surface pour d'une part, augmenter l'étendue de l'interface entre l'électrode métallique et plasma et d'autre part, favoriser les effets de pointe à la surface créant des zones localisées d'intensification du champ électrique facilitant l'amorçage et l'entretien du plasma.

Toutefois la solution appliquée à notre cas d'étude diffère sensiblement car, contrairement aux DBD, aucune électrode n'est disposée à l'extrémité du secondaire. C'est la céramique elle-même qui présentera une géométrie à pointes multiples. La suppression d'électrodes au secondaire du générateur s'est trouvée justifiée pour éviter la pulvérisation cathodique, déjà observée par les études de Kahalerras [37]. Cette mise en forme singulière de la céramique constitue une difficulté technique à plusieurs titres. Tout d'abord, les singularités géométriques peuvent former des points de concentration de contraintes mécaniques. Il est donc nécessaire d'évaluer ces contraintes afin d'éviter la cassure mécanique initiée en ces points, ce qui limite nécessairement les possibilités de mises en forme. Ces géométries complexes rendent notamment plus délicate l'étape de polarisation de la céramique. La réalisation même de ces céramiques entraîne des difficultés lors de leur fabrication.

Il est possible de donner leur forme particulière soit à cru (avant la phase de frittage), soit après le frittage par intervention mécanique de type tronçonnage ou encore par découpe laser. La forme de la céramique peut être initiée lors de l'étape de mise ne forme du compact de poudre par compression isostatique à froid avant frittage. Cependant, ce procédé devient difficilement applicable pour des géométries complexes. De plus, la céramique est obtenue par frittage de la préforme crue libérée de son moule de maintient. Le compact subi au cours du processus un retrait volumique important ($\Delta V/V \approx 40\%$) qu'il est nécessaire d'anticiper pour assurer la régularité de dimension des pièces. La solution d'une intervention mécanique après frittage s'avère également délicate. Tout d'abord, suivant la géométrie choisie, l'opération peut être laborieuse,

les outils présentant différentes limites dans leurs degrés de liberté. Le tronçonnage mécanique ne permet que des interventions rectilignes simples, tandis que la découpe par érosion laser ne peut opérer convenablement que sur des épaisseurs limitées avec une efficacité dépendante du matériau. Le profil de découpe peut s'avérer difficile à respecter suivant les paramètres. En outre, les conditions de découpe laser ont été optimisées pour affecter thermiquement au minimum la céramique au regard des traits de découpe. L'échantillon ne subit donc qu'un échauffement local très réduit mais suffisant pour pouvoir induire une dépolarisation locale qui pourrait affecter le potentiel électrique aux extrémités après polarisation. Ce qui interdit cette opération après la phase de polarisation. A contrario, la rectification mécanique n'est pas accompagnée d'un échauffement significatif mais provoque des états de contraintes élevées pouvant amener à des microfissurations internes pouvant fragiliser la céramique.

La figure 3.1 propose des observations MEB (Microscope Électronique à Balayage) faisant apparaître le trait de découpe laissé par le faisceau laser (3.1.a) ainsi que les microstructures de l'état de surface observées après découpe laser (3.1.b) et de celui obtenu après rectification de la céramique par la tronçonneuse mécanique(3.1.c). En découpe laser on observe une zone thermique affectée très faible. Le faisceau laser ne semble pas altérer l'état de surface de la céramique et les grains sont toujours aussi bien facettés (figure 3.1.b). Dans les deux cas, les microstrutures montrent des modes de fracture par fissurations intergranulaires.

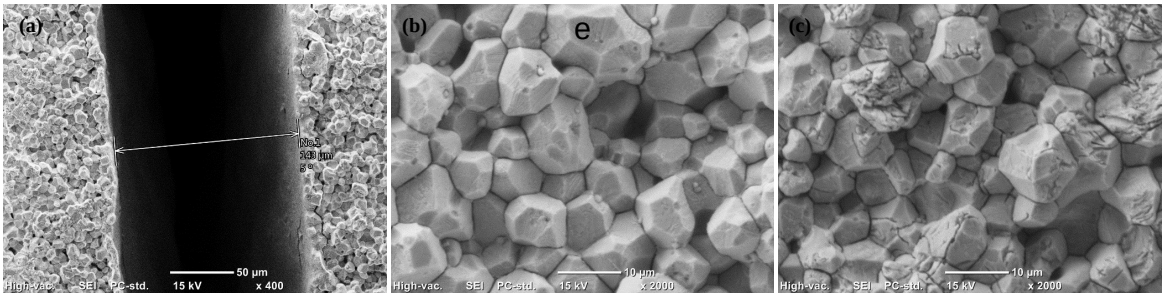


Fig. 3.1 (a) Micrographies du trait de découpe laissé par le spot laser, (b) d'une surface après passage du faisceau laser et (c) d'une surface rectifiée par tronçonnage et ponçage

La figure 3.2 propose les diffractogrammes RX de la céramique aux surfaces rectifiées d'une part et soumise au passage du faisceau laser d'autre part. On observe des différences légères des diffractogrammes avant et après découpe laser se traduisant en particulier par des variations des intensités relatives de certains doublets. Cela pourrait s'expliquer par un début de texturation relative à la surface de découpe voire certains changements de phase (i.e. des variations dans les rapports quadratique-rhomboédrique-

monoclinique de cette composition morphotropique provoquée par de légères variations stœchiométriques Zr/Ti). Expérimentalement, ces céramiques brutes de découpe ont montré une grande fragilité les rendant impropres à résister aux étapes de polarisation sans casse importante. Un recuit à température élevée a été optimisé pour réduire ce taux de casse. Finalement il a fallut atteindre des températures relativement élevées ($\approx$ 2/3 de la température de frittage) pour réduire cette casse et permettre aux céramiques de résister au cycle de polarisation. Ces conditions permettent de relaxer les contraintes mécaniques internes mais ne sont pas neutres vis à vis de la stabilité structurelle de ces PZT.

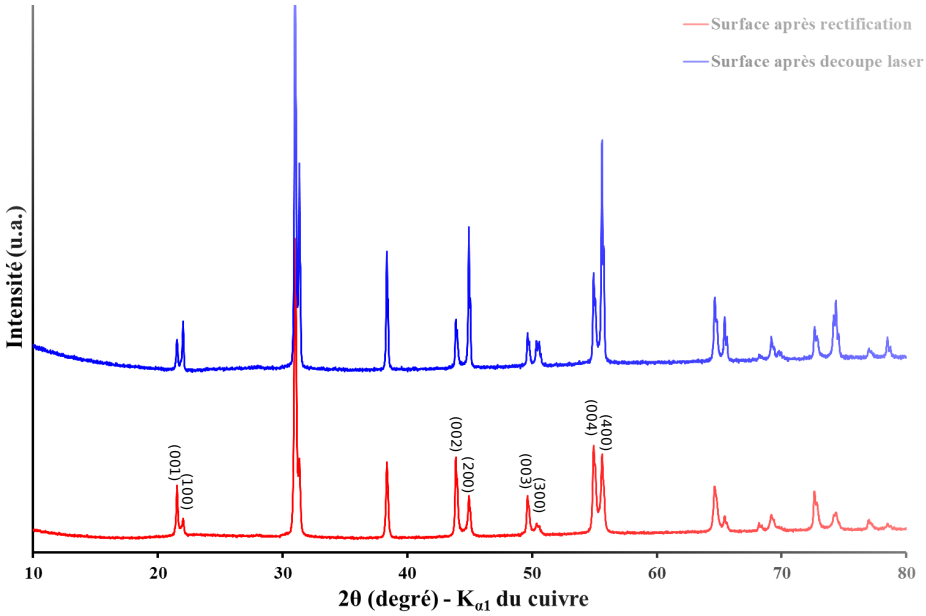


Fig. 3.2 Diffractogrammes RX des surfaces après rectification et découpe laser

Les figures 3.3 et 3.4 présentent respectivement les observations MEB des surfaces découpées au laser et rectifiées après recuit et les diagrammes DRX associés. On observe toujours une fracture par fissuration intergranulaire. Pour la surface découpée au laser, on observe probablement une recristallisation de la zone amorphisée par le laser (faible quantité de petits grains). Cette perte de matière amorphe n'est pas suffisante pour impacter le diffractogramme qui présente toujours des pics bien résolus sans évolution du fond continu. On note cependant que ce traitement thermique a provoqué un réarrangement structural qui a conduit à la disparition des aberrations d'intensité relative sur certains doublets. Pour les deux céramiques après traitement thermique, les diffractogrammes sont caractéristiques des PZT morphotropiques bien cristallisés sans phase amorphe dans un mélange essentiellement quadratique-rhomboédrique. Après

rectification/découpe et traitement thermique ("recuit"), les céramiques sont revenues à leur état structural initial. Leur capacité à résister aux étapes de polarisation montre un état de contrainte interne très faible et une guérison des éventuelles microfissures internes.

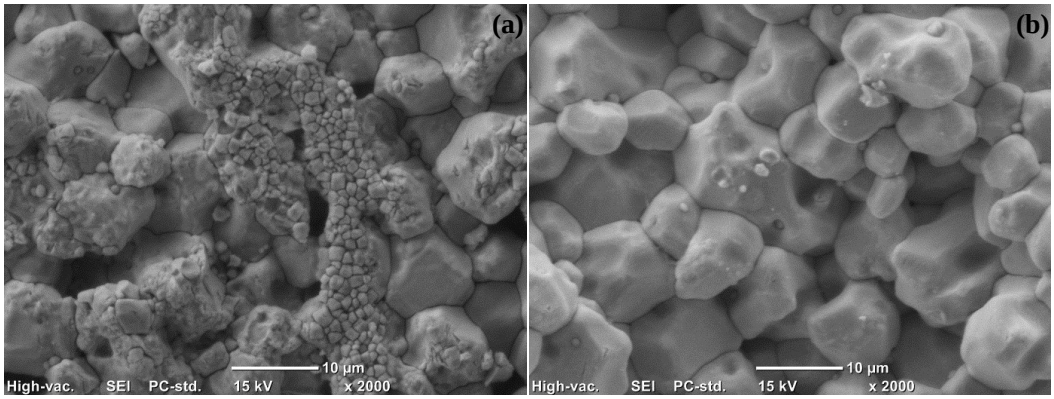


Fig. 3.3 (a) Micrographies après recuit des céramiques des surfaces rectifiées et (b) soumises au faisceau laser

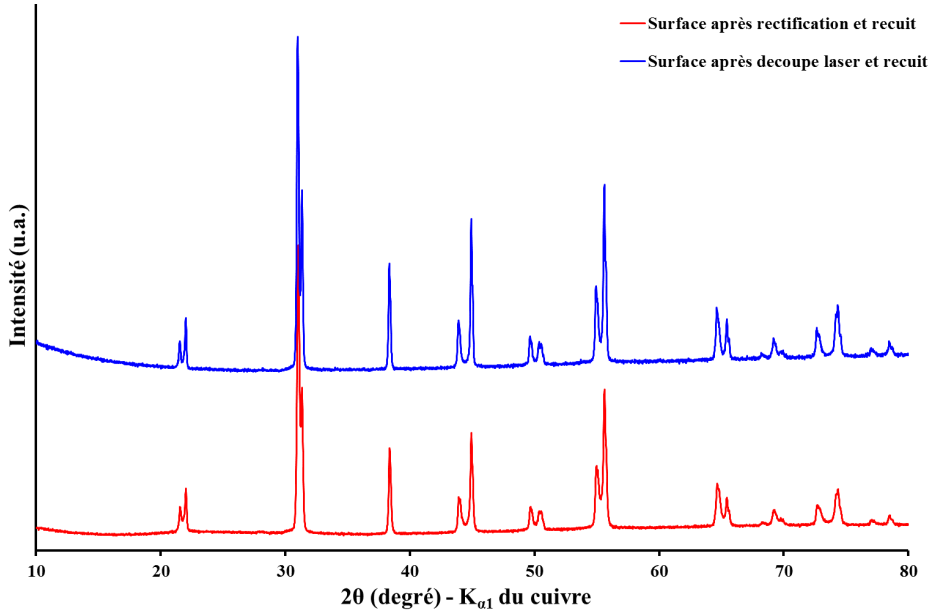


Fig. 3.4 Diffractogrammes RX après recuit des céramiques des surfaces rectifiées et soumises au faisceau laser

Pour les besoins de l'étude et après ces divers essais, c'est finalement l'intervention mécanique associée à une finition au laser après frittage suivie d'un recuit qui sera

privilégiée. On perçoit dans cette première étape que le choix d'une géométrie complexe peut s'avérer difficile à transposer dans un processus de fabrication industrielle. Cet ensemble de contraintes constitue les raisons pour lesquelles les transformateurs piézoélectriques du commerce ont généralement des géométries extrêmement simples.

Cette fabrication s'appuiera sur une étude numérique préalable, guidée par les limites techniques de fabrication.

Ajouter des structurations en terminaison du générateur peut entraîner des modes de déformations supplémentaires (voire parasites) et un comportement vibratoire différent de celui d'un transformateur massif. Ne cherchant pas à promouvoir des modes vibratoires singuliers mais uniquement à accroître les champs électriques locaux, les modifications seront légères afin de supposer un comportement vibratoire en mode longitudinal qui ne diffère que faiblement du générateur à géométrie massive.

Cette restriction sur la variation géométrique permet par conséquent de faire usage du modèle analytique du transformateur pour définir les dimensions principales du générateur dans une première procédure d'optimisation itérative. Ce prédimensionnement est ensuite passé en paramètre d'un modèle par éléments finis auquel est ajouté la variation géométrique de la terminaison. Cette modélisation plus fine donne accès au potentiel et au champ électrique locaux dans l'environnement du générateur. Ces nouvelles valeurs sont ensuite exploitées dans une seconde procédure itérative permettant ainsi de construire une fonction "objectif" cherchant à satisfaire simultanément un fort potentiel et un fort champ électrique.

Cette méthode d'optimisation sous contraintes, guidée par la connaissance de l'ensemble de contraintes limitantes (limite mécanique de cassure, limite sur les dimensions, limite thermique...), permet d'aboutir à un dimensionnement.

La figure 3.5 donne le schéma de la procédure itérative.

A titre illustratif, la figure 3.6 indique les valeurs obtenues avec différents générateurs sur les deux critères (potentiel et champ électrique) dans le cas des générateurs massifs ou à extrémité dentés.

Si l'augmentation du nombre d'angles à l'extrémité permet de multiplier le nombre de micro-décharges (et ainsi augmenter la puissance globale de décharge), il apparaît très nettement sur la figure 3.6 que cette structuration permet également d'augmenter la valeur maximum du champ électrique. C'est la raison pour laquelle cette solution est finalement étudiée expérimentalement et détaillée ci-après.

Des transformateurs piézoélectriques munis d'une terminaison crantée (PTAD) ont donc été réalisés avec des dimensions voisines de transformateurs Rosen massifs (PTSD). Ces différents transformateurs sont réalisés à partir de la même synthèse de matériau

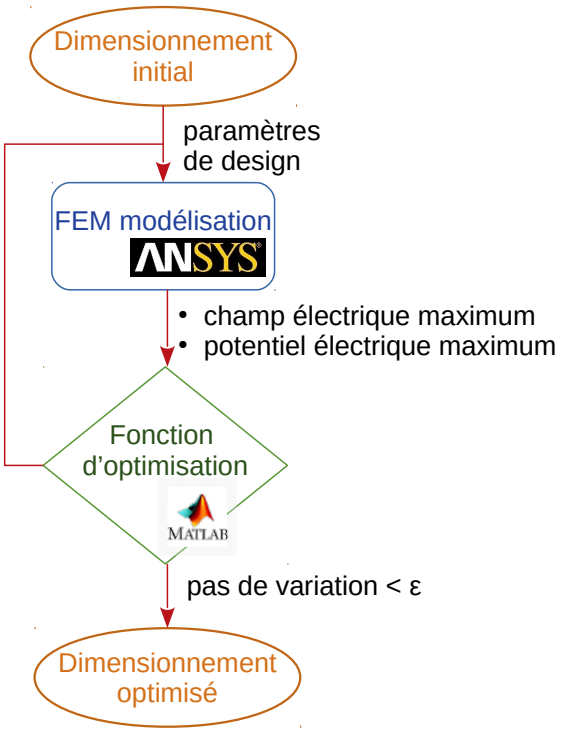


Fig. 3.5 Procédure itérative d'optimisation paramétrique des transformateurs piézoélectriques basée sur la maximisation des champ et potentiel électriques

et suivant le même procédé de fabrication, ceci afin de minimiser les différences. Seuls les transformateurs crantés requièrent un usinage mécanique supplémentaire. Ces réalisations sont montrées en photo 3.8 et leurs dimensions sont récapitulées dans le tableau 3.1.

L'ajout de microstructures à l'extrémité du secondaire laisse espérer deux principaux avantages. D'une part, la multiplication des effets de pointe à l'extrémité secondaire permettrait, dans l'hypothèse où chaque pointe est source de promotion d'une décharge, de largement augmenter la zone de décharge en l'étendant à toute la largeur du générateur et par la même, augmenter la puissance globale de la décharge générée par ce transformateur. Cette disposition est illustrée sur la carte de champ électrique 3.7. Deuxièmement, la géométrie et l'organisation des microstructures, à potentiel secondaire identique au générateur Rosen de dimensions équivalentes, donneraient la possibilité d'accroître les maxima locaux de champ électrique facilitant l'allumage de la décharge.

Afin de visualiser l'impact d'un tel ajout de microstructures à l'extrémité du secondaire, des simulations par éléments finis sont entreprises. La modélisation par

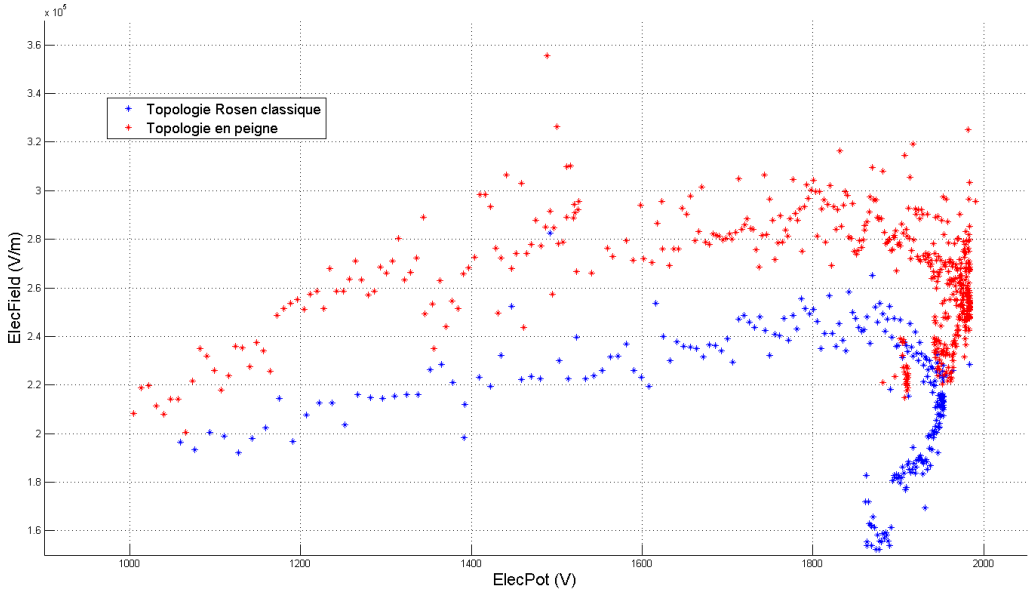


Fig. 3.6 Maxima de champ et potentiel électrique générés par des topologies de transformateurs piézoélectriques Rosen et à dent à leurs pics de résonance pour différentes longueurs de secondaire

éléments finis du comportement électromécanique d'un transformateur se décompose en trois étapes. Dans un première temps, le générateur est soumis à une étude modale afin d'identifier ses différents modes propres et leurs fréquences de résonance associées. Les fréquences des modes d'élongation longitudinale sont ainsi extraites des résultats de cette étude modale. Dans un second temps, une étude harmonique paramétrée à la fréquence du mode d'élongation longitudinale souhaitée permet d'établir le profil de répartition du potentiel électrique de surface du transformateur. Enfin, ce profil est appliqué aux limites d'une boîte d'air englobant le générateur pour une étude électrostatique qui tracera le champ électrique ainsi généré dans le voisinage du transformateur.

Les résultats de ces simulations électromécaniques de ces transformateurs à vide sont visibles en figure 3.7. La faible variation de fréquence de résonance et de répartition du potentiel électrique de surface entre les transformateurs PTAD et PTSD vient confirmer l'hypothèse de faible influence de l'ajout de microstructures sur le comportement dynamique du transformateur.

Afin d'évaluer expérimentalement le potentiel de l'ajout de microstructures à l'extrémité du secondaire du transformateur, trois transformateurs (PTAD) aux dimensions des transformateurs de référence PTSD mais dont l'extrémité secondaire a été texturée au laser sont fabriqués et sont visibles en photo 3.8 et dans le tableau récapitulatif 3.1.

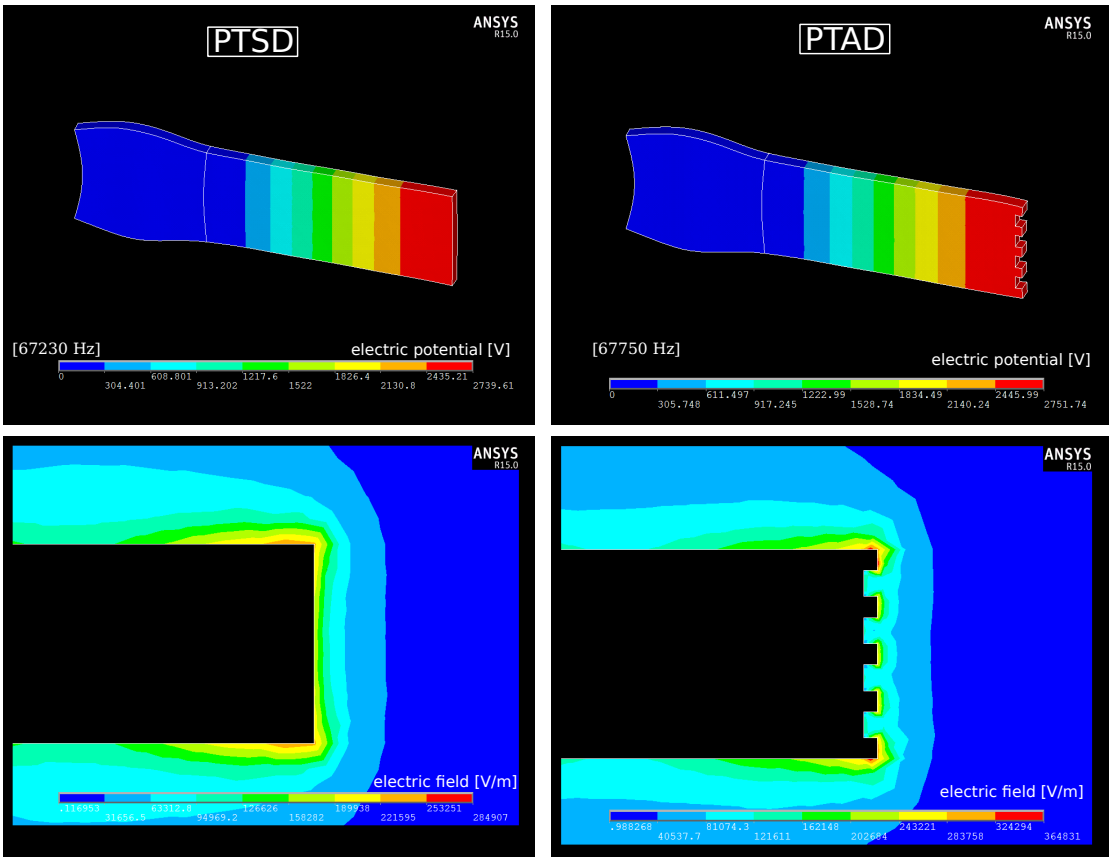


Fig. 3.7 Cartographies des champs électriques générés par un PTAD et un PTSD obtenues par une étude harmonique au mode λ sous $15V_p$ d'alimentation par le logiciel de modélisation par éléments finis ANSYS APDL

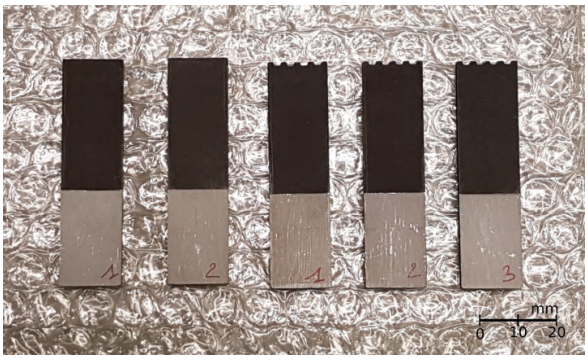


Fig. 3.8 Transformateurs réalisés par le laboratoire LMCPA

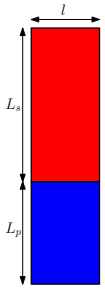
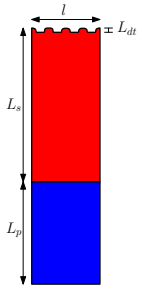
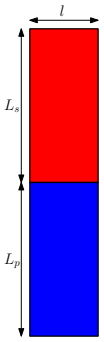
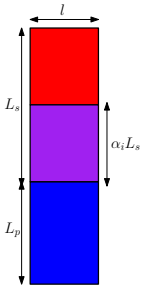
PTSD2-4	**PTAD1-2-3**	**PTGD2-3**	**PTSD1**
			
$L_p = 25mm$ $L_s = 35mm$ $l = 16mm$ $e = 2mm$	$L_p = 25mm$ $L_s = 35mm$ $l = 16mm$ $e = 2mm$ $L_{dt} = 1mm$	$L_p = 36mm$ $L_s = 36mm$ $l = 16,1mm$ $e = 1,65mm$	$L_p = 25mm$ $L_s = 35mm$ $l = 16,1mm$ $e = 2,2mm$ $\alpha_i = 0,5$

Tableau 3.1 Dimensions des différents générateurs piézoélectriques fabriqués par le LMCPA avec en bleu la partie primaire, en rouge la partie secondaire et en mauve la zone passive

3.2.3 Récapitulatif

En guise d'étude préliminaire au fonctionnement en décharge, les modèles des différents générateurs sont établis et simulés suivant l'étude analytique développée au chapitre précédent. Rappelons que ce modèle ne tient pas compte des effets de structuration de l'extrémité du secondaire, ni des non-linéarités qui surviennent lors du fonctionnement à vide. Les rapport de tension secondaire/primaire sont calculés pour les différents générateurs suivant des impédances de charge variant de $1M\Omega$ jusqu'à $\approx 10G\Omega$ (circuit ouvert) et affichés sur le graphe 3.9.

Comme expliqué au chapitré précédent, l'extension du primaire dans le cadre du PTGD a tendance, vis à vis du transformateur de référence PTSD, à augmenter le potentiel secondaire à vide. En revanche, sa tenue en tension diminue rapidement sous une variation de charge. A l'inverse, l'ajout de la zone passivée dans le cas du PTSD1 réduit nettement la tension au secondaire à vide, mais sa tenue en tension est beaucoup plus large. Ainsi, il est capable d'atteindre des courant secondaire beaucoup plus important pour des tensions secondaires maintenues au-dessus de la tension de maintien. Au cours de sa thèse [116], Nadal a évalué expérimentalement, par l'intermédiaire d'un modèle électromécanique linéaire, les tensions de claquage et de maintien respectivement de 600 à 1900V et de 450 à 1200V pour des pressions gaz allant de 5 à 40mbar. Ainsi, suivant les caractéristiques secondaires de la figure 3.10

et cette plage de tension de maintient, à 15V d'alimentation, le transformateur au secondaire partiellement polarisé PTSD1 pourrait prétendre à une augmentation de ses pics de courant de décharge de -3 à +60% vis à vis du transformateur de référence et inversement le transformateur grande taille verrait une chute de 3 à 12%. La contrainte fonctionnelle de ce design de transformateur à secondaire partiellement polarisée, au vu de son faible gain à vide, est de réussir à atteindre la tension de claquage du gaz. Car il est bon de rappeler que les gains sont calculés en fonction d'un modèle linéaire qui pourrait présenter des divergences vis à vis des transformateurs réels dans le cas de grandes amplitudes de déformée, typique du fonctionnement à vide, à cause de non-linéarités exacerbées dans ce domaine des grandes déformées.

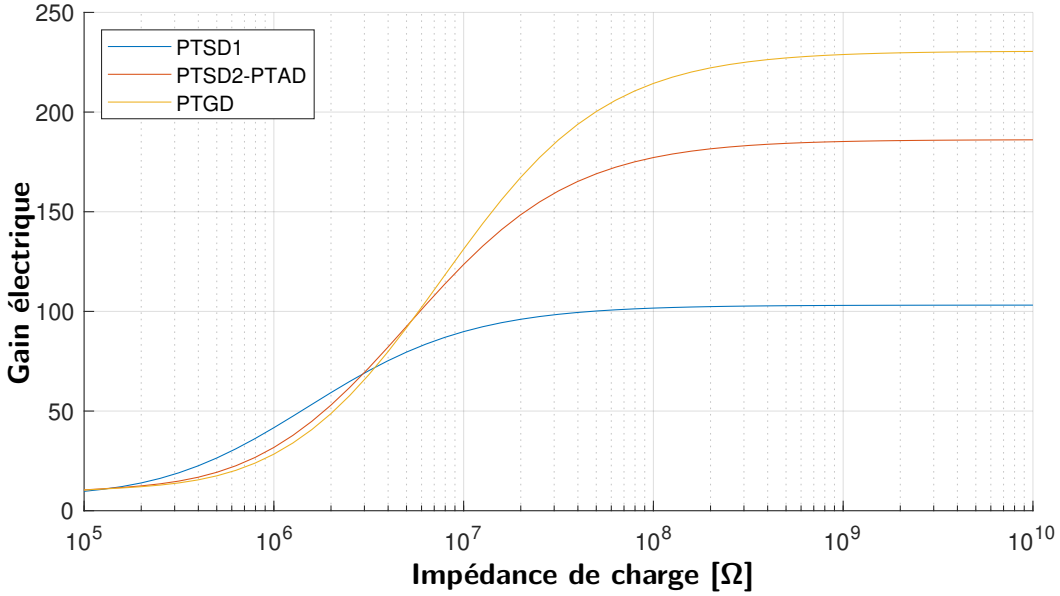


Fig. 3.9 Gain en tension suivant les 3 générateurs à la résonance de leur mode λ suivant différents niveaux de charge, réalisés avec le matériau PZT-FJ

3.3 Caractérisation électrique de générateur en décharge

Afin de permettre une étude comparative sur les performances des différents designs de générateurs, il s'avère nécessaire de normaliser leur comportement autour de certains paramètres.

La fréquence et l'amplitude vibratoire d'un transformateur piézoélectrique à la résonance étant très sensibles à toutes perturbations mécaniques ou électriques, aucune sonde de tension n'est placée au secondaire. En outre, il n'est pas possible techniquement

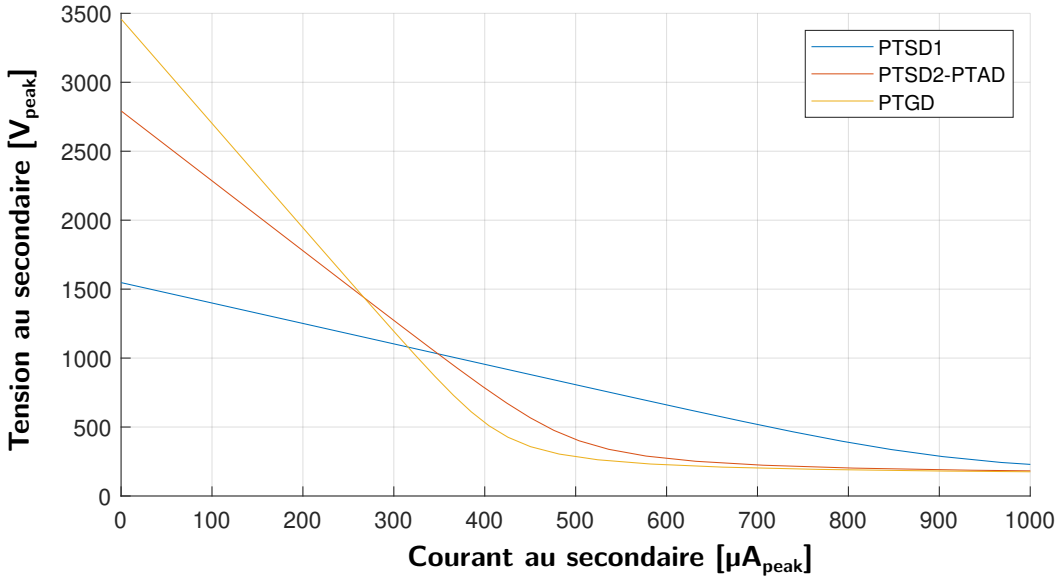


Fig. 3.10 Caractéristique courant-tension au secondaire des 3 générateurs à la résonance de leur mode λ sous $15V_{peak}$ d'alimentation, réalisés avec le matériau PZT-FJ

d'en disposer sur les secondaires crantés. Sans l'accès à la tension secondaire, il est néanmoins possible d'exploiter le modèle électrique équivalent vu du primairepar l'observation des deux variables précédemment énoncées. Une étude de l'admittance primaire en balayage de fréquence permet de traiter la capacité d'allumage de la décharge, tandis que la mesure de l'activité électronique du plasma permettrait de qualifier la puissance transmise.

3.3.1 Description du dispositif expérimental

Le dispositif expérimental visible sur la photo en figure 3.11 est un dispositif de mesure de courant de décharge des plasmas générés par effet piézoélectrique en argon pur pour des niveaux de pression allant de la basse pression (5mbar) jusqu'à la pression atmosphérique. Une électrode plane en cuivre de $10cm$ de diamètre est placée en face de l'extrémité du secondaire du transformateur, à une distance de $5mm$, afin de capter l'émission d'électrons de la décharge. Elle est recouverte d'une couche de verre de $2mm$ pour limiter les passages à l'arc et reliée à la masse par une résistance de shunt de 50Ω comme présenté dans le schéma électrique d'acquisition du courant de décharge de la figure 3.12. Le transformateur piézoélectrique est alimenté par un amplificateur linéaire 4 quadrants Agilent ($\pm 200V/DC/500kHz/4A$) piloté par un analyseur de fonction de transfert chargé de réaliser un balayage de fréquence autour de la résonance du mode λ

pour des niveaux de tension de $1 - 30V_{rms}$. Les transformateurs piézoélectriques sont installés sur des supports spécifiques qui proposent des points de contact uniquement au 1/4 et 3/4 de la longueur totale du transformateur piézoélectrique correspondant aux nœuds d'onde de la déformée mécanique de ce dernier pour le mode λ permettant ainsi de limiter son amortissement mécanique.

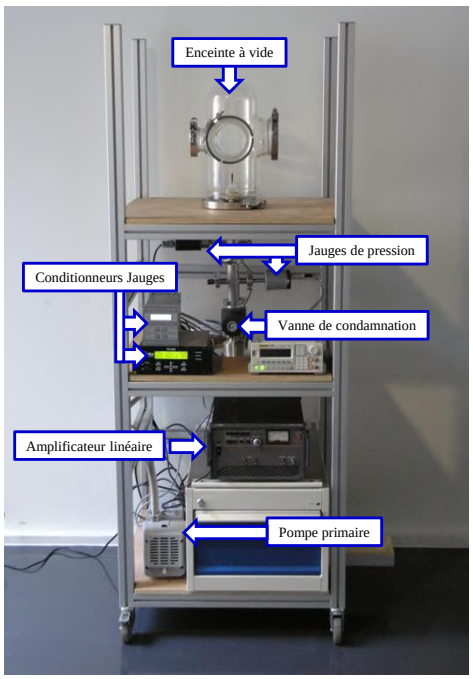


Fig. 3.11 Schéma du dispositif expérimental de mesure du courant de décharge corona générée par un transformateur piézoélectrique[116]

Les essais sont réalisés sous une cloche à vide pour permettre la variation des niveaux de pression. Elle est équipée de 2 jauges basse et haute pression, respectivement Eyesys Mini-IMG (gamme : $3.10^{-9} - 10^{-3}mbar$) et BARATRON (gamme : $10^{-2} - 1000mbar$) pilotant une valve de contrôle MKS 248A permettent l'asservissement du niveau de pression. Le remplissage de la cloche est réalisé en deux étapes : dans un premier temps, un vide primaire est effectué en une dizaine de minutes à partir d'un groupe de pompage turbomoléculaire VARIAN jusqu'à un vide de moins de $0,5mbar$. Un débit continu d'Argon Arcal (à 0,002% d'impuretés) assure ensuite le remplissage de la cloche et le maintien à la pression souhaitée.

La mesure de la tension primaire V_p est exécutée avec une sonde de tension Tektronix P220 de rapport 1:10 et le courant primaire I_p est relevé avec une sonde de

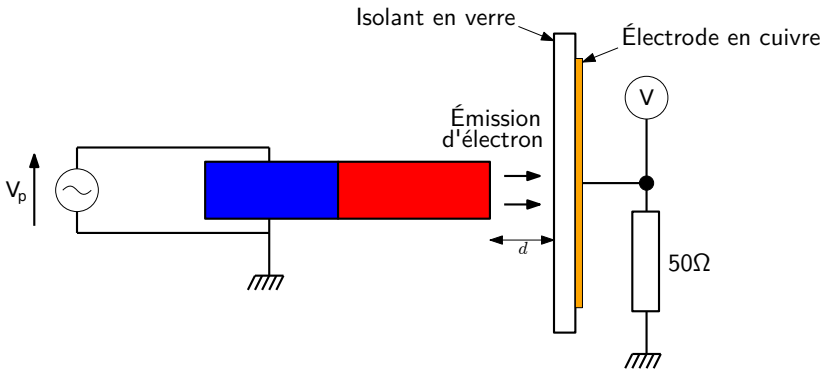


Fig. 3.12 Schéma électrique du dispositif d'acquisition du courant de décharge

courant Tektronix couplée à un amplificateur TCPA300 de rapport $1A/V$ directement connecté à l'analyseur de fonction de transfert. Le courant de décharge est acquis par l'intermédiaire de la mesure de tension aux bornes de la résistance de shunt connectée à la contre-électrode et visualisé via un oscilloscope Tektronix TDS5054 de fréquence d'échantillonnage $1GHz$ et bande passante $500MHz$.

Ce dispositif conduit à la réalisation de deux types d'essais : une étude en balayage de fréquence vue du primaire des transformateurs piézoélectriques autour de leur fréquence de résonance et une étude vue du secondaire à fréquence choisie pour la caractérisation électrique des courants de décharge plasma. Suite aux essais menés durant la thèse de Clément Nadal [116] sur la caractérisation d'un transformateur Rosen multicouche dans des conditions similaires de décharge, ces résultats ayant montré une symétrie de comportement entre les balayages en fréquence montant et descendant, seul un balayage de fréquence montant sera pris en considération durant ces essais.

3.3.2 Comparaison des admittances primaires en décharge

L'étude en balayage de fréquence montant de l'admittance primaire a pour objectif de proposer une méthode alternative à la mesure directe de la tension secondaire pour l'étude des conditions de claquage d'un générateur piézoélectrique. Dans un premier temps, un relevé d'admittance primaire à secondaire à vide est réalisé sur les 8 transformateurs, récapitulés dans le tableau 3.2, afin d'en identifier les paramètres primaires de leurs modèles de Mason dans une visée de comparaison. Les variations paramétriques dues à la fabrication entre transformateurs de dimensions comparables (PTSD-PTAD) sont cohérentes avec l'étude qui avait été menée sur la série de transformateurs commerciaux au chapitre 2. Ces variations restent inférieures à 8%,

	$F_r[kHz]$	$C_p[pF]$	$R_m[\Omega]$	$L_m[mH]$	$C_m[pF]$	Q_{elec}
PTSD2	$55,57$	1930	165	186	$44,2$	$14,4$
PTSD4	$55,15$	2180	142	179	$46,6$	$13,8$
PTAD1	56	2100	$93,8$	$173,2$	$46,6$	$20,5$
PTAD2	56	2210	70	166	$48,6$	$26,4$
PTAD3	56	2000	$95,2$	$182,5$	$44,3$	$21,3$
PTGD2	$46,8$	3970	$91,7$	140	$82,8$	$14,2$
PTGD3	$46,3$	3850	$71,5$	$146,8$	$80,4$	$18,9$
PTSD1	$54,4$	2370	173	$165,5$	$51,7$	$10,3$

Tableau 3.2 Caractérisation électrique au primaire à vide des 8 transformateur piézoélectrique au mode λ (avec le facteur de qualité électrique $Q_{elec} = 1/R_m\sqrt{L_m/C_m}$)

mis à part pour la résistance motionnelle qui peut observer des variations de plus du double mais qui reste cependant le paramètre le plus fluctuant pouvant pour un même transformateur varier de plus du double au cours de la vie de ce dernier [37].

Les générateurs étudiés présentant des géométries proches et des facteurs de qualité électrique au primaire proches, les étroitesses de leurs pics de résonance peuvent être considérés équivalentes. Cette similarité des paramètres matériaux permet d'établir un lien relatif entre potentiel secondaire, fréquence de claquage et fréquence d'extinction de la décharge plasma comparable d'un design de générateur à l'autre. Une fréquence disruptive plus éloignée de la fréquence de résonance permettrait de traduire une capacité du générateur à monter plus haut en tension au secondaire à vide et atteindre plus rapidement la tension disruptive [120]. Dans le cadre d'études similaires, Clément Nadal [116] a mis en évidence, par l'intermédiaire d'un modèle électromécanique du transformateur, l'existence d'une tension unique propre à la nature gaz que chaque transformateur atteignait à son secondaire pour allumer une décharge. De plus dans le cas de l'étude de l'impact de microstructures à l'extrémité secondaire, l'étude par fréquence permet de s'affranchir des comportements locaux du champ électrique généré et de ne tenir compte que de son impact global. L'aire entre les deux courbes de fréquence de claquage et d'extinction ainsi obtenue forme la plage fréquentielle opérationnelle du générateur piézoélectrique.

Pour rappel, l'approximation linéaire de la décharge ramenée à une unique résistance ne saurait décrire qu'un comportement énergétique macroscopique de la décharge. A l'échelle d'une période, le comportement cyclique, voire anarchique à pression atmosphérique, de la décharge nécessite une remontée en tension à chaque période en condition quasi à vide du générateur (reste d'ionisation du gaz de la précédente période facilitant le rallumage de la décharge) proche des conditions de premier allumage,

d'où la présence de comportements quasi symétriques entre fréquence de claquage et fréquence d'extinction autour de la fréquence de résonance.

Expression de la forme des courbes de tendance des fonctions fréquence de claquage fonction de la pression Il est possible d'interpréter la forme d'équation des courbes de fréquence de claquage vis à vis de la pression en fonction des études sur les décharges de Paschen.

La loi de Paschen peut s'écrire dans les conditions classiques de décharge à barrière diélectrique d'après la pression p du gaz en présence et d l'espace inter-électrode :

$$V_{igni} = \frac{pdB}{C + ln(pd)} \tag{3.1}$$

avec B et C des constantes dépendantes de la nature du gaz, des électrodes et de la géométrie du dispositif.

Au voisinage de la fréquence de résonance, la tension secondaire V_s, d'après le modèle électrique équivalent d'un transformateur piézoélectrique, peut s'exprimer depuis la tension primaire V_p, la pulsation propre ω_0 et la pulsation d'alimentation ω par une courbe de la forme :

$$V_s = \frac{A}{\sqrt{D + \frac{\omega^2}{\omega_0^2}}} V_p \tag{3.2}$$

avec A et D des constantes dépendantes des paramètres du circuit électrique équivalent.

En supposant le générateur à la tension de claquage ($V_s = V_{igni}$) et donc à la pulsation de claquage ($\omega = \omega_{igni}$), les deux précédentes équations se combinent dans l'équation d'ordre 3 suivante donnant la forme des courbes de tendance des mesures de fréquence de claquage ω_{igni} fonction de la pression p à tension primaire V_p donnée

$$\frac{\omega_{igni}}{\omega_0} = \sqrt{A' + B' ln(p) + C' ln(p)^2} \tag{3.3}$$

avec A', B' et C' des constantes dépendantes des 4 constantes précédentes (A, B, C et D) qui, de par la géométrie complexe des générateurs piézoélectriques, sont directement identifiées par approximation de fonction depuis les relevés expérimentaux.

Expression de la forme des courbes de tendance des fonctions fréquence de claquage fonction de la tension primaire Dans le cas d'un fonctionnement linéaire (non saturé) du générateur, la tension secondaire prend la forme explicitée

dans l'équation 3.2. Cela conduit à une approximation de la pulsation de claquage suivante :

$$\frac{\omega_{igni}}{\omega_0} = \sqrt{\frac{A^2}{V_{igni}^2}V_p^2 - D} \tag{3.4}$$

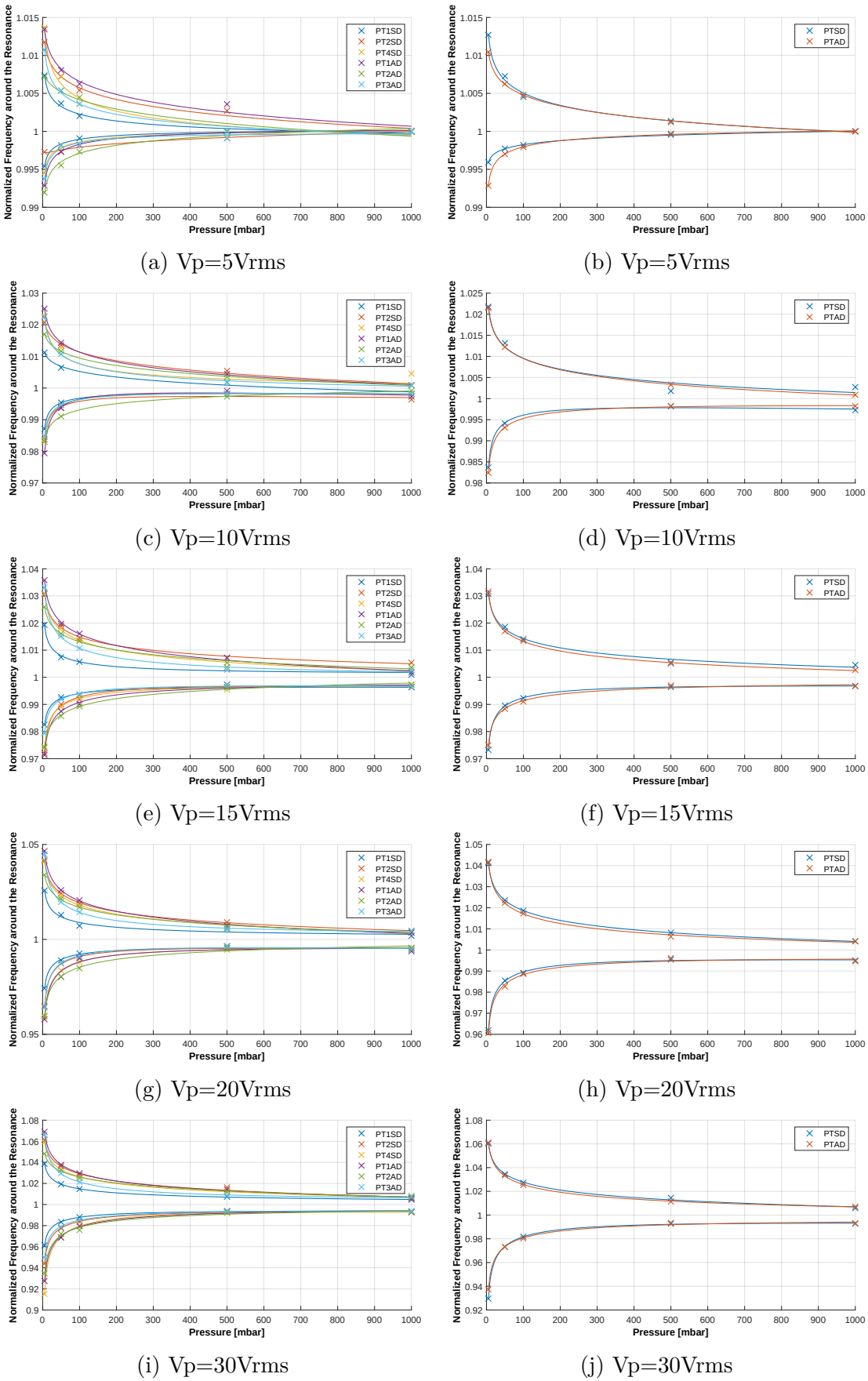
Dans l'approximation d'une constante $D\frac{V_{igni}^2}{A^2V_p^2}$ négligeable devant l'unité, la pulsation de claquage prend la forme d'une droite affine suivant la tension primaire V_p exprimée de la manière suivante

$$\frac{\omega_{igni}}{\omega_0} = \frac{A}{V_{igni}}V_p + \frac{D}{2} \tag{3.5}$$

La même méthodologie peut-être employée dans le cadre des tensions et fréquences d'extinction, suivant donc les mêmes formes d'équation de courbe de tendance que pour la claquage.

3.3.2.1 Observations

Les courbes 3.13 et 3.14 présentent les fréquences de claquage et d'extinction normalisées par rapport aux fréquences de résonance respectives de chacun des transformateurs des séries PTSD et PTAD, c'est à dire la série des transformateurs à microstructure (PTAD1-2-3) et transformateurs à polarisation partielle (PTAD1) vis à vis des transformateurs Rosen de référence pour cette étude (PTSD2-4). La normalisation de la fréquence permet de s'extraire des légères variations de fréquence de résonance de chacun générateur. Pour tous les transformateurs, on observe des courbes de fréquence de claquage croissantes (de fréquence d'extinction respectivement décroissante) fonction de la tension d'alimentation primaire et décroissante (respectivement croissante) fonction de la pression du gaz. Ce qui est cohérent avec les considérations suite aux études de Paschen stipulant dans le cas de DBD, la nécessité de monter en tension, se traduisant par une fréquence plus proche de la fréquence de résonance ou une tension primaire plus importante dans le cas des transformateurs piézoélectriques, pour une montée en pression du gaz à ioniser. Dans le cas des fortes pressions ($> 500mbar$), un décalage de la bande de fréquence opérationnelle du transformateur s'opère, pouvant l'amener à passer entièrement sous la fréquence de résonance. Cette singularité peut être imputée à des phénomènes de non-linéarité nettement plus visibles dans les diagrammes d'admittance de l'annexe A. Les hautes pressions appellent les générateurs



(a) Vp=5Vrms (b) Vp=5Vrms

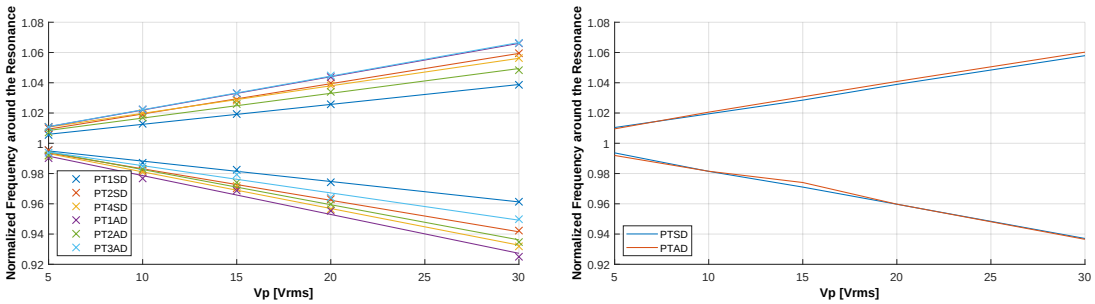
(c) Vp=10Vrms (d) Vp=10Vrms

(e) Vp=15Vrms (f) Vp=15Vrms

(g) Vp=20Vrms (h) Vp=20Vrms

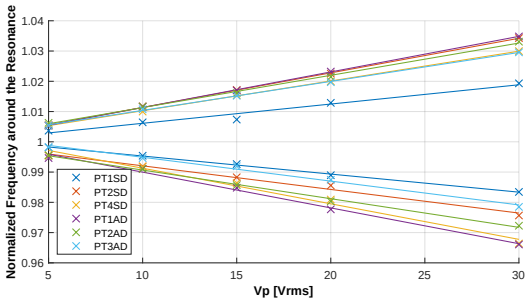
(i) Vp=30Vrms (j) Vp=30Vrms

Fig. 3.13 Fréquence de claquage et d'extinction du plasma fonction de la pression en balayage de fréquence montant pour les séries de PT à microstructures et polarisation partielle

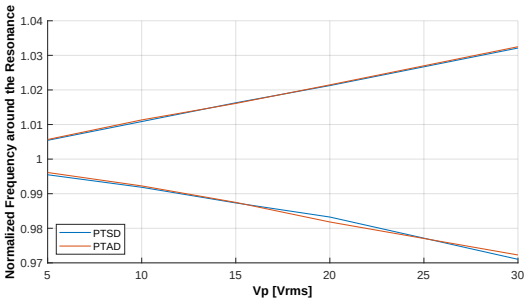


(a) P=5mbar

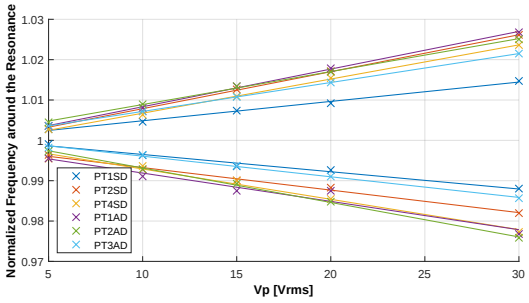
(b) P=5mbar



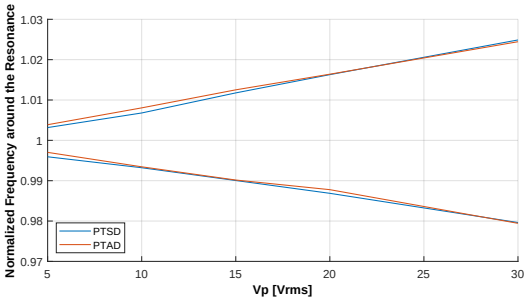
(c) P=50mbar



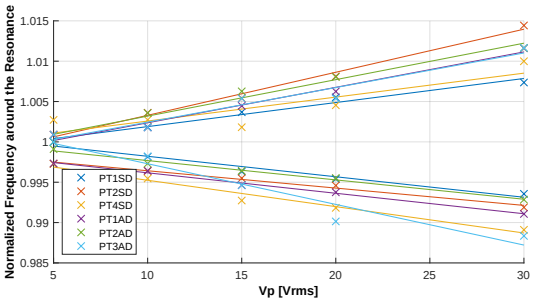
(d) P=50mbar



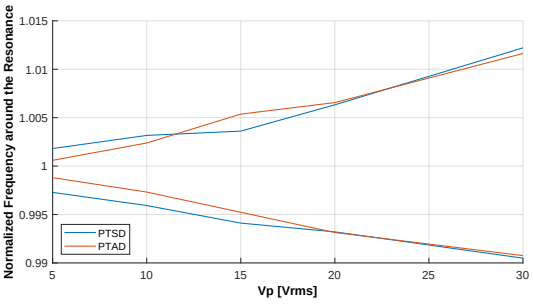
(e) P=100mbar



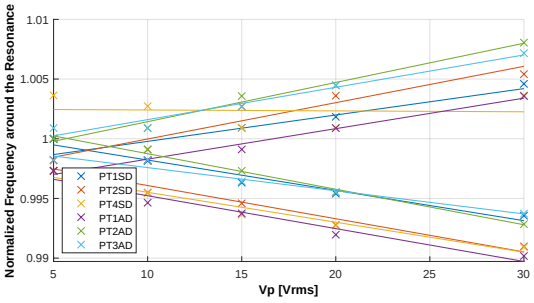
(f) P=100mbar



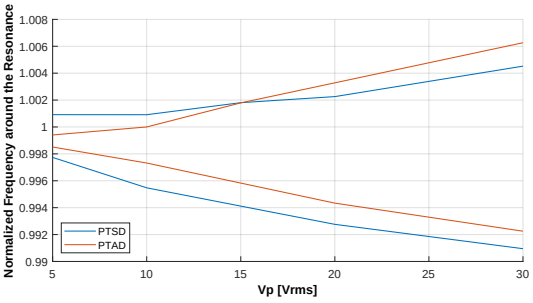
(g) P=500mbar



(h) P=500mbar



(i) P=1000mbar



(j) P=1000mbar

Fig. 3.14 Fréquence de claquage (courbes inférieures) et d'extinction (courbes supérieures) du plasma fonction de la tension primaire en balayage de fréquence montant pour les séries de PT à microstructure et polarisation partielle

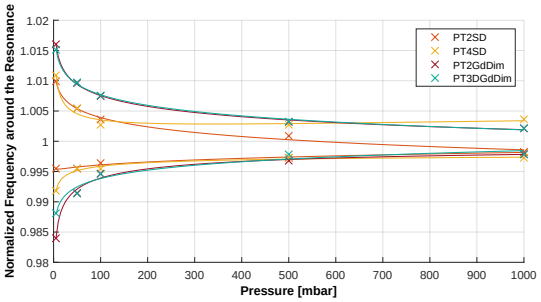
à fonctionner à de plus hauts niveaux de tension entraînant une dérive en fréquence des transformateurs. De plus, à haute pression, il est important de noter l'impact du comportement chaotique de la décharge sur le décalage de ces fréquences d'allumage et d'extinction rendant leur relevé bien plus hasardeux.

Il est à remarquer, dans le cas de l'ajout de microstructures à l'extrémité du transformateur (PTAD2-3), qu'aucune variation nettement supérieure à la variation de performances entre plusieurs échantillons du même design n'est perceptible. L'ajout de microstructures n'a ni amélioré, ni détérioré la plage opérationnelle du générateur. Le générateur à polarisation partielle (PTSD1), quant à lui, présente une très nette distinction de sa zone fonctionnelle face aux générateurs Rosen de référence (PTSD). La plus forte étroitesse de cette dernière vient appuyer les prédictions réalisées par le modèle en fig 3.9 sur le potentiel secondaire à vide de ce design de générateur. Le plus faible gain en tension de ce design de transformateur conforte l'idée de devoir se rapprocher de la fréquence de résonance pour assurer un niveau de tension secondaire suffisant au claquage.

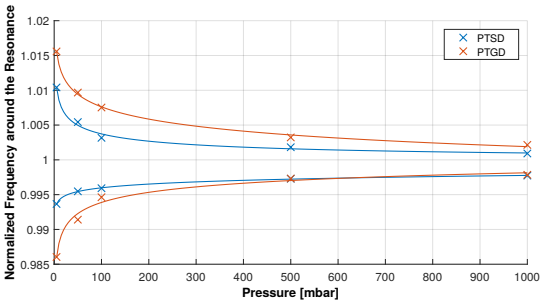
Les courbes 3.15 et 3.16 présentent les fréquences de claquage et d'extinction normalisées vis à vis des fréquences de résonance du mode λ pour les transformateurs à grande longueur primaire (PTGD) en comparaison des transformateurs de référence(PTSD). Dans ces graphiques, les transformateurs sont distingués par leur rapport α de longueur primaire sur longueur totale, $\alpha = 1/2$ pour les PTGD et $\alpha = 1/3$ pour les PTSD. Si ce n'est les cas à haute pression et notamment le cas à pression atmosphérique où les fréquences de claquage se superposent plus ou moins entre les designs, phénomènes que l'on peut une fois de plus imputer aux non-linéarités et à la dérive en fréquence avec la montée en tension primaire, les transformateurs de grande taille présentent une bande de fréquence opérationnelle à la décharge bien plus large que les transformateurs de référence. Ce constat peut s'expliquer par la nette prédominance à vide du gain de tension du transformateur de plus grande taille visible en figure 3.9.

3.3.3 Caractérisation électrique de la décharge

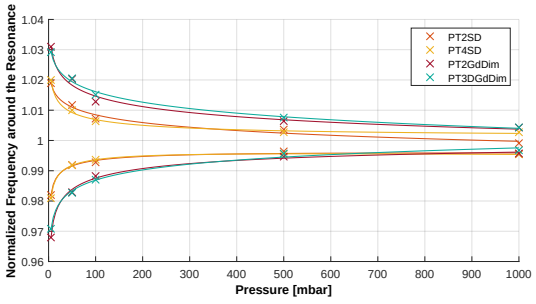
Une décharge plasma peut se caractériser par son activité électronique (courant de décharge). Ce dernier peut s'estimer par le déplacement de charge sur une période correspondant à l'intégrale de la valeur absolue du courant de décharge sur une période. Sur les figures 3.19 et 3.20, les courbes de déplacement de charge sont mesurées à partir des relevés des formes des courants de décharge en fig 3.17 pour chacun des designs de transformateurs piézoélectriques à $30V_{rms}$ d'alimentation primaire et pour 5 niveaux



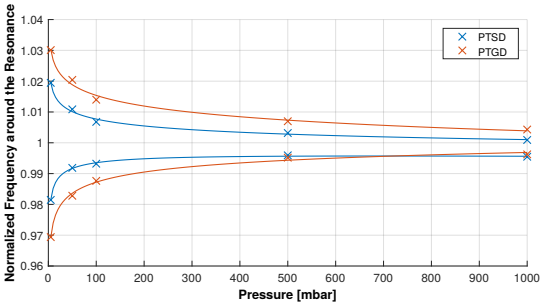
(a) Vp=5Vrms



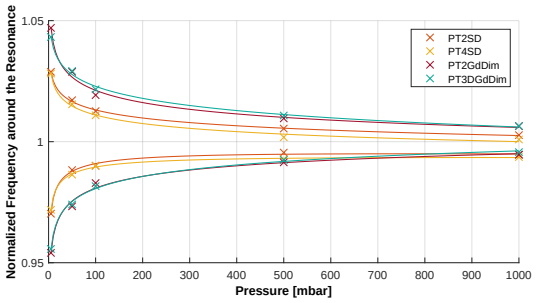
(b) Vp=5Vrms



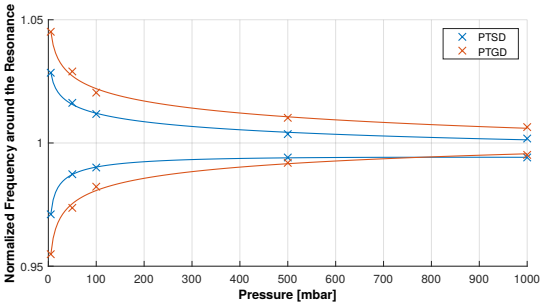
(c) Vp=10Vrms



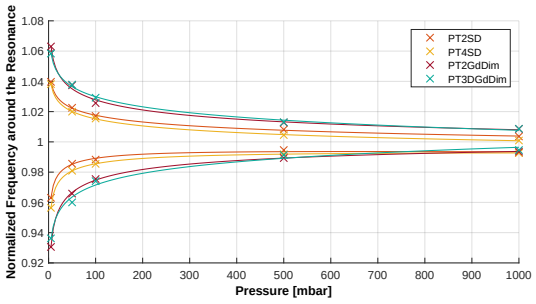
(d) Vp=10Vrms



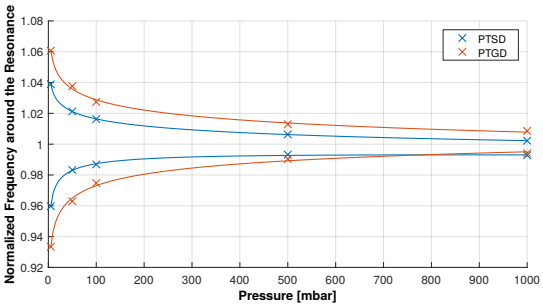
(e) Vp=15Vrms



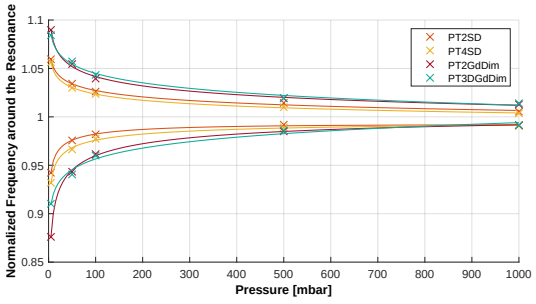
(f) Vp=15Vrms



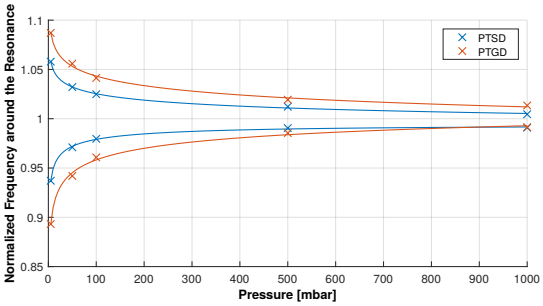
(g) Vp=20Vrms



(h) Vp=20Vrms

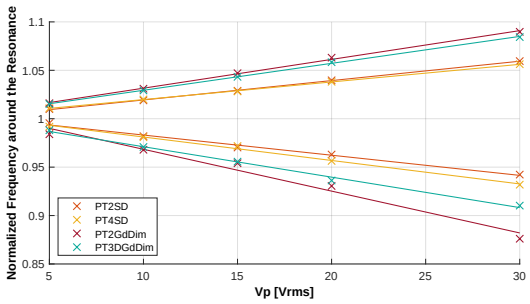


(i) Vp=30Vrms

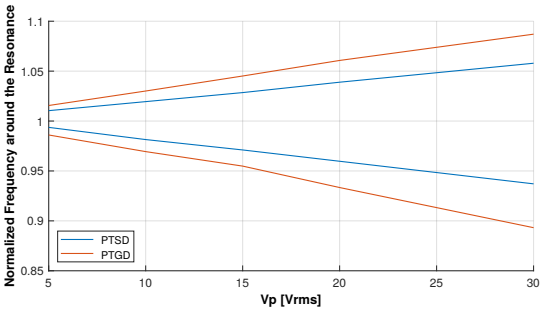


(j) Vp=30Vrms

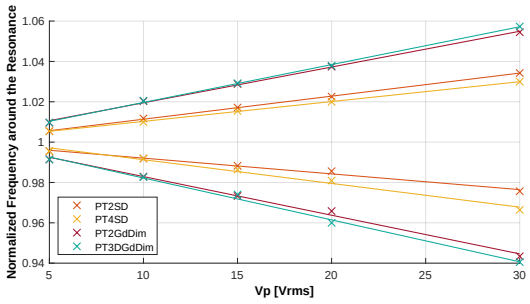
Fig. 3.15 Fréquence de claquage et d'extinction du plasma fonction de la pression en balayage de fréquence montant pour les séries de PT à grande longueur de primaire



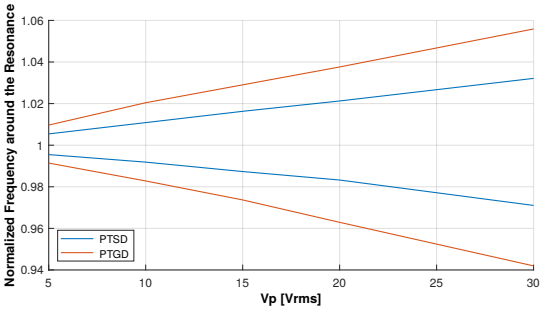
(a) P=5mbar



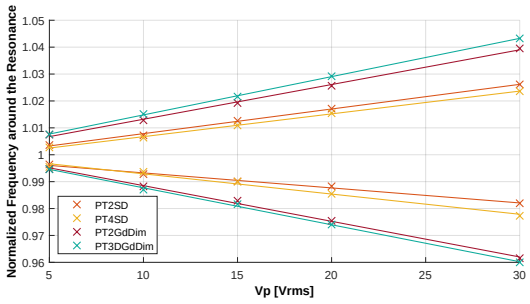
(b) P=5mbar



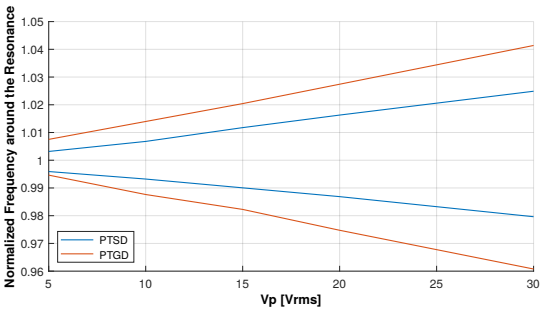
(c) P=50mbar



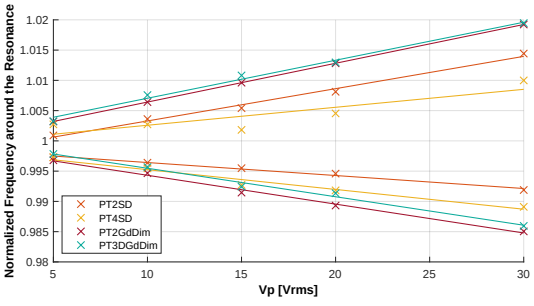
(d) P=50mbar



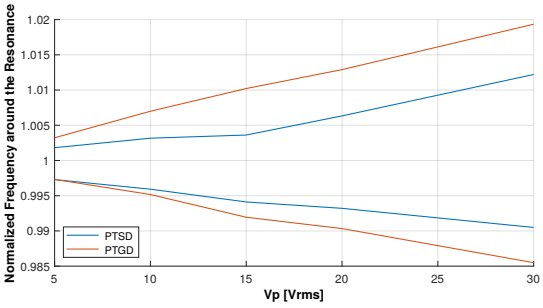
(e) P=100mbar



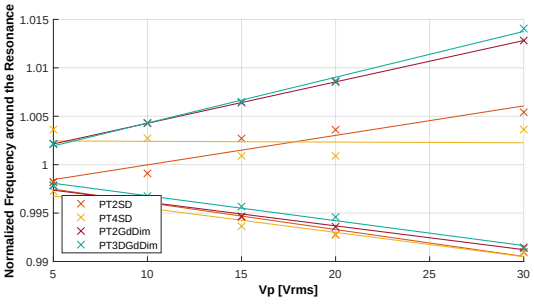
(f) P=100mbar



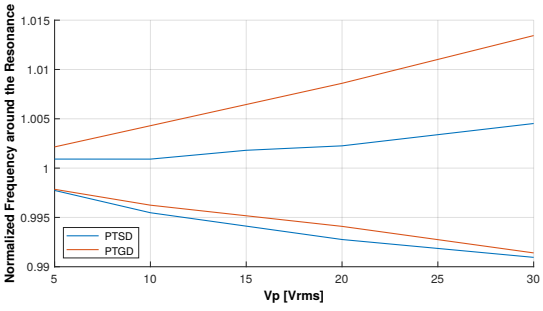
(g) P=500mbar



(h) P=500mbar

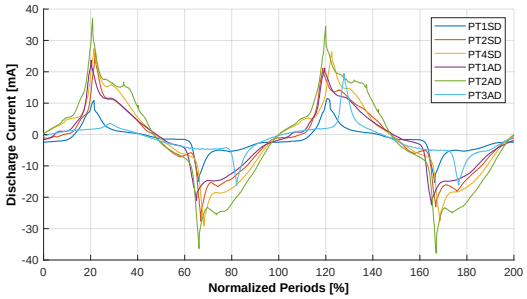


(i) P=1000mbar

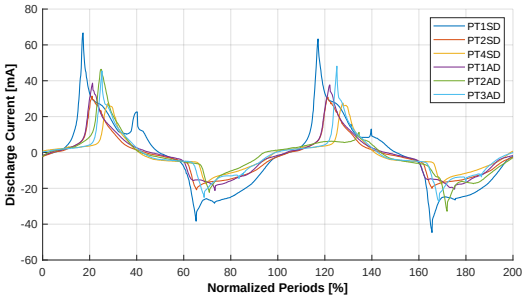


(j) P=1000mbar

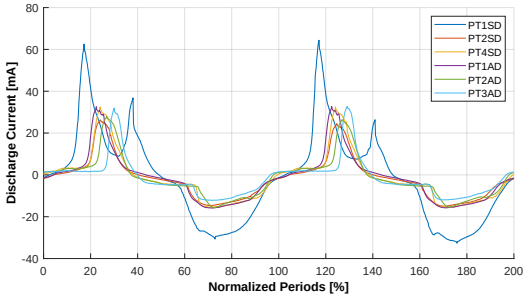
Fig. 3.16 Fréquence de claquage et d'extinction du plasma fonction de la tension primaire en balayage de fréquence montant à grande longueur de primaire



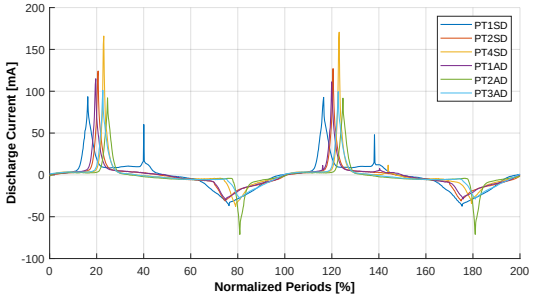
(a) P=5mbar



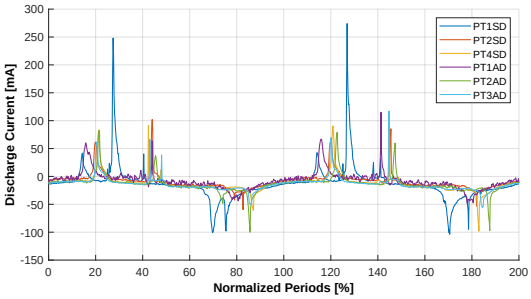
(b) P=50mbar



(c) P=100mbar



(d) P=500mbar



(e) P=1000mbar

Fig. 3.17 Courant de décharge

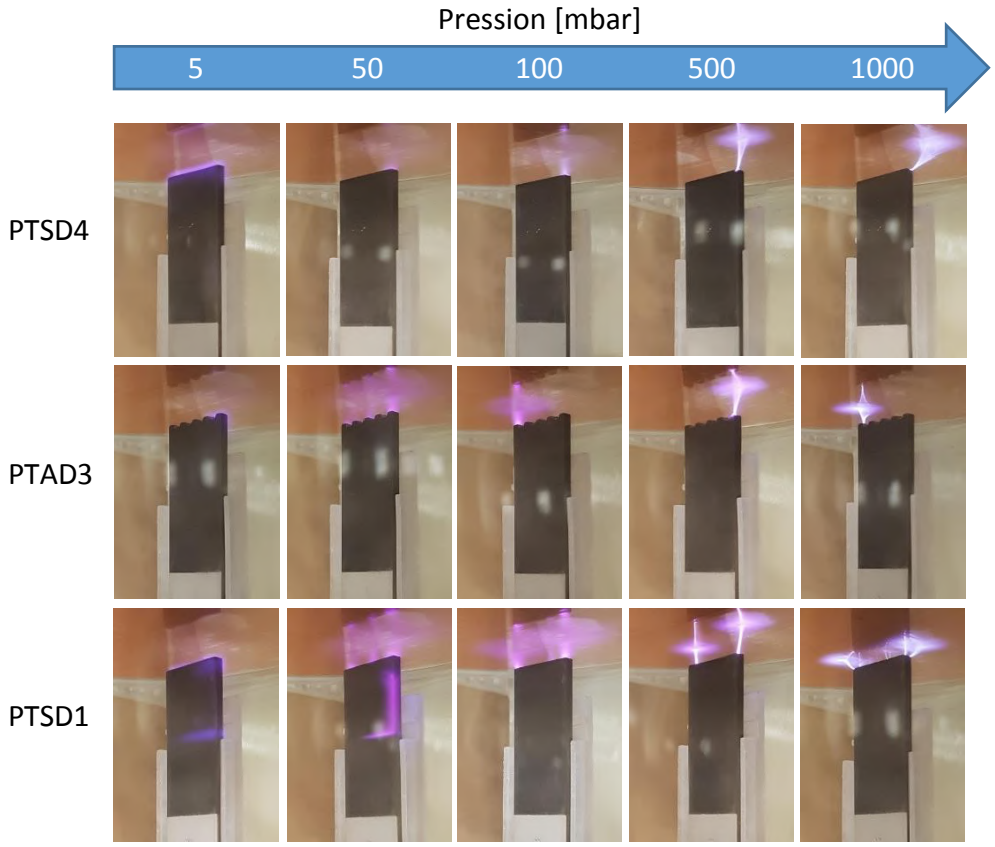


Fig. 3.18 Formes des décharges pour différents générateurs à 5 niveaux de pression pour une alimentation de $30V_{rms}$ aux fréquences ayant maximiser l'admittance à chaque balayage

de pression d'argon pur ($5mbar$, $50mbar$, $100mbar$, $500mbar$, $1000mbar$). Pour les faibles pressions (5mbar), les décharges plasma peuvent ne pas suffisamment s'étendre jusqu'à la contre-électrode, ce qui amène les résultats assez diffus des essais à $5mbar$. Quel que soit le niveau de pression, on observe une même tendance entre chaque transformateur piézoélectrique. Dans la figure 3.19, sont comparées les décharges issues des transformateurs Rosen de rapport $\alpha = 1/3$, de leur équivalent avec structure complexe à l'extrémité secondaire et générateur avec polarisation partielle. Le premier constat est l'absence d'évolution que ce soit positive ou négative de l'ajout de structure à l'extrémité du secondaire. Le principal objectif de ce type de structure était la possibilité de multiplier les pointes et ainsi d'augmenter le volume de décharge. Toutefois comme il est visible sur les photos de décharge, que le transformateur soit muni de structures complexes à son extrémité ou non, le plasma conserve un régime diffus homogène sur

toute l'extrémité du générateur pour les basses pressions et pour les hautes pressions un régime corona uniquement aux angles extérieurs du générateur. Il semble, qu'une fois une première décharge initiée et transformateur amorti, le potentiel électrique ne soit plus suffisant sur les dents centrales pour initier une décharge. Cette supériorité des potentiels électriques des dents extérieures se retrouvent dans les simulations par éléments finis menés sur ce type de design en figure 3.7. Ce phénomène se retrouve sur l'évaluation des déplacements de charge (fig 3.19) qui s'avère inchangée par l'ajout de dents. Pour l'évaluation des transformateurs piézoélectriques à ratio $\alpha = 1/2$, à facteur de qualité électrique identique, ils présentent de meilleurs gains à vide qui se traduisent par des fréquences de claquage plus basses. Nonobstant une fois en décharge, la puissance qu'ils sont capables d'insuffler à la décharge s'en voit grandement diminuée. Comme il avait été anticipé par les tendances en figure 3.9, les grandes tailles des transformateurs piézoélectriques à ratio $\alpha = 1/2$ leur octroient un plus grand potentiel secondaire à vide cependant une fois en décharge, ils montrent un plus mauvais maintien en tension conduisant à ces régimes dégradés. Inversement, les transformateurs piézoélectriques à polarisation partielle s'avèrent plus difficiles à initier une décharge mais s'avèrent bien plus capables de maintenir la tension et de transmettre de la puissance à la décharge. De plus, en figure 3.18, il est remarquable de constater que pour les basses pressions, une décharge luminescente se forme à la moitié du secondaire du transformateur piézoélectrique à polarisation partielle (PTSD1) correspondant à l'intersection entre ses zones polarisée et passive, phénomène non anticipé par les simulations.

3.4 Évaluation des capacités bactéricides

3.4.1 Mise en œuvre spécifique du dispositif

L'objectif de cette thèse étant à visée biomédicale, deux principaux axes applicatifs sont envisagées. Le premier consiste en un Plasma Jet à pression atmosphérique pour la désinfection d'outils chirurgicaux par exposition directe à la plume plasma. La seconde est de la génération suivant une structure assimilable à une DBD pour la désinfection d'instruments endocavitaires tels que des endoscope.

3.4.1.1 Elaboration de support spécifique

Afin de répondre à ces objectifs applicatifs, quatre dispositifs ont été développés et testés en décontamination. Les trois premiers en figures 3.21, 3.22 et 3.23 répondent à

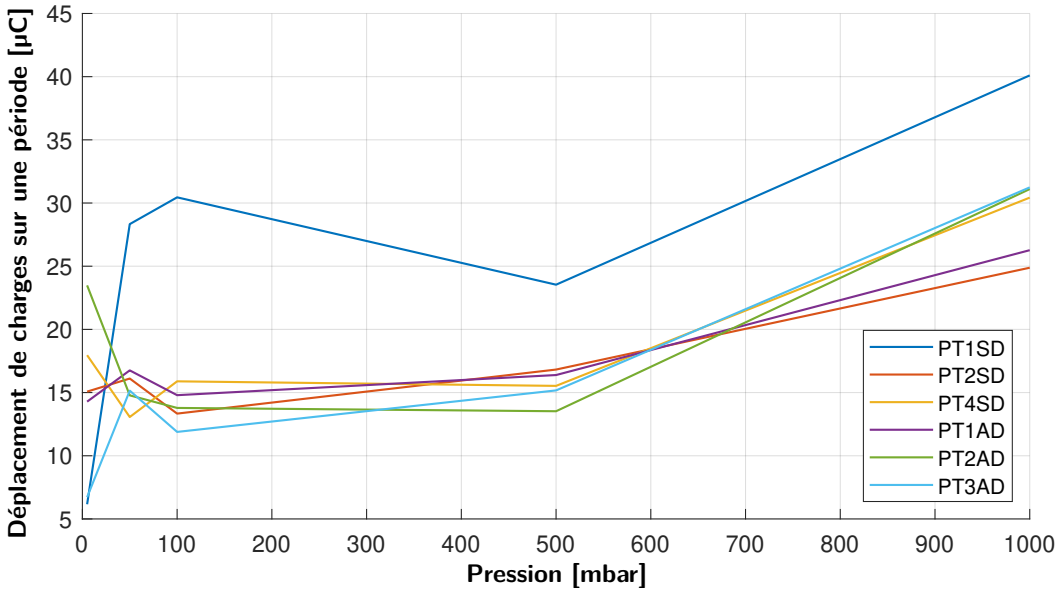


Fig. 3.19 Déplacement de charge par période

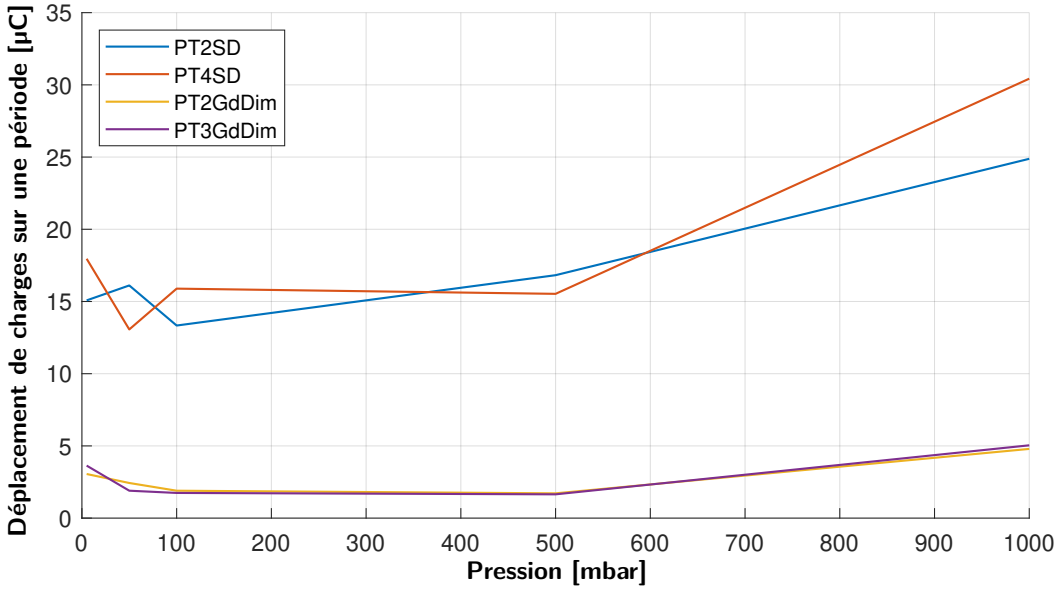


Fig. 3.20 Déplacement de charges par période

l'objectif de génération d'un APPJ tandis que la figure 3.24 illustre la strcture DBD pour la désinfection endocavitaire.

Le premier dispositif en figure 3.21 est composé d'un transformateur piézoélectrique monocouche 6W de la société Steminc. Le transformateur est directement et entièrement plongé dans le flux d'argon de 1L/min. La buse de sortie se termine sur un long bec

de moins de 2mm de diamètre intérieur afin d'assurer un flux laminaire en sortie. En limitant ainsi les turbulences en sortie, cette buse permet de conserver un flux d'argon ionisé et laminaire sur plusieurs centimètres de longueur, augmentant ainsi la surface d'interaction entre l'air et le jet plasma.

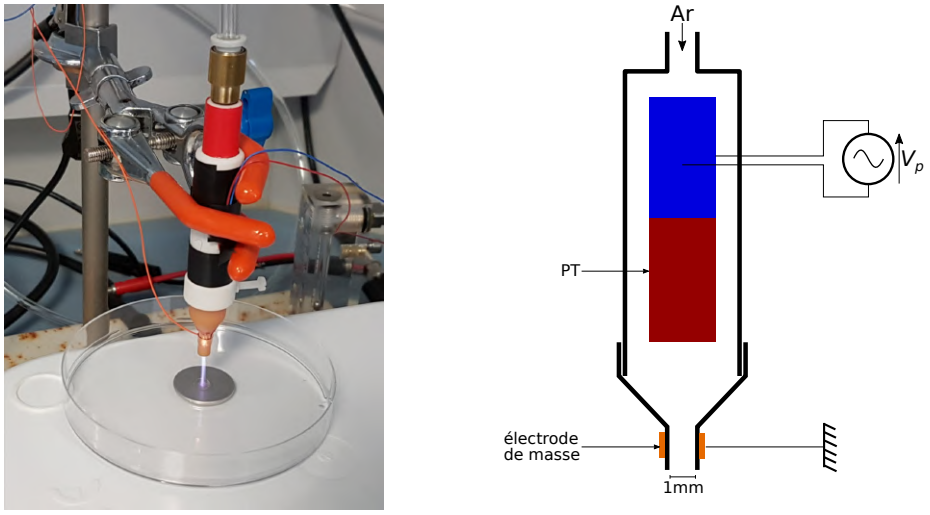


Fig. 3.21 Dispositif APPJ équipé d'un transformateur piézoélectrique monocouche 6W fonctionnant sous fux d'argon

Le second dispositif, en figure 3.22, intègre un transformateur piézoélectrique multicouche 4W de Steminc. Ce type de transformateur a malheureusement tendance à arquer vers son primaire s'il est entièrement plongé dans un gaz facilement ionisable comme l'argon. Afin de parer ce phénomène, le dispositif intègre une coque dans laquelle est encapsulé le primaire du transformateur afin de l'isoler du flux d'argon.

Le troisième dispositif, en figure 3.23, est constitué de 3 transformateurs piézoélectriques monocouhe 12W de Steminc connectés en parallèle. Ils sont montés en étoile autour d'un tube en silicone de 1mm d'épaisseur dans lequel circule le flux d'argon. Ainsi, ils se partagent la même charge et contribuent chacun à la montée en puissance de la décharge.

Enfin, le dispositif de figure 3.24 destiné à la désinfection d'endoscope se présente sous la forme d'un cylindre autour duquel s'enroule l'endoscope. Chaque secteur de 120° va alors fonctionner comme un dispositif DBD. Le tuyau d'endoscope dans lequel circule un flux d'argon est comprimé entre deux électrodes. L'électrode de masse placée sur le cylindre interne se retrouve en vis à vis d'une électrode haute tension placée sur un des bras et alimentée par un transformateur piézoélectrique. Afin de générer des espèces oxydantes nécessaire à assurer les capacités biocide du dispositif, le gaz circulant dans l'endoscope est un mélange d'argon et de dioxygène.

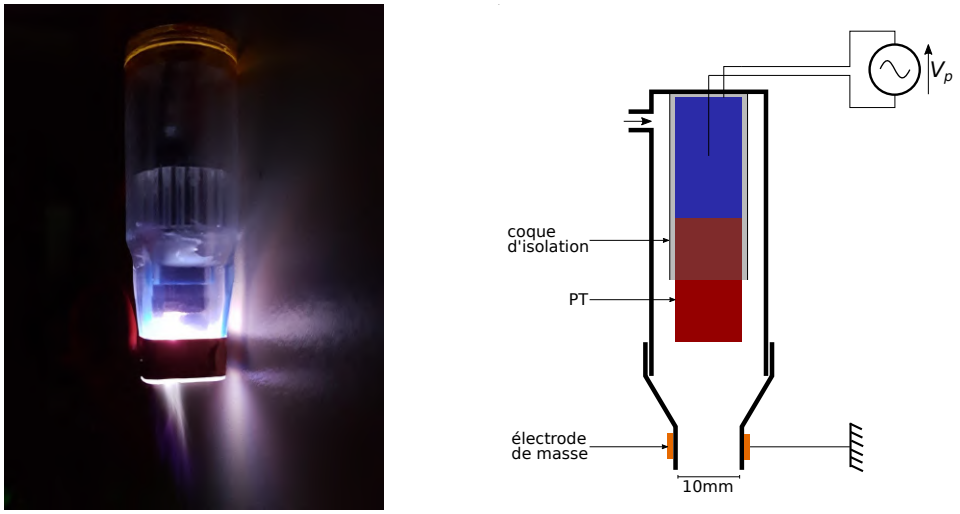


Fig. 3.22 Décharge en stylet à buse large alimenté en argon pur et équipé d'un transformateur piézoélectrique multi-couche 4W

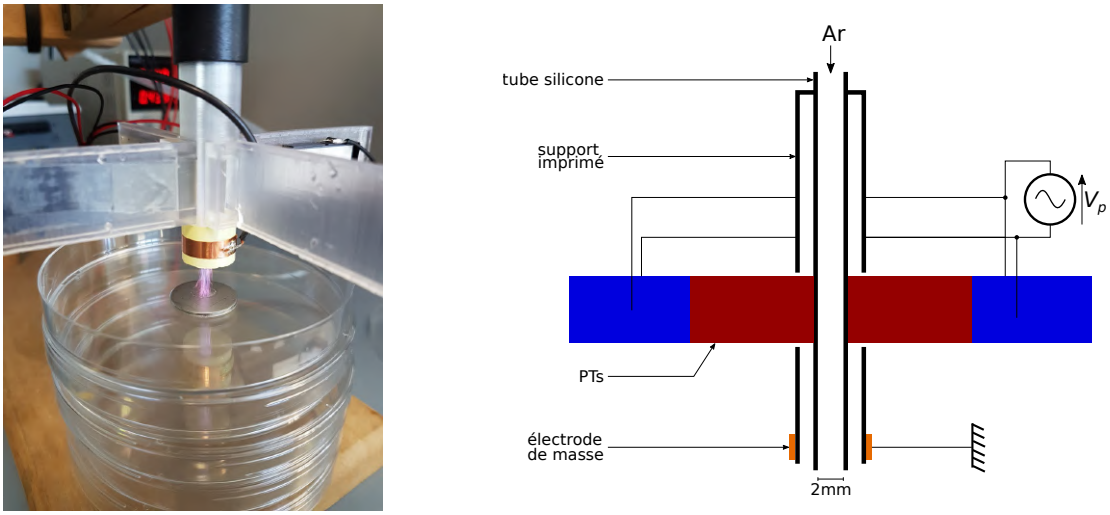


Fig. 3.23 Décharge en stylet à 3 transformateurs piézoélectriques monocouche 12W sous flux d'argon

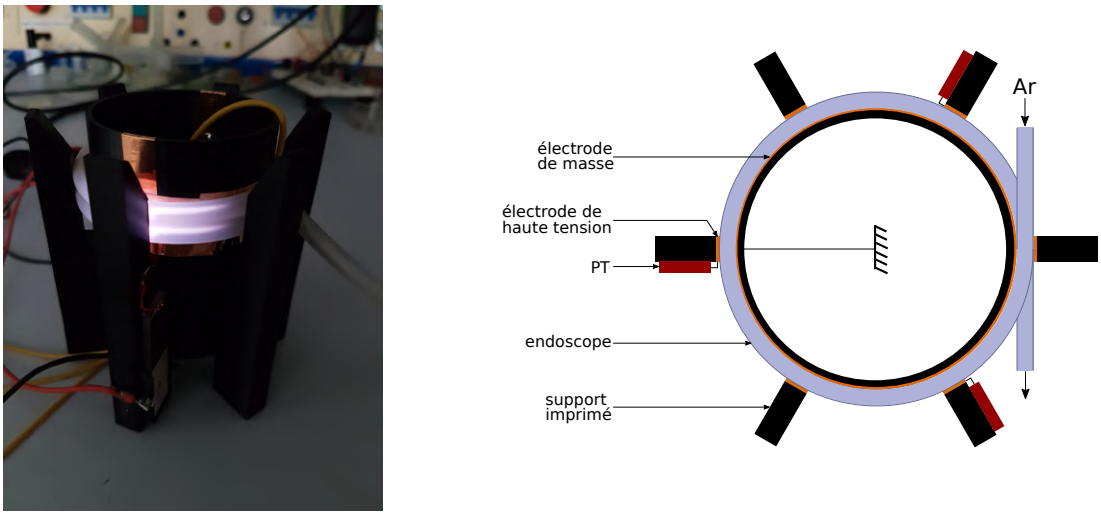


Fig. 3.24 Décharge en dispositif tube dédié à la désinfection interne d'endoscope alimenté en argon mélangé à du dioxygène équipé de 3 PT 12W et pouvant aller jusqu'à 6PT

3.4.1.2 Caractérisation spectrale

La capture des spectres d'émission est réalisée par une fibre optique connectée à un spectroscope optique de la société Avantes (AvaSpec-ULS3648–USB2–FCPC) fonctionnant dans le domaine spectral 200-450nm. Une partie de ce domaine se situant dans le domaine visible (350-450nm), un étalonnage est réalisé avant mesure. Il consiste en l'acquisition d'un spectre hors fonctionnement qui sera par la suite soustrait aux différents relevés afin d'éliminer le parasitage sur les relevés ("Dark Mode"). Au cours des relevés, les raies spectrales pouvant présenter des intensités variées, différents temps d'exposition seront employés afin de mettre en évidence des pics plus modestes, au détriment de la saturation des pics prépondérants.

La zone de post-décharge se caractérise, dans le spectre 200-400nm, principalement par de fort pics d'émission d'ion hydroxyde OH autour des 308nm. Précisons que l'excitation d'atome d'argon n'est pas visible dans ce domaine spectral puisque ses premiers pics caractéristiques n'apparaissent qu'à partir de 670nm.

Lorsque le gaz porteur (argon) de la décharge n'est pas au contact de l'air, il n'y a pas de production d'espèces réactives et oxydantes aux propriétés bactéricides. Dans ce cas il est nécessaire d'ajouter de dioxygène à l'argon pour palier l'absence d'échange avec l'air. C'est le cas du traitement endocavitaire pour lequel le gaz circule au travers d'une durite et n'est pas en contact avec l'air. Une proposition de dosage de la concentration en O_2/Ar a été établi sur la base d'une étude spectrale en figure 3.25. En effet, une concentration trop importante de O_2 affecte la puissance de décharge,

tandis qu'une trop faible concentration est faiblement bactéricide. Il existe donc un dosage optimal.

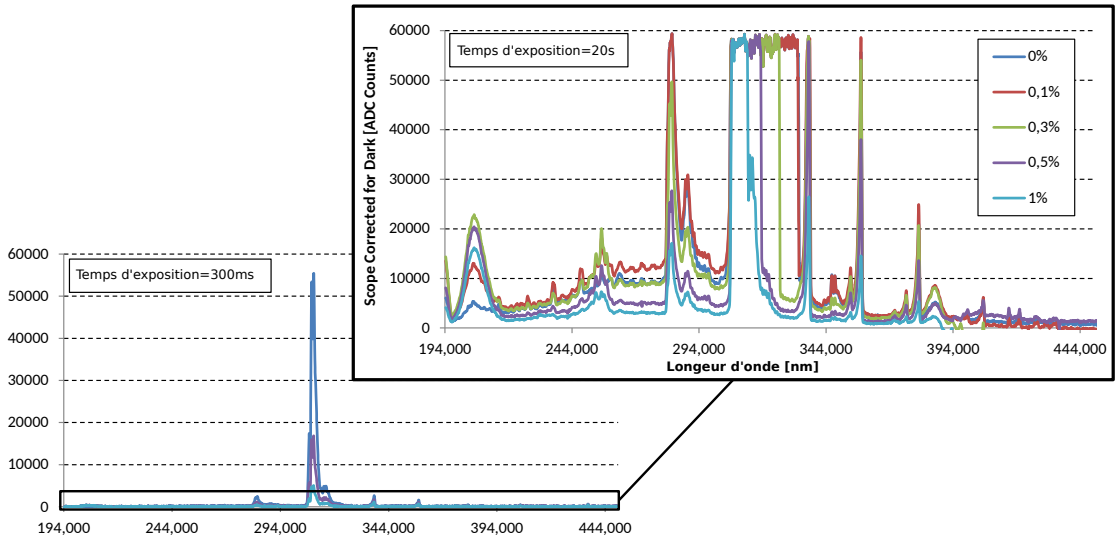


Fig. 3.25 Relevés spectroscopiques d'un jet plasma d'argon pour différentes concentrations de dioxygène

Cette valeur de concentration est déterminée grâce à l'observation et la maximisation du pic de désexcitation de molécules NO_γ (205 nm). Ce choix s'impose par la plage observable limitée. Ainsi, en figure 3.26, l'optimal de concentration en O_2 du mélange a pu être fixée à 0,3%.

3.4.2 Essai de décontamination

3.4.2.1 Protocole d'évaluation des capacités bactéricides

L'ensemble des essais bactéricides a été mené dans les laboratoires de la société ANIOS. Le protocole employé durant ces essais est une adaptation du protocole EN 13697 décrit ci-après. Deux types de souches bactériennes sont utilisés: *Staphylococcus aureus* et *Pseudomonas aeruginosa*. Chacune des souches est représentative d'une catégorie de bactéries, respectivement Gram+ et Gram-, qui se distinguent par la structure de leur paroi externe.

Préparation des échantillons Suivant les essais à mener, les inocula bactériens peuvent se présenter sous deux formes : goutte sur support inox pour les essais à air libre ou biofilm pour les essais en cavité interne. Pour les préparations d'inoculum

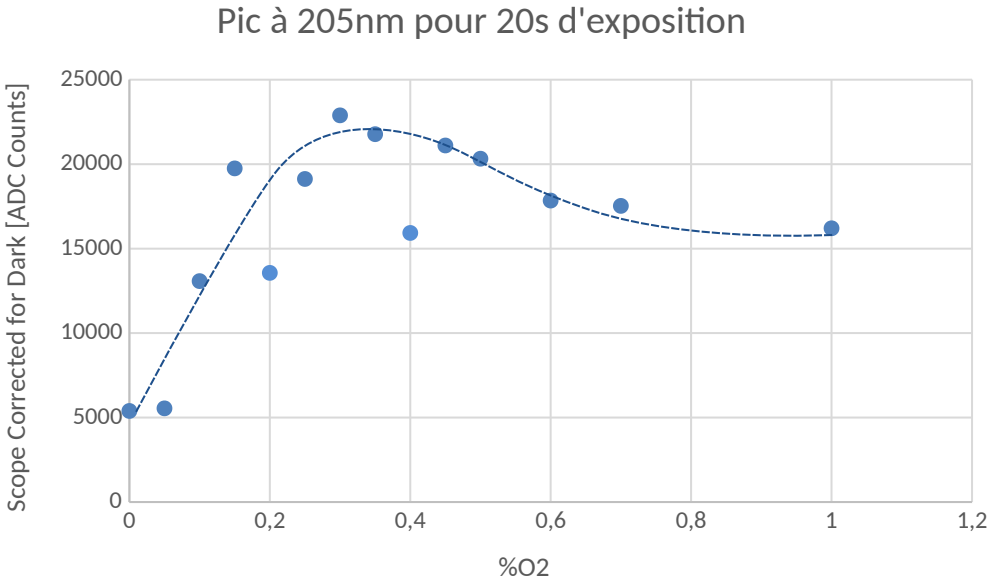


Fig. 3.26 Étude de l'évolution de l'intensité d'émission à 205nm (zone de post-décharge) suivant la concentration de dioxygène dans un mélange $Ar + O_2$ sur

sur substrat inox, une goutte de 50µL de solution bactérienne est déposée sur une pastille inox de 2cm de diamètre puis séchée durant 25min dans une étuve à 37°C pour le *Staphylococcus aureus* ou 50min sous hotte à température ambiante pour le *Pseudomonas aeruginosa*. Les souches de *Pseudomonas aeruginosa* ayant une durée de vie plus courte une fois séchée que les *Staphylococcus aureus*, respectivement 30min contre 2h, pour les longues phases d'essai, les échantillons sont divisés en plusieurs groupes test séchés successivement, comprenant chacun un échantillon témoin qui servira de référence pour le dénombrement final.
Pour la préparation des biofilms pour les endoscopes, un écoulement de 96h d'une solution nutritive TCS (Tripton-Caséine-Soja) contenant les bactéries dans un tube de 2m permet la création d'agrégats bactériens sur sa surface interne. Le support est par la suite séché sous étuve à température ambiante avant traitement et découpé en 8 tronçons de 20cm et 1 tronçon de 10 cm servant de témoin. Les deux extrémités du tube sont abandonnées car potentiellement mal contaminées.

Traitement des échantillons post-essais A la suite de leur exposition au procédé à tester, les échantillons sont plongés dans une solution d'eau distillée mélangée à du twin (tensioactifs) et des billes de verre, passés au vortex pour les décoller les bactéries

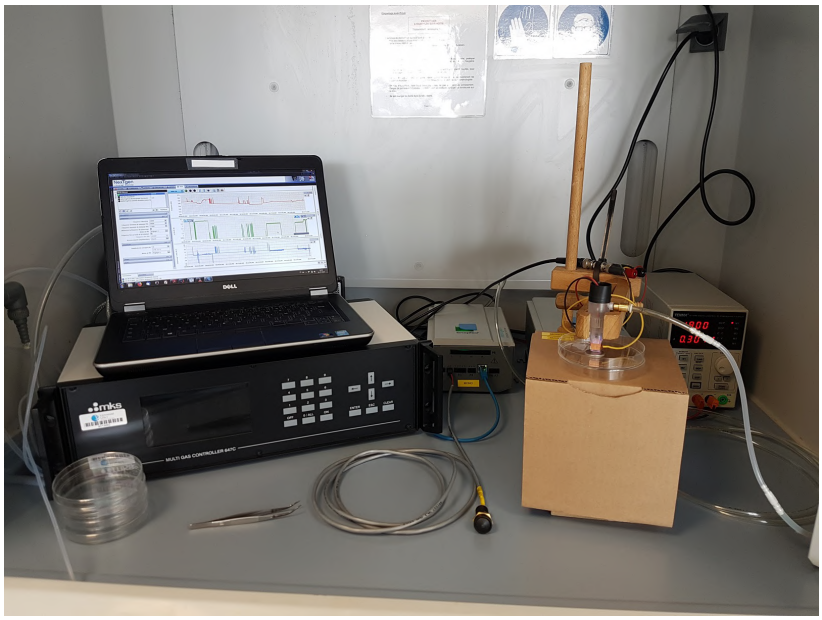
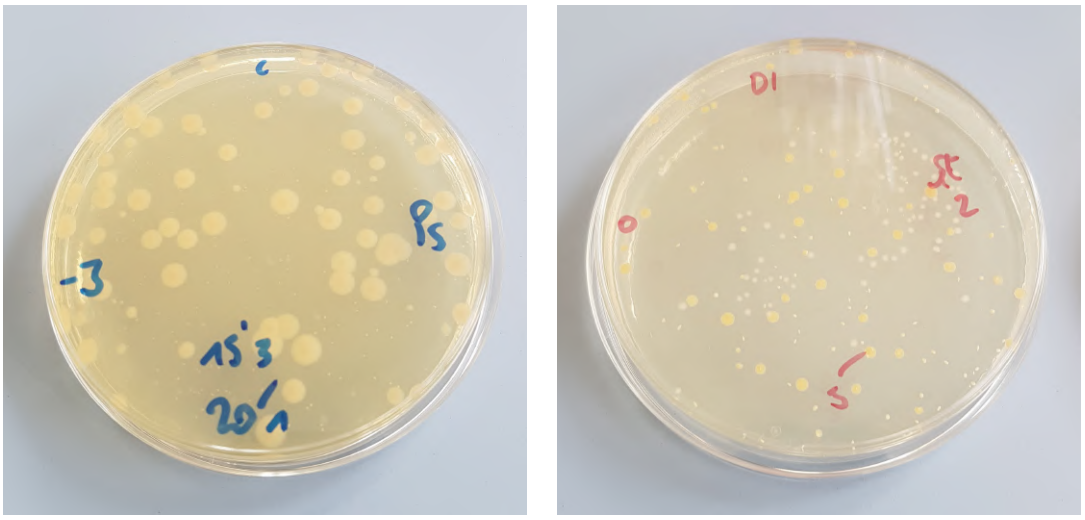


Fig. 3.27 Banc d'essai bactéricide

de leur support par agitation mécanique. Dans le cas du tube, seul les 13cm centrales du tube réellement exposés au procédé sont conservé et disséquer pour être plongés dans 20ml de la solution d'eau et de twins. Chaque mélange ainsi obtenu, de manière identique pour les échantillons témoins, est divisé en plusieurs mélanges de différents niveaux de dilution : -3, -4, -5 et -6 log pour les échantillons témoins et 0, -1 et -2 log pour ceux issus des essais (censés contenir moins de bactéries après traitement). Ces seconds mélanges sont ainsi mis en culture, en étuve à 37°C, durant 48h en boîte de Petri contenant une solution nutritive TCS pour que les bactéries "survivantes" puissent se rediviser et former des colonies visibles à l'œil nu et dénombrables (figure 3.28).

Dénombrement Le dénombrement des bactéries "survivantes" est effectué à l'œil nu en comptant le nombre de colonies bactériennes qui ont réussi à se développer après la période d'étuve, chacune correspondant à une bactérie qui a pu se redévelopper. Le dénombrement se fait par l'observation des différentes mise en culture obtenues avec différents niveaux de dilution. Les boîtes de Petri contenant entre 14 et 300 colonies sont celles conservées pour le comptage. Ainsi l'efficacité de chaque essai est évaluée en log de réduction par rapport à l'échantillon de référence de la série suivant la relation suivante :

$$log_{reduc} = log(\alpha_{échantillon} n_{échantillon}) - log(\alpha_{témoin} n_{témoin}) \tag{3.6}$$



(a) *Pseudomonas aeruginosa* (b) *Staphylococcus aureus*

Fig. 3.28 Exemples de boîte de Pétri après 48h d'étuve

avec α les rapports de dilution et n les nombres de survivants (colonies).

En deçà de 14 colonies dénombrées même pour le plus bas niveau de dilution, la quantité de colonies n'est plus considérée suffisante pour appliquer la formule précédente. Le protocole fixe alors la réduction de log à $>\approx 4,4log$ pour un résultat entre 1 et 13 colonies dénombrées pour justifier de la capacité de désinfection mais pas de stérilisation, valeur dépendant de l'échantillon témoin, et $>\approx 6,7log$ quand plus aucune colonie n'est visible. Une désinfection est considérée significative à partir d'une réduction de $4log$ tandis qu'une stérilisation efficace est au delà de $6log$.

3.4.2.2 Résultats de désinfection

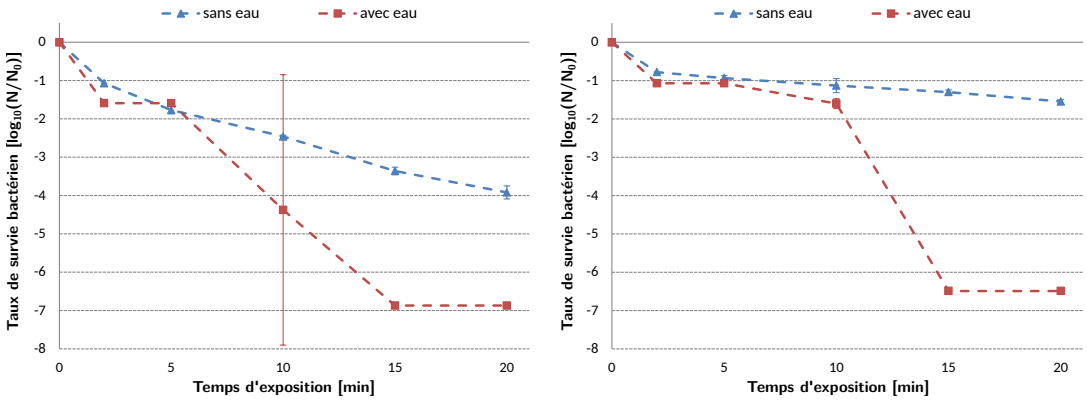
Les résultats biocides se présentent sous la forme de courbes de réduction du nombre d'individus suivant une échelle logarithmique. Chaque dispositif a pu être testé suivants plusieurs conditions, offrant d'une part une comparaison globale entre les différents type de générateurs. Différents jeux de paramètres ont pu être testés pour mettre en évidence les facteurs influants sur l'efficacité du procédé tel que le niveau de tension d'alimentation primaire ou la présence d'autres éléments dans le processus de décharge tel que de l'eau ou du dioxygène.

Structure Plasma Jet - stylet de générateur 6W Deux types de configuration ont pu être testés avec et sans ajout d'une gouttelette d'eau de $50\mu L$ déposée sur l'inoculum après séchage. Le plasma jet est ensuite appliqué sur la goutte d'eau. Ce

test est réalisé car la présence d'eau autorise la formation d'espèces de type peroxyde, particulièrement efficaces pour leur forte activité biocide.

Dans les deux cas avec et sans eau, la décharge est générée par un transformateur piézoélectrique de 6W monocouche alimenté en $30V_{rms}$ sous un flux de $4L/min$ d'argon pur pour une puissance injectée de $5,1W$ en moyenne avec l'échantillon bactérien placé à 1,5cm de distance de l'extrémité de la buse. La comparaison observable sur le graphique 3.29 est sans appel. Que ce soit pour le *Staphylococcus aureus* ou le *Pseudomonas aeruginosa*, les performances du procédé se voient nettement améliorées en présence d'eau après 10-15min d'exposition, et ce malgré une évaporation complète de la goutte d'eau après seulement 5min d'exposition.

La présence de l'eau accélère la production d'espèce réactive. Différents mécanismes concourrent à la dissociation de l'eau en ion hydronium et hydroxyle. Le principale mécanisme de production d'ion OH dans de l'argon contenant un peu d'eau est l'action des électron libre dans l'eau $e + H_2O \rightarrow OH + H + e$ et celle des atomes d'argon metastable sur l'eau $Ar^m + H_2O \rightarrow OH + H + Ar$. Dans les régions à faible température électronique, on peut aussi compter sur les mécanismes de recombinaison des molécules d'eau ionisées $e + H_2O^+ + \rightarrow OH + H$ [13].



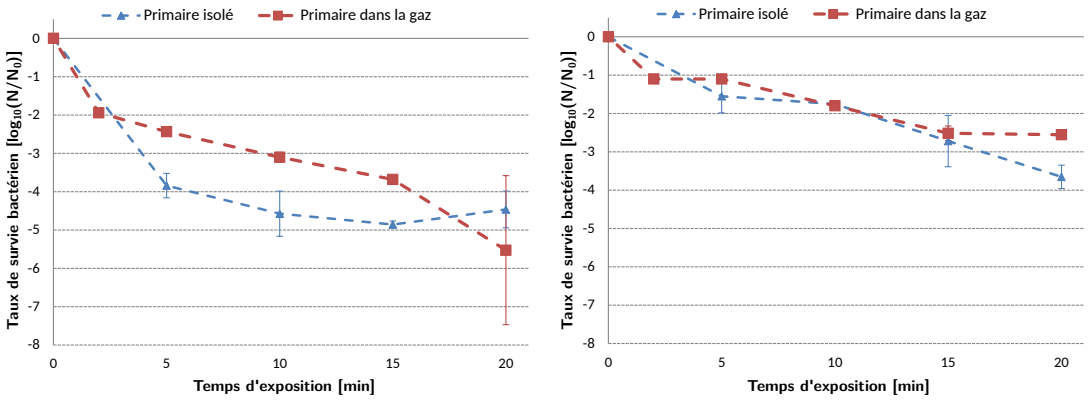
(a) *Pseudomonas aeruginosa* (G-) (b) *Staphylococcus aureus* (G+)

Fig. 3.29 Résultats biocides PT 6W

Structure Plasma Jet - stylet de générateur 4W Ce type de stylet exploite des buses de sortie plus larges que celles des PT 6W, avec pour ambition de traiter de plus grandes surfaces mais sans employer d'eau. Ils sont placés à 5mm de la cible avec un débit de $4L/min$. Les générateurs 4W multicouches ont présenté des passages à l'arc intempestif vers le primaire, ce qui d'une part, endommage le transformateur, et d'autre part ne favorise pas l'ionisation du plasma jet. Ce défaut de fonctionnement n'apparait

pas sur les transformateurs 6W, ce qui s'explique certainement par la plus grande longueur du secondaire et par conséquent une meilleure isolation primaire/secondaire par éloignement.

Pour éviter ces phénomènes de passage à l'arc indésirable et destructif, une première solution consiste à diminuer la tension d'alimentation primaire à $2,7V_{rms}$ limitant la puissance injectée à $2,2W$. Pour conserver une montée en tension suffisante, il est nécessaire d'améliorer l'isolation diélectrique du primaire. La solution choisie consiste à ajouter une coque enveloppant le primaire de sorte à ce que le primaire ne soit pas soumis au flux d'argon. Le primaire reste ainsi en environnement air, ce qui limite le passage à l'arc. Cette solution technique permet une montée en tension du primaire jusqu'à $3,5V_{rms}$ soit un peu plus de $3W$. Sur le graphe 3.30 sont donc présentés les performances bactéricides des deux structures de stylet exploitant pour l'un un transformateur piézoélectrique 4W à $2,7V_{rms}$ et l'autre à $3,5V_{rms}$. Dans le cas du *Staphylococcus aureus*, l'amélioration n'est que très légèrement observable à partir de 20min. En revanche dans le cas du *Pseudomonas aeruginosa*, une très nette amélioration est perceptible dès 5min. Cette comparaison démontre que la puissance injectée n'a pas nécessairement un impact identique et proportionnel suivant la nature des bactéries. D'une manière générale, les bactéries Gram- apparaissent plus fragiles au traitement.



(a) *Pseudomonas aeruginosa* (G-) (b) *Staphylococcus aureus* (G+)

Fig. 3.30 Résultats biocides PT 4W sous tension d'alimentation $2,7V_{rms}$ (sans isolement du primaire) et $3,5V_{rms}$ (primaire isolé)

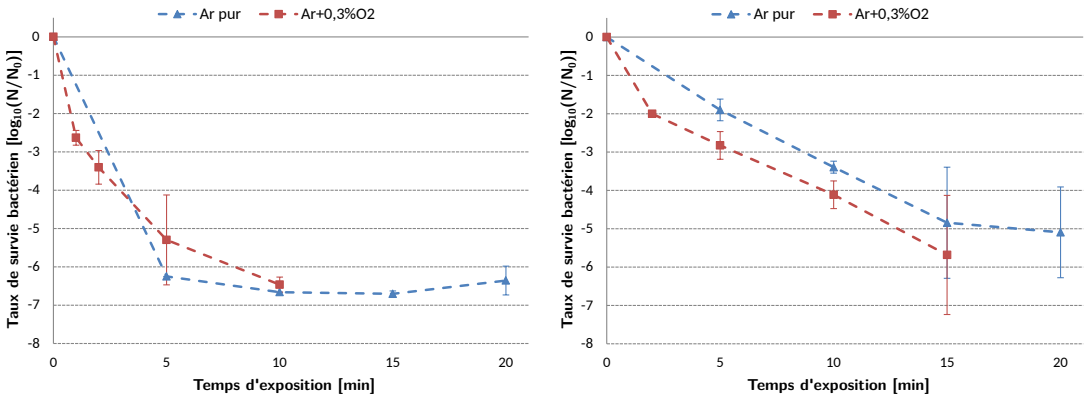
Association de plusieurs générateurs Avec pour objectif d'intensifier la puissance de la décharge, plusieurs transformateurs piézoélectriques peuvent être associés en parallèle pour contribuer à alimenter une décharge commune. Un prototypes visible en

figure 3.23 associant 3 transformateurs 12W a été développé pour de la génération de plasma jet . Les multiples générateurs sont alimentés par une même source de tension, et sont couplés au secondaire par la décharge plasma. L'une des difficultés liée à cette solution demeure dans la disparité des caractéristiques des transformateurs. Chaque transformateur est sollicité inéquitablement par rapport à leur fréquence de résonance et par conséquent, ne présente pas la même valeur de tension au secondaire. A cette différence de performances (à alimentation identique) s'ajoute également la disparité de la décharge plasma. Les générateurs ne participent donc pas équitablement à la puissance transmise à la décharge. Cette puissance totale n'est donc pas proportionnelle au nombre de générateurs.

Une barrière diélectrique est ajoutée entre le flux de gaz porteur et le secondaire des différents générateurs. Les résultats des capacités biocides de ce type de structure sont présentés en figure 3.31. Trois transformateurs piézoélectriques sont alimentés en $30V_{rms}$ soit une puissance primaire globale d'environ $18W$ sous un flux de $2L/min$. Les essais sont menés pour deux concentrations différentes de dioxygène (Argon pur, $Ar + 0,3\%O_2$) influençant peu la puissance absorbée au primaire. La présence de dioxygène autorise l'apparition d'espèces oxydantes qui ne se synthétisaient qu'à l'interface entre la plume plasma et l'air dans la version argon pur.

Dans le cas de la *Pseudomonas aeruginosa*, l'efficacité de désinfection n'est pas significativement modifiée par la présence du dioxygène. En revanche, dans le cas de la *Staphylococcus aureus*, la décroissance est accélérée en présence du dioxygène avec un effet notable dès 2 min d'exposition. L'ajout de dioxygène dans le flux d'argon provoque une accentuation de la génération d'éléments NO qui se traduit par une augmentation des émissions à 205nm caractéristiques de ce type d'éléments [11].

Ainsi, la montée en puissance, apportée par la parallélisation des transformateurs et l'augmentation de leur puissance nominale individuelle entre les essais du premier prototype muni d'un PT 6W et celui-ci muni de 3 PT 12W, a nettement affecté l'efficacité bactéricide du dispositif. En passant de $5,1W$ à $18W$ de puissance injectée, le seuil de désinfection à $-4log$ du dispositif est passé d'environ 10min à 3min pour le *Pseudomonas aeruginosa* et d'inatteignable sans l'ajout d'eau à 10min pour le *Staphylococcus aureus*. La nette montée en puissance du dispositif s'est donc bien traduit par une réduction quasi proportionnelle du temps nécessaire de désinfection et une capacité à atteindre le seuil de stérilisation inenvisageable sans l'ajout d'eau avec le dispositif à $5,1W$.



(a) *Pseudomonas aeruginosa* (G-) (b) *Staphylococcus aureus* (G+)

Fig. 3.31 Résultats biocides de la structure à 3 PT 12W pour $18W$ injectés - influence de la concentration de O_2

Désinfection de corps creux - tube Le procédé de désinfection tube de la figure 3.24 a été développé avec pour objectif de permettre la désinfection de corps creux de type endoscope. Parmi les équipements médicaux, il existe des outils endocavitaires creux soit débouchant, soit non débouchant. Pour faciliter la circulation du gaz porteur au travers du corps creux, la démonstration est faite sur un tube creux débouchant. Le traitement des corps creux non débouchant s'avèrent plus problématique pour la propagation du plasma sur toute la longueur.

La structure est basée sur l'association parallèle de plusieurs transformateurs piézoélectriques alimentés en $30V_{rms}$ utilisant des électrodes déportées à courte distance pour faciliter l'homogénéisation de la répartition du potentiel secondaire des générateurs. La présence d'une électrode de masse en vis à vis des életrodes haute tension tout le long de l'endoscope permet de mieux répartir la décharge dans le tube [130].

$0,3\%$ de dioxygène est ajouté à l'argon pour donner lieu à la génération d'espèces oxydantes au sein de la cavité et favoriser les capacités biocides du plasma d'argon. Les résultats de ces essais biocides sont finalement présentés en figure 3.32. Le dispositif présente des capacités de désinfection à $-4log$ en moins de 5min et de stérilisation à $-6log$ en moins de 10min sur des souches de *Pseudomonas aeruginosa*pour une puissance moyenne d'environ 7W. Ces résultats sont particulièrement encourageants au regard de leur efficacité et de la marge d'amélioration du dispositif. En outre, la structure fonctionne efficacement malgré la présence de la barrière diélectrique constituée par le tube. Cette distanciation préserve ainsi les transformateurs de dommages potentiels liés à une décharge maintenu à leur surface et à la pulvérisation de la céramique.

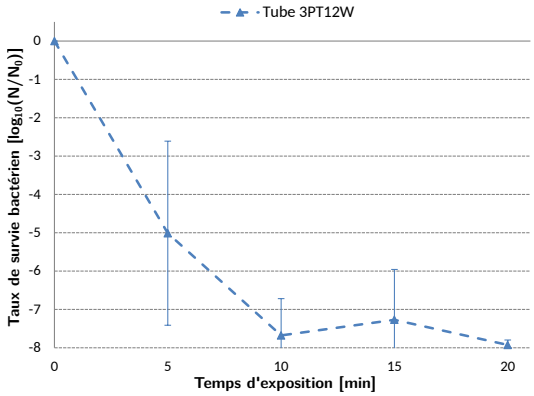


Fig. 3.32 Résultats biocides tube sur une souche de *Pseudomonas aeruginosa* (G-) pour $7W$ injectés

3.4.2.3 Discussions

Chaque point de mesure a été systématiquement doublé voire triplé pour les essais à 3PT et essais tube. La disparité des résultats est présentée sur chaque relevé à l'aide de barres d'erreurs. En outre dans certains cas, une forte variabilité peut être observée sur certains points malgré une régularité théorique de tous les paramètres. Au-delà de l'aspect variabilité du vivant, la raison la plus probable qui a pu être constatée lors des essais est l'adéquation exacte entre la surface exposée au jet plasma et la surface de l'inoculum pouvant, sur un mauvais placement du dispositif ou une variation de la surface de l'inoculum, épargner des individus aux frontières de l'inoculum. De plus, de nombreux paramètres sont susceptibles d'impacter fortement l'efficacité biocide des différents procédés (le débit de gaz, distance de l'innoculum, nature du matériau support, ...). Malheureusement, les caractérisations bactéricides requièrent énormément de temps et de préparation, si bien que le nombre d'essais s'en est trouvé limité. Néanmoins, les premiers résultats attestent de performances encore modestes mais potentiellement exploitables.

Suite aux résultats observés pendant les essais, l'apport d'eau dans le procédé de désinfection s'est révélé être la source la plus efficace d'amélioration des capacités biocides. Malheureusement, les conditions de stockage de matériel imposant des conditions strictes d'hygrométrie pour éviter toute prolifération bactérienne, le traitement en bain aqueux est à proscrire. Cependant, l'apport d'eau par pulvérisation directement dans le flux de gaz subsiste un bon compromis au dépôt de gouttes d'eau directement sur la surface à traiter. La présence minimale d'eau permet d'assurer l'exigence de niveau de

séchage souhaitée pour du matériel chirurgical, tout en favorisant l'apparition d'espèces hydrogénées.

3.5 Conclusion

Au cours de ce chapitre, différents essais expérimentaux ont été entrepris pour conforter ou éprouver les axes d'amélioration de designs introduits au chapitre précédent. Au delà des comparaisons portant sur les variations paramétriques de design Rosen classique qui avaient déjà pu être abordées dans la littérature, deux designs originaux ont été considérés dans cette étude : d'une part l'ajout de dentelures à l'extrémité secondaire du générateur favorisant les effets de pointe et d'autre part l'ajout d'une zone dépolarisée à la base du secondaire permettant d'améliorer la tenue en tension du générateur dont un process de fabrication spécifique a pu être étudié et élaboré. Bien que la majorité des dispositifs de désinfection auxquels sont destinés ces transformateurs fonctionnent uniquement sous flux de gaz à pression atmosphérique, ces essais sont menés sous cloche à vide afin de maîtriser les paramètres environnementaux et tester les prototypes sur une plus large gamme de pression. Deux types de test sont alors menés sur les générateurs : d'une part une mesure d'impédance primaire en balayage de fréquence afin d'estimer pour différents niveaux de tension d'alimentation et de pression, la largeur de la plage de mise en décharge du générateur, synonyme de leur facilité à déclencher une décharge notamment en fournissant une haute tension à vide. D'autre part, la mesure du courant de décharge à fonctionnement nominal permet d'estimer la capacité de décharge du générateur.

Dans le cadre de l'étude de la structuration des secondaires de transformateur, les modélisations par éléments finis ont mis en évidence un effet d'intensification de champs électriques locaux aux extrémités des dentelures dues à un effet de pointe. Cette intensification du champ électrique à dimensions équivalentes de transformateur et donc à potentiel secondaire théoriquement identique, laissait espérer un élargissement de la bande de fréquence de mise en décharge du générateur. Cependant les essais expérimentaux n'ont pas permis de mettre en évidence une quelconque influence favorable à l'allumage de la décharge ou à l'intensification de la puissance de décharge. La comparaison au générateur de référence PTSD2 n'a pas montré de différence significative. Ce constat invite à avancer une explication: le champ électrique étant plus intense aux extrémités périphériques du secondaire, les décharges s'amorçent préférentiellement sur ces angles. Le mécanisme de maintien des décharges filamentaires (échauffement, pré-

ionisation) "ancrent" ces décharges aux mêmes pointes, et ne permettent pas l'allumage sur les différentes dents. Cet écart vis à vis des simulations pourrait également être imputable au chanfreinage des arrêtes des dentelures réalisées, ceci afin de palier la casse des dents lors de la mise en vibration.

La difficulté persistant dans le dimensionnement global d'un transformateur piézoélectrique est l'estimation de l'impédance de la décharge plasma qui va être générée à son extrémité. La qualification du générateur en condition de décharge va donc porter sur un double objectif: d'une part générer une tension secondaire suffisante pour le claquage et le maintien de la décharge sur la plus large bande d'impédance possible et d'autre part maximiser la puissance transmise sur cette plage d'impédance. A ce titre, des modélisations analytiques du comportement de trois designs de transformateurs ont été menées. Pour des pics de puissance équivalents dans le domaine des hautes impédances, une comparaison basée sur la capacité de maintien de la tension secondaire au dessus d'une tension seuil de la décharge a mis en exergue l'apparente supériorité du transformateur à zone secondaire non polarisée sur les autres designs. Les essais expérimentaux ont conforté ces prédictions. L'élévation du niveau de tension secondaire à vide s'est bien traduite par un élargissement des bandes de fréquence de mise en décharge pour chacun de ces générateurs. De plus les mesures de l'intensité des décharges a mis en évidence une augmentation moyenne de 40% de l'intensité de décharge pour le générateur à polarisation partielle contre une baisse de 80% pour les générateurs de grandes dimensions à primaire allongés vis à vis des transformateurs de référence.

Enfin pour entamer les essais préliminaires de désinfection de cette technologie, quatre dispositifs ont été conçus dont trois variantes dédié à la désinfection de surface et un pour de la désinfection d'outils endocavitaires. Les essais bactéricides sont conduits sur des souches bactériennes de *Pseudomonas aeruginosa* et *Staphylococcus aureus* pour leur différence membranaire. Ils ont permis de mettre en pratique différentes stratégies, notamment la parallélisation de transformateurs pour l'intensification de la décharge ou l'ajout d'éléments secondaires tels que du dioxygène ou de l'eau, afin de favoriser la production d'espèces biocides. Les dispositifs ont réussi à atteindre des niveaux très encourageants, notamment le dispositif exploitant la stratégie de parallélisation a franchi le seuil de désinfection de $-4log$ au bout de seulement 10min et le seuil de stérilisation à $-6log$ au bout de 15min pour les deux souches bactériennes avec seulement $18W$ de puissance injectée. De même le dispositif de décharge en tube

a franchi le stade de la stérilisation pour le *Pseudomonas aeruginosa* sur $15cm$ de tube en à peu près 5min pour $7W$ de fonctionnement. Même si maintenant ces essais doivent être complétés par des tests sur d'autres pathogènes tels que les fongus, ces dispositifs de désinfection par plasma ont su montrer leurs efficacités et faire grandir les espoirs quant aux possibilités applicatives de cette technologie.

Conclusion Générale

Ce travail de thèse a eu pour objectif de proposer de nouvelles voies d'amélioration des dispositifs de génération de plasma froid par effet piézoélectrique. Il s'est étendu à plusieurs degrés d'étude couvrant des aspects allant du design du transformateur piézoélectrique jusqu'aux architectures complètes du dispositif (incluant les composantes électriques et fluidiques), afin d'illustrer leur mise en oeuvre et leur capacité pour la désinfection.

Le premier chapitre débute par une brève introduction aux plasmas froids et à leurs interactions avec le vivant, et se poursuit par un état de l'art de l'usage et des connaissances sur des générateurs piézoélectriques. Leurs limitations d'emploi actuelles appellent à approfondir la compréhension des phénomènes en vigueur afin d'accroitre leurs performances et ainsi prétendre à une réelle mise en application de cette technologie. Par la suite, différentes voies d'amélioration reposant sur différentes facettes du dispositif ont pu être mises en lumière. Les travaux engagés durant cette thèse ont eu pour but d'affiner la compréhension actuelle du comportement des transformateurs dans ce cadre spécifique afin d'en échafauder les méthodes d'optimisation, ou pour le moins de perfectionnement, aboutissant à de nouvelles architectures de générateurs de plasma froid.

Afin de proposer une nouvelle voie de développement pour ces générateurs plasma, un modèle linéaire du transformateur associé à un modèle élémentaire de décharge a été proposé dans le chapitre 2. Ainsi deux modèles de transformateurs ont été formulés correspondant au cas d'un Rosen classique et d'une variation de ce dernier présentant une zone passive non-polarisée à la base de son secondaire. Cette dernière structure, bien que jamais abordée pour des utilisations conventionnelles de transformateur, présente des atouts pour la génération de plasma, ce dernier étant particulièrement sensible au champ électrique et donc à la distribution du potentiel de surface.
De part la nature transitoire d'une décharge, le dimensionnement du transformateur

ne peut pas se limiter à l'étude autour d'un unique point de fonctionnement. La qualification de sa capacité de génération de plasma doit tout autant prendre en compte sa capacité d'élévation en tension à vide pour initier la décharge que ses capacités de maintien de la tension secondaire au-dessus de la valeur de maintien de la décharge pour des valeurs d'impédance plus faibles.

Une étude paramétrique basée sur un modèle de comportement simplifié a permis d'établir les courbes de tendance en vue du perfectionnement des performances du générateur par un dimensionnement optimisé. Afin d'en éprouver les conclusions, trois variantes d'un même transformateur de type Rosen ont été élaborés et testés durant une campagne d'essai présentée au chapitre 3. La première variante consistait simplement en l'allongement du primaire, tandis que la seconde intègre une zone passive à la base de la partie secondaire. La troisième arbore une extrémité crantée à l'extrémité du secondaire censée favoriser l'intensification du champ électrique généré par la multiplication des effets de pointe.
Les essais de décharge sous cloche des deux premiers ont permis de confirmer les prévisions des modèles. Le transformateur à primaire allongé implique une tension à vide élevée favorisant l'armoçage de la décharge. En revanche mais en a vu son intensité de son courant de décharge plasma chuter de 80%.

A l'inverse, le transformateur à segment passif présente un gain en tension plus faible que le précédent, ce qui réduit la plage opérationnel de fréquence en décharge. En revanche, sa tenue en tension vis à vis de la décharge a permis d'intensifier le courant de décharge de 40% par rapport au transformateur de référence, mettant en exergue par la même occasion l'utilité des transformateurs à polarisation partielle pour de la génération plasma. La distanciation du primaire et du secondaire via cette zone passive permet également d'améliorer l'isolation électrique entre les deux segments.

De part les résultats des modélisations par éléments finis, une structuration de l'extrémité du secondaire laissait apparaitre la multiplication de points à fort champ électrique, laissant supposer l'augmentation du nombre de micro décharges. La dimension des dents a été choisie de sorte à ne pas modifier significativement le comportement vibratoire global du transformateur mais simplement la topologie du champ électrique qu'il génère. Cependant les essais en décharge n'ont montré aucune influence significative de cet ajout. Cette absence d'effet a été supposément imputée à la persistance de la localisation des décharges suivant l'amorçage, ou bien encore au chanfreinage des arêtes des dents. Des essais complémentaires seraient nécessaires pour véritablement con-

clure sur l'utilité de l'ajout de dentelure dans le cadre spécifique des générateurs plasma.

Parmi les limitations de fonctionnement, la montée en température est particulièrement contraignante. Le générateur piézoélectrique subit un échauffement, principalement en raison des frictions internes, elles-mêmes dépendantes du régime de fonctionnement et de l'état de charge. En outre, une contribution supplémentaire à l'échauffement est à craindre et à quantifier en provenance de la décharge générée à l'extrémité du secondaire. Cet échauffement s'est avéré particulièrement exacerbés et dommageables dans les conditions hors décharge, en raison des fortes amplitudes de déformées lors de ce fonctionnement à vide du transformateur. Ainsi, pour établir les limites du domaine opérationnel du générateur, et quantifier la contribution au flux de chaleur provenant de la décharge plasma, un modèle thermique en régime permanent a été établi. Ce modèle au premier ordre a nécessité la mise en oeuvre d'essais spécifiques afin d'en identifier les paramètres. Il a ensuite permis de démontrer que le flux thermique provient majoritairement du primaire, que l'inhomogénéité entre primaire et secondaire impactait fortement la distribution de température, et que l'échauffement reste minime à l'extrémité du secondaire. Les contraintes thermiques ainsi modélisées permettront leur prise en compte durant la phase de conception et de dimensionnement des générateurs.

Si ce modèle s'est avéré suffisant pour soutenir et conforter les observations, l'hypothèse de la constance des paramètres électriques mécaniques et piézoélectriques face à l'évolution de la température en limite le domaine de validité et la précision. Un modèle plus précis pourra aisément répondre à cet objectif, sous réserve toutefois de pouvoir mettre en œuvre les essais nécessaires à l'identification des coefficients manquants.

Afin d'évaluer le potentiel biocide de cette technologie, quatre prototypes équipés de transformateurs commerciaux ont été conçus et testés en désinfection sur des souches de *Pseudomonas aeruginosa* et de *Staphylococcus aureus*. L'objectif comme pour les dimensionnements de transformateurs, était de tester différentes solutions d'amélioration en vue d'une activité biocide du plasma, en passant soit par l'intensification de son activité électronique, soit par la modification de sa chimie pour la rendre plus réactive. Les dispositifs ont réussi à atteindre des niveaux très encourageants, notamment le dispositif intensifiant la transmission de puissance à la décharge par l'association de trois transformateurs piézoélectriques. Cette architecture a franchi le seuil de désinfection de $-4log$ au bout de seulement 10min et le seuil de stérilisation à $-6log$ au bout de

15min pour les deux souches bactériennes. De même le dispositif de décharge en tube a franchi le stade de la stérilisation sur le *Pseudomonas aeruginosa* en près de 5min. Pour remplir les critères d'efficacité biocide exigée par le domaine biomédical, des essais devront être menés sur une différents agents pathogènes résistants tels que les fongus ou des bactéries sporulées. De plus, toujours dans le cadre d'applications biomédicales, l'utilisation et le développement de transformateurs à partir de céramique sans plomb telles que les composés BNT et KNN, présentés en première partie, pourraient rassurer l'opinion publique sur cette technologie.

Enfin, l'amélioration de la procédure de dimensionnement du transformateur dans le cadre de la génération de plasma froid passera nécessairement par le développement d'un modèle local de décharge. Cela permettrait de mettre en place des solutions d'optimisation de la structure par l'intermédiaire de modélisations par éléments finis tenant compte du couplage fort existant entre la décharge et son générateur. L'élaboration de tels modèles permettrait à terme d'aboutir à un outil complet d'aide à la conception de ce type de générateurs capable de répondre à la diversification croissante des applications à laquelle est appelée cette technologie.

Références

[1] L. Bárdos and H. Baránková, "Cold atmospheric plasma: Sources, processes, and applications," *Thin Solid Films*, vol. 518, pp. 6705–6713, Sept. 2010.

[2] C. Tendero, C. Tixier, P. Tristant, J. Desmaison, and P. Leprince, "Atmospheric pressure plasmas: A review," *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, vol. 61, pp. 2–30, Jan. 2006.

[3] J. L. Shohet, ed., *Encyclopedia of Plasma Technology*. CRC Press, Dec. 2016.

[4] M. Moreau, N. Orange, and M. G. J. Feuilloley, "Non-thermal plasma technologies: new tools for bio-decontamination," *Biotechnology Advances*, vol. 26, pp. 610–617, Dec. 2008.

[5] G. Subhashini and M. Meenakshi Sundaram, "Systematic Review on Sterilization Methods of Implants and Medical Devices," *International Journal of ChemTech Research*, vol. 8, no. 2, pp. 897–911, 2015.

[6] S. Tappi, A. Berardinelli, L. Ragni, M. Dalla Rosa, A. Guarnieri, and P. Rocculi, "Atmospheric gas plasma treatment of fresh-cut apples," *Innovative Food Science & Emerging Technologies*, vol. 21, pp. 114–122, Jan. 2014.

[7] B.-J. Ju, J.-H. Oh, C. Yun, and C. H. Park, "Development of a superhydrophobic electrospun poly(vinylidene fluoride) web via plasma etching and water immersion for energy harvesting applications," *RSC Advances*, vol. 8, pp. 28825–28835, Aug. 2018.

[8] A. Starikovskiy and N. Aleksandrov, "Plasma-assisted ignition and combustion," *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 39, pp. 61–110, Feb. 2013.

[9] K. Shimizu, T. Nakashima, S. Sekimoto, K. Fujii, T. Hiraoka, Y. Nakamura, T. Nouzawa, J. Ikeda, and M. Tsubokura, "Aerodynamic drag reduction of a simplified vehicle model by promoting flow separation using plasma actuator," *Mechanical Engineering Letters*, vol. 5, pp. 19–00354–19–00354, 2019.

[10] D. Morimatsu, H. Sugimoto, A. Nakamura, A. Ogino, M. Nagatsu, and F. Iwata, "Development of a scanning nanopipette probe microscope for fine processing using atmospheric pressure plasma jet," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 55, p. 08NB15, July 2016.

[11] H. Zerrouki, *Mécanismes d'interaction entre les décharges à base d'azote et la matière vivante*. phd, Université de Toulouse, Université Toulouse III - Paul Sabatier, Feb. 2015.

[12] A. Dubuc, P. Monsarrat, F. Virard, N. Merbahi, J.-P. Sarrette, S. Laurencin-Dalicieux, and S. Cousty, "Use of cold-atmospheric plasma in oncology: a concise systematic review," *Therapeutic Advances in Medical Oncology*, vol. 10, p. 1758835918786475, Jan. 2018.

[13] X. Lu, G. V. Naidis, M. Laroussi, S. Reuter, D. B. Graves, and K. Ostrikov, "Reactive species in non-equilibrium atmospheric-pressure plasmas: Generation, transport, and biological effects," *Physics Reports*, vol. 630, pp. 1–84, May 2016.

[14] P. Rajasekaran, P. Mertmann, N. Bibinov, and P. Awakowicz, "DBD plasma source operated in single-filamentary mode for therapeutic use in dermatology," *Journal of Physics D Applied Physics*, vol. 42, Oct. 2009.

[15] D. Xiao, C. Cheng, Y. Lan, G. Ni, J. Shen, Y. D. Meng, and P. K. Chu, "Effects of Atmospheric-Pressure Nonthermal Nitrogen and Air Plasma on Bacteria Inactivation," *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 44, pp. 2699–2707, Nov. 2016.

[16] A. Coudert, *Technique de stérilisation par les plasmas froids.* PhD thesis, Ecole Nationale Vétérinaire D'Alfort, 2007.

[17] F. Judée, "Liquides activés par jet de plasma froid pour le traitement sélectif du cancer colorectal : synthèse, caractérisation et essais thérapeutiques sur modèles cellulaires 3D in vitro et in vivo," Nov. 2016.

[18] H. Yamada, H. Sakakita, S. Kato, J. Kim, S. Kiyama, M. Fujiwara, Hirotomo Itagaki, T. Okazaki, S. Ikehara, H. Nakanishi, N. Shimizu, and Y. Ikehara, "Spectroscopy of reactive species produced by low-energy atmospheric-pressure plasma on conductive target material surface," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 49, no. 39, p. 394001, 2016.

[19] M. Rontal, R. Harrington, C. W. Krapf, and R. Klock, "Surgical device for the removal of tissue employing a vibrating beam with cold plasma sterilization," Dec. 2016.

[20] X. Lu and A. Fridman, "Guest Editorial The Second Special Issue on Atmospheric Pressure Plasma Jets and Their Applications," *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 43, pp. 701–702, Mar. 2015.

[21] Z. Vratnica, D. Vujosevic, U. Cvelbar, and M. Mozetic, "Degradation of Bacteria by Weakly Ionized Highly Dissociated Radio-Frequency Oxygen Plasma," *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 36, pp. 1300–1301, Aug. 2008.

[22] M. Laroussi, D. A. Mendis, and M. Rosenberg, "Plasma interaction with microbes," *New Journal of Physics*, vol. 5, pp. 41–41, Apr. 2003.

[23] X. T. Deng, J. J. Shi, H. L. Chen, and M. G. Kong, "Protein destruction by atmospheric pressure glow discharges," *Applied Physics Letters*, vol. 90, p. 013903, Jan. 2007.

[24] M. Laroussi, "Nonthermal decontamination of biological media by atmospheric-pressure plasmas: review, analysis, and prospects," *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 30, pp. 1409–1415, Aug. 2002.

[25] M. Laroussi, "Low Temperature Plasma-Based Sterilization: Overview and State-of-the-Art," *Plasma Processes and Polymers*, vol. 2, no. 5, pp. 391–400, 2005.

[26] M. G. Kong, G. Kroesen, G. Morfill, T. Nosenko, T. Shimizu, J. v. Dijk, and J. L. Zimmermann, "Plasma medicine: an introductory review," *New Journal of Physics*, vol. 11, p. 115012, Nov. 2009.

[27] M. Laroussi and F. Leipold, "Evaluation of the roles of reactive species, heat, and UV radiation in the inactivation of bacterial cells by air plasmas at atmospheric pressure," *International Journal of Mass Spectrometry*, vol. 233, pp. 81–86, Apr. 2004.

[28] M. C. Bouzidi, *Étude d'une Décharge à Barrière Diélectrique (DBD) homogène dans l'azote à pression atmosphérique : Effet mémoire et Optimisation du transfert de Puissance*. phdthesis, Institut National Polytechnique de Toulouse - INPT, Dec. 2013.

[29] A. Dunaevsky and N. J. Fisch, "Operation of ferroelectric plasma sources in a gas discharge mode," *Physics of Plasmas*, vol. 11, no. 5, p. 2957, 2004.

[30] A. V. Pipa, J. Koskulics, R. Brandenburg, and T. Hoder, "The simplest equivalent circuit of a pulsed dielectric barrier discharge and the determination of the gas gap charge transfer," *The Review of Scientific Instruments*, vol. 83, p. 115112, Nov. 2012.

[31] U. Kogelschatz, "Dielectric-Barrier Discharges: Their History, Discharge Physics, and Industrial Applications," *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, vol. 23, pp. 1–46, Mar. 2003.

[32] G. E. Georghiou, A. P. Papadakis, R. Morrow, and A. C. Metaxas, "Numerical modelling of atmospheric pressure gas discharges leading to plasma production," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 38, pp. R303–R328, Sept. 2005.

[33] Y. Sakiyama and D. B. Graves, "Finite element analysis of an atmospheric pressure RF-excited plasma needle," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 39, no. 16, p. 3451, 2006.

[34] M.-Y. Qian, C.-Y. Yang, S.-Q. Liu, Z.-D. Wang, Y. Lv, and D.-Z. Wang, "A computational modeling study on the helium atmospheric pressure plasma needle discharge," *Chinese Physics B*, vol. 24, p. 125202, Dec. 2015.

[35] J.-S. Boisvert, L. Stafford, N. Naude, J. Margot, and F. Massines, "Electron density and temperature in an atmospheric-pressure helium diffuse dielectric barrier discharge from kHz to MHz," *Plasma Sources Science and Technology*, Feb. 2018.

[36] Q. Zhang, H. Zhao, H. Lin, and J. Wu, "A Novel Electrical Model of Dielectric Barrier Discharge for Quasi-Homogeneous Mode and Filamentary Mode," in *2018 21st International Conference on Electrical Machines and Systems (ICEMS)*, pp. 865–870, Oct. 2018.

[37] M. K. Kahalerras, *Caractérisation des matériaux piézoélectriques dédiés à la génération des décharges plasmas pour applications biomédicales.* thesis, Toulouse, INPT, Feb. 2018.

[38] J. A. López-Fernandez, R. Peña-Eguiluz, R. López-Callejas, A. Mercado-Cabrera, R. Valencia-Alvarado, A Muñoz-Castro, and B. G. Rodríguez-Méndez, "Electrical model of dielectric barrier discharge homogenous and filamentary modes," *Journal of Physics: Conference Series*, vol. 792, no. 1, p. 012067, 2017.

[39] J. R. Roth, *Industrial Plasma Engineering : Volume 1: Principles.* CRC Press, Jan. 1995.

[40] Z. Fang, S. Ji, J. Pan, T. Shao, and C. Zhang, "Electrical Model and Experimental Analysis of the Atmospheric-Pressure Homogeneous Dielectric Barrier Discharge in He," *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 40, pp. 883–891, Mar. 2012.

[41] Z. Fang, T. Shao, J. Yang, and C. Zhang, "Discharge processes and an electrical model of atmospheric pressure plasma jets in argon," *The European Physical Journal D*, vol. 70, p. 3, Jan. 2016.

[42] N. C. Roy and M. R. Talukder, "Electrical and Spectroscopic Diagnostics of Atmospheric Pressure DBD Plasma Jet," *Journal of Bangladesh Academy of Sciences*, vol. 40, p. 23, June 2016.

[43] P. Rajasekaran, N. Bibinov, and P. Awakowicz, "Quantitative characterization of a dielectric barrier discharge in air applying non-calibrated spectrometer, current measurement and numerical simulation," *Measurement Science and Technology*, vol. 23, p. 085605, Aug. 2012.

[44] M. R. Talukder, D. Korzec, and M. Kando, "Probe diagnostics of high pressure microwave discharge in helium," *Journal of Applied Physics*, vol. 91, pp. 9529–9538, May 2002.

[45] T. Gerling, R. Wild, A. V. Nastuta, C. Wilke, K.-D. Weltmann, and L. Stollenwerk, "Correlation of phase resolved current, emission and surface charge measurements in an atmospheric pressure helium jet," *The European Physical Journal Applied Physics*, vol. 71, p. 20808, July 2015.

[46] M. A. Kemp and S. D. Kovaleski, "Thrust Measurements of the Ferroelectric Plasma Thruster," *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 36, pp. 356–362, Apr. 2008.

[47] T. Darny, J.-M. Pouvesle, V. Puech, C. Douat, S. Dozias, and E. Robert, "Analysis of conductive target influence in plasma jet experiments through helium metastable and electric field measurements," *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 26, no. 4, p. 045008, 2017.

[48] E. Karakas, M. A. Akman, and M. Laroussi, "The evolution of atmospheric-pressure low-temperature plasma jets: jet current measurements," *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 21, no. 3, p. 034016, 2012.

[49] D. Z. Pai, G. D. Stancu, D. A. Lacoste, and C. O. Laux, "Nanosecond repetitively pulsed discharges in air at atmospheric pressure—the glow regime," *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 18, p. 045030, Oct. 2009.

[50] B. ZHANG, Y. ZHU, F. LIU, and Z. FANG, "The influence of grounded electrode positions on the evolution and characteristics of an atmospheric pressure argon plasma jet," *Plasma Science and Technology*, vol. 19, no. 6, p. 064001, 2017.

[51] D. L. Sullivan, M. A. Kemp, and S. D. Kovaleski, "Characterization of a Ferroelectric Atmospheric Pressure Plasma Source," *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 35, pp. 1480–1485, Oct. 2007.

[52] R. K. Gangwar, O. Levasseur, N. Naudé, N. Gherardi, F. Massines, J. Margot, and L. Stafford, "Determination of the electron temperature in plane-to-plane He dielectric barrier discharges at atmospheric pressure," *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 25, p. 015011, Dec. 2015.

[53] S.-Y. Yoon, K.-H. Kim, Y.-J. Seol, S.-J. Kim, B. Bae, S.-R. Huh, and G.-H. Kim, "Effects of metastable species in helium and argon atmospheric pressure plasma jets (APPJs) on inactivation of periodontopathogenic bacteria," *Journal of the Korean Physical Society*, vol. 68, pp. 1176–1191, May 2016.

[54] D. S. Kutuzov, I. V. Moskalenko, E. Y. Bragin, V. A. Zhil'tsov, and S. V. Yanchenkov, "Measurements of the Plasma Parameters in a Mirror Trap by Means of Laser-Induced Fluorescence," *Plasma Physics Reports*, vol. 44, pp. 791–798, Sept. 2018.

[55] G. B. Sretenović, I. B. Krstić, V. V. Kovačević, B. M. Obradović, and M. M. Kuraica, "Spatio-temporally resolved electric field measurements in helium plasma jet," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 47, no. 10, p. 102001, 2014.

[56] X. Lu, M. Laroussi, and V. Puech, "On atmospheric-pressure non-equilibrium plasma jets and plasma bullets," *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 21, no. 3, p. 034005, 2012.

[57] G. D. Deepak, N. K. Joshi, and R. Prakash, "Model analysis and electrical characterization of atmospheric pressure cold plasma jet in pin electrode configuration," *AIP Advances*, vol. 8, p. 055321, May 2018.

[58] G. D. Deepak, N. K. Joshi, U. Pal, and R. Prakash, "Electrical characterization of atmospheric pressure dielectric barrier discharge-based cold plasma jet using ring electrode configuration," *Laser and Particle Beams*, vol. 34, pp. 615–620, Dec. 2016.

[59] K. Teranishi, S. Suzuki, and H. Itoh, "A Novel Generation Method of Dielectric Barrier Discharge and Ozone Production Using a Piezoelectric Transformer," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 43, pp. 6733–6739, Sept. 2004.

[60] J. Hao, W. Li, J. Zhai, and H. Chen, "Progress in high-strain perovskite piezoelectric ceramics," *Materials Science and Engineering: R: Reports*, vol. 135, pp. 1–57, Jan. 2019.

[61] J. Curie and P. Curie, "Développement, par pression, de l'électricité polaire dans les cristaux hémièdres à faces inclinées," *Comptes Rendus Hebdomadaires des Séances de l'Académie des Sciences*, vol. XCI, p. 294, Feb. 1880.

[62] K. Uchino, "Chapter 17 - High-Power Piezoelectrics and Loss Mechanisms," in *Advanced Piezoelectric Materials (Second Edition)*, Woodhead Publishing in Materials, pp. 647–754, Woodhead Publishing, 2017.

[63] T. Martin, *Contribution à l'étude des générateurs piézoélectriques pour la génération des décharges plasmas*. Génie électrique, Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse), Toulouse, Jan. 2015.

[64] B. Jaffe, R. S. Roth, and S. Marzullo, "Piezoelectric Properties of Lead Zirconate-Lead Titanate Solid-Solution Ceramics," *Journal of Applied Physics*, vol. 25, pp. 809–810, June 1954.

[65] H. Wei, H. Wang, Y. Xia, D. Cui, Y. Shi, M. Dong, C. Liu, T. Ding, J.-x. Zhang, Y. Ma, N. Wang, Z. Wang, Y. Sun, R. Wei, and Z. Guo, "An Overview of Lead-Free Piezoelectric Materials and Devices," *Journal of Materials Chemistry C*, Oct. 2018.

[66] G. Liu, S. Zhang, W. Jiang, and W. Cao, "Losses in ferroelectric materials," *Materials Science and Engineering: R: Reports*, vol. 89, pp. 1–48, Mar. 2015.

[67] Z. Ramshani, M. J. Johnson, M. Z. Atashbar, and D. B. Go, "A broad area electrospray generated by a piezoelectric transformer," *Applied Physics Letters*, vol. 109, p. 044103, July 2016.

[68] M. Rahimabady, E. C. Statharas, K. Yao, M. Sharifzadeh Mirshekarloo, S. Chen, and F. E. H. Tay, "Hybrid local piezoelectric and conductive functions for high performance airborne sound absorption," *Applied Physics Letters*, vol. 111, p. 241601, Dec. 2017.

[69] H. Liu, J. Zhong, C. Lee, S.-W. Lee, and L. Lin, "A comprehensive review on piezoelectric energy harvesting technology: Materials, mechanisms, and applications," *Applied Physics Reviews*, vol. 5, p. 041306, Dec. 2018.

[70] E. Forero-García, O. Gelvez-Lizarazo, and C. Torres-Pinzón, "Piezoelectric transducer design for electric power generation," *Revista UIS Ingenierías*, vol. 18, pp. 119–126, Jan. 2019.

[71] M. A. Kemp and S. D. Kovaleski, "Piezoelectric-Resonance Effect in a Radio-Frequency-Driven Ferroelectric Plasma Source," *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 35, pp. 578–581, June 2007.

[72] B. T. Hutsel, S. D. Kovaleski, and J. W. Kwon, "Isolated power supply for self-neutralization tests of a ferroelectric plasma thruster," in *Pulsed Power Conference, 2009. PPC'09. IEEE*, pp. 1108–1111, IEEE, 2009.

[73] V. Carazo and Alfredo, "Piezoelectric Transformers: An Historical Review," *Actuators*, vol. 5, p. 12, Apr. 2016.

[74] J. Yang, "Piezoelectric transformer structural modeling - a review," *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, vol. 54, pp. 1154–1170, June 2007.

[75] A. Chérif, M. Meddad, S. Belkhiat, C. Richard, D. Guyomar, A. Eddiai, and A. Hajjaji, "Improvement of piezoelectric transformer performances using SSHI and SSHI-max methods," *Optical and Quantum Electronics*, vol. 46, pp. 117–131, Jan. 2014.

[76] T. Hemsel, W. Littmann, and J. Wallaschek, "Piezoelectric transformers - state of the art and development trends," in *2002 IEEE Ultrasonics Symposium, 2002. Proceedings.*, vol. 1, pp. 645–648 vol.1, Oct. 2002. ISSN: 1051-0117.

[77] M. I. Lomaev, E. A. Sosnin, V. F. Tarasenko, D. V. Shits, V. S. Skakun, M. V. Erofeev, and A. A. Lisenko, "Capacitive and barrier discharge excilamps and their applications (Review)," *Instruments and Experimental Techniques*, vol. 49, pp. 595–616, Oct. 2006.

[78] T. Martinez, G. Pillonnet, D. Vasic, and F. Costa, "A Longitudinal Traveling Wave Piezoelectric Transformer," *Sensors and Actuators A: Physical*, Apr. 2019.

[79] A. Benwell, S. Kovaleski, and M. A. Kemp, "A high-voltage piezoelectric transformer for active interrogation," *ResearchGate*, vol. 37, pp. 42–47, Sept. 2008.

[80] J. Erhart, P. Pulpan, and M. Pustka, *Piezoelectric Ceramic Resonators*. New York, NY: Springer International Publishing AG, 1st ed. 2017 ed., Oct. 2016.

[81] T. Ikeda, *Fundamentals of Piezoelectricity*. Oxford University Press, 1996. Google-Books-ID: TrFvQgAACAAJ.

[82] V. C. Meesala and M. R. Hajj, "Identification of nonlinear piezoelectric coefficients," *Journal of Applied Physics*, vol. 124, p. 065112, Aug. 2018.

[83] E. Sarraute, D. Vasic, and F. Costa, "Transformateurs piézoélectriques," 2005.

[84] R. Lin, F. Lee, E. Baker, and D. Chen, "Inductor-less piezoelectric transformer electronic ballast for linear fluorescent lamp," in *APEC 2001. Sixteenth Annual IEEE Applied Power Electronics Conference and Exposition (Cat. No.01CH37181)*, vol. 2, pp. 664–669 vol.2, Mar. 2001. ISSN: null.

[85] R.-L. Lin, "Piezoelectric Transformer Characterization and Application of Electronic Ballast," Nov. 2001.

[86] F.-S. Pai, S.-J. Huang, and T.-S. Lee, "Design of a PT-based resonant inverter for ozone generation with flexible capacity operations," in *Power Electronics and Drive Systems (PEDS), 2013 IEEE 10th International Conference on*, pp. 1241–1244, IEEE, 2013.

[87] G. Rosenman, D. Shur, Y. E. Krasik, and A. Dunaevsky, "Electron emission from ferroelectrics," *Journal of Applied Physics*, vol. 88, pp. 6109–6161, Dec. 2000.

[88] B. Rosenblum, P. Bräunlich, and J. P. Carrico, "Thermally stimulated field emission from pyroelectric LiNbO3," *Applied Physics Letters*, vol. 25, pp. 17–19, July 1974. Publisher: American Institute of Physics.

[89] G. Rosenman, D. Shur, K. Garb, R. Cohen, and Y. E. Krasik, "Polarization switching in ferroelectric cathodes," *Journal of Applied Physics*, vol. 82, pp. 772–778, July 1997.

[90] H. Riege, "Electron emission from ferroelectrics - a review," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, vol. 340, pp. 80–89, Feb. 1994.

[91] I. Ohwada, T. Sugiyama, and T. Nanataki, "Electrode Structure of Ferroelectric Electron Emitter," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 46, pp. 1643–1649, Apr. 2007.

[92] A. Dunaevsky, Y. E. Krasik, J. Felsteiner, and S. Dorfman, "Electron/ion emission from the plasma formed on the surface of ferroelectrics. I. Studies of plasma parameters without applying an extracting voltage," *Journal of Applied Physics*, vol. 85, pp. 8464–8473, May 1999. Publisher: American Institute of Physics.

[93] Y. E. Krasik, K. Chirko, A. Dunaevsky, J. Z. Gleizer, A. Krokhmal, A. Sayapin, and J. Felsteiner, "Ferroelectric plasma sources and their applications," *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 31, pp. 49–59, Feb. 2003.

[94] B. T. Hutsel, S. D. Kovaleski, R. Almedia, and J. W. Kwon, "Plasma formation and microdischarges on piezoelectric transformers," in *Plasma Science, 2010 Abstracts IEEE International Conference on*, pp. 1–1, IEEE, 2010.

[95] B. T. Hutsel, S. D. Kovaleski, E. A. Baxter, and J. W. Kwon, "Charged-Particle Emission and Self-Biasing of a Piezoelectric Transformer Plasma Source," *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 41, pp. 99–105, Jan. 2013.

[96] M. Teschke and J. Engemann, "Piezoelectric Low Voltage Atmospheric Pressure Plasma Sources," *Contributions to Plasma Physics*, vol. 49, pp. 614–623, Nov. 2009.

[97] M. J. Johnson and D. B. Go, "Piezoelectric transformers for low-voltage generation of gas discharges and ionic winds in atmospheric air," *Journal of Applied Physics*, vol. 118, p. 243304, Dec. 2015.

[98] H. Itoh, S. Suzuki, K. Teranishi, and N. Shimomura, "Self-organization in a piezoelectric transformer-based excimer lamp," *Electronics and Communications in Japan*, vol. 95, pp. 44–53, Oct. 2012.

[99] H. Itoh, K. Teranishi, and S. Suzuki, "Observation of light emissions around a piezoelectric transformer in various gases," *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 30, pp. 124–125, Feb. 2002.

[100] K. Teranishi, S. Suzuki, and H. Itoh, "Luminous Phenomenon of Silent Discharge Using a Piezoelectric Transformer," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 40, pp. 5766–5768, Sept. 2001.

[101] M. K. Kahalerras, F. Pigache, J. Regnier, and F. Mosser, "Analyses of temperature influence in piezoelectric transformers dedicated to plasma generation," in *2015 IEEE International Workshop of Electronics, Control, Measurement, Signals and their Application to Mechatronics (ECMSM)*, pp. 1–5, June 2015.

[102] J. Engemann and M. Teschke, "Low voltage APP-generation by piezo ceramics: A new (r) evolutionary enabling technology," *ResearchGate*, Jan. 2007.

[103] H. Kim, A. Brockhaus, and J. Engemann, "Atmospheric pressure argon plasma jet using a cylindrical piezoelectric transformer," *Applied Physics Letters*, vol. 95, p. 211501, Nov. 2009.

[104] M. Teschke, J. Kedzierski, E. G. Finantu-Dinu, D. Korzec, and J. Engemann, "High-speed photographs of a dielectric barrier atmospheric pressure plasma jet," *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 33, pp. 310–311, Apr. 2005.

[105] A. Valinattajomran, *Characterization and the study of the behavior of transporting cold plasmas in dielectric capillary tubes and their applications.* thesis, Paris 6, Sept. 2016.

[106] E. J. Baek, H. M. Joh, S. J. Kim, and T. H. Chung, "Effects of the electrical parameters and gas flow rate on the generation of reactive species in liquids exposed to atmospheric pressure plasma jets," *Physics of Plasmas*, vol. 23, p. 073515, July 2016.

[107] Z.-j. Liu, W.-c. Wang, L. Zhang, S. Wang, D.-z. Yang, S. Zhang, and K. Tang, "Electrical and optical characteristics of diffuse nanosecond pulsed discharge plasma using a needle-array electrode in atmospheric air," *Journal of Applied Physics*, vol. 115, p. 203302, May 2014. Publisher: American Institute of Physics.

[108] J. Engemann and M. Teschke, "Device for producing an atmospheric pressure plasma," July 2006.

[109] A. M. Flynn and S. R. Sanders, "Fundamental limits on energy transfer and circuit considerations for piezoelectric transformers," *IEEE Transactions on Power Electronics*, vol. 17, pp. 8–14, Jan. 2002.

[110] K. Ishii, N. Akimoto, S. Tashirio, and H. Igarashi, "Influence of Load Resistance on Higher Harmonic Voltages Generated in a Piezoelectric Transformer," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 37, p. 5330, Sept. 1998.

[111] K.-T. Chang, "Effects of load resistances on step-up voltage gains of Rosen-type piezoelectric transformer," in *2005 IEEE International Conference on Industrial Technology*, pp. 1080–1085, Dec. 2005.

[112] S. T. Ho, "Electromechanical Model of a Longitudinal Mode Piezoelectric Transformer," in *2007 7th International Conference on Power Electronics and Drive Systems*, pp. 267–272, Nov. 2007.

[113] J. A. VanGordon, S. D. Kovaleski, B. B. Gall, P. Norgard, E. A. Baxter, B. H. Kim, J. W. Kwon, and G. E. Dale, "Effects of capacitive versus resistive loading on high transformation ratio piezoelectric transformers for modular design considerations," in *2012 IEEE International Power Modulator and High Voltage Conference (IPMHVC)*, pp. 675–678, June 2012.

[114] H. Itoh, K. Teranishi, and S. Suzuki, "Discharge plasmas generated by piezoelectric transformers and their applications," *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 15, no. 2, p. S51, 2006.

[115] I. Kartashev, T. Vontz, and H. Florian, "Regimes of piezoelectric transformer operation," *Measurement Science and Technology*, vol. 20, no. 4, p. 049801, 2009.

[116] C. Nadal, *Contribution à la conception et la modélisation transformateurs piézoélectriques dédiés à la génération de plasma*. Thèse de doctorat, Institut national polytechnique, Toulouse, France, 2011.

[117] D. A. Berlincourt, "Piezoelectric and Ferroelectric Energy Conversion," *IEEE Transactions on Sonics and Ultrasonics*, vol. 15, pp. 89–96, Apr. 1968.

[118] V. L. Karlash, "Electroelastic vibrations and transformation ratio of a planar piezoceramic transformer," *Journal of Sound and Vibration*, vol. 277, pp. 353–367, Oct. 2004.

[119] W. Shao, B. Ju, Z. Feng, P. Li, Z. Li, and Y. Cui, "Temperature distribution analysis of piezoelectric transformer with heat couple component," *Ferroelectrics*, vol. 504, pp. 72–86, Nov. 2016.

[120] T. Martin, F. Pigache, and S. Martin, "Measurement of the electric potential distribution on piezoelectric ceramic surface," in *2013 IEEE 11th International Workshop of Electronics, Control, Measurement, Signals and their application to Mechatronics*, pp. 1–5, June 2013.

[121] J. Stekke and F. Pigache, "Effect of external load resistance on Rosen transformer surface electrical potential," *Ferroelectrics*, vol. 537, pp. 181–190, Dec. 2018.

[122] M. Wild, M. Bring, E. Halvorsen, L. Hoff, and K. Hjelmervik, "The challenge of distinguishing mechanical, electrical and piezoelectric losses," *The Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 144, pp. 2128–2134, Oct. 2018.

[123] V. Loyau, Y.-P. Liu, and F. Costa, "Analyses of the heat dissipated by losses in a piezoelectric transformer," *IEEE transactions on ultrasonics, ferroelectrics, and frequency control*, vol. 56, pp. 1745–1752, Aug. 2009.

[124] H.-W. Joo, C.-H. Lee, J.-S. Rho, and H.-K. Jung, "Analysis of temperature rise for piezoelectric transformer using finite-element method," *IEEE transactions on ultrasonics, ferroelectrics, and frequency control*, vol. 53, pp. 1449–1457, Aug. 2006.

[125] K. Uchino, J. H. Zheng, Y. H. Chen, X. H. Du, J. Ryu, Y. Gao, S. Ural, S. Priya, and S. Hirose, "Loss mechanisms and high power piezoelectrics," in *Frontiers of Ferroelectricity*, pp. 217–228, Springer US, 2006.

[126] M. Seo and K. Hong, "Characteristics of Electron Emission from a (Pb,La)(Zr,Ti)O3 Ferroelectric Cathode," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 49, p. 076001, July 2010.

[127] J. Hu, S.-F. Ho, E.-L. Ong, and J. Du, "An experimental investigation of the temperature field in small piezoelectric vibrators," *Ultrasonics*, vol. 41, pp. 731–735, Mar. 2004.

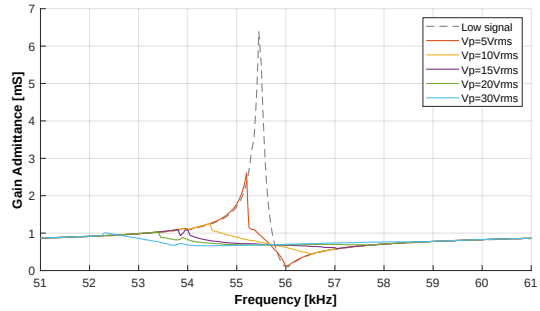
[128] N. Texier Mandoki, *Synthèse hydrothermale et réalisation de céramiques de titanozirconate de plomb dopé pour des applications électroniques et électrotechniques*. thesis, Valenciennes, Jan. 2002.

[129] R. Brandenburg, "Dielectric barrier discharges: progress on plasma sources and on the understanding of regimes and single filaments," *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 26, no. 5, p. 053001, 2017.

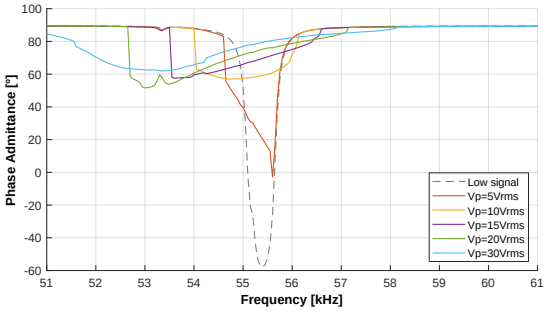
[130] G. Divya Deepak, N. K. Joshi, D. K. Pal, and R. Prakash, "A low power miniaturized dielectric barrier discharge based atmospheric pressure plasma jet," *Review of Scientific Instruments*, vol. 88, p. 013505, Jan. 2017.

Appendix A

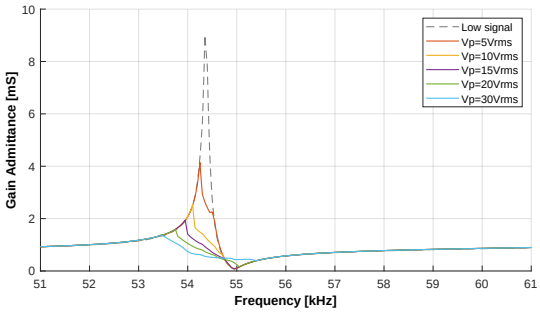
Relevé des caractéristiques primaires des différents PT



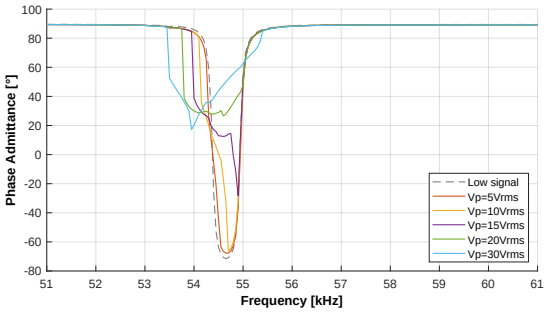
(a) Module de $\underline{Y}$ à P=5mbar



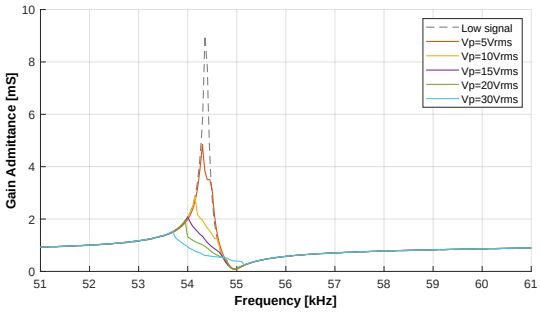
(b) Phase de $\underline{Y}$ à P=5mbar



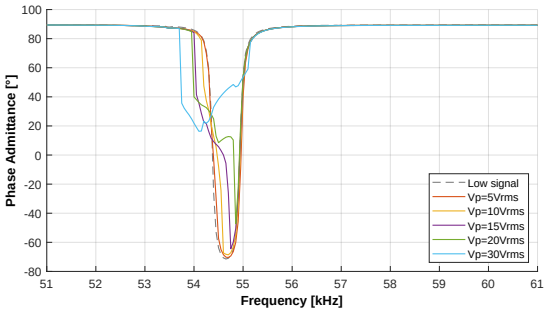
(c) Module de $\underline{Y}$ à P=50mbar



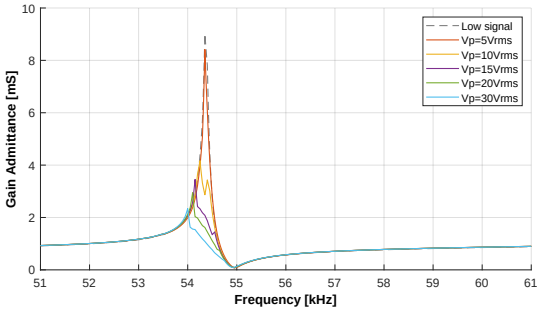
(d) Phase de $\underline{Y}$ à P=50mbar



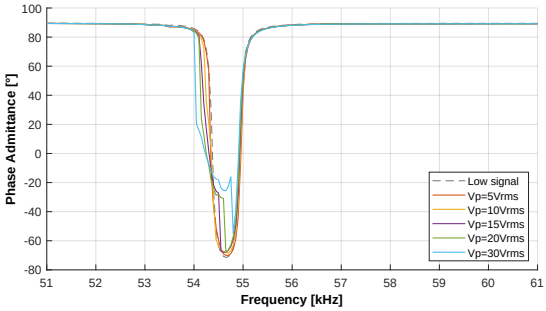
(e) Module de $\underline{Y}$ à P=100mbar



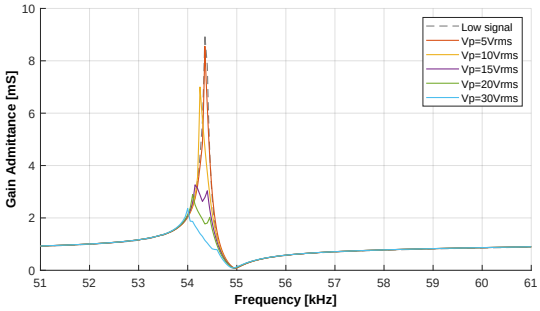
(f) Phase de $\underline{Y}$ à P=100mbar



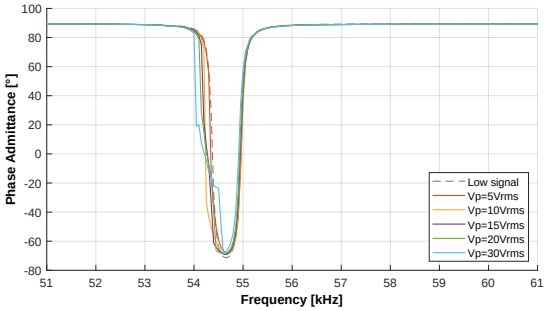
(g) Module de $\underline{Y}$ à P=500mbar



(h) Phase de $\underline{Y}$ à P=500mbar

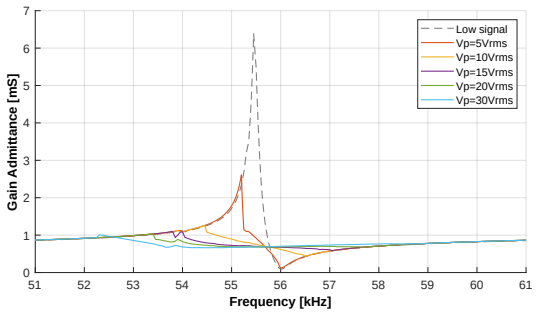


(i) Module de $\underline{Y}$ à P=1000mbar

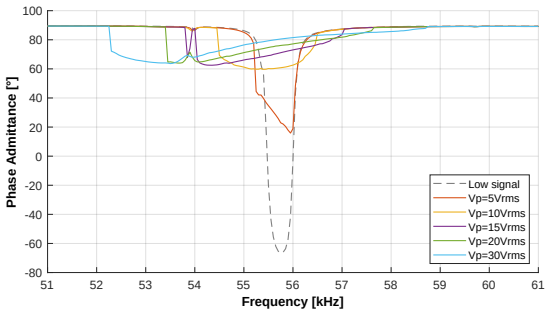


(j) Phase de $\underline{Y}$ à P=1000mbar

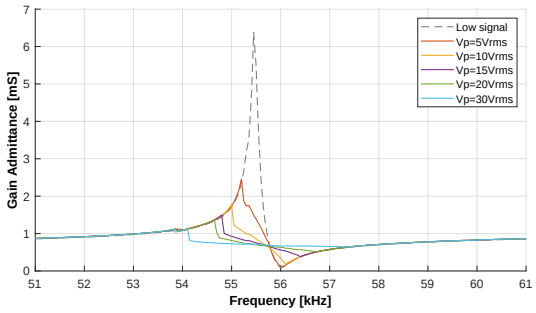
Fig. A.1 Caractéristique primaire du PT sans dent PT1SD en balayage de fréquence montant



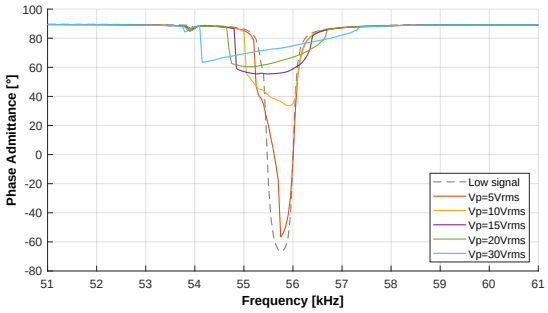
(a) Module de $\underline{Y}$ à P=5mbar



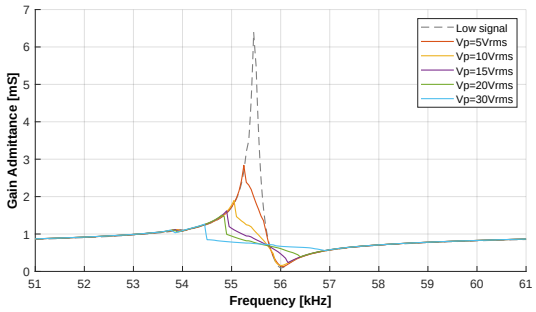
(b) Phase de $\underline{Y}$ à P=5mbar



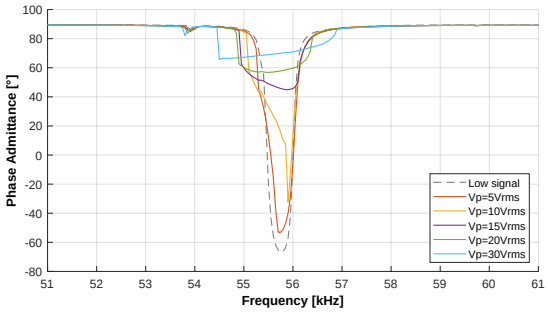
(c) Module de $\underline{Y}$ à P=50mbar



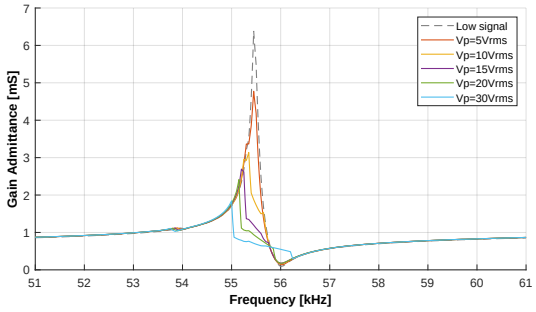
(d) Phase de $\underline{Y}$ à P=50mbar



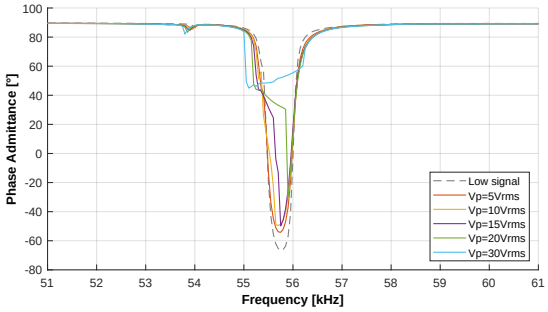
(e) Module de $\underline{Y}$ à P=100mbar



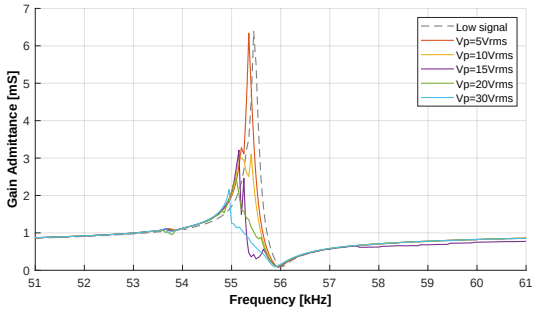
(f) Phase de $\underline{Y}$ à P=100mbar



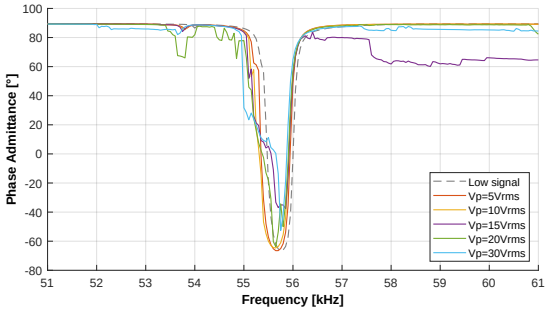
(g) Module de $\underline{Y}$ à P=500mbar



(h) Phase de $\underline{Y}$ à P=500mbar

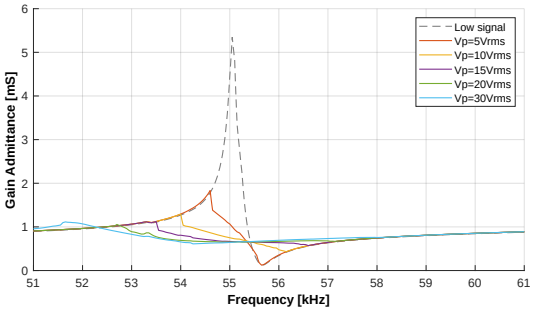


(i) Module de $\underline{Y}$ à P=1000mbar

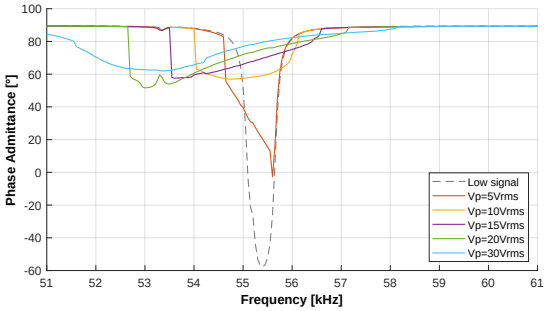


(j) Phase de $\underline{Y}$ à P=1000mbar

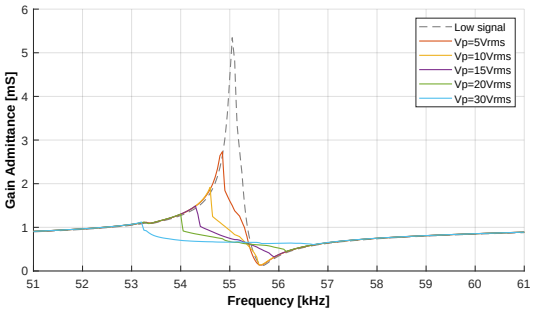
Fig. A.2 Caractéristique primaire du PT sans dent PT2SD en balayage de fréquence montant



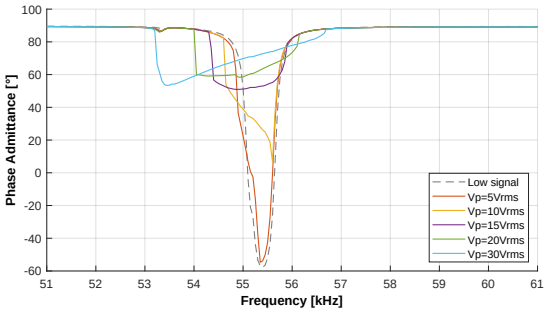
(a) Module de $\underline{Y}$ à P=5mbar



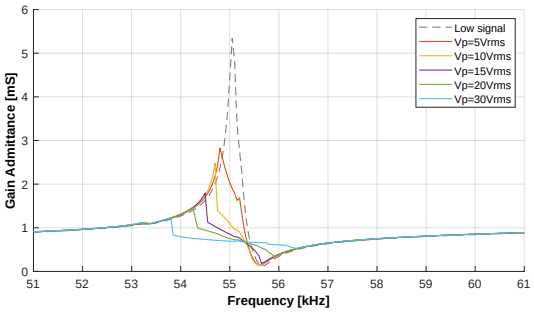
(b) Phase de $\underline{Y}$ à P=5mbar



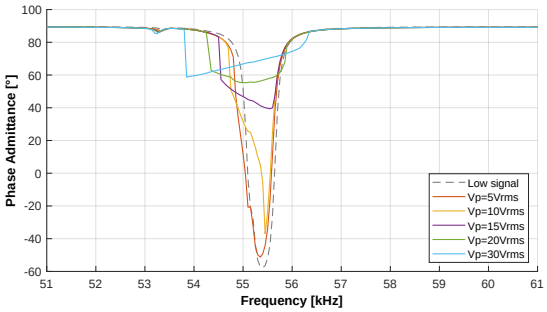
(c) Module de $\underline{Y}$ à P=50mbar



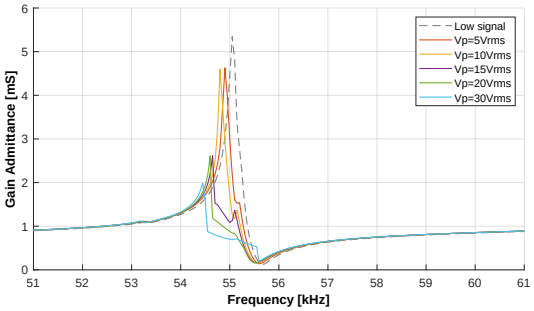
(d) Phase de $\underline{Y}$ à P=50mbar



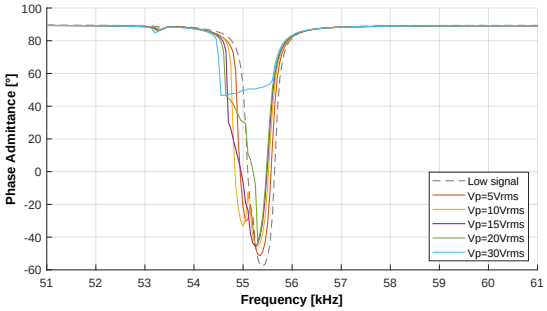
(e) Module de $\underline{Y}$ à P=100mbar



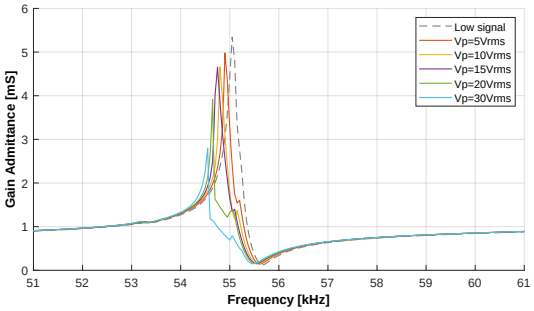
(f) Phase de $\underline{Y}$ à P=100mbar



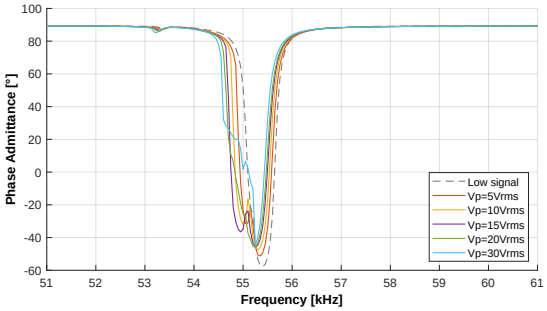
(g) Module de $\underline{Y}$ à P=500mbar



(h) Phase de $\underline{Y}$ à P=500mbar

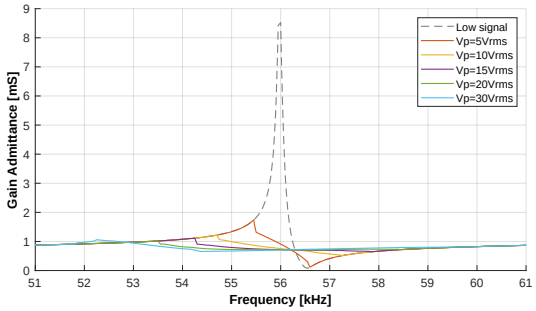


(i) Module de $\underline{Y}$ à P=1000mbar

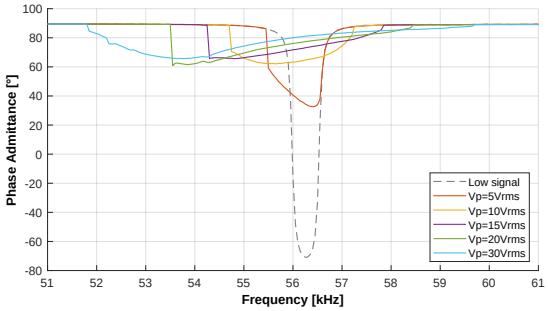


(j) Phase de $\underline{Y}$ à P=1000mbar

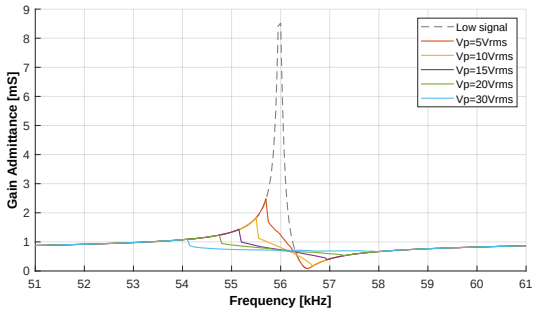
Fig. A.3 Caractéristique primaire du PT sans dent PT4SD en balayage de fréquence montant



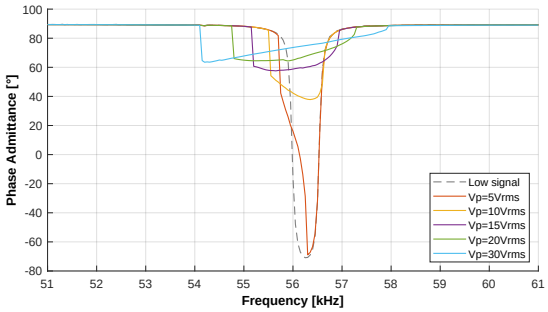
(a) Module de $\underline{Y}$ à P=5mbar



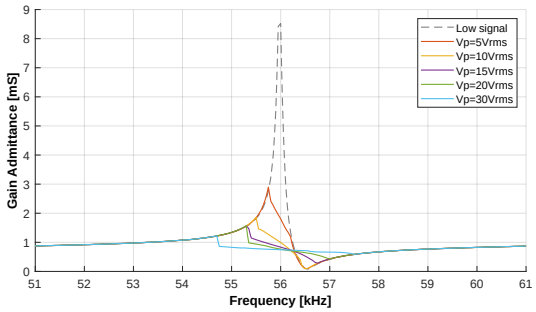
(b) Phase de $\underline{Y}$ à P=5mbar



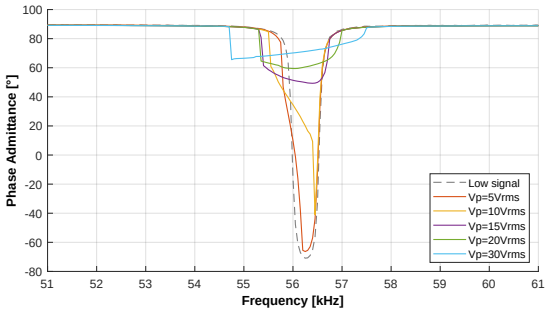
(c) Module de $\underline{Y}$ à P=50mbar



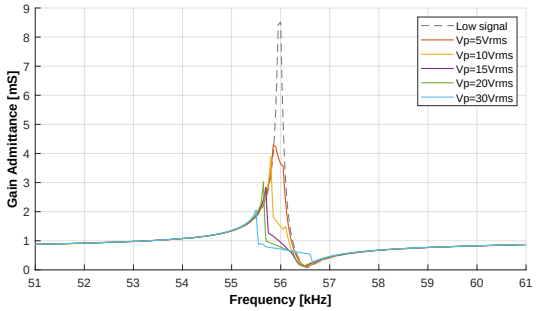
(d) Phase de $\underline{Y}$ à P=50mbar



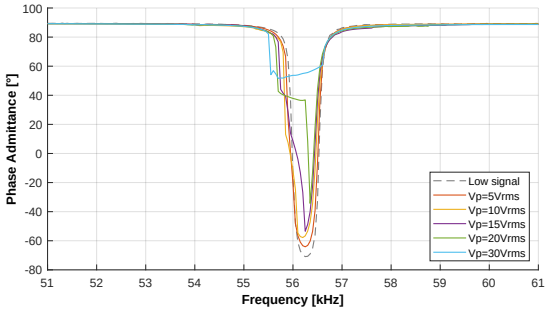
(e) Module de $\underline{Y}$ à P=100mbar



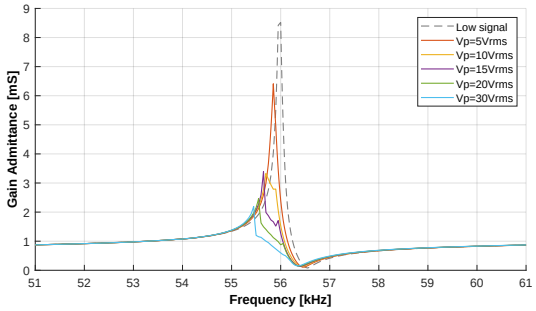
(f) Phase de $\underline{Y}$ à P=100mbar



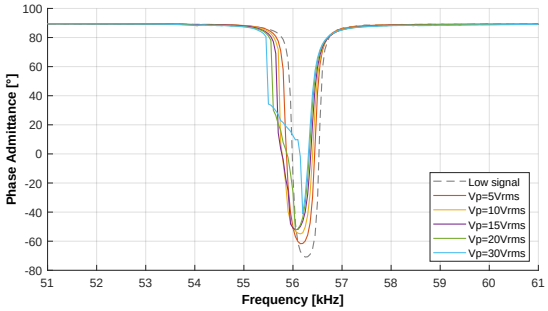
(g) Module de $\underline{Y}$ à P=500mbar



(h) Phase de $\underline{Y}$ à P=500mbar

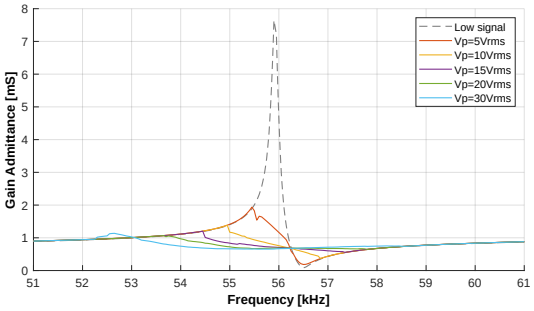


(i) Module de $\underline{Y}$ à P=1000mbar

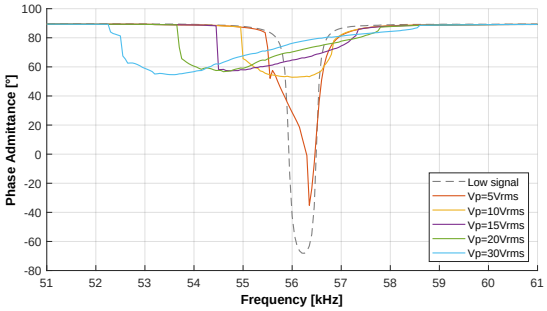


(j) Phase de $\underline{Y}$ à P=1000mbar

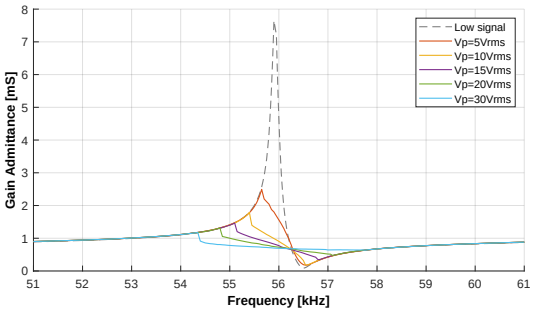
Fig. A.4 Caractéristique primaire du PT sans dent PT1AD en balayage de fréquence montant



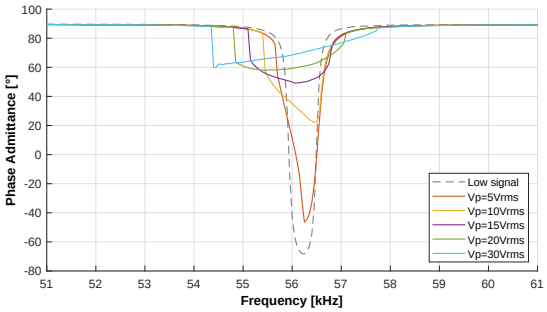
(a) Module de $\underline{Y}$ à P=5mbar



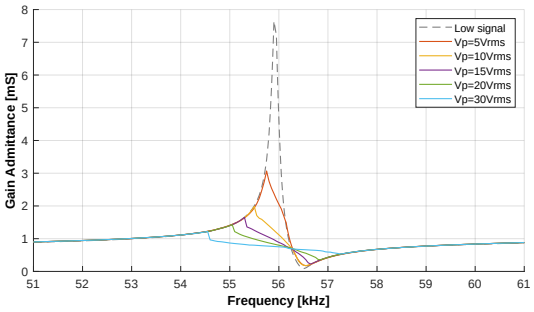
(b) Phase de $\underline{Y}$ à P=5mbar



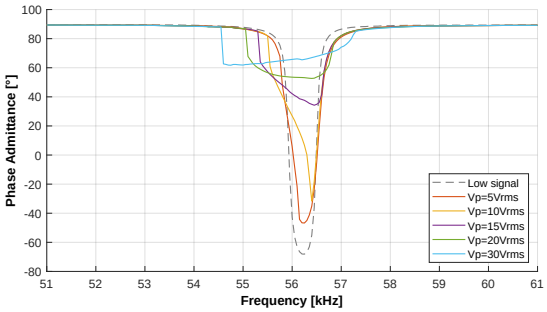
(c) Module de $\underline{Y}$ à P=50mbar



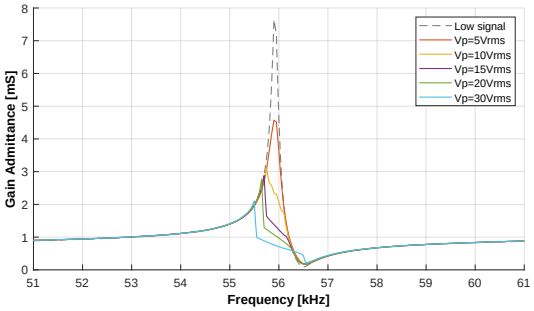
(d) Phase de $\underline{Y}$ à P=50mbar



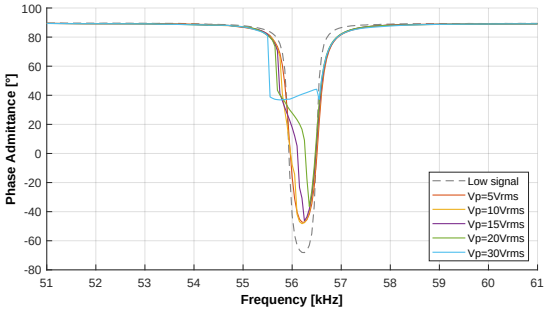
(e) Module de $\underline{Y}$ à P=100mbar



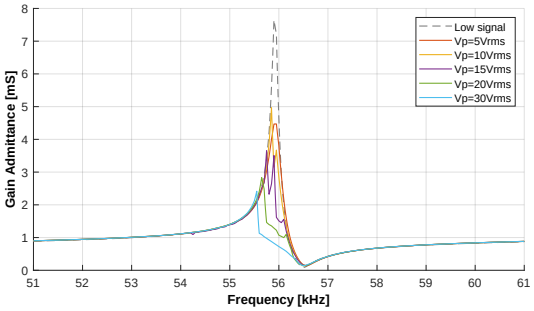
(f) Phase de $\underline{Y}$ à P=100mbar



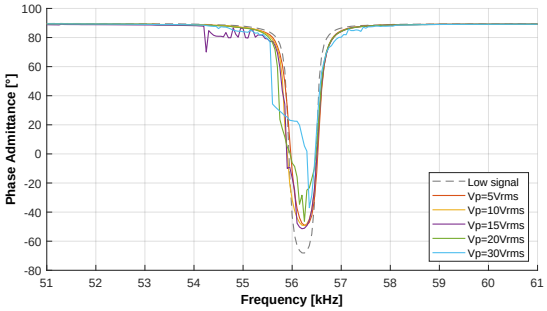
(g) Module de $\underline{Y}$ à P=500mbar



(h) Phase de $\underline{Y}$ à P=500mbar

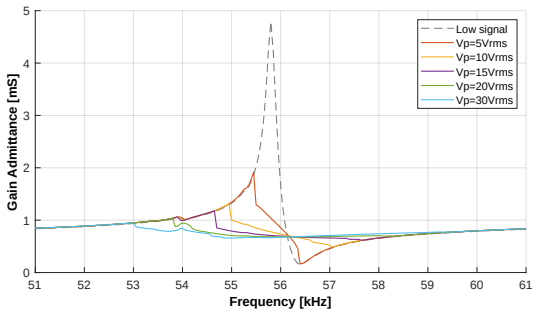


(i) Module de $\underline{Y}$ à P=1000mbar

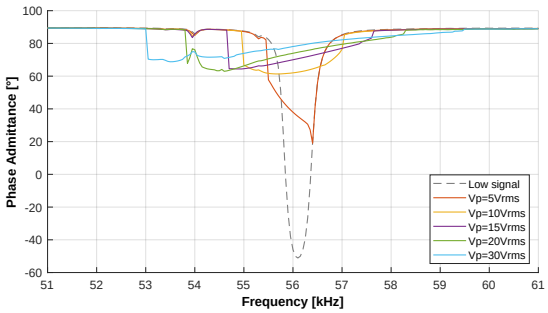


(j) Phase de $\underline{Y}$ à P=1000mbar

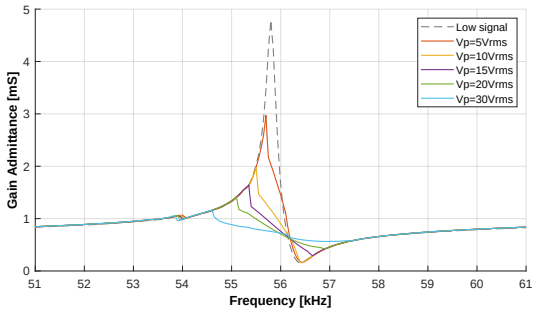
Fig. A.5 Caractéristique primaire du PT sans dent PT2AD en balayage de fréquence montant



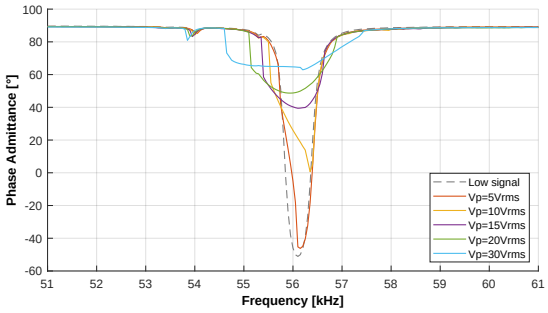
(a) Module de $\underline{Y}$ à P=5mbar



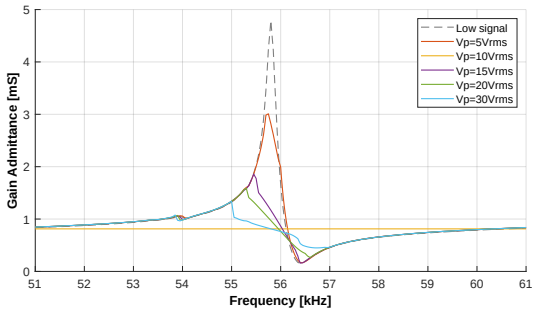
(b) Phase de $\underline{Y}$ à P=5mbar



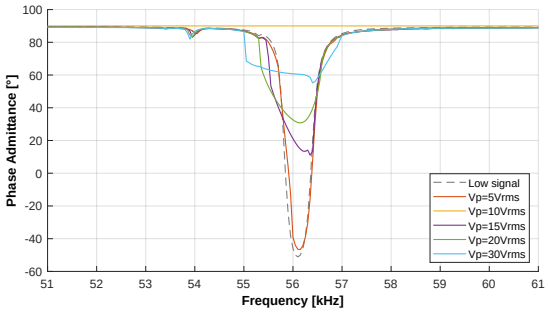
(c) Module de $\underline{Y}$ à P=50mbar



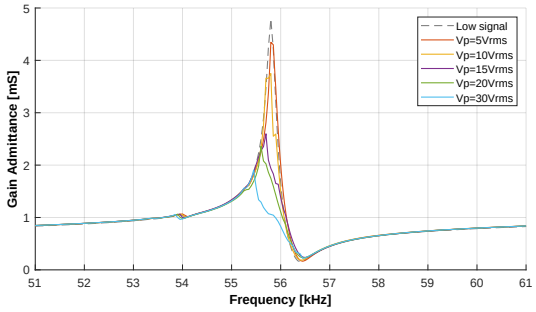
(d) Phase de $\underline{Y}$ à P=50mbar



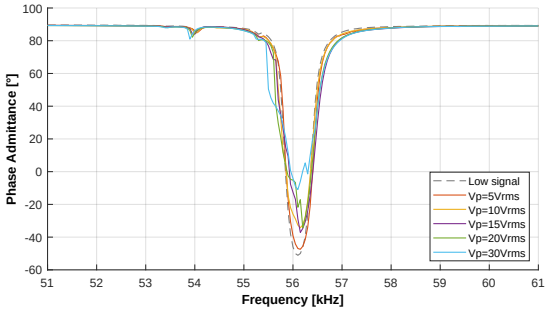
(e) Module de $\underline{Y}$ à P=100mbar



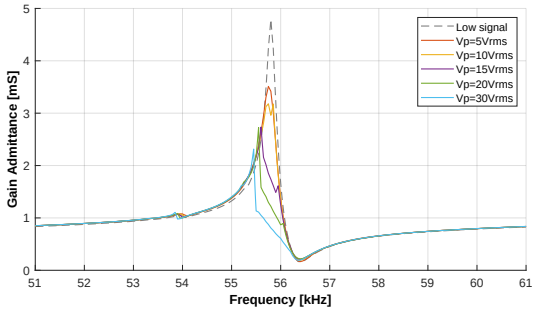
(f) Phase de $\underline{Y}$ à P=100mbar



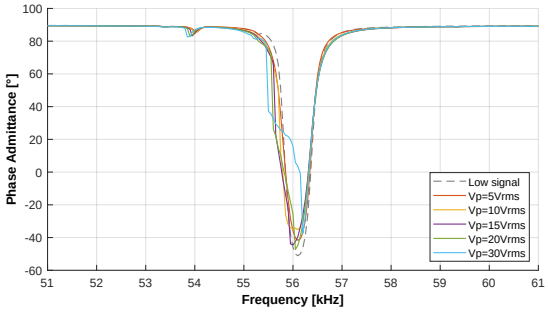
(g) Module de $\underline{Y}$ à P=500mbar



(h) Phase de $\underline{Y}$ à P=500mbar



(i) Module de $\underline{Y}$ à P=1000mbar



(j) Phase de $\underline{Y}$ à P=1000mbar

Fig. A.6 Caractéristique primaire du PT sans dent PT3AD en balayage de fréquence montant

Appendix B

Propriétés matériaux

Cette annexe présente les propriétés matériaux des deux céramiques qui ont été utilisées durant cette thèse : d'une part la céramique SM112 de la société Steminc et d'autre part la céramique PZT-FJ employée par le LMCPA. De plus, il présente la méthode de construction des matrices matériau nécessaire aux modélisations par éléments finis depuis ces données matériaux.

B.1 Céramique SM112 de Steminc

B.1.1 Datasheet

Céramique Steminc SM112	Symboles	Valeur	Unité
Données fabricant			
Nombre de couches au primaire	n	11	
Longueur primaire	L_1	16,4	mm
Longueur secondaire	L_2	12	mm
Longueur totale	L	30,4	mm
Largeur	l	7,6	mm
Épaisseur	e	2,3	mm
Coefficient de couplage planaire	k_p	0,59	
Coefficient de couplage de déformée en épaisseur	k_t	0,46	
Coefficient de couplage transversal	k_{31}	0,35	
Coefficient piézoélectrique longitudinal	d_{33}	3,60e-10	m/V
Coefficient piézoélectrique transversal	d_{31}	-1,55e-10	m/V
Coefficient piézoélectrique longitudinal	g_{33}	24,7e-3	Vm/N
Coefficient piézoélectrique transversal	g_{31}	-10,6e-3	Vm/N
Coefficient de raideur longitudinal	c_{33}^E	7,2e10	N/m^2
Coefficient de raideur transversal	c_{11}^E	8,4e10	N/m^2
Permittivité longitudinale	ε_{33}^T	1,42E-08	F/m
Tangente de l'angle de perte diélectrique	$tan(\delta)$	0,6	%
Température de Curie	T_C	320	$°C$
Densité	ρ	7900	kg/m^3
Données évaluées par calcul			
Coefficient de couplage longitudinal	k_{33}	0,776	
Compliance transversale	s_{11}^E	1,38e-11	m^2/N
Compliance longitudinale	s_{33}^E	1,52e-11	m^2/N
Compliance transverse	s_{12}^E	-4,1e-12	m^2/N
Compliance transverse	s_{13}^E	-2,52e-12	m^2/N

Tableau B.1 Dimensions et propriétés matériaux du transformateur Steminc SMMTF55P6S50

B.1.2 Construction des matrices matériaux du SM112

Dans [80], Erhart présente les différentes méthodes de caractérisation de céramique. D'après la symétrie des mailles élémentaires des céramiques PZT, l'expression des matrices de paramètres électromécaniques peut être ramener à 10 composantes.

- Matrice $[c^E]$ des raideurs à champ électrique constant :

$$[c^E] = [s^E]^{-1} = \begin{bmatrix} c_{11}^E & c_{12}^E & c_{13}^E & 0 & 0 & 0 \\ c_{12}^E & c_{11}^E & c_{13}^E & 0 & 0 & 0 \\ c_{13}^E & c_{13}^E & c_{33}^E & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & c_{66}^E & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & c_{44}^E & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & c_{44}^E \end{bmatrix}$$

- Matrice $[e]$ des coefficients piézoélectriques :

$$[e] = [c^E][d] = \begin{bmatrix} 0 & 0 & e_{31} \\ 0 & 0 & e_{31} \\ 0 & 0 & e_{33} \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & e_{15} & 0 \\ e_{15} & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

- Matrice $[\varepsilon^S]$ des permittivités à déformée constante :

$$[\varepsilon^S] = [\varepsilon^T] - [d]^t[c^E][d] = \begin{bmatrix} \varepsilon_{11}^S & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{11}^S & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{33}^S \end{bmatrix}$$

Les coefficients manquants de la matrice de compliance $[s^E]$ pour les modes d'élongation sont calculés à partir de la matrice de raideur $[c^E]$ ou des coefficients de

couplage électromécanique des modes k_{31}, k_{33} et k_p :

$$\begin{aligned}
s_{11}^E &= \frac{c_{11}^E c_{33}^E - {c_{13}^E}^2}{(c_{11}^E - c_{12}^E)\left[c_{33}^E(c_{11}^E + c_{12}^E) - 2{c_{13}^E}^2\right]} = \frac{d_{31}^2}{\varepsilon_{33}^T k_{31}^2} \\
s_{12}^E &= \frac{-c_{12}^E c_{33}^E + {c_{13}^E}^2}{(c_{11}^E - c_{12}^E)\left[c_{33}^E(c_{11}^E + c_{12}^E) - 2{c_{13}^E}^2\right]} = -s_{11}^E\left(1 - 2\frac{k_{31}^2}{k_p^2}\right) \\
s_{13}^E &= \frac{-c_{13}^E}{c_{33}^E(c_{11}^E + c_{12}^E) - 2{c_{13}^E}^2} = \sqrt{1/2(s_{11}^E + s_{12}^E)(s_{33}^E - 1/c_{33}^E)} \\
s_{33}^E &= \frac{c_{11}^E + c_{12}^E}{c_{33}^E(c_{11}^E + c_{12}^E) - 2{c_{13}^E}^2} = \frac{d_{33}^2}{\varepsilon_{33}^T k_{33}^2}
\end{aligned} \tag{B.1}$$

De part l'absence de coefficients de couplage de mode de cisaillement tel que k_{15} dans les datasheet fabricant, les coefficients propres aux modes de cisaillement (s_{44}^E, s_{66}^E, d_{15} et ε_{11}^T) sont impossibles à identifier. Des valeurs courantes propres aux céramiques PZ26 seront utilisées en compensation. Au vu de la faible importance des modes de cisaillement dans les modes de déformation recherchés pour ces transformateurs, ces écarts de valeurs sauraient rester négligeables. Ce qui justifie aussi l'absence d'identification de ces caractéristiques par le fabricant.

Finalement, les 3 matrices prises en compte prennent les valeurs suivantes :

- Matrice $[c^E]$ des raideurs à champ électrique constant :

$$[c^E] = \begin{bmatrix} 8,4 & 2,83 & 1,86 & 0 & 0 & 0 \\ 2,83 & 8,4 & 1,86 & 0 & 0 & 0 \\ 1,86 & 1,86 & 7,2 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 3,68 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 4,35 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 4,35 \end{bmatrix} \times 10^{10} \quad N/m^2$$

- Matrice $[e]$ des coefficients piézoélectriques :

$$[e] = \begin{bmatrix} 0 & 0 & -10,7 \\ 0 & 0 & -10,7 \\ 0 & 0 & 20,15 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 15,7 & 0 \\ 15,7 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad C/m^2$$

- Matrice $[\varepsilon^S]$ des permittivités à déformée constante :

$$[\varepsilon^S] = \begin{bmatrix} 963 & 0 & 0 \\ 0 & 963 & 0 \\ 0 & 0 & 406 \end{bmatrix} \times \varepsilon_0 \quad F/m$$

B.2 Céramique PZT-FJ réalisée par le LMCPA

Céramique PZT-FJ	Symboles	Valeur	Unité
Densité	ρ	7280	kg/m^3
Coefficient de Poisson	ν_{12}^E	0.36	
Facteur de qualité mécanique	Q_m	460	
Tangente de l'angle de perte diélectrique	$tan(\delta)$	0,22	%
Coefficient de couplage planaire	k_p	0,468	
Coefficient de couplage de déformée en épaisseur	k_t	0,589	
Coefficient de couplage transversal	k_{31}	0,291	
Coefficient de couplage longitudinal	k_{33}	0,536	
Coefficient de couplage cisaillement	k_{15}	0,496	
Permittivité diélectrique	ε_{11}^T	1,121e-8	F/m
	ε_{33}^T	1,32e-8	F/m
	ε_{11}^S	9,14e-9	F/m
	ε_{33}^S	9,9e-9	F/m
Coefficient piézoélectrique longitudinal	d_{33}	3,0e-10	m/V
Coefficient piézoélectrique transversal	d_{31}	-1,16e-10	m/V
Coefficient piézoélectrique de cisaillement	d_{15}	2,5e-10	m/V
Coefficient piézoélectrique longitudinal	e_{33}	17,67	C/m^2
Coefficient piézoélectrique transversal	e_{31}	-5,48	C/m^2
Coefficient piézoélectrique de cisaillement	e_{15}	11,98	C/m^2
Coefficient de raideur	c_{11}^E	1,024e11	N/m^2
	c_{12}^E	4,8e10	N/m^2
	c_{13}^E	3,94e10	N/m^2
	c_{33}^E	8,86e10	N/m^2
	$c_{44}^E = c_{55}^E$	4,8e10	N/m^2
	c_{66}^E	2,72e10	N/m^2
Coefficient de compliance	s_{11}^E	1,35e-11	m^2/N
	s_{12}^E	-4,86e-12	m^2/N
	s_{13}^E	-3,85e-12	m^2/N
	s_{33}^E	1,47e-11	m^2/N
	$s_{44}^E = s_{55}^E$	2,09e-11	m^2/N
	s_{66}^E	3,68e-11	m^2/N

Tableau B.2 Propriétés matériaux de la céramique PZT-FJ employée par le LMCPA

Appendix C

Identification Paramètres électriques équivalents

Selon le principe de moindre action, hérité du principe "d'économie naturelle" de Fermat, tout système adopte toujours naturellement le comportement lui demandant le moins d'énergie. Ainsi d'après ce principe, il est possible, par minimisation d'une expression énergétique du système, d'en déduire les équations dynamiques le régissant.

Dans le formalisme Lagrangien, on décrit ce comportement énergétique par une intégrale d'action S exprimée de la manière suivante :

$$S = \int \mathcal{L}(x, \dot{x}, t)\ dt$$

avec $\mathcal{L}$ le lagrangien du système couramment défini comme la différence des énergies cinétique et potentielle généralisées.

Rechercher le minimum de cette intégrale d'action revient alors à chercher le parcours qui même affecté d'une légère variation maintiendrait une variation d'intégrale d'action nulle:

$$\delta S = \int \left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial x} \delta x + \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{x}} \delta \dot{x} \right) dt = 0$$

On aboutit aux n équations de Lagrange-Euler (n étant le nombre de degrés de liberté du système) :

$$\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial x} - \frac{d}{dt} \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{x}} = 0$$

Le lagrangien d'un transformateur de type Rosen s'exprime selon trois degrés de liberté

- η : l'amplitude de la déformée mécanique du transformateur
- v_p : la tension d'alimentation aux bornes du primaire
- q_s : la quantité de charge à l'électrode du secondaire

de la manière suivante :

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2}\{\dot{\eta}\}^T[M]\{\dot{\eta}\} - \frac{1}{2}\{\eta\}^T[K]\{\eta\} + \{\eta\}^T[\varphi_p]v_p + \frac{1}{2}C_p v_p^2 + \{\eta\}^T[\chi_s]q_s - \frac{1}{2}\frac{q_s^2}{C_s} \quad \text{(C.1)}$$

L'amplitude de déformation $\eta^{(i)}$ est une grandeur scalaire liée à l'amplitude de déformation $\underline{u}_1^{(i)}(x_1)$ par la relation :

$$\underline{u}_1^{(i)}(x_1) = \sum_j \lambda_{1j}^{(i)}\eta^{(i)}$$

avec $\lambda_{1j}^{(i)}$ une fonction spatiale normalisée représentant la forme de la déformation.

En calculant directement les 3 équations de Lagrange-Euler, issues du principe de moindre action, depuis le Lagrangien du transformateur, on trouve le système de 3 équations décrivant la dynamique du transformateur :

$$\begin{cases} [M]\{\ddot{\eta}\} + ([K] - [\psi_s][\psi_s]^T/C_s)\{\eta\} = [\psi_p]v_p - [\psi_s]v_s \\ i_p = [\psi_p]^T\{\dot{\eta}\} + C_p\dot{v}_p \\ i_s + C_s\dot{v}_s = [\psi_s]^T\{\dot{\eta}\} \end{cases} \quad \text{(C.2)}$$

C.0.0.1 Identification depuis les équations dynamiques

Une fois la dynamique propre du transformateur mise en équation, il est possible de la croiser avec celle du schéma électrique équivalent. En associant l'amplitude de déplacement η au courant de ligne dans la branche motionnelle du schéma électrique

équivalent, il est possible d'identifier directement les 4 paramètres électriques décrivant le comportement mécanique du transformateur pour chacun des modes:

$$\begin{cases} L_m^{(i)} = \dfrac{M^{(i)}}{(\psi_p^{(i)})^2} \\ C_m^{(i)} = \dfrac{(\psi_p^{(i)})^2}{K^{(i)} - \dfrac{(\psi_s^{(i)})^2}{C_s}} \\ R_m^{(i)} = \dfrac{1}{Q_m}\sqrt{\dfrac{L_m^{(i)}}{C_m^{(i)}}} \\ \psi^{(i)} = \dfrac{\psi_p^{(i)}}{\psi_s^{(i)}} \end{cases} \tag{C.3}$$

Les différents coefficients mécaniques doivent être exprimés fonction des dimensions et propriétés matériau du transformateur afin d'en tirer des formes explicites des différents paramètres du schéma électrique équivalent.

Calcul du critère de normalisation et calcul de la masse modale Dans le cadre de l'application du principe de moindre action, il est nécessaire de définir un critère de normalisation pouvant porter soit sur la masse M, soit l'amplitude de déformée U. Surtout parce que les déformées $\underline{u}_1^{(i)}$ sont issues de l'étude modale qui implique ce critère de normalisation. Le critère de normalisation sur la masse modale s'exprime de la manière suivante

$$M^{(i)} = \int_{-L1}^{0} \rho le \left[\underline{u}_1^{(i)}(x_1)\right]^2 dx_1 + \int_0^{L_2} \rho le \left[\underline{u}_1^{(i)}(x_1)\right]^2 dx_1 = 1 \tag{C.4}$$

Appliqué au cas parallèle ($R_{ch} \to +\infty$), on obtient la constante de normalisation suivante :

$$\frac{1}{[U^{(i)}]^2} = \rho le \left[\frac{L_1}{2}\frac{1 + sinc(2X_1^{(i)})}{cos^2 X_1^{(i)}} + \frac{L_2}{2}\frac{1 + sinc(2X_2^{(i)})}{cos^2 X_2^{(i)}}\right]$$

$$\frac{1}{[U^{(i)}]^2} \approx \frac{\rho Lle}{2}\left[\frac{1}{cos^2 X_2^{(i)}}\right] \tag{C.5}$$

Expression de la raideur modale La raideur modale s'exprime comme suit

$$K^{(i)} = \int_{-L1}^{0} \frac{le}{s_{11}^E}\left[\underline{u}_{1,1}^{(i)}(x_1)\right]^2 dx_1 + \int_0^{L_2} \frac{le}{s_{33}^E(1-k_{33}^2)}\left[\underline{u}_{1,1}^{(i)}(x_1)\right]^2 dx_1$$

Appliqué au cas parallèle :

$$K^{(i)} = [U^{(i)}]^2 \left[\frac{1}{s_{11}^E} \frac{le}{2L_1} (X_1^{(i)})^2 \frac{1 - sinc(2X_1^{(i)})}{cos^2 X_1^{(i)}} + \frac{1}{s_{33}^E (1 - k_{33}^2)} \frac{le}{2L_2} (X_2^{(i)})^2 \frac{1 - sinc(2X_2^{(i)})}{cos^2 X_2^{(i)}} \right]$$

$$K^{(i)} \approx [U^{(i)}]^2 \frac{le}{2Ls_{11}^E} \left[\frac{(i\pi)^2}{cos^2 X_2^{(i)}} \right] = \frac{1}{\rho s_{11}^E} \left(\frac{i\pi}{L} \right)^2 \tag{C.6}$$

Expression des facteurs de conversion modaux Calcul des facteurs de conversion piézoélectrique

$$\begin{cases} \psi_p^{(i)} = -l \frac{d_{31}}{s_{11}^E} \int_{-L_1}^0 \underline{u}_{1,1}^{(i)}(x_1) dx_1 \\ \psi_s^{(i)} = -\frac{le}{L_2} \frac{d_{33}}{s_{33}^E} \int_0^{L_2} \underline{u}_{1,1}^{(i)}(x_1) dx_1 \end{cases} \tag{C.7}$$

Dans le cas parallèle, ils s'expriment :

$$\begin{cases} \psi_p^{(i)} = U^{(i)} l \frac{d_{31}}{s_{11}^E} \frac{1 - cosX_1^{(i)}}{cosX_1^{(i)}} \\ \psi_s^{(i)} = U^{(i)} \frac{le}{L_2} \frac{d_{33}}{s_{33}^E} \frac{cosX_2^{(i)} - 1}{cosX_2^{(i)}} \end{cases} \tag{C.8}$$

Expression du facteur de qualité :

$$Q_m = \frac{\sqrt{\omega_1 \omega_2}}{\Delta\omega} = \frac{1}{R_m} \sqrt{\frac{L_m}{C_m}} \tag{C.9}$$

Expression des 4 paramètres électriques dans le cas parallèle

- Gain statique du transformateur

$$\psi^{(i)} = \frac{\psi_p^{(i)}}{\psi_s^{(i)}} = \frac{L_2}{e} \frac{d_{31}}{d_{33}} \left[\frac{(1 - cosX_1^{(i)}) cosX_2^{(i)}}{(cosX_2^{(i)} - 1) cosX_1^{(i)}} \right]$$

$$\boxed{\psi^{(i)} \approx -\frac{L_2}{e} \frac{d_{31}}{d_{33}} \left[\frac{1 - cosX_1^{(i)}}{(-1)^i - cosX_1^{(i)}} \right]} \tag{C.10}$$

- Inductance série

$$L_m^{(i)} = \frac{M^{(i)}}{(\psi_p^{(i)})^2}$$
$$= \frac{1}{[U^{(i)}]^2}\frac{1}{l^2}\frac{{s_{11}^E}^2}{d_{31}^2}\frac{cos^2 X_1^{(i)}}{(1-cosX_1^{(i)})^2}$$

$$\boxed{L_m^{(i)} \approx \frac{Le}{2l}\frac{\rho {s_{11}^E}^2}{d_{31}^2}\left[\frac{1}{(1-cosX_1^{(i)})^2}\right]} \tag{C.11}$$

- Capacité série

$$C_m^{(i)} = \frac{(\psi_p^{(i)})^2}{K^{(i)} - \frac{(\psi_s^{(i)})^2}{C_s}}$$
$$\approx \frac{\frac{l^2 d_{31}^2}{{s_{11}^E}^2}(1-cosX_1^{(i)})^2}{\frac{le}{2Ls_{11}^E}(i\pi)^2 - \frac{le}{L_2}\frac{d_{33}^2}{\varepsilon_{33}{s_{33}^E}^2}(cosX_2^{(i)}-1)^2}$$
$$\approx \frac{l}{e}\frac{d_{31}^2}{s_{11}^E}\left[\frac{(1-cosX_1^{(i)})^2}{\frac{(i\pi)^2}{2L} - \frac{k_{33}^2}{L_2}(cosX_2^{(i)}-1)^2}\right]$$

$$\boxed{C_m^{(i)} \approx \frac{2Ll}{e}\frac{d_{31}^2}{s_{11}^E}\left[\frac{(1-cosX_1^{(i)})^2}{(i\pi)^2}\right]} \tag{C.12}$$

- Résistance série

  Q_m facteur de qualité intrinsèque au matériau

$$R_m^{(i)} = \frac{1}{Q_m}\sqrt{\frac{L_m^{(i)}}{C_m^{(i)}}}$$

$$\boxed{R_m^{(i)} = \frac{e}{l}\frac{s_{11}^E\sqrt{s_{11}^E\rho}}{d_{31}^2 Q_m}\left[\frac{i\pi}{(1-cosX_1^{(i)})^2}\right]} \tag{C.13}$$

Parité des modes On peut distinguer une parité des modes. Elle se traduit par un maximum de contraintes à l'interface primaire/secondaire pour les modes impairs et maximum de déplacement à l'interface pour les modes pairs.

Elle se traduit par une inversion du signe du rapport de transformation. Négatif pour les modes impairs et positif pour les modes pairs.

$$G = \frac{V_2}{V_1} = \frac{\Psi}{\sqrt{\left[1 - c\left(\frac{\omega^2}{\omega_s^2} - 1 + \frac{Q}{Q_m}\right)\right]^2 + \left[\frac{c}{Q_m}\frac{\omega}{\omega_s} + cQ\left(\frac{\omega}{\omega_s} - \frac{\omega_s}{\omega}\right)\right]^2}} \tag{C.14}$$

P_2^* : puissance de sortie normalisée sur le maximum de puissance $P_0 = \dfrac{V_1^2}{4R}$

$$P_2^* = \frac{P_2}{P_0} = \frac{4cQ/Q_m}{\left[1 - c\left(\frac{\omega^2}{\omega_s^2} - 1 + \frac{Q}{Q_m}\right)\right]^2 + \left[\frac{c}{Q_m}\frac{\omega}{\omega_s} + cQ\left(\frac{\omega}{\omega_s} - \frac{\omega_s}{\omega}\right)\right]^2} \tag{C.15}$$

La fréquence de résonance est donnée par la relation suivante :

$$\frac{\omega_R^2}{\omega_s^2} = \frac{1}{2}\left(1 + \frac{1}{c} - Q^2\right) + \sqrt{\frac{1}{4}\left(1 + \frac{1}{c} - Q^2\right)^2 + Q^2} \tag{C.16}$$