



République Algérienne Démocratique et Populaire  
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de  
La Recherche Scientifique  
Université Ibn Khaldoun – Tiaret –



Faculté des Sciences et de la Technologie et Sciences de la Matière

Département des Sciences et de la Technologie

**MEMOIRE**  
EN VUE DE L'OBTENTION DU DIPLOME DE  
**MAGISTER**

**Ecole Doctorale:** Electrotechnique et ses applications

**OPTION :** Matériaux diélectriques et haute tension

**Présenté par**

**BOUZIANE NADJET**  
**Epouse : ELHACHEMI**

**SUJET DU MEMOIRE :**

***Etude de la génération de l'ozone par une décharge  
électrique couronne positive***

Devant Le Jury Composé de :

<b>Monsieur A. MIMOUNI</b>	<b>Maître de conférences A,</b>	<b>PRESIDENT</b>
<b>Monsieur K. YANALLAH</b>	<b>Maître de conférences A,</b>	<b>RAPPORTEUR</b>
<b>Monsieur S. HADJ ZIANE</b>	<b>Professeur</b>	<b>EXAMINATEUR</b>
<b>Monsieur M. BOUADI</b>	<b>Maître de conférences A,</b>	<b>EXAMINATEUR</b>

**Année Universitaire : 2012/2013**

## Remerciements

Je remercie tout d'abord **Allah** de m'avoir prêté santé et volonté pour mener à terme ce mémoire.

Ce travail a été réalisé sous la direction scientifique de Monsieur le docteur **K. YANALLAH**. Qu'il trouve ici l'expression de ma sincère reconnaissance pour ses précieuses directives, sa disponibilité et surtout pour sa confiance en moi et pour m'avoir toujours guidé dans la bonne direction. Que ce mémoire soit un témoignage de ma respectueuse reconnaissance pour l'intérêt constant qu'il a porté à mon travail en me faisant bénéficier de son expérience.

J'adresse mes sincères remerciements à

Monsieur **A. MIMOUNI**, pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant la présidence de ce jury. Monsieur **S. HADJ ZIANE** et Monsieur **M. BOUADI** d'avoir accepté d'examiner mon travail et de faire partie du jury de ce mémoire.

Tous mes professeurs du Département des Sciences et de la Technologie, Tiaret. Tout le personnel du laboratoire **de Génie Electrique et des Plasmas** qui de loin ou de près ont contribué à la réalisation de ce travail et surtout **M<sup>elle</sup> KHEMKHAM NAIMA**.

Un spécial remerciement à mon mari **ELHACHEMI AHMED FADEL** pour le soutien moral et la patience dont il a fait preuve pendant cette période difficile.

Mes ami(e) et mes collègues de bureau pour leur soutien moral et amical. Je les remercie tous un par un. Je les prie de croire en ma réelle joie et ma grande satisfaction de les avoir connus et continuer à les connaître notamment **M<sup>elle</sup> ADIL FAIZA**.

Mes parents, mes frères, ainsi que mes sœurs qui ont toujours su m'entourer de toute leur affection, me protéger et me soutenir. Sans eux, je n'en serais pas là aujourd'hui

Je remercie tous ceux et celles qui m'ont aidé, les uns de leurs compétences, les autres de leur disponibilité, de leurs encouragements, de leur soutien moral et logistique.

# Sommaire

Introduction Générale.....	01
----------------------------	----

<p style="text-align: center;"><b><i>Chapitre I : Etude de la génération de l’ozone par une décharge électrique</i></b></p>
---

I.1 Introduction.....	05
I.2 Structure.....	06
I.3 Propriétés physiques et chimiques.....	06
I.4 Les méthodes de production de l'ozone.....	08
I.4.1 La méthode photochimique.....	08
I.4.2 La méthode électrochimique.....	09
I.4.3 Méthode de décharge électrique.....	10
I.4.3.1 Généralités sur les Décharges électriques.....	10
I.4.3.1.1 Description d’une décharge électrique.....	10
I.4.3.1.2 Types de décharge.....	11
I.4.3.1.2.1 Décharge couronne.....	11
I.4.3.2 Techniques de production d'ozone par décharge électrique.....	23
I.4.3.2.1 La décharge silencieuse.....	23
I.4.3.2.2 La décharge surfacique.....	25
I.4.3.2.3 La décharge couronne.....	26
I.5 Les méthodes de mesure de la concentration d’ozone.....	28
I.5.1 La chimiluminescence.....	29
I.5.2 Titrage de la phase gazeuse GPT.....	29
I.5.3 Mesure par absorption des rayons ultraviolets.....	29
I.6 Stabilisation et stockage de l’ozone.....	30
I.7 Conclusion.....	31
Références.....	32

## *Chapitre II : Modélisation mathématique*

II.1 Introduction.....	35
II.2 Modèle électrique auto cohérent.....	36
II.2.1 Modèle microscopique .....	37
II.2.2 Modèle hybride.....	37
II.2.3 Modèle fluide.....	37
II.2.3.1 Équation de continuité.....	38
II.2.3.2 L'équation de transfert de quantité de mouvement.....	39
II.2.3.3 L'équation d'énergie .....	39
II.2.3.4 Modèle fluide à deux moments .....	40
II.3 Modélisation de la Décharge couronne positive (Fil-cylindre).....	40
II.3.1 Calcul du champ électrique.....	42
II.3.2 Calcul de la densité électronique.....	43
II.3.2.1 Méthode analytique .....	43
II.3.2.2 Simplification de la méthode analytique.....	44
II.3.2.3 Conditions aux limites .....	45
II.3.2.4 Calcul de la distribution des espèces neutres .....	45
II.3.3 Modèle cinétique chimique .....	47
II.3.3.1 Hypothèses simplificatrices.....	47
II.3.3.2 Génération des espèces chimique pendant la décharge.....	49
II.3.3.3 Bilan réactionnel des espèces .....	49
II.3.3.4 Le logiciel COMSOL .....	51
II.3.3.5 Conditions aux limites.....	56
II.5. Conclusion .....	58
Références .....	59

***Chapitre III : Résultats de la modélisation de la production de l'ozone par décharge électrique couronne positive dans l'air***

III.1. Introduction .....	63
III.2 Description du montage expérimentale.....	64
III.3 Caractéristique courant-tension.....	65
III.4 Résultats et interprétation .....	67
III.4.1 Champ électrique.....	67
III.4.2 Densité électronique.....	68
III.5 Etude paramétrique.....	69
III.5.1 Champ électrique.....	69
III.5.2 Densité électronique.....	71
III.6 Distribution des neutres.....	75
III.6.1 Distribution spatiale de l'oxygène atomique (O).....	77
III.6.2 Distribution spatiale de l'ozone(O <sub>3</sub> ).....	81
III.6.3 Distribution spatiale de l'azote (N) .....	84
III.6.4 Distribution spatiale de l'oxyde d'azote (NO).....	87
III.6.5 Distribution spatiale du dioxyde d'azote (NO <sub>2</sub> ).....	90
III.6.6 Distribution spatiale du nitrate (NO <sub>3</sub> ) .....	93
III.6.7 Distribution spatiale du pentoxyde d'azote (N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) .....	97
III.6.8 Distribution spatiale d'oxygène excité (O <sub>2</sub> <sup>*</sup> ) .....	100
III.6.9 Distribution spatiale d'azote excité (N <sub>2</sub> <sup>*</sup> ) .....	103
III.6.10 Protoxyde d'azote (N <sub>2</sub> O).....	106
III.7 Comparaison avec les travaux antécédents .....	108
III.8 Conclusion.....	109
Références .....	110
Conclusion Générale	

# Nomenclature

Les symboles sont généralement définis quand ils apparaissent dans le texte. La liste ci dessous contient seulement les symboles les plus communément utilisés.

<b>N</b>	Densité des espèces	(m <sup>-3</sup> )
<b>v</b>	Vitesse des particules	(m.s <sup>-1</sup> )
<b>E</b>	Champ électrique	(V.m <sup>-1</sup> )
<b>E/N</b>	Champ réduit	(Td)
<b>N<sub>e</sub></b>	Densité électronique	(m <sup>-3</sup> )
<b>N<sub>p</sub></b>	Densité des positifs	(m <sup>-3</sup> )
<b>N<sub>n</sub></b>	Densité des négatifs	(m <sup>-3</sup> )
<b>S</b>	Le taux de création ou de disparition des particules.	(m <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup> )
<b>k</b>	Coefficient de réaction	(m <sup>-6</sup> .S <sup>-1</sup> ) ou (m <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup> )
<b>R<sub>g</sub></b>	Constante des gaz parfaits	(J.K <sup>-1</sup> )
<b>t</b>	Temps	(s)
<b>I</b>	Courant électrique	(A)
<b>V</b>	Potentiel	(V)
<b>P</b>	Pression	(Pa)
<b>T</b>	Température	(K)
<b>m</b>	Masse	(Kg)
<b>r</b>	Composante radiale	(m)
<b>z</b>	Composante axiale	(m)
<b>V<sub>z</sub></b>	Vitesse de l'écoulement du gaz	(m.s <sup>-1</sup> )
<b>K<sub>B</sub></b>	Constants de Boltzmann	(J.s <sup>-1</sup> )
<b>Q</b>	Débit de gaz	(m <sup>3</sup> /s)
<b>R</b>	Rayon du cylindre	(m)
<b>r<sub>0</sub></b>	Rayon du fil couronne	(m)
<b>L</b>	La longueur du cylindre	(m)
<b>e</b>	La charge électrique	(C)
<b>μ</b>	Mobilité des espèces	(m <sup>2</sup> .V <sup>-1</sup> .S <sup>-1</sup> )
<b>D</b>	Le coefficient de diffusion	(m <sup>2</sup> .S <sup>-1</sup> )

$\alpha$	Coefficient d'ionisation	(cm <sup>-1</sup> )
$\eta$	Coefficient d'attachement	(cm <sup>-1</sup> )
$\alpha_{eff}$	Coefficient d'ionisation effective	(cm <sup>-1</sup> )
$n$	La densité d'ozone	(cm <sup>-3</sup> )
$d_r$	La densité relative d'air	

### Valeurs

$\sigma$  : La section efficace d'absorption d'ozone à 253.65nm =  $1.1410^{-17}$  cm<sup>2</sup>.

$$K_B = 1.38062 \cdot 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{s}^{-1}$$

$$R_g = 8,316 \text{ J} \cdot \text{k}^{-1} \cdot \text{mole}^{-1}.$$

$$e = 1.6 \cdot 10^{-19} \text{ C}.$$

# *Introduction Générale*

---

## *Introduction générale*

---

Lors d'une expérience de l'électrolyse de l'eau en 1839, Schöbein identifie l'odeur d'un nouveau gaz provenant de l'anode, et attribue à ce nouveau produit chimique le nom ozone puis en 1857, Siemens, proposa une nouvelle méthode de production d'ozone par décharge électrique dans l'oxygène ou l'air à la pression atmosphérique avec une forme coaxiale. Ce composé naturel de formule chimique  $O_3$ , (3 atomes d'oxygènes formant un triangle isocèle non fermé), présent dans toute l'atmosphère à très faible concentration et dans la stratosphère joue le rôle d'un filtre protecteur en absorbant les radiations ultraviolettes avec un maximum d'absorption de 254 nm[1]. Il est caractérisé par plusieurs propriétés chimiques: bactéricide, germicide, désinfectant, déodorant, décolorant et oxydant, ce sont ces qualités qui font l'intérêt de son utilisation dans de nombreux domaines, on cite par exemple: les traitements thérapeutiques; les déchets industriels; désodorisation en général; la stérilisation et l'épuration de l'eau.

Vu les avantages de la molécule d'ozone; les chercheurs s'intéressent de plus en plus à sa production. Plusieurs méthodes ont été mises en place comme la méthode photochimique; électrochimique et par décharge électrique. Cette dernière méthode fait l'objet de notre étude, notamment la production d'ozone par décharge électrique couronne positive fil-cylindre. Cette dernière est celle qui se produit lorsque le fil est porté à un potentiel positif et le cylindre à la terre. Dans ce cas, dans la région au voisinage du fil où le champ est intense, des électrons sont produits par photo-ionisation et sont accélérés vers l'anode (le fil). Autour de l'anode, se développe une région de forte ionisation dite « Région active ». A partir de cette région les ions positifs migrent vers la cathode (le cylindre) sous l'effet des forces de coulomb. Les électrons accélérés par le champ électrique provoquent des réactions chimiques par collisions avec les molécules neutres du gaz utilisé et produisent des espèces chimiques actives.

Dans ce contexte le but de ce travail est la modélisation de la distribution spatiale de des espèces neutres produites par la décharge couronne positive de type fil-cylindre dans l'air

sec ( $O$ ,  $O_2$ ,  $N$ ,  $N_2$ ,  $NO$ ,  $NO_2$ ,  $NO_3$ ,  $N_2O$ ,  $N_2O_5$ ) et les états excités ( $N_2^*$ ,  $O_2^*$ ) qui contribuent à la production (où la dissociation) de l'ozone ( $O_3$ ). Pour la détermination de la densité électronique nécessaire dans notre modèle, nous avons élaboré un modèle analytique simple extrait du modèle fluide à deux moments unidimensionnel et stationnaire, (basé sur l'approximation du champ local), c'est-à-dire la résolution des équations de continuité et de transport couplées avec l'équation de Poisson. Le modèle cinétique chimique à résoudre est constitué d'un système d'équations différentielles non-linéaires couplées dont la résolution est faite par l'utilisation du logiciel COMSOL.

Suivant cet objectif le manuscrit est organisé de la manière suivante :

- Dans le premier chapitre, nous présentons une étude sur la génération d'ozone par décharge électrique pour cela nous avons commencé par citer les propriétés physico-chimique de l'ozone, les méthodes de mesure de la concentration de l'ozone et la production d'ozone par différentes techniques de décharge électrique notamment par décharge couronne et ses applications.
- Dans le second chapitre, nous décrivons les modèles mathématiques sur lesquels se base notre modèle. Nous commençons par expliquer le model fluide à deux moments extrait des équations de Boltzmann puis nous présentons la méthode analytique développée par Yanallah et al[3]. basée sur le découplage des équations de continuité de transfert et de l'équation de Poisson que nous avons simplifié pour le calcul du champ électrique et de la densité électronique. Et nous terminons par exposer le modèle cinétique chimique inspiré des travaux de Chen[2] et une brève description du logiciel COMSOL que nous avons utilisé pour la résolution des douze équations différentielles couplés que nous avons déterminé à partir du model cinétique chimique.
- Dans le troisième chapitre ; nous commençons par la description du montage expérimentale réalisé par Yehia et al, que nous avons modélisé. Nous terminons par présenter les résultats de la distribution spatiale [en 2D] des différentes espèces neutres ( $O$ ,  $O_2$ ,  $O_3$ ,  $N$ ,  $N_2$ ,  $NO$ ,  $NO_2$ ,  $NO_3$ ,  $N_2O$ ,  $N_2O_5$ ) produites par la décharge couronne positive de type Fil-cylindre dans l'air sec.

**Références:**

[1] : M. Boufeldja; "L'influence de la nature du matériau des parois sur la décomposition de l'ozone O<sub>3</sub> dans une décharge couronne"; Mémoire de Magister ; Université des Sciences et de la Technologie Mohamed Boudiaf –Oran; Juillet 2009.

[2] : J. Chen; "Direct current corona-enhanced chemical reactions", Thèse de doctorat; Université de Minnesota, Aout 2002.

[3]: A Yehia et al, "On assessment of ozone generation in dc coronas", J. Phys. D: Appl. Phys. 33(2000) 831–835. Printed in the UK, Janvier 2000

## *Chapitre I. :*

*Etude de la génération de  
l'ozone par une décharge  
électrique*

# CHAPITRE I

Dans ce chapitre, nous présentons une étude sur la génération d'ozone par décharge électrique. Pour cela nous avons commencé par cité les propriétés physico-chimique de l'ozone, les méthodes de mesure de la concentration de l'ozone et la production d'ozone par différentes techniques de décharge électrique, notamment par décharge couronne, et ses applications.

## I.1 Introduction

Dans l'antiquité déjà, on connaissait l'ozone par son odeur caractéristique qui survient après les éclairs, ainsi que le relatent les épopées d'Homère: l'Iliade et l'Odyssée dans lesquelles l'on qualifie cette odeur de « sulfureuse ». En 1785, le chercheur scientifique Martinus Van Marum a décrit l'odeur caractéristique se formant près d'une machine électrostatique et en 1801 Cruikshank, effectuant l'électrolyse de l'eau, a noté la même odeur à l'anode. L'ozone n'a été en fait découvert qu'en 1840 par le Suisse M. F. C. Schönbein qui la dénomma ainsi en se référant à la racine grecque Ozeïn: exhaler une odeur, sentir. Les recherches seront facilitées en 1857 par la construction par W. Von Siemens du premier ozoneur et dont le principe, basé sur un tube à décharge, est encore utilisé actuellement. J. L. Soret fut le premier, en 1865, grâce à une détermination indirecte de la densité, à démontrer la composition chimique de l'ozone conduisant à la formule  $O_3$ ...l'hypothèse la plus. « Logique pour expliquer cet ensemble de faits, consiste à admettre que l'ozone est une modification allotropique de l'oxygène... ». La découverte des propriétés bactéricides de l'ozone par Ohlmüller en 1890, a été à l'origine de sa production industrielle. Ce sont surtout les travaux de Criegee qui à partir de 1953 ont fait avancer nos connaissances dans le domaine de la chimie de l'ozone. L'ozone est maintenant utilisé dans l'agriculture, l'alimentation, l'industrie chimique et surtout dans le domaine du retraitement des eaux. Le développement de l'écologie et des nouvelles technologies ont initié de nombreuses applications de l'ozone dans, des domaines aussi divers que, le blanchiment et la délignification de la pâte à papier, l'industrie textile, les traitements sanitaires et médicaux, le traitement de l'air, l'industrie des cosmétiques, l'industrie laitière, etc. En outre, la découverte à partir de 1965 de la disparition de la couche d'ozone a fait prendre conscience aux scientifiques par le biais de l'opinion mondiale de l'importance de l'ozone et le développement des programmes d'étude de la chimie de l'ozone en résulte. Ces travaux ont été consacrés en 1995 par l'attribution du prix Nobel de chimie à Paul Crutzen, Mario Molina, et F. Sherwood Roland pour leurs travaux sur la disparition de la couche d'ozone.

## I.2 Structure

L'ozone se présente sous la forme d'un triangle isocèle d'angle au sommet égal à  $116,8^\circ$ . Les deux liaisons interatomiques ont pour longueur  $1,278 \text{ \AA}$  [1] les trois atomes d'oxygène qui composent une molécule d'ozone sont presque sous forme d'un triangle équilatéral (Figure 1.1) [2]

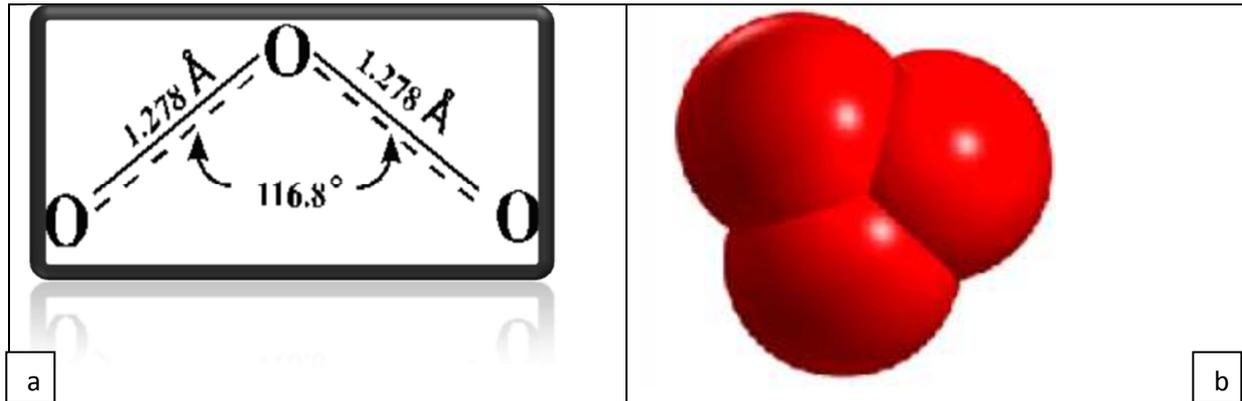


Figure I.1 : Molécule d'ozone ( $O_3$ )

## I.3 Propriétés physiques et chimiques

L'ozone est un composé naturel présent dans toute l'atmosphère à de très faible concentration. Il se produit naturellement dans la stratosphère (avec des concentrations entre 5 à 10 ppm) ayant le rôle de couche protectrice de la planète contre les effets des rayons UV de longueur d'onde comprise entre 200 et 300 nm, le maximum d'absorption se situant à 254 nm. Cette propriété est d'ailleurs utilisée pour la détermination de la concentration en ozone dans un gaz à température et pression ambiantes ou dans la troposphère comme polluant secondaire résultant des processus de photo-oxydation des  $NO_x$  et des Composés Organiques Volatils (VOC). [1-2]

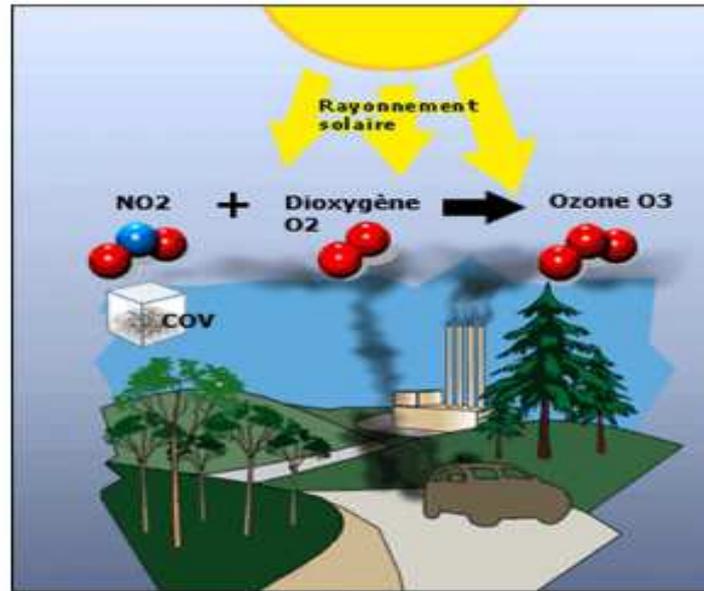


Figure I.2: photo-oxydation des NOx et des VOC

L'ozone est un gaz instable, de couleur bleue et ayant une odeur très caractéristique décelable dès une concentration de 0,01 ppm. L'ozone est très irritant pour le système respiratoire et les muqueuses oculaires, les normes d'exposition à respecter dans la majorité des pays sont fixées à 0,1 ppm dans l'air pour 8 heures d'exposition quotidienne [3]. Les principales constantes physiques et thermodynamiques de l'ozone sont reprises dans le tableau (I.1).

<b>Masse molaire</b>	47,9982
<b>Point de fusion</b>	-192,7 °C
<b>Point d'ébullition</b>	-111,9 (1 atm.)
<b>Masse volumique (gaz) à 0°C, 1atm</b>	2,15 g.l <sup>-1</sup>
<b>Enthalpie de formation</b>	142,12 kj.mol <sup>-1</sup>
<b>Energie de dissociation</b>	-144,8 kj.mol <sup>-1</sup>
<b>Potentiel d'oxydation à 25°C</b>	+2.075 V

Tableau I.1 : Principales constantes physiques de l'ozone.

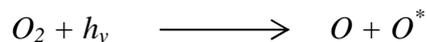
## I.4 Les méthodes de production de l'ozone

L'ozone peut être généré commercialement par trois méthodes essentielles [4] :

- La décharge électrique,
- La méthode photochimique,
- La méthode électrochimique,

### I.4.1 La méthode photochimique

La création d'ozone par photodissociation de l'oxygène est le principal processus de formation de l'ozone stratosphérique, et donc de la très connue "couche d'ozone" (mécanisme de Chapman).



Les atomes d'oxygène constitués par la photodissociation d'oxygène moléculaire par rayonnement UV de longueur d'onde courte ( $< 242 \text{ nm}$ ) réagissent avec les molécules d'oxygène pour former l'ozone. Le taux maximum de production de l'ozone par cette méthode est de  $2 \text{ g/l}$  et la concentration la plus élevée de l'ozone qui peut être produite à des lampes d'UV à  $185 \text{ nm}$  est approximativement  $10 \%$  de la concentration moyenne donnée par décharges électriques. La figure (I.3) représente une échelle électromagnétique; notons l'endroit de la lumière UV de haute fréquence relative à la lumière visible

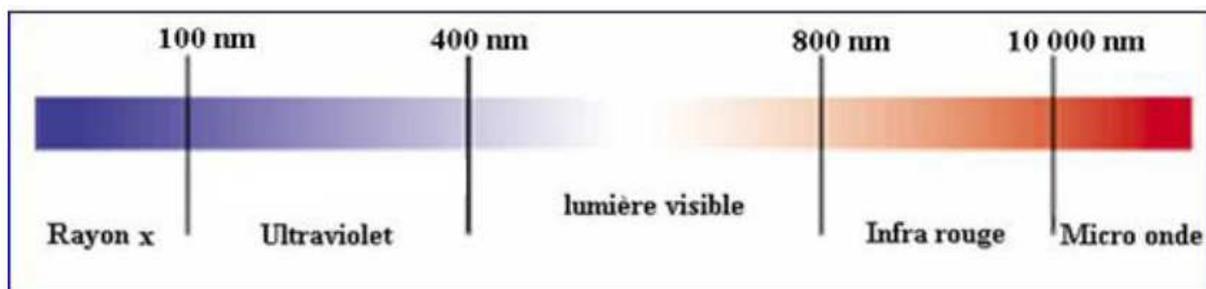


Figure I.3: Spectre électromagnétique

Par cette technique théoriquement, le rendement de l'ozone devait être assez grand, ce qui n'est pas évalué quantitativement en pratique pour différentes raisons, si on prend comme exemple les lampes de mercure à basse pression produisent le rayonnement de 185 nm responsable de la production d'ozone mais aussi le rayonnement 254 nm qui le détruisent. Cette méthode permet d'une part que l'air ambiant peut être employé efficacement comme gaz d'alimentation sans le besoin de le sécher et d'autre part Les coûts d'équipements sont beaucoup inférieurs à celles des générateurs à décharges électriques. Par contre elle ne permet pas d'atteindre un maximum de concentration et un meilleur taux de production simultanément. Les basses concentrations d'ozone fournies par les générateurs UV limitent leurs applications au traitement de l'eau. Cependant, leur utilisation de produire l'ozone pour le traitement d'air peut être efficace quand les concentrations très élevées d'ozone ne sont pas exigées.

#### **I.4.2 La méthode électrochimique**

Habituellement, dans la méthode électrochimique de production d'ozone, une tension électrique est appliquée entre une anode et une cathode dans une solution électrolytique contenant des anions fortement électronégatifs. Un mélange de l'oxygène et d'ozone est produit à l'anode. Cette technique produit des concentrations très élevées (jusqu'à 50 % du poids d'air) sans devoir sécher l'air. Mais l'ozone et l'air forment un mélange explosif au-dessus de 20 % en poids d'ozone. En outre, puisque des concentrations d'environ 16% peuvent être atteintes par les techniques de décharges électriques en utilisant l'oxygène de grande pureté comme gaz d'alimentation, la possibilité de réaliser une concentration plus élevée n'est pas un avantage important. L'électrolyse de l'eau peut produire des concentrations élevées de l'ozone, mais le rendement demeure faible et le coût est très important comparé à la méthode de la décharge électrique ou celle de l'UV. Actuellement, la génération électrolytique de l'ozone est employée seulement pour des études de laboratoire et des applications à très petite échelle dans l'industrie de l'électronique et pharmaceutiques. Les intentions économiques pour la production électrolytique de l'ozone semblent actuellement être les plus défavorables. Bien que la génération de l'ozone par électrolyse soit moins efficace que par décharge électrique, l'avantage des concentrations élevées (>20 %) dans cette technique continue à encourager les efforts de recherches dans cette voie.

## I.4.3 Méthode de décharge électrique

La méthode la plus courante pour la génération de l'ozone est la décharge électrique dans l'air ou l'oxygène pur qui dépend aussi du matériel diélectrique, de la configuration des électrodes, de la source d'énergie, ...etc. Cette technique est réalisée par différents types de décharges telles que la décharge silencieuse, surfacique ; couronne ....etc. Avant d'exposer ces techniques, nous allons dans ce qui suit donné un aperçu sur les décharges électriques notamment la décharge couronne, l'objet de cette étude.

### I.4.3.1 Généralités sur les décharges électriques

#### I.4.3.1.1 Description d'une décharge électrique

La décharge dans les gaz est la plus courante son mécanisme est basé généralement sur la collision entre les électrons et les molécules du gaz [5]. Cette décharge qui est divisée en deux grandes catégories : la décharge autonome qui peut durer sans supplément d'électrons externes et la décharge non autonome qui ne dure pas sans supplément d'électrons externes, peut être classifiée suivant différents critères :

- la pression,
- la caractéristique tension -courant,
- la nature du gaz,
- la configuration des électrodes

Les plus importants processus physiques d'une décharge électrique dans les gaz sont :

- La formation des électrons libres et des ions positifs par ionisation
- La formation des ions négatifs par attachement
- La formation des électrons secondaires à la cathode
- Le détachement d'un électron venant d'un ion négatif instable
- La conversion d'un ion négatif instable vers un ion stable

### **I.4.3.1.2 Types de décharge**

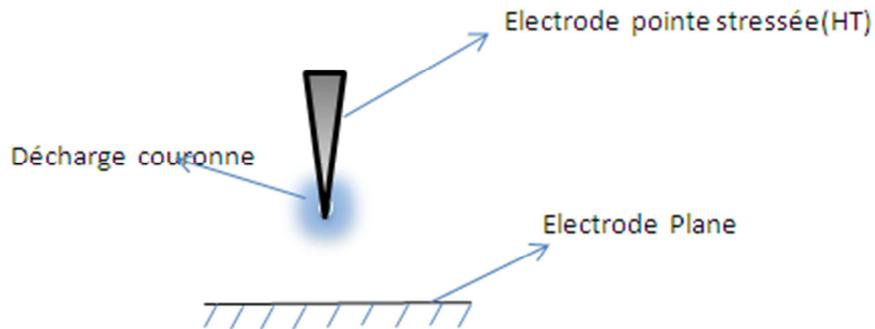
Il existe plusieurs types de décharge telle que la décharge silencieuse, la décharge a barrière diélectrique (DBD), couronne.....etc. Dans notre travail on s'intéresse particulièrement à la *décharge couronne à pression atmosphérique*

#### **I.4.3.1.2.1 Décharge couronne**

Les décharges couronnes sont des décharges hors équilibre se produisant en présence de champ fortement inhomogène spatialement. De tels champs sont généralement obtenus par un système d'électrodes asymétriques, où le rayon de courbure d'une des électrodes est très faible devant la distance inter-électrode. Le champ électrique généré est alors particulièrement intense près de cette électrode, appelée électrode stressée, et décroît rapidement au fur et à mesure que l'on s'en éloigne. Parmi l'ensemble des dispositifs correspondant à cette description, de par la distribution du champ électrique, les avalanches électroniques nécessaires à l'apparition d'une décharge couronne ne peuvent se produire qu'à proximité de l'électrode stressée. Ainsi, le déclenchement ou non de la décharge dépend principalement de la valeur maximale du champ électrique près de l'électrode stressée. Si la différence de tension appliquée est insuffisante, on ne mesure alors qu'un courant très faible, induit par les particules chargées naturellement présentes dans le gaz. Lorsqu'une certaine tension est atteinte, la décharge s'initie, accompagnée d'une émission de lumière autour de l'électrode stressée, et le courant mesuré augmente. On distingue alors deux types de décharges, appelées respectivement décharges couronnes positives ou négatives selon si l'électrode stressée a le rôle d'anode ou de cathode. Les mécanismes de fonctionnement de chacune de ces décharges sont brièvement décrits dans les sections suivantes. [1-2].

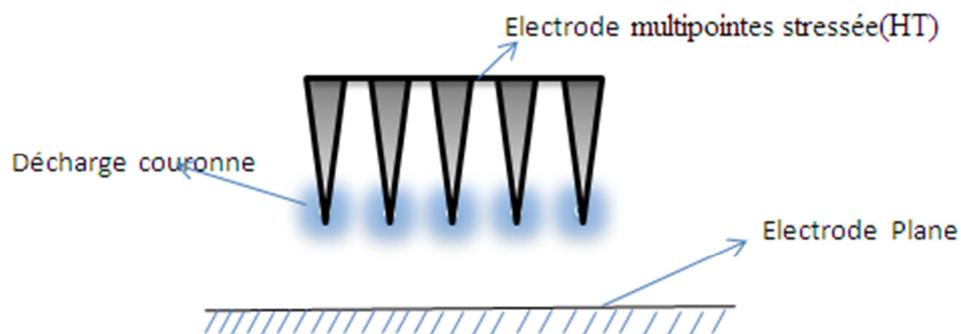
#### **a) Différents systèmes d'électrodes**

Les jeux d'électrodes que l'on retrouve couramment dans les décharges couronnes sont de type :

**i. Pointe – plan**

*Figure I.4 : Géométrie pointe-plan*

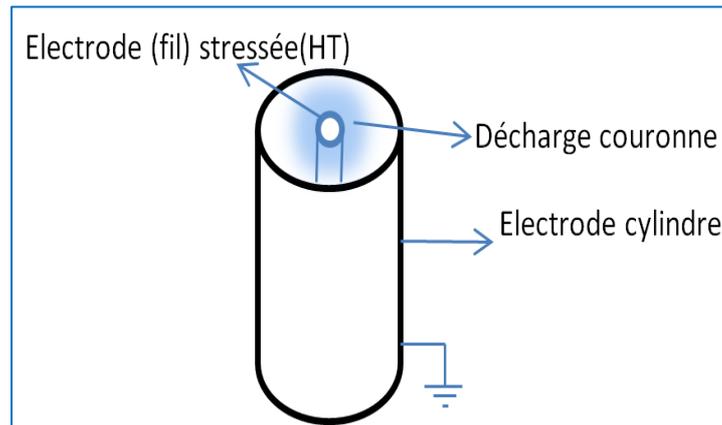
Le système mono pointe – plan à l'avantage de pouvoir isoler une décharge d'une part, en effectuer l'étude expérimentale et d'autre part, se rapprocher des conditions opératoires permettant une étude comparative entre les résultats des expériences et de la modélisation.

**ii. Multi pointes-plan**

*Figure I.5 : Géométrie multipointe-Plan*

Le système « multi pointes – plan » à l'avantage de pouvoir contrôler la répartition des décharges le long de l'écoulement.

**iii. Fil – cylindre**



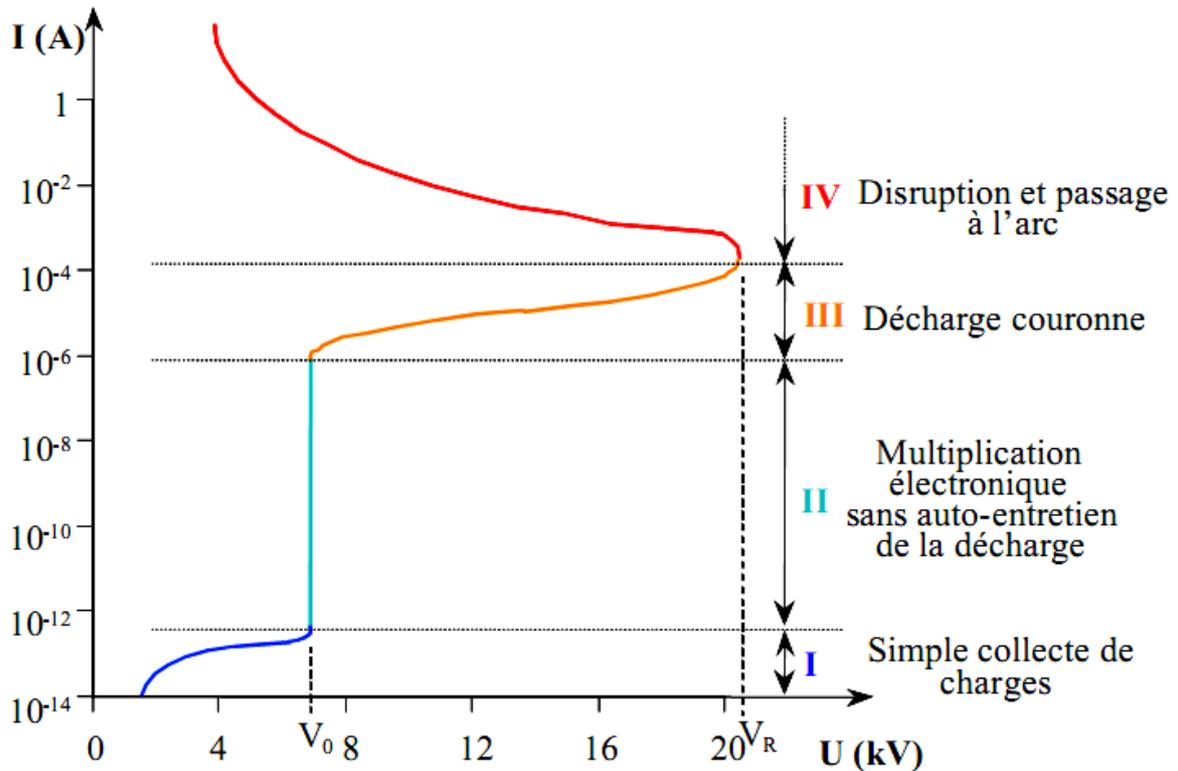
**Figure I.6 :** Géométrie fil-cylindre

Le système d'électrodes « fil – cylindre » est très utilisé pour la dépollution des gaz d'échappement. Il a l'avantage de permettre la dépollution des gaz au sein même de la conduite d'échappement du gaz. La répartition aléatoire des décharges produites entre le fil et le cylindre permet une dépollution du gaz en volume. Plusieurs géométries de répartition d'électrodes sont possibles ; en forme de hérisson, en alignement de dents de scie, en brosse sur une surface, etc. De plus, des paramètres de réglage supplémentaires apparaissent, par exemple la densité des pointes, leur positionnement le long de l'écoulement ou leur rayon de courbure. [2] [6] [7]

#### **b) Propriétés spécifiques aux décharges électriques couronnes**

- **Caractéristique courant tension et régimes de décharge**

La caractérisation courant-tension de la décharge électrique couronne est obtenue en faisant croître la tension appliquée à l'intervalle gazeux, différents régimes de décharge sont alors parcourus (Figure (I.7)).



**Figure I.7 :** Caractéristique courant tension d'une décharge couronne dans l'air à pression atmosphérique (configuration pointe plan, distance inter électrode : 13mm) [1-2][6]

**Régime (I) :** consiste à la collecte des espèces chargées présentes naturellement dans le milieu, ces espèces sont produites par l'impact de rayons cosmiques ou de particules issues de la désintégration spontanée de certains atomes (radioactivité naturelle) sur le gaz présent dans l'espace inter-électrode.

**Régime (II) :** qui se produit à partir d'une tension seuil  $V_0$ , traduit le déclenchement de l'avalanche électronique de Townsend mais ne répond pas encore au critère d'auto-entretien de la décharge. La décharge est qualifiée de non-autonome car elle dépend de processus d'ionisation externes pour donner naissance aux électrons germes. Pour ce régime, le courant augmente très fortement pour une très faible variation de la tension appliquée.

**Régime (III) :** l'ionisation du gaz par la décharge est suffisante pour ne plus nécessiter de phénomènes d'ionisation extérieurs : la décharge est auto-entretenu. C'est le régime de la décharge couronne, où apparaissent les dats (« streamers ») responsables de la composante

impulsionnelle du courant. Au-delà d'une tension appliquée  $V_R$  la température du canal augmente fortement, ce qui provoque la dilatation brutale du gaz. Le champ réduit  $E/N$  est alors suffisamment important pour que les phénomènes d'ionisation deviennent majoritaires par rapport à l'attachement électronique.

Près de la cathode se trouve l'électron primaire provoquant une avalanche électronique primaire puisque la vitesse des électrons est environ 100 fois supérieure à celle des ions positifs, l'avalanche se développe comme un nuage d'électrons laissant derrière lui des ions positifs quasi-stationnaires, l'avalanche conduit ensuite à la formation d'une structure dipolaire ; La tête d'avalanche est le siège de collision entre électrons et ions positifs qui est source de nouveaux photons ainsi des électrons secondaires sont créés par photoionisation autour de la charge d'espace et provoquent en tête d'avalanche de petites avalanches secondaires, la charge d'espace augmente en volume et devient un «Streamer». De nouvelles avalanches secondaires viennent s'ajouter à l'avalanche primaire et le Streamer progresse vers la cathode.

**Régime (IV):** Le régime d'arc (IV) est atteint, le milieu passe de l'état de plasma hors équilibre à l'état de plasma thermique.

#### ▪ Champ électrique et topographie de la décharge

Le champ électrique sur la surface de l'électrode pour lequel la décharge électrique couronne est amorcé a été étudié intensivement [8-9], ce champ électrique dépend du potentiel d'ionisation du gaz, la densité du gaz et l'état de surface de l'électrode que l'on applique la haute tension, Peek [8] a établi une expression semi-empirique qui donne le champ électrique d'amorçage dans le cas de l'air sec :

$$E(r_0) = 3.10^4 \cdot \varepsilon \cdot \eta \cdot \left(1 + \frac{0.301}{\sqrt{\eta \cdot r_0}}\right) Vcm^{-1} \quad (\text{I.1})$$

Avec:

$\varepsilon$  : est un nombre sans dimension lié à l'état de lissage de la surface du fil.

( $\epsilon = 1$  pour les surfaces lisse et  $\epsilon < 1$  pour les surfaces rugueuses)

$d_r$  : est la densité relative d'air ( $d_r = T_0 P / TP_0$ )

Où T et P sont respectivement la température et la pression du gaz,

( $T_0 = 293$  K,  $P_0 = 101325$  Pa). La distribution spatiale du potentiel électrique d'amorçage  $V_i$  est donnée par les deux relations suivantes :

➤ **En géométrie fil-cylindre (coaxial) :**

$$V_i = 3.10^5 \times \epsilon \times r_0 \left( \delta + 0.03 \sqrt{\frac{\delta}{r_0}} \right) \ln\left(\frac{R_c}{r_0}\right) \text{ Volt} \quad (\text{I.2})$$

Avec  $R_c$  le rayon du cylindre externe et  $r_0$  le rayon du fil

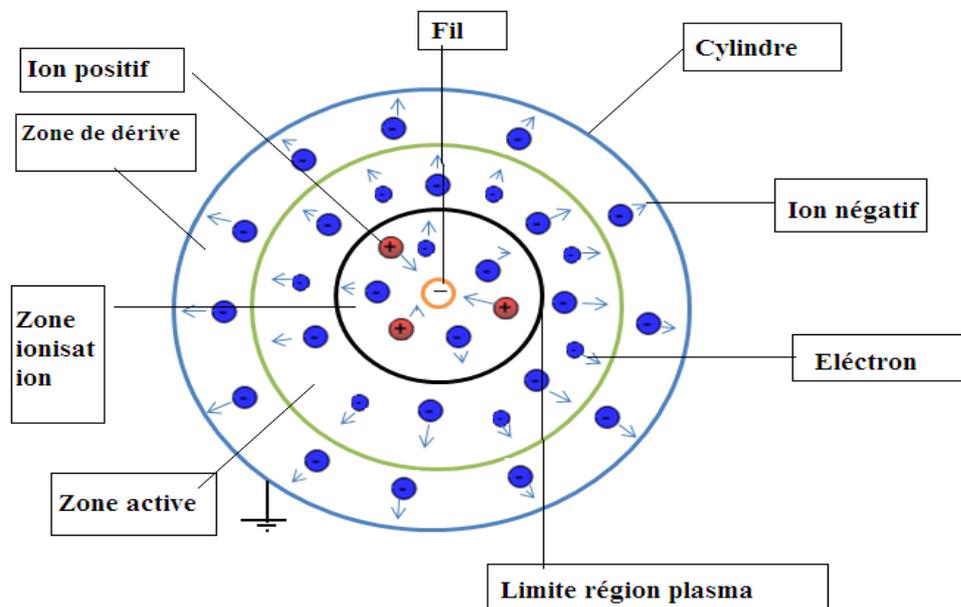
➤ **En géométrie fil-plan**

$$V_i = 3.10^5 \times \epsilon \times r_0 \left( \delta + 0.03 \sqrt{\frac{\delta}{r_0}} \right) \ln\left(\frac{4d}{\pi r_0}\right) \text{ Volt} \quad (\text{I.3})$$

### c) Différents types des décharges couronnes à courant continu

La génération de décharges peut se faire suivant deux types de polarité, négative ou positive, deux types de décharges sont distingués, les décharges avec ou sans présence de diélectrique. Toutes ces caractéristiques amènent des comportements particuliers relatifs à chaque type de décharge.

- Décharges électrique couronne à polarité négative



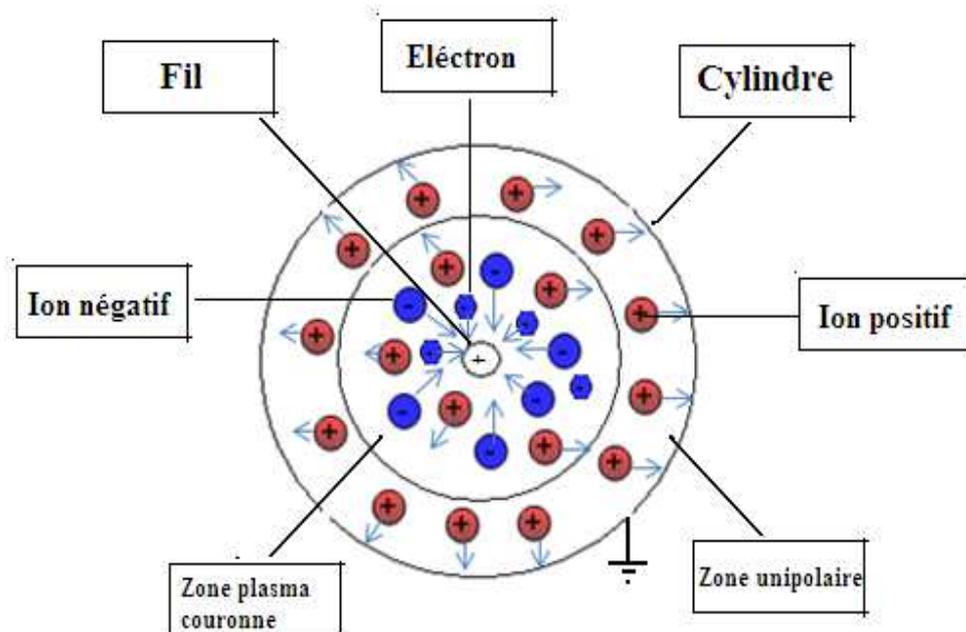
*Figure I.8 : Processus d'une décharge couronne négative.*

Une décharge négative est appliquée sur un fil fin ou sur une pointe, le plan ou le cylindre constituant l'autre électrode étant mis à la terre, du fait de la grande différence de rayon de courbure entre les électrodes le champ électrique est fortement inhomogène la décharge couronne est initiée lorsque le champ électrique au voisinage de l'électrode HT est suffisant pour ioniser les espèces gazeuses, ce champ minimum, dans l'air, est fonction du rayon de courbure de l'électrode, de l'état de surface, de la température et de la pression. Les décharges négatives sont réalisables seulement dans des gaz électronégatifs, tels que l'oxygène, la vapeur d'eau ou le CO<sub>2</sub> [2], les gaz tels que l'azote, l'hydrogène ou l'hélium ne permettent pas la génération de décharges car ils n'ont pas d'affinité avec les électrons.

Les électrons germes initiant le processus d'ionisation sont produits naturellement par une source extérieure (rayonnement cosmique, rayonnement UV solaire...). Les électrons libres produits par le processus d'ionisation initial sont accélérés au loin par le champ électrique imposé, les collisions inélastiques entre les électrons et les neutres produisent des paires électron-ion positif par un processus auto-consistant d'avalanche électronique, les électrons secondaires qui entretiennent la décharge sont produits par photoémission à partir de l'électrode HT (processus majoritaire à la pression atmosphérique) [3], par bombardement de

la surface de décharge par les ions positifs ou par photoionisation dans le gaz, la production de photoélectrons dépend de la longueur d'onde des photons, du matériau de l'électrode de décharge ainsi que de l'état de surface de cette électrode. Les électrons libres se lient avec les molécules de gaz électronégatifs pour former des ions négatifs, la recombinaison avec les ions positifs est négligeable. En conséquence, l'ionisation est en compétition avec l'attachement électronique. Au voisinage de l'électrode HT, l'ionisation prévaut sur l'attachement et de nouveaux électrons sont produits, le rayon auquel le taux d'ionisation équivaut au taux d'attachement électronique définit la couche d'ionisation. Au-delà de cette couche d'ionisation, l'attachement prévaut sur l'ionisation, le nombre d'électrons diminue graduellement au fur et à mesure de la décroissance du champ électrique, toutefois, les électrons présents juste devant la zone d'ionisation sont suffisamment nombreux et énergétiques pour créer des réactions d'impact électronique, la couche de plasma s'étend donc plus loin que la couche d'ionisation. Après cette limite d'attachement, les ions négatifs sont attirés vers l'électrode de masse. La figure (I.8) permet de visualiser les différents processus intervenant dans une décharge négative.

- **Décharge électrique couronne à polarité positive**



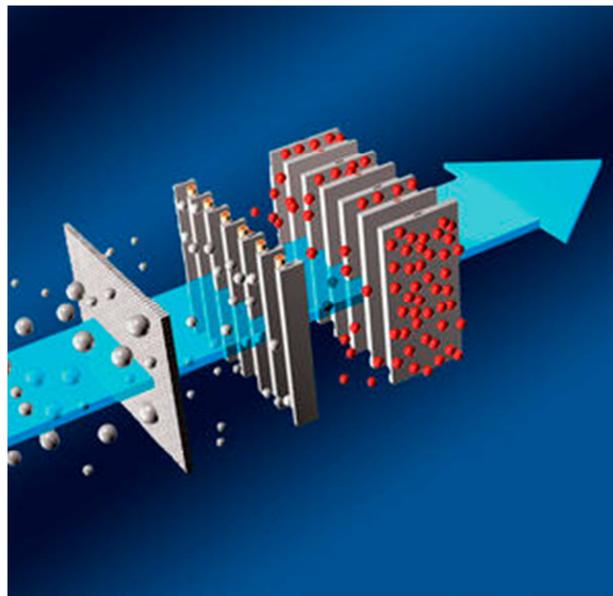
*Figure I.9 : Processus d'une décharge couronne positive.*

La figure (I.9) illustre le processus de génération d'électrons dans le cas d'une décharge couronne positive, à courant continu. Pour une géométrie fil positive–cylindre dans l'espace inter électrodes les électrons et ions positifs sont accélérés vers le fil. Dans la région d'ionisation, très près du fil, où le champ électrique réduit ( $E/N$ , où  $N$  est la densité moléculaire) est plus grand que  $120 \text{ Td}$ [12] ( $1 \text{ Td} = 10^{-21} \text{ V.m}^2$ ), les collisions non-élastique entre les électrons et les molécules neutres du gaz produisent des paires électron-ion positif [12], par exemple dans l'air sec,  $\text{O}_2^+$   $\text{N}_2^+$  sont les plus dominants. Les nouveaux électrons libérés sont à leur tour accélérés par le champ électrique et produisent plus d'ionisations (avalanche électronique). La décharge électrique couronne positive est entretenue par les électrons secondaires qui sont produits par la photo ionisation du gaz dans la région du plasma. La région d'ionisation est uniforme le long du fil. Les streamers ne se forment pas dans le cas de la décharge couronne considérée à cause du coefficient d'ionisation qui est faible. la région couronne du plasma est définie comme étant la région où les réactions d'impact électronique sont significatives. Dans la décharge couronne positive, la région couronne du plasma coïncide avec la région d'ionisation ce qui n'est pas le cas d'une décharge couronne négative. Evans et Inulet [10] ont mesuré la largeur de la région visible et ils ont constaté qu'elle est, dans le cas d'une décharge couronne négative, plus épaisse que celle d'une décharge couronne positive. Les électrons libres peuvent aussi s'attacher aux molécules électronégatives du gaz (par exemple  $\text{O}_2$ ) pour former des ions négatifs ou se recombiner avec les ions positifs, la recombinaison est d'habitude négligeable, parce que les coefficients de recombinaison sont petits[12] et la densité de charge est relativement basse près du fil de haute tension, l'ionisation prédomine l'attachement et de nouveaux électrons sont produits. A la frontière de la région du plasma, le taux d'ionisation est égal au taux d'attachement, les nouveaux électrons produits s'attachent aux molécules pour former des ions négatifs, au-delà de la région du plasma, le champ électrique est insuffisant pour produire des électrons, les ions unipolaires de même signe de charge que le fil dérive vers la cathode et les ions négatifs se déplacent vers l'anode. Les ions n'ont pas assez d'énergie pour provoquer l'ionisation.

**d) Applications utilisant la décharge couronne****▪ Les précipitateurs électrostatiques**

Les premières applications du plasma froid ont été les précipitateurs électrostatiques, qui utilisent des décharges couronnes appliquées au traitement des effluents gazeux contenant des poussières. Nous pouvons les trouver à la sortie des gaz des centrales thermoélectriques, des cimenteries, etc. Ils sont utilisés également pour améliorer la qualité de l'air intérieur d'un local (ioniseur d'air : OR'IONS, DAVIDSON).

Des études ont montré que la présence d'un grand nombre d'ions négatifs entraîne une faible pollution. Un ioniseur d'air piège en fait la micro pollution (particule).



*Figure I.10: Principe de fonctionnement d'un ioniseur.*

L'ioniseur émet des électrons, ces électrons vont venir s'attacher aux gros ions positifs ("la pollution") pour former des particules neutres. Ces particules vont acquérir des charges négatives en quantités suffisantes pour devenir des gros ions négatifs. Ces gros ions négatifs vont ensuite se repousser mutuellement et le seul endroit possible où ils peuvent aller (attraction électrique) est la surface conductrice (donc de décharge) que représentent les sols et les murs : ils ne seront donc plus en suspension dans l'air.

- **Destruction des polluants par décharges couronne**

Depuis une bonne dizaine d'années, les milieux scientifiques d'abord, les industriels ensuite, s'intéressent à la possibilité d'utiliser les plasmas froids pour détruire les polluants et non plus les piéger. L'idée de base est d'exploiter la réactivité chimique des radicaux et espèces engendrés au sein du plasma pour transformer les molécules polluantes en molécules inoffensives, la réaction se déroulant dans l'air à la pression ordinaire et sans pertes thermiques. Les résidus obtenus peuvent en outre être parfois valorisables. Les polluants visés dans les développements actuels sont essentiellement les oxydes de soufre et d'azote, les COV et les molécules malodorantes.

En prenant un volume actif correspondant à un volume de plasma, un facteur volumique est définissable : le quotient d'un volume de plasma par un volume de gaz dans le réacteur. Ce facteur est toujours plus petit que l'unité, alors que des conversions de polluant comprises entre 80 et 100 % sont aisément observées cela signifie que le traitement du polluant peut s'effectuer hors de la zone ionisée. Sachant que la présence du plasma est nécessaire, cela montre que la chimie est initiée par des espèces produites dans le plasma, dont certaines sont actives hors de la zone ionisée. Ces constatations illustrent l'intérêt des décharges électriques qui permettent de traiter un volume important alors que les apports d'énergie restent très localisés. Les processus d'excitation et de désexcitation par collisions électroniques très rapides sont suivis de réactions initiées par des radicaux libres. Certains radicaux vont diffuser ou se mélanger par convection avec les autres espèces du gaz à traiter avec une échelle de temps de l'ordre de la milliseconde.

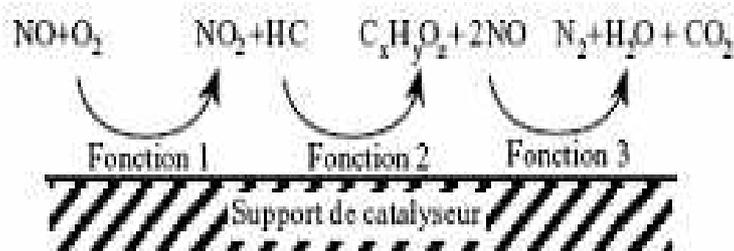
Le traitement des effluents par plasma froid est déjà entré dans son âge industriel. C'est ainsi que la société Paganetti, à Moosch en Alsace, a développé avec le soutien du réseau Novélect son procédé "Electronflux", essentiellement destiné au traitement des nuisances olfactives. Ce procédé s'applique en milieu fermé, c'est à dire soit à l'extérieur du local, en canalisant l'effluent à traiter, soit à l'intérieur, en utilisant le local comme chambre de réaction, ce qui permet d'améliorer la qualité de l'air intérieur et du même coup les conditions de travail. La première réalisation a eu lieu au Havre, à la station de relevage des eaux usées et pluviales "Augustin Normand" où l'équipement mis en place (1996) traite un débit d'air malodorant de 7 500 m<sup>3</sup>/h. Dans la même ville, Paganetti a installé une autre centrale sur un bassin à orage d'une contenance de 50 000 m<sup>3</sup> où le débit traité atteint 12 500 m<sup>3</sup>/h. Plus récemment, le SAN d'Evry a pris la même décision pour éviter les nuisances olfactives émanant de son unité de

traitement des produits de curage qui sépare les solides selon leur nature (sable, débris végétaux, encombrants) de la phase liquide chargée en matières organiques. L'équipement à plasma froid traite 8 500 m<sup>3</sup>/h extraits du local de 1200 m<sup>3</sup>. Sa puissance électrique totale est de 45 kW, dont 200W seulement pour les générateurs de plasma. D'après la société Paganetti, elle consomme en moyenne 11 kW par heure et sa maintenance coûte 10 k€ par an, y compris les consommables.

Cependant les applications des décharges pour l'environnement sont encore un domaine de recherche très ouvert et ce, pour trois grandes raisons :

- ✓ la complexité des phénomènes impliqués qui combine effets chimiques, physiques et électriques,
- ✓ les aspects législatifs sur la pollution qui ne sont pas encore suffisamment coercitifs pour inciter les industriels à investir dans de nouvelles technologies,
- ✓ le coût énergétique associé au procédé.

De plus, des travaux récents ont montré que les techniques de plasmas froids, associées à la catalyse, pouvaient être performantes et conduire à la réduction des coûts énergétiques. Par exemple, dans les traitements « Dés NOx » qui consistent à transformer les oxydes d'azote en azote et oxygène, les deux premières fonctions du catalyseur standard (figure (I.11)) peuvent être remplacées par le plasma. Il est ainsi possible d'atteindre un taux de conversion de NO en N<sub>2</sub> pouvant dépasser 60 %. La Perspective d'accroître l'activité catalytique par un plasma à température ambiante est donc particulièrement intéressante, car cela permet au catalyseur de fonctionner dès le démarrage du moteur.



**Figure I.11:** Les trois fonctions d'un catalyseur des NOx standard.

### I.4.3.2 Techniques de production d'ozone par décharge électrique

- Décharge silencieuse,
- Décharge surfacique,
- Décharge couronne pulsée,
- Décharge « DC streamer corona »,
- Décharge superposée, etc.

#### I.4.3.2.1 La décharge silencieuse

- Les décharges silencieuses (décharge à barrière diélectrique (DBD)) sont largement utilisées dans l'industrie pour la génération de l'ozone, la dépollution, le traitement des surfaces, le traitement des effluents gazeux, la formation d'excimère...etc.
- La caractéristique la plus importante des DBD est la réalisation des conditions de plasma hors équilibre thermique à haute pression (pression atmosphérique). Les configurations des électrodes planaires et cylindriques d'une DBD sont représentées dans la figure (I.12).
- L'espace de décharge s'étend de moins de 0.1 mm à plusieurs centimètres, selon l'application ( $d = 1\text{mm}$ ) pour la génération de l'ozone [9]. Les matériaux préférés de diélectrique sont le verre ou le verre de silice et à cause de la présence de cette barrière ces décharges exigent des tensions alternatives.

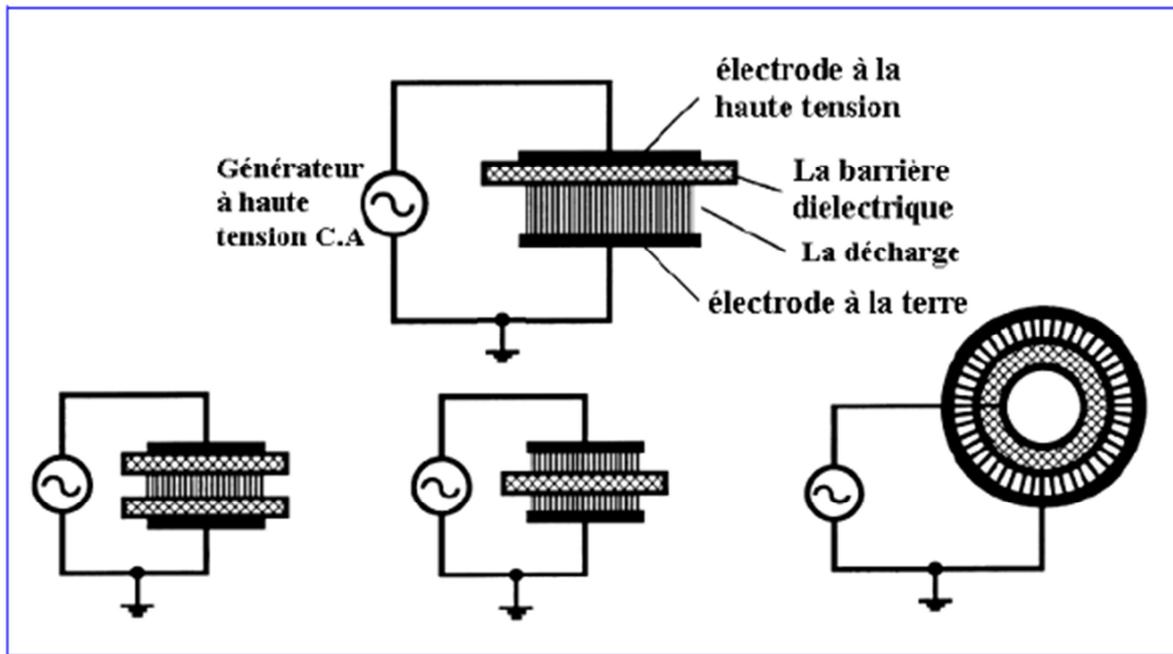
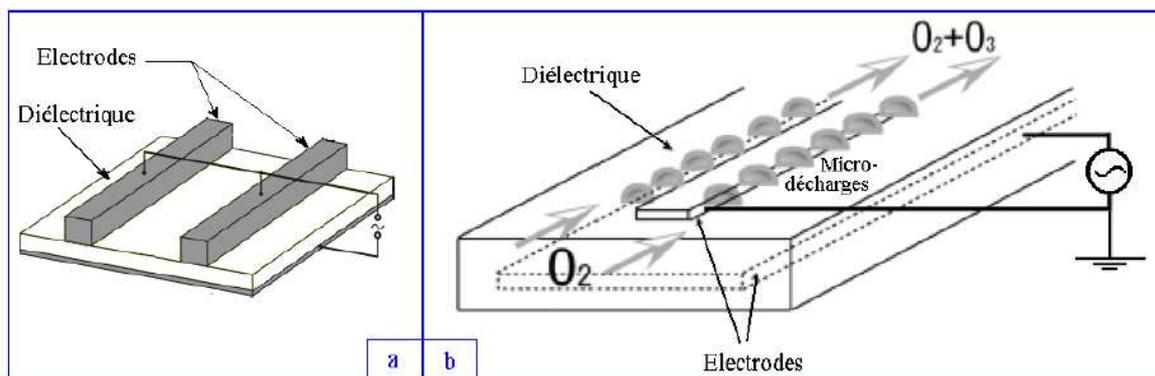


Figure I.12 : Configurations des électrodes de DBD.

Dans la plupart des applications le diélectrique limite la densité de courant moyenne dans l'espace de décharge [2], mais aux très hautes fréquences cette limitation de courant devient moins efficace, pour cette raison qu'on utilise des fréquences dans la gamme de 1KHz à 10MHz (pour la génération de l'ozone : 0,5 KHz – 5 KHz). Quand le champ électrique est assez intense pour atteindre le claquage, on observe dans la plupart des gaz un grand nombre de micro décharges [8], chaque micro décharge a un canal de plasma presque cylindrique, de rayon d'environ 100 $\mu$ m, qui s'écarte dans une grande surface de décharge sur la surface du diélectrique. En réalité, des avalanches croissantes d'électrons produisent rapidement une charge d'espace si élevée d'où la formation des streamers auto-propageant [2]. La charge d'espace induit l'augmentation d'intensité de champ à la tête du streamer, qui se déplace beaucoup plus rapidement que la vitesse de dérive des électrons, et se réfléchit à l'anode et se déplace à nouveau vers la cathode où, dans une fraction de 1ns, une couche extrêmement mince de chute cathodique est formée. À ce moment le courant traverse le canal conducteur. Finalement, l'accumulation des charges à la surface du diélectrique réduit le champ électrique local à tel point que l'ionisation s'arrête dans quelques nanosecondes et la micro décharge est obstruée. Le rendement d'une décharge silencieuse pour la génération de l'ozone est faible, il est de 18 % pour l'oxygène et 7.5 % pour l'air comparés au rendement théorique maximum : 1200 g/kWh [9]. La raison principale du faible rendement est le petit volume de décharge.

### I.4.3.2.2 La décharge surfacique

La décharge surfacique (DS) est un genre spécial de la décharge silencieuse, il est observé dans un dispositif composé d'un arrangement (par exemple) d'une petite électrode (fil, barre) ou plus sur un côté d'une couche diélectrique et une électrode plate sur l'autre coté (figure (I.13.a)). Cet arrangement est employé dans les générateurs d'ozone commerciaux. Le développement d'une DS est déterminé par la distribution non homogène de l'intensité du champ initiale dont la valeur maximum est à la ligne de jonction triple, où la surface de l'électrode, le diélectrique et l'espace de gaz sont met en contact. Les expériences [1] et la simulation [2] montrent que la DS se propage par étapes sur le diélectrique durant l'augmentation de la tension (figure (I.13.b)). Pendant chaque étape l'accumulation des porteurs de charge sur le diélectrique mène à la réduction de l'intensité du champ et à l'affaiblissement de la décharge.



*Figure I.13: Configuration de la décharge surfacique.*

Après élévation de la tension l'étape suivante de décharge se produit. Le processus de diffusion de l'ozone de la région de la décharge surfacique vers l'espace libre garantit le bon rendement [2]. L'épaisseur de l'électrode de décharge n'a essentiellement aucun effet sur la longueur du streamer et la production d'ozone.

Pour l'oxygène le maximum de la concentration d'ozone et le rendement sont comparables à ceux des générateurs d'ozone DV (décharge volumique); tandis que dans l'air la production d'ozone et son rendement sont faibles. A hautes densités d'énergies une destruction presque complète de l'ozone est obtenue. Les raisons de ce comportement peuvent être trouvées dans les mécanismes de DS, qui sont différents de ceux de DV.

- Premièrement, l'influence des électrons secondaires à la surface du diélectrique sur le processus de claquage diffère entre la DS et DV.
- Deuxièmement, dans la décharge DV, le streamer commence à partir de l'anode vers la cathode pour les deux polarités de tension appliquée. Cependant, dans la décharge DS, il commence toujours à partir de la surface de l'électrode à cause du champ intense local, indépendamment de la polarité appliquée.

En principe, la faible tension appliquée et les meilleures conditions de refroidissement, favorisent l'utilisation des générateurs de l'ozone par décharge surfacique pour obtenir une grande concentration d'ozone.

### I.4.3.2.3 La décharge couronne

- **Décharge couronne streamer**

Le système de la décharge couronne streamer à courant continu a été étudié comme une méthode alternative à la décharge silencieuse pour la génération de l'ozone puisqu'elle n'exige pas une barrière diélectrique entre les électrodes métalliques [2]. Par cette méthode on peut obtenir un bon rendement et une grande concentration d'ozone dans un espace inter-électrodes large comparé à celui d'un ozoniseur de décharge silencieuse. Cette propriété a quelques avantages pour la production et la maintenance d'un ozoniseur, de même une haute tension appliquée comparée à celle d'une décharge silencieuse est nécessaire. Il est difficile d'obtenir une décharge stable qui peut facilement se développer à un arc ou spark. La génération d'ozone dépend de la tension appliquée : dans le cas d'une tension positive la décharge apparaît dans l'espace inter-électrodes entièrement. Dans le cas d'une tension négative la décharge n'apparaît que près de la région d'électrode active. Notons que la polarité positive représentée par le grand volume de décharge est effective pour la génération de l'ozone que la polarité négative. Le rendement d'un dispositif composé d'un arrangement de fils pour la même tension appliquée et de même distance inter-électrode est plus grand que celui d'un arrangement de barres à cause du grand transfert de charges. La haute densité d'énergie provoque l'augmentation de la température qui réduit le rendement.

- **Décharge couronne pulsée :**

La haute tension pulsée est habituellement employée pour obtenir un rendement élevé de génération de l'ozone dans un espace large. La puissance pulsée peut fournir une énergie limitée à la décharge, tandis que l'alimentation courant continu (CC) a une grande possibilité

de fournir une puissance excessive conduisant à la production d'étincelle (spark). Cependant la concentration d'ozone est inférieure à celle de la décharge silencieuse à la même puissance d'entrée. Presque toute la puissance d'entrée est absorbée par le générateur de puissance d'impulsion. Quelque pour cent restant est seulement employée pour la production d'ozone.

#### ▪ Décharge superposée

Pour améliorer le rendement de la génération d'ozone, une superposition de différents types de décharges est appliquée au même espace de réaction (au même volume) [2][9]. Il a été proposé un grand nombre de méthodes de superposition. Par exemple :

La superposition de la décharge surfacique et les rayons ultraviolets

- La superposition de la décharge surfacique et la décharge à barrière diélectrique.
- La superposition de la décharge surfacique et la décharge couronne pulsée.

La figure (I.14) montre un exemple de superposition de la décharge couronne positive pulsée et la décharge surfacique. Une haute tension pulsée et une tension CA de 60 Hz sont simultanément appliquées au même volume de réaction afin d'améliorer le rendement de la génération de l'ozone dans un espace large de décharge, d'où l'augmentation du volume de décharge. Par conséquent le type d'ozoniseur superposé est caractérisé par une concentration plus élevée et un grand rendement de génération d'ozone.

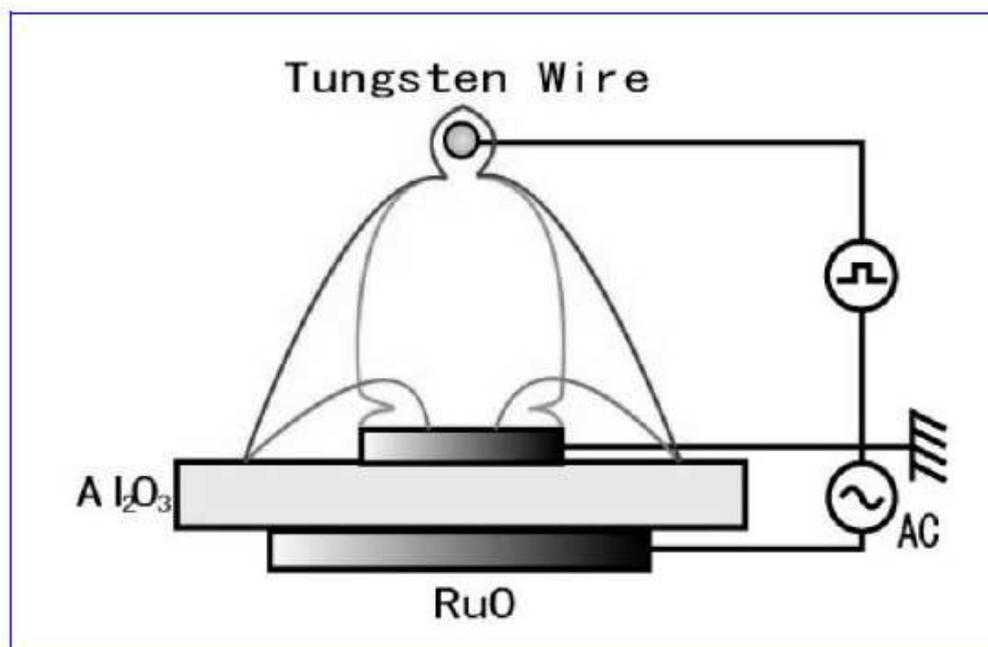


Figure I.14: Décharge superposée

L'efficacité de la production d'ozone par décharge électrique dépend, surtout, de l'intensité des micros décharges (qui est influencée par un certain nombre de facteurs tels que la largeur d'espace, la pression du gaz, propriétés des électrodes " métal et diélectrique ", d'énergie d'alimentation, et de la présence de l'humidité). Une grande portion d'énergie électrique utilisée dans une décharge couronne (approximativement 85%) est dissipée principalement sous forme de chaleur, avec une faible portion sous forme de lumière. Les générateurs produisent l'ozone à des concentrations de 1-5% du poids d'air et jusqu'à 14% du poids d'oxygène de grande pureté. Si l'air comprimé est employé comme gaz d'alimentation, il doit être bien séché et exempt des traces de pétrole et de graisses (oxydés par l'ozone).[2]

## I.5 Les méthodes de mesure de la concentration d'ozone

Les méthodes analytiques pour mesurer la concentration d'ozone dans sa phase gazeuse [2] ont été spécifiées par l'Association Internationale d'Ozone (IOA), parmi elles on trouve :

- La méthode iodométrique.
- La méthode chimiluminescence.
- Le titrage de la phase gazeuse « GPT ».
- La méthode d'absorption des rayons UV.

Les différentes unités sont : mg/l, g/m<sup>3</sup>, ppm, vol%, ...etc. qui peuvent être utilisés suivant l'état de l'ozone (liquide, gaz). L'unité ppm (partie par million) est utilisée pour exprimer la concentration d'ozone à l'état gazeux, elle est définie par le taux de volume qui est le volume d'ozone divisé par le volume total du gaz incluant l'ozone.

Le tableau suivant indique la gamme de mesure de chaque méthode et l'incertitude obtenue :

Méthode	Gamme de mesure (mg/L)	Exactitude espérée (±%)
Absorption d'UV	0.5-50.000	2
La méthode iodométrique	0.5-100	1-35
Chimiluminescence	0.005-1	7
Méthode GPT	0.005-30	8

**Tableau I.2 :** comparaison entre les différentes méthodes analytiques de mesure de la concentration de l'Ozone à l'état gazeux.

### **I.5.1 La chimiluminescence**

La chimiluminescence est une méthode spécifique à l'ozone et convient à la mesure dans l'air ambiant. Ce procédé a été adopté en 1985 par l'EPA (Environmental Protection Agency) en tant que méthode de référence pour déterminer l'ozone dans l'atmosphère ambiante [1]. Cette méthode est employée pour la détermination des basses concentrations d'ozone dans la phase gazeuse [2]. Parmi les méthodes les plus utiles on cite la chimiluminescence d'éthylène. L'ozone réagit avec l'éthylène pour émettre la lumière quand on mélange l'air et l'éthylène dans l'instrument d'analyse. Cette lumière est mesurée par un photomultiplicateur. Si les débits d'air et d'éthylène sont constants, et la proportion d'air et d'éthylène connus, le signal résultant peut être lié à la concentration d'ozone. Des analyseurs sont calibrés avec une concentration connue d'ozone

### **I.5.2 Titrage de la phase gazeuse GPT**

Deux méthodes de titrage ont été étudiées comme méthodes de calibrage pour les analyseurs d'ozone, ces deux méthodes sont basées sur le titrage avec de l'oxyde nitrique [1], elles ont été comparées à l'absorption UV, et à l'iodométrie, comme méthodes de calibrage pour les analyseurs de chimiluminescence d'éthylène. En raison de ces comparaisons, l'absorption UV a été indiquée comme méthode de calibrage pour les analyseurs d'ozone. Par conséquent, les méthodes GPT ne sont pas recommandées pour l'usage aux équipements d'ozonation.

### **I.5.3 Mesure par absorption des rayons ultraviolets**

La source de lumière UV est une lampe à vapeur de mercure (Hg) basse pression. L'élément principal du photomètre est le réseau de diffraction dont son rôle est de décomposer la lumière incidente selon ses composantes spectrales. On utilise un système mono-faisceau dans la bande 254 nm (pour l'ozone  $\lambda_{\max} = 253,7\text{nm}$ ). Par le biais d'une valve on fait passer alternativement le mélange gazeux par la voie de référence et la voie de mesure. Dans la voie de référence, l'ozone est totalement décomposé par un catalyseur. On peut ainsi s'affranchir des interférences dues aux poussières, au vieillissement de la source ou à un gaz parasite absorbant dans la même plage UV. La longueur du trajet optique permet d'atteindre une sensibilité de l'ordre de 1 ppm.

### I.5.3.1 calcul de la transmittance

La transmittance est définie comme le rapport ( $I/I_0$ ), où  $I$  est l'intensité de la lumière passé par la cellule d'échantillon d'O<sub>3</sub>, et  $I_0$  est l'intensité de la lumière passé par la cellule qui contient la référence. On suppose que tous les états du système, excepter le contenu de la cellule d'absorption, sont identiques pendant la mesure de  $I$  et  $I_0$ . Les quantités définies ci-dessus sont reliées par la loi d'absorption de Beer-Lambert [2], la transmittance :

$$\frac{I}{I_0} = e^{(-\sigma nl)} \quad (\text{I.4})$$

$\sigma$  : La section efficace d'absorption d'ozone à 253.65nm =  $1.1410^{-17}$  cm<sup>2</sup>.

$l$  : Longueur du chemin optique en cm.

$n$  : La densité d'ozone (cm<sup>-3</sup>)

## I.6 Stabilisation et stockage de l'ozone

La majeure partie de l'ozone consommé en pratique est produite et directement utilisée dans les applications sur site, sans stockage ou transport intermédiaire. Le taux de décomposition thermique spontanée de l'ozone dépend principalement de la température selon les lois générales de la cinétique des réactions. En diminuant la température, le taux de décomposition est fortement réduit.

Par exemple, le demi de vie de l'ozone est de 3 jours à 293°K, de 8 jours à 248°K et de 3 mois à 223°K [6]. Le taux de décomposition homogène du gaz d'ozone pur à la pression atmosphérique à une température de 195 °K est moins de 10<sup>-5</sup>% par jour. Avec l'augmentation de la température au-dessus de la température ambiante, le taux de décomposition augmente colossalement jusqu'à ce qu'il se transforme en explosion thermique. L'ozone pur ou concentré dans l'état liquide ou gazeux, a tendance à exploser du fait de son instabilité, indépendamment du taux de décomposition thermique (lente) spontanée, qui dépend essentiellement de la température et de la présence des catalyseurs. La condition importante de sécurité pour la manipulation de l'ozone pur, ou forte concentration, dans l'état liquide ou gazeux, est l'absence totale de trace de catalyseurs responsable à la décomposition, ou généralement réagissant avec l'ozone. Cette condition implique des précautions à prendre en site:

- L'oxygène utilisé comme matière première pour la génération d'ozone doit être libéré de divers contaminants, principalement organiques, avant d'être utilisé dans le générateur d'ozone.
- Prendre le soin spécial en nettoyant la surface interne des récipients de l'appareil et de la tuyauterie en contact avec l'ozone. Dans le cas de l'appareil de verre ceci peut être réalisé en manipulant les surfaces internes avec la solution d'acide sulfurique de dichromate de potassium suivie par le rinçage avec de l'eau distillée et ensuite avec un jet d'oxygène pur et sec.
- Les matériaux résistants qui ne réagissent pas et n'ait aucun effet catalytique sur l'ozone, devraient être choisis en tant que matériaux structuraux pour les pièces d'équipements. Pour les hautes concentrations d'ozone seulement le verre, l'acier inoxydable, et les polymères fluorés peuvent être utilisés pour l'usage comme matériaux de fabrication.

Compte tenu de sa réactivité et sa tendance élevée d'explosion, l'ozone gazeux pur et les mélanges gazeux à des taux élevés d'ozone ne peuvent pas être stockés dans les bouteilles de gaz utilisées normalement pour le stockage des autres gaz. Néanmoins Grosse et Streng [11] ont déclaré que les mélanges de l'oxygène et de l'ozone contenant moins de 16 % d'ozone pourraient être stockés sans risque dans des bouteilles standard de gaz à la pression atmosphérique et à basses températures.

## I.7 Conclusion

Ce premier chapitre, nous a permis de faire le point sur la production de l'ozone par décharge électrique, où nous avons présenté brièvement :

- Les propriétés physico-chimiques de l'ozone,
- Les méthodes de mesure de la concentration d'ozone,
- Les méthodes de production d'ozone par décharge électrique
- les différents régimes de la décharge couronne.

Cette étude bibliographique nous a permis aussi de comprendre le processus de développement de la décharge couronne notamment la décharge couronne positive (Fil-cylindre) comme la subdivision de l'espace inter-électrode en deux zones, la première dite zone plasma où les réactions chimiques sont actives et la seconde zone dite unipolaire, cette compréhension nous a aidé à mettre au point la modélisation mathématique de cette décharge dans le chapitre II.

**Références**

[1] : J. Delcroix, A. Bers; Physique des plasmas/1, pp. 65-71; 1994.

[2] : M. Boufeldja; "L'influence de la nature du matériau des parois sur la décomposition de l'ozone O<sub>3</sub> dans une décharge couronne"; Mémoire de Magister ; Université des Sciences et de la Technologie Mohamed Boudiaf –Oran; Juillet 2009.

[3] : J. Reungoat; "Etude d'un procédé hybride couplant adsorption sur zéolithes et oxydation par l'ozone, Application au traitement d'effluents aqueux industriels"; Thèse de doctorat ; l'Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse; Décembre 2007.

[4] : S. Louis, Ozone Reference Guide ; Electric Power Research Institute; 1996.

[5] : S. Djedjiga ; "Effet de la décharge couronne sur les surfaces isolantes et les surfaces métalliques" ; Mémoire de Magister, Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou ; Décembre 2011.

[6] : P. Seimandi ; "Modélisation mathématique et numérique de décharges couronnes pour le contrôle d'écoulements" ; Thèse de doctorat ; L'université de Toulouse; Décembre 2010.

[7] : J.Matéo-Vélez; "Modélisation et simulation numérique de la génération de plasma dans les décharges couronnes et de son interaction avec l'aérodynamique"; Thèse de doctorat; École nationale supérieure de l'aéronautique et de l'espace Toulouse; Décembre 2006.

[8] : Y. Jaffré; "Optimisation de réacteurs à plasmas non-thermiques pour le traitement des oxydes d'azote"; Thèse de doctorat; L'école centrale de Lyon; Octobre 2010.

[9] : S. MASUDA; "Summary about study report on novel dry DeNOX/DeSOX technology for cleaning combustion gases from utility thermal power plant boilers using pulse corona induced plasma chemical process (PPCP)", Association industries japan and research institute of energy engineering, Japan, 1991.

[10] : P. Fauchais; " Gaz ionisés et plasmas"; article Technique de l'ingénieur.

[11] : Discharge Handbook (I): Gas Plasma, Electrical Society of Japan, 1998.

[12] : J. Chen; "Direct current corona-enhanced chemical reactions", Thèse de doctorat; Université de Minnesota, Aout 2002.

*Chapitre II. :*

*Modélisation mathématique*

# CHAPITRE II

La première partie de ce chapitre décrit les trois premiers moments de l'équation de Boltzmann ainsi que le modèle fluide à deux moments utilisé dans notre cas pour modéliser la décharge couronne positive. La deuxième partie expose le modèle analytique développé à partir de le découplage des équations de continuité et l'équation de Poisson du modèle fluide pour le cas d'une décharge électrique couronne positive de géométrie fil-cylindre. Le modèle analytique permet le calcul de la distribution du champ électrique et de la densité électronique qui sera utilisé ultérieurement pour déterminer la distribution spatial de l'ozone. La dernière section de ce chapitre est consacrée à la description du modèle cinétique chimique inspiré des travaux de Chen [1] ainsi que le logiciel COMSOL utilisé pour la résolution des douze équations de continuité des particules neutres.

## II.1. Introduction

La modélisation mathématique de la décharge couronne est caractérisée par la diversité des phénomènes mis en jeu et de leur fort couplage, par exemple, celui entre la variation du champ électrique et celle des densités de particules chargées, ce qui la rend relativement complexe. Dans ce travail le degré d'ionisation de l'air à la pression atmosphérique est faible [1][3], ce qui permet l'utilisation de l'équation intégral-différentielle de Boltzmann qui admet une description complète de la densité, et de la fonction de distribution dans l'espace et en vitesse de chaque espèce au cours de toutes les collisions ou réactions chimiques. Cette équation suppose que les collisions sont ponctuelles et instantanées. Cette approximation permet de décrire le transport des électrons et leurs collisions avec les neutres. Etant donné le nombre important de réactions et collisions à considérer ce niveau de modélisation est très difficile à résoudre ainsi le grand nombre d'équations et de degrés de liberté (3 d'espace, 3 de vitesse, plus le temps) classe les problèmes de la physique des plasmas parmi les plus difficiles à résoudre numériquement d'où la nécessité d'utiliser un modèle électrique auto-cohérent notamment le modèle fluide qui s'avère indispensable pour le calcul du champ électrique et de la densité des différentes espèces chargés et neutres.

Dans notre cas on s'intéresse à la résolution des équations de continuités (du modèle fluide) des particules générées par la décharge électrique couronne positive en simplifiant le modèle. En particulier, on focalise notre étude sur la génération de l'ozone par la décharge électrique couronne positive. De nombreuses expériences [1][7][12][13][16] ont été développées pour analyser la génération de l'ozone par différentes configurations de décharge couronne. En parallèle des études par modélisation ont été menés pour comprendre les phénomènes qui se produisent pendant la génération d'ozone [1][2][4][7][8][9]. Dans la plupart des travaux de modélisation la connaissance précise de la densité électronique n'a pas été définie par une expression analytique, on cite par exemple :

- a) Les travaux de hadj-ziane et al : ont pour objet la simulation numérique de la production d'ozone par un ozoniseur fil-cylindre alimenté par l'oxygène pur; la densité électronique est prise comme une donnée constante ( $N_e = 5.10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ) [12].
- b) Les travaux de Mikoviny et al [13]: traitent la production d'ozone par décharge couronne négative fil-cylindre dans le dioxyde de carbone pur et dans le mélange de dioxyde de carbone avec l'oxygène. la densité électronique est aussi prise comme une donnée constante ( $N_e = 6.10^5 \text{ cm}^{-3}$ )

- c) Les travaux de Chen : portent sur la modélisation de la production d’ozone par décharge couronne positive et négative. Pour calculer la distribution spatiale de l’ozone la densité électronique a été obtenue à partir de la résolution numérique des équations des continuités des électrons et des ions positifs couplées à l’équation de Poisson. Mais la condition aux limites de l’équation de continuité électronique a été estimée et imposée comme un paramètre d’entrée [1][2][4][5]. On note aussi que la reproduction des résultats de Chen n’est pas facile vu la complexité du modèle et temps de calcul, d’où la nécessité de développer un modèle analytique simple.

Le développement de modèle analytique dans les travaux de Yanallah et al [6][7][8][9] a permis le calcul de la densité électronique par une expression analytique facile à programmer ; ce travail considéré comme une première dans ce domaine permet de réduire considérablement la complexité de la modélisation numérique de la décharge couronne. Dans notre travail, nous avons utilisé le modèle fluide à deux moments (en se basant sur l’approximation du “Champ local”) [10] stationnaire et unidimensionnel pour le calcul du champ électrique et de la densité électronique dont nous avons simplifié l’expression analytique développée par Yanallah et al [8] en utilisant le coefficient d’ionisation effectif à partir de l’expression donnée par Sunshuk et al [11]. Enfin pour l’étude de la distribution des différentes espèces neutres émanant de l’air sec le modèle cinétique chimique est pris des travaux de Chen et al [1] .

## **II.2 Modèle électrique auto cohérent :**

La résolution numérique de l’équation de Boltzmann est délicate, son couplage à l’équation de Poisson augmente la complexité du problème. Hors ce dernier est nécessaire car il décrit le couplage entre phénomènes de transport des particules chargées et le champ électrique et forme un modèle qu’on nomme *le modèle électrique auto-cohérent* de la décharge qui est structuré selon une hiérarchie de modèles physiques correspondant à différents degrés d’approximation des phénomènes et qui sont : le modèle fluide, le modèle hybride et le modèle microscopique.

### **II.2.1 Modèle microscopique :**

Par le calcul des fonctions de distribution des vitesses  $f(\vec{r}, \vec{v}, t)$  ; c'est-à-dire résoudre simultanément les équations de Boltzmann des électrons et des ions et l'équation de Poisson l'approche microscopique, permet de décrire les phénomènes de transport électronique et ionique de façon beaucoup plus détaillée que dans un modèle fluide. L'équation de Boltzmann spatio-temporelle est résolue de façon efficace et rapide par des méthodes particulières dans lesquelles on considère un nombre fini de particules (quelques milliers) que l'on suppose représentatif de l'ensemble des électrons et des ions. Tout en résolvant l'équation de Poisson à intervalles de temps réguliers, on suit les trajectoires individuelles de chacune de ces particules dans l'espace des phases. Etant donné que l'approche microscopique est difficile à mettre en œuvre en raison des temps de calcul très élevés qu'elle implique dans le cas des décharges électriques dans un gaz à haute pression (de l'ordre de la pression atmosphérique) son utilisation est moins justifiée ce qui nous conduit à une méthode plus macroscopique des phénomènes dans laquelle les propriétés des particules chargées ne sont pas représentées par des fonctions de distribution des vitesses, mais par des grandeurs macroscopiques qui sont des moments dans l'espace des vitesses, de ces fonctions de distribution (densités, vitesses moyennes, énergie moyenne ...) [3].

### **II.2.2 Modèle hybride :**

Ce type de modèle est qualifié d'hybride puisqu'il est de type microscopique pour les électrons rapides et de type fluide pour les électrons froids du plasma donc il représente les propriétés de transport des électrons rapides non plus de façon fluide mais microscopique, tout en gardant une représentation fluide du corps de la distribution [3].

### **II.2.3 Modèle fluide :**

Dans cette approche [1][3], les phénomènes de transport des particules chargées sont représentés de façon moins détaillée par rapport à la détermination de leur fonction de distribution des vitesses. Comme dans le cas d'un fluide, leurs propriétés sont décrites uniquement, par des grandeurs moyennes telles que la densité, la vitesse moyenne dirigée, l'énergie moyenne etc. Ces grandeurs sont des paramètres macroscopiques définis en chaque point qui sont reliés par des équations dites "les moments de l'équation de Boltzmann". On

obtient ces moments en intégrant l'équation de Boltzmann dans l'espace des vitesses après multiplication par une fonction  $\chi(v)$ .

$$\int \left( \frac{\partial f}{\partial t} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla}_r f + \frac{\vec{F}}{m} \cdot \vec{\nabla}_v f \right) \chi(v) d^3v = \int \left( \frac{\delta f(\vec{r}, \vec{v}, t) \right)_{coll} \chi(v) d^3v \quad \text{II.1}$$

Avec :

$\vec{v} \cdot \vec{\nabla}_r f$  : Exprime l'influence des phénomènes de diffusion.

$\frac{\vec{F}}{m} \cdot \vec{\nabla}_v f$  : Exprime l'action des forces appliquées.

$\frac{\vec{F}}{m}$  : Action imposée aux particules par les forces externes (champ électrique ou magnétique s'il existe).

$\left( \frac{\partial f(\vec{r}, \vec{v}, t) \right)_{coll}$  : Variation temporelle de la fonction de distribution due aux collisions

Les phénomènes de transport sont représentés par les trois premiers moments de l'équation de Boltzmann dans l'espace des vitesses ; les équations de :

- continuité, pour les densités ;
- de transfert de quantité de mouvement pour les vitesses moyennes ;
- d'énergie pour l'énergie moyenne des électrons.

### II.2.3.1 Équation de continuité (pour les densités):

L'équation de continuité qui représente la conservation de la charge est obtenue à partir du premier moment de l'équation de Boltzmann en posant  $\chi(v) = 1$  dans l'équation II.1 [10]:

$$\frac{\partial}{\partial t} (N_{e,p}) + \frac{\partial}{\partial r} (N_{e,p} \vec{v}_{e,p}) = S_{e,p} \quad \text{II.2}$$

Tel que :

$N_{e,p}$  : La densité de particules chargées (électrons, ions positifs ou négatifs).

$S_{e,p}$  : le terme source de l'équation de continuité : il rend compte des créations (exemple : ionisations,) et des pertes (attachement ou recombinaison) des particules chargées.

**II.2.3.2 L'équation de transfert de quantité de mouvement**

L'équation de transfert de quantité de mouvement est obtenue à partir du second moment de l'équation de Boltzmann ( $\overline{\chi(v)} = m\vec{v}$ ) ou  $m\vec{v}$  est la quantité de mouvement en intégrant sur l'espace des vitesses :

$$\frac{\partial}{\partial t}(nm\vec{v}) + nm(\vec{v} \cdot \frac{\partial}{\partial \vec{r}})(\vec{v}) - \vec{v} \cdot \frac{\partial}{\partial \vec{r}}(nm\vec{v}) + \overline{\nabla_r} \otimes \vec{P} - n\vec{F} = \int (\frac{\partial}{\partial t} f)_{coll} d^3\vec{v} \quad \text{II.3}$$

Tel que :

$\vec{F}$  : Forces extérieures qui s'appliquent au système dues aux champs électrique et magnétique s'il existe. ( $\vec{F} = -e\vec{E}$  pour le champ électrique OÙ : e : charge d'un électron ( $1,6 \cdot 10^{-19}c$ ),  $\vec{E}$  : Champ électrique) ;

$\vec{P}$  : le tenseur de pression cinétique. Il est défini comme un flux de quantité de mouvement mais dans un référentiel se déplaçant à la vitesse v.

$\int (\frac{\partial}{\partial t} f)_{coll} d^3\vec{v}$  : La variation de la quantité de mouvement des particules considérées sous l'effet des collisions.

**II.2.3.3 L'équation d'énergie :**

L'équation d'énergie scalaire est obtenue à partir du troisième moment de l'équation de Boltzmann

$\chi(v) = \frac{1}{2}mv^2$  On obtient :

$$\frac{\partial}{\partial t}(n\frac{1}{2}mv^2) + \frac{\partial}{\partial r}(n\langle \frac{1}{2}mv^2v \rangle) - \gamma n \langle \frac{\partial}{\partial v} \frac{1}{2}mv^2 \rangle = \int (\frac{\partial}{\partial t} f)_{coll} \frac{1}{2}mv^2 d^3v$$

$$\Rightarrow \frac{\partial}{\partial t}(nv^2) + \frac{\partial}{\partial r}(n(v^2v)) - 2\frac{\vec{F}}{m} \cdot \vec{v}n = \int (\frac{\partial}{\partial t} f)_{coll} v^2 d^3v \quad \text{II.4}$$

Avec

$$\gamma = \frac{\vec{F}}{m} = \frac{-e\vec{E}}{m} \quad \text{II.5}$$

### II.2.3.4 Modèle fluide à deux moments

Le modèle développé pour ce mémoire est basé sur la résolution des deux premiers moments de l'équation de Boltzmann couplées à l'équation de Poisson ainsi l'équation de l'énergie électronique est négligée grâce à l'approximation dite du « champ local » (Local Field Approximation : LFA) aussi nommé l'hypothèse de « l'équilibre local » qui consiste à écrire que : *l'énergie gagnée par les électrons sous l'effet du champ électrique à un instant et une position donnés est exactement compensée par les pertes dues aux collisionsaux mêmes instants et position.* Dans ce cas, d'un côté les fréquences de collisions ; d'ionisation ; les coefficients de diffusion ainsi que les mobilités des espèces chargées peuvent être tabulées en fonction du champ électrique réduit ( $E/p$  champ sur pression, ou  $E/N$  champ sur densité de gaz). De l'autre côté l'équation d'énergie se réduit à l'égalité entre gain et perte de l'énergie locale. L'aspect temporel de cette hypothèse suppose pour l'équation d'énergie que le temps caractéristique de variations des grandeurs macroscopiques, (supérieur à  $10^{-9}$  s), est grand vis à vis du temps de relaxation de l'énergie électronique c'est-à-dire le temps entre collisions (de l'ordre de  $10^{-12}$  s).[10]

### II.3 Modélisation de la Décharge couronne positive(Fil-cylindre) :

Le système a étudié est constitué d'un long fil à l'intérieur d'un cylindre coaxial (voir la figure II-1), traversé par un écoulement d'air sec à la pression atmosphérique. Le fil de rayon intérieur  $r_0$  est soumis à une tension positive continue  $V$ , alors que l'électrode extérieure, de rayon  $R$ , est soumise à la terre. La tension appliquée est assez grande pour stabiliser la décharge couronne dans un état stationnaire [1]. L'état stationnaire de la décharge couronne est gouverné par les équations de continuité, pour chaque espèce, couplée avec l'équation de Poisson :

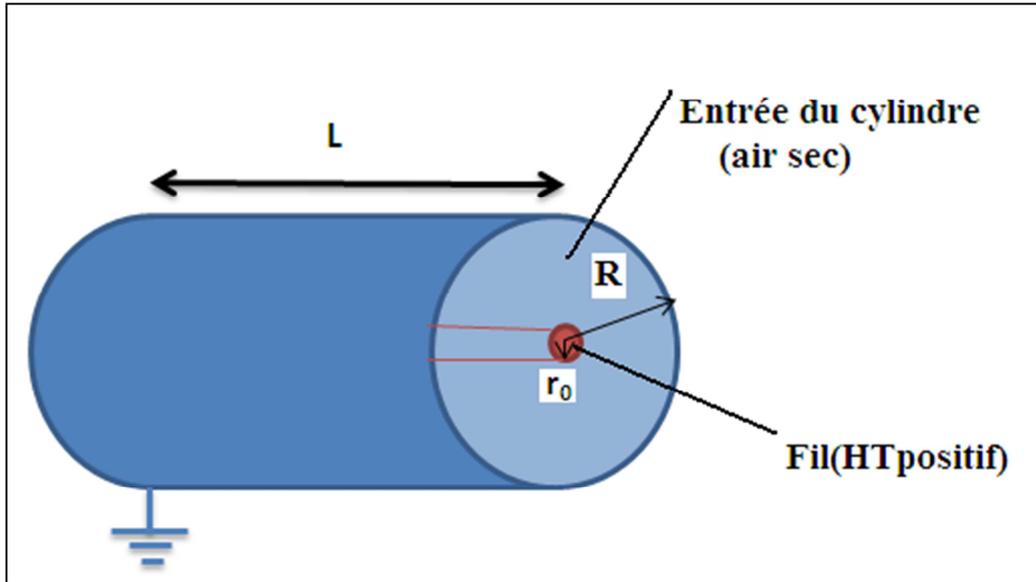


Figure II.1 : Schéma de la décharge couronne positive

Dans ce qui suit, nous allons exposer un modèle simple qui considère les électrons et les ions positifs peuvent reproduire les caractéristiques de base de la décharge couronne positive [8]. En tenant compte de la symétrie radiale du problème [1][8], l'état stationnaire de la décharge couronne gouvernée par les équations de continuité, pour chaque espèce, couplée avec l'équation de Poisson est exprimée en coordonnées cylindriques par :

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} (r N_e \mu_e E) = (\alpha - \eta) N_e \mu_e E \quad (\text{II.6})$$

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} (r N_p \mu_p E) = \alpha N_e \mu_e E \quad (\text{II.7})$$

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} (r N_n \mu_n E) = -\eta N_e \mu_e E \quad (\text{II.8})$$

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} (r E) = \frac{e}{\epsilon_0} (N_p - N_n - N_e) \quad (\text{II.9})$$

$$I = 2\pi e r L (N_e \mu_e E + N_p \mu_p E) \quad (\text{II.10})$$

Vu que la résolution des équations de continuité couplées avec l'équation de Poisson est très complexe, le découplage de ce système d'équations c'est à dire résoudre séparément l'équation est très utile. Le découplage de ces équations est détaillé par les travaux de Yanallah et al [8][9].

### II-3.1 Calcul du champ électrique

Le champ électrique est considéré comme le paramètre le plus important, vu qu'il est responsable de la production des décharges électriques (création des particules chargées). La connaissance des valeurs du champ électrique dans chaque point de l'espace inter-électrode permet d'avoir des informations sur les phénomènes qui se manifestent dans les décharges électriques.

Dans la région d'ionisation, le champ électrique dû aux espèces chargées (champ géométrique) est négligeable devant le champ électrique appliqué [15]. Le champ électrique total qui est la somme du champ géométrique et du champ électrique appliqué dû à la charge d'espace générée par la décharge s'écrit :

$$E(r) = \frac{E_0 r_0}{r} \quad (\text{II.11})$$

Où  $E_0$  est le champ électrique au voisinage du fil de rayon  $r_0$ , par contre, dans la région de dérive,

$$E_h(r_0) = \frac{V}{r_0 \ln\left(\frac{R}{r_0}\right)} \quad (\text{II.12})$$

Par contre dans la région de dérive unipolaire la densité des charges positives est importante et distord le champ électrique géométrique. Le champ électrique total dans cette région est obtenu à partir de l'équation (II.9) En négligeant la densité de charges des électrons et la densité des neutres:

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} [rE] = \frac{eN_p}{\epsilon_0} \quad (\text{II.13})$$

Car la densité des ions négatifs et celle des électrons ont un effet négligeable. Le champ électrique dans la région d'ionisation équation (II.11). L'équation (II.13) peut-être utiliser dans tout l'espace inter-électrode puisqu'elle a été déduite pour la région unipolaire et puisque le courant électrique dans la région de dérive est transporté par les charges positives est donnée par l'équation (II.10) devient :

$$I = 2\pi erLN_p\mu_p E \Rightarrow N_p = \frac{I}{2\pi erL\mu_p E} \quad (\text{II.14})$$

En introduisant (II-14) Dans (II-13) on obtient :

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} [rE] = \frac{I}{2\pi\epsilon_0 rL\mu_p E} \quad (\text{II.15})$$

Dont la solution est :

$$E = \sqrt{\frac{(E_0 r_0)^2}{r^2} + \frac{I}{2\pi\epsilon_0 L\mu_p}} \quad (\text{II.16})$$

### **II.3.2 Calcul de la densité électronique**

La méthode analytique développée par Yanallah et al [7][8] permet l'obtention d'une expression analytique pour le calcul de la densité électronique. Dans ce travail nous avons simplifié l'expression analytique de la densité électronique donnée par Yanallah en remplaçant le coefficient d'ionisation et le coefficient d'attachement par le coefficient effectif qu'on a obtenu à partir du travail Sunshuk[11].

#### **II.3.2.1 Méthode analytique**

D'après la méthode analytique développé par Yanallah et al [8], le calcul de la densité électronique pour la décharge couronne positive fil-cylindre dans l'oxygène pur a été obtenue par la résolution de l'équation (II-6) suivante :

L'interpolation des deux coefficients d'ionisation et d'attachement  $\alpha$  et  $\eta$  donne les expressions analytique suivantes :

$$\alpha = A_i \exp\left(-\frac{B_i}{E}\right) \quad (\text{II.17})$$

$$\eta = A_{a1} + A_{a2}E + A_{a3}E^2 + A_{a4}E^3 \quad (\text{II.18})$$

On pose:  $A_{t1} = A_{a1}$  ;  $A_{t2} = A_{a2}E_0r_0$  ;  $A_{t3} = A_{a3}(E_0r_0)^2$  ;  $A_{t4} = A_{a4}(E_0r_0)^3$

En remplaçant (II.17) et (II.18) dans (II.6) puis en intégrant l'équation obtenue selon l'axe des coordonnées radiales on obtient :

$$N_e(r) = N_e(r_0) \frac{\mu_e(r_0)E_0}{\mu_e E} \left(\frac{r_0}{r}\right)^{At_2+1} * \exp\left[\frac{A_{t1}}{B_{i2}} (\exp(-B_{i2}r_0) - \exp(-B_{i2}r)) - At_1(r - r_0) + At_3\left(\frac{1}{r} - \frac{1}{r_0}\right) + \frac{At_4}{2}\left(\frac{1}{r^2} - \frac{1}{r_0^2}\right)\right] \quad (\text{II.19})$$

### II.3.2.2 Simplification de la méthode analytique

Dans ce qui suit, nous allons simplifier l'expression de la densité électronique (II.19), en remplaçant  $\alpha$ - $\eta$  par un coefficient d'ionisation effectif  $\alpha_{\text{eff}}$ :

$$\alpha_{\text{eff}} = \alpha - \eta$$

L'équation (II.8) devient :

$$-\frac{1}{r} \frac{d}{dr} (rN_e \mu_e E) = \alpha_{\text{eff}} N_e \mu_e E \quad (\text{II.20})$$

Le coefficient d'ionisation effective  $\alpha_{\text{eff}}$ , est réécrit à partir de l'expression analytique de Sunshuk et al [11] comme suit :

$$\alpha_{\text{eff}} = A_1 + A_2 * E + A_3 * E^2 \quad (\text{II.21})$$

Avec:

$$A_1 = 85.289 \text{ cm}^{-1}; A_2 = -7.9918 \text{e}^{-3} \text{ V}^{-1}; A_3 = 1.8513 \text{e}^{-6} \text{ V}^{-2} \text{ cm}$$

On remplace le coefficient  $\alpha_{\text{eff}}$  de l'équation (II.21) par son équivalent dans l'équation II.20 et on obtient :

$$\boxed{-\frac{1}{r} \frac{d}{dr} (r N_e \mu_e E) = (A_1 + A_2 * E + A_2 * E^2) N_e \mu_e E} \quad (\text{II.22})$$

En intègre l'équation (II.22) selon l'axe des coordonnées radiales, on obtient :

$$\boxed{N_e(r) = N_e(r_0) \frac{\mu_e(r_0) E_0}{\mu_e E} \left(\frac{r_0}{r}\right)^{A_2+1} * \exp[A_1(r-r_0) - A_3\left(\frac{1}{r} - \frac{1}{r_0}\right)]} \quad (\text{II.23})$$

Cette équation est plus simple par rapport à celle obtenue par Yanallah et al [8] (II.19)

### **II.3.2.3 Conditions aux limites :**

La résolution de l'équation (II.23) nécessite la définition des conditions aux limites.

Etant donné que dans le cas d'une décharge couronne positive, les électrons et les ions négatives sont attirer vers le fil (soumis à une haute tension positive) et les ions positifs migrent vers le cylindre (mis à la terre), donc au niveau du fil la densité des ions positive est nulle c'est-à-dire :

$$\boxed{N_p(r_0) = 0} \quad (\text{II.24})$$

La densité électronique au niveau du fil  $N_e(r_0)$  est déduite à partir des équations (II.10) et (II.24)

$$\boxed{N_e(r_0) = \frac{I}{2\pi e r_0 L \mu_e (E_0) E_0}} \quad (\text{II.25})$$

### **II.3.2.4 Calcul de la distribution des espèces neutres**

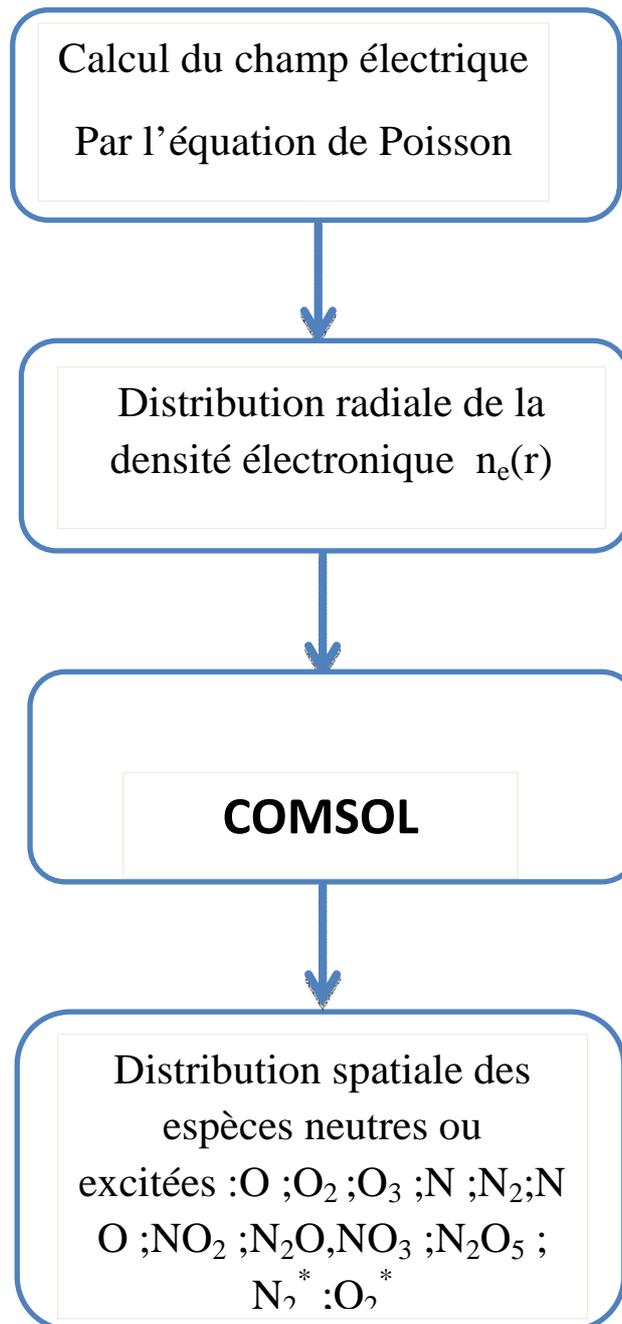
Les particules neutres sont créés principalement par les collisions des électrons accélérées avec le champ électrique avec les molécules  $N_2$  et  $O_2$ . En se basant sur le modèle fluide décrit précédemment, les équations de continuités des particules neutres seront ;

$$v_z \frac{\partial N_j}{\partial z} - \frac{\partial}{\partial z} \left[ D_j \frac{\partial N_j}{\partial z} \right] - \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[ D_j \frac{\partial N_j}{\partial r} \right] = S_j \quad (\text{II.26})$$

Cette équation est écrite dans le logiciel COMSOLv3.5 sous la forme suivante :

$$\nabla \cdot (-D \nabla E_{sp}) = R - u \cdot \nabla E_{sp} \quad (\text{II.27})$$

Avec : D : coefficient de diffusion ;  $E_{sp}$  : concentration d'une espèce ; R : équation de réaction.



**Organigramme III.1 :** *Résume les étapes de résolution de système d'équations (II.16 ;II.24 et II.27)*

### **II.3.3 Modèle cinétique chimique:**

#### **II.3.3.1 Hypothèses simplificatrices :**

Les décharges électriques se produisant dans l'air donnent lieu à une cinétique chimique particulièrement riche et complexe. Dans un modèle relativement exhaustif, Kossyi et al. [12] décrivent jusqu'à 140 espèces et plus de 450 réactions. Pour des raisons évidentes, l'utilisation d'un tel modèle n'est pas possible lors de simulations numériques et l'identification d'un système réduit de réactions prépondérantes est nécessaire. La sélection des réactions réalisées par J.Chen [1] est basée sur les critères suivants :

- ✓ Les réactions ayant un coefficient de réaction  $k_i$  supérieur à  $10^{-11} \text{cm}^{-3} \text{molecule}^{-1} \text{S}^{-1}$  sont incluses ;
- ✓ Les réactions ayant un coefficient de réaction plus faible sont négligées sauf celles contenant l'une des espèces suivantes :  $\text{N}_2$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{O}$ ,  $\text{N}$ , et  $\text{NO}$ [1]
- ✓ Puisque la concentration de l'azote excité ( $\text{N}_2^*$ ) et celle de l'oxygène excité ( $\text{O}_2^*$ ) sont faibles [1] ; on assume qu'ils ont le même coefficient de réaction que leur molécules neutre respectivement  $\text{N}_2$  et  $\text{O}_2$ .
- ✓ Puisque « les espèces ioniques » n'ont pas suffisamment d'énergie pour dissocier l'oxygène ( $\text{O}_2$ ) ils ne sont pas pris en considération.

Les réactions incluses dans ce model sont résumées dans le tableau II. On est définis douze(12) espèces neutres (  $\text{O}$  ; $\text{O}_2$  ;  $\text{O}_3$  ;  $\text{O}_2^*$  ; $\text{N}$  ; $\text{N}_2$  ;  $\text{N}_2^*$  ;  $\text{NO}$  ; $\text{NO}_2$  ;  $\text{N}_2\text{O}$  ; $\text{N}_2\text{O}_5$  ; $\text{NO}_3$ ) ; deux espèces excitées (  $\text{O}_2^*$  et  $\text{N}_2^*$ ) et vingt-quatre réactions dont cinq réactions par impact électronique (1 à 5) et dix-neuf réactions neutre ( de 6 à 24)

N°	Réaction	Coefficient de réaction (cm <sup>3</sup> molécule <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> )	Références
1	e+O <sub>2</sub> =O+O+e	k <sub>1</sub> =2e <sup>-9</sup>	[12][19][22]
2	e+N <sub>2</sub> =N+N+e	k <sub>2</sub> =5.9e <sup>-11</sup>	[7]
3	e+O <sub>3</sub> =O+O <sub>2</sub> +e	k <sub>3</sub> =5e <sup>-9</sup>	[12] [15-22]
4	e+O <sub>2</sub> =O <sub>2</sub> *+e	k <sub>4</sub> =1e <sup>-8</sup> *exp (-389/TD <sup>(*)</sup> )	[15][12]
5	e+N <sub>2</sub> =N <sub>2</sub> *+e	k <sub>5</sub> =1e <sup>-8</sup> *exp (-336/TD)	[12]
6	O+O <sub>2</sub> +O <sub>2</sub> =O <sub>3</sub> +O <sub>2</sub>	k <sub>6</sub> =6.0×10 <sup>-34</sup> (T/300) <sup>-2.8</sup> [O <sub>2</sub> ] <sup>(**)</sup>	[12][1][7]
7	O+O <sub>2</sub> +N <sub>2</sub> =O <sub>3</sub> +N <sub>2</sub>	k <sub>7</sub> =5.6× 10 <sup>-34</sup> (T/300) <sup>-2.8</sup> [N <sub>2</sub> ] <sup>(***)</sup>	[1][5]
8	O+O <sub>3</sub> =O <sub>2</sub> +O <sub>2</sub>	k <sub>8</sub> =8.0× 10 <sup>-12</sup> exp (-2060/T)	//
9	O+NO+N <sub>2</sub> =NO <sub>2</sub> +N <sub>2</sub>	k <sub>9</sub> =1.0× 10 <sup>-31</sup> (T/300) <sup>-1.6</sup> [N <sub>2</sub> ]	//
10	O+NO <sub>2</sub> =NO+O <sub>2</sub>	k <sub>10</sub> =5.6× 10 <sup>-12</sup> exp (180/T)	//
11	O+NO <sub>3</sub> =O <sub>2</sub> +NO <sub>2</sub>	k <sub>11</sub> =1.7× 10 <sup>-11</sup>	//
12	O+N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> =NO <sub>2</sub> +NO <sub>2</sub> +O <sub>2</sub>	k <sub>12</sub> =1.0× 10 <sup>-16</sup>	//
13	N+O <sub>2</sub> =NO+O	k <sub>13</sub> =1.5× 10 <sup>-11</sup> exp (-3600/T)	//
14	N+O <sub>3</sub> =NO+O <sub>2</sub>	k <sub>14</sub> =1.0× 10 <sup>-16</sup>	//
15	N+NO=N <sub>2</sub> +O	k <sub>15</sub> =2.1× 10 <sup>-11</sup> exp (100/T)	//
16	N+NO <sub>2</sub> =N <sub>2</sub> O+O	k <sub>16</sub> =5.8× 10 <sup>-12</sup> exp (220/T)	//
17	NO+O <sub>3</sub> =NO <sub>2</sub> +O <sub>2</sub>	k <sub>17</sub> =3.0× 10 <sup>-12</sup> exp (-1500/T)	//
18	NO+NO <sub>3</sub> =2NO <sub>2</sub>	k <sub>18</sub> =1.8× 10 <sup>-11</sup> exp (110/T)	//
19	NO <sub>2</sub> +O <sub>3</sub> =NO <sub>3</sub> +O <sub>2</sub>	k <sub>19</sub> =1.4× 10 <sup>-13</sup> exp (-2470/T)	//
20	NO <sub>2</sub> +NO <sub>3</sub> +N <sub>2</sub> =N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> +N <sub>2</sub>	k <sub>20</sub> =2.8× 10 <sup>-30</sup> (T/300) <sup>-3.5</sup> [N <sub>2</sub> ]	//
21	N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> +N <sub>2</sub> =NO <sub>2</sub> +NO <sub>3</sub> +N <sub>2</sub>	k <sub>21</sub> =1.0×10 <sup>-3</sup> (T/300) <sup>-3.5</sup> exp(- 11000/T)[N <sub>2</sub> ]	//
22	O <sub>2</sub> *+O <sub>2</sub> =O <sub>3</sub> +O	k <sub>22</sub> =4.8× 10 <sup>-15</sup>	//
23	N <sub>2</sub> *+O <sub>2</sub> =N <sub>2</sub> +2O	k <sub>23</sub> =3.0× 10 <sup>-12</sup> (T/300) <sup>0.55</sup>	//
24	N <sub>2</sub> *+O <sub>2</sub> =N <sub>2</sub> O+O	k <sub>24</sub> =6.0× 10 <sup>-14</sup> (T/300) <sup>0.55</sup>	//

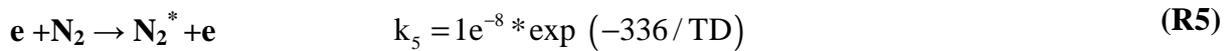
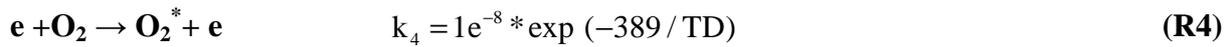
\* ; TD=E/N

\*\* : [O<sub>2</sub>] = 20%\*[gaz]= 0.2\*2.45e<sup>19</sup> = 4.9e<sup>18</sup>

\*\*\*: [N<sub>2</sub>] = 80%\*[gaz]= 0.8\*2.45e<sup>19</sup> = 1.96e<sup>19</sup>

**II.3.3.2 Génération des espèces chimique pendant la décharge :**

Les premières espèces qui sont générées pendant la décharge sont : l’oxygène atomique O, l’azote atomique, l’oxygène excité O<sub>2</sub><sup>\*</sup> et l’azote excité N<sub>2</sub><sup>\*</sup> et qui sont produites par les réactions d’impacts électroniques comme suit:



Pendant la décharges neuf autres espèces neutres sont générer: N, O<sub>3</sub>, NO, NO<sub>2</sub>; NO<sub>3</sub>; N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, Ensuite d’ autres espèces neutres sont générées: O<sub>3</sub>, NO, NO<sub>2</sub>; NO<sub>3</sub>; N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, N<sub>2</sub>O les réactions qui régissent cette production sont résumé dans le tableau suivant :

**II.3.3.4 Bilan réactionnel des espèces**

Le terme source de gains et de pertes de chaque espèce neutre dans les équations II-28 s’écrit :

**1. Oxygène atomique (O)**

$$S_O(\text{gains}) = +2 * k_1 * N_e * O_2 + k_3 * N_e * O_3 + k_{13} * N * O_2 + k_{15} * N * NO + k_{16} * N * NO_2$$

$$+ k_{22} * O_2 e * O_2 + 2 * k_{23} * N_2 e * O_2 + k_{24} * N_2 e * O_2$$

$$S_O(\text{perte}) = -k_6 * O * O_2 * O_2 - k_7 * O * O_2 * N_2 - k_8 * O * O_3 - k_9 * O * NO * N_2 - k_{10} * O * NO_2 - k_{11} * O * NO_3 - k_{12} * O * N_2 O_5$$

**2. Dioxygène (O<sub>2</sub>)**

$$S_{O_2}(\text{gains}) = +k_3 * N_e * O_3 + 2 * k_8 * O * O_3 + k_{10} * O * NO_2 + k_{11} * O * NO_3 + k_{12} * O * N_2 O_5 + k_{14} * N * O_3 + k_{17} * NO * O_3 + k_{19} * NO_2 * O_3$$

$$S_{O_2}(\text{perte}) = -k_1 * N_e * O_2 - k_4 * N_e * O_2 - k_6 * O * O_2 * O_2 - k_7 * O * O_2 * N_2 - k_{13} * N * O_2 - k_{22} * O_2 e * O_2 - (k_{23} + k_{24}) * N_2 * O_2$$

**3. Ozone (O<sub>3</sub>)**

$$S_{O_3}(\text{gains}) = +k_6 * O * n_{O_2} * O_2 + k_7 * O * O_2 * N_2 + k_{22} * O_2 e * O_2$$

$$S_{O_3}(\text{perte}) = -k_3 * N_e * O_3 - k_8 * O * O_3 - k_{14} * N * O_3 - k_{17} * NO * O_3 - k_{19} * NO_2 * O_3$$

**4. Azote (N):**

$$S_N(\text{gains}) = +2 * k_2 * N_e * N_2$$

$$S_N(\text{perte}) = -k_{13} * N_1 * O_2 - k_{14} * N_1 * O_3 - k_{15} * N_1 * NO - k_{16} * N_1 * NO_2$$

**5. Diazote (N<sub>2</sub>)**

$$S_{N_2}(\text{gains}) = +k_{15} * N * NO$$

$$S_{N_2}(\text{perte}) = -k_2 * N_e * N_2 - k_5 * N_e * N_2$$

**6. Protoxyde d'azote N<sub>2</sub>O**

$$S_{N_2O}(\text{gains}) = +k_{16} * N * NO_2 + k_{24} * N_2 e * O_2$$

$$S_{N_2O}(\text{perte}) = 0$$

**7. Oxyde d'azote (NO)**

$$S_{NO}(\text{gains}) = +k_{10} * O * NO_2 + k_{13} * N * O_2 + k_{14} * N * O_3$$

$$S_{NO}(\text{perte}) = -k_9 * O * NO * N_2 - k_{15} * N * NO - k_{17} * NO * O_3 - k_{18} * NO * NO_3$$

**8. Dioxyde d'azote (NO<sub>2</sub>)**

$$S_{NO_2}(\text{gains}) = +k_9 * O * NO * N_2 + k_{11} * O * NO_3 + 2 * k_{12} * O * N_2 O_5 + k_{17} * NO * O_3 + 2 * k_{18} * NO * NO_3 + k_{21} * N_2 O_5 * N_2$$

$$S_{NO_2}(\text{perte}) = -k_{10} * O * NO_2 - k_{16} * N * NO_2 - k_{19} * NO_2 * O_3 - k_{20} * NO_2 * NO_3 * N_2$$

**9. Nitrate (NO<sub>3</sub>)**

$$S_{NO_3}(\text{gains}) = +k_{19} * NO_2 * O_3 + k_{21} * N_2 O_5 * N_2$$

$$S_{NO_3}(\text{perte}) = -k_{11} * O * NO_3 - k_{18} * NO * NO_3 - k_{20} * NO_2 * NO_3 * N_2$$

**10. Pentoxyded'azote N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>**

$$S_{N_2O_5}(\text{gains}) = +k_{20} * NO_2 * NO_3 * N_2$$

$$S_{N_2O_5}(\text{perte}) = -k_{12} * O * N_2O_5 - k_{21} * N_2O_5 * N_2$$

**11. Dioxygèneexcité(O<sub>2</sub>e)**

$$S_{O_2e}(\text{gains}) = +k_4 * N_e * O_2$$

$$S_{O_2e}(\text{perte}) = -k_{22} * O_2e * O_2$$

**12. Diazoteexcité(N<sub>2</sub>e)**

$$S_{N_2e}(\text{gains}) = +k_5 * N_e * N_2$$

$$S_{N_2e}(\text{perte}) = -k_{23} * N_2e * O_2 - k_{24} * N_2e * O_2$$

La résolution des équations(II.28)est faite par le logiciel COMSOLv3.5. Voici une brève description de l'utilisation de ce logiciel.

**II.3.3.5Le logiciel COMSOL :**

Pour la résolution du modèle permettant la détermination de la distribution des différentes espèces nous avons utilisé le logiciel commercial « COMSOLv3.5 ». puisque :

- Un des principaux avantages de COMSOL Multiphysics est de coupler et de résoudre des équations dans des domaines aussi variés que l'électromagnétisme, la dynamique des fluides, la mécanique des structures et la chimie, tout ceci dans le même modèle et simultanément. Ces processus sont décrits par des équations et des modèles prédéfinis.
- Le logiciel COMSOL utilise des solveurs capables de traiter des problèmes de taille très importante avec des temps de résolution souvent réduits

La résolution des équations par le logiciel COMSOL est basée sur la méthode des éléments finis.

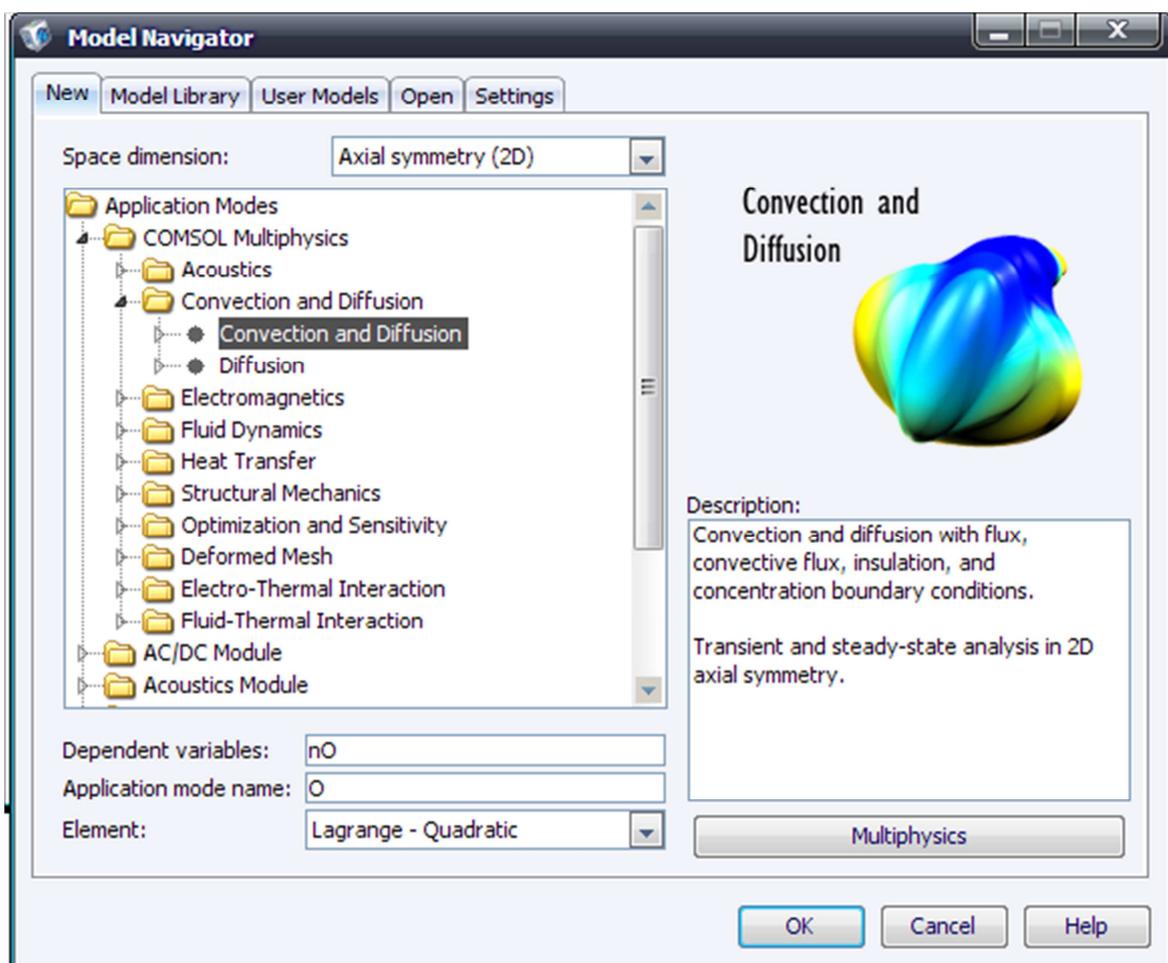
**a) Présentation du logiciel**

COMSOL Multiphysics est le nom du logiciel de modélisation et de simulation FEMLAB (Finite Elements Modeling Laboratory). Il permet de modéliser tout processus physique décrit par des équations aux dérivées partielles EDP). Le logiciel a été créé en 1986 à Stockholm en

suède. Aujourd'hui, il compte plusieurs bureaux dans différents pays dont la France, l'Allemagne, le Danemark, la Finlande, la Norvège, le Royaume-Uni et les Etats-Unis. Il est utilisé sous forme graphique ou par ligne de commande. Nous pouvons choisir de décrire le problème en 1D, 2D ou en 3D

**b) Etapes de la réalisation du modèle avec COMSOL v3.5 Multiphysics**

- i. A partir du Navigateur de modèle, nous commençons par définir les dimensions du modèle, ainsi que le mode d'application, pour notre modèle nous avons utilisé le mode Multiphysics/Convection et diffusion/ Analyse stationnaire en 2D (Axial symétrie)



**Figure II.2 :** Définition du modèle à partir du navigateur de modèle (exemple pour l'oxygène atomique).

- ii. Ensuite Nous dessinons la géométrie de notre réacteur fil-cylindre, il s'agit d'un rectangle de largeur 1cm (rayon du cylindre), de longueur 16cm et à la position 0.005cm (rayon du fil) comme le montre la figure (II.3).

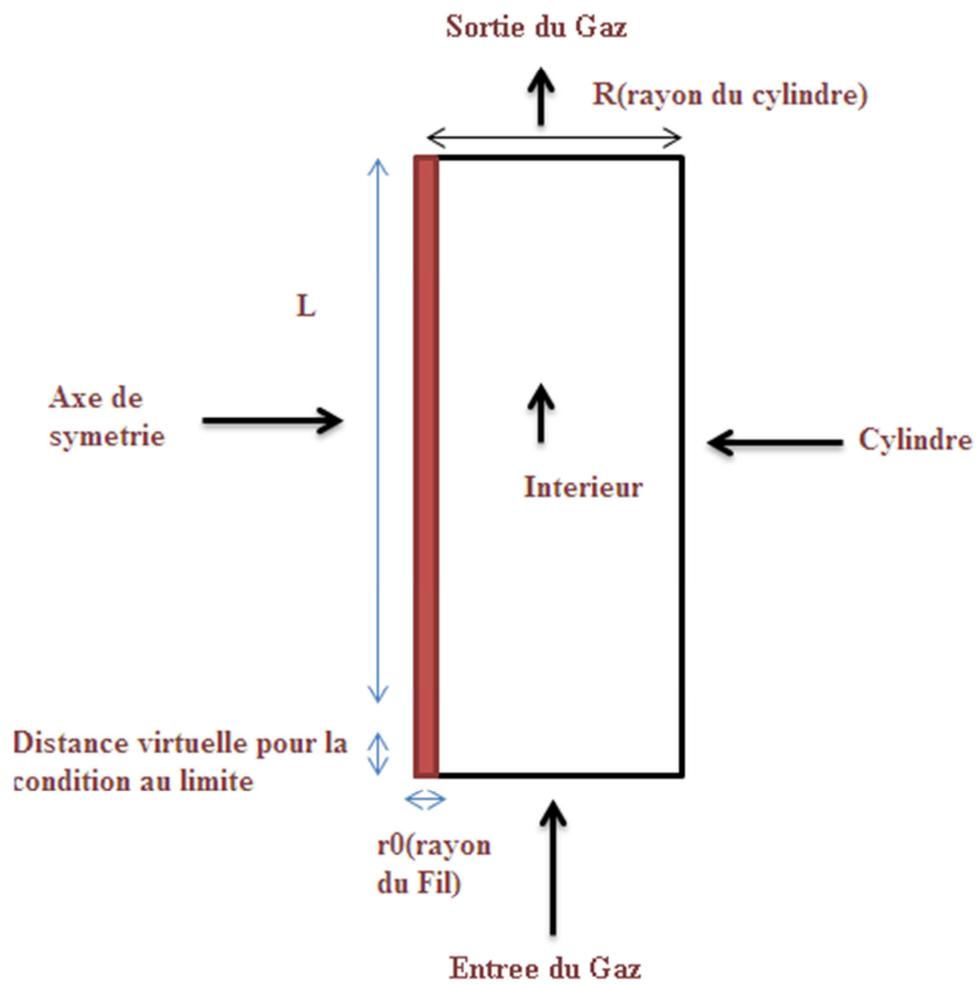
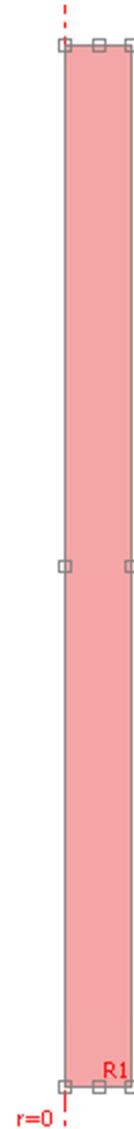
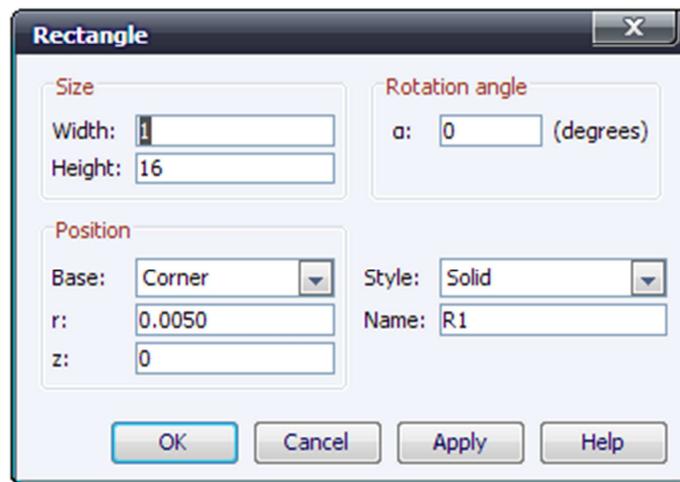
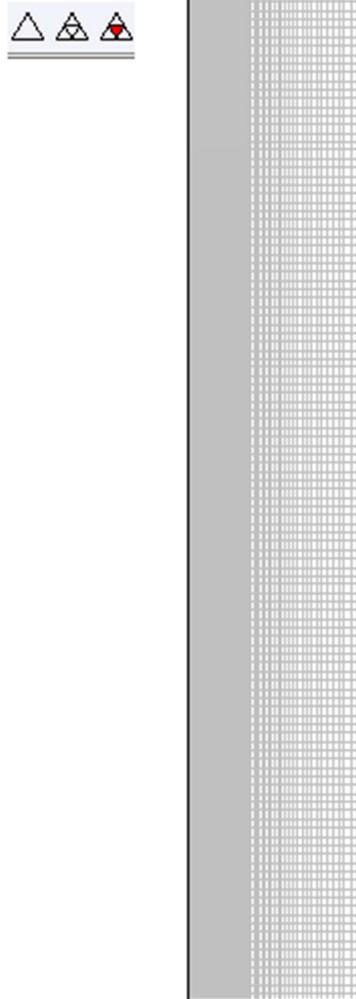


Figure II.3 : Description géométrique du model



**Figure II.4 :** Schéma du réacteur de décharge couronne fil-cylindre (domaine de résolution)

- iii. A partir du menu « physique », nous définissons les paramètres des différents domaines, les conditions initiales et les conditions aux limites.
- iv. Avant de commencer la résolution, il est important de préciser le maillage. Il est ajusté à partir du menu «Maillage» montré sur la figure(II.5). Pour notre cas nous avons affiner le maillage au voisinage du fil qui représente la zone active (d'ionisation) pour la décharge couronne positive.



*Figure II.5 :Maillage du domaine de résolution du système d'équations*

Notons qu'au début du calcul, il est préférable d'utiliser un maillage grossier puis le raffiné graduellement parce que la finesse de ce dernier affecte étroitement le temps de calcul. Chaque fois que le maillage est affiné et une nouvelle résolution du système d'équations est effectuée dont Les résultats sont comparés à ceux du calcul précédent. Si les résultats sont identiques, alors il n'est plus nécessaire d'affiner davantage le maillage.

**II.3.3.6 Conditions aux limites:**

Quatre conditions aux limites sont nécessaires pour chaque espèce ; la première à l'entrée du réacteur, la seconde à la surface du fil, la troisième à la sortie du réacteur et la quatrième à la surface interne du cylindre.

**a) Entrée du réacteur (Conditions initiales) :**

Nous assumons qu'à l'entrée du cylindre, la concentration des différentes espèces est nulle, sauf l'air sec, (80% N<sub>2</sub>, 20% O<sub>2</sub>) , mais cette condition n'est pas valable si on prend en considération le retour du gaz vers l'entrée du cylindre par diffusion.

Pour définir ces conditions aux limites nous avons ajouté à la longueur du cylindre une valeur de 1cm. A cette distance ajouté, on est sûr que les concentrations de toutes les espèces sauf le N<sub>2</sub> et le O<sub>2</sub> sont nulles.

**Calcul des concentrations initiales**

On suppose que l'air sec se comporte comme un gaz parfait, d'où la loi qui détermine la concentration initiale c'est.

$$PV_g = n_{mole} R_g T \quad (\text{II.29})$$

Avec  $P$  : pression du gaz (pascal);  $V_g$ : volume occupé par le gaz (m<sup>3</sup>) ;  $n_{mole}$ : nombre de mole ;  $R_g$  : constante des gaz parfaits ( $R_g \approx 8,316 \text{ J} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{mole}^{-1}$ ) ;  $T$  : température en Kelvin.

Puisque

$$n_{mole} = \frac{\text{le nombre de molécules } n_m}{6,023 \cdot 10^{23} \text{ N}} \quad (\text{II.30})$$

L'équation est écrite sous la forme :

$$P = \frac{n_m R}{V N} T \Rightarrow P = [\text{air sec}]_0 \cdot K_B \cdot T \quad (\text{II.31})$$

$$[\text{air sec}]_0 = \frac{P}{K_B \cdot T} \quad (\text{II.32})$$

Avec  $[\text{air sec}]_0$  : est la concentration de l'air sec à  $z = 0$ .

$K_B$  : la constante de Boltzmann ( $1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$ ).

D'où les concentrations initiales des espèces mises en jeu :

Décharge électrique dans l'air sec à  $T = 300 \text{ K}$ ,  $P = 1.0135 \text{ atm}$  :

$$[\text{air sec}]_0 = 2,4480676 \cdot 10^{19} \text{ molécules/cm}^3$$

Puisque :

$$[\text{N}_2]_0 = 80\% [\text{air sec}]_0 = 1,96 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$$

$$[\text{O}_2]_0 = 20\% [\text{air sec}]_0 = 0,49 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$$

Les espèces restantes ont une concentration initiale  $[C_i]_0$  nulle à  $z=0$ .

### b) Surface du fil et du cylindre :

Le flux radial de différentes espèces est nul sur les surfaces du fil et du cylindre. Cette condition s'écrit mathématiquement comme se suit :

$$\mathbf{n} \cdot \mathbf{F}_{ix} = 0 ; \mathbf{F}_{ix} = -D \cdot \nabla \cdot \mathbf{C}_i + C_i \cdot \mathbf{u} \quad (\text{II.33})$$

avec :

$\mathbf{n}$  : vecteur norme ;  $\mathbf{F}_{ix}$  : expression du flux ;  $\mathbf{u}$  : vitesse radiale

### b) Sortie du réacteur

A la sortie du gaz le flux est convectif

Equation utilisée

$$\mathbf{n} \cdot \mathbf{F}_{ix} = 0 ; \mathbf{F}_{ix} = (-D \cdot \nabla \cdot \mathbf{C}_i) \quad (\text{II-34})$$

## **II.4 Conclusion**

Dans ce chapitre, nous avons :

1. Mis le point sur le modèle auto-cohérent et l'utilisation du modèle fluide à deux moments basé sur l'approximation du champ local.
2. Découplé les équations de continuité et l'équation de poisson en utilisant l'approximation faite par yanallah et pontiga
3. Utilisé l'expression analytique développé par yanallah et al[8] à partir de l'équation de poisson pour le calcul du champ électrique,
4. Simplifié l'expression analytique développé par Yanallah et al en remplaçant le coefficient d'ionisation et d'attachement par le coefficient effectif qu'on a interpoler à partir de l'expression donnée par Sunshuk et al[11]
5. Exposé le modèle cinétique chimique de l'air sec donné par Chen puis établi le bilan réactionnel pour chaque espèce.
6. Décrit l'utilisation du logiciel COMSOL.

**Référence :**

- [1] Junhong Chen,” DIRECT CURRENT CORONA-ENHANCED CHEMICAL REACTIONS”, Thèse de doctorat, université de Minnesota, Aout 2002
- [2] Junhong Chen et al, “Electron Density and Energy Distributions in the Positive DC Corona: interpretation for Corona-Enhanced Chemical Reactions” ,article, Plasma Chemistry and Plasma Processing, septembre 2001
- [3] Diane DUBOIS, Réalisation et caractérisation d’un réacteur plasma de laboratoire pour des études sur la dépollution des gaz d’échappement, thèse de doctorat, UNIVERSITE TOULOUSE III – PAUL SABATIER, septembre 2006
- [4] Junhong Chen,” Ozone Production in the Negative DC Corona: The Dependence of Discharge Polarity”, Plasma Chemistry and Plasma Processing, septembre 2003
- [5] Junhong Chen,” Numerical modelling of ozone production in a wire–cylinder corona discharge and comparison with a wire–plate corona discharge”, IOP publishing, Janvier 2009
- [6] K Yanallah et al, “Experimental investigation and numerical modelling of positive corona discharge: ozone generation”, IOP Publishing, Janvier 2009
- [7] K Yanallah et al, ”Numerical simulation of an oxygen-fed wire-to-cylinder negative corona discharge in the glow regime”, IOP Publishing, Janvier 2011
- [8] K. Yanallah et al, “An analytical approach to wire-to-cylinder corona discharge”, Journal of Electrostatics, Mai 2012
- [9] K Yanallah et al, “A semi-analytical stationary model of a point-to-plane corona discharge”, IOP Publishing, juillet 2012
- [10] MENNAD Boufeldja,” L’influence de la nature du matériau des parois Sur la décomposition de l’ozone dans une décharge couronne” , Mémoire de Magister, Université des Sciences et de la Technologie Mohamed Boudiaf –Oran -, juillet 2009
- [11] Shunsuke Ohashi et al, “A method for computing current density and electric Feld in electrical discharge space using current low-line coordinate”, Publication; Journal of Electrostatics; septembre 1997

- [12] S.Hadj-Zian et al, "Ozone production in an oxygen-fed wire to cylinder ozonizer", article, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 23 (1990) 1390-1395, Janvier 1990
- [13] Micoviny et al, "Experimental study of negative corona discharge in pure carbon dioxide and its mixtures with oxygen", article, IOP Publishing, Aout 2008
- [14] CTAT&Kinema Software, <http://www.siglo-kinema.com/bolsig.htm>.
- [15] J.Orszagh et al, "Ozone Formation in a Coaxial DC Corona Discharge under Carbon Dioxide Gas Flow", article, *Plasma process*, 2007
- [16] J D Skalny et al, "Positive and negative corona discharges in flowing carbon dioxide", IOP Publishing, Aout 2008
- [17] J.Orszagh et al, "The effect of oxygen and carbon dioxide mixture on the onset voltage and time dependence of current of negative corona discharge", *Proceedings of contributed papers part II*, 155-158, 2007
- [18] I A Kossyi, "Kinetic scheme of the non-equilibrium discharge in nitrogen-oxygen mixtures", *Plasma Sources Sci. Technol.* 1 (1992) 207-220 Printed in the UK, juillet 1992
- [19] K.HADJI et al, "Etude de l'influence des injections électroniques répétées sur la production d'ozone", *MATERIAUX 2006 Dijon, France*, Novembre 2006
- [20] Nabil ETTLILI, "Procédé d'adsorption avec régénération électrothermique pour la capture du dioxyde de carbone en post-combustion", Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique De Lorraine, avril 2008
- [21] Nabil IKHLEF, "Modélisation numérique d'une installation convertisseur -plasma d'induction en vue d'une commande optimale", Thèse de doctorat, Université de Batna, Avril 2010
- [22] S.Hadj-Ziane et al, "Ozone production in an oxygen-fed wire to cylinder ozonizer", article, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 25 (1992) 677-685, Juillet 1991.

## *Chapitre III. :*

*Résultats de la modélisation de  
la production de l'ozone par  
décharge électrique couronne  
positive dans l'air*

# CHAPITRE III

Dans ce chapitre nous présentons la modélisation à deux dimension (2 D symétrique) de la décharge électrique couronne positive à courant continu dans l'air sec, pour une géométrie d'électrode fil-cylindre et avec écoulement du gaz. Nous commençons par la description du montage expérimentale réalisé par Yehia et al [1] que nous allons modéliser par le logiciel COMSOLv3.5. Puis nous présentons les distributions spatiales du champ et de la densité électronique obtenues à partir du modèle 1D présenté dans le chapitre II. Dans cette partie la caractéristique expérimentale courant-tension sera employer comme un paramètre d'entré dans les calculs [2]. Ensuite nous discutons la distribution spatiale en 2D des différentes espèces neutres produites par la décharge couronne positive ( $O$ ,  $O_2$ ,  $N$ ,  $N_2$ ,  $NO$ ,  $NO_2$ ,  $NO_3$ ,  $N_2O$ ,  $N_2O_5$ ,  $O_3$ ,  $N_2^*$ ,  $O_2^*$ ) donnée par le logiciel COMSOLv3.5. Nous terminons le chapitre par la validation du modèle en comparant la densité d'ozone mesurée expérimentalement avec celle prédite par notre modèle.

### III.1 Introduction

Dans ce chapitre nous allons décrire l'expérience de Yehia et al[1] sur la production d'ozone par décharge électrique couronne positive de type fil-cylindre pour l'air sec puis nous présentons nos résultats de la modélisation du réacteur fil cylindre de cette expérience. Les conditions de nos calculs sont récapitulées sur le tableau (III.1) ci-dessous:

Paramètres de décharge	Données
Gaz	Air sec (80% N <sub>2</sub> et 20% O <sub>2</sub> )
Pression	1atm(760 Torr)
Température	293°K
Rayon du Fil	0.005cm
Rayon du cylindre	1cm
Longueur du cylindre	15cm

*Tableau III.1: Paramètres utilisés dans les calculs*

La caractéristique courant-tension montrée dans les figures (III.2) et (III.3) est utilisée comme paramètre d'entrée pour calculer la distribution spatiale du champ électrique et celle de la densité électronique. La densité électronique ainsi obtenue est utilisée comme paramètre d'entrée dans le logiciel COMSOLv3.5 pour la simulation de la production des espèces chimiques générées par la décharge couronne.

### III.2 Description du montage expérimental

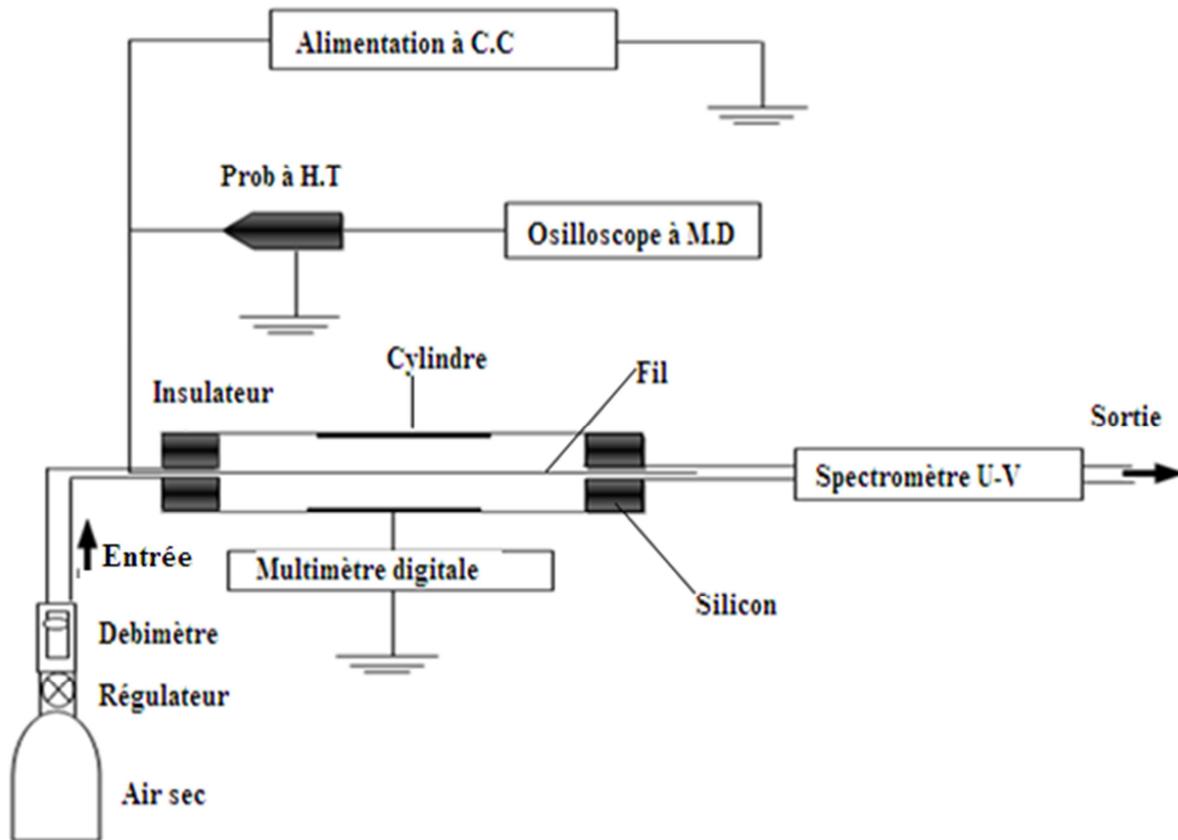


Figure III.1 : Schéma du dispositif expérimental

La figure (III.1), montre le dispositif utilisé dans l'expérience de Yehia[1]. La chambre de décharge est composée d'un fil de tungstène de diamètre qui varie entre 0.0025 cm et 0.02 cm, et un cylindre métallique de longueur 15 cm et de rayon intérieur de 1.0 cm. Le fil passe le long du cylindre à travers son centre. Le fil subit une haute tension continue. Le courant électrique est mesuré au moyen d'un multimètre numérique. La chambre de décharge a été fermée avec deux bouchons équipés de deux fenêtres de quartz pour permettre le passage du rayonnement (UV). Cette chambre qui est traversée par un écoulement de gaz à la pression atmosphérique, a été liée à un spectrophotomètre UV pour mesurer la concentration d'ozone à une longueur d'onde de 253,7 nm [1].

### III.3 Caractéristique courant-tension

Nous allons utiliser la caractéristique courant-tension (I-V) pour le calcul du champ électrique et de la densité électronique ainsi que l'étude de l'effet de la tension sur ces deux grandeurs. La caractéristique courant-tension de la figure (III.2) obtenue dans cette expérience pour un rayon de fil de 0.005 cm et un débit de 1l/min ( $16.67\text{cm}^3/\text{s}$ ). Pour l'étude de l'effet du rayon du fil nous avons utilisé la courbe courant-tension de la figure (III.3)

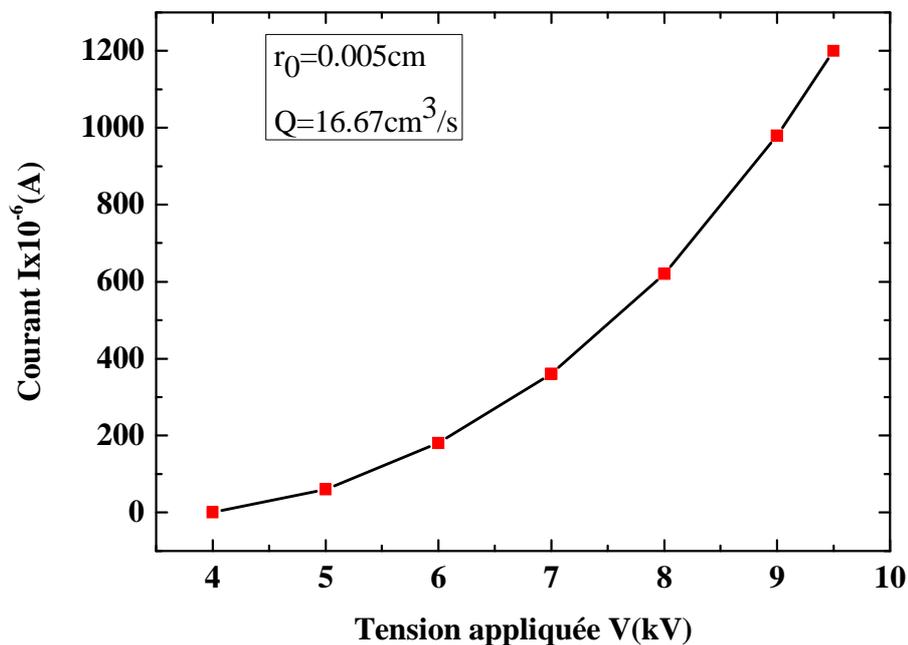


Figure III.2 : Caractéristique courant-Tension pour un  $r_0=0.005\text{cm}$  et un débit  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  [1].

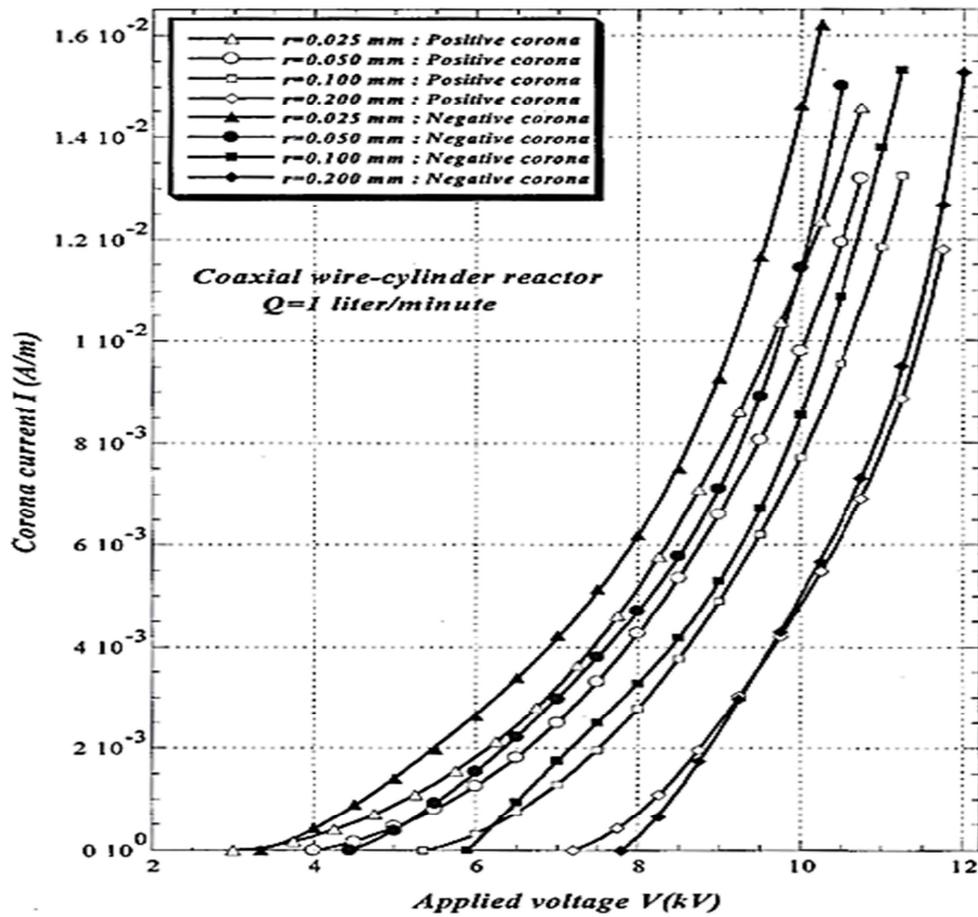


Figure III.3 : Caractéristique courant-tension pour différents rayons du fil pour un débit  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  [2].

## III.4 Résultats et interprétation

### III.4.1 Champ électrique

La distribution du champ électrique est montrée sur la figure (III.4). Nous remarquons que le champ électrique est très intense aux alentours du fil puis diminue le long de la direction radiale, alors que dans la région de dérive il a tendance à être uniforme.

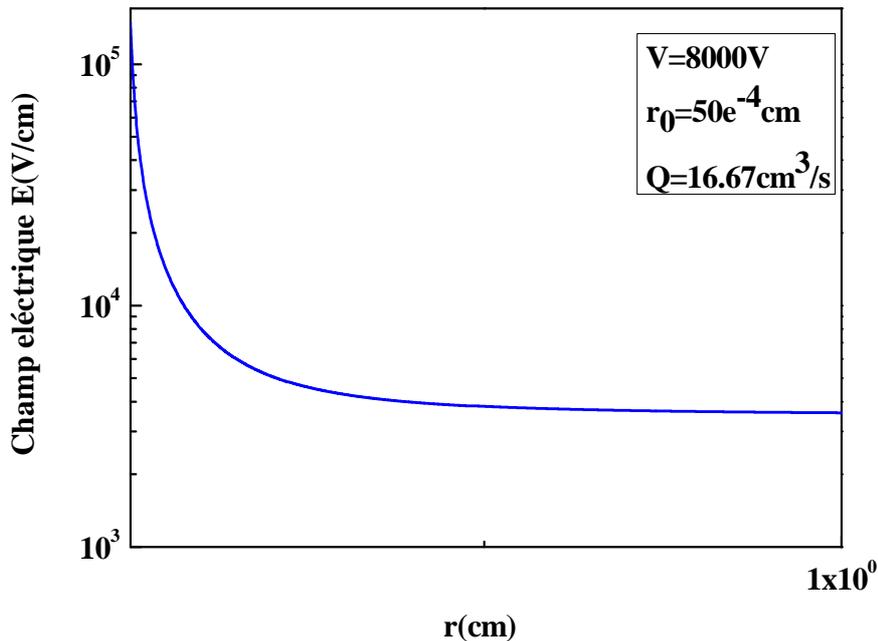


Figure III.4: Distribution radiale du champ électrique

En examinant l'expression du champ électrique donnée dans le chapitre précédent (relation

II.16), on constate qu'au voisinage du fil le terme  $\frac{(E_0 r_0)^2}{r^2}$  est très grand devant le  $\frac{I}{2\pi\mu_p L \epsilon_0}$

donc le champ électrique est inversement proportionnel à la distance radiale. L'inverse se

produit dans la région de dérive et surtout au voisinage du cylindre c.à.d. le terme  $\frac{(E_0 r_0)^2}{r^2}$  est

petit devant le  $\frac{I}{2\pi\mu_p L \epsilon_0}$  ce qui explique que le champ électrique est presque uniforme, donc dans cette région la valeur du champ électrique est liée au courant électrique et la caractéristique I-V est déterminée par la région de dérive.

On peut calculer la valeur du champ électrique sur la surface du fil en utilisant la loi de Peek[3] :

$$E(r_0) = 3 \times 10^6 \xi \left( \chi + 0.03 \sqrt{\frac{\chi}{r_0}} \right) \quad (\text{III.1})$$

En supposant que la surface du fil est lisse, on prend  $\xi = 1$  et  $\chi = 1$ , ce qui donne la valeur du champ  $E(r_0) = 1.57 \times 10^5 \text{ V.cm}^{-1}$ . Cette valeur du champ électrique sur la surface du fil est en bon accord avec notre calcul qui est de l'ordre de  $1,49 \times 10^5 \text{ V/cm}$ .

### III.4.2 Densité électronique:

La figure (III.5) montre la distribution des électrons pour une tension appliquée de 8 kV. Clairement le volume de la décharge électrique est divisé en deux régions. La première région d'ionisation entourant la cathode s'étend sur une distance de l'ordre de  $2.10^{-4} \text{ cm}$ . Dans cette région, le courant est maintenu par les électrons. La deuxième région de dérive s'étend sur tous l'espace inter-électrodes et le courant est transporté principalement par les

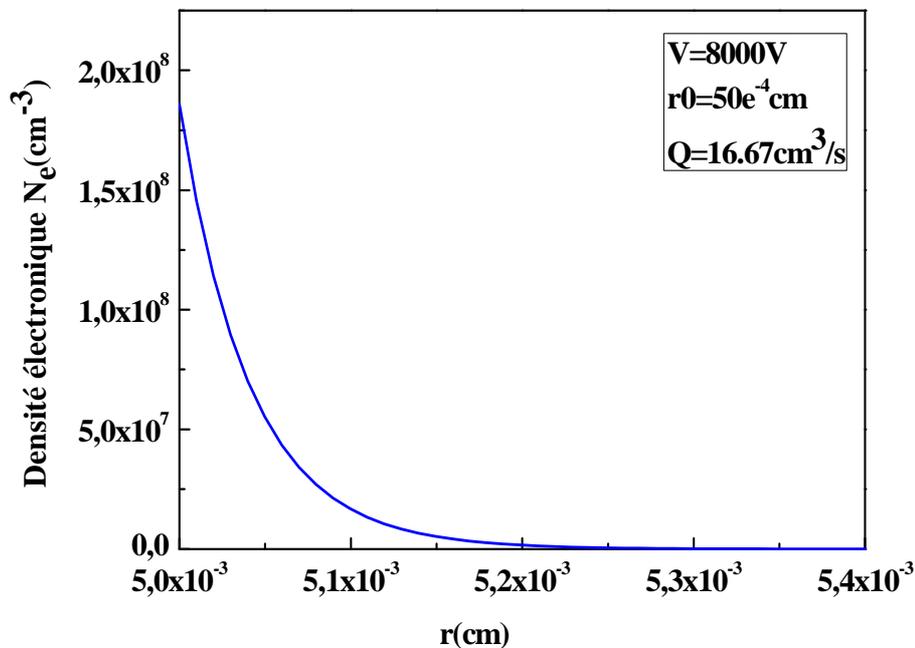


Figure III.5: Distribution radiale de la densité électronique

ions positifs. Entre la région d'ionisation et de dérive les électrons libres sont accélérés par le champ électrique intense vers le fil et ionisent les molécules neutres du gaz. A cause de cette avalanche la concentration des électrons augmente exponentiellement dans la direction vers le fil. La principale source des électrons est l'ionisation directe des molécules d'azote et d'oxygène :



l'allure de la densité électronique est analogue a celle trouvée dans la bibliographie [4-6]

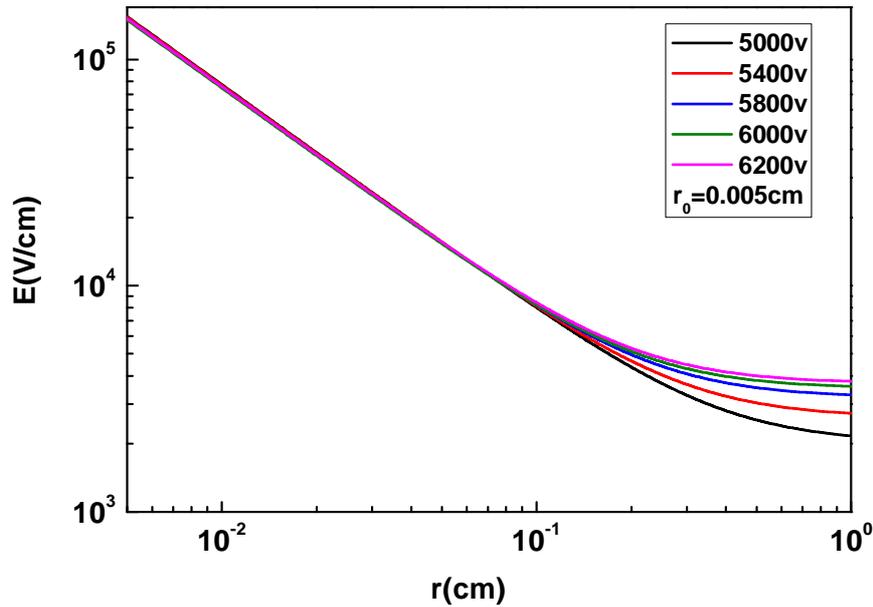
### III.5 Etude paramétrique

Dans le paragraphe suivant, nous allons effectués une étude paramétrique sur le rôle joué par la tension appliquée et le rayon du fil sur la distribution du champ électrique et de la densité électronique.

#### III.5.1 Champ électrique

##### 1. Effet de la tension électrique

Dans la figure (III.6) on observe l'effet de la tension appliquée sur la distribution radiale du champ électrique dans l'espace inter-électrode. Le champ électrique est presque indépendant de la tension appliquée dans le premier intervalle de la courbe puis devient proportionnel dans le second intervalle. Pour expliquer ce résultat nous nous referons à l'expression (II.16) :



**Figure III.6 :** Effet de la tension appliquée sur la distribution radiale du champ électrique

On trouve qu'au voisinage du fil le champ électrique est intense ce qui nous permet de

négliger le terme  $\frac{I}{2\pi\epsilon_0 L \mu_p}$  devant  $E_0$  donc dans cette zone on a :

$$E = \frac{E_0 r_0}{r} \quad (\text{III.2})$$

Or d'après la figure (III.4) le champ diminue selon l'axe radial donc l'affaiblissement du champ fait que dans le second intervalle l'expression du champ électrique devient :

$$E = \sqrt{\frac{I}{2\pi\epsilon_0 L \mu_p}} \quad (\text{III.3})$$

Ce comportement est en accord avec les résultats de Soria et al[7]

## 2. Effet du rayon

La figure (III.7), illustre l'effet du rayon du fil sur la variation radiale du champ électrique. On remarque que lorsque le rayon du fil est plus petit le champ électrique est plus intense sur la surface du fil, et l'intervalle pour le quelle le champ est presque uniforme devient plus grande.

Ce comportement est interprété en examinant la relation (III.4), puisque le courant électrique

augmente lorsque le rayon du fil diminue alors le champ électrique dans la région de dérive augmente pour une large distance.

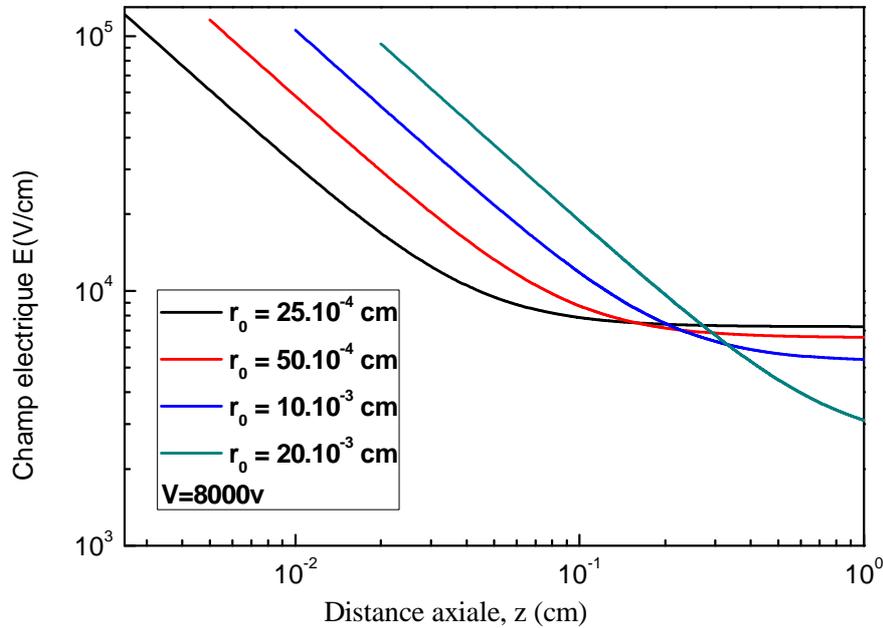


Figure III.7 : Effet du rayon du fil sur la distribution radiale du champ électrique

### III.5.2 Densité électronique

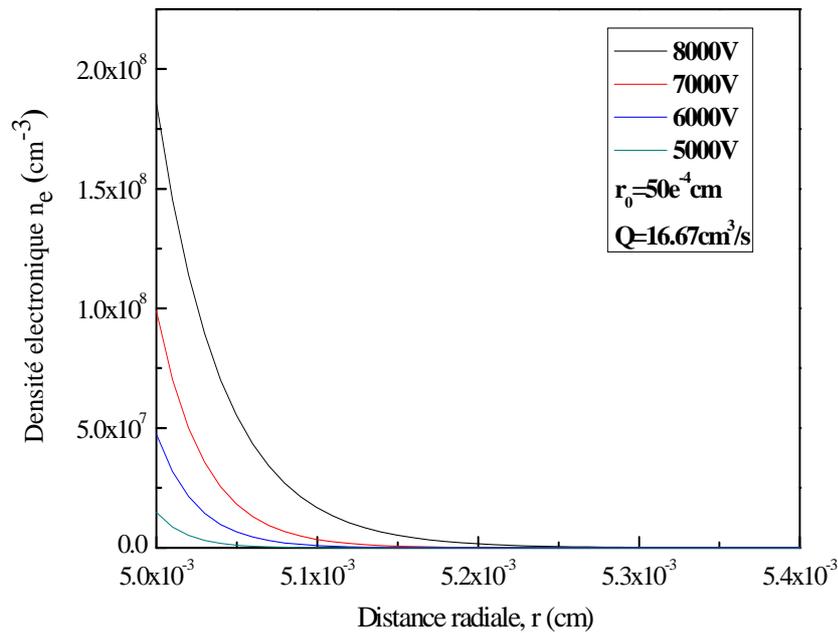
#### 1. Effet de la tension électrique

La figure (III.8) illustre l'effet de la tension appliquée sur la variation de la densité électronique ( $N_e$ ). Lorsque la tension  $V$  augmente, la densité électronique croît rapidement, et la région d'ionisation s'élargie. Le maximum de la densité électronique passe de  $1.47 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$  à  $1.59 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}$ , quand la tension appliquée varie de 5kV à 8kV. On peut justifier ce comportement en regardant l'expression du coefficient d'ionisation effectif (relation (II.21)) qui montre que le coefficient d'ionisation effective ( $\alpha_{\text{eff}}$ ) varie proportionnellement avec le champ électrique qui est lié à la tension appliquée par l'équation de poisson:

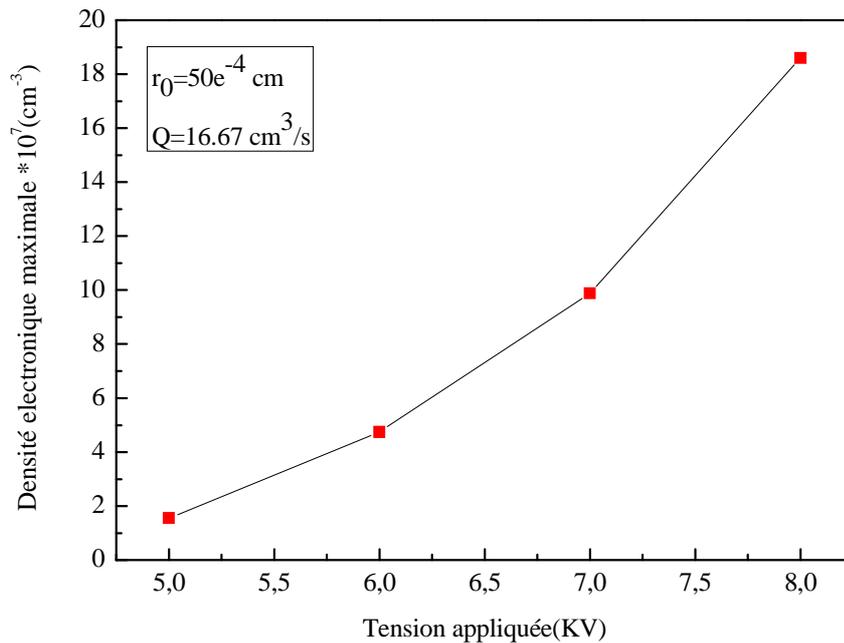
$$\nabla \cdot E = -\Delta V \quad (III.4)$$

Cette variation de coefficient d'ionisation effective influence directement sur la densité électronique par la relation (II.20).

En effet, l'augmentation du maximum de la densité d'électrons est linéairement dépendante de la tension appliquée. La figure (III.9) illustre l'effet de la tension appliquée sur la variation du maximum de la densité électronique. Lorsque la tension  $V$  augmente, le maximum de la densité électronique croît rapidement



**Figure III.8 :** Effet de la tension appliquée sur la distribution radiale de la densité électronique



**Figure III.9 :** Effet de la tension appliquée sur la variation de la densité électronique maximale

## 2. Effet du rayon

Maintenant, nous examinons l'effet du rayon du fil sur la variation radiale de la densité électronique, figure (III.10). On note que pour une meilleure visibilité de la distribution radiale de la densité électronique pour le cas  $r_0=20 \cdot 10^{-3}$  cm, nous avons multiplié les valeurs de la densité par 5 comme il est indiqué dans la figure ci-dessous. Lorsque le rayon du fil croît, la densité électronique diminue. Par exemple, le pic de la densité électronique passe de  $4,49 \cdot 10^8$  cm<sup>-3</sup> à  $7,61 \cdot 10^6$  cm<sup>-3</sup>, quand le rayon du fil varie de  $2,5 \cdot 10^{-3}$  cm à  $2 \cdot 10^{-2}$  cm. C.à.d. que lorsque le rayon du fil diminue 8 fois, le maximum de la densité électronique augmente 60 fois (figure (III.11)). Ce comportement est dû au fait que le coefficient d'ionisation effective ( $\alpha_{\text{eff}}$ ) est proportionnel au champ électrique. La variation du coefficient effectif d'ionisation influence directement sur la densité électronique.

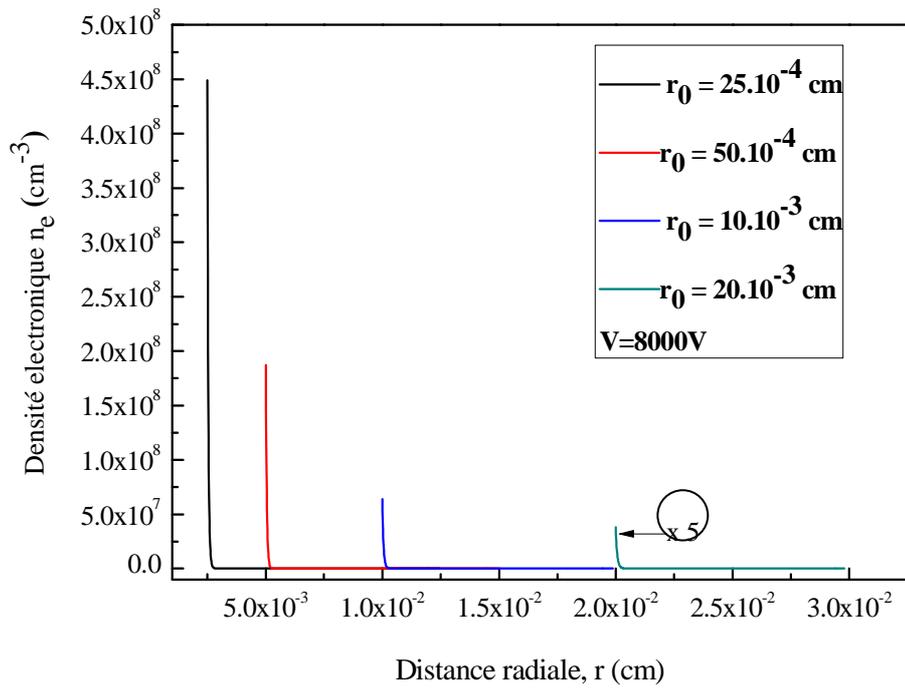


Figure III.10 : Effet du rayon du fil sur la distribution radiale de la densité électronique.

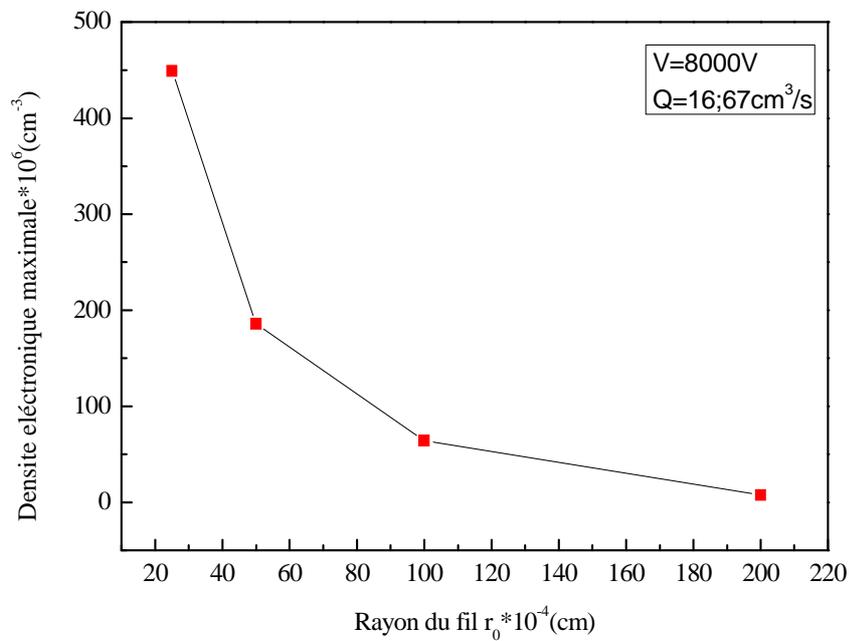


Figure III.11 : Effet du rayon du fil sur la variation de la densité électronique maximale

---

### III.6 Distribution des neutres

Dans cette partie nous allons présenter les distributions spatiales des espèces neutres générées par la décharge couronne positive. Le calcul a été réalisé pour une tension appliquée de 8000V, et un flux de gaz de  $16.67\text{cm}^3/\text{s}$ .

Pour expliquer le comportement de chaque espèce, nous avons tracé la distribution axiale et radiale des termes sources de production et/ou de destruction de chaque espèce. Nous les indiquant comme suit :

—————: Termes source de production (line continue)

-----: Termes sources de destruction (line discontinue)

Dans le tableau (III.2) est donné l'équation de chaque terme source ( $S_{Ri}$ ) ainsi que la réaction correspondante ( $Ri$ ) :

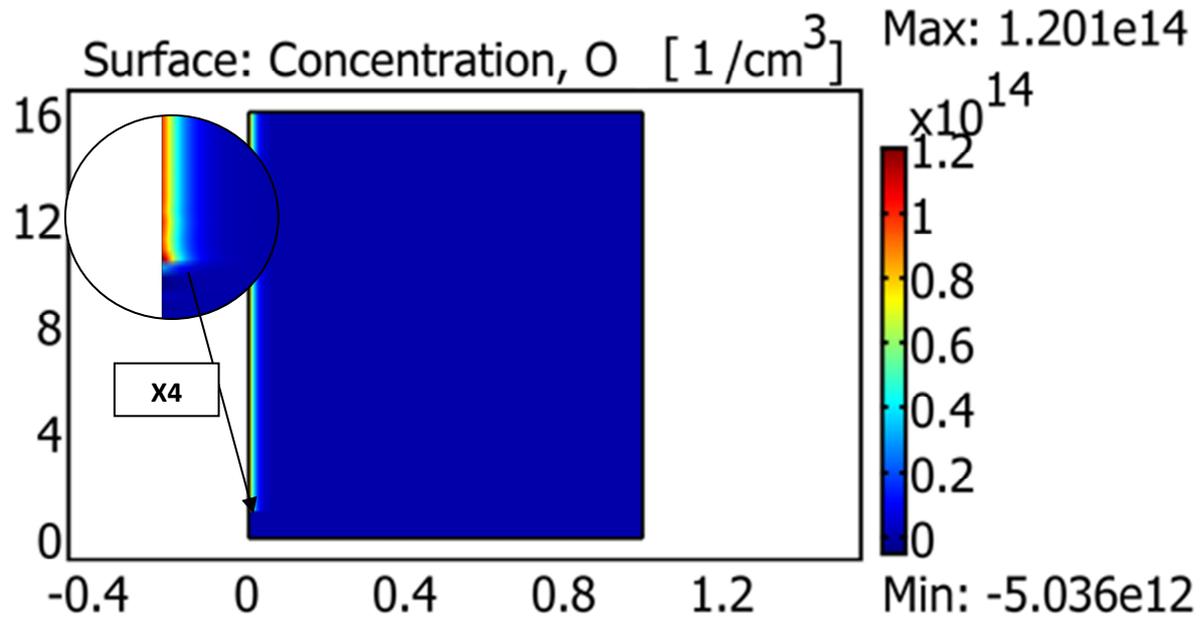
Notons que les réactions sont référées dans le tableau (II.1) du chapitre II

Termes sources	Equation	Réaction
S <sub>R1</sub>	$2 \cdot k_1 \cdot n_e \cdot O_2$	R1
S <sub>R2</sub>	$2 \cdot k_2 \cdot n_e \cdot N_2$	R2
S <sub>R3</sub>	$k_3 \cdot n_e \cdot O_3$	R3
S <sub>R4</sub>	$k_4 \cdot n_e \cdot O_2$	R4
S <sub>R5</sub>	$k_5 \cdot n_e \cdot N_2$	R5
S <sub>R6</sub>	$k_6 \cdot O \cdot O_2 \cdot O_2$	R6
S <sub>R7</sub>	$k_7 \cdot O \cdot O_2 \cdot N_2$	R7
S <sub>R8</sub>	$k_8 \cdot O \cdot O_3$	R8
S <sub>R9</sub>	$k_9 \cdot O \cdot NO \cdot N_2$	R9
S <sub>R10</sub>	$k_{10} \cdot O \cdot NO_2$	R10
S <sub>R11</sub>	$k_{11} \cdot O \cdot NO_3$	R11
S <sub>R12</sub>	$k_{12} \cdot O \cdot N_2O_5$	R12
S <sub>R13</sub>	$k_{13} \cdot N \cdot O_2$	R13
S <sub>R14</sub>	$k_{14} \cdot N \cdot O_3$	R14
S <sub>R15</sub>	$k_{15} \cdot N \cdot NO$	R15
S <sub>R16</sub>	$k_{16} \cdot N \cdot NO_2$	R16
S <sub>R17</sub>	$k_{17} \cdot NO \cdot O_3$	R17
S <sub>R18</sub>	$k_{18} \cdot NO \cdot NO_3$	R18
S <sub>R19</sub>	$k_{19} \cdot NO_2 \cdot O_3$	R19
S <sub>R20</sub>	$k_{20} \cdot NO_2 \cdot NO_3 \cdot N_2$	R20
S <sub>R21</sub>	$k_{21} \cdot N_2O_5 \cdot N_2$	R21
S <sub>R22</sub>	$k_{22} \cdot O_2 \cdot O_2$	R22
S <sub>R23</sub>	$2 \cdot k_{23} \cdot N_2 \cdot O_2$	R23
S <sub>R24</sub>	$k_{24} \cdot N_2 \cdot O_2$	R24

Tableau III.2 : Equations des termes sources

### III.6.1 Distribution spatiale de l'oxygène atomique (O)

La figure (III.12), illustre la distribution spatiale du monoxyde d'oxygène où on remarque une concentration importante juste aux alentours du fil (la région active).



*Figure III.12: Distribution spatiale de l'oxygène atomique(O) pour  $V=8000V$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$*

Ce comportement est dû au fait que l'oxygène suit la densité électronique qui est intense dans cette région et cela est conséquent des réactions de production (R5) et (R23) suivante :



Notons que la réaction (R1) joue un rôle secondaire voir figure (III.13b) contrairement où le gaz utilisé est l'oxygène pur.



Dans la région unipolaire la concentration de l'oxygène atomique est faible à cause de la consommation que subit cette molécule par les réactions principales (R6) et (R7) (dont la concentration de leurs termes sources est de l'ordre de  $10^{18}\text{cm}^{-3}$ )



Au voisinage du fil ( $r = 0.0052$  cm), la concentration axiale de l'oxygène atomique est presque constante (figure (III.13a)), elle est de l'ordre de  $10^{13} \text{ cm}^{-3}$ .

Pour expliquer la distribution spatiale de l'oxygène atomique nous allons faire un calcul approché. Considérant que l'oxygène atomique varie uniquement dans la direction axiale, donc son équation de continuité est :

$$\frac{\partial [\text{O}]}{\partial z} = k_{13} * [\text{N}] * [\text{O}_2] + k_{23} * [\text{N}_2^*] * [\text{O}_2] - ((k_6 * [\text{O}_2]^2 + k_7 * [\text{O}_2] * [\text{N}_2]) * [\text{O}]) \quad (\text{III.5})$$

On signale ici que nous avons pris uniquement les réactions dominantes, voir figure (III.13a)

Si on compare la somme des termes sources de productions «  $S_p$  » avec celle de destruction «  $S_d$  » on trouve que:

$$S_p = k_{13} * [\text{N}] * [\text{O}_2] + k_{23} * [\text{N}_2^*] * [\text{O}_2] \approx 5.610^{18} \quad (\text{III.6})$$

$$S_d = ((k_6 * [\text{O}_2]^2 + k_7 * [\text{O}_2] * [\text{N}_2]) * [\text{O}]) \approx 5.5810^{18} \quad (\text{III.7})$$

Donc la différence entre  $S_p$  et  $S_d$  est presque nulle, c.à.d:

$$\frac{\partial [\text{O}]}{\partial z} \approx 0 \Rightarrow [\text{O}] \approx \text{constante} \quad (\text{III.8})$$

Donc la concentration de l'oxygène atomique est constante à cause de la différence entre  $S_p$  et  $S_d$  qui est presque nulle.

1. Distribution axiale

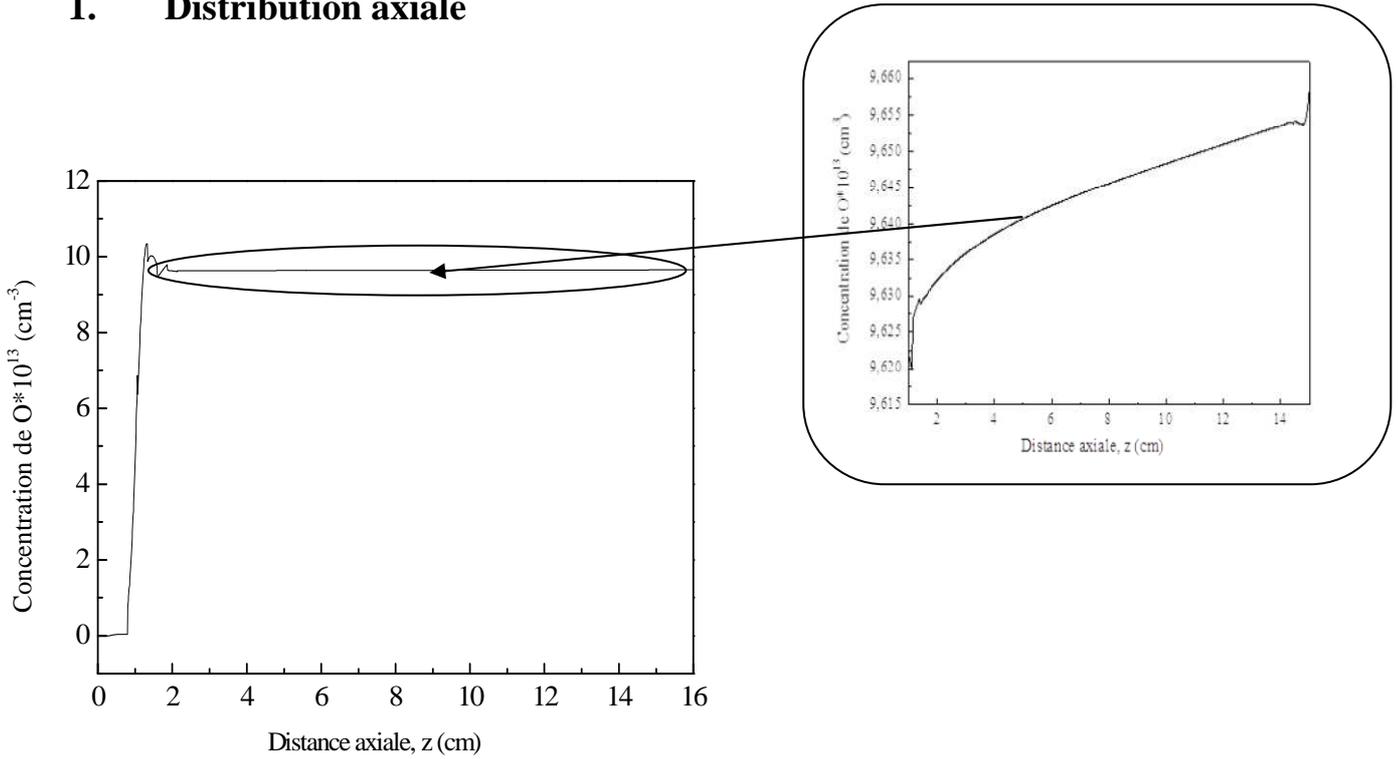


Figure III.13a : Distribution axiale de l'oxygène atomique(O)( $r=0.0052\text{cm}$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  
 $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

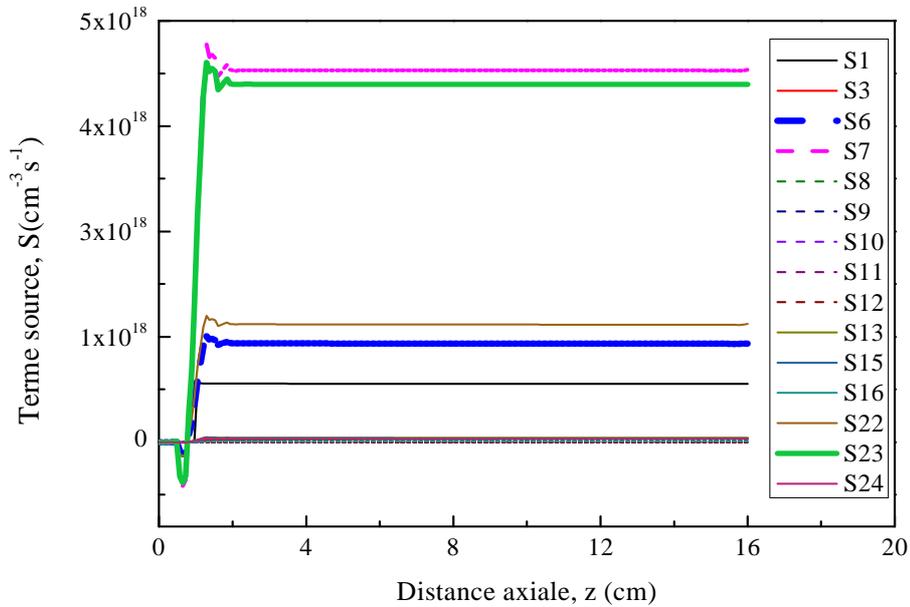
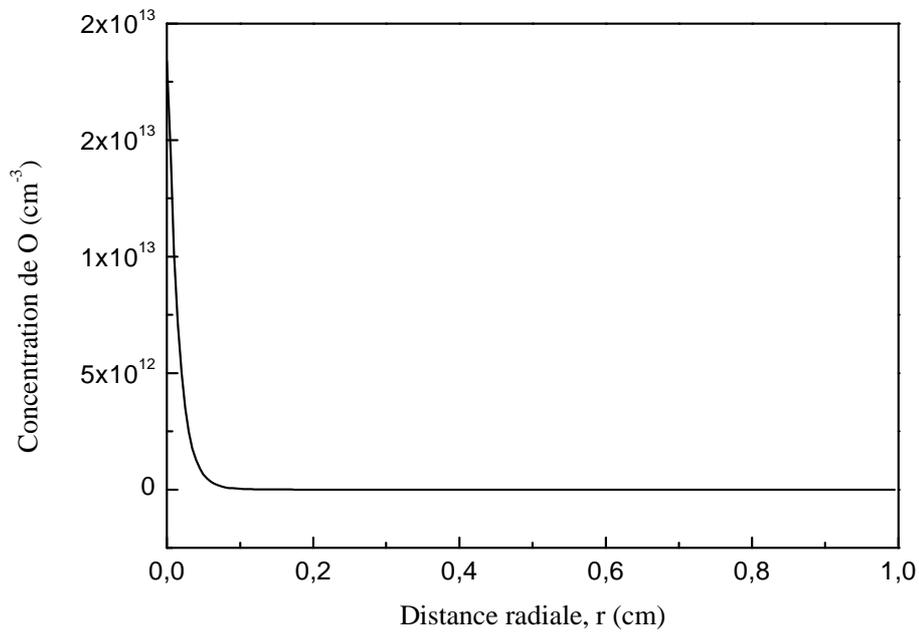
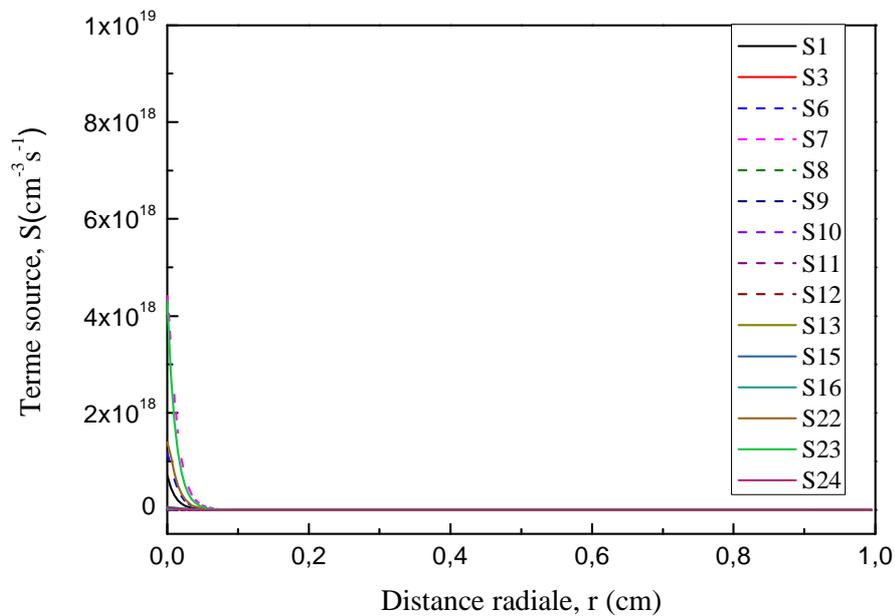


Figure III.13b : Distribution axiale des termes sources de l'oxygène atomique(O)  
( $r=0.0052\text{cm}$  pour  $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$ )

## 2. Distribution radiale



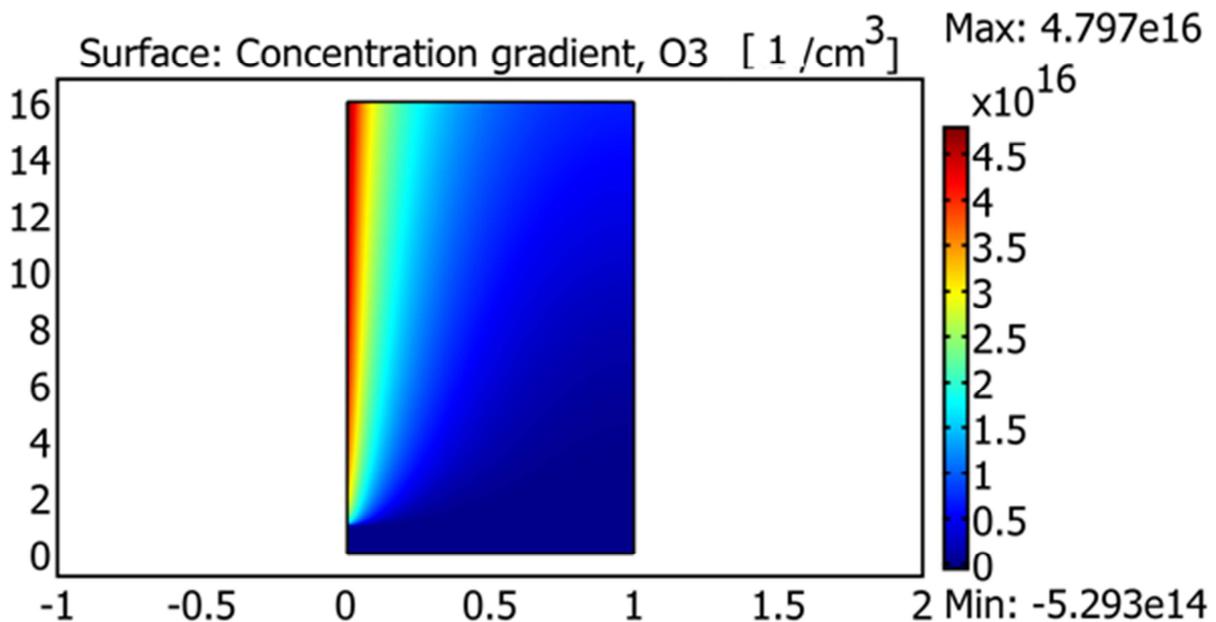
**Figure III.14a :** Distribution radiale de l'oxygène atomique ( $O$ ) ( $z=11$  cm) pour  $V=8000V$ ,  
 $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$



**Figure III.14b :** Distribution radiale des termes sources de l'oxygène atomique ( $z=11$  cm)  
pour  $V=8000V$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

### III.6.2 Distribution spatiale de l'ozone(O<sub>3</sub>)

La figure (III.15) montre la distribution spatiale de l'ozone ou nous remarquons qu'il est formé principalement près du fil et qu'au fur et à mesure que le gaz se déplace de l'entrée vers la sortie du cylindre, l'ozone augmente dans les deux directions axiale et radiale. La présence de l'ozone dans la région de dérive et son augmentation axiale et radiale (figure III.16a et III.17a.) est due à la dominance de la diffusion par rapport aux réactions chimiques dans cette région.



**Figure III.15 :** Distribution spatiale de l'ozone pour  $V=8000V$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

Pour expliquer la croissance axiale de l'ozone (au voisinage du fil) on se réfère à la figure (III.16b) et (III.17b) qui indique que la réaction de production (R7) est dominante.



Notons que dans cette réaction la concentration de l'oxygène et celle de l'azote sont presque constante, donc la variation de la concentration de l'ozone dans cette région est presque linéaire :

$$\frac{\partial[\text{O}_3]}{\partial z} \approx \text{cst} \Rightarrow [\text{O}_3] \approx \text{cst} \cdot z \quad (\text{III.9})$$

1. Distribution axiale

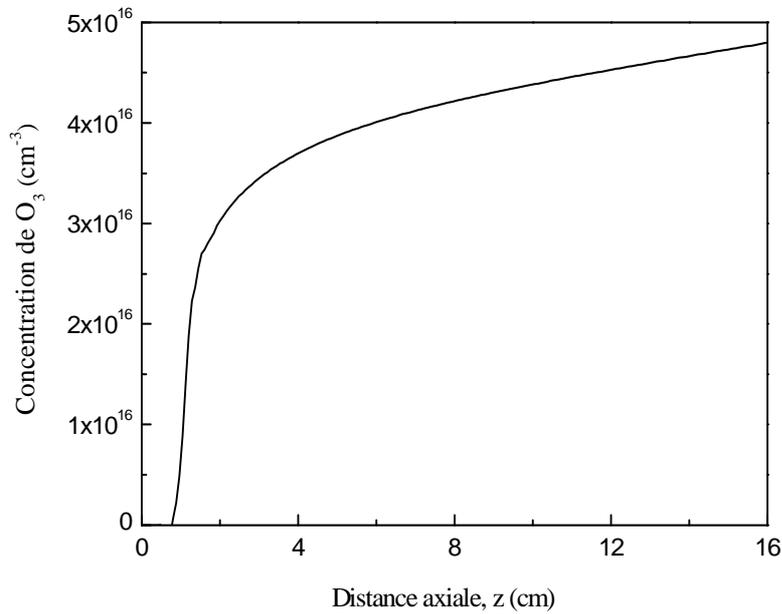


Figure III.16a : Distribution axiale de l'ozone( $O_3$ ) ( $r=0.0052\text{cm}$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  
 $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

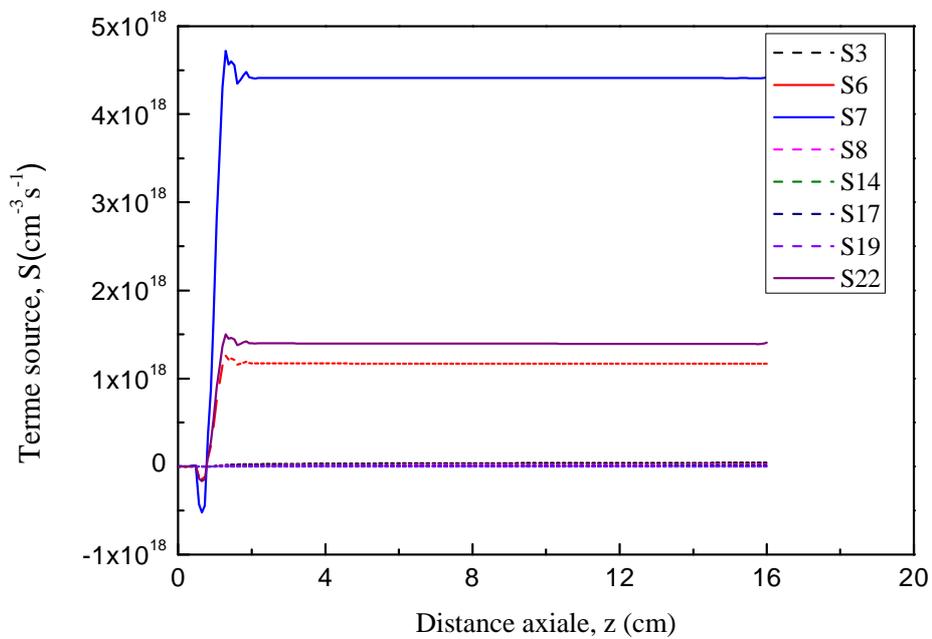
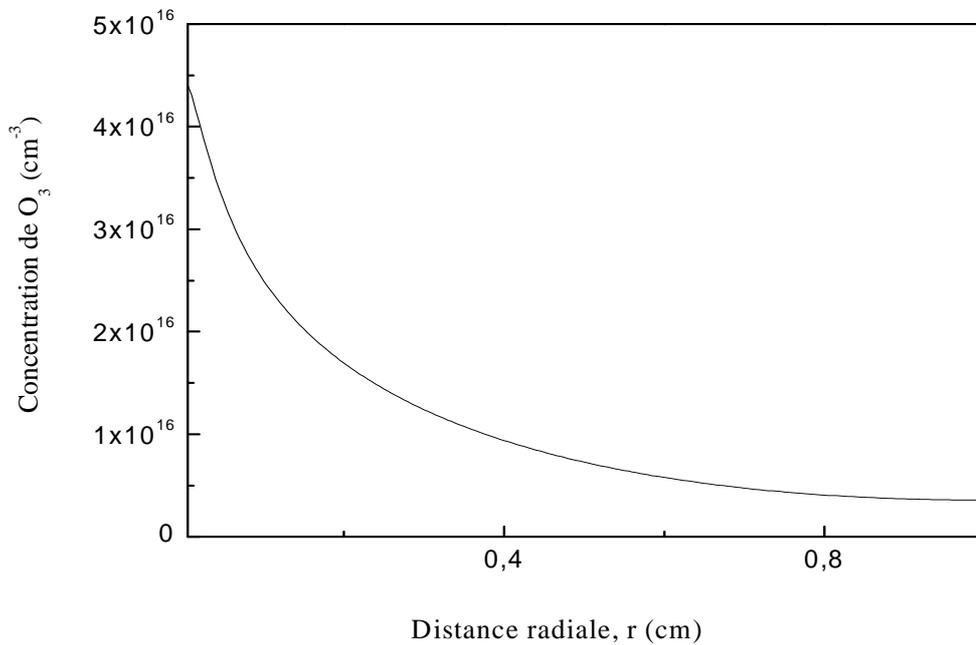
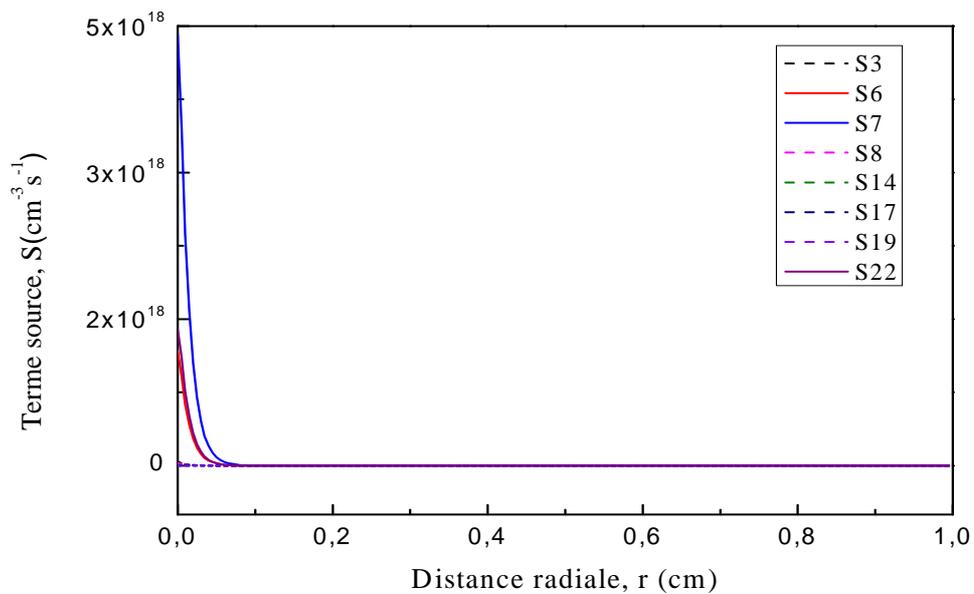


Figure III.16b : Distribution axiale des termes sources de l'ozone( $O_3$ ) ( $r=0.0052\text{cm}$ ) pour  
 $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

## 2. Distribution radiale



**Figure III.17a:** Distribution radiale de l'Ozone ( $O_3$ ) ( $z=11$  cm) pour  $V=8000$  V,  $Q=16.67 \text{ cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50 \mu\text{m}$



**Figure III.17b:** Distribution radiale des termes sources de l'ozone ( $O_3$ ) ( $z=11$  cm) pour  $V=8000$  V,  $Q=16.67 \text{ cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50 \mu\text{m}$

### III.6.3 Distribution spatiale de l'azote (N)

La figure (III.18) donne la distribution spatiale de l'azote, nous constatons qu'il n'y a qu'une variation radiale de l'espèce (Axialement elle est presque constante).

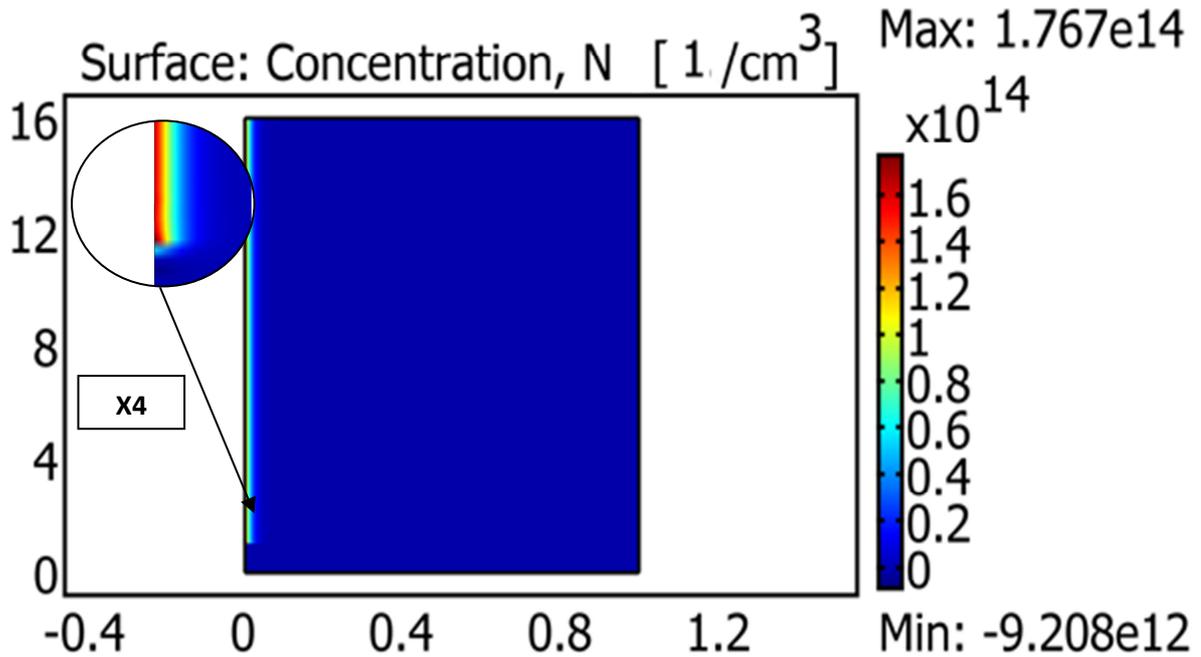


Figure III.18: Distribution spatiale de l'azote (N) pour  $V=8000V$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

Cette variation est aussi montrée dans la figure (III.20a) où on voit que dans la région active de la décharge électrique les atomes d'azote sont principalement concentrés et simulable à la densité électronique au voisinage du fil, ceci est justifier si on regarde la réaction de production de l'azote (R2)



La variation axiale de la densité de l'azote est presque constante et elle est de l'ordre de  $1.6 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  (figure (III.19a)). Pour comprendre la variation axiale de l'azote nous allons simplifier l'équation de continuité de l'azote comme suit :

$$\frac{\partial [N]}{\partial z} = 2 \cdot k_2 \cdot n_e \cdot [N_2] - ((k_{13} \cdot [O_2] + k_{14} \cdot [O_3] + k_{15} \cdot [NO] + k_{16} \cdot [NO_2]) \cdot [N]) \tag{III.10}$$

On pose  $C_1 = 2 \cdot k_2 \cdot n_e \cdot [N_2]$  et  $C_2 = (k_{13} \cdot [O_2] + k_{14} \cdot [O_3] + k_{15} \cdot [NO] + k_{16} \cdot [NO_2])$

D'après la figure (III.19b), la variation des termes sources  $S_{R1}$   $S_{R13}$   $S_{R14}$   $S_{R15}$  et  $S_{R16}$  est presque nulle le long de la direction axiale donc  $C_1$  et  $C_2$  sont presque constants. On remplaçant  $C_1$  et  $C_2$  dans l'équation (III.10) on obtient :

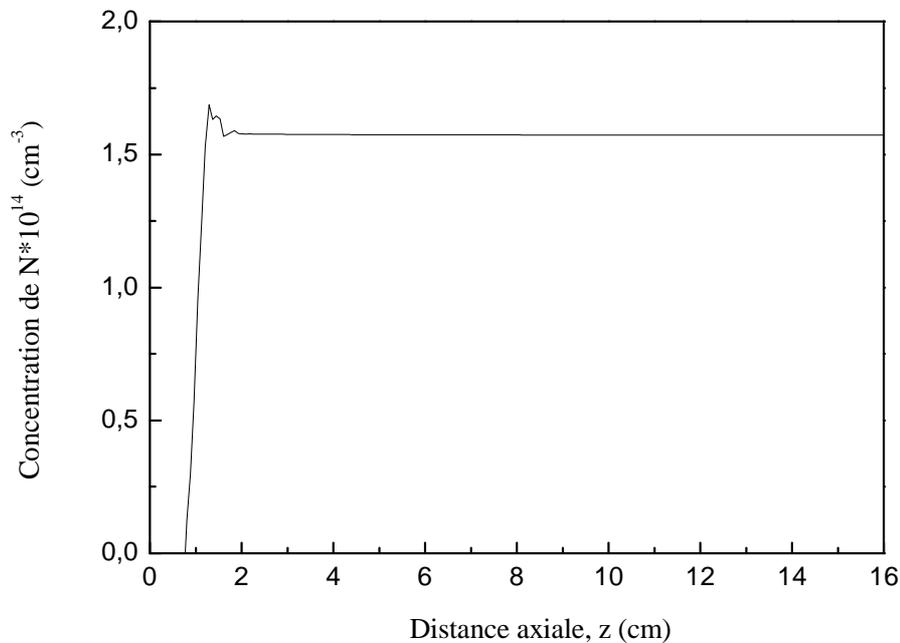
$$\frac{\partial[N]}{\partial z} = C_1 - C_2[N] \quad (\text{III.11})$$

D'après cette relation quand le terme  $\frac{\partial[N]}{\partial z}$  s'approche de zéro, la concentration de l'azote atomique s'approche de  $1.6 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ .

Les réactions de destruction d'azote sont:



## 1. Distribution axiale



**Figure III.19a** : Distribution axiale de l'azote(N)( $r=0.0052\text{cm}$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  
 $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

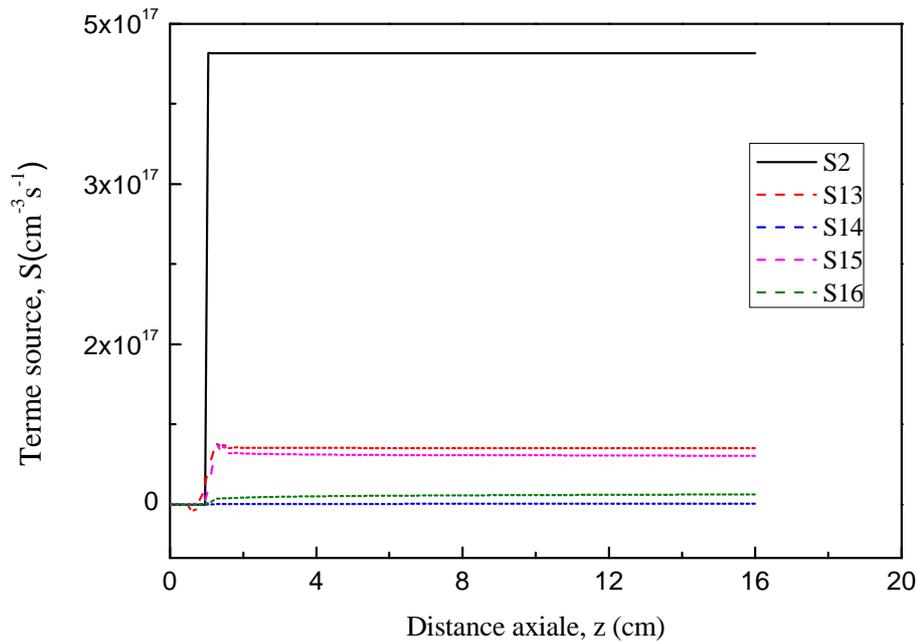


Figure III.19b : Distribution axiale des termes sources de l'azote( $N$ )( $r=0.0052\text{cm}$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

## 2. Distribution radiale

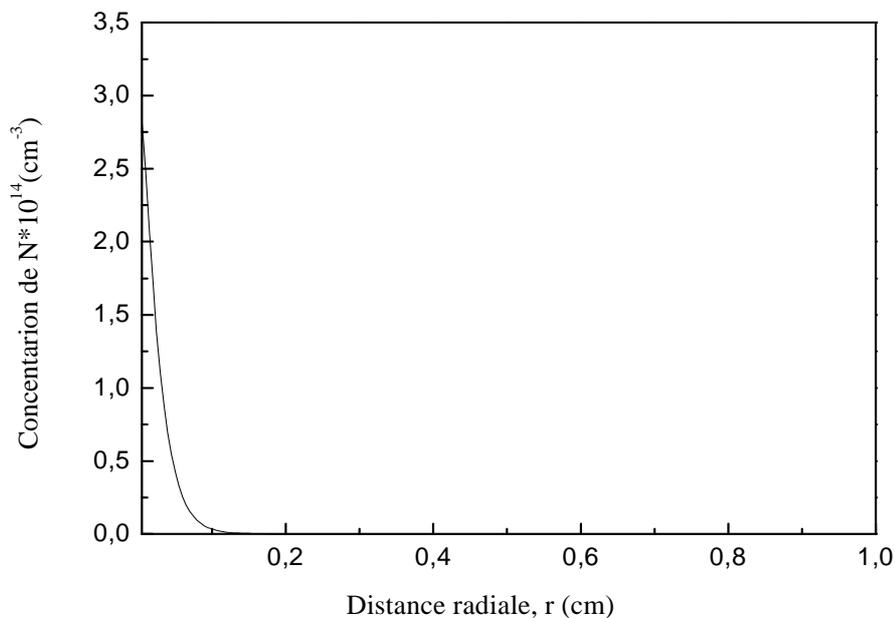
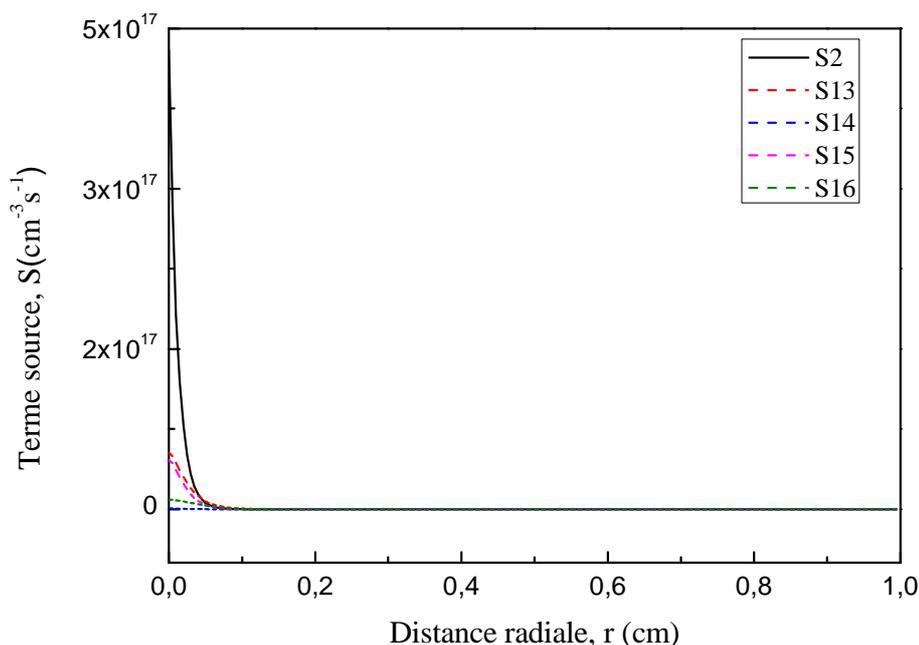


Figure III.20a : Distribution radiale de l'azote( $N$ ) ( $z=11\text{cm}$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$



**Figure III.20b** : Distribution radiale des termes sources de l'azote(N) ( $z=11\text{cm}$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

### III.6.4 Distribution spatiale de l'oxyde d'azote (NO)

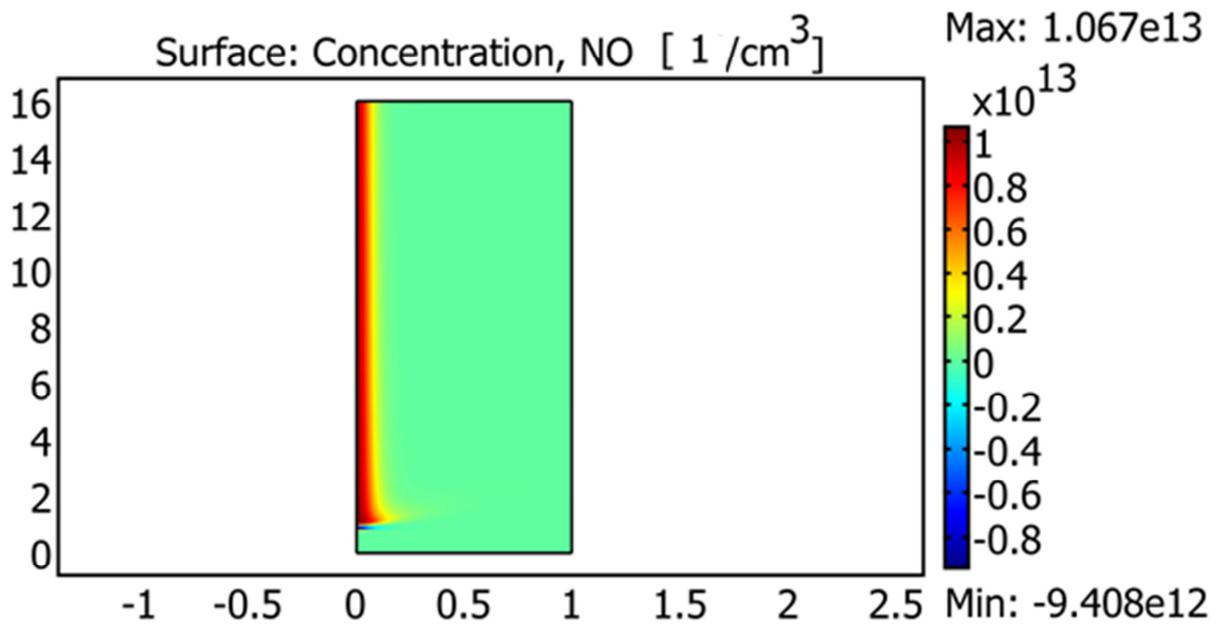
Dans tout l'espace du cylindre, la concentration de l'oxyde d'azote est à sa valeur maximale ( $\approx 10^{13}\text{cm}^{-3}$ ) au voisinage du fil et chute vers zéro en s'éloignant dans la direction radiale comme il est illustré par les figures (III.21-III.23). La distribution de l'oxyde d'azote est similaire à celles des radicaux N et O, ce comportement est expliqué par le fait qu'au voisinage du fil l'oxyde d'azote est créé par les radicaux N et O à travers les réactions:



En plus l'oxyde d'azote n'a pas suffisamment de temps pour diffuser loin du fil (région de dérive) à cause la rapidité de la réaction de destruction :

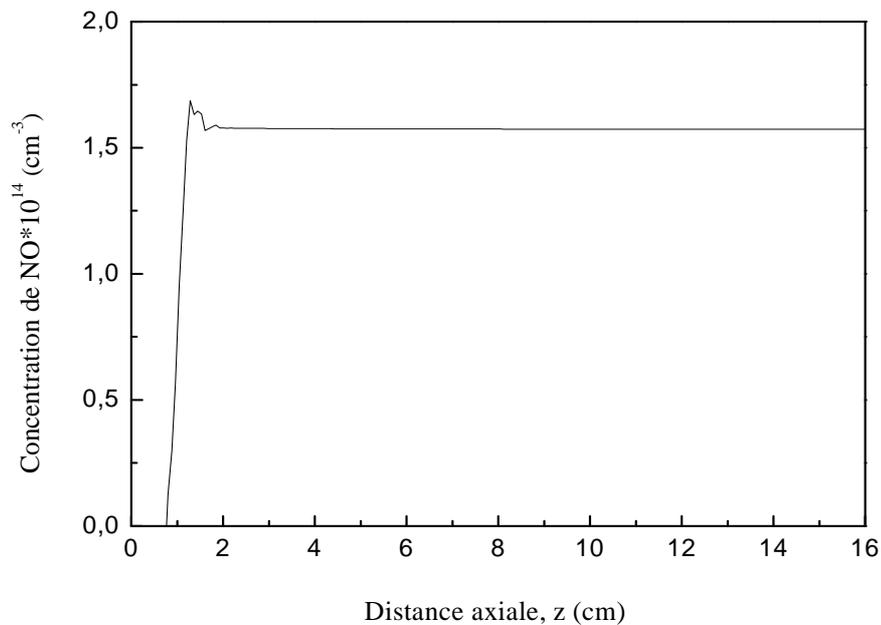


La concentration de l'oxyde d'azote n'augmente pas dans la direction axiale parce que la destruction par les réactions (R15) et (R17) annule la production des réactions (R10) et (R13).

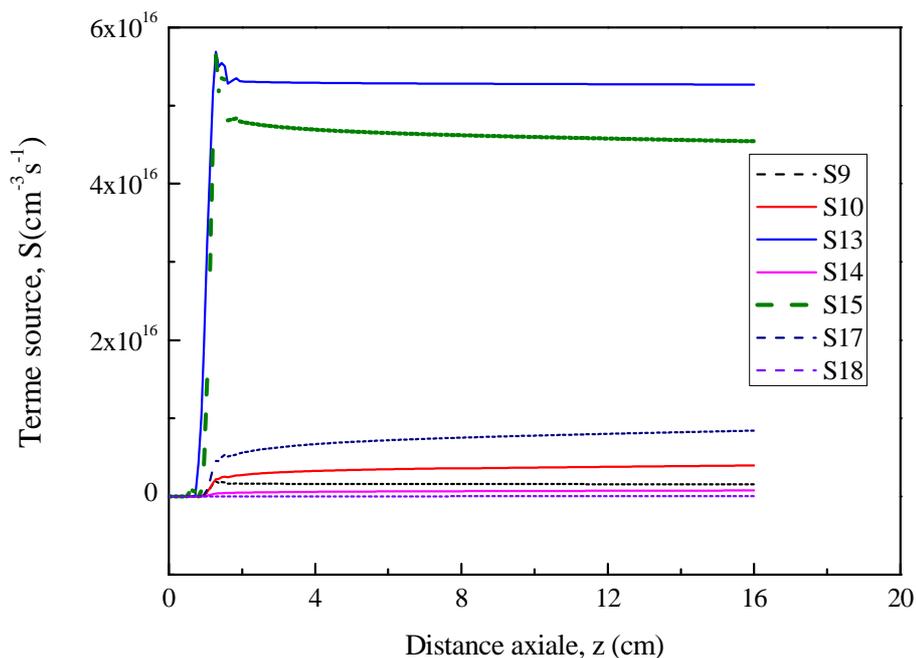


**Figure III.21:** Distribution spatiale de l'oxyde d'azote (NO) pour  $V=8000V$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

### 1. Distribution axiale

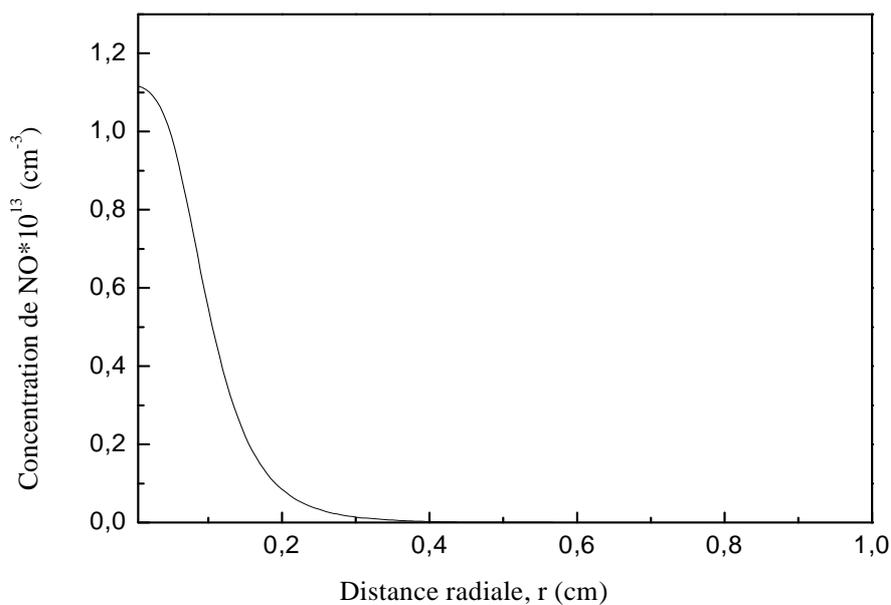


**Figure III.22a:** Distribution axiale de l'Oxyde d'azote (NO) ( $r=0.0052\text{cm}$ ) pour  $V=8000V$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$



**Figure III.22b:** Distribution axiale des termes sources de l'Oxyde d'azote (NO)  
( $r=0.0052\text{cm}$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

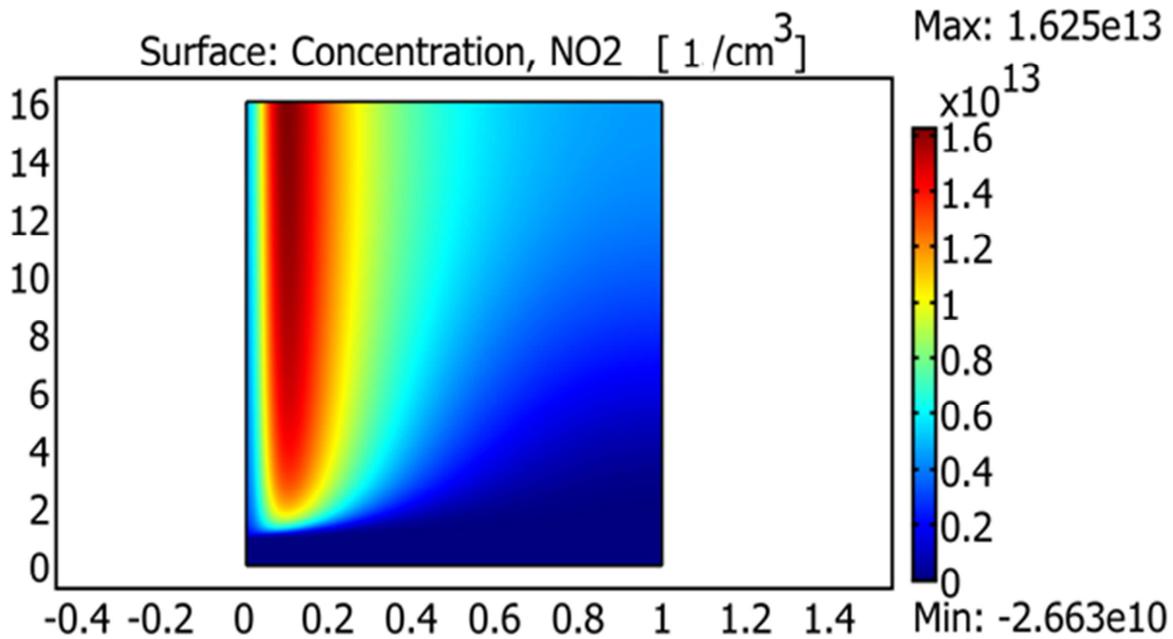
### 1. Distribution radiale



**Figure III.23a :** Distribution radiale de l'Oxyde d'azote (NO)( $z=11\text{cm}$ ) pour  
 $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

### III.6.5 Distribution spatiale du dioxyde d'azote (NO<sub>2</sub>)

La concentration du dioxyde d'azote augmente dans les deux directions axiale et radiale (figure (III.24)), sauf au voisinage du fil sa concentration est faible.



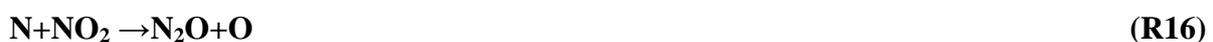
**Figure III.24:** Distribution spatiale du Dioxyde d'azote (NO<sub>2</sub>) pour  $V=8000V$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

Au voisinage de la région d'ionisation, aux alentours de la distance radiale  $r=0.09\text{cm}$ , le dioxyde d'azote est produit principalement par la réaction R17 (figure (III.25c)) :



en suite il diffuse dans les deux directions (radiale et axiale). On note que le terme source global de toutes les réactions est presque nul dans la région de dérive (voir figure(III.26 b)) ce qui argumente l'hypothèse de la diffusion du NO<sub>2</sub> dans cette région.

Juste près du fil à une distance radiale  $r = 0.09\text{ cm}$ , la densité du NO<sub>2</sub> est maximale, ensuite elle décroît en s'approchant vers le fil. Cette décroissance est expliquée par la présence de l'azote atomique près du fil qui détruit la molécule NO<sub>2</sub> via la réaction (R16) ( Voir figure(III.25b) et figure(III.26b)) :



1. Distribution axiale

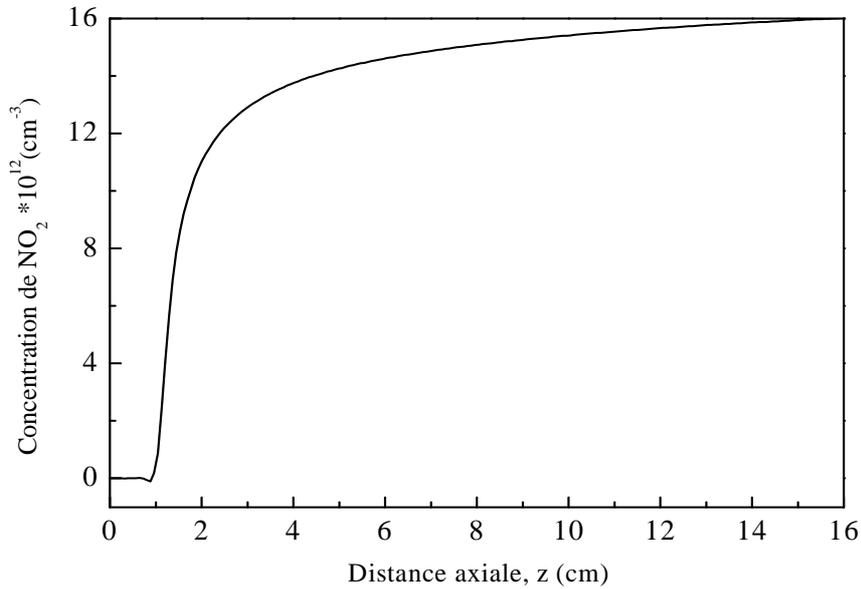


Figure III.25a : Distribution axiale du Dioxyde d'azote ( $\text{NO}_2$ ) ( $r=0.09 \text{ cm}$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

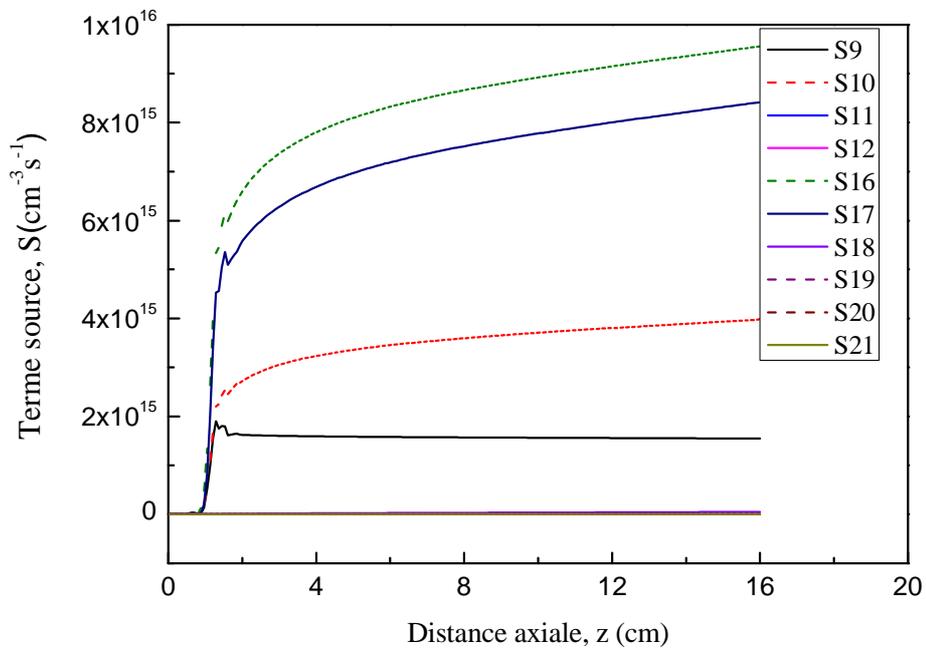


Figure III.25b : Distribution axiale des termes sources du Dioxyde d'azote ( $\text{NO}_2$ ) ( $r=0.0052\text{cm}$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

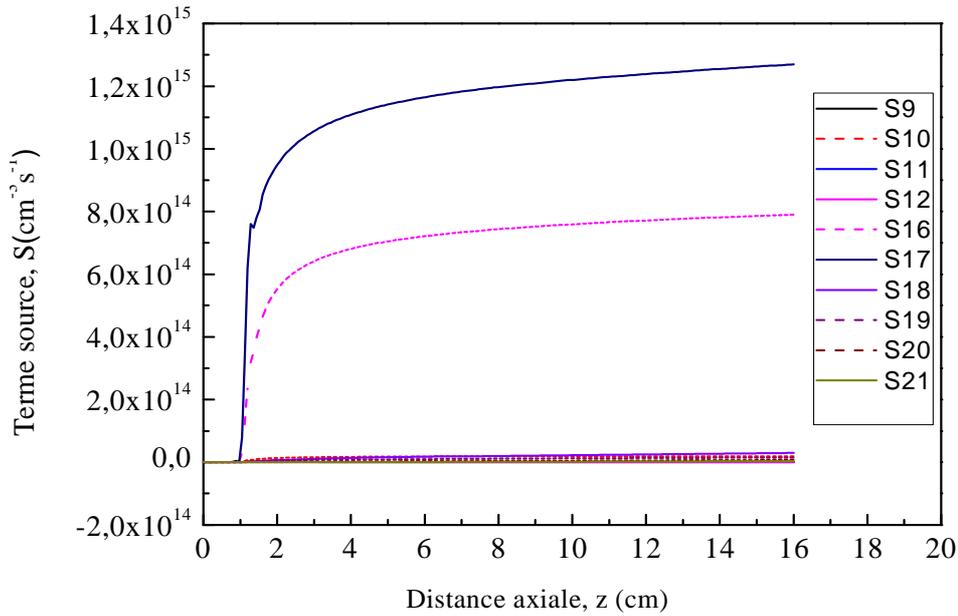


Figure III.25c: Distribution axiale des termes sources du Dioxyde d'azote ( $NO_2$ ) ( $r=0.09\text{cm}$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

1. Distribution radiale

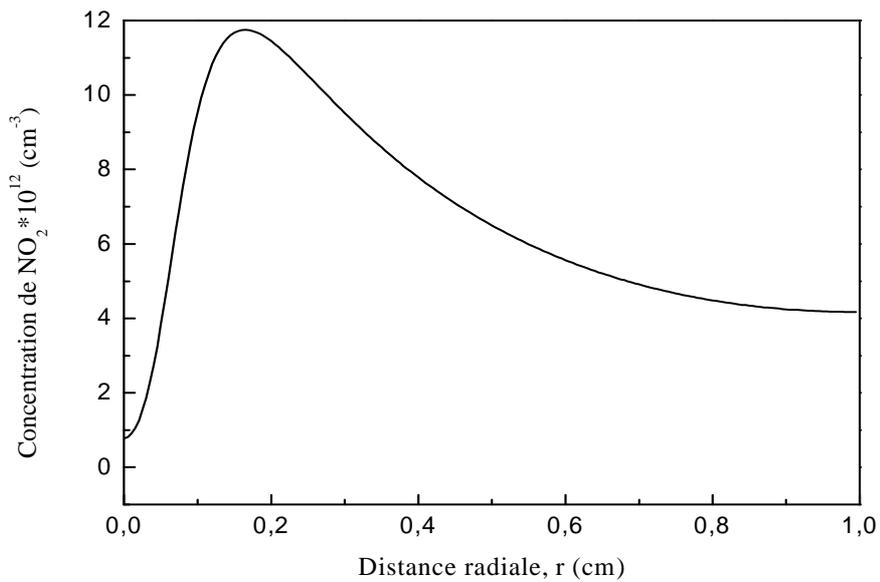
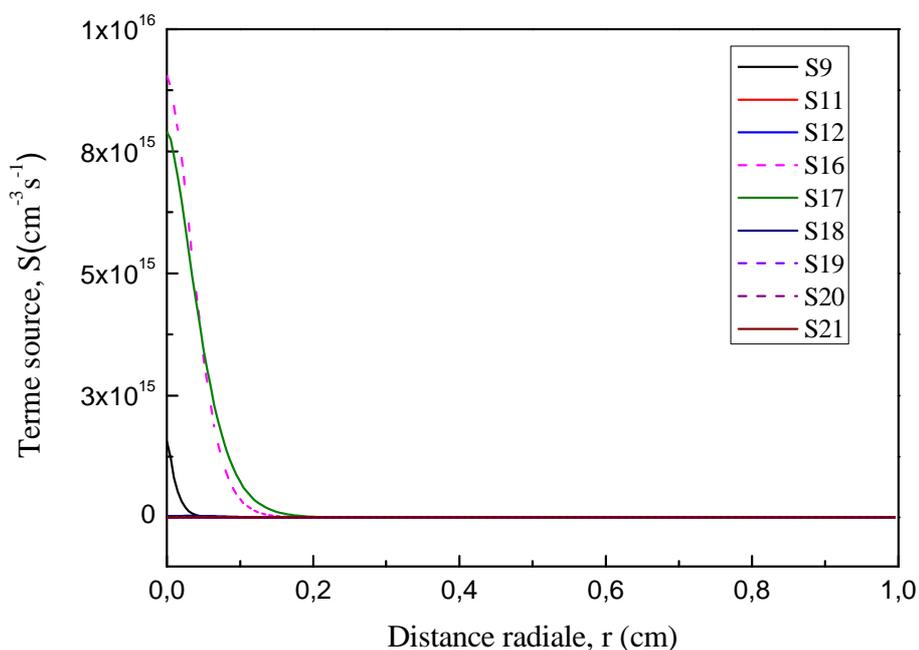


Figure III.26a : Distribution radiale du Dioxyde d'azote ( $NO_2$ ) ( $r=0.09\text{ cm}$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$



**Figure III.26b** : Distribution radiale des termes sources du Dioxyde d'azote ( $\text{NO}_2$ ) ( $r=0.09$  cm) pour  $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

### III.6.6 Distribution spatiale du nitrate ( $\text{NO}_3$ )

La distribution spatiale du nitrate est présentée sur la figure( III-27).Elle est similaire à celle du dioxyde d'azote, c.à.d. la concentration du nitrate augmente dans les deux directions axiale et radiale. Donc la valeur maximale de la concentration du nitrate est de l'ordre de  $4 \cdot 10^{11} \text{cm}^{-3}$  à la sortie du gaz du cylindre.

Le nitrate est produit surtout par l'ozone (figure (III.28b)) à travers la réaction (R19):



Et détruit essentiellement par les réactions (R18) et (R20)



Au voisinage du fil, la concentration du nitrate est faible parce que dans cette zone la concentration d'oxyde d'azote est importante, ce qui cause sa destruction via la réaction (R18) (figure (III.29b)).

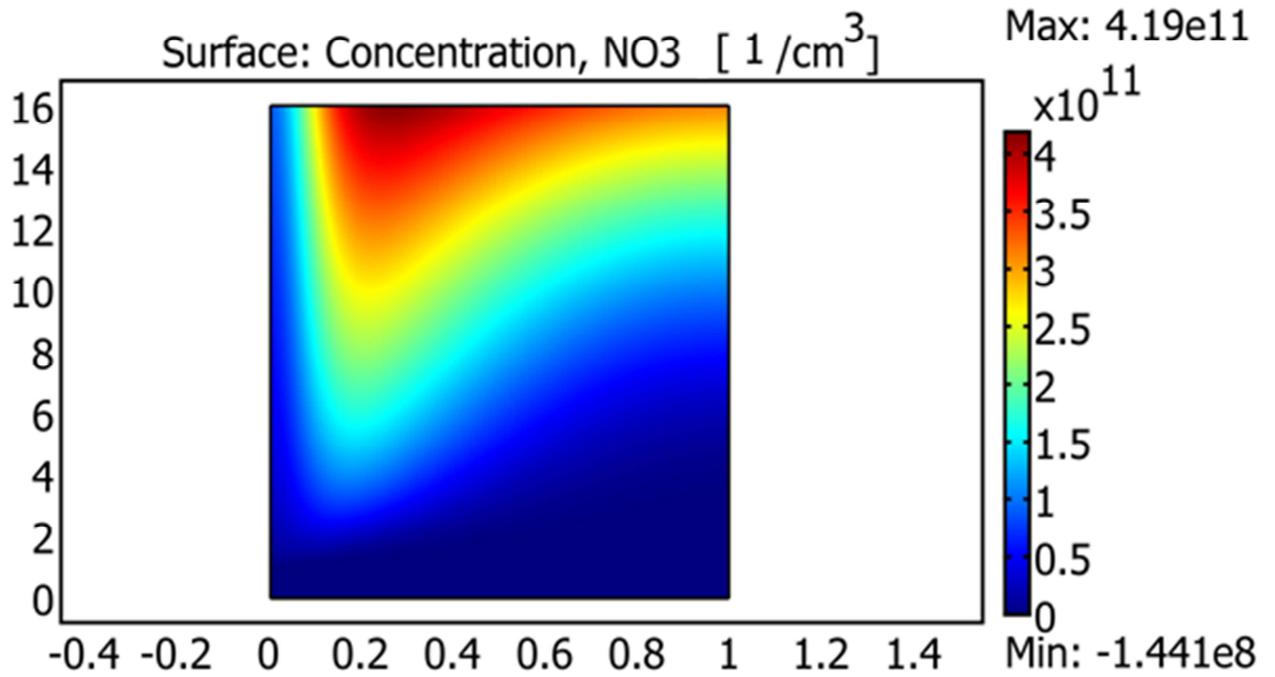


Figure III.27 : Distribution spatiale du Nitrate(NO<sub>3</sub>) pour  $V=8000V$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

### 1. Distribution axiale

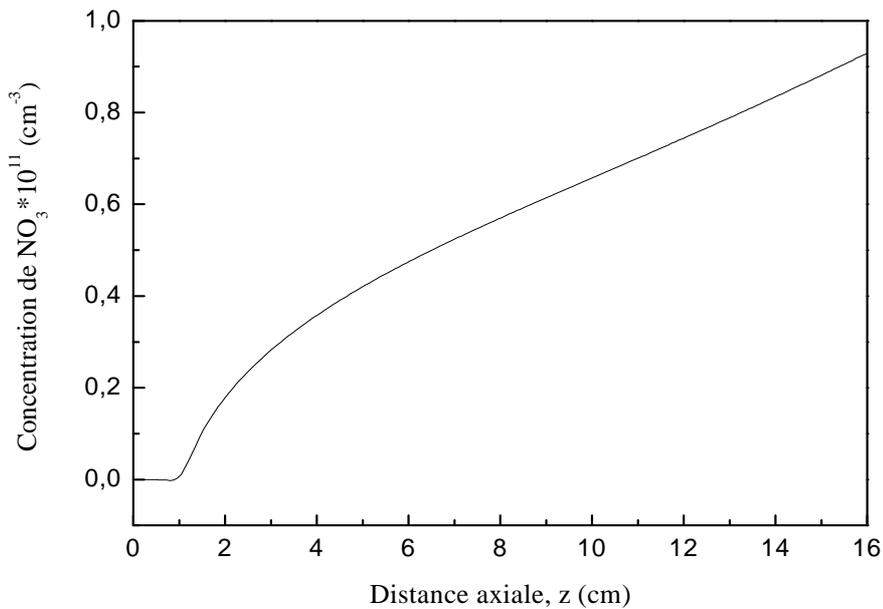
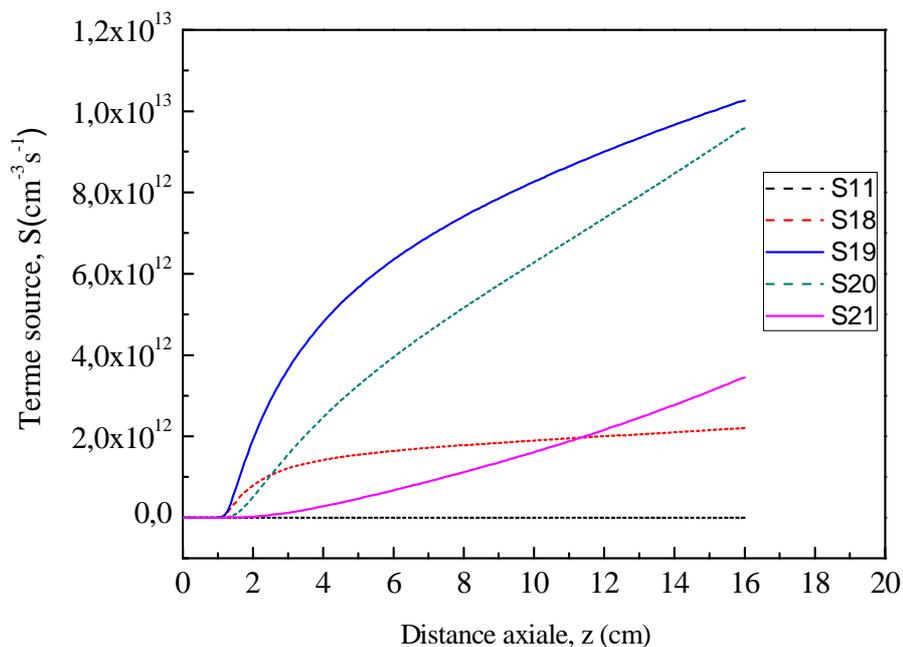
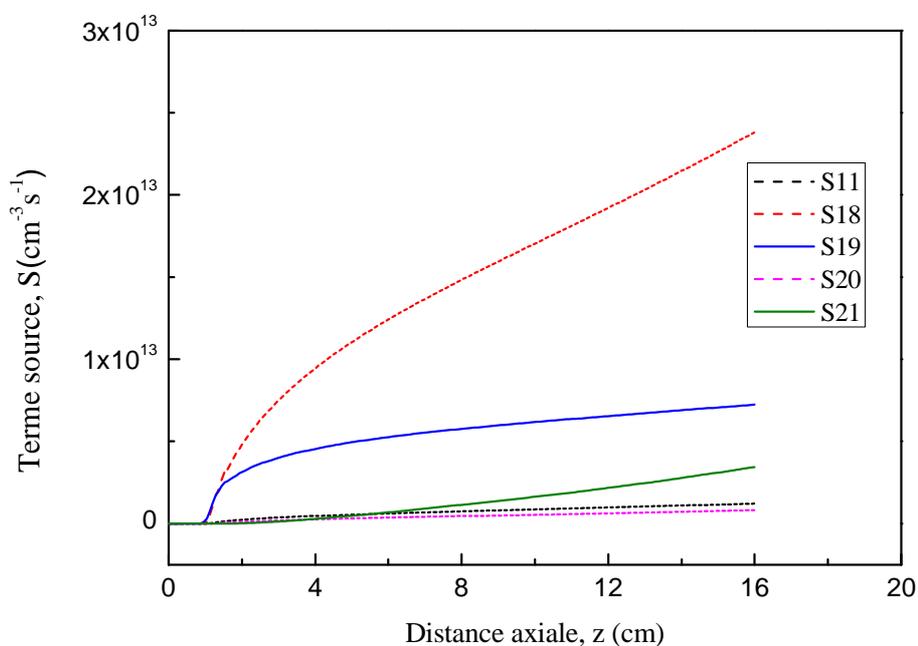


Figure III.28a : Distribution axiale du Nitrate (NO<sub>3</sub>)( $r=0.16\text{cm}$ ) pour  $V=8000V$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$



**Figure III.28b:** Distribution axiale des termes sources du Nitrate ( $\text{NO}_3$ ) ( $r=0.16\text{cm}$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$



**Figure III.28c:** Distribution axiale des termes sources du Nitrate ( $\text{NO}_3$ ) ( $r=0.0052\text{cm}$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

## 2. Distribution radiale

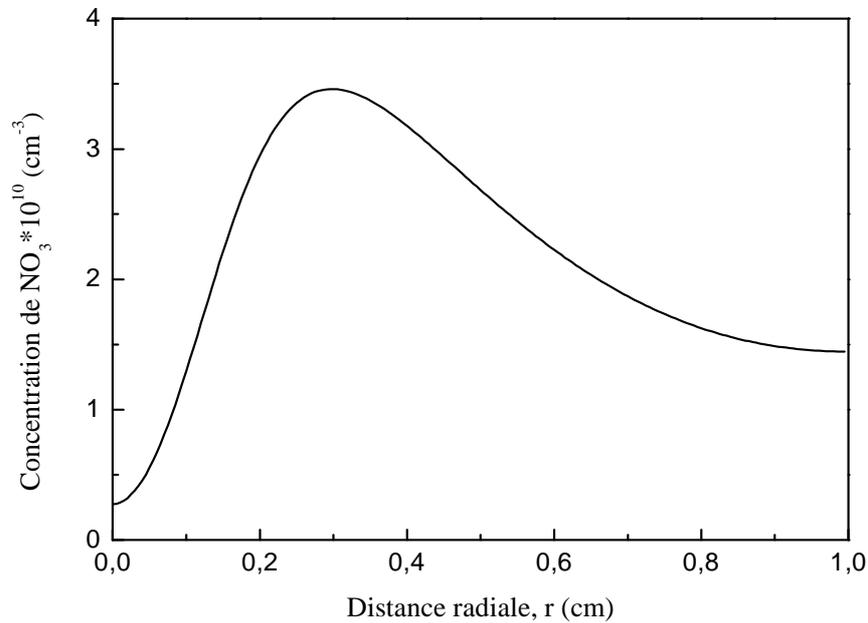


Figure III.29a: Distribution radiale de la Nitrate ( $\text{NO}_3$ ) ( $z=11\text{cm}$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  
 $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

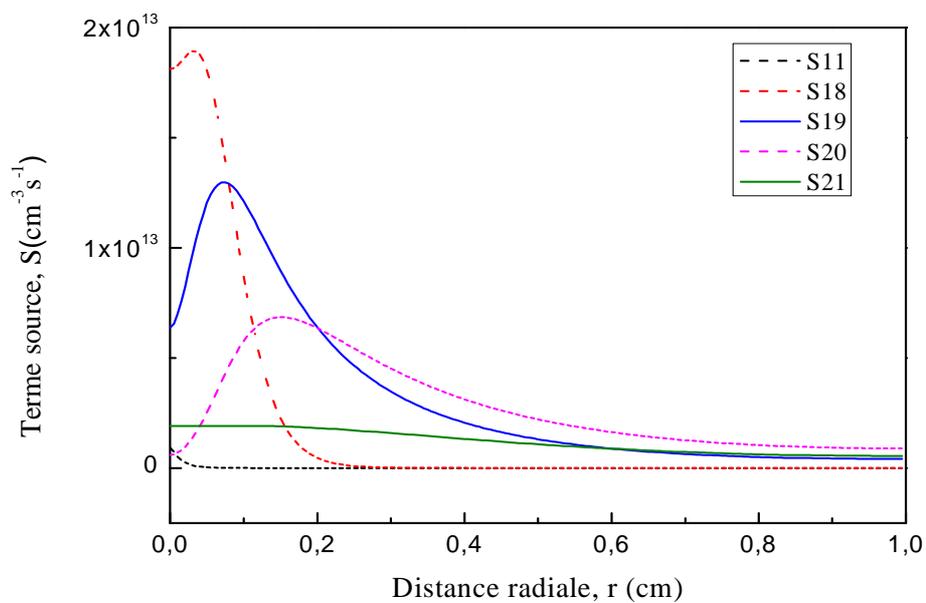
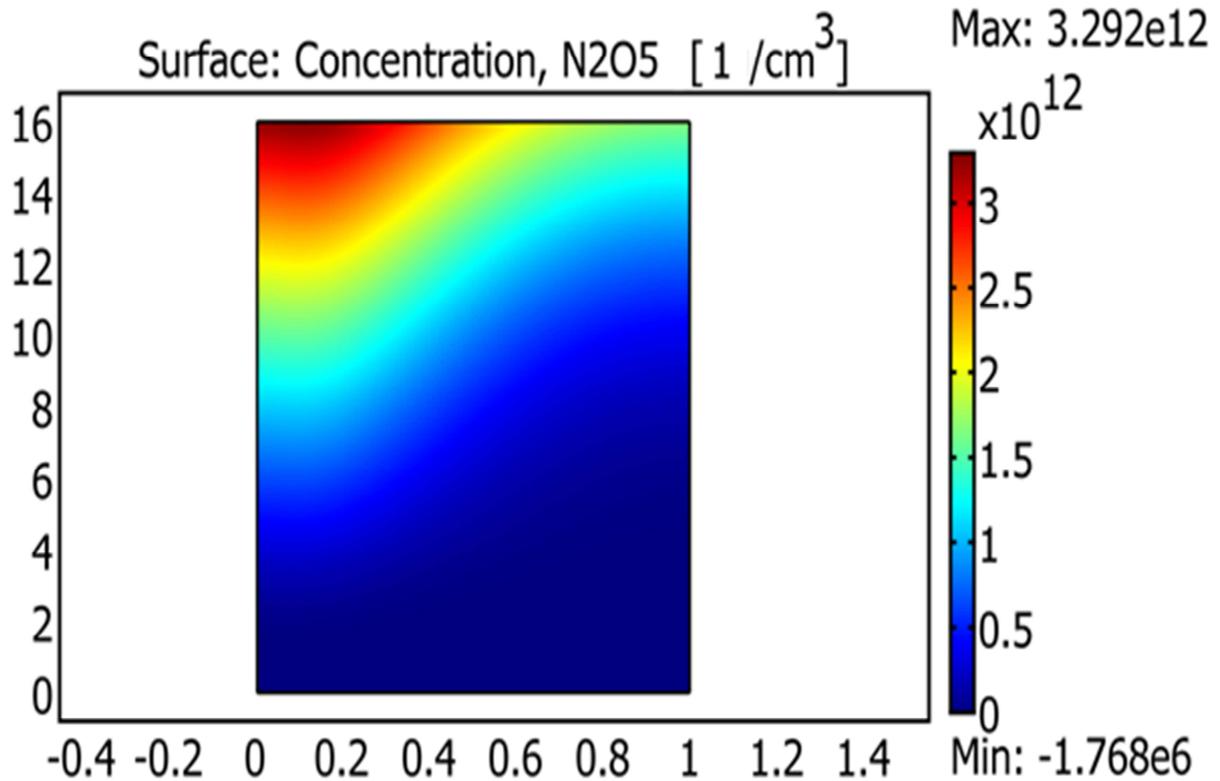


Figure III.29b : Distribution radiale de la Nitrate ( $\text{NO}_3$ ) ( $z=11\text{cm}$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  
 $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

### III.6.7 Distribution spatiale du pentoxyde d'azote ( $N_2O_5$ )

La figure (III.30) présente la distribution spatiale du pentoxyde d'azote. Nous remarquons que le comportement de cette espèce est similaire aux deux espèces  $NO_3$  et  $NO_2$ .

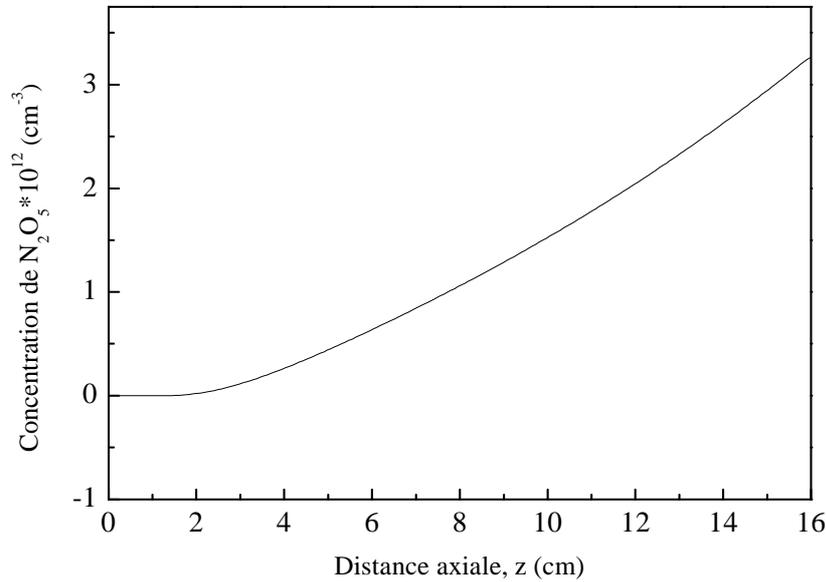


*Figure III.30 : Distribution spatiale du Pentoxyde d'azote  $N_2O_5$  pour  $V=8000V$ ,  
 $Q=16.67cm^3/s$  et  $r_0=50\mu m$*

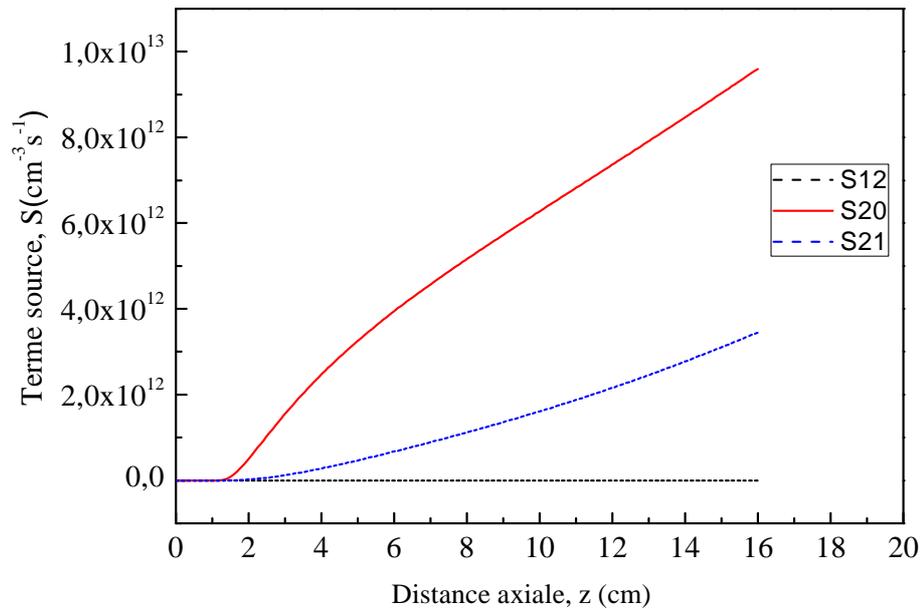
Ce comportement est justifié par la dominance de la réaction de production (R20) indiquée par les figures (III.31b) et (III.32b)



## 1. Distribution axiale



**Figure III.31a :** Distribution axiale du Pentoxyde d'azote  $N_2O_5(r=0.16\text{cm})$  pour  $V=8000\text{V}$ ,  
 $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$



**Figure. III.31b :** Distribution axiale des termes sources du Pentoxyde d'azote  
 $N_2O_5(r=0.16\text{cm})$  pour  $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

## 2. Distribution radiale

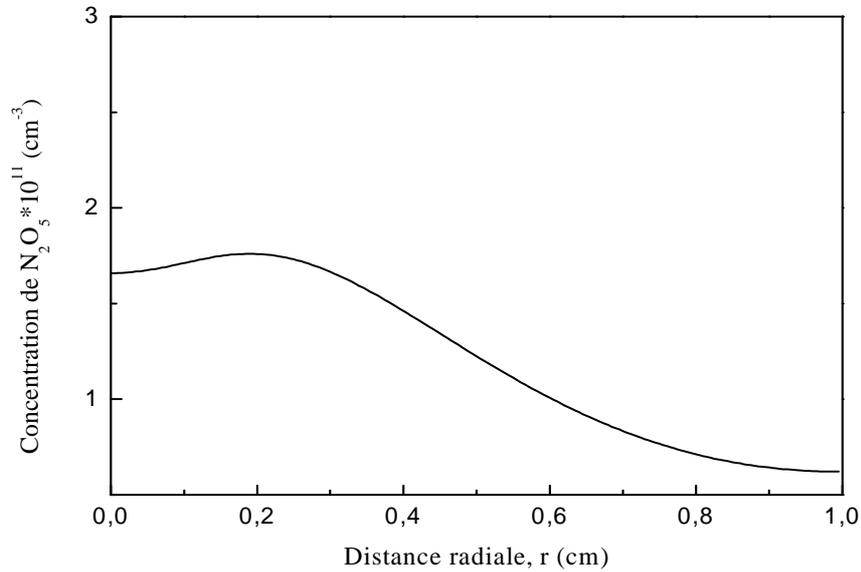


Figure III.32a : Distribution radiale du Pentoxyde d'azote  $N_2O_5$  ( $z=11\text{cm}$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  
 $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

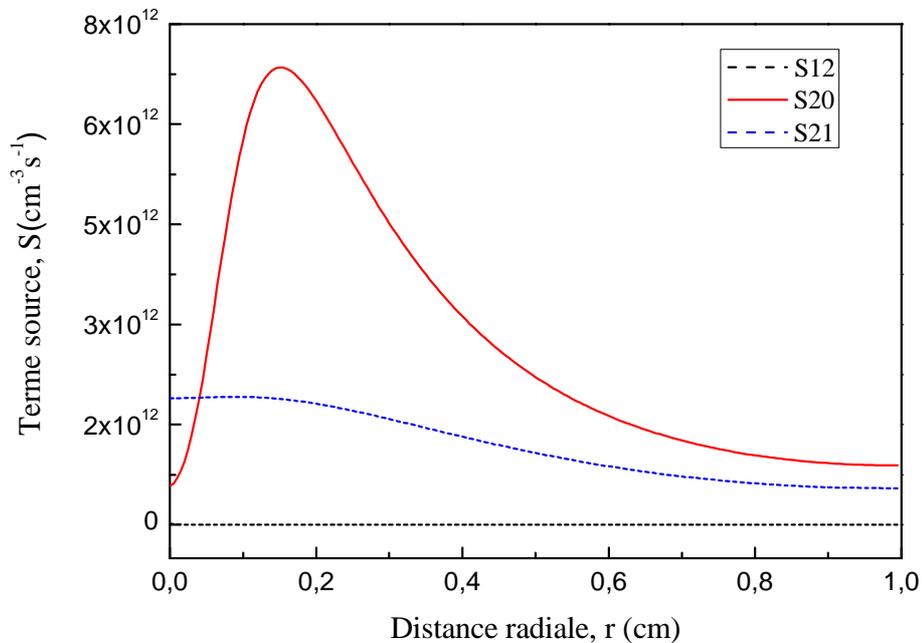


Figure III.32b : Distribution radiale des termes sources du Pentoxyde d'azote  
 $N_2O_5(r=11\text{cm})$  pour  $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

### III.6.8 Distribution spatiale d'oxygène excité ( $O_2^*$ )

L'oxygène excité est produit par la réaction (R4) :



Et il est détruit par la réaction (R22) :



Sa concentration est importante (de l'ordre  $10^{13} \text{ cm}^{-3}$ ) au voisinage du fil et presque nulle dans tout le reste de l'espace inter-électrode (figure (III.33)). Malgré que la production est supérieure à la destruction (figure (III.34b)) la concentration de  $O_2^*$  est constante axialement comme il montre la figure (III.34a). Ceci est expliqué par l'effet de la diffusion qui contribue à la diminution du terme source, parce exemple si on calcule le terme source de diffusion à partir de la figure on trouve qu'il est très important de l'ordre  $3 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3} \cdot \text{s}$ . La réaction de destruction de  $O_2^*$  (R22) est importante dans la région de dérive et ne laisse pas le  $O_2^*$  de diffuser.

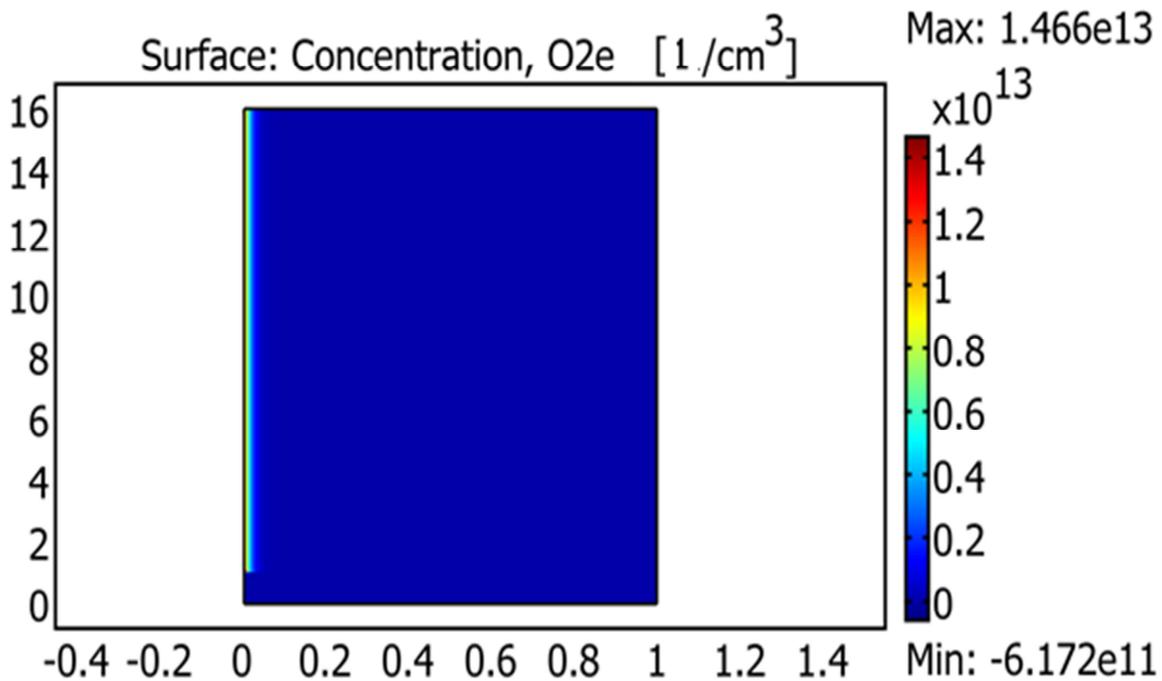


Figure III.33 : Distribution spatiale de l'oxygène excité pour  $V=8000V$ ,  $Q=16.67 \text{ cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50 \mu\text{m}$

## 1. Distribution axiale

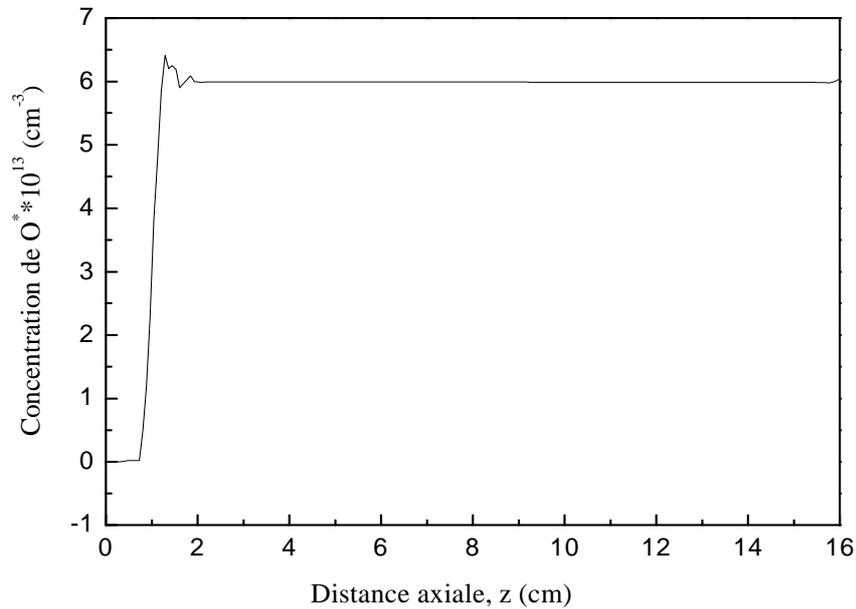


Figure III.34a : Distribution axiale de l'oxygène excitée ( $O_2^*$ ) pour  $V=8000V$ ,  
 $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

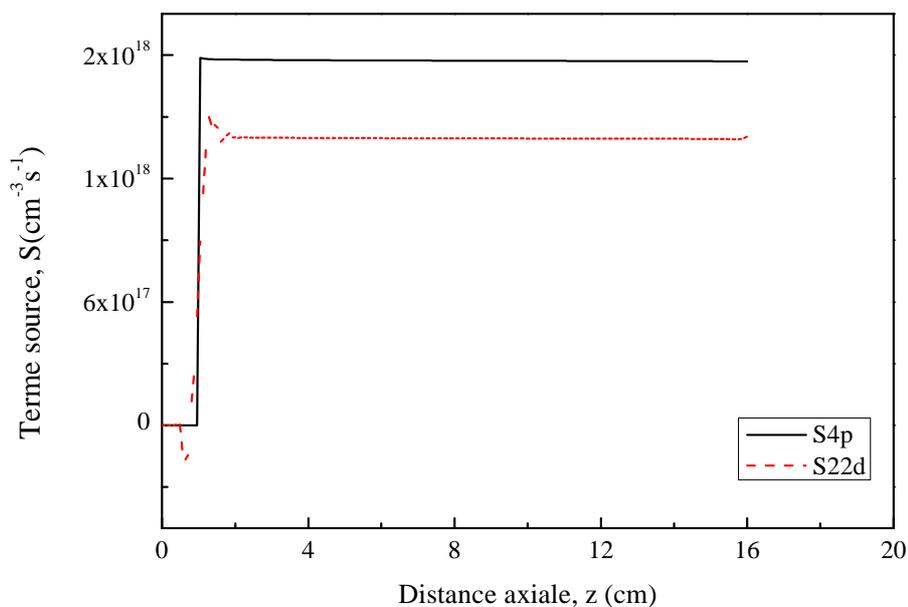


Figure III.34b : Distribution axiale des termes sources de l'oxygène excitée ( $O_2^*$ ) pour  
 $V=8000V$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

## 2. Distribution radiale

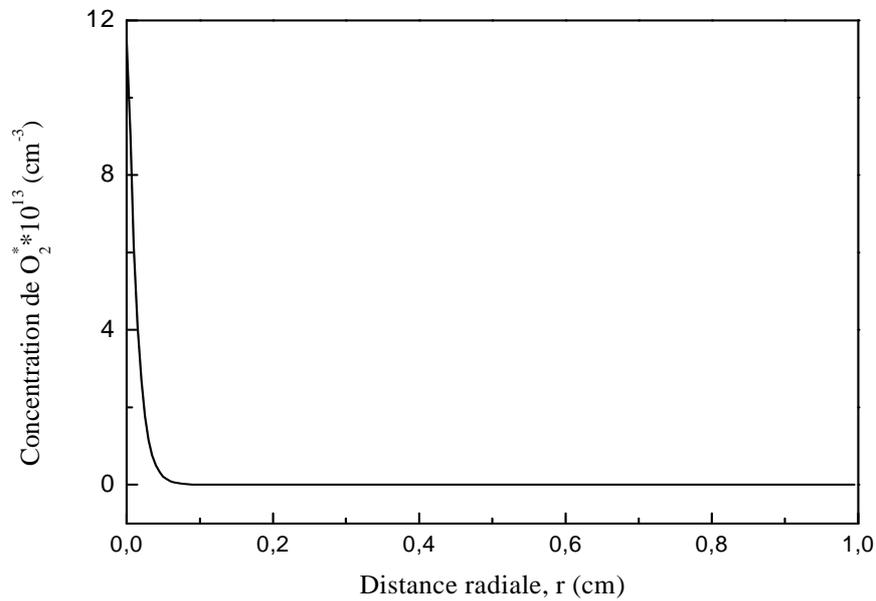


Figure III.35a : Distribution radiale de l'oxygène excitée ( $O_2^*$ ) pour  $V=8000V$ ,  
 $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

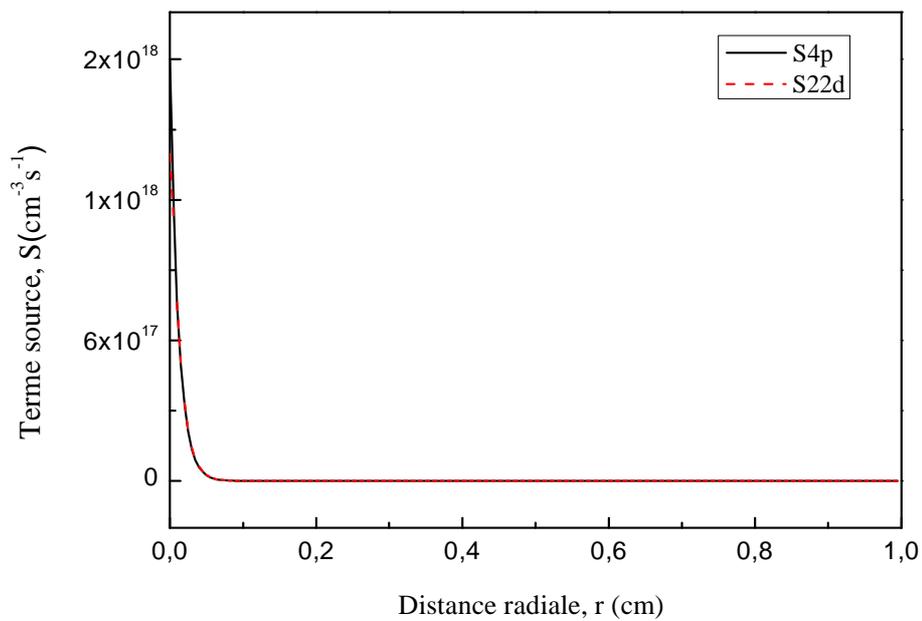


Figure III.35b : Distribution radiale des termes sources de l'oxygène excité ( $O_2^*$ ) pour  
 $V=8000V$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

### III.6.9 Distribution spatiale d'azote excité ( $N_2^*$ )

La distribution spatiale de l'azote excité (figure (III.36)) est similaire à celle de l'oxygène excité. Cela est dû aux ressemblances des réactions chimiques. L'azote excité est produit par la réaction d'impact électronique (R5):



Puisque la densité électronique est importante juste au voisinage du fil alors la densité de  $N_2^*$  est aussi importante dans cette zone à cause de la réaction de production (R5). L'azote excité n'a pas suffisamment de temps pour diffuser dans la région de dérive à cause de la réaction de destruction (R23) qui le transforme en azote



D'après la figure (III.37a), juste à la rentrée du gaz dans le cylindre, la concentration de  $N_2^*$  augmente brusquement à cause de la réaction (R5) ensuite elle ne varie pas dans la direction axiale. Cela est dû au fait que le terme source de production est égal au terme source de destruction (voir figure (III.37b)).

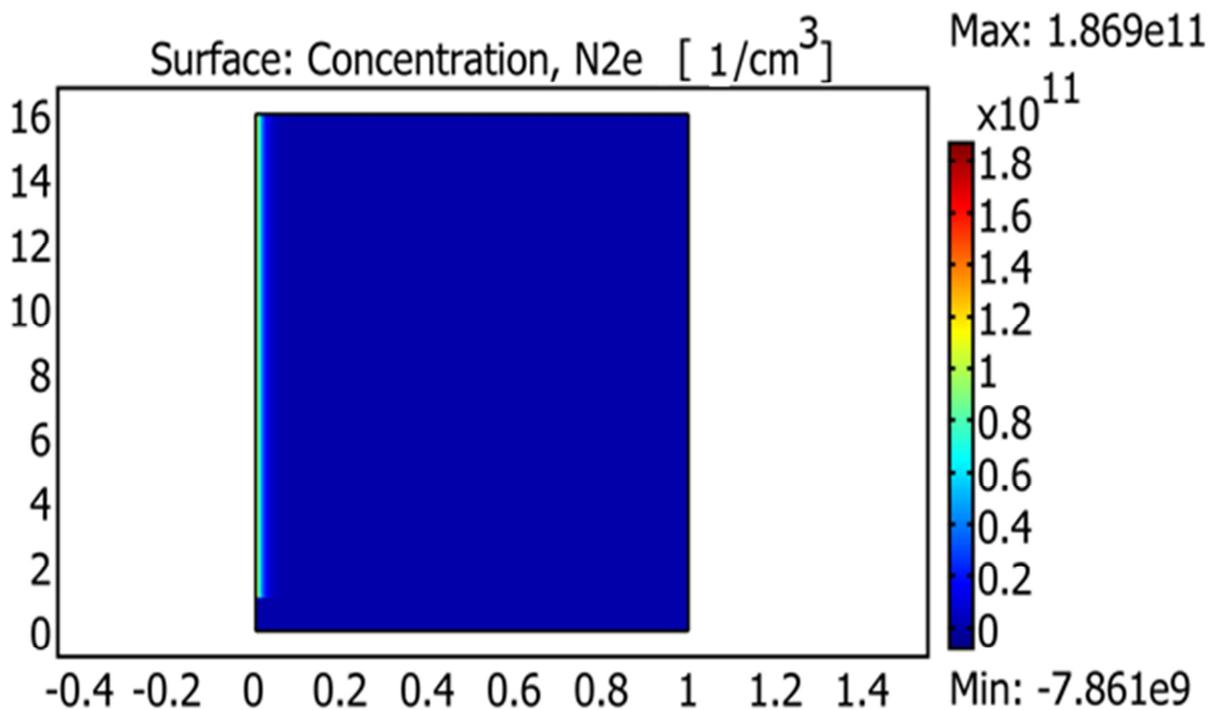


Figure III.36 : Distribution spatiale de l'azote excité pour  $V=8000V$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

## 1. Distribution axiale

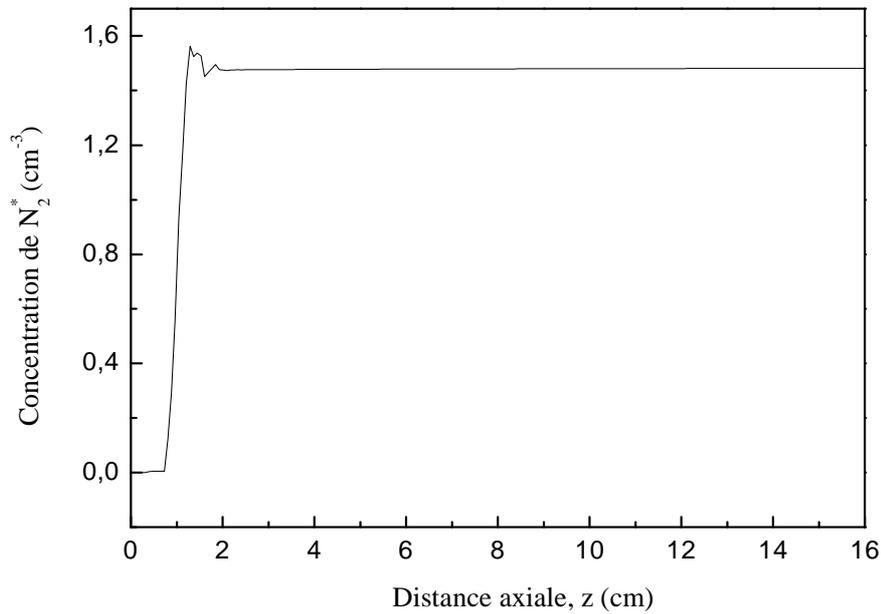


Figure III.37a : Distribution axiale de l'azote excitée ( $N_2^*$ ) pour  $V=8000V$ ,  
 $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

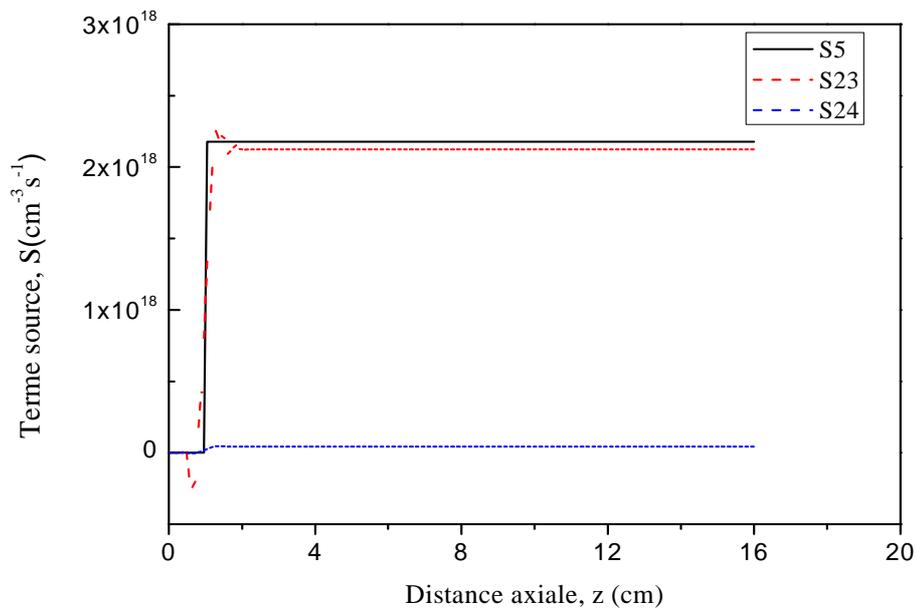


Figure III.37b : Distribution axiale des termes sources de l'azote excitée ( $N_2^*$ ) pour  
 $V=8000V$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

## 2. Distribution radiale

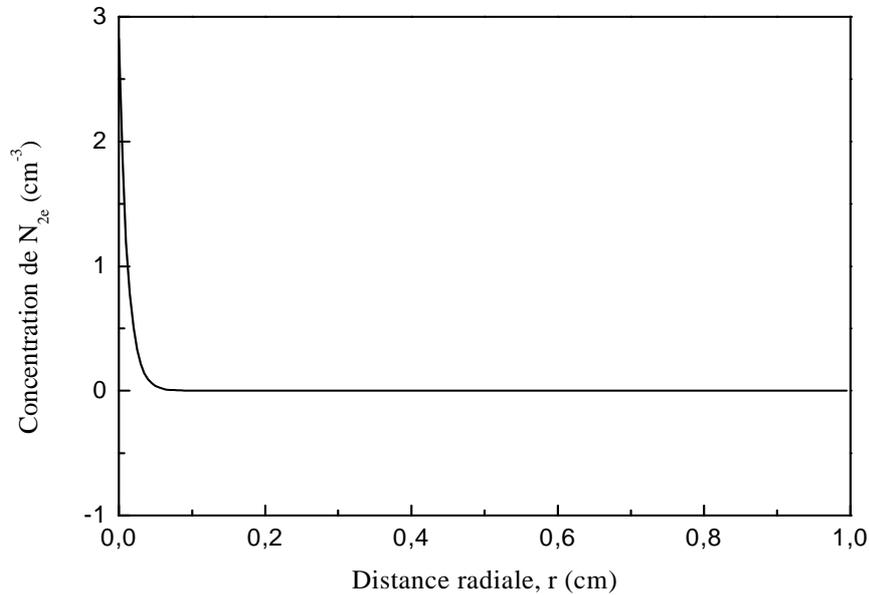


Figure III.38a : Distribution radiale de l'azote excitée ( $N_2^*$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

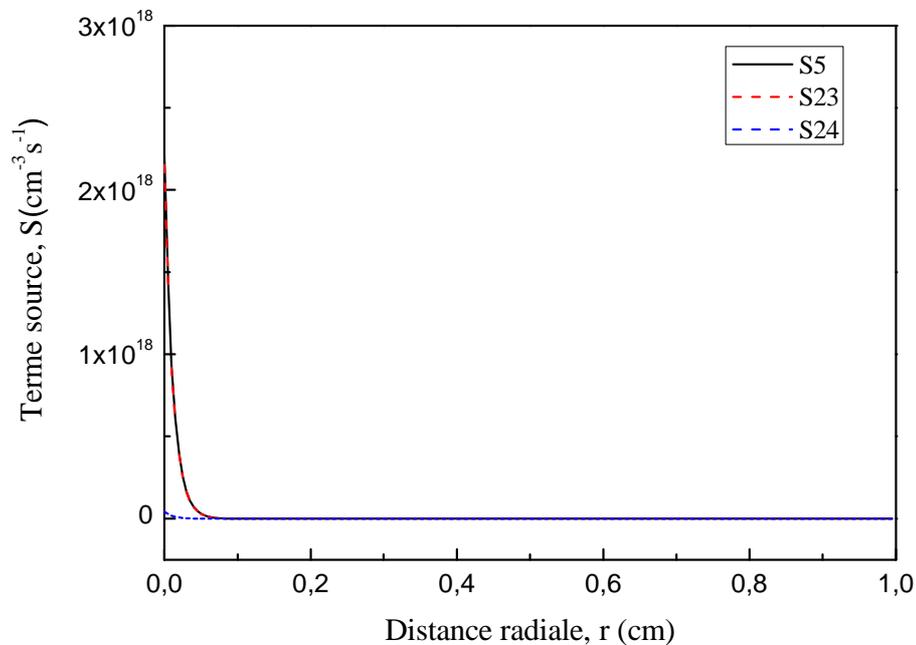
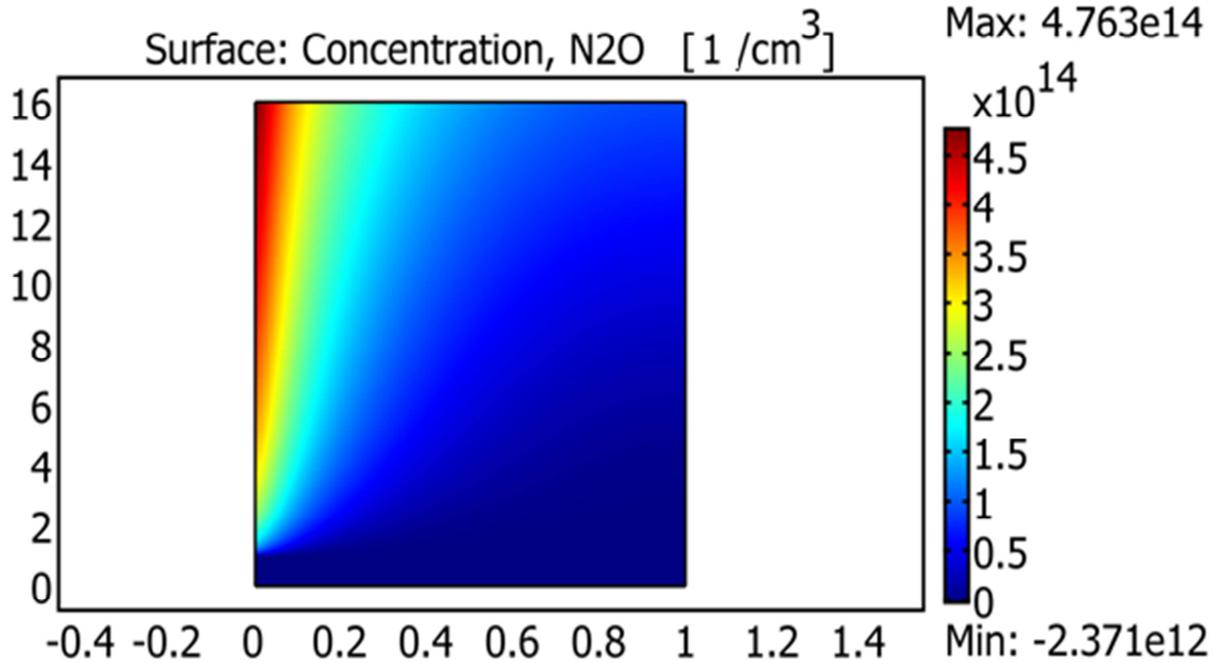


Figure III.38b : Distribution radiale des termes sources de l'azote excitée ( $N_2^*$ ) pour  $V=8000\text{V}$ ,  $Q=16.67\text{cm}^3/\text{s}$  et  $r_0=50\mu\text{m}$

### III.6.10 Protoxyde d'azote ( $N_2O$ )

La distribution spatiale du Protoxyde d'azote indique une augmentation dans les deux sens axiale et radiale comme le montre la figure (III.39)



**Figure III.39 :** Distribution spatiale du Protoxyde d'azote( $N_2O$ ) pour  $V=8000V$ ,  
 $Q=16.67cm^3/s$  et  $r_0=50\mu m$

Le Protoxyde d'azote  $N_2O$  est produit par les réactions de production (R24) et (R16) au voisinage du fil puis diffuse dans la direction radiale jusqu'à son épuisement. Notons que cette espèce ne subit aucune réaction de destruction. Ce comportement est montré par les figures (III.40-III.41).

## 1. Distribution axiale

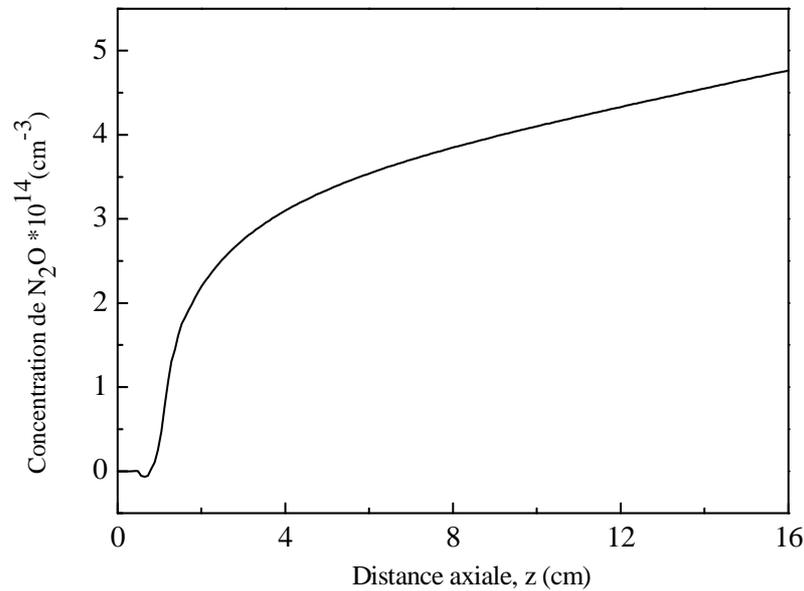


Figure III.40a : Distribution axiale du  $(N_2O)(r=0.0052)$  pour  $V=8000V$ ,  $Q=16.67cm^3/s$   
et  $r_0=50\mu m$

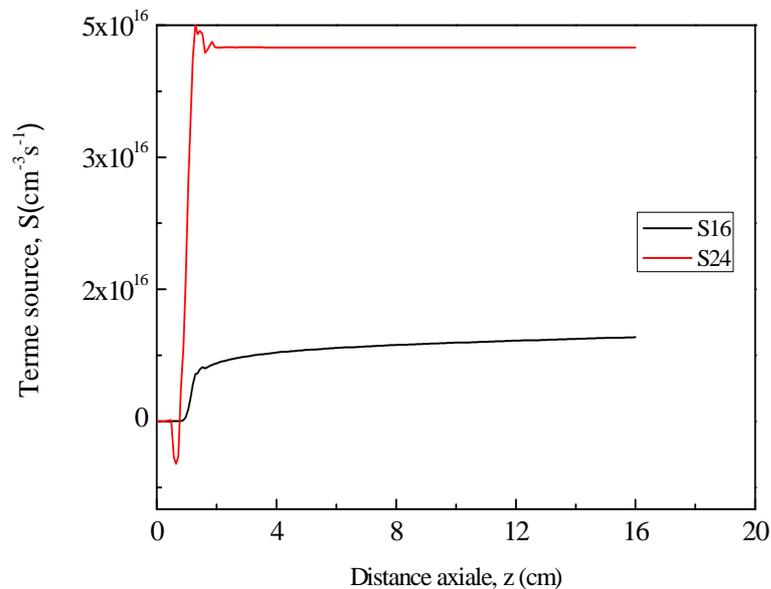
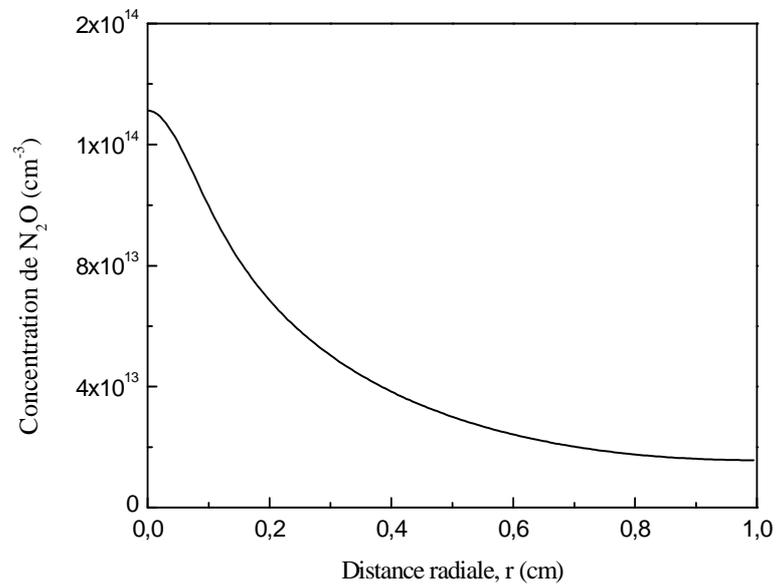


Figure III.40b: Distribution axiale des termes sources du protoxyde d'azote ( $N_2O$ ) pour  
 $V=8000V$ ,  $Q=16.67cm^3/s$  et  $r_0=50\mu m$

## 2. Distribution radiale



**Figure. III.41a:** Distribution radiale ( $N_2O$ )( $z=11$ cm) pour  $V=8000V$ ,  $Q=16.67cm^3/s$  et  $r_0=50\mu m$

### III.7 Comparaison avec les travaux antécédents

La comparaison de notre modèle avec ceux trouvés expérimentalement par A. Yehia, M. Abdel-Salam et A. Mizuno [1], montre un accord raisonnable comme il est indiqué par la figure (III.42), et donc les approximations que nous avons proposées sont acceptables.

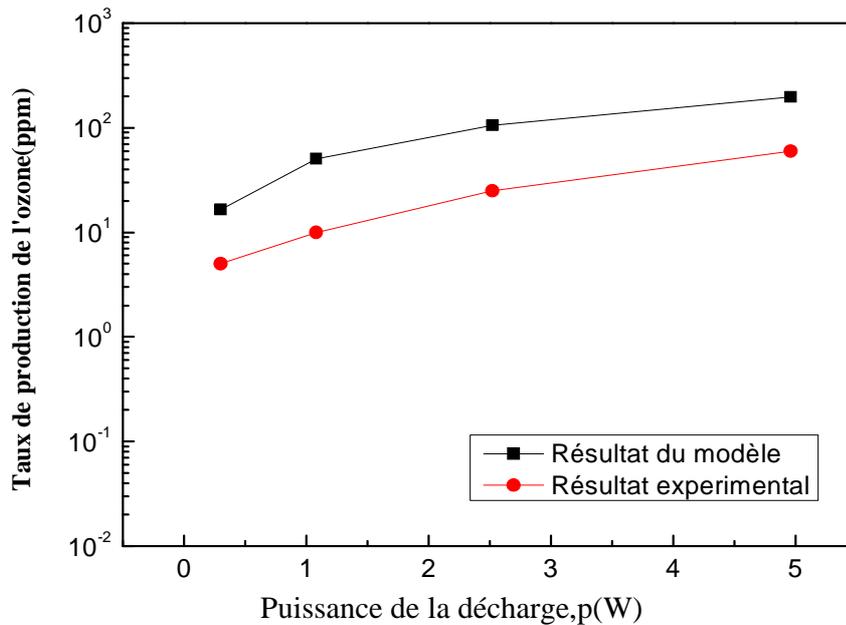


Figure III.42 : Comparaison entre le modèle et l'expérimental

### III.8 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons, décrits le dispositif expérimental réalisé par Yehia et al[1] puis on a utilisé la caractéristique courant-tension comme une donnée de simulation, puis nous avons exposé les résultats obtenus à partir du modèle mathématique élaboré dans le chapitre II, qui sont :

1. Etude paramétrique du champ électrique et de la densité électronique
2. La distribution spatiale de toutes les espèces neutres contribuant à la production ou la dissociation de l'ozone dont nous avons interpréter les résultats. Pour argumenter notre interprétation nous avons tracer la distribution axiale et radiale des termes sources des réactions de production et de destruction liés à chaque espèce

Pour valider le modèle, les résultats obtenus par le modèle [1] ont été comparé aux mesures expérimentales et s'avère acceptable

---

## References

- [1]: A. Yehia et al, "On assessment of ozone generation in dc coronas", J. Phys. D: Appl. Phys. **33** 831–835;( 2000).
- [2]: A. yehia et al, "Characteristics of corona and silent discharges as influenced by geometry of the discharge reactor"; J. Phys. D: Appl. Phys. **36** 252–260; ( 2003).
- [3]: J. Chen, "Direct current corona-enhanced chemical reactions", Thèse de doctorat, Université de Minnesota, Aout 2002.
- [4]: J. Chen, "Numerical modelling of ozone production in a wire–cylinder corona discharge and comparison with a wire–plate corona discharge"; J. Phys. D: Appl. Phys. **42** 035202(8pp); (2009).
- [5]: K. Yanallah et al, "Experimental investigation and numerical modelling of positive corona discharge: ozone generation", J. Phys. D: Appl. Phys. **42** 065202(8pp);(2009).
- [6]: K. Yanallah et al, "An analytical approach to wire-to-cylinder corona discharge", Journal of Electrostatics **70** 374-383 ;(2012).
- [7]: C. Soria; "Plasma chemical and electrical modelling of a negative DC corona in pure oxygen"; Plasma Sources Sci. Technol **13** 97-107 ; (2004).

# *Conclusion Générale*

---

## *Conclusion générale*

---

Dans ce travail, nous avons étudié par modélisation la génération d'ozone par une décharge électrique couronne positive fil-cylindre dans l'air sec. Pour déterminer la distribution spatiale de différentes espèces neutres générées par la décharge électrique nous avons utilisé le modèle fluide qui se base sur la résolution des équations de continuités couplées à l'équation de Poisson. Pour résoudre ce système d'équations, nous avons développé une approche analytique qui consiste à calculer le champ électrique et la densité électronique en résolvant l'équation de Poisson et l'équation de continuité des électrons respectivement. Ensuite, afin de déterminer la distribution spatiale des espèces neutres générées par la décharge électrique couronne, nous avons injecté la densité électronique dans les équations de continuités de particules neutres à travers les termes sources. Enfin nous avons mené une étude paramétrique pour voir l'effet de la variation de la tension appliquée et du rayon sur la distribution radiale du champ électrique et de la densité électronique.

Notre modèle est réalisé selon une approche cinétique décrivant le plasma homogène à l'état stationnaire par vingt-quatre réactions impliquant douze espèces neutres atomique et moléculaire  $O_2, N_2, O, O_3, N, NO, NO_2, NO_3, N_2O, N_2O_5, N_2^*, O_2^*$ . Ces réactions chimiques sont résolues simultanément. Par le logiciel COMSOL

Les résultats obtenus sont résumés dans les points suivants :

1. La distribution spatiale de toutes les espèces impliqués dans la production ou la dissociation de l'ozone, sont concentrées au voisinage du fil c'est-à-dire la zone active où la densité électronique est intense d'où la production de l'ozone se fait dans cette zone.

## Conclusion Générale

2. La zone active de la décharge électrique couronne positive est restreinte au voisinage du fil.
3. La densité électronique est proportionnelle à la tension appliquée.
4. Le champ électrique et la densité électronique (dans la région d'ionisation) sont inversement proportionnels au rayon du fil.

Les résultats que nous avons obtenu par ce modèle sur la génération d'ozone sont en accord avec les résultats expérimentaux de Yehia (Janvier 2000).

## ملخص:

الأوزون كمؤكسد قوي, يمكن استعماله في عدة مجالات مثل معالجة المياه المستعملة و مياه الشرب, تبيض المواد الصناعية كالورق, تنقية طرق إنتاج الأوزون بالتفريغ الكهربائي الصامت, طريقة التفريغ الكهربائي السطحي, طريقة التفريغ .الهواء, قتل البكتيريا و الفيروسات... إلخ في هذه العمل بدراسة نموذج عن إنتاج الأوزون بواسطة .الكهربائي النبضي تعتبر من أحسن الطرق للحصول علي تركيز و مردود كبيرين الموجب و هذا باستعمال مفاعل ذو مسريين كهربائيين على شكل اسطوانتين مركزيين, ذوات قطر متباين في درجة حرارة التفريغ الكهربائي عادية و تحت ضغط الجوي. و يستند عملنا هذا على نموذج سوانل الذي يركز على معادلات حفظ الهيدروديناميكي. حيث أن هذه المعادلات ناتجة عن معادلات بولتزمان مرتبطة بمعادلة بواسون و بالتالي نتحصل على جملة معادلات غير خطية صعبة الحل, وهذا ما دفعنا إلى تبسيط هذه المعادلات و الفصل بينها, ولحل هذه المعادلات مررنا بمرحلتين, الأولى لحساب توزيع الحقل الكهربائي و الكثافة الالكترونية و هذا بحل المعادلات الاستمرارية إلى جانب معادلة بواسون. في حين خصص الخطوة الثانية لحساب توزيع الجزيئات المحايدة عن طريق إدخال كثافة ان النموذج الحركي الكيميائي المستعمل في هذه الدراسة و الذي COMSOL. الإلكترونيات التي تم الحصول عليها في المرحلة الأولى في برنامج ( يصف السلوك O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub><sup>\*</sup>, N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, NO<sub>2</sub>, NO<sub>3</sub>, NO, N<sub>2</sub>, N, O<sub>2</sub> يركز على 24 معادلة كيميائية متكونة من 12 جزيئات ) الحركي و الكهربائي لهذا النوع من التفريغ حيث أن النتائج المتحصل عليها توضح تغير توزيع كثافة الإلكترونيات, كثافة الحقل الكهربائي وكذا كثافة الجزيئات المحايدة داخل المفاعل الكهربائي. و للتأكد من صحة هذا النموذج قمنا بمقارنة تركيز الأوزون المتحصل عليه حسابيا مع المتحصل عليه تجريبيا فكان التوافق بينهما مقبولا .

كلمات البحث: الأوزون, كورونا التفريغ إيجابية, الهواء الجاف, معادلة بولتزمان , معادلة بواسون, نموذج السوانل.

---

## Résumé :

L'ozone est l'un des oxydants les plus puissant, il est utilisé entre autre pour la purification d'eau, le blanchiment des matériaux tels que le papier les fibres synthétiques, et d'autres produits, le traitement de l'eau usée, la désodorisation et la stérilisation,... etc. Les méthodes de décharge de plasma telles que la décharge silencieuse, la décharge surfacique, la décharge « streamer corona » et la décharge pulsée à la pression atmosphérique ont été utilisées pour obtenir un rendement et une concentration plus élevés d'ozone. Notre travail est basé sur le modèle fluide qui s'appuie sur les équations de conservation hydrodynamiques. Ces équations obtenues à partir des deux premiers moments de l'équation de Boltzmann couplées à l'équation de Poisson forment un système d'équations non linéaire difficile à résoudre. Ce qui nous a ramené à introduire de nouvelles approximations, c.à.d. découpler le système d'équations non linéaires. La résolution des équations a été réalisé en deux étapes, la première consiste au calcul des distributions de la densité électronique et le champ électrique par la résolution des équations de continuité couplées à l'équation de Poisson, alors que la deuxième consiste au calcul des distributions des particules neutres, en injectant la densité électronique obtenue dans la première partie dans le logiciel COMSOLv3.5 . Le modèle de la cinétique chimique utilisé dans ce travail est basé sur 12 espèces ((O, O<sub>2</sub>, N, N<sub>2</sub>, NO, NO<sub>2</sub>, NO<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O, N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, N<sub>2</sub><sup>\*</sup>, O<sub>2</sub><sup>\*</sup>), représentées par un jeu de 24 réactions, décrit bien le comportement électrique et cinétique de ce type décharge. Les résultats illustrent les variations spatiales du champ électrique, de la densité électronique et des densités de particules neutres. Les résultats obtenus par ce modèle sont révélées en accord avec les résultats expérimentaux.

Mots clés : Ozone, décharge couronne positive, air sec, équations de Boltzmann, modèle fluide.