



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 DIPLÔME DE
MAGISTER

Ecole Doctorale : Electrotechniques et ses Applications

OPTION : Matériaux Diélectriques et Haute Tension

Présenté par
KHEMKHAM NAIMA

SUJET DU MEMOIRE :

*Etude de la décomposition du dioxyde de
carbone par une décharge couronne
négative.*

Devant Le Jury Composé de :

Monsieur A. DEHBI

Maître de conférences A,

PRESIDENT

Monsieur K. YANALLAH

Maître de conférences A,

RAPPORTEUR

Monsieur Y. MESLEM

Maître de conférences A,

EXAMINATEUR

Monsieur A. BEMADJADI

Maître de conférences A,

EXAMINATEUR

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. DEHBI**, pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant la présidence de ce jury.*

*Monsieur **Y. MESLEM** et Monsieur **A. BEMADJADI** d'avoir accepté d'examiner mon travail et de faire partie du jury de ce mémoire.*

*Tous mes professeurs de 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 monsieur **M. Outayab**.*

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.

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><i>Chapitre I : Généralités sur le dioxyde de carbone et les décharges couronne</i></p>

I.1. Introduction	04
I.2. Problème du réchauffement climatique: effet de serre	05
I.2.1. Conséquences de l'effet de serre sur le climat.....	06
I.2.2. Les gaz à effet de serre (GES)	07
I.3. Le dioxyde de carbone : principal gaz à effet de serre	09
I.3.1. Histoire.....	10
I.3.2. Propriétés physiques et chimiques	11
I.3.3. Émissions de dioxyde de carbone.....	12
I.3.3.1. Les émissions anthropiques.....	12
I.3.3.2. Les émissions naturelles	13
I.3.4. Concentration en CO ₂ atmosphérique	13
I.3.5. Application industrielle.....	15
I.3.6. Techniques de réduction des émissions de CO ₂	17
I.3.6.1. Démarche préventive.....	17
I.3.6.2. Stockage géologique.....	18
I.3.6.3. Techniques par plasmas.....	18
I. 4. Décharge couronne.....	20
I.4.1. Phénomènes de multiplications électroniques	21
I.4.2. Différents régimes de la décharge (caractéristique courant-tension)	22
I.4.3. Mécanisme de la décharge couronne	24
I.4.4. Différentes géométries d'électrodes	24

I.4.5. Différents types des décharges couronnes	25
I.4.5.1. Décharge électrique couronne à polarité positive	25
I.4.5.2. Décharge électrique couronne à polarité négative.....	26
I.4.5.3. Décharge électrique couronne pulsée.....	28
I.4.6 Utilisations de l'effet de couronne	28
I.4.6.1 Dépoussiéreurs électrostatiques	29
I.4.6.2 Séparateurs électrostatiques.....	29
I.4.6.3 Dépollution des gaz	31
I.4.6.4 Générateurs d'ozone	33
I.5. Conclusion.....	34

<i>Chapitre II : Modèles physiques d'une décharge électrique couronne</i>
--

II.1. Introduction.....	36
II.2. Principe d'un modèle complet d'une décharge électrique.....	36
III.3. Modèle Physique	37
II.3.1. L'équation de Boltzmann	37
II.3.2. Equation de Poisson.....	38
II.3.3. Modèles fluides.....	39
II.3.3.1. Equation de continuité	39
II.3.3.2. Equation de transfert de quantité de mouvement	40
II.3.3.3. Equation d'énergie.....	40
II.3.4. Modèles microscopiques ou particuliers.....	42
II.3.5. Modèles hybrides	42
II.4. Modélisation d'une décharge électrique couronne négative en régime stationnaire	43
II.4.1. Calcule de la distribution de champ électrique	48
II.4.2. Calcule de distribution de la densité électronique.....	49
II.4.3. Cinétique chimique de la décomposition du CO ₂	52

III.4.3.1. Calcul des concentrations initiales.....	54
II.5. Conclusion	55

<p style="text-align: center;"><i>Chapitre III : Modélisation de la décomposition du dioxyde de carbone par décharge électrique négative</i></p>

III.1. Introduction	57
III.2. Le montage expérimental	57
III.3. Résultat et discussion	59
III.3.1. Distribution des particules chargées.....	59
III.3.2. Distribution des particules neutres	60
III.3.2.1. La distribution spatiale du monoxyde de carbone (CO).....	61
III.3.2.2. La distribution spatiale de l'oxygène atomique (O).....	64
III.3.2.3. La distribution spatiale de l'oxygène moléculaire (O ₂)	68
III.3.2.4. La distribution spatiale de l'ozone (O ₃)	71
III.3.2.5. La distribution spatiale du carbone (C)	74
III.3.2.6. La distribution spatiale de C ₂ O	77
III.3.3. Validation du modèle	81
III.3.4. Etude paramétrique	81
III.3.4.1. L'effet de la tension.....	81
III.3.4.1.1. L'effet de la tension sur le champ électrique	81
III.3.4.1.2. L'effet de la tension sur la densité électronique	82
III.3.4.1.3. L'effet de la tension sur les espèces neutres	84
III.3.4.2. L'effet de l'écoulement gazeux.....	85
III.3.4.2.1. Effet de l'écoulement sur la distribution du champ électrique.....	85
III.3.4.2.2. Effet de l'écoulement sur la distribution de la densité électronique.....	86
III.4. Conclusion	87
Conclusion Générale.....	88
Référence	90

Nomenclature

Les symboles sont généralement définis quand ils apparaissent dans le texte. La liste ci-dessous contient seulement les symboles les plus communément utilisés. Certaines grandeurs listées ci-dessous peuvent apparaître surmontées en gras dans le corps du texte quand ce sont des vecteurs.

N	Densité des espèces	(m ⁻³)
v	Vitesse des particules	(m.s ⁻¹)
E	Champ électrique	(V.m ⁻¹)
E/N	Champ réduit	(Td)
N_e	Densité électronique	(m ⁻³)
N_p	Densité des positifs	(m ⁻³)
N_n	Densité des négatifs	(m ⁻³)
S	Le taux de création ou de disparition des particules.	(m ⁻³ s ⁻¹)
k	Coefficient de réaction	(m ⁻⁶ .S ⁻¹) ou (m ⁻³ s ⁻¹)
R_g	Constante des gaz parfaits	(J.K ⁻¹)
t	Temps	(s)
I	Courant électrique	(A)
V	Potentiel	(V)
P	Pression	(Pa)
T	Température	(K)
m	Masse	(Kg)
r	composante radiale	(m)
z	composante axiale	(m)
V_z	vitesse de l'écoulement du gaz	(m.s ⁻¹)
K_B	constants de Boltzmann	(J.s ⁻¹)
Q	débit de gaz	(m ³ /s)
R	rayon du cylindre	(m)
r₀	rayon du fil couronne	(m)
L	La longueur du cylindre	(m)
A	la section du cylindre	(m ²)

e	La charge électrique	(C)
μ	Mobilité des espèces	(m ² .V ⁻¹ .S ⁻¹)
D	le coefficient de diffusion	(m ² .S ⁻¹)
α	Coefficient d'ionisation	(cm ⁻¹)
η	Coefficient d'attachement	(cm ⁻¹)

Valeurs

$$K_B = 1.38062.10^{-23} \text{ J.s}^{-1}$$

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

$$N = 6.023.10^{23}.$$

$$e = 1.6.10^{-19} \text{ C.}$$

Introduction Générale

Introduction générale

De nos jours, la pollution de l'air atmosphérique est devenue un enjeu environnemental majeur en raison de la croissance rapide du développement industriel et technologique qui nécessite une consommation énergétique importante. Les polluants gazeux sont particulièrement suivis en raison de leur impact écologique (pluies acides, réchauffement climatique (L'effet de serre), destruction de la couche d'ozone) et leur toxicité. Parmi les gaz polluant on cite le dioxyde de carbone qui contribue à l'effet de serre. Le dioxyde de carbone est un gaz qui absorbe le rayonnement infrarouge émis par la surface terrestre. L'augmentation de sa concentration dans l'atmosphère terrestre est l'un des facteurs soupçonné d'être à l'origine du récent réchauffement climatique. De ce fait, des méthodes de séquestration du CO_2 ont été développées pour réduire sa concentration. Vu les limitations, les inconvénients et les coûts de ces méthodes, il est indispensable de chercher d'autres méthodes pour réduire la quantité de CO_2 dans l'atmosphère. Dans cet objectif, le but de notre travail été l'utilisation de la décharge électrique de type couronne, comme un moyen de décomposition du dioxyde de carbone (CO_2), plus particulièrement notre travail a consisté à modéliser la décomposition du dioxyde de carbone par une décharge électrique couronne négative avec une géométrie d'électrodes fil-cylindre. La simulation numérique des décharges électriques dans les gaz est certainement une tâche difficile, pour cela, différentes équations (équations de Poisson, équation de conservation et de transport, l'équation de l'énergie, etc.) doivent être résolues. De plus, ces équations sont fortement couplées par la cinétique chimique des espèces et les coefficients de réaction qui sont eux-mêmes dépendant du champ électrique et de température. Par conséquent, dans notre modèle on se basant sur les différents travaux antécédents afin de simplifier le problème.

L'organisation du Mémoire s'articule autour de trois chapitres :

Après une introduction générale, nous avons présenté dans le premier chapitre des définitions et des rappels de quelques notions physiques concernant le dioxyde de carbone et les décharges électriques. On s'accroche plus particulièrement sur les décharges couronnes en particulier la décharge couronne négative de type fil cylindre.

Dans le deuxième chapitre, nous montrons le modèle fluide de la décharge électrique que nous avons réalisé dans le but de comprendre le comportement électrique de la phase gazeuse du plasma ensuite, nous décrivons le couplage des équations de continuité et de quantité de mouvement avec l'équation de poisson, tout en exprimant les hypothèses et les approximations prises en considération pour le calcul du champ électrique et de la densité électronique. Et nous terminons par exposer le modèle cinétique chimique inspiré des travaux de Mikoviny et al [52] que nous avons utilisé pour calculer la concentration des espèces neutres produites à partir de ses équations différentielles couplées.

Le troisième chapitre représente les résultats de calculs de la distribution du champ électrique, de la densité électronique et des densités de particules neutres produites par la décharge électrique couronne négative à courant continu dans le dioxyde de carbone. Nous présentons par la suite une étude paramétrique de distribution spatiale des espèces, ainsi que le champ électrique dans l'espace inter-électrode en fonction de la tension et le débit de gaz CO₂ pure.

Cette série de chapitre est suivie par une conclusion générale où nous présentons l'ensemble des résultats acquis par ce travail.

Chapitre I. :

*Généralités sur le dioxyde de
carbone et les décharges
couronne*

CHAPITRE I

GENERALITES SUR LE DIOXYDE DE CARBONE ET LES DECHARGES COURONNE

Dans ce chapitre nous présentons dans la première partie quelques notions physico-chimiques concernant le dioxyde de carbone ainsi que ses différentes sources d'émissions. Parmi les techniques de la réduction des émissions du dioxyde de carbone on s'intéresse au plasma notamment la décharge couronne que nous avons exposé dans la deuxième partie de ce chapitre.

I.1. Introduction

Depuis le début de la révolution industrielle, l'humanité a commencé à modifier le climat de la terre en rejetant dans l'atmosphère des « gaz à effet de serre » (GES) tels que le gaz carbonique (CO_2) engendré par la combustion du charbon, du pétrole et du gaz naturel, mais aussi du méthane (CH_4) et d'autres gaz encore. Le CO_2 responsable de la moitié de l'accroissement de l'effet de serre a augmenté à plus de 25% passant de 280 ppmv en 1860 à 370 ppmv à nos jours (voir figure (I.1)). Compte tenu de sa longue durée de vie dans l'atmosphère qui est de l'ordre de quelques centaines d'années, il ne se dégrade pas rapidement avant d'être capté par les plantes ou les océans.

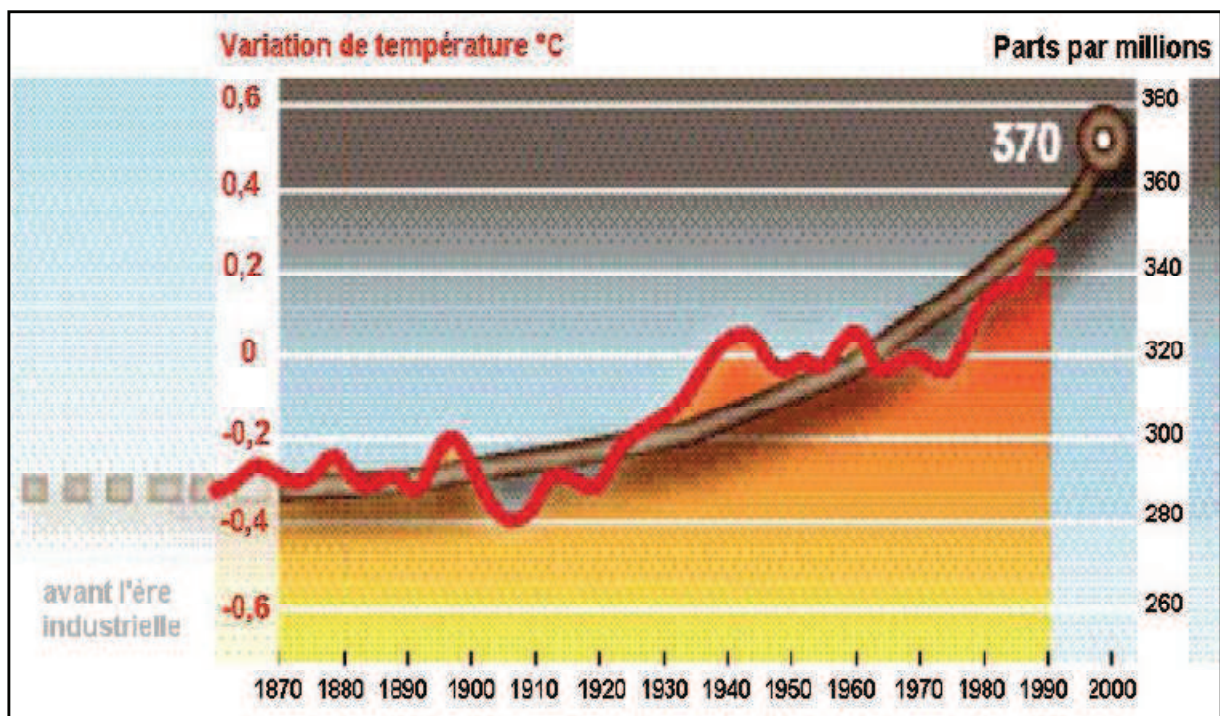


Figure I.1 : Évolution du taux de CO_2 dans l'atmosphère depuis le début de l'ère industrielle [01]

Parmi les méthodes de réduction de l'effet de serre, le recyclage du CO_2 des effluents gazeux des usines est utilisé pour la production d'zone qui est aussi une des solutions des problèmes environnementaux. Le développement de nouveaux procédés chimiques propres, les techniques plasmas apparaissent comme une réponse avantageuse à cette problématique, notamment les décharges couronne que nous avons choisi d'utiliser.

I.2. Problème du réchauffement climatique: effet de serre

Une serre est un espace clos dont une ou plusieurs faces sont transparentes, laissant passer le rayonnement du soleil et empêchant la chaleur qui se forme à l'intérieur de la serre de se dissiper trop vite vers l'extérieur. La chaleur est retenue à l'intérieur de la serre grâce à une compétition de deux facteurs différents. Le premier, purement mécanique, est celui de l'emprisonnement de l'air chaud à l'intérieur de la serre. Ceci est assuré indépendamment du matériau utilisé pour fabriquer la serre. Ainsi une simple bâche de plastique peut procurer cet effet " mécanique ". Le deuxième facteur est celui appelé " effet de serre ". Celui-ci correspond à l'opacité des parois de la serre à l'infrarouge. En effet, l'énergie reçue de l'extérieur fait chauffer les éléments présents à l'intérieur de la serre. Par conséquent, ceux-ci émettent des rayonnements infrarouges. Ces rayonnements sont interceptés par les parois de la serre qui les réfléchit vers l'intérieur. C'est ainsi que la température dans la serre est amplifiée.

Par analogie avec la pratique de construire les serres en culture et jardinerie, le processus naturel de réchauffement de l'atmosphère est appelé "effet de serre " La figure (I.2) facilite sa compréhension.

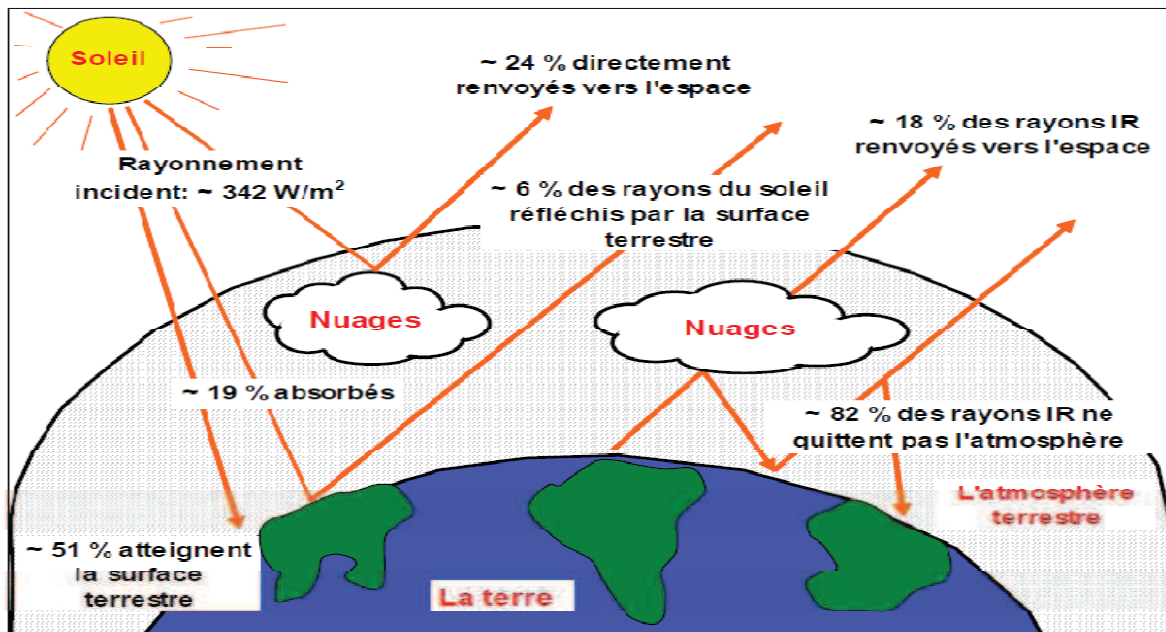


Figure I.2 : Effet de serre [02]

Environ 30 % du rayonnement solaire qui atteint l'atmosphère terrestre est réfléchi par l'air, les nuages et la surface claire de la terre. Le reste des rayonnements est absorbé, soit par l'atmosphère (environ 24%) soit par la surface terrestre (51 %). Cette partie absorbée est

restituée par la terre, notamment la nuit et en hiver, sous forme de rayons infrarouges. Une partie des rayonnements infrarouges émis par la terre est absorbée par les gaz présents dans l'atmosphère terrestre, dits gaz à effet de serre. Cette chaleur absorbée est ensuite émise dans toutes les directions, notamment vers la terre. Le rayonnement qui retourne vers la terre est à l'origine d'un apport supplémentaire de chaleur à la surface terrestre. Sans cette chaleur supplémentaire, la température moyenne à la surface de la terre serait de l'ordre de -18 °C. Ensuite, la glace s'étendrait sur le globe et l'albédo terrestre augmenterait. La température terrestre continuerait à baisser pour se stabiliser vraisemblablement à -100 °C.

I.2.1. Conséquences de l'effet de serre sur le climat

Au cours de son histoire, le climat de la Terre a connu beaucoup de variations.

Plusieurs périodes glaciaires et interglaciaires se sont régulièrement succédé, environ tous les 100000 ans. Elles étaient dues aux changements cycliques de la position de la terre par rapport au soleil. A la fin des années 1980, les paléo-climatologues ont découvert d'importantes variations de la température terrestre (5 à 10 °C) au cours de la dernière période glaciaire (100000 à -12000 ans). Ces variations étaient rapides (quelques siècles). A partir de l'étude des archives glaciaires, les scientifiques ont également pu démontrer la corrélation entre l'augmentation des gaz à effet de serre et l'augmentation de la température. Au cours du dernier millénaire, une période relativement chaude (XIème-XIV siècles), appelée «période de réchauffement médiéval», a précédé une période relativement froide, dite « le petit âge glaciaire » (XVème-XIXème siècles). Le réchauffement soudain observé au XXème siècle est sans précédent au cours du dernier millénaire, de par sa rapidité et son importance (+ 0,6 °C en 100 ans). Selon les experts, il ne peut pas être considéré comme un simple retour à la normale après "le petit âge glaciaire". Le réchauffement climatique semble s'accélérer: les températures observées au cours de la décennie 1990 ont été les plus élevées du siècle, et même du millénaire. 1998 a été l'année la plus chaude à l'échelle planétaire depuis que les températures sont mesurées (1860). 2002, 2003 et 2001 se situent respectivement en seconde, troisième et quatrième position. Par exemple en France, c'est 2003, marquée d'une canicule sans précédent, qui a été l'année la plus chaude depuis 1950. Selon les spécialistes, la température pourrait augmenter, d'ici à 2100, de +1,4°C à 5,8 °C.[02].

I.2.2. Les gaz à effet de serre (GES)

Parmi les gaz responsables de l'effet de serre certains comme le méthane (CH_4), le protoxyde d'azote (N_2O) ou l'ozone (O_3) sont naturels, c'est-à-dire que leur présence dans l'atmosphère n'est pas due à l'activité humaine, d'autres sont introduits par l'homme. Cette distinction des deux familles de gaz à effet de serre ne signifie pas que l'homme n'émet pas ces gaz dits d'origine " naturelle ". En effet, la concentration de ces gaz, présents initialement dans l'atmosphère ne cesse d'augmenter. Bien que la contribution de tous ces gaz au réchauffement climatique ne soit pas négligeable, ils sont loin d'en être la principale cause. En effet, les deux principaux gaz à effet de serre sont la vapeur d'eau et le dioxyde de carbone. Compte tenu du fait que l'eau couvre 2/3 de notre planète et que son temps de résidence dans l'atmosphère est de l'ordre d'une semaine, on ne tiendra plus compte de l'effet de la vapeur d'eau dans ce qui suit mais on se limitera à l'effet de serre d'origine humaine dit additionnel ou anthropique. Ainsi en ne considérant que les autres gaz, il est aujourd'hui admis que le dioxyde de carbone contribue à l'effet de serre pour près de 55%. Le méthane y contribue pour près de 15%, les halocarbures pour 10%, l'ozone 10% et le protoxyde d'azote 5% [03]. Contrairement à la vapeur d'eau qui ne reste pas beaucoup de temps dans l'atmosphère, les autres gaz à effet de serre ont un temps de séjour beaucoup plus long. Ainsi le protoxyde d'azote met 120 ans pour se dégrader. Ce temps de séjour n'est que de 12 ans dans le cas du méthane et 100 ans dans le cas du dioxyde de carbone. D'autres composés comme les Halocarbures ont un temps de séjour qui peut atteindre 50000 ans. Dans les différentes études sur la nature des gaz à effet de serre et leur contribution au réchauffement climatique, on trouve divers classements de ces gaz. Le plus intéressant de ces classements est celui basé sur le PRG (Pouvoir de Réchauffement Global). Ce dernier est défini comme la puissance radiative ou la quantité de rayonnement qu'une quantité donnée de gaz peut intercepter et renvoyer vers le sol. Cette quantité est généralement cumulée sur une durée fixée à 100 ans. Il paraît alors évident qu'il faut tenir compte dans le calcul du Pouvoir de Réchauffement Global du temps de séjours du gaz dans l'atmosphère. Bien que le PRG soit une grandeur caractéristique d'un gaz donné, il reste une mesure relative. En effet, il est calculé relativement au CO_2 selon l'expression ci-dessous :

$$PRG = \frac{\text{Quantité d'énergie émise par une quantité } Q \text{ de gaz pendant 100 ans}}{\text{Quantité d'énergie émise par une même quantité } Q \text{ de } \text{CO}_2 \text{ pendant 100 ans}}$$

Il est à noter que cette notion de PRG est approximative. En effet, la vitesse d'élimination d'un GES (Gaz à Effet de Serre) n'est pas stable sur 100 ans, car son séjour dans l'atmosphère dépend des conditions du moment. Or, ces conditions évoluent avec les changements climatiques. On notera aussi que certains GES absorbent les mêmes longueurs d'onde. Tel est par exemple le cas du méthane et du protoxyde d'azote. Ainsi dans le calcul du PRG d'un gaz donné, il faudrait tenir compte de la proportion des autres gaz présents dans l'atmosphère. Le tableau (I.1) regroupe les PRG des GES les plus connus.

Gaz	Formule chimique	PRG
Dioxyde de carbone	CO ₂	1
Méthane	CH ₄	23
Protoxyde d'azote	N ₂ O	298
Perfluorocarbures	C _n F _{2n+2}	6500 à 8700
Hydrofluorocarbures	C _n H _m F _p	140 à 11700
Hexafluorure de soufre	SF ₆	23900

Tableau I.1 : Pouvoir de Réchauffement Global des principaux gaz à effet de serre [03]

Ainsi il est évident que la contribution d'un GES au réchauffement climatique ne dépend pas que de ses émissions. Un gaz comme le SF₆ peut avoir des conséquences dramatiques sur le climat même ses émissions restent modérées. L'augmentation de la concentration des GES dans l'atmosphère est alarmante. Le tableau (I.2) montre l'évolution de la concentration de certains GES depuis le début de la révolution industrielle.

Composé	Evolution	Gain (%)
CO ₂	278 à 358 ppmv	30 %
CH ₄	700 à 1721 ppbv	150 %
N ₂ O	275 à 311 ppbv	15 %
CF ₄	0 à 0,070 ppbv	100 %
CFC-12	0 à 0,503 ppbv	100 %
HCFC-22	0 à 0,105 ppbv	100 %
SF ₆	0 à 0,032 ppbv	100 %

Tableau I.2 : Evolution de la concentration de certains GES depuis la révolution industrielle [03]

Ceci prouve que certains des principaux GES sont uniquement d'origine anthropique. Leur introduction dans l'atmosphère est due à l'activité humaine.

I.3. Le dioxyde de carbone : principal gaz à effet de serre

Le dioxyde de carbone, est le résultat de la combinaison de deux éléments : un atome de carbone **C** et deux atomes d'oxygène **O**, la molécule ayant une structure linéaire de la forme O=C=O (figure (I.3)), et masse molaire 44,01 g mol⁻¹. Il est produit par différents processus : la combustion du charbon et des hydrocarbures, la fermentation des liquides et la respiration des humains et des animaux. On le trouve en faible proportion dans l'atmosphère ; il est assimilé par les plantes qui, à leur tour, produisent de l'oxygène. Sous les conditions normales de température et de pression, le CO₂ gazeux a une odeur légèrement irritante, il est incolore et plus lourd que l'air.

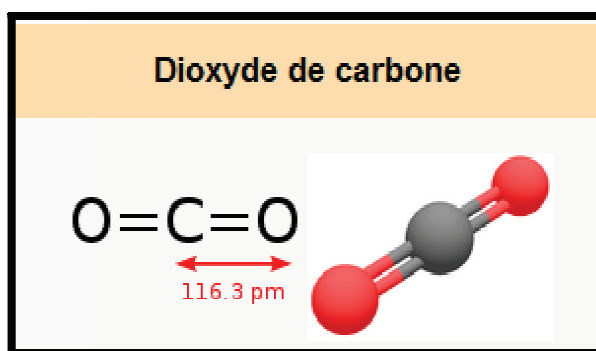


Figure I.3: Structure de dioxyde de carbone. [04]

I.3.1. Histoire

Le dioxyde de carbone est l'un des premiers gaz (avec la vapeur d'eau) à avoir été décrit comme étant une substance distincte de l'air. Au XVII^e siècle, le chimiste et médecin flamand Jean-Baptiste Van Helmont observa qu'en brûlant du charbon de bois en vase clos, la masse des cendres résultantes est inférieure à celle du charbon. Son interprétation était que la masse manquante s'était transmutée en une substance invisible qu'il nomme « gas » ou spiritus sylvestre (« esprit sauvage »).

Les propriétés du dioxyde de carbone furent étudiées plus en détail dans les années 1750 par le chimiste et physicien écossais Joseph Black. Il découvrit qu'en chauffant ou en versant un acide sur du calcaire (roche composée de carbonate de calcium), il en résultait l'émission d'un gaz, qu'il nomma « air fixe », mettant à mal la théorie du phlogiston encore enseignée à cette époque. Il observa que celui-ci est plus dense que l'air et qu'il ne peut ni entretenir une flamme, ni la vie d'un animal. Black découvrit également que lorsque le dioxyde de carbone est introduit dans une solution calcaire (hydroxyde de calcium), il en résulte un précipité de carbonate de calcium. Il utilisa ce phénomène pour illustrer le fait que le dioxyde de carbone est produit par la respiration animale et la fermentation microbienne. En 1772, le chimiste anglais Joseph Priestley publia un ouvrage intitulé *Impregnating Water with Fixed Air* dans lequel il décrit un processus consistant à verser de l'acide sulfurique (ou « huile de vitriol » comme on la nommait à cette époque) sur de la craie afin de produire du dioxyde de carbone, puis forçant le gaz à se dissoudre dans un bol d'eau. Il venait en fait d'« inventer » l'eau gazeuse. Le procédé est ensuite repris par Johann Jacob Schweppe qui fonda, en 1790, à Londres une usine de production de soda connue sous le nom de Schweppes.

En 1781, le chimiste français Antoine Lavoisier mit en évidence le fait que ce gaz est le produit de la combustion du carbone avec le dioxygène.

Le dioxyde de carbone fut liquéfié pour la première fois en 1823 par Humphry Davy et Michael Faraday. La première description du dioxyde de carbone en phase solide fut écrite par Charles Thilorier, qui en 1834 ouvrit un container pressurisé de gaz carbonique liquéfié et découvrit que le refroidissement produit par la rapide évaporation du liquide générait de la «neige» de CO₂.^[04]

I.3.2. Propriétés physiques et chimiques

Il y a plusieurs propriétés physico-chimiques qui sont caractéristiques du dioxyde de carbone. En voici un résumé dans le tableau suivant.

<i>Propriété</i>	<i>Valeur</i>
<i>Poids moléculaire</i>	44.01
<i>Gravité spécifique</i>	1.53 à 21 °C
<i>Densité critique</i>	468 kg/m ³
<i>Concentration dans l'air</i>	370,3 * 10 ⁷ ppm
<i>Stabilité</i>	<i>Elevée</i>
<i>Liquide</i>	<i>Pression < 415.8 kPa</i>
<i>Solide</i>	<i>Température < -78 °C</i>
<i>Constante d'Henry de solubilité</i>	298.15 mol/ kg * bar
<i>Solubilité dans l'eau</i>	0.9 vol/vol à 20 °C

Tableau I.3 : propriétés physico-chimiques de CO₂. [03]

Comme la plupart des gaz, le CO₂ peut exister sous quatre états différents selon les conditions ambiantes de température et de pression (figure (I.4)). On peut le trouver dans des états liquide, solide, gazeux ou supercritique. Le CO₂ est ainsi dit supercritique dans les conditions de température et de pression plus élevées que celles du point critique (T_c = 304,14 K et P_c=7,375 MPa). Dans ces conditions, le CO₂ présente une viscosité proche de celle d'un gaz et une densité proche de celle d'un fluide ainsi qu'une diffusivité élevée. Ces caractéristiques lui permettent d'être un bon solvant et d'être utilisé dans beaucoup d'applications industrielles.

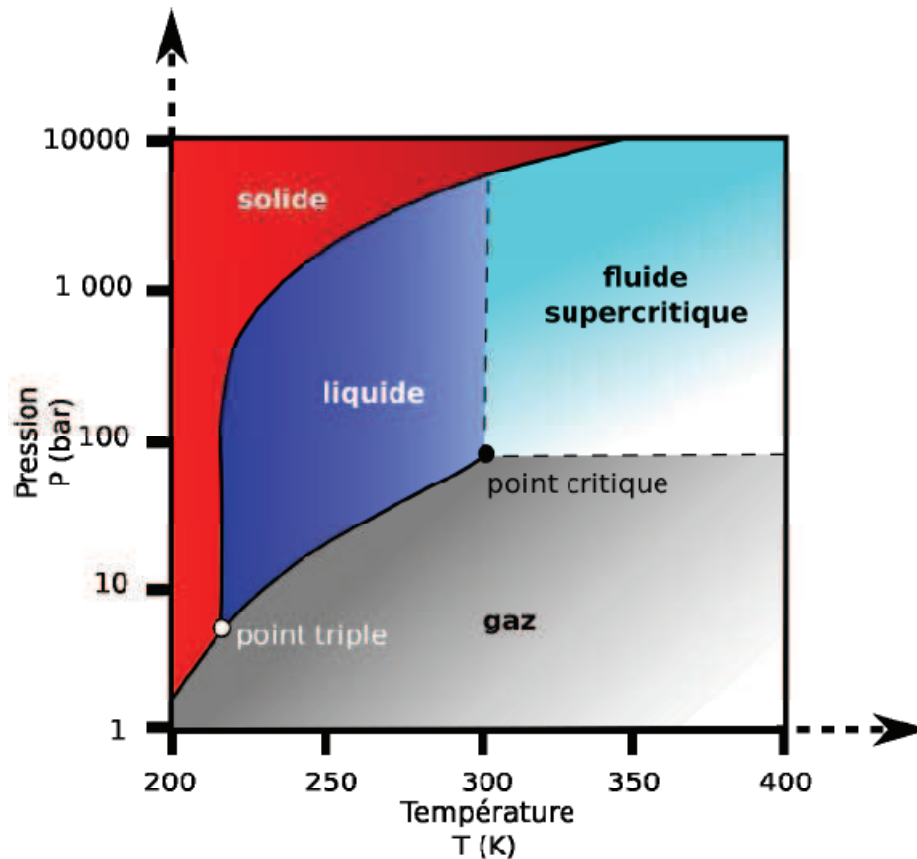


Figure I.4: Diagramme de phase pression-température du dioxyde de carbone, montrant le point triple et le point critique. [04]

A pression atmosphérique, il se sublime à $-78,5\text{ }^{\circ}\text{C}$ (passage de l'état solide à l'état gazeux), mais ne fond pas (passage de l'état solide à l'état liquide).

La phase liquide ne peut exister qu'à une pression minimale de 519 kPa (soit 5,12 atm), et dans un intervalle de température allant de $-56,6\text{ }^{\circ}\text{C}$ (point triple) à $31,1\text{ }^{\circ}\text{C}$ au maximum à 7,38 MPa (soit 72,8 atm) (point critique).

I.3.3. Émissions de dioxyde de carbone

I.3.3.1. Les émissions anthropiques

Ce sont les chauffages, véhicules, unités d'incinération et différents types de combustion ou fermentation. Les moteurs et unités de combustion normaux émettent des effluents gazeux (cheminées, pots d'échappement, réacteurs d'avions...) contenant en moyenne 20 % de CO₂, lequel se dilue rapidement dans l'air, sauf dans certaines zones confinées (garage...). Ce CO₂ pourrait par ailleurs agir sur la santé et l'environnement en synergie avec d'autres polluants

(NO_x et certaines micro- et nanoparticules notamment). Les émissions de « process » ou de « procédé » sont les émissions résultant directement d'un procédé chimique (ex : décarbonatation) mis en œuvre dans la fabrication, et non dues à l'utilisation d'énergie. Elles sont aussi à prendre en compte dans les bilans carbone, de même que celles induites par tout le cycle du nucléaire (extraction et préparation des minerais, gestion des stériles, déconstruction et fin de vie, etc.)

I.3.3.2. Les émissions naturelles

Qui sont d'origine volcanique, liée aux incendies de forêts, ou plus largement à la respiration animale et végétale et à celle des organismes du sol (fonge, bactéries, protozoaires...). Ce CO₂ représente la plus grande part, et il ne pose normalement pas de problème majeur de toxicité, hormis dans quelques cas très particuliers (accumulation de poche de CO₂ dans des creux, par exemple lors d'émissions brutales de CO₂ d'origine géologique, issus d'un dégazage brutal de gaz piégé sous les sédiments de fonds de lacs africains ; dans ce cas des centaines de milliers d'animaux et des centaines d'humains peuvent mourir asphyxiés dans les vallées périphériques).[04]

I.3.4. Concentration en CO₂ atmosphérique

Les émissions de CO₂ dans l'atmosphère provenant de l'utilisation des combustibles fossiles (hydrocarbures, pétrole, charbon, gaz naturels) ont augmenté de façon exponentielle depuis environ 1750 (figure (I.5)). Ces émissions annuelles de CO₂ représentant un flux d'environ 6 Gt C/an sont très importantes par rapport aux flux nets de carbone échangé entre l'atmosphère et la biosphère et entre l'atmosphère et l'hydrosphère. Ces émissions sont la cause principale de l'accumulation du CO₂ dans l'atmosphère.

De nombreuses mesures de la concentration en CO₂ dans l'atmosphère, effectuées au cours du XX^e siècle ont mis en évidence une augmentation d'environ 6% entre 1900 et 1935. Puis au cours des années 1980, des scientifiques ont développé des instruments permettant de mesurer la concentration en CO₂ dans des bulles d'air piégées dans la glace. Ces méthodes ont permis d'estimer une concentration en CO₂ durant l'ère pré-industrielle comprise entre 275 ppm et 285 ppm. Dans les années 2000, la concentration en CO₂ a atteint les 368 ppm, avec une augmentation moyenne d'environ 1 ppm par an entre 1958 et 2000. Cependant, ce taux d'augmentation de la concentration en CO₂ dans l'atmosphère n'est pas stable. En effet, celui-ci a été estimé à 1,5 ppm par an sur les dernières décennies. L'augmentation du CO₂ entre

1700 et 2000 est d'environ 85 ppm, équivalente à une libération d'environ 175 Pg de carbone dans l'atmosphère, soit 30% du niveau préindustriel. Actuellement, la concentration en CO₂ atmosphérique est d'environ 387 ppm (mesurée en 2009) et l'on prévoit un doublement de cette concentration par rapport au niveau pré-industriel d'ici la fin du siècle, soit environ 560 ppm dans l'atmosphère en 2100 (Watson et al., 1990 ; Friedlingstein et al., 2006 ; IPCC, 2007).[05]

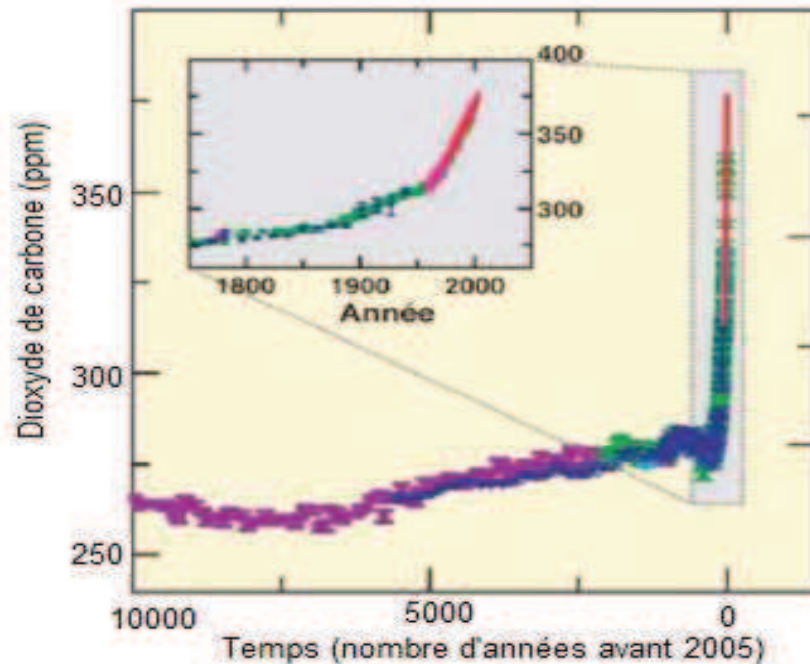


Figure I.5 : Concentration atmosphérique de CO₂ durant les 10 000 dernières années (grand graphique) et depuis 1750 (médaillon). Les mesures proviennent des carottes de glace (symboles de couleurs différentes correspondant aux diverses études) et d'échantillons atmosphériques (lignes rouges), modifié d'après IPCC (2007). [05]

I.3.5. Applications industrielles.

Le dioxyde de carbone possède déjà certaine application industrielle, notamment:

➤ **Industrie chimique**

Le dioxyde de carbone est utilisé en chimie de synthèse ou pour le contrôle de la température des réacteurs. Le CO₂ est également mis en œuvre pour la neutralisation des effluents alcalins. Il est utilisé sous des conditions supercritiques pour réaliser des purifications ou des opérations de teintures de fibres polymères ou végétales ou animales

➤ **Pâtes et papier**

Le dioxyde de carbone de réguler finement le pH des pâtes recyclées, mécaniques ou chimiques après un blanchiment alcalin. Il peut être également utilisé dans la neutralisation du "talloil" et pour l'amélioration du fonctionnement des machines à papier.

➤ **Alimentaire et boissons**

Le CO₂ est utilisé dans le secteur alimentaire dans ces principaux domaines :

- La carbonatation des boissons gazeuses, comme les sodas, l'eau minérale ou la bière,
- Dans le conditionnement des denrées alimentaires, ses propriétés d'interagie et bactériostatiques se combinent bien avec celles de l'azote et augmentent la durée de vie des aliments,
- Comme fluide cryogénique dans les opérations de refroidissement ou de congélation ou comme glace carbonique pour la régulation des températures pendant la distribution des denrées alimentaires,
- La caféine est ôtée du café par du CO₂ supercritique.

➤ **Industrie pharmaceutique**

Le dioxyde de carbone est utilisé pour l'inertage, la synthèse chimique, l'extraction en phase supercritique (SFE), la neutralisation (pH) des effluents aqueux ou le transport de produits à basse température (-78 °C or -108 °F).

➤ **Santé**

Le CO₂ produit une atmosphère proche des conditions physiologiques lors de la manipulation d'organes artificiels.

Il est utilisé en mélange avec l'air ou l'oxygène pour doper la respiration.

Il sert aussi pour la dilatation chirurgicale par insufflation intra-abdominale.

➤ **Industrie des métaux**

Le dioxyde de carbone est généralement utilisé pour la protection de l'environnement :

- le CO₂ est employé pour supprimer les fumées rousses pendant le chargement des riblons et du charbon, pour la réduction de la prise d'azote durant la coulée à partir d'un EAF et pour brasser le mélange au niveau de la sole,
- Dans la métallurgie non ferreuse, le dioxyde de carbone sert à supprimer les fumées pendant le transfert de matte (production de Cu / Ni) ou des lingots de métal précieux (production de Zn / Pb) dans la poche de coulée,
- De petites quantités de CO₂ liquide peuvent être utilisées dans les procédés de recyclage des eaux provenant des drains des mines,
- Les lasers CO₂ sont alimentés par du gaz carbonique à pureté adaptée.

➤ **Laboratoires et analyses**

Le CO₂ est la phase mobile dans des procédés d'extraction ou de chromatographie en phase supercritique.

➤ **Électronique**

Le dioxyde de carbone est généralement employé dans le traitement des eaux usées ou en tant que milieu de refroidissement durant les essais climatiques des composants électroniques.

➤ **Environnement**

L'injection de dioxyde de carbone permet de maîtriser le pH des effluents aqueux. Le CO₂ est une excellente alternative au contrôle du pH par l'acide sulfurique.

➤ **Autres industries**

Neige carbonique pour extincteurs. Contrôle et régulation du pH des eaux usées, piscines, etc.

Il peut servir à augmenter la conductivité de l'eau ultra-pure ou pour le nettoyage abrasifs de pièces sous forme de neige carbonique et dans le procédé propre de nettoyage des résines photosensibles au CO₂ supercritique afin d'éviter l'utilisation de solvants organiques.

En 2008, L'utilisation industrielle annuelle de CO₂ s'élève à 153 Mt au niveau mondial, ce qui ne représente qu'environ 0.5% des émissions anthropique de CO₂ (30 Gt). Le potentiel de croissance de ces applications est limité et les volumes de CO₂ recyclés par ces voies devraient rester faibles. Il est donc impératif de trouver de nouvelles applications au dioxyde de carbone pour permettre une réduction significative de ses de ses émission par le biais de sa valorisation. Il faut donc mettre au point des technologies innovantes ouvrant des applications à grande échelle, tout en s'assurant de leur impact positif sur l'environnement.

I.3.6. Techniques de réduction des émissions de CO₂

I.3.6.1. Démarche préventive

Pour réduire les émissions de dioxyde de carbone, plusieurs solutions sont envisageables. Parmi ces solutions on peut citer :

- La réduction de la consommation de l'énergie : la consommation de l'énergie peut être maîtrisée en modifiant les habitudes des consommateurs (meilleure isolation des habitations, meilleur entretien des appareils de chauffage et des appareils électroménagers, utilisation du transport en commun et du covoiturage...) et en négociant des engagements avec chaque secteur de l'économie. Ainsi, par exemple, les constructeurs automobiles européens ont pris des engagements qui devraient se traduire par une baisse sensible des émissions de CO₂ au kilomètre parcouru : de 190 g/km en 1997 à 160 g/km en 2003 puis 140 g/km en 2008, avec un objectif de 120 g/km en 2012.
- Mise au point de carburants et combustibles dégageant moins de CO₂ par unité d'énergie produite. Ainsi, en remplaçant le charbon par le gaz naturel dans les centrales thermiques on peut arriver à réduire de façon significative les émissions de gaz carbonique.

- Utilisation de l'énergie nucléaire et des énergies renouvelables, même si chacune de ces options possède ses propres limites.
- L'usage de carburants et de biocarburants issus de la biomasse peut également contribuer à l'amélioration du bilan CO₂, car la production de biomasse s'effectue avec capture de CO₂ atmosphérique.[02]

I.3.6.2. Stockage géologique

Le stockage géologique du dioxyde de carbone est envisagé comme une des formes possibles de traitement du carbone récupéré dans les processus expérimentaux de captage et de stockage du dioxyde de carbone, à but de séquestration du carbone (ou du dioxyde de carbone), pour limiter la contribution de ce gaz à l'acidification des milieux et aux modifications climatiques dont il est probablement une des causes.

La technologie de captage et de stockage géologique du CO₂ est en plein développement. Elle consiste :

- **Captage :** Capturer artificiellement le dioxyde de carbone dans l'air ou à la sortie de toutes les cheminées et pots d'échappement est un préalable qui est aujourd'hui, en général, techniquement possible, mais n'est pas économiquement rentable.
- **Transport:** Le transport se ferait par gazoduc ou, le cas échéant, par navires.
- **Stockage :** Le stockage est réalisé dans des couches géologiques perméables, surmontées de couches étanches qui maintiennent le CO₂ en sous-sol. Les sites choisis doivent être à une profondeur suffisante pour permettre au CO₂ stocké d'atteindre l'état quasi liquide et ainsi d'occuper le volume le plus faible possible.

A l'heure actuelle, il n'existe qu'une dizaine de sites de stockage en fonctionnement dans le monde, dont les plus importants sont : Weyburn et Zama (Canada), Sleipner (Norvège), In Salah (Algérie), Snovit (Norvège), K12b (Pays-Bas), Blue Lake (Etats-Unis) et Ketzin (Allemagne).

I.3.6.3. Techniques par plasmas

Les techniques de dépollution par plasmas sont divisées en deux groupes. Le premier groupe utilise des plasmas thermiques (torche à plasma ou arc électrique) pour faire monter la température du gaz (500 à 1200°K) et favoriser ainsi certaines réactions de réduction. Le second groupe utilise des plasmas non thermiques (ou hors équilibre) pourensemencer le gaz

en espèces excitées et radicalaires et ainsi initier une cinétique chimique de transformation des polluants.

Les techniques nécessitant des températures de gaz élevées sont :

- **Le bombardement (ou irradiation) du gaz d'échappement par faisceau électronique.**
Cette technique a été initiée dans les années 1970 par la société japonaise EBARA puis elle s'est développée dans les années 1980 en Allemagne et aux Etats-Unis.
- **Les décharges électriques hors équilibre.** Différents types de décharges électriques à la pression atmosphérique peuvent être utilisées comme les décharges couronne, les décharges à barrières diélectriques, les décharges de surface et les décharges glidarc.
- ✓ Les décharges couronnes s'établissent dans un intervalle gazeux séparé par deux électrodes dissymétriques entre lesquelles s'établit un champ géométrique non uniforme. A titre d'exemple, le tableau (I.4) donne le pourcentage relatif de conversion de quelques espèces initialement présentes dans un mélange $N_2 - O_2 - CO_2 - CO - NO_x - SO_2$ traité par décharge couronne en géométrie fil – cylindre sous deux régimes de tension continue (DC+) et (DC-) (c'est à dire lorsque la haute tension est appliquée au fil ou au cylindre).

Espèces	CO ₂	O ₂	CO	NO _x	SO ₂
Concentration initiale	2 (%)	18.5 (%)	500 ppm	40ppm	300ppm
%relatif de conversion (DC+)	-8 (%)	+1.1(%)	-27(%)	-62(%)	-79(%)
%relatif de conversation (DC-)	-8 (%)	+2 (%)	-23(%)	-100 (%)	-94 (%)

Tableau I.4 : Résultats de conversion pour un mélange $N_2 - O_2 - CO_2 - CO - NO_x - SO_2$ obtenus par décharge couronne DC en géométrie fil – cylindre.[06]

- ✓ Les décharges à barrières diélectriques sont réalisées dans un espace inter – électrodes de faible distance, isolé par la présence d'au moins un diélectrique sur l'une des électrodes métalliques (limitant ainsi le risque de passage à l'arc). Les recherches en laboratoire montrent que ce type de réacteur est adapté à l'élimination de polluants oxydables.
- ✓ Les décharges de surface sont de configuration plane ou cylindrique. Un diélectrique (céramique) sur lequel une décharge rampante se propage est incorporé entre les

électrodes. L'électrode active est une grille placée en surface de la céramique et l'électrode de masse est un film métallique incorporée dans cette dernière. Ce type de réacteur a des propriétés similaires à celles rencontrées dans les décharges couronne.

- ✓ Les décharges glidarc apparaissent dans des réacteurs constitués de deux électrodes divergentes. La décharge s'amorce au niveau du col des électrodes puis se propage le long de celle-ci du fait du flux de gaz à traiter. Les décharges obtenues sont intermédiaires entre les plasmas hors équilibre et les arcs électriques, la température du gaz étant de l'ordre de 4000°C.

La partie suivante rappelle le principe de fonctionnement des réacteurs corona qui sont l'objet de notre étude dans ce travail.

I. 4.Décharge couronne

Toutes les décharges pré-disruptives apparaissant sous la forme de lueurs diverses qui prennent naissance au voisinage d'une électrode à faible rayon de courbure ou dans un champ non uniforme se qualifient de décharges couronne. La décharge couronne est liée à l'apparition de l'avalanche électronique qui se développe dans un intervalle gazeux séparant deux électrodes asymétriques soumises à un champ électrique hétérogène à des pressions de quelques torrs à quelques atmosphères. La décharge couronne se manifeste dans les conditions naturelles. Elle apparaît lorsque la valeur maximale du champ électrique atteint celle du champ d'ionisation du gaz «air» et se manifeste sur toute la gamme de fréquences de la tension. La décharge couronne se caractérise par des phénomènes de nature optique, acoustique et électrique. [07]

La décharge couronne se produit d'habitude aux alentours de la pression atmosphérique. Elle est toujours associée à deux électrodes, l'une à un petit rayon de courbure (pointe ou fil), est soumise à une haute tension. L'autre électrode a un rayon de courbure beaucoup plus grand (plaque plate ou cylindre). La polarité de la couronne dépend de la nature de la tension appliquée à l'électrode de faible rayon de courbure (voir figures (I.6) et (I.7))

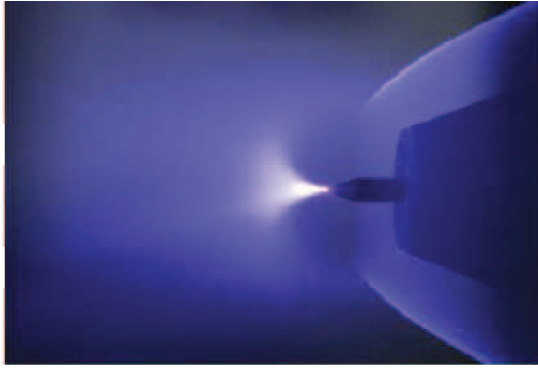


Figure I.6: Décharge couronne, polarité positive[08]

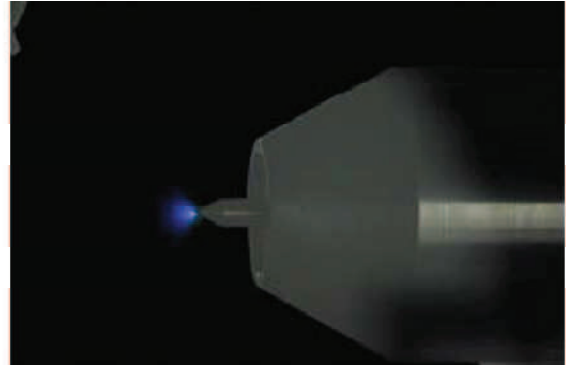


Figure I.7: Décharge couronne, polarité négative[08]

I.4.1. Phénomènes de multiplications électroniques

L'application d'un champ électrique suffisamment intense conduit à l'ionisation du gaz. Cette dernière se fait par le transfert de l'énergie cinétique des électrons aux molécules neutres du gaz, et dans ce cadre il existe deux types de collisions entre ces éléments.[08]

1. Choc élastique : dans ce cas les atomes conservent la même structure interne, seule leur vitesse est accrue. L'énergie du système reste inchangée.

2. Choc inélastique : dans ce cas l'énergie interne des particules change. Les chocs inélastiques sont la source d'un nombre important de réactions physico-chimiques qui vont alors modifier les propriétés macroscopiques du gaz.

a) Excitation atomique : un atome neutre peut être excité par collision avec un électron ou bien par absorption d'un photon.

- Excitation par collision avec un électron



- Excitation par absorption d'un photon



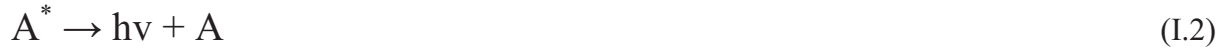
Avec :

h : Constante de Planck « $h = 6.62 \cdot 10^{-34} \text{ J} \cdot \text{s}$ »,

ν : Fréquence du photon « Hz »,

$h\nu$: Énergie du photon « J »,

Lorsque l'atome excité revient à son état initial, un photon est émis, c'est ce processus qui intervient dans l'effet couronne et qui est responsable des effets lumineux :



b) Ionisation par choc électrique : ce phénomène est régi par l'équation(I.3).



c) photon suffisamment énergétique.



d) Recombinaison et attachement : les processus conduisant à la diminution du nombre d'électrons libres dans un gaz ionisé peuvent être de deux types : attachement ou recombinaison.

- L'attachement :



- La recombinaison :



I.4.2. Différents régimes de la décharge (caractéristique courant-tension)

La figure (I.8) décrit le comportement du courant en fonction de la valeur de la tension appliquée. La courbe permet de distinguer quatre régimes régissant la décharge couronne.

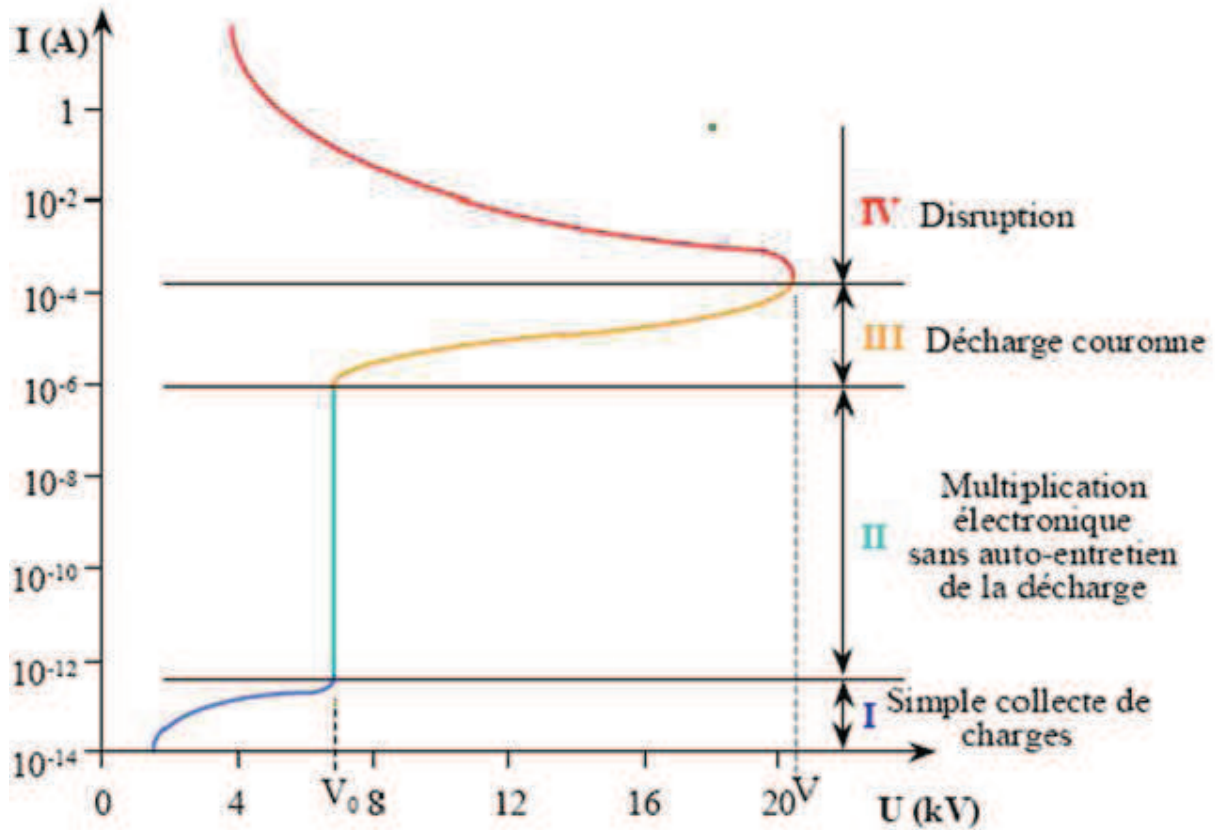


Figure I.8: Caractéristique courant-tension d'une décharge couronne dans l'air à pression atmosphérique (configuration pointe-plan).[08]

- ✓ le premier régime : consiste en 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 électrodes.
- ✓ Le second régime : 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. Le courant augmente très fortement pour une très faible variation de la tension appliquée.
- ✓ Le troisième régime : l'ionisation du gaz par la décharge est suffisante pour ne plus nécessiter de phénomènes d'ionisation extérieurs : la décharge est autoentretenu. C'est le régime de la décharge couronne, où apparaissent les dards, appelés aussi streamers, qui est responsable de la composante impulsionnelle du courant.

- ✓ Le quatrième régime : au-delà d'une tension appliquée «V», la température du canal augmente fortement, ce qui provoque la dilatation brutale du gaz. Le champ réduit « $\frac{E}{N}$ » est alors suffisamment important pour que les phénomènes d'ionisation deviennent majoritaires par apport à l'attachement électronique. Le régime d'arc est atteint, le milieu passe à l'état de plasma thermique.

I.4.3.Mécanisme de la décharge couronne

Les décharges sont interprétées sur la base de deux modèles:

- ✓ Le premier concerne les décharges à long rayon d'action faisant intervenir l'intervalle de décharge tout entier et notamment les effets secondaires à la cathode: c'est la décharge de Townsend.
- ✓ Le deuxième modèle mis au point pour expliquer la rapidité des phénomènes concernant les décharges à court rayon d'action, faisant intervenir la situation locale: c'est la décharge par Streamers.

I.4.4.Différentes géométries d'électrodes

La décharge couronne apparaît entre deux électrodes asymétriques. Ce type de décharge se caractérise par un champ fortement inhomogène et intense au voisinage de l'électrode de petite dimension. Les configurations courantes de réacteur plasma à décharge couronne, qui varient en fonction des applications, correspondent aux géométries d'électrodes suivantes Figure (I.9):




➤ Fil-plan :	➤ Fil-cylindre	➤ Pointe-plan
		

Figure I.9 : Trois exemples de configurations de réacteurs couronne couramment utilisés [09].

Le système d'électrodes « fil – cylindre » est très utilisé pour la dépollution en volume.

Le système mono pointe – plan à l'avantage de pouvoir isoler une décharge d'une part.

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

I.4.5. Différents types des décharges couronnes

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.

I.4.5.1. Décharge électrique couronne à polarité positive :

La figure (I.10) illustre le processus de génération d'électrons qui sont accélérés vers le fil dans l'espace inter électrodes dans le cas d'une décharge couronne positive, à courant continu, pour une géométrie fil-cylindre. Dans la région d'ionisation, très près du fil, où le champ électrique réduit (E/N , ou N est la densité moléculaire) est plus grand que 120 Td ($1 \text{ Td} = 10^{-21} \text{ V.m}^2$), les collisions non-élastique entre les électrons et les molécules neutres du gaz produisent des paires électron-ion positif, par exemple dans l'air sec, O_2^+ 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 photoionisation 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 Inclulet [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.

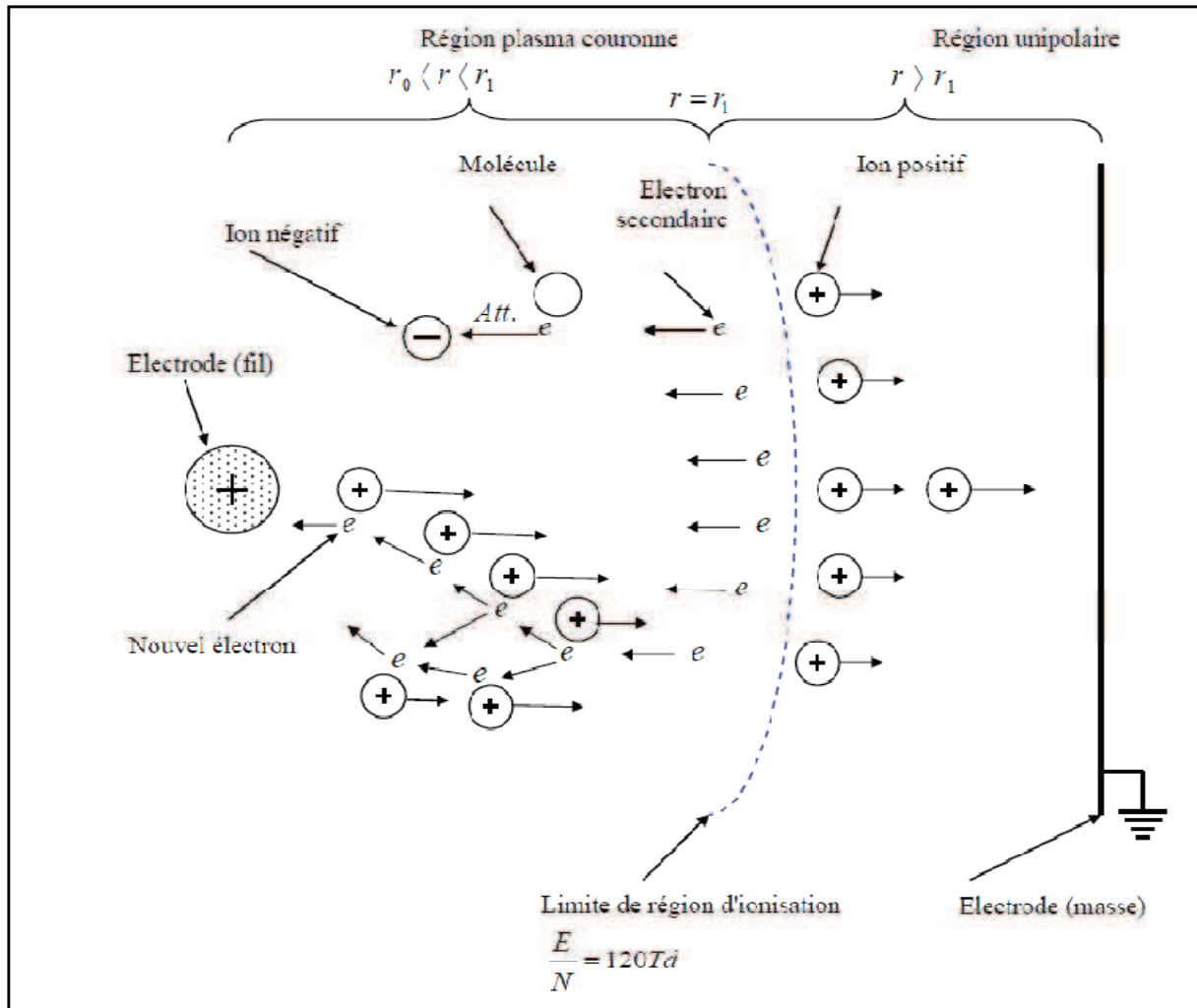


Figure I.10: Processus d'une décharge électrique couronne positive. [10]

I.4.5.2. Décharge électrique couronne à polarité 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_2 [11], 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), 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.11) permet de visualiser les différents processus intervenant dans une décharge négative.

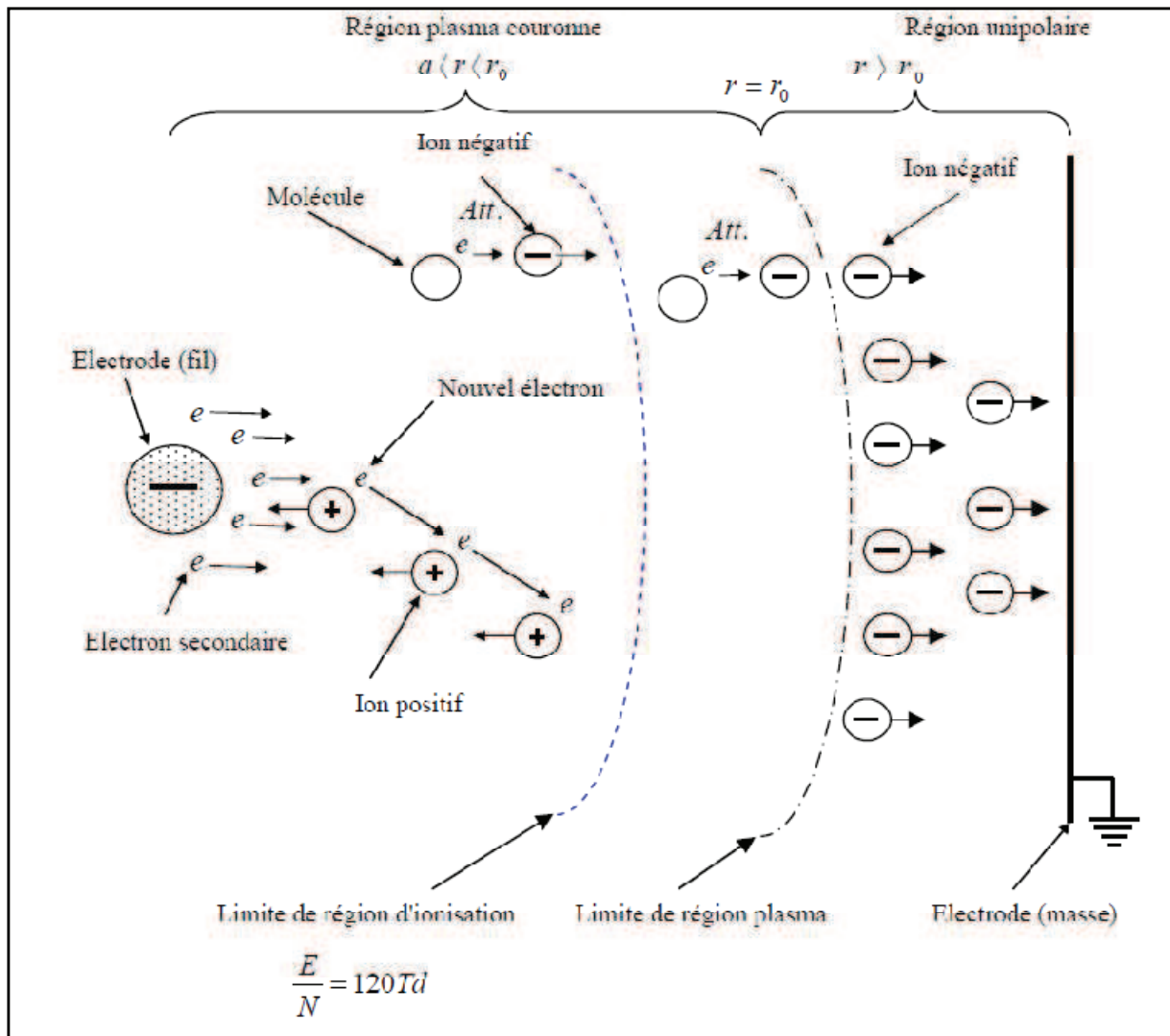


Figure I.11: Processus d'une décharge couronne négative.[11]

I.4.5.3. Décharge électrique 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 CC (courant continu) 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.

I.4.6. Utilisations de l'effet de couronne :

Les applications de la décharge couronne ont existé pendant plus d'une centaine d'années, à partir du premier dépoussiéreur électrostatique de Lodge [12]. Depuis lors, la décharge

couronne a été intensivement employée dans plusieurs produits commerciaux et gagne d'attention pour l'usage dans d'autres applications, parmi ces applications, on peut citer :

I.4.6.1. Dépoussiéreurs électrostatiques

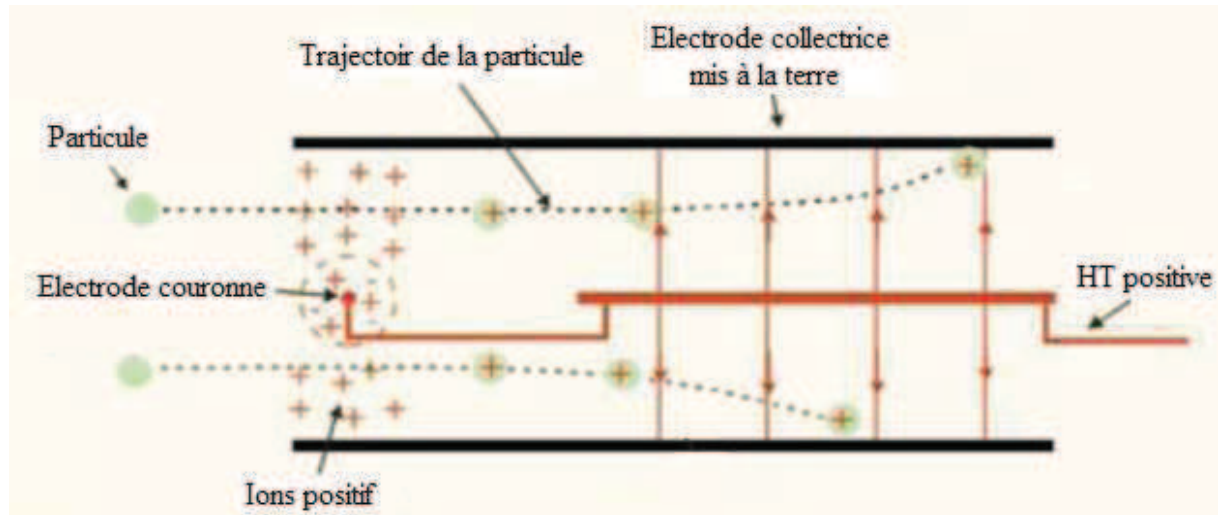


Figure I.12: Dépoussiéreur électrostatique. [13]

Les dépoussiéreurs électrostatiques, appelés aussi « électro filtres », font partie des systèmes de dépollution des fumées industrielles qui offrent une bonne efficacité de collecte avec une faible perte de charge.

Le principe de tels systèmes est de charger les particules présentes dans les fumées qui s'écoulent dans les cheminées à l'aide d'une électrode active, et de les attirer vers une électrode de collecte. Le système est composé d'une ou plusieurs électrodes actives, c'est à dire portées à un potentiel électrique, et d'électrodes collectrices le plus souvent reliées à la masse. Les électrodes actives peuvent être de différentes formes.

L'application d'une haute tension entre les deux électrodes génère un écoulement appelé : vent ionique. Son origine s'explique par le mouvement des porteurs de charge entre les électrodes drainant avec eux les molécules neutres de l'air.

Un dépoussiéreur électrostatique ou électro filtre utilise l'effet couronne pour ioniser les poussières contenues dans l'air, les accélérer et les déposer sur des électrodes collectrices d'où elles seront éliminées par frappe ou lavage [13].

I.4.6.2. Séparateurs électrostatiques :

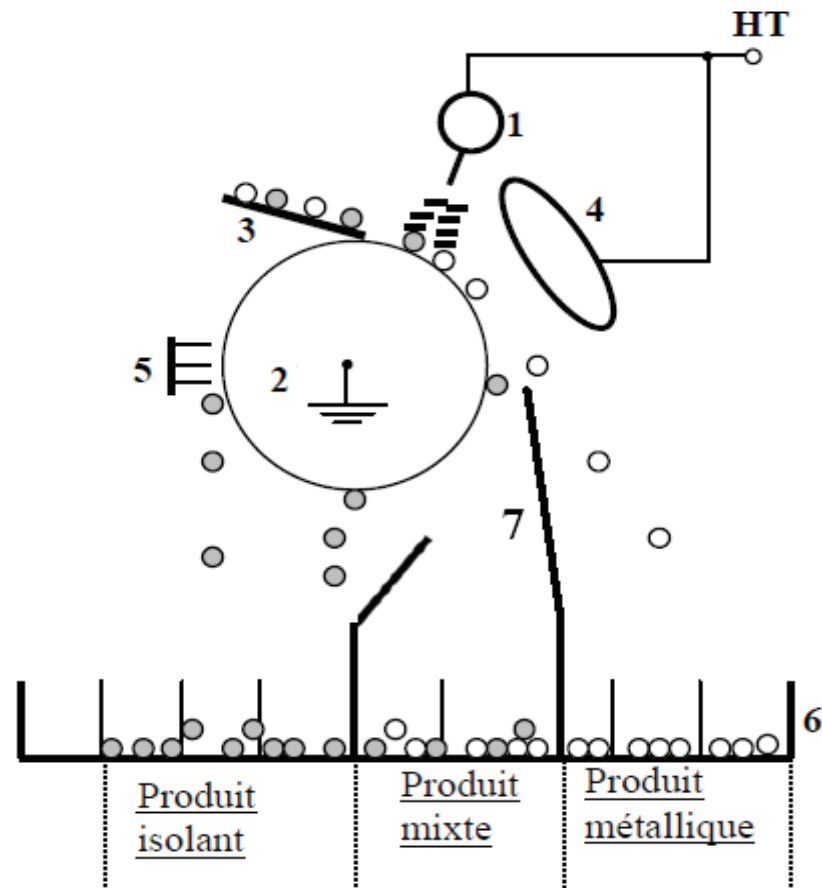
Comme la plupart des applications de l'électrostatique, la séparation des matériaux granulaires a réalisé un développement significatif ces 30 dernières années [14]. De nouvelles technologies ont été développées, et le spectre des matériaux traités est devenu extrêmement large. En dépit de la diversification, la séparation haute tension à tambour représente la plus importante partie du marché.

- **Principe de fonctionnement d'un séparateur électrostatique :**

Le schéma de la figure (I.13) montre les différents éléments composant le séparateur et le rôle de chacun d'eux. Des charges électriques sont créées par ionisation de l'air grâce à la décharge couronne générée par l'électrode à pointes (1), appelée électrode couronne. Les granules déposés sur le cylindre tournant (2) par le vibro – transporteur (3) acquièrent tous une charge électrique q de même signe que le potentiel de la haute tension continue, et se comportent différemment suivant qu'ils soient électriquement conducteurs ou isolants.

- Les granules isolants restent "collés" au tambour et adhèrent à sa surface grâce à la force d'image électrique. Ils tombent dans le collecteur (6), dans la partie qui leur est réservée, lorsque la force de pesanteur l'emporte sur la force d'image. Pour assurer la chute de ces particules, certains électro – séparateurs sont équipés par une autre électrode de neutralisation (7), pour éliminer la charge q par neutralisation. Les particules qui ne tombent pas et qui restent "collées" sont éliminées mécaniquement par une brosse (5).
- Les granules conducteurs perdent rapidement la charge q acquise par effet couronne, à travers le cylindre relié à la terre. En arrivant dans la zone du champ électrostatique généré par l'électrode statique de forme elliptique (4), ils acquièrent par induction électrostatique une charge de signe opposé au potentiel de la haute tension continue. Ils sont ensuite attirés par l'électrode elliptique et déposés dans la partie droite du collecteur.

Dans tous les cas, le produit granulaire à séparer est déposé sur la surface de l'électrode cylindrique reliée à la terre, qui l'introduit dans la zone du champ électrique. Deux mécanismes de charge sont simultanément employés: "bombardement ionique" et "induction électrostatique". Le premier est destiné aux particules isolantes seulement, passant à travers la décharge couronne, le deuxième implique seulement les particules conductrices en contact avec le tambour en présence d'un champ électrique externe, à savoir le champ électrostatique créé par électrode elliptique.



- (1) : Electrode couronne reliée à une H.T continue. (2) : Electrode cylindrique reliée à la terre.
 (3) : Vibro-transporteur. (4) : Electrode statique reliée à la même HT continue.
 (5) : Brosse. (6) : Collecteur de particules.
 (7) : Electrode de neutralisation reliée à une H.T alternative.

Figure I.13: Principe de fonctionnement d'un séparateur électrostatique [14].

I.4.6.3. Dépollution des gaz :

La consommation d'énergie, les activités industrielles et automobiles produisent des rejets contenant des effluents nocifs en quantité importante. La réglementation impose des normes de plus en plus contraignantes sur la qualité des effluents rejetés. Il est nécessaire de traiter ces gaz d'échappement avant leur rejet dans l'atmosphère.

Les principaux polluants liés aux activités de combustion du charbon et du pétrole sont :

- Les oxydes de soufre (SOX) ;
- Les oxydes d'azote (NOX) ;

- L'ozone (O_3) ;
- Les Composés Organiques Volatils (COV) ;
- Le monoxyde de carbone (CO) ;
- Les poussières et les suies ;
- Les métaux toxiques.

Différentes techniques de dépollution des gaz d'échappement existent, leurs avantages et leurs inconvénients varient selon les proportions des molécules, du volume et des caractéristiques physiques du gaz à traiter.

1. Techniques dites « classiques » pour la dépollution des gaz ;
2. Techniques de dépollution par plasmas [15];
3. Dépollution par décharge couronne[16].

➤ **Dépollution par décharge couronne :**

La dépollution des effluents gazeux par plasmas froids ou non thermiques s'effectue par l'intermédiaire de décharges électriques. L'une des décharges la plus adaptée est la décharge couronne. Elle permet de traiter les gaz à pression atmosphérique, au sein même de leur conduit d'évacuation. Le traitement s'effectue soit en détruisant les espèces toxiques soit en les transformant en espèces moins nocives et/ou plus facilement traitables par d'autres techniques de dépollution. Les espèces toxiques traitées peuvent être des oxydes d'azote et de soufre du type NO_x et SO_x ou des Composés Organiques Volatiles (COV). Des recherches sont également en cours pour estimer le potentiel de traitement des suies par des dispositifs hybrides couplant les décharges couronne avec des catalyseurs. Dans certains cas, le réacteur corona peut également servir de précipitateur électrostatique et piéger les poussières ou les particules lourdes.

Au bilan, le traitement d'un gaz d'échappement par réacteur corona s'effectue en trois principales étapes correspondant à des échelles de temps bien distinctes [17]:

- Etape 1 : Création des radicaux;
- Etape 2 : Destruction des oxydes ou des autres espèces toxiques;
- Etape 3 : Réactions ultérieures.

Ces étapes sont schématisées sur la figure (I.14):

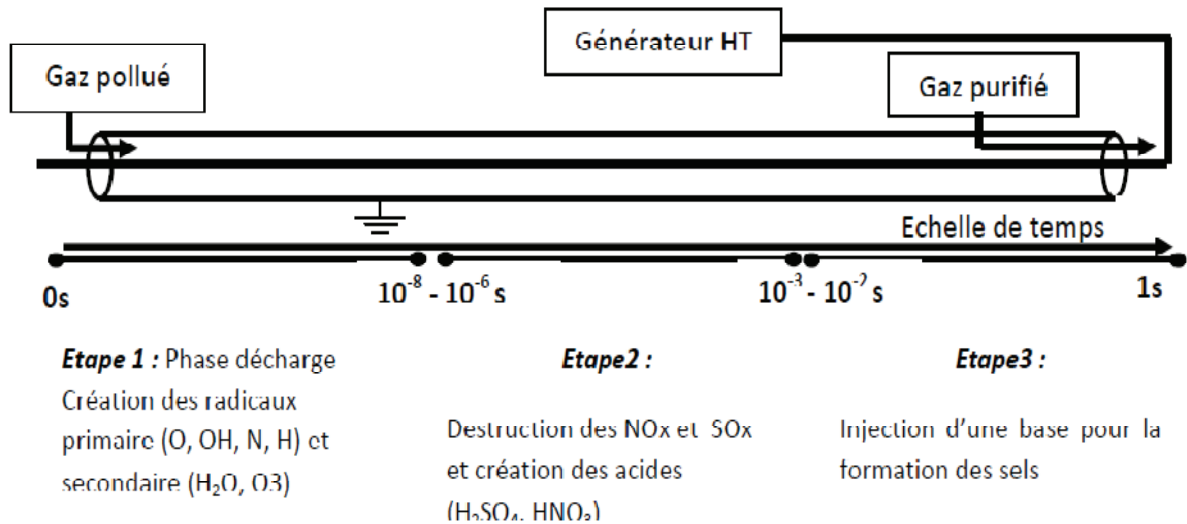


Figure I.14: Représentation schématique des principales étapes de la destruction
Des oxydes toxiques par décharge couronne. [17]

I.4.6.4. Générateurs d'ozone :

Une autre solution pour traiter les effluents gazeux est d'utiliser l'ozone (O_3) : au lieu de créer un milieu fortement réactif, une espèce possédant un fort pouvoir oxydant est introduite dans le gaz à traiter. Cette espèce est l'ozone.

L'ozone est également utilisé dans le traitement de l'eau mais aussi dans de nombreux domaines comme l'industrie agro-alimentaire en tant que désinfectant ou conservateur.[18]

✓ Générateurs avec Décharge à Couronne à Oxygène pure (CDOX) :

Ils produisent l'ozone à travers le passage d'oxygène déshumidifié, par l'intermédiaire d'un champ électrique à très haute intensité. Ces appareils produisent des grandes quantités d'ozone, mais ils nécessitent toujours et seulement de l'oxygène à l'état sec. Ces générateurs sont jusqu'à 10 fois plus puissants qu'un générateur UV. Ils produisent cependant une considérable quantité de chaleur (deux fois plus qu'un générateur UV) qui doit être dissipée. Le coût de dissipation doit toujours être pris en compte dans le coût global de l'installation. Les générateurs de ce type ne sont employés que dans le domaine des traitements industriels de haut niveau, et dans les villes pour rendre potable des millions de mètres cube d'eau par heure.

✓ Générateurs avec décharge Couronne à coefficient réduit (RCCD) :

Ils produisent l’ozone à travers le passage d’air, par l’intermédiaire un champ électrique à très haute intensité. Ces types d’appareils n’exigent que de l’air. La capacité de génération est jusqu’à 4 fois supérieure aux appareils à UV de même puissance électrique.

Ils peuvent être employés par exemple, dans l’aviculture où la production demandée est très basse : Un générateur de type RRCD qui produit 8 milligrammes d’ozone l’heure, suffit pour désinfecter: couveuses, éclosiers, chambres chaudes, box avec nids, salles et chambres grandes même jusqu’à 12 mètres cube.

I.5 Conclusion

Ce chapitre a permis de faire le point sur les gaz à effet de serre notamment le dioxyde de carbone dont nous avons expliqué brièvement les propriétés physico-chimique ainsi que les technique de réduction de son émission (stockage géologique, technique par décharge couronne). Nous avons mis l’accent sur la technique par décharge couronne, l’objet de cette étude .Il existe plusieurs configurations géométriques d’électrodes permettant la réalisation de décharges couronnes. L’utilisation d’une configuration plutôt qu’une autre est conditionnée par l’application envisagée, parmi ces configurations la décharge couronne négative de type fil cylindre que nous allons modéliser dans le chapitre suivant.

Chapitre II. :

*Modèles physiques d'une
décharge électrique couronne*

CHAPITRE II

MODELES PHYSIQUES D'UNE DECHARGE ELECTRIQUE COURONNE

Dans ce chapitre on décrit, l'équation de Boltzmann et les équations qui caractérisent l'évolution d'un plasma dans une décharge électrique et on met l'accent sur la description des différentes approches existantes pour modéliser une décharge électrique et les différentes approximations qu'elles nécessitent. Ensuite on présente une description de la modélisation d'une décharge électrique couronne négative à courant continu dans le dioxyde de carbone avec une géométrie d'électrode fil-cylindre dont l'état stationnaire de la décharge couronne est décrit par les équations de continuité des espèces chargés et neutres, couplées à l'équation du Poisson.

II.1. Introduction:

L'expérimentation sur les plasmas coute cher et du fait de la complexité des problèmes rencontrés dans la physique des plasmas, il est indispensable de développer des modèles numériques de simulation des mécanismes rencontrés lors d'une décharge. En effet, la modélisation joue un rôle assez important dans le développement de la théorie des plasmas de par la pertinence des résultats numériques prédits par ces simulations.

L'étude des plasmas peut être abordée suivant deux angles distincts qui sont soit la description sous forme de fluide ou l'aspect cinétique [19]. De façon générale, ces modèles permettent la détermination :

- ❖ Des paramètres électriques de la décharge, c'est-à-dire les variations spatio-temporelles du champ électrique, du courant et du potentiel et également la détermination de puissance dissipée et du déphasage tension-courant.
- ❖ Des profils de densités et des fonctions de distribution en énergie des espèces chargées, avec les variations spatio-temporelles correspondantes
- ❖ Des taux (ou fréquences) des divers processus de collision tels l'ionisation, l'attachement, l'excitation ou la dissociation.

L'équation de base de la théorie des plasmas fait intervenir la fonction de distribution des vitesses due au champ extérieur qui décrit la variation du nombre de particules en fonction du temps. Cette équation est l'équation de Boltzmann

II.2. Principe d'un modèle complet d'une décharge électrique:

Un modèle complet et idéal de décharge électrique haute pression serait donc un modèle multidimensionnel s'appuyant sur les éléments suivants [20]:

1) - une description des phénomènes de transport électronique et ionique dans l'espace interélectrode avec des termes de création de particules chargées à partir de l'état fondamental des atomes ou bien des molécules du mélange.

2) – le calcul auto-cohérent des champs électrique au sein de la décharge (la détermination du champ électrique par l'équation de poisson est probablement une bonne approximation dans la plupart des cas).

3) – la prise en compte des mécanismes de création et disparition de particules chargées autres que ceux mentionnés en (1) (ionisation à partir de l'état métastables ou autres espèces générées par la décharge, attachement, recombinaison); ceci nécessite une description de la cinétique du milieu couplée aux phénomènes de transport des particules chargées.

4) – la description de l'évolution de la température et de la pression (éventuellement de la vitesse d'écoulement) locales du gaz sous l'effet de la dissipation de l'énergie électronique et ionique.

Bien entendu, un tel modèle est impossible à réaliser en pratique, et le premier et probablement le plus important travail de modélisation est de rechercher une représentation plus simple et approximative des phénomènes afin de rendre le problème soluble.

II.3. Modèle Physique

Dans cette partie, après la description de l'équation de Boltzmann, nous allons détailler les équations qui caractérisent l'évolution du plasma dans une décharge, et nous exposerons les différentes approximations qui ont été faites.

II.3.1. L'équation de Boltzmann:

L'équation de Boltzmann est une équation de continuité de la fonction de distribution des vitesses f dans l'espace des phases $d\mathbf{r} d\mathbf{v}$.

$$\underbrace{\frac{\partial f_i}{\partial t}}_{(a)} + \underbrace{v_i \frac{\partial f_i}{\partial r}}_{(b)} + \underbrace{\gamma_i \frac{\partial f_i}{\partial v}}_{(c)} = \underbrace{\left(\frac{\partial f_i}{\partial t}\right)_{collision}}_{(d)} \quad (II. 1)$$

Cette équation exprime le fait que la fonction de distribution évolue temporellement **(a)** en raison du mouvement des particules **(b)**, des variations de vitesse des particules sous l'effet de forces extérieures **(c)** et des collisions entre les particules **(d)**.

où :

\mathbf{r} : champ des distances.

γ : champ des accélérations des particules égal à $\frac{\mathbf{F}_i}{m_i}$, avec \mathbf{F}_i est la force extérieure qui

s'applique à la particule i de masse m_i ($\mathbf{F}_i = e \mathbf{E}$).

\mathbf{v} : champ des vitesses des particules chargées,

L'intégration dans l'espace de la fonction de distribution f permet d'accéder à la valeur moyenne de la densité d'espèces présentes dans la décharge $N(\mathbf{r}, t)$ et de leurs vitesses locales [21];

$$N(\mathbf{r}, t) = \int_{\mathbf{v}} f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) d\mathbf{v} \quad (\text{II. 2})$$

$$\mathbf{v}(\mathbf{r}, t) = \frac{\int_{\mathbf{v}} \mathbf{v} \cdot f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) \cdot d\mathbf{v}}{\int_{\mathbf{v}} f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) \cdot d\mathbf{v}} \quad (\text{II. 3})$$

Ou, pour toute autre grandeur x , on peut définir sa valeur moyenne par :

$$x(\mathbf{r}, t) = \frac{\int_{\mathbf{v}} x \cdot f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) \cdot d\mathbf{v}}{\int_{\mathbf{v}} f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) \cdot d\mathbf{v}} \quad (\text{II. 4})$$

Et aussi la fonction de distribution f permet de calculer les coefficients de réaction.

Or, la valeur du champ électrique dépend elle-même des densités de charges par l'intermédiaire de l'équation de Poisson

Pour décrire correctement la décharge, il est nécessaire de coupler l'équation de Boltzmann avec celle de Poisson car cette équation donne les variations du champ électrique en fonction de la charge d'espace.

II.3.2. Equation de Poisson

Le calcul du champ de la charge d'espace possède un caractère déterminant durant l'évolution des particules chargées. En effet, tous les paramètres de transport et les données de base relatives à l'ionisation, la vitesse de dérive sont étroitement dépendantes du champ réduit E/N et une toute petite variation de celui-ci peut entraîner des effets en cascade concernant la multiplication des charges.

Dans une décharge à pression atmosphérique, quand les densités de particules chargées atteignent de fortes valeurs, le champ perd alors sa nature strictement géométrique et intègre celle de la charge d'espace. Le champ E revêt alors une importance découplée, de même

nature que de petites variations de densité des particules N , car tous les coefficients de transport fondamentaux s'expriment en fonction du champ réduit E/N .

L'équation de Poisson s'écrit :

$$\nabla \cdot E = -\Delta V = \frac{1}{\varepsilon} \sum e_i N_i \quad (\text{II.5})$$

Où ε : permittivité du gaz;

E : le champ électrique qui peut être obtenu par le gradient de potentiel électrique V ,

N_i et e_i représentent la densité et la charge électrique de la i ème espèce.

Dans le cas de modèles dits « auto-cohérents » [22], l'équation de Poisson, qui détermine le champ électrique, doit être couplée à l'équation de Boltzmann.

La résolution de l'équation de Boltzmann n'est pas une chose facile, et son couplage avec l'équation de Poisson ne fait qu'accroître la difficulté donc, il est nécessaire d'exiger des hypothèses simplificatrices et des conditions aux limites bien précises.

Pour cette raison, plusieurs types de modèles auto-cohérents, correspondant aux différents niveaux d'approximation ont été développés. Nous allons maintenant décrire quelques types de modèles « auto-cohérents ». On divise l'ensemble de ces modèles en trois catégories décrites ci-dessous : modèle fluide, modèle hybride, modèle microscopique

II.3. 3. Modèles fluides

Les propriétés du milieu (densités, vitesse, énergie...) sont décrites uniquement par des grandeurs moyennes, et non par les fonctions de distribution des vitesses des particules. Ces grandeurs sont les solutions des trois premiers moments de l'équation de Boltzmann, qui correspondent aux équations de continuité, de transfert de quantité de mouvement et de transfert d'énergie [22]. Le système d'équations ainsi formé s'écrit :

II.3.3.1. Equation de continuité

La forme générale de l'équation de continuité est la suivante :

$$\frac{\partial N_i}{\partial t} + \nabla \cdot (J_i) = S_i \quad (\text{II.6})$$

Où N_i et J_i représentent la densité et le flux de la i ème espèce. Le terme source est noté par S_i , Il est calculé comme étant le produit des taux de réaction avec les densités des espèces réactants. La résolution des équations (II.6) donne les distributions spatio-temporelles des espèces générées par la décharge électrique. Pour résoudre cette équation, il est nécessaire de connaître le flux J_i et S_i .

II.3.3.2. Equation de transfert de quantité de mouvement

Nous supposons, pour l'équation de transfert de quantité de mouvement, l'approximation de dérive-diffusion. Les équations de transfert de quantité de mouvement pour les particules chargées et les particules neutres s'écrivent respectivement :

$$J_i = N_i V_z - D_i \nabla N_i + q_i \mu_i N_i E \quad (\text{II. 7})$$

$$J_i = N_i V_z - D_i \nabla N_i \quad (\text{II. 8})$$

Où V_z est la vitesse d'écoulement du gaz; q_i , μ_i et D_i sont la charge, la mobilité et le coefficient de diffusion de l'espèce chargée i respectivement.

Le flux des particules neutres s'écrit comme la somme d'un terme de diffusion $-D_i \nabla N_i$ et d'un terme de convection du gaz $N_i V_z$. Le flux des particules chargées contient un terme supplémentaire de dérive $q_i \mu_i N_i E$.

II.3.3.3. Equation d'énergie

En multipliant l'équation de Boltzmann par $\frac{1}{2} m v_e^2$ et moyennant on obtient l'équation d'énergie scalaire pour les électrons.

$$\frac{\partial w_e}{\partial t} + \nabla (v_e \cdot w_e) + \nabla (P_e v_e) + \nabla Q_e = -q E N_e v_e - N_e \sum_k \varepsilon_k v_k \quad (\text{II. 9})$$

$$\text{où : } w_e = N_e \left(\frac{1}{2} m v_e^2 + \frac{3}{2} K T_e \right)$$

avec :

P_e : la pression électronique,

v_e : la vitesse moyenne des électrons,

Q_e : le flux de chaleur,

ε_k : l'énergie de collision entre un électron et une particule k,

ν_k : la fréquence moyenne des différents processus de collisions inélastiques.

La résolution de cette dernière équation pour les électrons est plutôt coûteuse en temps de calcul et peut être avantageusement remplacée par l'approximation dite du champ local. Dans cette hypothèse le gain d'énergie des électrons est contrebalancé localement exactement par les pertes par collisions avec les neutres. Le corollaire de l'approximation du champ local est que tous les coefficients de transport, les mobilités, les coefficients de réactions à un point donné et à un instant donné ne sont fonctions que du champ électrique. De plus les valeurs de ces coefficients sont les mêmes que celles obtenues en résolvant l'équation de Boltzmann pour les électrons en régime permanent sans gradient spatiaux et sous champ uniforme. Ainsi les valeurs numériques des coefficients peuvent être calculées à l'aide du logiciel Bolsig+ [23] puis interpolées en fonction du champ électrique local.

Ces équations de continuité, de transfert de quantité de mouvement et de transfert d'énergie sont couplées à l'équation de Poisson. On utilise donc un certain nombre d'approximations pour avoir plus de simplifications. Les approximations les plus couramment utilisées sont :

➤ L'approximation du champ électrique local

Dans l'approximation du champ local, on suppose que l'énergie due au champ électrique gagnée par les électrons à un temps donné et à une position donnée est exactement compensée par la perte d'énergie due aux collisions aux mêmes instants et position. Pour que cela soit possible, il faut que les électrons effectuent suffisamment de collisions pour supposer en première approximation qu'ils sont en équilibre avec le champ électrique, i.e. que leur fonction de distribution électronique ne dépend que du champ électrique local réduit $E(r,t)/P$ où P est la pression totale du gaz. Cela implique que 1) l'équation d'énergie se réduit à l'égalité entre gain et perte d'énergie localement et 2) que la fonction de distribution électronique ne dépend que du champ réduit local et qu'elle peut donc être précalculée et tabulée. En conséquence, les fréquences de collision, d'ionisation, les mobilités, coefficients de diffusion dépendent également du champ électrique local. L'hypothèse de localité a un aspect temporel et un aspect spatial qui peuvent être indépendants [20].

Le modèle développé pour ce travail est basé sur la résolution des équations de transport (continuité et transport de la quantité de mouvement) couplées à l'équation de Poisson et dans l'approximation du champ local.

➤ L'approximation de l'énergie moyenne

La fonction de distribution ne dépend que de la densité de l'espèce et de son énergie moyenne. Une telle approximation oblige à poser des hypothèses supplémentaires sur la forme de cette distribution. Bien que le modèle fluide donne des informations sur les champs électriques et les densités pendant la décharge, il ne permet pas de connaître les distributions en énergie des particules lourdes. Pour calculer ces distributions, on doit développer un modèle particulaire Monte Carlo [24].

II.3.4. Modèle microscopique ou particulaire

Dans ce modèle on considère le mouvement individuel de chaque particule chargée en déterminant la fonction de distribution des vitesses $f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$ [25].

Pour résoudre rapidement l'équation de Boltzmann couplée à l'équation de Poisson, on n'a pas recours à des méthodes aux différences ou éléments finis, comme dans le cas des modèles fluides, mais à des méthodes considérant un nombre fini de particules supposé représenter les espèces chargées, le mouvement des particules dans l'espace position-vitesse (r, v) étant lié au champ électrique et aux collisions.

Pour déterminer l'influence du champ électrique, on intègre les équations de mouvement entre deux collisions, ces dernières étant traitées statistiquement en tirant des nombres aléatoires dont les densités de probabilité dépendent des sections efficaces [26, 27] (on détermine l'instant, la nature des collisions, la trajectoire de la particule après collisions...). L'équation de Poisson est résolue simultanément à intervalles de temps réguliers.

Pour les plasmas non collisionnels, les équations de mouvement couplées à l'équation de Poisson sont généralement résolues par des méthodes « Particle in Cell » (PIC) tandis que les collisions sont traitées par des méthodes statistiques de Monte-Carlo (MC). Ce type de modèles est le plus précis, mais aussi le plus coûteux en temps de calcul.

II.3.5. Modèles hybrides

Le but du modèle hybride est de concilier les avantages des modèles microscopique et fluide en traitant par exemple certaines régions de la décharge (chute cathodique) par un modèle particulaire et d'autres régions (là où il y a beaucoup plus de collisions) par un modèle fluide. Les modèles hybrides les plus répandus sont ceux où l'on associe un code Monte Carlo à un modèle de type fluide [28].

Dans notre cas on a choisi le modèle fluide pour modéliser la décomposition du CO_2 par une décharge électrique négative.

II.4. Modélisation d'une décharge électrique couronne négative en régime stationnaire:

Nous considérons une décharge couronne négative traversée par le dioxyde de carbone à la pression atmosphérique et à la température ambiante. La géométrie de la décharge utilisée est de type fil-cylindre (fil = cathode ; cylindre = anode), Le fil de rayon intérieur r_0 et de longueur L . il est soumis à une haute tension négative continue V , alors que l'électrode extérieure, de rayon R , est mise à la terre (figure II.1). La tension appliquée est assez grande pour stabiliser la décharge couronne dans un état stationnaire.

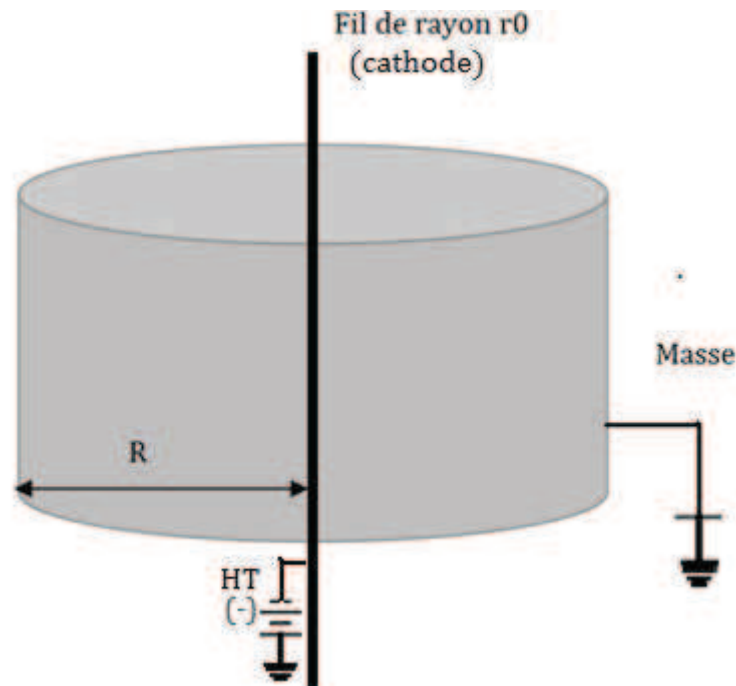


Figure II.1: Le système étudié (fil-cylindre) d'une décharge couronne négative.

L'approximation fluide consiste à résoudre une équation de continuité pour chaque espèce participant à la décharge électrique couplée à l'équation de quantité de mouvement et l'équation de Poisson.

Dans ce travail, la vitesse du gaz est supposée constante et entièrement déterminée par le débit de gaz Q :

$$V_z = \frac{Q}{A} \quad (\text{II. 10})$$

Avec: $A = \pi (R^2 - r_0^2)$, la section du cylindre traversée par le gaz

La diffusion n'est pas considérée pour les espèces chargées. Elle est négligeable par rapport à la dérive électrique. Il est bien connu que la diffusion d'électrons est importante dans la décharge couronne positive mais elle ne l'est pas dans la décharges couronne négative [29-32]. Donc la diffusion électronique ne sera pas incluse dans le modèle.

Dans cette étude, la décharge électrique sera supposé stationnaire dans le temps ($\partial / \partial t = 0$) et symétrique par rapport au fil Chen et Davidson [30]. En effet, les modèles numériques de la géométrie fil-cylindre suppose souvent que la décharge couronne est homogène le long du fil. Par exemple, cette approche est adoptée dans les travaux de Wang et Chen [33], Held et Peyroux [32], Mikoviny et al [35], Feng [36], et Belevtsev Biberman [37].

Compte tenu des simplifications ci-dessus et en utilisant les coordonnées cylindriques r et z (problème 2D), les distributions spatiales des espèces et du champ électriques seront régies par l'ensemble des équations suivantes:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r \frac{e_i}{|e_i|} \mu_i N_i E \right] = S_i, \quad (\text{II. 11})$$

$$v_z \frac{\partial N_j}{\partial z} - \frac{\partial}{\partial z} \left[D_j \frac{\partial N_j}{\partial z} \right] - \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[D_j \frac{\partial N_j}{\partial r} \right] = S_j, \quad (\text{II. 12})$$

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r E) = \frac{1}{\varepsilon} \sum e_i N_i, \quad (\text{II. 13})$$

Avec:

$$E = - \frac{\partial V}{\partial r} \quad (\text{II. 14})$$

tel que: l'indice i indique l'espèce chargée i et j indique l'espèce neutre.

Avec $r_0 \leq r \leq R$, $0 \leq z \leq L$ (voir figure II-2),

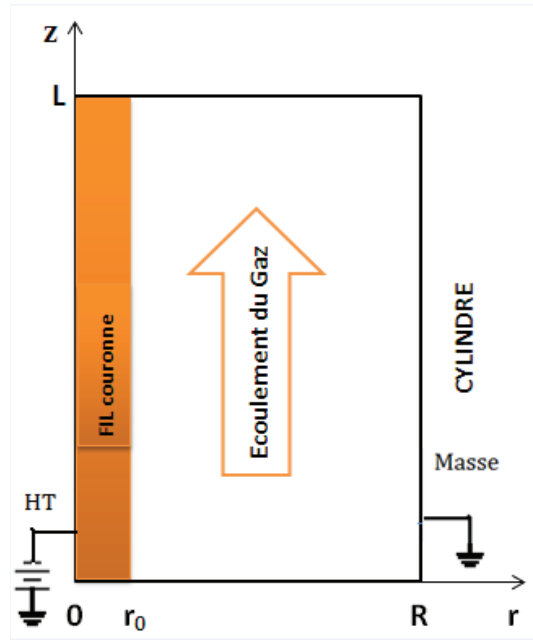


Figure II.2: Domaine d'intégration en coordonnées cylindriques.

Le système d'équations non linéaires couplées (II.11)-(II.13) est difficile à résoudre. Pour cette raison on a besoin de simplifier le modèle, en se basant sur les travaux de Yanallah et Pontiga [38, 39] sur les décharges couronnes on peut faire les simplifications suivantes :

- 1- On découple le système d'équations non linéaires (II.11)-(II.13), c.a.d, on résolve l'équation de Poisson, les équations de continuité des particules chargées et les équations de continuité des particules neutres séparément.
- 2- On considère uniquement trois types de particules chargées ; les électrons, les ions positifs CO_2^+ et les ions négatifs O_2^- (on les note respectivement N_e , N_p et N_n).

Ce modèle est suffisant pour reproduire les caractéristiques de base de la décharge couronne négative.

Après les simplifications indiquées le système (II-11)-(II-13) devient :

a) particules chargées

$$\frac{d(r j_e)}{r dr} = +(\alpha - \eta) j_e, \quad (\text{II. 15})$$

$$\frac{d(r j_p)}{r dr} = -\alpha j_e, \quad (\text{II. 16})$$

$$\frac{d(r j_n)}{r dr} = + \eta j_e, \quad (II.17)$$

$$j_e = N_e \mu_e E, \quad j_p = N_p \mu_p E \quad \text{et} \quad j_n = N_n \mu_n E \quad (II.18)$$

b) Particule neutres

$$v_z \frac{\partial N_j}{\partial z} - \frac{\partial}{\partial z} \left[D_j \frac{\partial N_j}{\partial z} \right] - \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[D_j \frac{\partial N_j}{\partial r} \right] = S_j, \quad (II.19)$$

c) Equation de Poisson

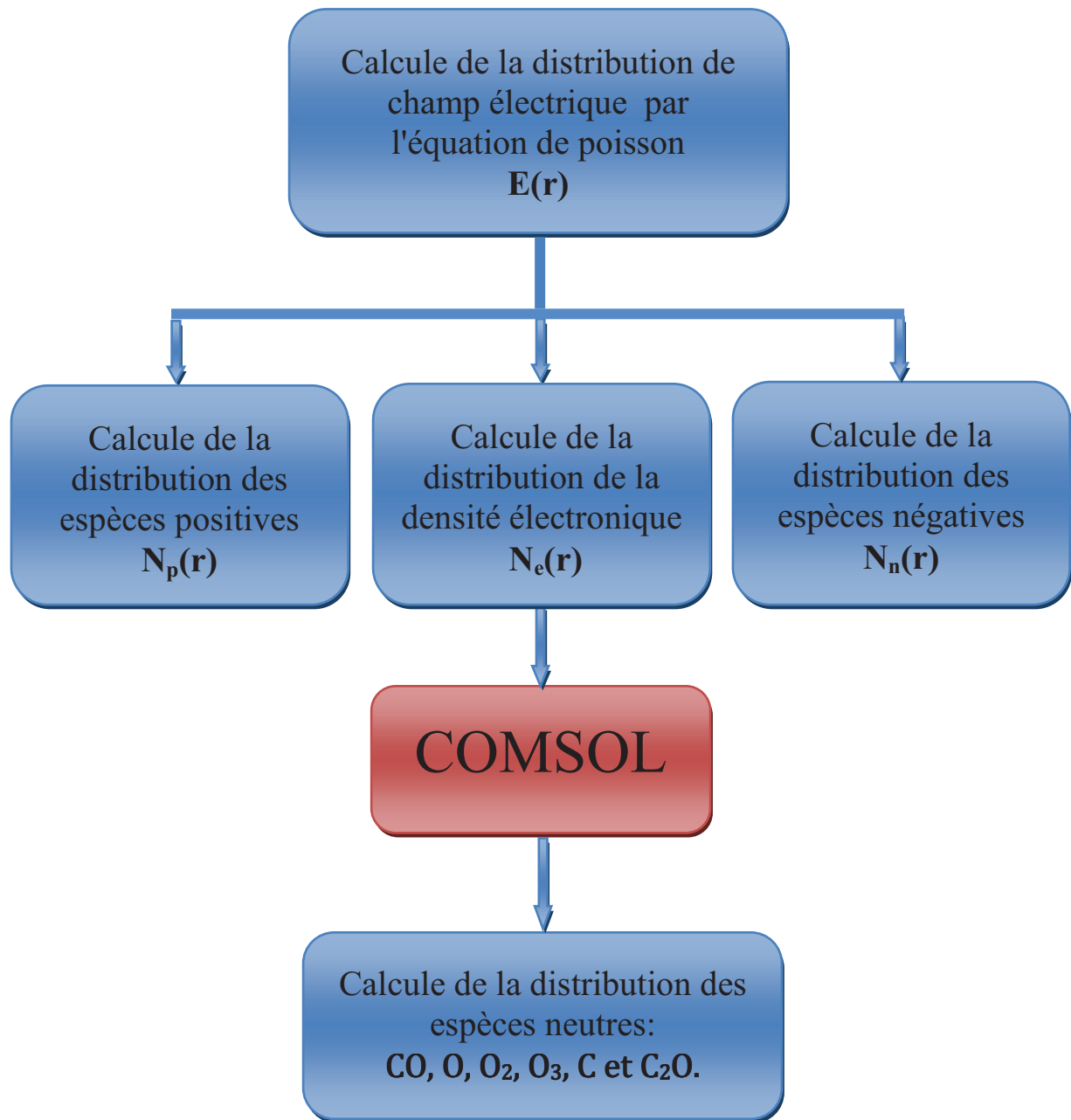
$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r E) = \frac{e}{\varepsilon} (N_p - N_n - N_e), \quad (II.20)$$

$$E = - \frac{\partial V}{\partial r} \quad (II.21)$$

Les indices e, p et n désignent respectivement les électrons, les ions positifs et les ions négatifs.

α, η Coefficient d'ionisation et d'attachement déterminés par logiciel Bolsig+ [16]

La résolution de l'équation de Poisson (II.20) nous permet de déterminer le champ électrique qui sera utilisé par la suite pour calculer le coefficient d'ionisation, d'attachement et la mobilité des électrons. Ces paramètres sont nécessaires dans la résolution des équations de continuités des particules chargées et neutres. Afin de calculer les distributions spatiales des particules neutres, la distribution de la densité électronique qui est obtenue par la résolution des équations (II.15) – (II.17) sera injectée dans le logiciel COMSOL à travers le terme source S_j pour résoudre l'équation (II.19). L'organigramme suivant résume les étapes de résolutions du système (II.15) – (II.20)



Organigramme II.1: résume les étapes de résolutions de système d'équations

(II. 15) – (II. 20)

II.4.1. Calcul de la distribution de champ électrique :

L'intégrale du champ électrique total entre le fil et le cylindre est constante et égale à la tension appliquée,

$$V = V(r_0) - V(R) = \int_{r_0}^R E dr. \quad (\text{II. 22})$$

Le champ électrique est obtenu par la résolution de l'équation de poisson:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r E) = \frac{e N_n}{\varepsilon}, \quad (\text{II. 23})$$

Dans le terme droit de l'équation de Poisson seulement la charge négative, est prise en considération [40]. Toutefois, étant donné que l'effet de la densité des ions positifs et des électrons est négligeable devant le champ électrique dans la région d'ionisation, l'équation (II.23) est également satisfaite dans tout l'espace inter-électrodes. Par ailleurs, le courant électrique dans la zone de dérive est essentiellement transporté par les ions négatifs,

$$I = 2\pi e r L \mu_n N_n E \quad (\text{II. 24})$$

En introduisant (II.24) dans (II.23), l'équation qui régit le champ électrique s'écrit

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r E) = \frac{I}{2\pi \varepsilon r L \mu_n E} \quad (\text{II.25})$$

Dont la solution est:

$$E = \sqrt{\frac{c^2}{r^2} + A^2} \quad (\text{II. 26})$$

$$\text{Avec: } c = E_0 r_0 \text{ et } A = \sqrt{\frac{I}{2\pi \varepsilon L \mu_n}} ;$$

E_0 est la valeur du champs électrique sur le fil.

Puisque $Ar_0 \ll c$, la valeur du paramètre c peut être obtenue à partir de l'intégrale du champ électrique entre les électrodes qui est égale à la tension appliquée,

$$V_0 = c \left[\ln\left(\frac{R}{r_0}\right) - \ln\left(1 + \sqrt{1 + \left(\frac{AR}{c}\right)^2}\right) + \ln(2) + \sqrt{1 + \left(\frac{AR}{c}\right)^2} - 1 \right] \quad (\text{II. 27})$$

Où V_0 est la valeur absolue de la tension négative appliquée au fil. Soria et al.[40] et Feng [36] ont dérivé des expressions similaires à celle du champ électrique et du potentiel.

La tension appliquée et le courant mesuré seront utilisés comme paramètres d'entrée dans l'équation (II.27) pour calculer le champ électrique sur le fil. Ensuite, la distribution spatiale du champ électrique est déterminée en utilisant (II.26).

II.4.2. Calcul de distribution de la densité électronique

L'équation de conservation de la densité de courant électrique est:

$$j = e (j_e + j_p + j_n) \quad (\text{II. 28})$$

L'intégration des équations (II.15) - (II.17) donne:

$$j_e = j_{e0} \exp \int_{r_0}^r (\alpha - \eta) dr, \quad (\text{II. 29})$$

$$j_p = \frac{1}{r} \int_{r_0}^r \alpha r j_e dr, \quad (\text{II. 30})$$

$$j_n = \frac{1}{r} \int_{r_0}^r \eta r j_e dr, \quad (\text{II. 31})$$

Où j_{e0} , j_{p0} et j_{n0} sont évaluées à $r = r_0$,

Pour calculer les intégrales (II. 29) -(II. 31) on a besoin de définir les conditions aux limites qui sont les suivantes:

Les conditions aux limites appropriées pour (II. 29) -(II. 31) ont déjà été introduites dans les travaux de [40-39]. En ce qui concerne les espèces chargées, la densité des ions négatifs est nulle sur le fil qui est soumis à une haute tension négative (cathode). En revanche, la densité des ions positifs s'annule au niveau du cylindre qui est relié à la masse (anode) ainsi:

$$\begin{cases} N_n(r_0, z) = 0 \\ N_p(R, z) = 0 \end{cases} \quad (\text{II. 32})$$

Pour calculer la densité électronique sur le fil ($N_e(r_0, z)$); on utilise le courant I mesuré expérimentalement. L'avantage de cette condition aux limites utilisée auparavant par les auteurs [31,42], est d'éviter l'utilisation d'un coefficient d'émission secondaire à la cathode, qui dépend fortement de l'état de la surface et de la valeur du champ électrique [43]. On sait

que l'état de surface de la cathode diffère d'une expérience à une autre, ce qui implique une incertitude sur la valeur du coefficient d'émission secondaire dans la bibliographie. Pour résumer, dans notre modèle on n'a pas l'intention de prédire la caractéristique courant-tension expérimentale, mais on l'utilisera seulement comme donné d'entrée.

Le courant I est calculé à partir de les équations (II.33 et II.34) de la façon suivante:

$$I = 2 \pi e r_0 L (j_{p0} + j_{n0} + j_{e0}). \quad (\text{II. 33})$$

Puisque les densités des ions négatifs et des électrons sont négligeables devant la densité des ions positifs au niveau du fil, l'équation (II.33) devient:

$$I = 2 \pi e r_0 L j_{p0}. \quad (\text{II. 34})$$

Pour calculer j_{p0} en utilisant les deux équations (II.29) et (II.30); on a besoin de déterminer j_{p0} qui nécessite la connaissance de la valeur de N_{e0} qui est la valeur recherchée. Pour résoudre ce problème nous avons utilisé la méthode suivante:

- Au commencement nous allons choisir une valeur initiale de N_{e0} en suite on calcul les intégrales (II.22) et (II.23) et à la fin on calcul le courant I par l'équation (II. 34).
- Nous comparons la valeur de I obtenu avec le courant expérimentale I_{exp} ,

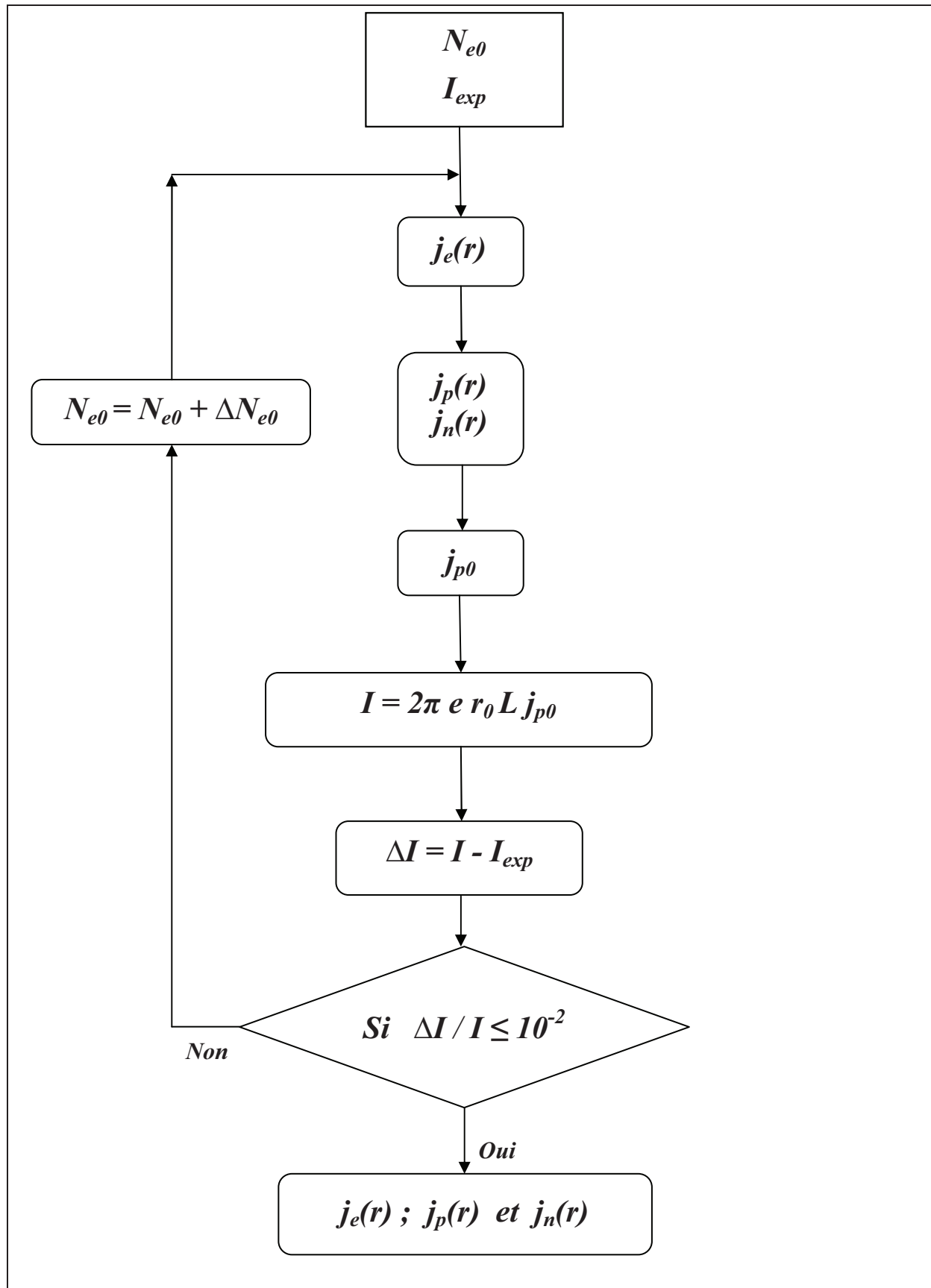
$$1- \text{ Si } \frac{\Delta I}{I} = \frac{I - I_{\text{exp}}}{I} > 10^{-2} \quad (\text{limite d'erreur accepter})$$

Une nouvelle valeur de N_{e0} est calculée par la formule suivantes:

$$N_{e0} = N_{e0} + \Delta N_e$$

- Si $\frac{\Delta I}{I} = \frac{I - I_{\text{exp}}}{I} \leq 10^{-2}$ (limite d'erreur accepter) la valeur de N_{e0} acquise est utilisée pour calculer les différentes densités;

Notre méthode est résumée par l'organigramme suivant:



Organigramme II.2: résume l'algorithme du programme informatique utilisé pour calculer les espèces chargées

II.4.3. Cinétique chimique de la décomposition du CO_2

Le modèle cinétique utilisé dans ce travail considère douze réactions (voir tableau (II.1)), incluant 4 réactions d'impact électronique et 8 réactions entre les particules neutres. La sélection de ces réactions est basée sur l'étude de Mikoviny, Kocan, Matejcik, Mason et Skalny [44]. Le choix de ce modèle simple est due aux difficultés numériques rencontrées pendant la résolution des équations qui sont liées au nombre des espèces, c'est-à-dire le nombre d'équations dans le modèle, mais pas le nombre de réactions bien que, évidemment, le nombre de réactions est plus élevé implique des temps de calculs plus longs. Dans ce modèle on considère les simplifications suivantes :

- ✓ On tient en compte que des réactions qui ont des coefficients de réaction bien déterminer.
- ✓ Les particules excités ne sont pas prises en compte sauf l'oxygène à l'état métastable $\text{O}_2(^1\Delta_g)$ à cause de sa présence dominante dans la région active.
- ✓ Les réactions hétérogènes sur les parois de l'électrode externe ne sont pas aussi prises en compte.
- ✓ Les réactions qui ont des coefficients de réactions faibles sont négligées.
- ✓ Tous les coefficients de réactions sont pris à la température $T = 293\text{K}$ et à la pression $P = 1.0135 \text{ atm}$. L'augmentation de la température près du fil n'est pas considérée dans notre modèle.

N°:	Réaction	coefficients des réactions
R(01)	$e + \text{CO}_2 \rightarrow \text{CO} + \text{O} + e$	$k_1 = 6 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ [45],[48]
R(02)	$e + \text{O}_2 \rightarrow \text{O} + \text{O} + e$	$k_2 = 2 \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ [45],[48]
R(03)	$e + \text{O}_3 \rightarrow \text{O} + \text{O}_2 + e$	$k_3 = 5 \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ [47],[49]
R(04)	$e + \text{CO} \rightarrow \text{C} + \text{O} + e$	$k_4 = 3 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ [45]
R(05)	$\text{O} + \text{O}_2 + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_3 + \text{O}_2$	$k_5 = 5.85 \times 10^{-34} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$ [46]
R(06)	$\text{O} + \text{O}_2 + \text{CO}_2 \rightarrow \text{O}_3 + \text{CO}_2$	$k_6 = 1.81 \times 10^{-33} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$ [46],[50]
R(07)	$\text{O} + \text{O} + \text{CO}_2 \rightarrow \text{O}_2 + \text{CO}_2$	$k_7 = 1.04 \times 10^{-32} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$ [46],[51]
R(08)	$\text{O}(^3\text{P}) + \text{O}_3 \rightarrow \text{O}_2 + \text{O}_2$	$k_8 = 8.5 \times 10^{-15} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ [46]
R(09)	$\text{O}_3 + \text{O}_2(^1\Delta_g) \rightarrow \text{O}_2 + \text{O}_2 + \text{O}$	$k_9 = 4 \times 10^{-15} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ [46],[49]
R(10)	$\text{O} + \text{CO} + \text{CO}_2 \rightarrow \text{CO}_2 + \text{CO}_2$	$k_{10} = 1.1 \times 10^{-35} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$ [46],[50]
R(11)	$\text{C} + \text{CO} + \text{CO}_2 \rightarrow \text{C}_2\text{O} + \text{CO}_2$	$k_{11} = 6.3 \times 10^{-32} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$ [46]
R(12)	$\text{O} + \text{C}_2\text{O} \rightarrow \text{CO} + \text{CO}$	$k_{12} = 5.0 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ [46]

Tableau II.1 : Liste des réactions chimiques utilisées dans le modèle de décharge couronne négative dans le gaz CO_2 pur. Les coefficients des réactions à deux corps sont exprimés en $\text{cm}^3 \text{ s}^{-1}$ et ceux de trois corps en $\text{cm}^6 \text{ s}^{-1}$.

L'espèce	Termes sources [S _i]
Oxygène atomique (O)	$k_1 n_e [CO_2] + 2k_2 N_e [O_2] - k_7 [O]^2 [CO_2] - k_6 [O] [O_2] [CO_2]$ $- k_5 [O] [O_2]^2 + k_3 N_e [O_3] + k_9 [O_2] [O_3] - k_8 [O] [O_3]$ $- k_{10} [O] [CO] [CO_2] + k_4 N_e [CO] - k_{12} [O] [C_2O]$
Oxygène moléculaire (O ₂)	$k_7 [O]^2 [CO_2] - k_2 N_e [O_2] - k_6 [O] [O_2] [CO_2] - k_5 [O] [O_2]^2 + k_3 N_e [O_3] +$ $k_9 [O_2] [O_3] + 2k_8 [O] [O_3]$
Ozone (O ₃)	$k_6 [O] [O_2] [CO_2] + k_5 [O] [O_2]^2 - k_3 N_e [O_3]$ $- k_9 [O_2] [O_3] - k_8 [O] [O_3]$
Monoxyde de carbone (CO)	$k_1 N_e [CO_2] - k_{10} [O] [CO] [CO_2] - k_4 N_e [CO] - k_{11} [C] [CO] [CO_2]$ $+ 2k_{12} [O] [C_2O]$
Dioxyde de carbone (CO ₂)	$k_{10} [O] [CO] [CO_2] - k_1 N_e [CO_2]$
Carbone atomique (C)	$k_4 N_e [CO] - k_{11} [C] [CO] [CO_2]$
C ₂ O	$k_{11} [C] [CO] [CO_2] - k_{12} [O] [C_2O]$

Tableau II.2: Listes des termes sources de chaque espèce

III.4.3.1. Calcul des concentrations initiales :

On suppose que le CO₂ pur se comporte comme un gaz parfait, d'où la loi qui détermine la concentration initiale c'est.

$$PV_g = nR_g T \quad (II.35)$$

Avec P : pression du gaz (pascal); V_g : volume occupé par le gaz (m³) ; n : 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.

$$\text{Puisque } n = \frac{\text{le nombre de molécules } n_m}{\text{le nombre d'Avogadro } N}$$

$$\text{Avec } N = 6,023 \cdot 10^{23}$$

L'équation peut être écrite sous la forme :

$$P = \frac{n_m}{V} \frac{R}{N} T \Rightarrow P = [CO_2]_0 \cdot K_B \cdot T$$

$$[CO_2]_0 = \frac{P}{K_B \cdot T} \quad (II.36)$$

Avec $[\text{CO}_2]_0$: est la concentration du CO_2 à $z = 0$.

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

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

Décharge électrique dans le CO_2 pur à $T = 300 \text{ K}$, $P = 1.0135 \text{ atm}$:

$$[\text{CO}_2]_0 = 2,4480676 \cdot 10^{19} \text{ molécules/cm}^3$$

Dans notre modèle, nous assumons qu'à l'entrée du cylindre, les différentes espèces produites sont nulles, mais cette condition n'est pas valable si on prend en considération le retour du gaz vers l'entrée du cylindre par diffusion, pour valider cette condition nous avons ajouté à la longueur du cylindre la valeur de 1 cm cet ajout nous permet d'affirmer que même s'il y'a retour du gaz, il n'atteindra pas son entrée.

$$[\text{CO}]_0 = 0 \text{ molécules/cm}^3.$$

$$[\text{C}]_0 = 0 \text{ molécules/cm}^3.$$

$$[\text{C}_2\text{O}]_0 = 0 \text{ molécules/cm}^3.$$

$$[\text{O}_3]_0 = 0 \text{ molécules/cm}^3.$$

$$[\text{O}_2]_0 = 0 \text{ molécules/cm}^3.$$

$$[\text{O}]_0 = 0 \text{ molécules/cm}^3.$$

$[\text{X}]_0$: est la concentration de l'espèce X avant la décharge à $z = 0$, avec $0 \leq z \leq L+1$

II.5. Conclusion

Nous avons présenté une description des différents modèles possibles de décharge électrique haute pression pour lesquels la modélisation est basée. Ensuite, nous avons introduit le modèle fluide qui s'appuie sur les équations de conservation hydrodynamiques pour décrire la décharge électrique couronne négative. Ces équations obtenues à partir des deux premiers moments de l'équation de Boltzmann sont couplées avec l'équation de Poisson et forment un système d'équations non linéaire difficile à résoudre. Ce qui nous a poussé à introduire de nouvelles approximations, c.a.d découpler le système d'équations non linéaires, en résolvant l'équations de Poisson, les équations de continuité des particules chargées et les équations de continuité des particules neutres séparément. Nous avons terminé le chapitre par l'exposition d'un modèle physico-chimique du gaz dioxyde de carbone pur pour l'étude de la décomposition de ce gaz par une décharge électrique couronne négative à l'état stationnaire et à la pression atmosphérique.

Chapitre III. :

*Modélisation de la de la
décomposition du dioxyde de
carbone par décharge électrique
couronne négative*

MODÉLISATION DE LA DECOMPOSITION DU DIOXYDE DE CARBONE PAR DÉCHARGE ÉLECTRIQUE COURONNE NÉGATIVE

Dans ce chapitre nous présentons des résultats de calculs de la distribution du champ électrique, de la densité électronique et des densités de particules neutres (CO , C_2O , C , O , O_2 , O_3 ,) produites par la décharge électrique couronne négative à courant continu dans le dioxyde de carbone, pour une géométrie d'électrodes fil-cylindre et avec un écoulement du gaz. La caractéristique expérimentale courant-tension a été employée comme un paramètre d'entrée dans les calculs. La validation du modèle se fait par la comparaison de la densité d'ozone, mesurée expérimentalement, avec celle prédite par le modèle.

III.1. Introduction:

Le but de ce chapitre consiste à modéliser les distributions des particules chargées (électrons, ions positifs et ions négatifs), des particules neutres et du champ électrique dans le gaz dioxyde de carbone (CO_2).

La décomposition du CO_2 a été étudiée pour plusieurs types de décharges électriques pendant ces deux dernières décennies. On cite ici l'étude expérimentale faite par J. D. Skalný, J. Országh et N. J. Mason [52] concernant la possibilité de la génération d'ozone accompagnant la conversion des molécules de CO_2 en CO par décharges couronne négative.

Au début de ce chapitre on commence par la description de l'expérience de Skalný [52] sur la décomposition du dioxyde de carbone par une décharge électrique couronne négative. En suite on présente nos résultats de la modélisation de cette expérience.

III.2. Le montage expérimental

La figure (III-1) montre le schéma du dispositif expérimental utilisé par Skalný dans son expérience.

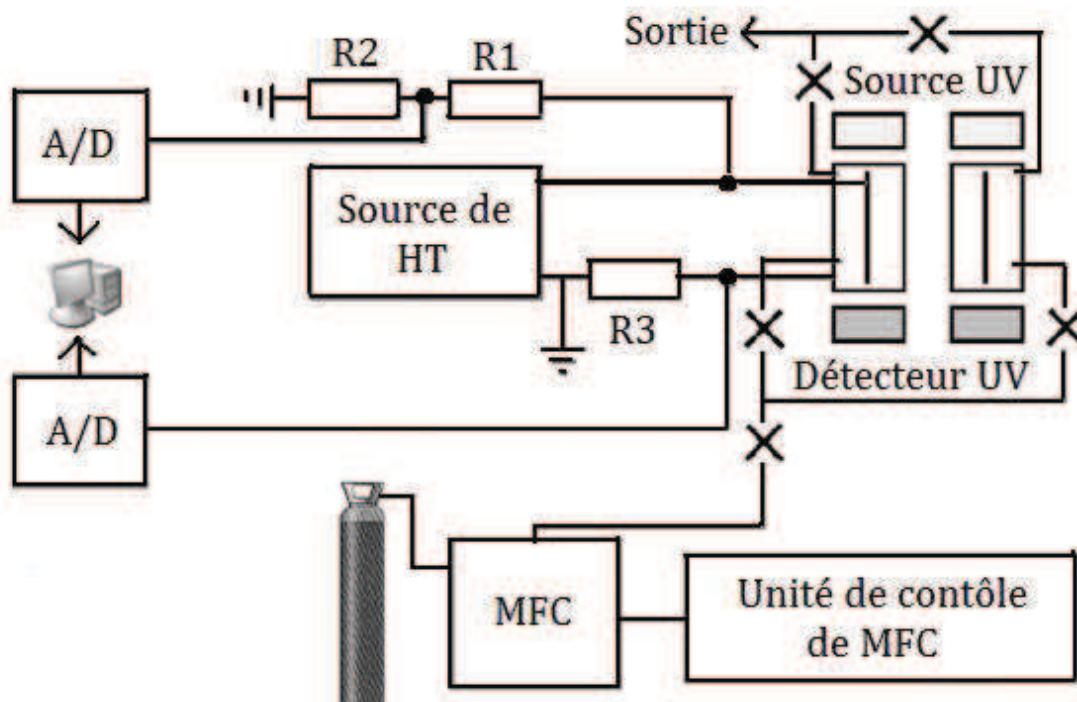


Figure III.1: Dispositif expérimentale. [52]

La cellule de décharge électrique est composée d'un un système d'électrodes cylindriques coaxiales. Le cylindre extérieur d'acier inoxydable est de diamètre interne de 16mm et le cylindre interne (fil) de tungstène est de diamètre de 125 μm . La longueur active des deux cylindres est de 10 cm. On note que deux cellules de décharge électrique ont été utilisées ou l'une de ces cellules est utilisée uniquement comme référence. Les deux cellules ont été placées dans un compartiment à l'intérieur d'un spectromètre UV pour mesurer la transmission optique du gaz traité. Le débit du gaz Q est maintenu constant par débitmètre massique (MFC) dans la gamme de 5 à 200 cm^3/min . La source de haute tension (HT) a été utilisée pour alimenter le système d'électrodes de décharge. Les données mesurées du courant de décharge et de tension sur les électrodes ont été mesurées par deux multimètres. La transmission, la tension appliquée et le courant électrique ont été mesurés et enregistrés en même temps par ordinateur. La concentration d'ozone N_{O_3} dans l'espace de décharge a été déterminée à l'aide de la formule de Lambert-Beer :

$$A = \sigma L N_{\text{O}_3} \log_{10} e \quad (\text{III.1})$$

Où σ est la section efficace d'absorption de l'ozone, L est la longueur parcourue par la radiation (UV). A la température ambiante (298 K), le maximum de la section efficace d'absorption se produit à $\lambda = 254.0 \text{ nm}$, avec une valeur $\sigma_{\text{max}} = 1159.10^{-20} \text{ cm}^2/\text{molécule}$.

La tension de claquage de la décharge électrique couronne négative a été détectée par l'apparition d'une impulsion de courant électrique de l'ordre 0,1 μA . La caractéristique courant-tension et la transmission optique ont été enregistrées après la stabilisation du courant de décharge. On note que les mesures ont été réalisées à température ambiante et à pression atmosphérique.

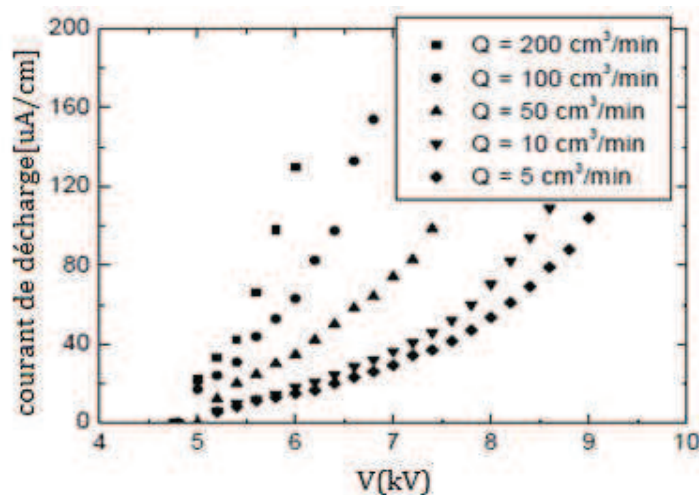


Figure III.2: Caractéristique expérimentale courant-tension pour différentes valeurs de flux du gaz (Q).[52]

III.3. Résultat et discussion:

Le calcul a été réalisé suivant les conditions de l'expérience de Skalný à la pression atmosphérique et à la température ambiante. Les tensions appliquées considérées sont entre 5-7 kV et le débit du gaz Q est de 5 à $200 \text{ cm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$. Le temps de résidence du gaz dans le volume du réacteur est calculer à partir de la vitesse du gaz par la relation: $T_r = v_g / L$.

III.3.1. Distribution des particules chargées

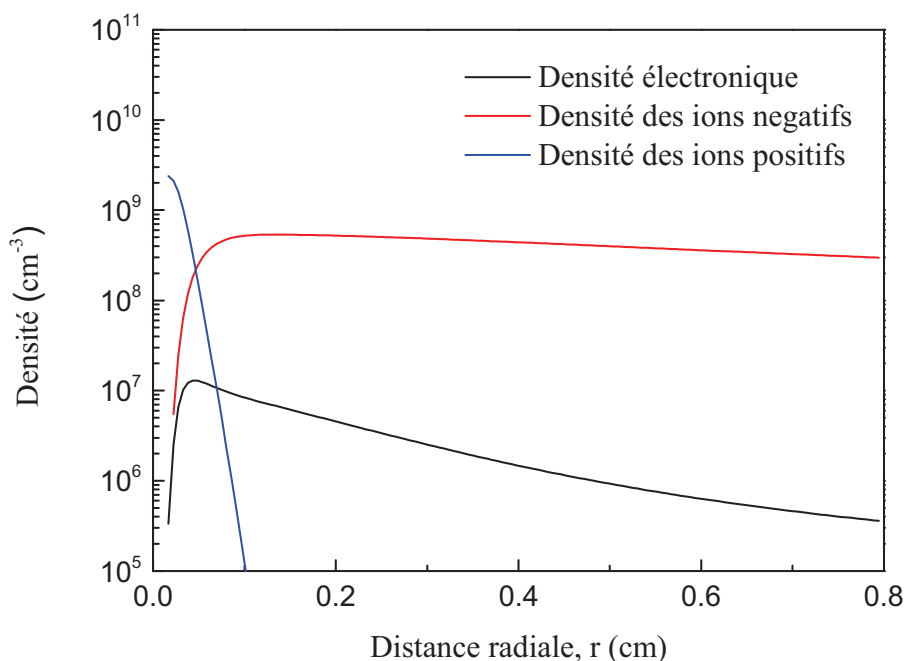


Figure III.3: La distribution radiale des électrons et des ions

La figure (III.3) montre la distribution des espèces chargées au sein de la décharge, pour $I = 10 \mu\text{A/cm}$, $V = 5.5 \text{ kV}$. Cette figure montre clairement que l'espace inter-électrode de décharge est naturellement divisée en trois régions : la première, appelée *région d'ionisation* est une région étroite autour de la cathode et s'étend jusqu'à $r \approx 0,02 \text{ cm}$, dans lequel le courant est principalement transporté par des ions positifs c'est dans cette région que la plupart de l'ionisation a lieu. Au voisinage de cette région, il ya une autre région étroite dans laquelle le courant est principalement transporté par des électrons, allant de $0,02 \text{ cm} < r < 0,06 \text{ cm}$. Cette dernière est appelée *la région active*. Le reste de l'espace de la décharge est dominé par les ions négatifs et est appelé *la région de dérive* où la répartition des espèces chargées négative suit de près la distribution des électrons et transporte le courant électrique. ce résultat conforme à celui trouvé par Soria et al.[40]

III.3.2. Distribution des particules neutres:

Les distributions spatiales des espèces neutres générées par la décharge électrique couronne sont obtenues par la résolution des équations de continuités des particules neutres (2D) (II.19) avec le logiciel COMSOL. Les paramètres d'entrés dans le logiciel sont les coefficients de transports, les coefficients de réaction, et la densité électronique obtenue par le modèle (1D) que nous avons développé dans le chapitre II.

Les résultats obtenus sont présentés selon la distribution spatial; la distribution axial et la distribution radial de chaque espèce pour $V = 5.5 \text{ kV}$, $I = 10 \mu\text{A/cm}$ et un débit du gaz $Q = 5 \text{ cm}^3.\text{min}^{-1}$.

Pour expliquer le comportement axial des espèces, nous avons comparé les termes sources de production et de destruction de chaque espèce, pour cette raison, on a tracé l'histogramme de chaque terme source en deux points différents à l'entrée et à la sortie du cylindre.

Notons que : Dans tout les histogrammes



: représente le terme source de réaction de production;



: représente le terme source de réaction de destruction.

III.3.2.1 La distribution spatiale du monoxyde de carbone (CO):

La figure (III.4) montre la distribution 2D du monoxyde de carbone le long du cylindre. La densité du monoxyde de carbone croît de l'entrée vers la sortie du cylindre où elle atteint sa valeur maximale ($[\text{CO}]_{\text{max}} = 1.7 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$). Cette augmentation, (illustrée sur la figure (III.5)), est importante le long du cylindre depuis l'entrée jusqu'à $z = 8 \text{ cm}$ où la réaction dominante est R1:



Au-delà de cette distance, on constate que cette augmentation de la concentration du CO diminue à cause de la dominance de la réaction de destruction (R10) (voir figure III.7)



Pour justifier ce comportement, on trace l'histogramme (III.6) des termes sources des réactions de production et de destruction à l'entrée et à la sortie du cylindre monoxyde de carbone CO qui nous montre que :

- À l'entrée la différence de terme source de réaction de production et de réaction de destruction est de l'ordre $2 \cdot 10^{16}$.
- À la sortie du cylindre, elle est de l'ordre $1 \cdot 10^{16}$.

D'après la réaction de destruction R10 la concentration du CO est affectée par l'augmentation de la concentration de l'oxygène atomique (puisque la concentration de CO_2 est constante).

L'histogramme représenté dans la figure (III.7), montre que les réactions de production de CO sont dominantes par rapport à celles de destructions.

La concentration est constante dans la direction radiale (figure III.8), et cela est dû à la distribution de la densité électronique qu'est presque constante radialement et aussi aux réactions de destruction du CO qui sont faibles.

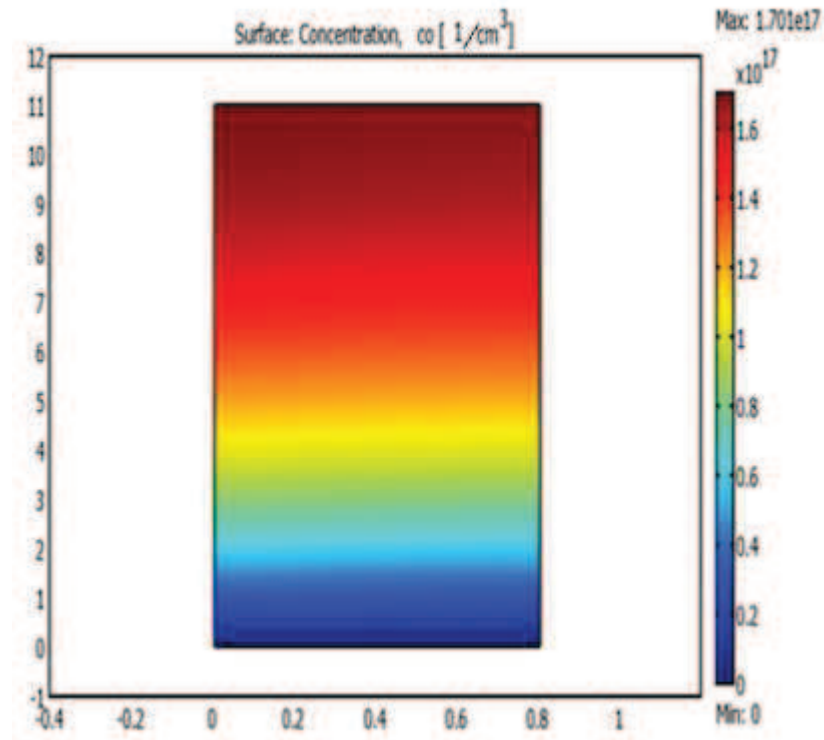


Figure III.4: La distribution de monoxyde de carbone (CO).

A. Distribution axiale

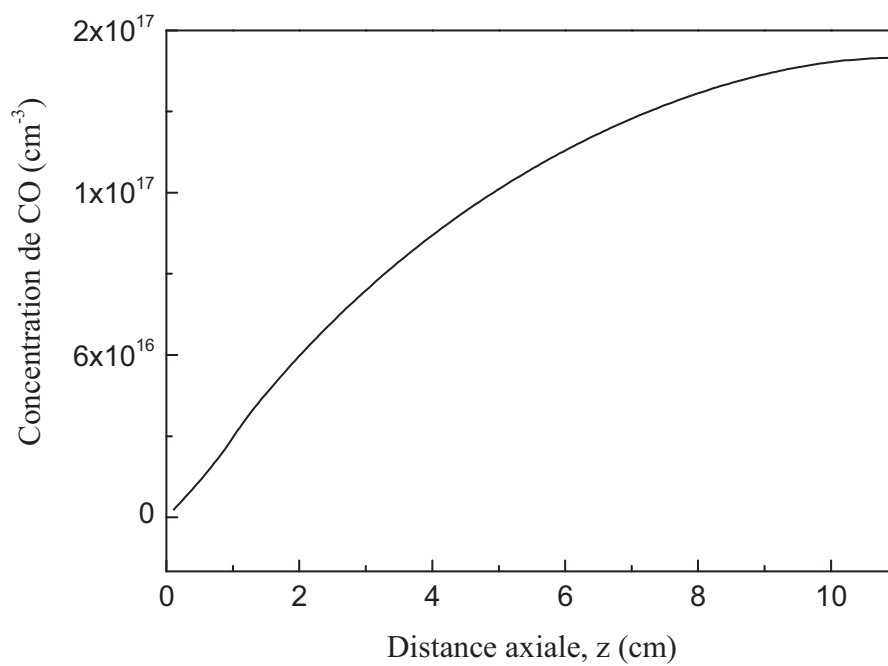
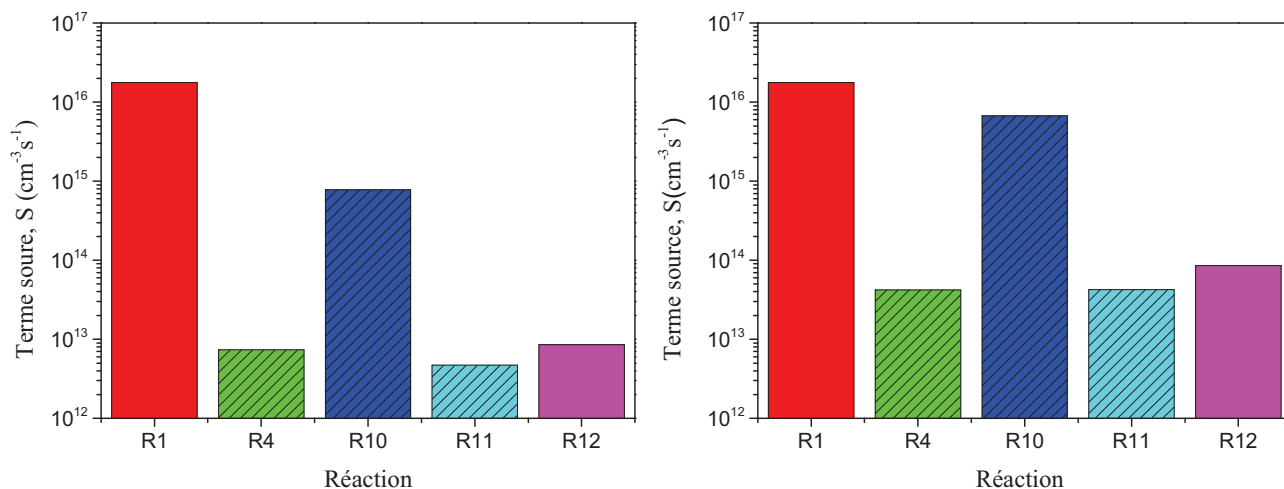


Figure III.5: La distribution axiale de CO à $r = 0.1$ cm



(a): à l'entrée du cylindre ($z=1\text{cm}$ et $r=0.1\text{cm}$)

(b): à la sortie du cylindre ($z=11\text{cm}$ et $r=0.1\text{cm}$)

Figure III.6 : L'histogramme des termes source des réactions de production et de destruction d'espèce CO , (a) à l'entrée du cylindre, (b) à la sortie du cylindre.

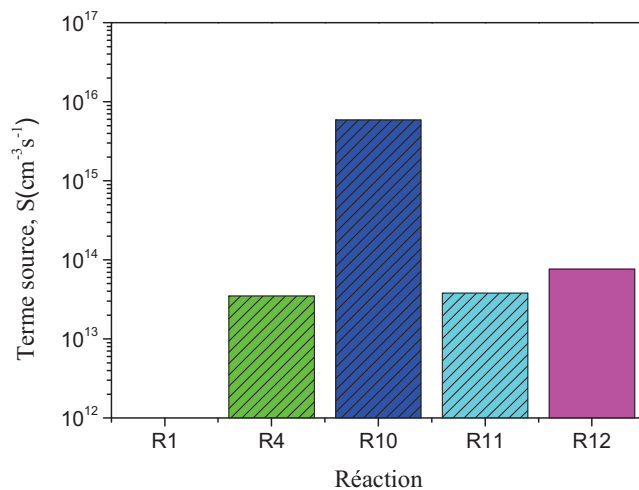
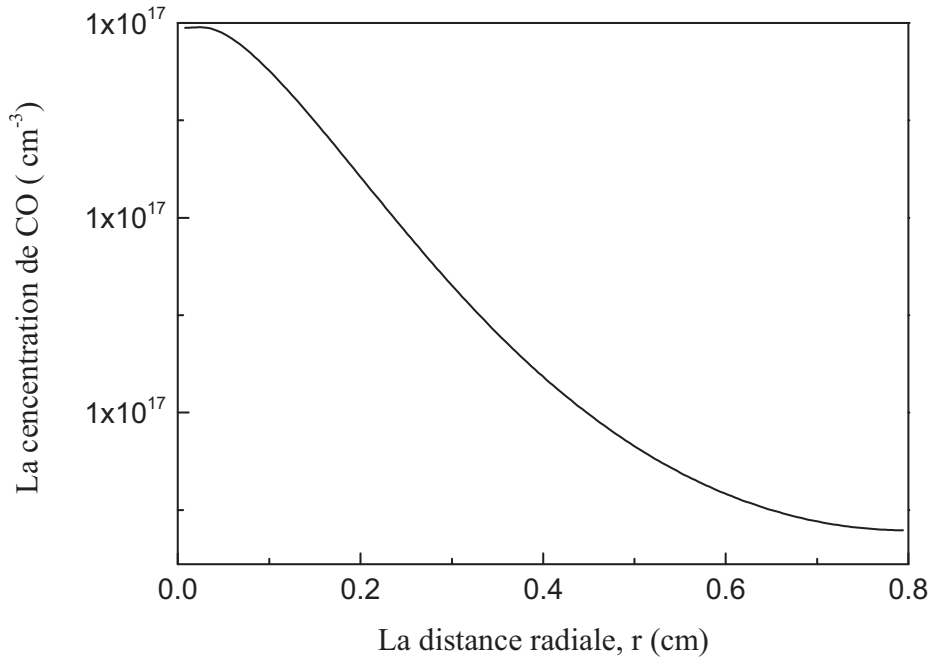


Figure III.7 : La différence des termes sources des réactions à l'entrée et à la sortie du cylindre en valeur absolue

B. Distribution radiale*Figure III.8: La distribution radiale de CO***III.3.2.2. La distribution spatiale de l'oxygène atomique (O):**

La variation axiale de la densité d'oxygène atomique est presque constante. Comme il est illustré sur la figure (III.9), la concentration de l'oxygène atomique est liée à la densité électronique par l'intermédiaire de la réaction:



On constate une augmentation rapide de la densité d'oxygène atomique et cela est dû à la rapidité de la réaction (R1) ensuite elle reste presque constante ($[\text{O}]_{\text{max}} \approx 1,5 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$) à cause de la dominance des réactions de destruction suivantes :





Pour justifier ce comportement, l'histogramme de la figure (III.11) montre que le taux d'apparition d'oxygène atomique est très important à l'entrée du cylindre par rapport au taux de destruction (équations III.2). Le taux de destruction augmente jusqu'à devenir égal aux taux de production à la sortie du cylindre (équations III.3).

La variation radiale de la densité d'oxygène atomique est similaire à la variation radiale de la densité électronique (Figure III.31) à cause de la réaction (R1).

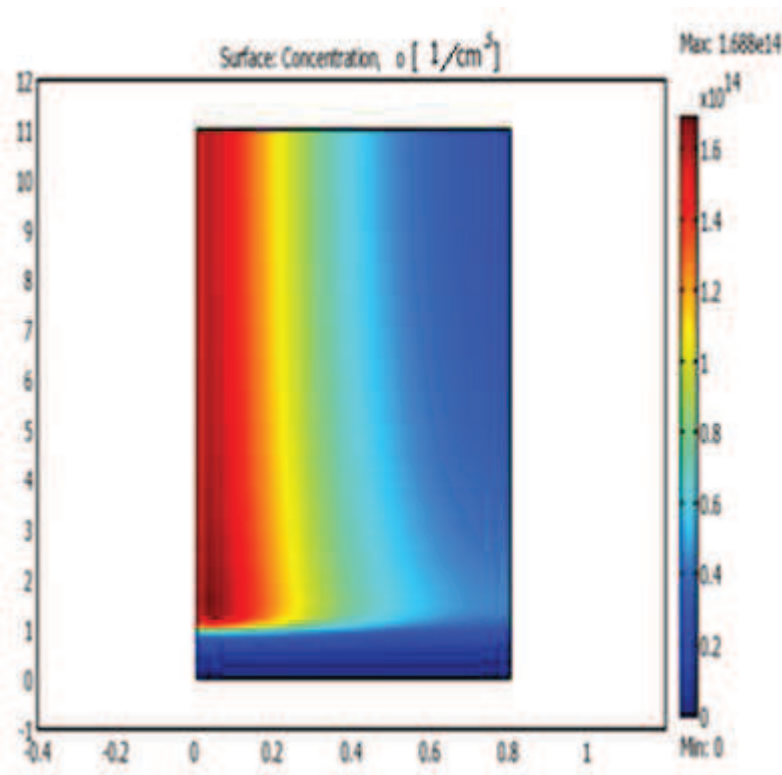
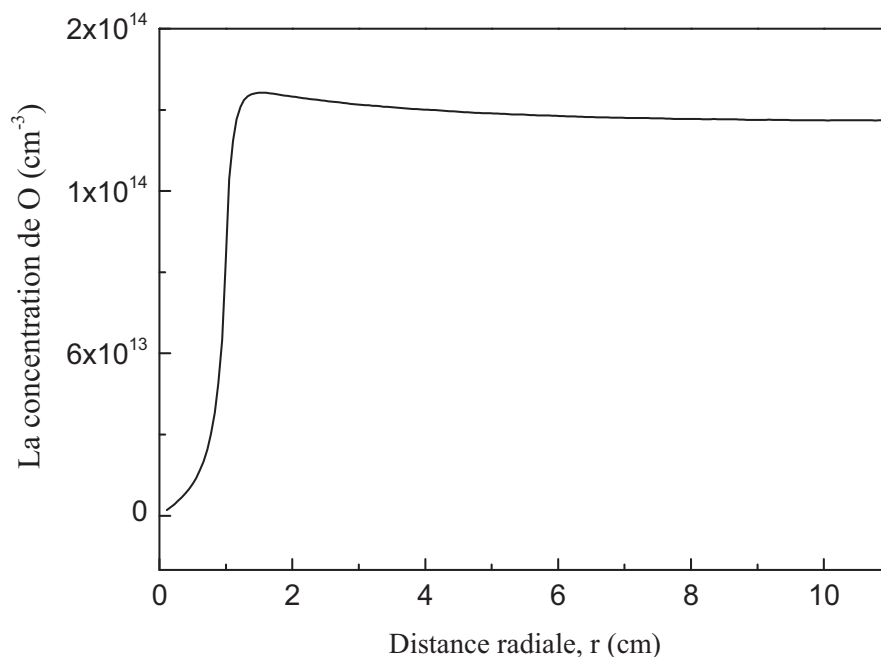
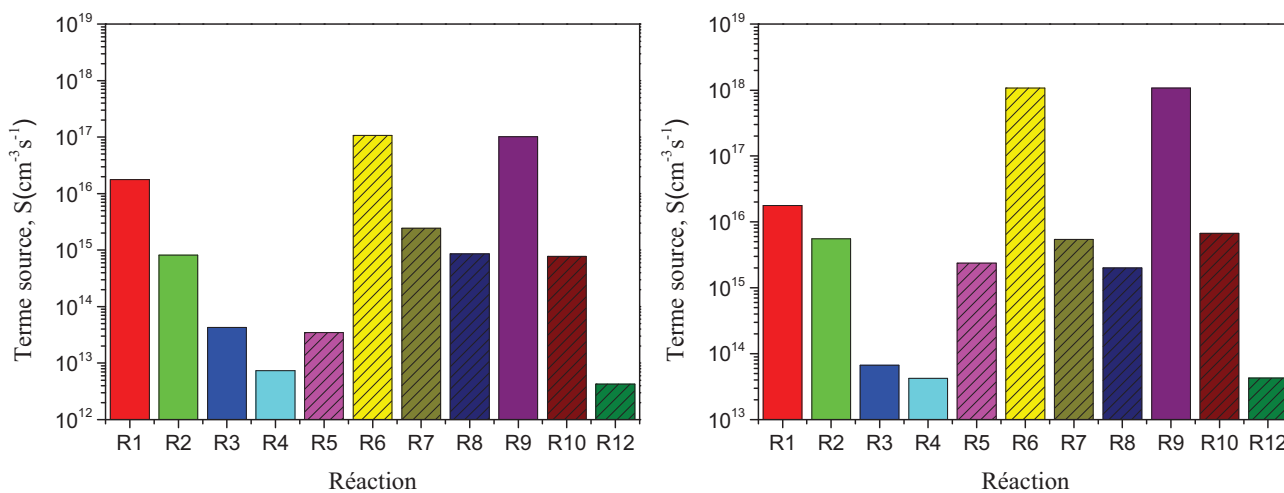


Figure III.9: La distribution d'oxygène atomique (O).

A. Distribustion axiale:**Figure III.10:** La distribution axiale de O à $r = 0.1 \text{ cm}$ **(a):** à l'entrée du cylindre ($z=1 \text{ cm}$ et $r=0.1 \text{ cm}$)**(b):** à la sortie du cylindre ($z=11 \text{ cm}$ et $r=0.1 \text{ cm}$)**Figure III.11:** L'histogramme des termes source des réactions de production et de destruction d'espèce O , **(a)** à l'entrée du cylindre, **(b)** à la sortie du cylindre.

La somme des termes sources de production et de destruction de l'oxygène atomique:

a- à l'entrée du cylindre

$$\begin{cases} S1 + S2 + S3 + S4 + S9 &= 1,2 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1} \\ S5 + S6 + S7 + S8 + S10 + S12 &= 1,11 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1} \end{cases} \quad (\text{III. 2})$$

b- à la sortie du cylindre

$$\begin{cases} S1 + S2 + S3 + S4 + S9 &= 1,09 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1} \\ S5 + S6 + S7 + S8 + S10 + S12 &= 1,09 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1} \end{cases} \quad (\text{III. 3})$$

B. Distribution radiale

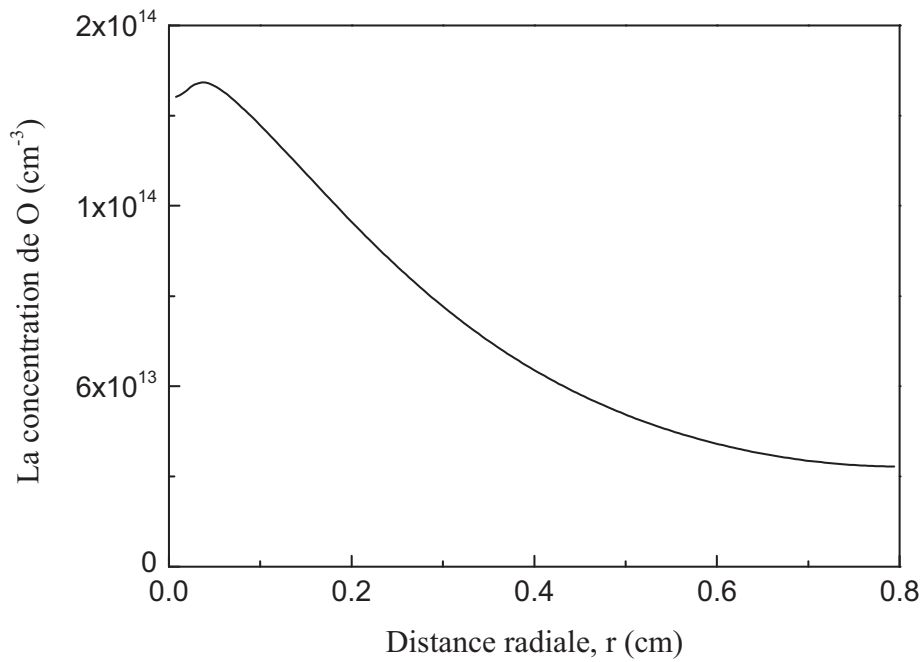


Figure III.12: La distribution radiale de O à $z = 5\text{cm}$

III.3.2.3. La distribution spatiale de l'oxygène moléculaire (O₂)

La figure (III.13) illustre la distribution 2D de l'oxygène le long du cylindre. L'oxygène est produit par les réactions :



Et il est détruit par les rections :



La concentration de l'oxygène augmente de l'entrée vers la sortie du cylindre où elle atteint une valeur maximale autour de $1,66.10^{17} \text{ cm}^{-3}$ (figure III.14).

La variation de la concentration de O₂ est importante le long du cylindre depuis l'entrée jusqu'à $z=8 \text{ cm}$ d'où les réactions dominantes sont R7, R8 et R9.

L'histogramme (figure III.15) des termes sources des réactions de production et de destruction à l'entrée et à la sortie du cylindre justifie cette augmentation d'oxygène et nous montre que le taux de production à l'entrée augmente de l'ordre de 10^{17} à 10^{18} à la sortie du cylindre.

Au-delà de cette distance $z = 8 \text{ cm}$, on constate que cette augmentation de la concentration du O₂ décroît à cause des réactions de destructions R5 dont le terme source augmente de l'ordre 10^{13} à l'entrée du cylindre à 10^{15} à sa sortie (figure III.15).

Alors que la distribution radiale est presque constante comme il est indiqué sur la figure (III.16), cela est expliqué par le fait que l'oxygène est produit par l'oxygène atomique et le dioxyde de carbone (réaction R7), qui ont des distributions presque constantes.

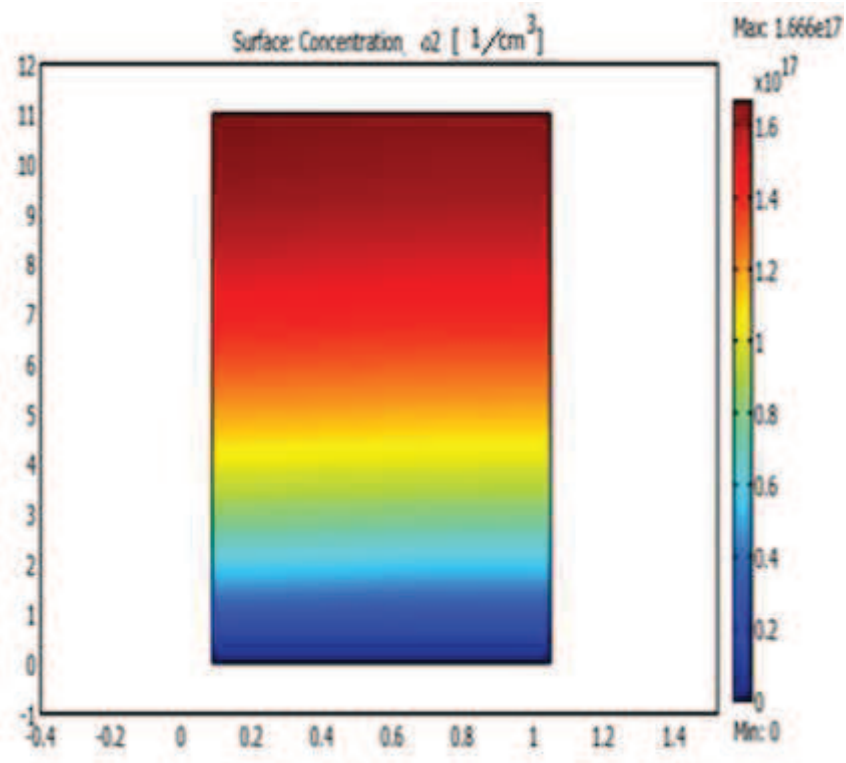


Figure III.13: La distribution d'oxygène (O_2).

A. Distribution axiale:

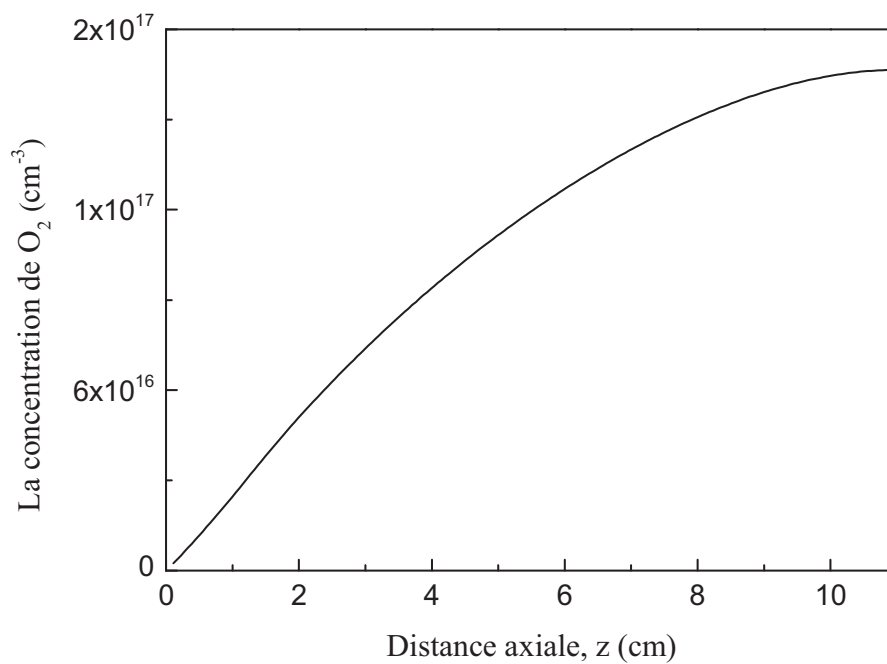
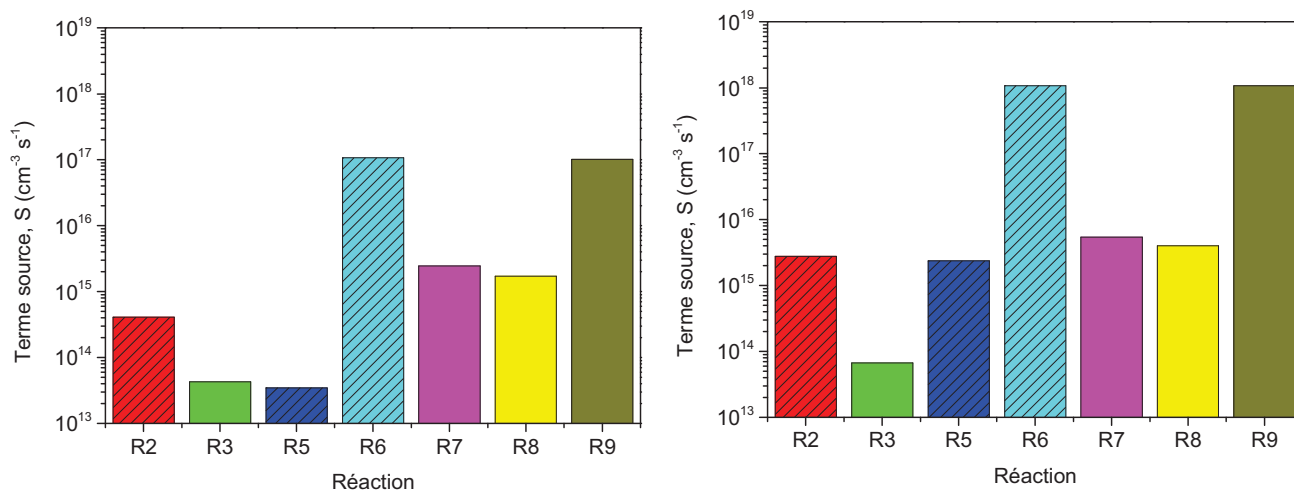


Figure III.14: La distribution axiale d' O_2



(a): à l'entrée du cylindre ($z=1\text{cm}$ et $r=0.1\text{cm}$)

(b): à la sortie du cylindre ($z=11\text{cm}$ et $r=0.1\text{cm}$)

Figure III.15: L'histogramme des termes source des réactions de production et de destruction d'espèce O_2 , (a) à l'entrée du cylindre, (b) à la sortie du cylindre.

B. Distribution radiale :

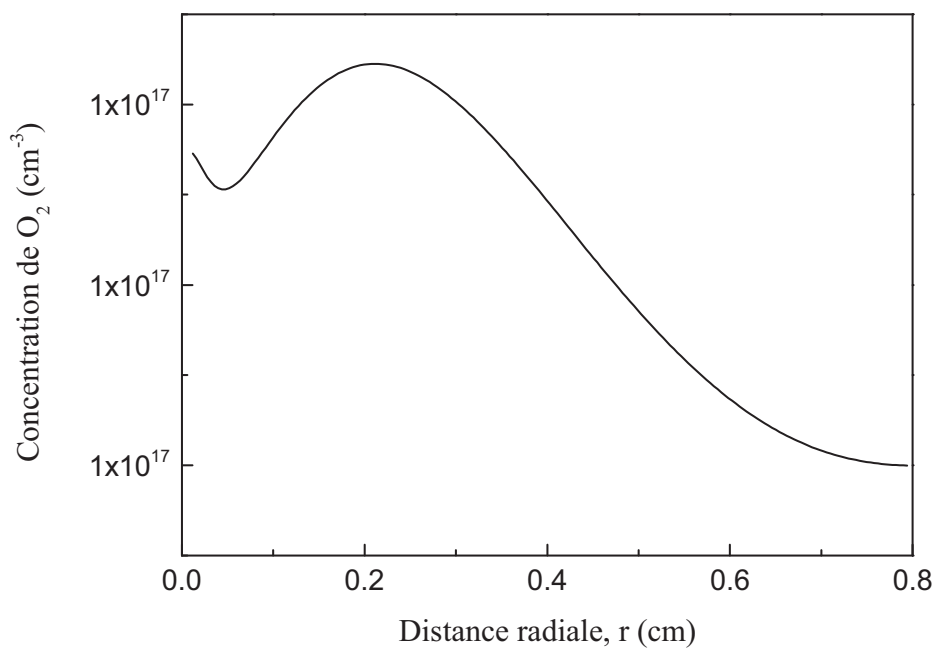


Figure III.16: La distribution radiale d' O_2 à $z = 5\text{ cm}$

III.3.2.4. La distribution spatiale de l’ozone (O₃):

Dans la décharge électrique couronne l’ozone est produit en deux étapes:

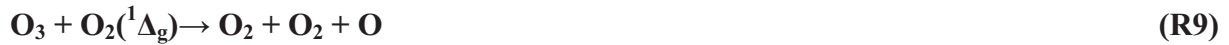
- (i) Les atomes d'oxygène sont produits par la dissociation directe du CO₂:



- (ii) L'ozone est produit via un processus de trois corps :



Les réactions qui causent la destruction de l’ozone sont:



La figure (III.17) montre la distribution spatiale d'ozone le long du cylindre, nous remarquons que la distribution de cette dernière est similaire à celle de l’oxygène atomique. Juste à l'entrée du gaz dans le cylindre où la densité d'ozone augmente pour atteindre un maximum ($[O_3]_{\max} = 1,68.10^{15} \text{cm}^{-3}$ à $z = 1.5 \text{cm}$ et puis elle reste constante le long du cylindre jusqu'à la sortie (figure (III.18)).

Pour justifier ce comportement, on trace l'histogramme (figure III.19) des termes sources des réactions de production et de destruction à l'entrée et à la sortie du gaz, nous constatons que la réaction de production dominante est R6 et la réaction de destruction dominante est R9 si on compare la variation du terme source de ces deux réactions à l'entrée ($z = 1.5$) et à la sortie on constate qu'ils sont presque égaux ($\approx 9.7.10^{17}$) et la différence entre eux est presque égale à zéro.

Dans la région d’ionisation la concentration d’ozone est un peu plus élevée par rapport à la région de dérive (figure (III.20)).

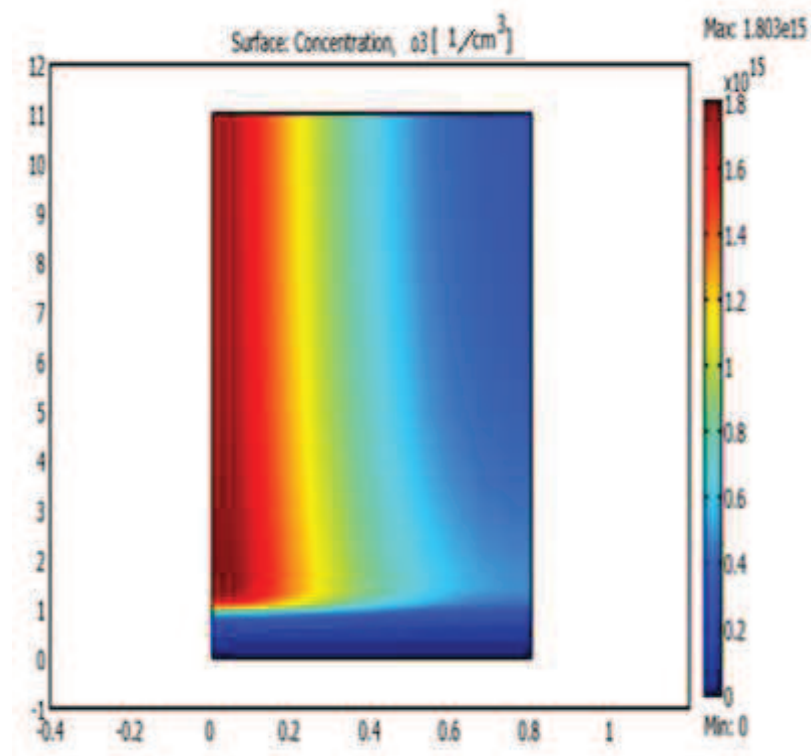


Figure III.17: La distribution d'ozone (O_3).

A. Distribution axiale

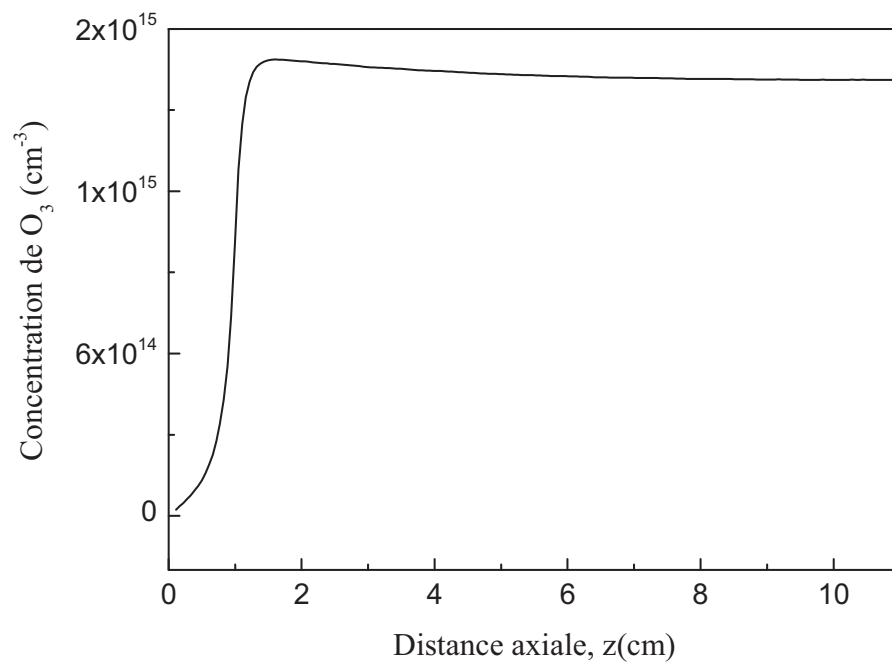
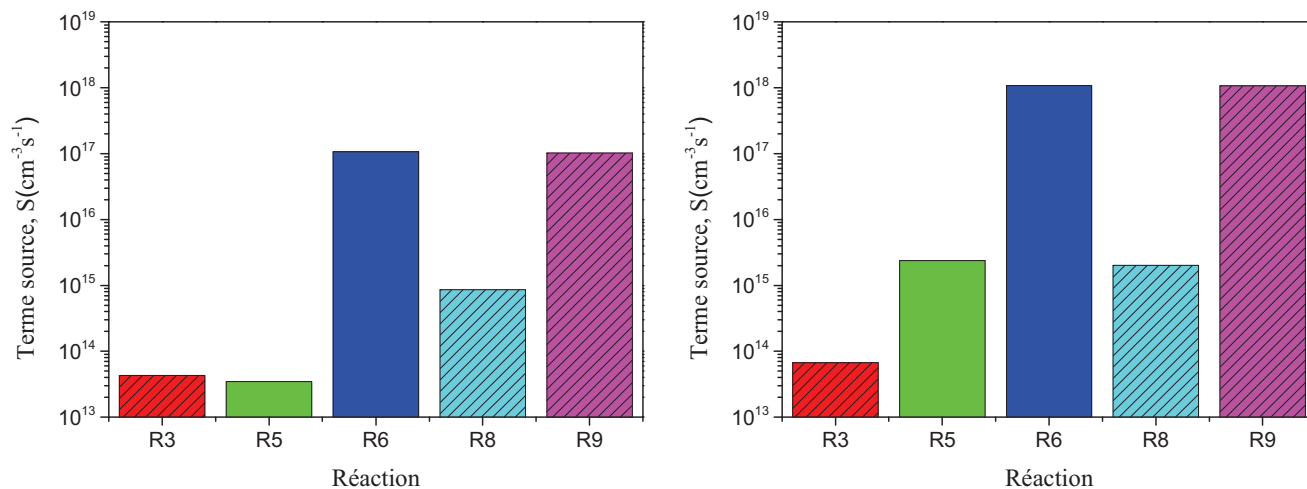


Figure III.18 : La distribution axiale d' O_3



(a): à l'entrée du cylindre ($z=1\text{cm}$ et $r=0.1\text{cm}$)

(b): à la sortie du cylindre ($z=11\text{cm}$ et $r=0.1\text{cm}$)

Figure III.19: L'histogramme des termes source des réactions de production et de destruction d'espèce O_3 , (a) à l'entrée du cylindre, (b) à la sortie du cylindre.

B. Distribution radiale:

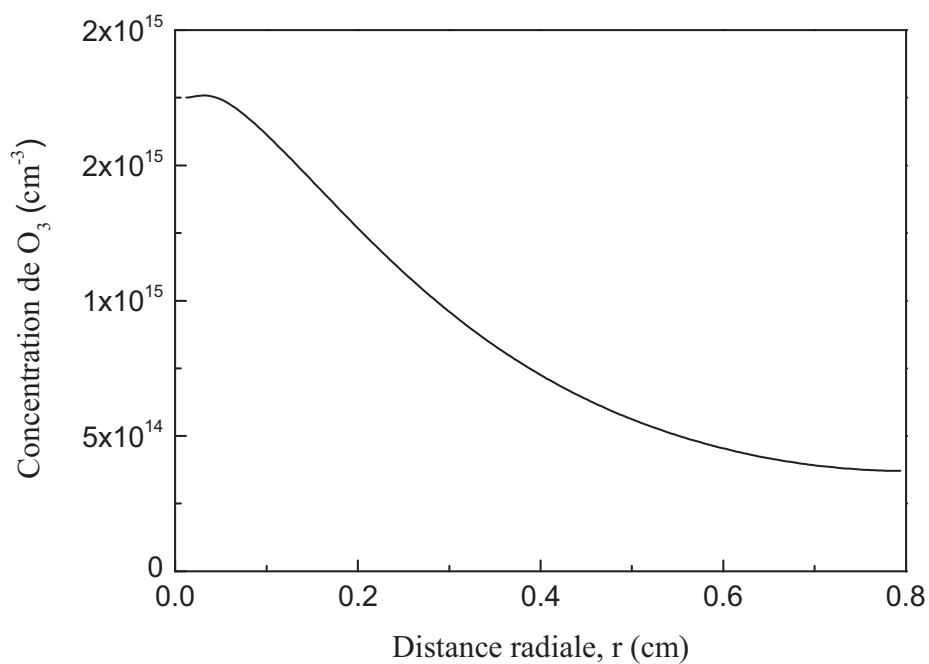


Figure III.20: La distribution radiale d' O_3 à $z=5\text{ cm}$

III.3.2.5. La distribution spatiale du carbone (C) :

La figure (III.21) représente l'évolution de la concentration du carbone à 2D le long du cylindre, nous remarquons qu'il n'y a que la variation radiale comme il est montré aussi sur la figure (III.24), dans la région active de la décharge électrique les atomes de carbone sont principalement concentrés simulables à la densité électronique (figure III.31) suivant la réaction (R4)



La variation axiale de la densité du carbone est presque constante, comme il est illustré sur la figure (III.22), elle augmente brusquement à l'entrée du cylindre jusqu'à atteindre la valeur maximale $[C]_{\max} = 1.6.10^8 \text{ cm}^{-3}$ ensuite elle devient constante, nous remarquons que la densité du C est faible en la comparant avec les autres espèces,

Ce comportement est justifié par le fait que juste à l'entrée le taux de destruction dû à la réaction R11 augmente brusquement jusqu'à devenir égal aux taux de production qui est très rapide et cela se produit dans un intervalle de temps de l'ordre de 10^{-5} s et à une très courte distance de l'ordre de 0.05 cm , comme il est montré par l'histogramme (figure III.22 (a) et (b)). Au-delà de cette distance $z = 0.05 \text{ cm}$ le taux de destruction reste égal aux taux de production jusqu'à la sortie du cylindre (figure (III.23 (c))).



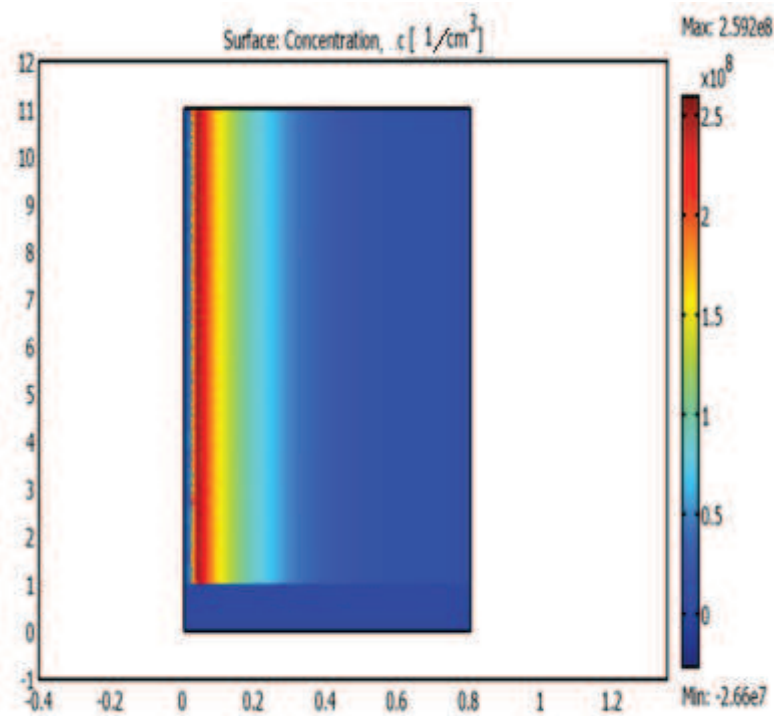


Figure III.21: La distribution de carbone (C).

A. Distribution axiale

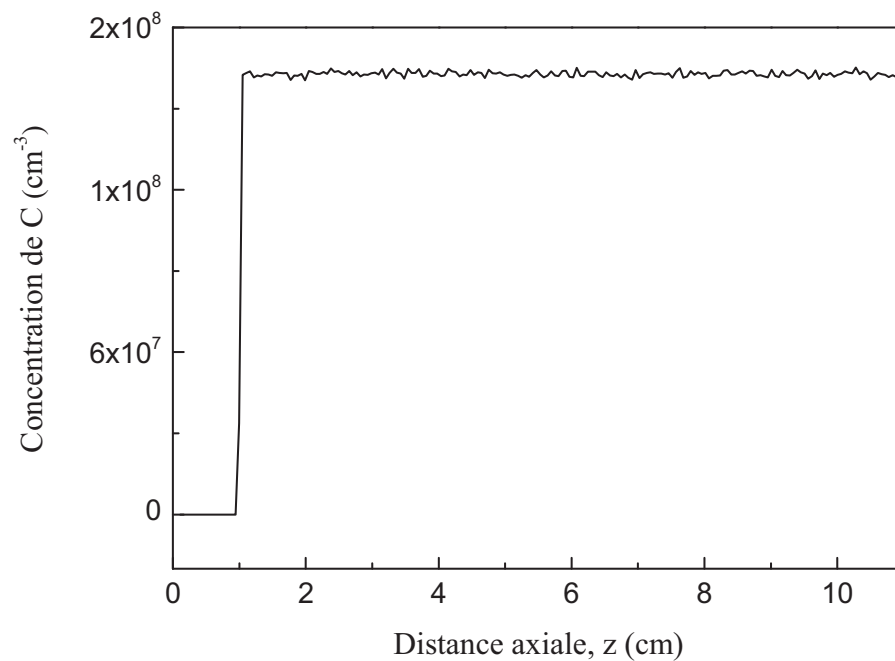


Figure III.22: La distribution axiale de C à $r=0.1\text{ cm}$

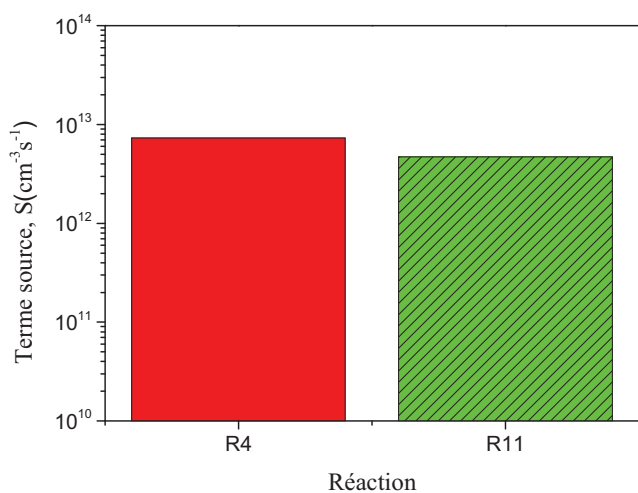
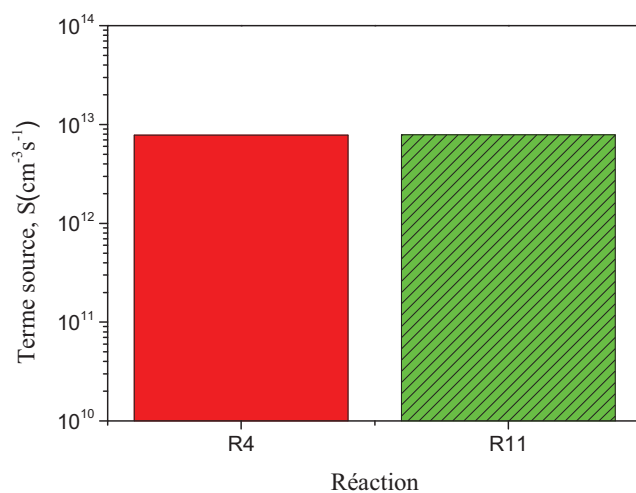
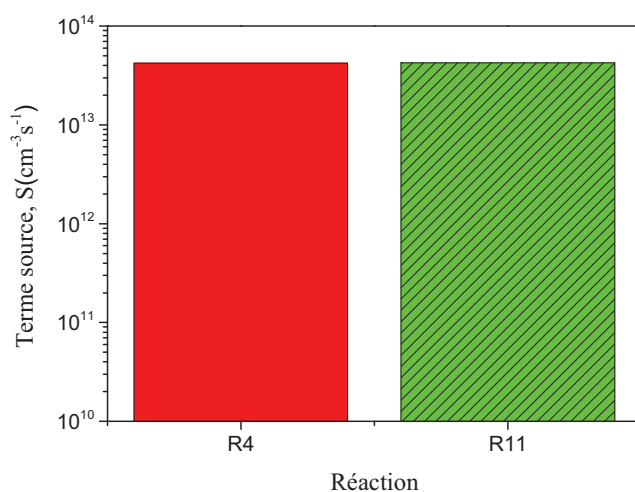
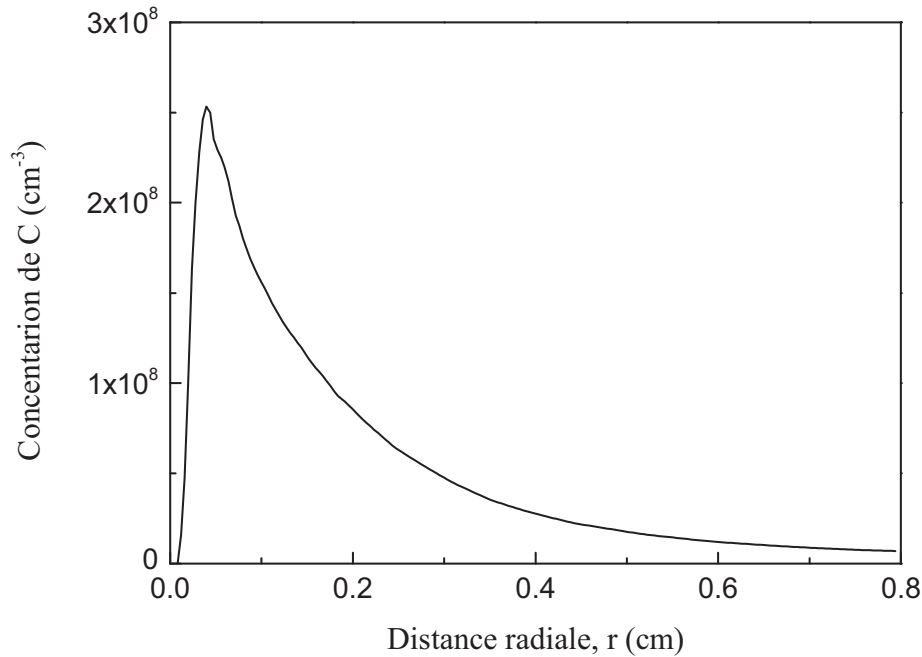
(a): à l'entrée du cylindre ($z=1\text{cm}$ et $r=0.1\text{cm}$)(b): à l'entrée du cylindre ($z=1.05\text{cm}$ et $r=0.1\text{cm}$)(c) à la sortie du cylindre ($z=11\text{cm}$ et $r=0.1\text{cm}$).

Figure III.23: L'histogramme des termes source des réactions de production et de destruction d'espèce C, (a) et (b) à l'entrée du cylindre, (c) à la sortie du cylindre.

B. Distribution radiale :*Figure III.24: La distribution radiale de C à $z=5\text{cm}$* **III.3.2.6. I La distribution spatiale de C_2O :**

Lorsque le gaz se déplace dans la direction axiale, le C_2O diffuse vers l'anode et sa concentration augmente graduellement dans les deux directions, radiale et axiale, voir les figures (III.25, III.26 et III.28). La densité du C_2O est faible en la comparant avec les autres espèces, par exemple son maximum dans la région active est seulement de l'ordre de $5,8 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3}$. Le C_2O est produit par la réaction (R11) et il est détruit par la réaction (R12)



Le terme source de destruction du C_2O est faible par rapport au terme source de sa production à l'entrée du cylindre (figure III.27 (a)) et ceci explique l'augmentation continue du C_2O le long de la direction axiale. On constate que cette augmentation décroît à cause de la réaction de destruction R12 dont le terme source augmente de l'ordre 10^{13} à l'entrée du cylindre à 10^{14} à sa sortie (figure III.27 (b)).

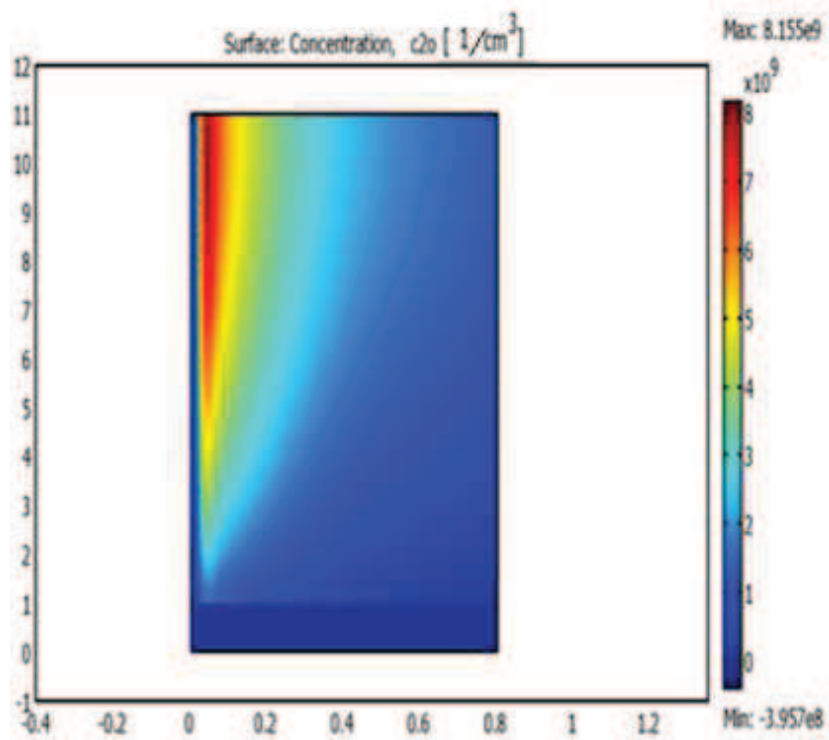


Figure III.25: La distribution de C_2O .

A. Distribution axiale

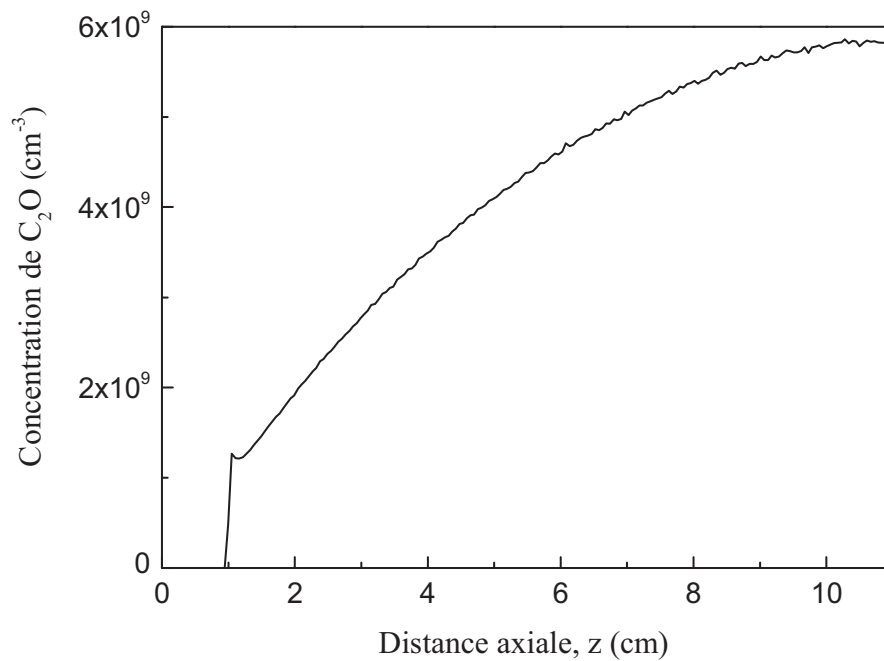
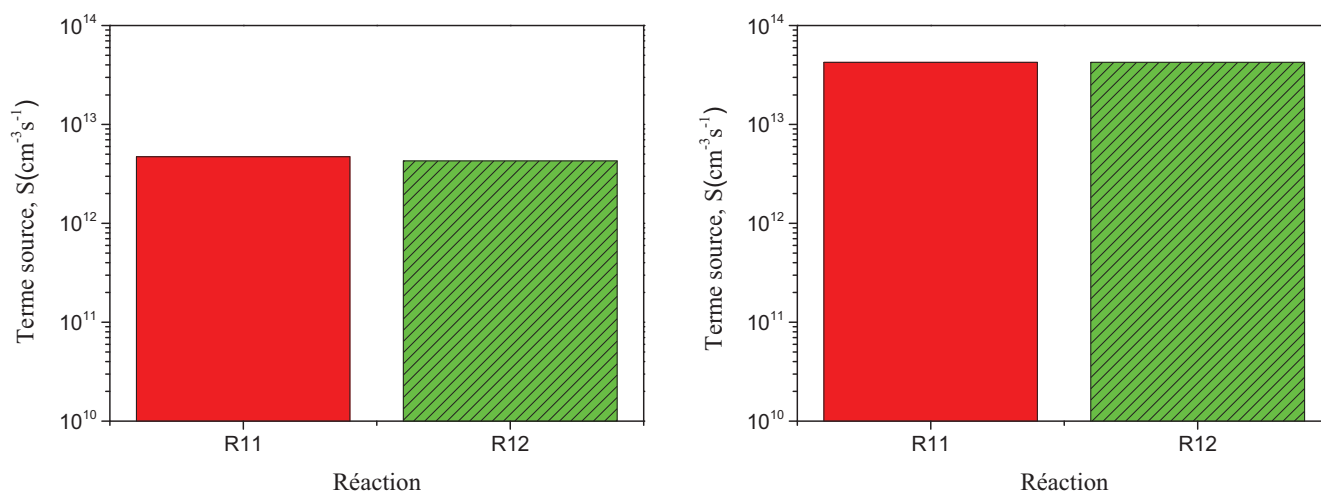


Figure III.26: La distribution axiale de C_2O à $r=0.1\text{cm}$



(a): à l'entrée du cylindre ($z=1\text{cm}$ et $r=0.1\text{cm}$)

(b): à la sortie du cylindre ($z=11\text{cm}$ et $r=0.1\text{cm}$)

Figure III.27: L'histogramme des termes source des réactions de production et de destruction d'espèce C_2O , (a) à l'entrée du cylindre, (b) à la sortie du cylindre.

B. Distribution radiale :

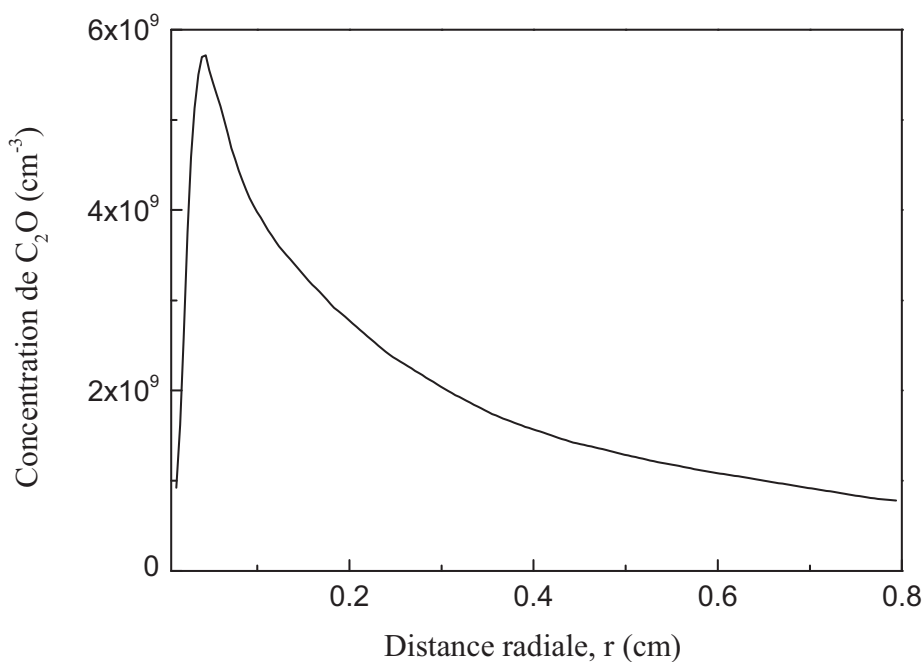


Figure III.28: La distribution radiale de C_2O à $z=5\text{cm}$

III.3.3. Validation du modèle

La dépendance de la concentration d'ozone de la tension appliquée pendant la décharge électrique a été tracée sur la figure (III.29).

On calcule la densité moyenne de l'ozone par la relation:

$$\langle O_3 \rangle = \frac{\int_0^L dz \int_{r_0}^R 2\pi r N_{O_3} dr}{\pi (R^2 - r_0^2) L} \quad (\text{III. 4})$$

La comparaison de nos résultats avec ceux trouvés expérimentalement par Skalný, Országh et Mason montre un accord raisonnable. Et donc les approximations que nous avons proposées sont acceptables.

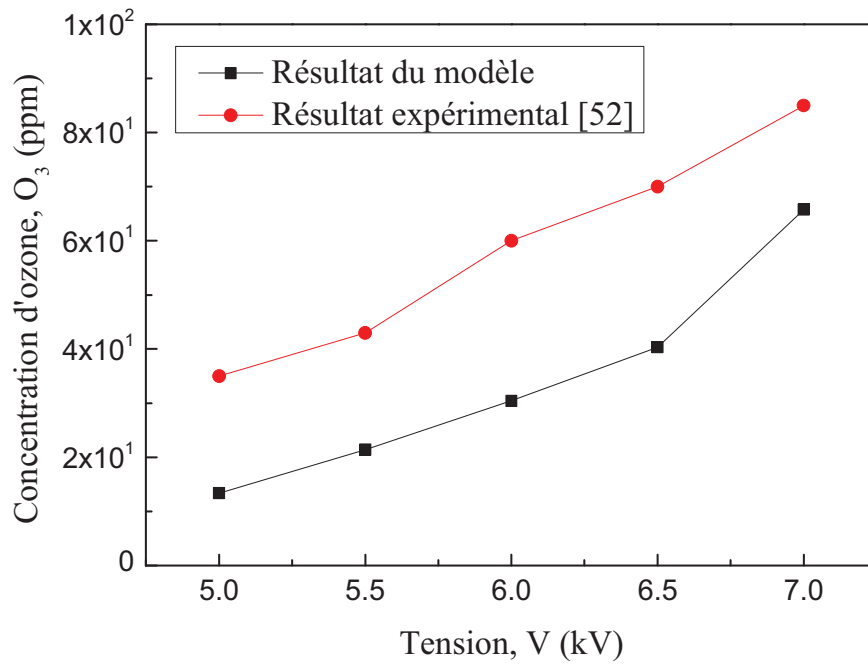


Figure III.29 : Comparaison entre les résultats expérimentaux et celles du modèle.

III.3.4. Etude paramétrique:

III.3.4.1. L'effet de la tension

III.3.4.1.1. L'effet de la tension sur le champ électrique

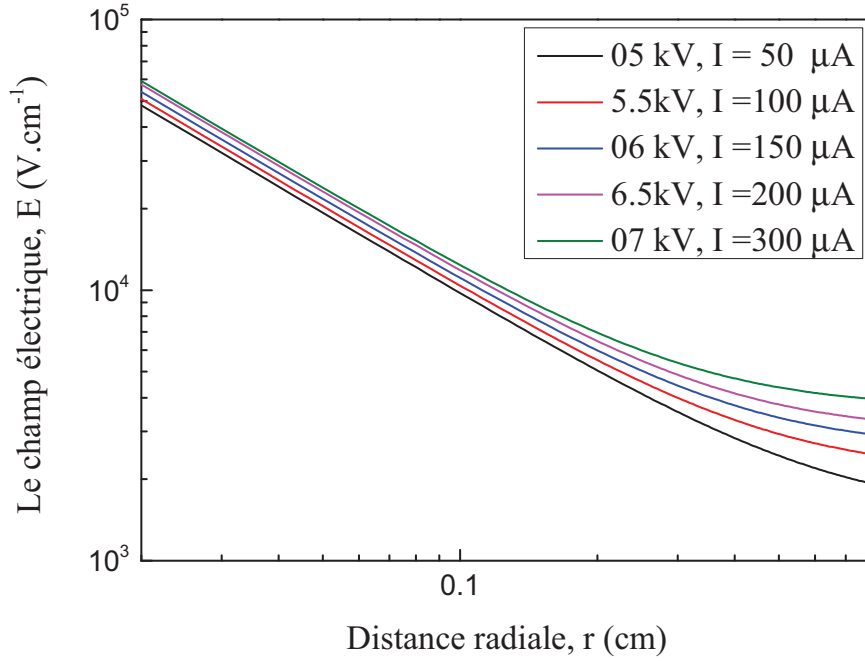


Figure III.30 : Variation radiale du champ électrique en fonction de la tension appliquée.

La figure (III.30) montre la distribution du champ électrique résultant des simulations pour plusieurs valeurs de tension et de courant suivant la caractéristique courant-tension (I-V) expérimentale [52]. Le champ électrique dans la région de dérive est lié directement au courant électrique comme elle montre la relation (II.26), lorsque r augmente, le terme $\frac{c^2}{r^2}$

devient négligeable devant $\frac{|I|}{2\pi \varepsilon L \mu_n}$. Ce qui donne

$$E = E' = \sqrt{\frac{|I|}{2\pi \varepsilon L \mu_n}} \ll E_{\alpha=\eta} \quad (\text{III. 5})$$

Dans la région de dérive, E' fournit la limite asymptotique du champ électrique. La validité de l'équation (III.5) peut être vérifiée directement à partir de la figure (III.31), en comparant le champ électrique près de l'anode et au maximum de la densité électronique, où $E \approx E_{\alpha=\eta}$. L'équation (III.5) peut être interprétée comme une condition exprimant que la charge spatiale est beaucoup plus petite que la charge sur la surface de la cathode. En effet, c'est une condition nécessaire pour l'existence de la décharge couronne stationnaire. On note que Lorsque le champ électrique dû à la charge d'espace est comparable avec le champ appliqué, c'est la condition de Meek [53] pour la formation de streamer.

III.3.4.1.2. L'effet de la tension sur la densité électronique

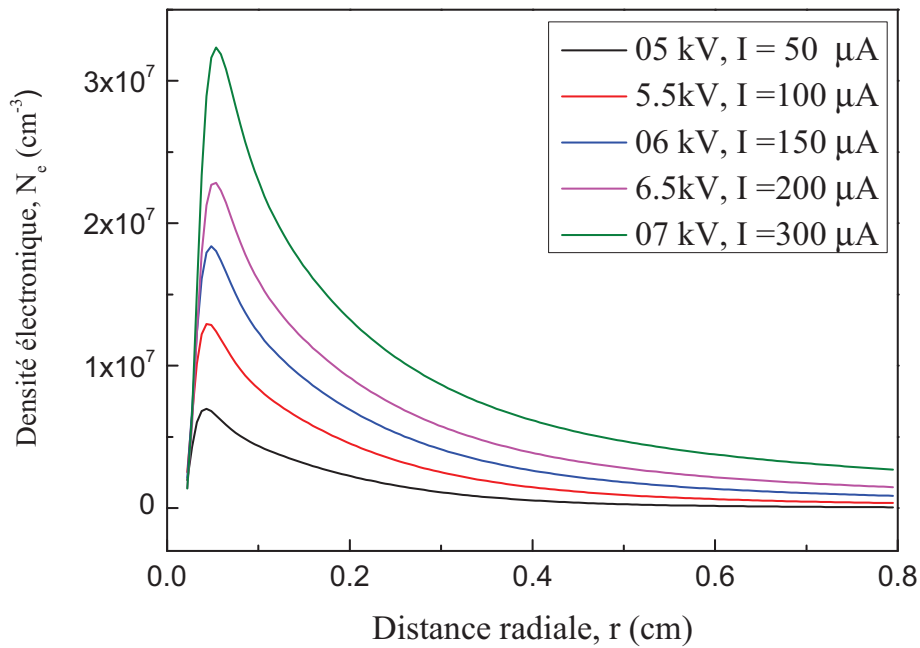


Figure III.31: La distribution radiale de la densité électronique en fonction de la tension appliquée.

La figure (III.31) 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 active s'élargie. Le pic de la densité électronique passe de 7.10^6 cm^{-3} à $3,23.10^7 \text{ cm}^{-3}$, quand la tension appliquée varie de 5kV à 7kV. Pour justifier ce comportement on trace

la variation du coefficient d'ionisation en fonction du champ électrique (figure III.32). La figure (III.32) montre que le coefficient d'ionisation (α) varie proportionnellement avec le champ électrique qui est lié à la tension appliquée par l'équation de Poisson (équation II.21). Cette variation de coefficient d'ionisation influence directement sur la densité électronique par la relation (II.15).

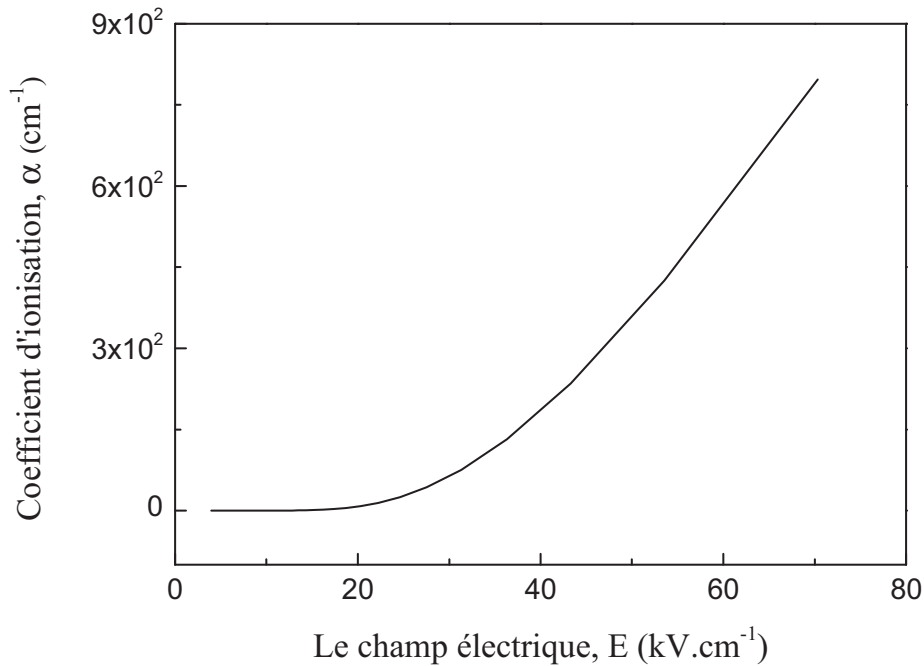


Figure III.32 : Coefficient d'ionisation obtenu par le code Bolsig en fonction du champ électrique.

En effet, l'augmentation du maximum de la densité d'électrons est linéairement dépendant de l'intensité du courant. La figure (III.33) illustre l'effet du courant sur la variation du maximum de la densité électronique. Lorsque le courant I augmente, le maximum de la densité électronique croît rapidement.

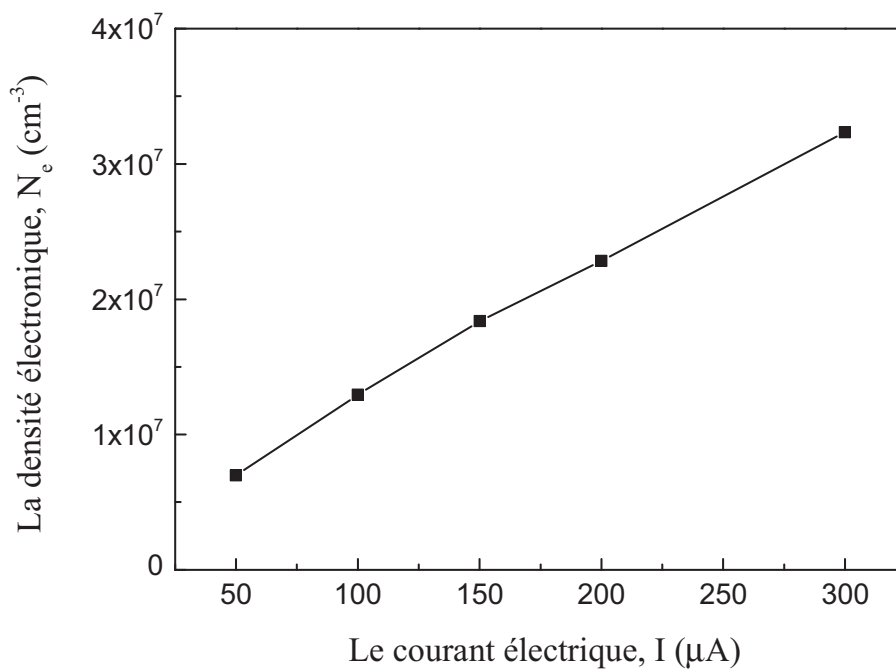


Figure III.33: Le maximum de la densité électronique en fonction du courant électrique

III.3.4.1.3. L'effet de la tension sur les espèces neutres:

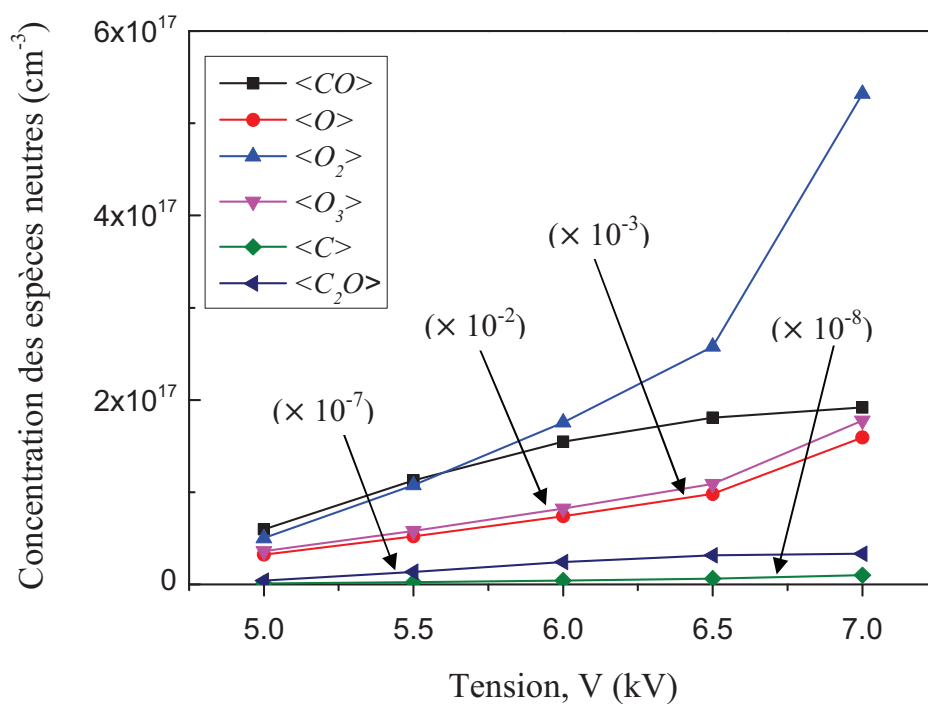


Figure III.34 : La variation de la valeur moyenne des espèces neutres en fonction de la tension.

Afin d'étudier l'effet de la tension sur les espèces neutres, nous calculons la valeur moyenne de la concentration de chaque espèce neutre ($\langle CO \rangle$, $\langle O \rangle$, $\langle O_2 \rangle$, $\langle O_3 \rangle$, $\langle C \rangle$, $\langle C_2O \rangle$) produit pendant la décharge électrique par la relation (III.4) en fonction de la tension électrique appliquée (voir la figure III. 34), on remarque clairement que toutes les espèces neutres présentent le même comportement (l'augmentation de la tension électrique conduit à l'augmentation de la concentration moyenne de chaque espèce neutre).

III.3.4.2. L'effet de l'écoulement gazeux

III.3.4.2.1. Effet de l'écoulement sur la distribution du champ électrique

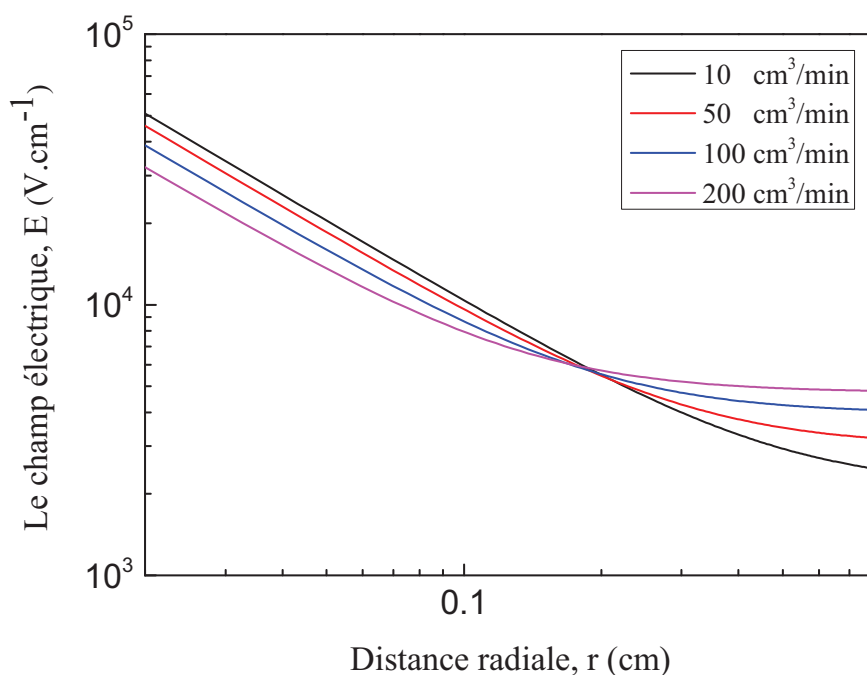


Figure III.35 : variation radiale du champ électrique en fonction de l'écoulement de gaz

D'après la caractéristique courant tension (figure III.2) le courant augmente quand le flux de gaz augmente et d'après la relation (II.26) le champ électrique dans la région de dérive augmente aussi avec le courant, cela explique le fait que le champ électrique est proportionnel

au débit du gaz dans la région de dérive et inversement proportionnel au débit du gaz dans la région d'ionisation et la région active, figure (III.35).

III.3.4.2.2. Effet de l'écoulement sur la distribution de la densité électronique

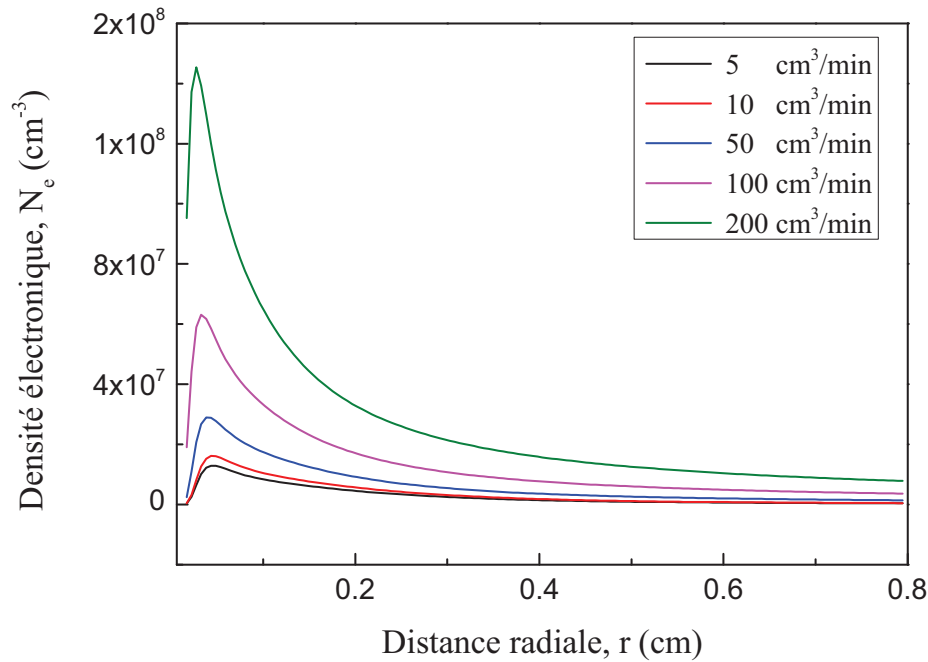


Figure III.36 : variation radiale de la densité électronique en fonction de l'écoulement de gaz

Sur la figure (III.36) nous avons représenté, la distribution radiale de la densité électronique calculées pour différentes valeur de vitesse de l'écoulement. On constate que la densité électronique (N_e) croît rapidement, et la région active s'élargie lorsque que l'écoulement (Q) augmente. Cela est dû à la caractéristique courant-tension expérimentale figure (III.2) qui montre que le courant électrique augmente avec le flux du gaz. Par exemple le maximum de la densité électronique passe de $1,3 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-3}$ à $1,45 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}$, quand l'écoulement varie de 5 cm^3/min à 200 cm^3/min . En effet, l'augmentation de la densité d'électrons est linéairement dépendante de l'écoulement.

III.4. Conclusion :

Nous avons présenté dans ce chapitre les résultats de la modélisation de la décomposition du CO_2 par décharge électrique couronne négative, dans le dioxyde de carbone pur et avec écoulement du gaz. Les résultats montrent les variations spatiales du champ électrique, de la densité électronique et des densités de particules neutres (CO , C_2O , C , O , O_2 , O_3). La caractéristique expérimentale courant-tension a été utilisé comme donné de simulation.

Une étude paramétrique a été menée pour voir l'effet de la tension appliquée et la vitesse d'écoulement du gaz sur le champ électrique et les différentes espèces. Pour valider le modèle, la concentration d'ozone calculée a été comparée aux mesures expérimentales de Skalný et al [52], l'accord été acceptable.

Conclusion Générale

Conclusion générale

Le travail présenté dans ce mémoire consiste à élaborer un modèle numérique, qui permet la simulation de la distribution des différentes espèces dans l'espace inter-électrodes d'une décharge à effet couronne négative de type fil-cylindre avec un flux de dioxyde de carbone axial à la pression atmosphérique et à l'état stationnaire, nous avons utilisé un modèle fluide qui décrit les processus physico-chimiques fondamentaux qui se produisent dans la décharge électrique. Dans ce modèle fluide, le champ électrique est régi par l'équation de Poisson, et il est couplé avec les densités des espèces et des vitesses de réaction qui font partie de l'équation de continuité.

La résolution de l'équation de Poisson nous permet de déterminer le champ électrique qui a été utilisé par la suite pour calculer le coefficient d'ionisation, d'attachement et la mobilité des électrons. Ces paramètres sont nécessaires dans la résolution des équations de continuités des particules chargées (densité électronique, ions positifs et ions négatifs). Afin de résoudre les équations de continuités des espèces neutres, la densité électronique obtenue est injectée ensuite dans le logiciel COMSOL à travers le terme source pour déterminer les distributions spatiales des espèces neutres (CO , C_2O , C , O , O_2 , O_3) générés par la décharge couronne polarité négative.

Les résultats obtenus seront résumés par les points suivants:

1. La densité électronique est intense dans la région active.

2. La distribution des espèces chargées positives se localise dans la région d'ionisation par contre la distribution des espèces chargées négatives se localise dans la région de dérive.
3. La distribution radiale de (CO, O, O₃, C, C₂O) suit la distribution de la densité électronique.
4. La distribution de l'ozone et l'oxygène atomique ont la même allure axiale et radiale, par conséquent ces deux espèces peuvent avoir le même comportement physique dans une décharge couronne négative de type fil-cylindre.
5. La densité des espèces générées (C, C₂O) est très faible par rapport aux autres espèces.
6. La densité électronique est proportionnelle à la tension appliquée
7. Le champ électrique est proportionnel au débit du gaz dans la région de dérive et inversement proportionnel au débit du gaz dans la région d'ionisation et la région active.

Les résultats obtenus par le modèle que nous proposons sont en accord avec les résultats expérimentaux obtenus par Skalný et al[52].

ملخص:

غاز ثاني أكسيد الكربون (CO_2) هو من أهم الملوثات الطبيعية المسببة لارتفاع درجة حرارة الطبقات السفلية للجو بسبب حجزها للإشعاعات ما تحت الحمراء المنعكسة من الأرض، وقد ازداد تركيزه بأكثر من 25% منذ بداية التطور الصناعي سنة 1860. تعتبر تقنيات البلازما أحد الطرق للحد من هذه المشكلة، ومن بين هذه التقنيات التفريغ الكهربائي السلبي الذي قمنا بدراسته في هذا العمل. اهتمنا في هذه العمل بدراسة نموذج عن تفكيك جزيئات غاز ثاني أكسيد الكربون بواسطة التفريغ الكهربائي السالب و هذا باستعمال مفاعل ذو مسربين كهربائيين على شكل اسطوانتين مركزيتين، في درجة حرارة 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 الشوارد المشحونة (الإلكترونات، الشوارد الموجبة والشوارد السالبة) و هذا بحل المعادلات الاستمرارية إلى جانب معادلة بواسون. في حين خصص الخطوة الثانية لحساب توزيع الجزيئات المحايدة عن طريق إدخال كثافة الإلكترونات التي تم الحصول عليها في المرحلة الأولى في برنامج COMSOL. إن النموذج الحركي الكيميائي المستعمل في هذه الدراسة و الذي يركز على 12 معادلة كيميائية مكونة من 09 جزيئات (CO , C_2O , C , O , O_2 , O_3 , CO^+ , O^- , e) يصف السلوك الحركي و الكهربائي لهذا النوع من التفريغ حيث أن النتائج المتحصل عليها توضح تغير توزيع كثافة الإلكترونات، 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 .

الكلمات الجوهرية: ثاني أكسيد الكربون، بلازما، نموذج السوانل، التفريغ الكهربائي، الكيمياء الحركية.

Résumé :

Depuis le début de la révolution industrielle, l'humanité a commencé à polluer le climat de la terre en rejetant dans l'atmosphère des « gaz à effet de serre » tels que le gaz carbonique (CO_2). Ce dernier est responsable de la moitié de l'accroissement de l'effet de serre qui a augmenté à plus de 25% passant de 280 ppmv en 1860 à 370 ppmv à nos jours. Les techniques plasmas apparaissent comme une réponse avantageuse à cette problématique, notamment les décharges couronne que nous avons choisi d'utiliser. Dans ce contexte, nous nous sommes intéressés à l'étude par modélisation de la décomposition de CO_2 par décharge couronne négative à pression atmosphérique et à température ambiante en utilisant un réacteur de géométrie d'électrode fil-cylindre. 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 remmené à introduire de nouvelles approximations, c.a.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 des espèces chargées (électrons, ions positifs et ions négatifs) 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 COMSOL . Le modèle de la cinétique chimique utilisé dans ce travail est basé sur 09 espèces (e , CO^+ , O^- , CO , C_2O , C , O , O_2 , et O_3), représentées par un jeu de 12 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 : Dioxyde de carbone, plasma, décharge couronne, modèle fluide, cinétique chimique.