



REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE ABOU-BEKR BELKAID - TLEMCCEN

MEMOIRE

Présenté à :

FACULTE DES SCIENCES – DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

MASTER EN PHYSIQUE

Spécialité : Physique des Plasmas

Par :

M^{elle} Mekhfi Maissa

Sur le thème

Impact des réactions chimiques dans la conversion de NO dans un plasma mixte N_2-O_2 . Sous diverse concentration $X\%O_2$

Soutenu publiquement le 10 juin 2023 à Tlemcen devant le jury composé de :

Mme BOUTASTA Amel	M.C.B	Université de Tlemcen	Présidente
Mme MEDJAHDI Ines Sarah	M.C.A	Université de Tlemcen	Encadrante
Mr FEROUANI Abdel Karim	Professeur	ESSA-Tlemcen	Examineur

Année Universitaire : 2022 ~ 2023

Remerciement

Tout d'abord, je souhaite exprimer ma gratitude envers Dieu pour m'avoir octroyé la force et le courage nécessaires pour achever ce travail.

Je voudrais dans un premier temps remercier, mon directeur de mémoire Madame **MEDJAHDI Sarah Ines**, Maître de Conférences classe "A" à l'université de Tlemcen Abou Bekr Belkaid, pour sa patience, sa disponibilité et surtout ses judicieux conseils, qui ont contribué à alimenter ma réflexion.

Nous tenons particulièrement à remercier Madame **BOUTASTA Amel**, Maître de Conférences classe "B" à l'université de Tlemcen Abou Bekr Belkaid, qui nous a fait l'honneur de présider le jury.

Nous tenons aussi à remercier, Monsieur **FEROUANI Abdel Karim**, professeur l'Ecole supérieure des Sciences Appliquées-Tlemcen, d'avoir acceptée d'examiner ce travail.

J'adresse enfin mes sentiments de reconnaissance à tous ceux qui m'ont aidé durant la préparation de ce Mémoire.

Dédicace

A mon *très cher Père* :

Je tiens à exprimer tout mon amour, ma gratitude et ma reconnaissance à ton égard. Je reconnais pleinement les incroyables efforts que tu as inlassablement déployés jour et nuit pour mon éducation et mon bien-être, et je suis consciente que rien au monde ne peut égaler ce que tu as accompli. Ton travail représente les sacrifices que tu as faits avec générosité pour me soutenir et me façonner, et je t'en suis profondément reconnaissante.

A ma *très chère Mère* :

Tu es la raison de mon existence, la source de ma vie et la lanterne qui éclaire mon chemin. Tu m'entoures de douceur et d'amour et j'ai conscience que tu as accompli bien plus que ce que peut faire une mère pour guider ses enfants sur le bon chemin dans leur vie et dans leurs études.

Que dieu me les gardes.

A mes chers frères : *Nedjib* et *Imad*, mes chères sœurs : *Marwa* et *Alaa*, ma belle-sœur : *Wafaa* et mes petits : *Rayan* et *Djana* .

A mon fiancé *Islam*, et toute sa famille.

A toute ma famille : *Mekhfi* et *Kadri*.

A tous mes amis, je vous dédie ce travail en témoignage de notre sincère amitié et des bons moments que nous avons passés ensemble, et vous souhaite un bel avenir plein de beaucoup d'espoir.

A tous ceux qui ont cru en moi et m'ont donné envie d'avancer.

Merci à tous, votre soutien et vos encouragements m'ont donné la force de continuer.

Mekhfi Maissa

Table des matières

Introduction Générale	1
Références	5
Chapitre I : Aperçu Bibliographique sur les plasma	6
I-1. Généralités sur les Plasmas.....	7
I-1.1) Introduction	7
I-1.2) Décharge électrique	9
I-1.3) Décharge couronne	9
I-2 Dépollution des Gaz	11
I-3. Généralités sur les espèces chimiques	12
I-3.1) Le diazote	12
i. l'azote	12
ii. Propriétés physique et chimique du Diazote	12
iii. L'utilisation dans la dépollution	13
I-3.2) le dioxygène	14
i. L'oxygène	14
ii. Propriétés physique et chimique de dioxygène	14
iii. L'utilisation dans la dépollution	15
I-3.3) Les Oxydes d'azote NOx	16
i. Définition du monoxyde d'azote NO	16
ii. Propriétés physique et chimique du monoxyde d'azote	17
iii. Les effets du monoxyde d'azote NO dans l'environnement	17
I-4 Conclusion	18
Références	19

Chapitre II : Modèle physique, cinétique et électrique de la décharge	21
II-1. Introduction	22
II-2. Modèle physique de la décharge électrique	22
II-2.1) Equation de Boltzmann	22
II-2.2) Equation de transport de la continuité	24
II-2.3) Equations de transport de la quantité de mouvement	24
II-2.4) Equation de transport de l'énergie	25
II-3. Modèle cinétique chimique	25
II-3.1) Les équations cinétiques dans le mélange N_2-O_2	26
Références	29
Chapitre III : Application au mélange $N_2-X\%O_2$	30
III -1. Introduction	31
III -2. Position de problème	31
III-3. Conditions initiales	32
III-4. Données de base	32
III-5. Résultats & Discussions	35
III-5.1) Evolution temporelle de la densité	35
III-5.2) Evolution temporelle du taux de réaction	39
Références	42
Conclusion Général et Perspectives	43
Annexe	46
Références	53

Introduction

Générale

Les décharges électriques et post-décharges dans N_2 et O_2 purs ou dans leurs mélanges avec des gaz inertes font l'objet d'une attention croissante, en raison de leur importance pour la compréhension de la physique atmosphérique et ionosphérique et de leur utilisation comme laser actif (lasers N_2 ultraviolets à partir de décharges électriques) et comme sources d'espèces actives (atomes N et O, atomes et molécules métastables, ions) pour des applications en chimie des plasmas. Ces applications comprennent les traitements de surface, les procédés de revêtement, la nitruration des métaux, l'oxydation et la gravure des polymères et des semi-conducteurs [1-2].

De nombreux aspects de la physique des rejets d'azote ont jusqu'à présent été étudiés à l'aide de modèles cinétiques et d'expériences. Le calcul des fonctions de distribution d'énergie des électrons, des paramètres de transport et d'autres propriétés énergétiques moyennées (par exemple : la mobilité des électrons, le coefficient de diffusion D_e , le taux de réaction, le bilan de puissance des électrons...), et des coefficients de taux d'électrons pour l'excitation, l'ionisation et la dissociation de N_2 ont été réalisées par de nombreux auteurs [3].

La modélisation cinétique des rejets de N_2 permet en outre de déterminer avec plus de précision les coefficients de vitesse de divers processus et de comprendre les principaux mécanismes d'échauffement des gaz. Les instabilités spatio-temporelles des décharges gazeuses sont des processus dont l'étude permet de comprendre les propriétés énergétiques les plus importantes des décharges. Les différents types d'instabilités dans les décharges gazeuses moléculaires ont été discutés et étudiés dans les plasmas [4].

D'une manière générale, les mêmes problèmes que pour N_2 doivent être résolus pour les décharges de O_2 , en combinant des études théoriques et expérimentales. Cependant, l'électronégativité de l'oxygène introduit des propriétés assez différentes, puisque des concentrations considérables d'ions O^- et O_2^- , dépassant parfois la concentration de Les électrons du plasma peuvent exister en raison du taux élevé d'attachement des électrons à O atome et O_2 molécule. La présence de tels ions modifie les propriétés du plasma telles que la conductivité, le maintien du champ, l'équilibre énergétique et les distributions spatiales des particules chargées. Les décharges dans les gaz électronégatifs ont longtemps fait l'objet d'investigations théoriques [5-6].

L'intérêt physique et chimique, pour les rejets dans les mélanges N_2-O_2 est renforcé par les recherches sur la décomposition de l'air, les caractéristiques optiques de l'atmosphère en conditions de non-équilibre perturbé, les procédés chimiques pour les traitements de surface, la synthèse des oxydes d'azote, la séparation isotopique de l'azote, l'épuration des gaz atmosphériques pollués.

Les rejets dans les mélanges N_2-O_2 peuvent différer considérablement des rejets dans le N_2 ou le O_2 par un certain nombre de caractéristiques (principalement, la composition chimique et ionique). La modélisation théorique des processus cinétiques dans les rejets de N_2-O_2 a été développée dans plusieurs travaux [6-7].

La cinétique hors équilibre des plasmas basse pression dans les mélanges N_2-O_2 est un domaine de recherche important, dans la recherche d'une meilleure compréhension des processus se produisant dans l'atmosphère et l'ionosphère et dans une variété de technologies plasma modernes. Dans [8], des approximations analytiques utiles ont été obtenues pour différents coefficients de vitesse ainsi que pour l'énergie du plasma et les caractéristiques de transport, en fonction du champ électrique réduit E/N , de la température de vibration N_2 et du pourcentage de O_2 dans les mélanges N_2-O_2 .

Les décharges électriques dans les mélanges N_2-O_2 ont été étudiées dans [9-10], les émissions optiques de décharge et les concentrations d'atomes O et N et de molécules NO ont été mesurés dans la rémanence fluide d'une décharge micro-onde N_2-O_2 d'une puissance totale de 120 Watt, à une pression de 3 Torr, pour O_2 pourcentages différents.

Ce projet de mémoire a pour objet l'obtention du diplôme de Master en Physique des Plasmas, il est effectué au sein du Laboratoire de Physique Théorique, de la faculté des Sciences de l'université de Tlemcen, il se focalise sur la simulation numérique de différentes valeurs de concentration de X% O_2 dans un mélange N_2-O_2 pour plusieurs valeurs du champ réduit E/N , afin de suivre l'évolution temporelle de plusieurs espèces chimique.

Le plan de travail du manuscrit ci-présent est entamé par une *Introduction Générale*, *Trois Chapitres* et clôturer par une *Conclusion Générale*, résumé comme suit :

1^{er} Chapitre donne un aperçu bibliographique diversifié sur les plasmas, la décharge électrique couronne et présente quelques propriétés des espèces telles que le N_2 , O_2 , et le NO.

Le 2^{ème} *Chapitre* présente le modèle mathématique sur lequel se base notre simulation numérique. Ce dernier repose sur l'équation de Boltzmann et de ces moments couplés avec les équations de la cinétique chimique.

Le 3^{ème} *Chapitre*, expose les résultats obtenus pour suivre l'évolution de la densité et du taux de réaction des espèces présentes dans le mélange gazeux composé $N_2-X\%O_2$ soumis à une décharge couronne pour plusieurs valeurs du champ réduit E/N sous l'influence de la concentration $X=7\%$, 15% et 30% . On s'intéresse tout particulièrement à l'évolution de deux espèces $N(^2D)$, et O, qui ont un impact important par les bilans de leurs réactions chimique à la création ou à la réduction de l'espèce NO et ceci a des valeurs précises de la concentration de O_2 dans le mélange gazeux.

En définitive, une Conclusion Générale est donnée pour la validation des résultats obtenus.

Références

- [1] P.Haefliger, A.Hösl and C.M.Franck, Experimentally derived rate coefficients for electron ionization, attachment and detachment as well as ion conversion in pure O₂ and N₂-O₂ mixtures, *J. Phys.*, **51**, 355201 (2018).
- [2] K.Yoshida, B.S.Rajanikanth, and M.Okubo, NO_x reduction and desorption studies under electric discharge plasma using a simulated gas mixture: A case study on the effect of corona electrodes, *Plasma Technol. Sci.*, **11**(7), 327–333 (2009).
- [3] A.Hoesl, P.Haefliger and C.M.Franck, Measurement of ionization, attachment, detachment and charge transfer rate coefficients in dry air around the critical electric field, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **50**, 485207 (2017).
- [4] M.Abian, , M.U.Alzueta, P.Glarborg, Formation of NO from N₂/O₂ mixtures in a flow reactor: toward an accurate prediction of thermal NO, *International Journal of Chemical Kinetics*, **47**(8), 518–532 (2015).
- [5] A.K.Ferouani, M.Lemerini, L.Merad, , and M.Houalef, Numerical modelling point-to-plane of negative corona discharge in N₂ under non-uniform electric field, *Plasma Sci. and Technol.*, **17**(6), 469 – 474 (2015).
- [6] K.Yoshida, B.S.Rajanikanth, , and M.Okubo, NO_x reduction and desorption studies under electric discharge plasma using a simulated gas mixture: A case study on the effect of corona electrodes, *Plasma Technol. Sci.*, **11**(7), 327–333 (2009).
- [7] R.M. Balogh, I. Ionel, D.Stepan, H.P. Rabl, and A.Pfaffinger, , NO_x reduction using selective catalytic reduction (SCR) system- α variation test, *Termotehnica*, **2**, 32–42 (2011).
- [8] V.Guerra, M.J.Pinheiro, B.F.Gordiets, J.Loureiro and C.M.Ferreira, *Plasma Sources Sci. Technol.*, **6**, 220 (1997).
- [9] B.Gordiets and A.Ricard, *Plasma Sources Sci. Technol.*, **2**, 158 (1993).
- [10] A.Ricard, B.Berton, B. Bonnet and M.P. Bacos, *Proceedings ESCAMPIG XX*, Orleans, France, 195 (1990).

Chapitre I

Aperçu Bibliographique Sur les plasma

I-1. Généralités sur les Plasmas

I-1.1) Introduction

La matière qui constitue notre environnement se présente essentiellement sous forme liquidé, solide, ou gazeuse. Au-delà de ces états, à haute et à basse températures, deux nouveaux types d'états de la matière seront qualifiés : les gaz quantiques et les gaz ionisés, que se distinguent par l'apparition d'une grande variété de phénomènes physiques nouveaux. Celle qui nous intéresse dans notre cas d'étude sont les gaz portés à très haute température, ou la dissociation puis l'ionisation des molécules conduisent à la création de populations d'ions et d'électrons libres et ces charges libres induisent un comportement collectif, non-linéaire, chaotique et turbulent [1].

On appelle plasma ou gaz ionisé, le quatrième état de la matière qui contient des particules chargées électriquement, telles que des ions et des électrons libres, et qui peut conduire l'électricité. Il est souvent produit à des températures très élevées, comme celles présentes à la surface du Soleil ou dans les éclairs, Il entre dans la composition des astres, l'ionosphère, la magnétosphère, et les composants de la décharge naturelle (foudre) mais peut également être créé artificiellement dans des environnements contrôlés tels que les réacteurs à fusion nucléaire, lasers, lumière, arcs, ...etc. Le plasma est un état de la matière important en physique, en astrophysique et en technologie, car il est impliqué dans de nombreux phénomènes naturels et peut être utilisé dans des applications telles que l'éclairage, la production de puces électroniques et la propulsion spatiale [1].

Un plasma peut être considéré comme une collection de particules chargées, confinées dans l'espace avec des densités de charge positives ou négatives approximativement égales. Lorsque des ioniseurs naturels ou artificiels agissent sur le gaz, celui-ci perd ses propriétés diélectriques et devient plus ou moins conducteur. Cette ionisation entraîne la dissociation des molécules neutres en électrons et ions [1].

On peut classer les Plasmas [2-3-4]

- *Les plasmas chauds* ou gaz ionisé en équilibre thermodynamique, on les retrouve dans les étoiles, et le plasma de fusion, ils sont caractérisés par une

température des ions et des électrons supérieure à 10 millions de degrés. Pour ce type de plasma, Les collisions élastiques, participent à la conduction et de la diffusion de la chaleur, et les collisions inélastiques (ionisation, dissociation, attachement électronique, ...etc.) Sont responsables des changements des niveaux de l'énergie interne des molécules.

- *Les plasmas thermiques* sont des milieux gazeux partiellement ionisés ou fortement ionisés en équilibre thermique $T_e \approx T_i \approx T_n$. On les retrouve dans les plasmas d'Arc.
- *Les plasmas froids* ou Plasma Hors équilibre thermodynamique, ce cas, le gaz est faiblement ionisé, où les électrons ont une température supérieure à celle des ions ou des neutres, la température du gaz reste proche de la température ambiante, d'où l'appellation de « plasmas froids ». Ainsi, la majeure partie de l'énergie ne sert pas à chauffer le gaz mais à produire des espèces chimiquement actives

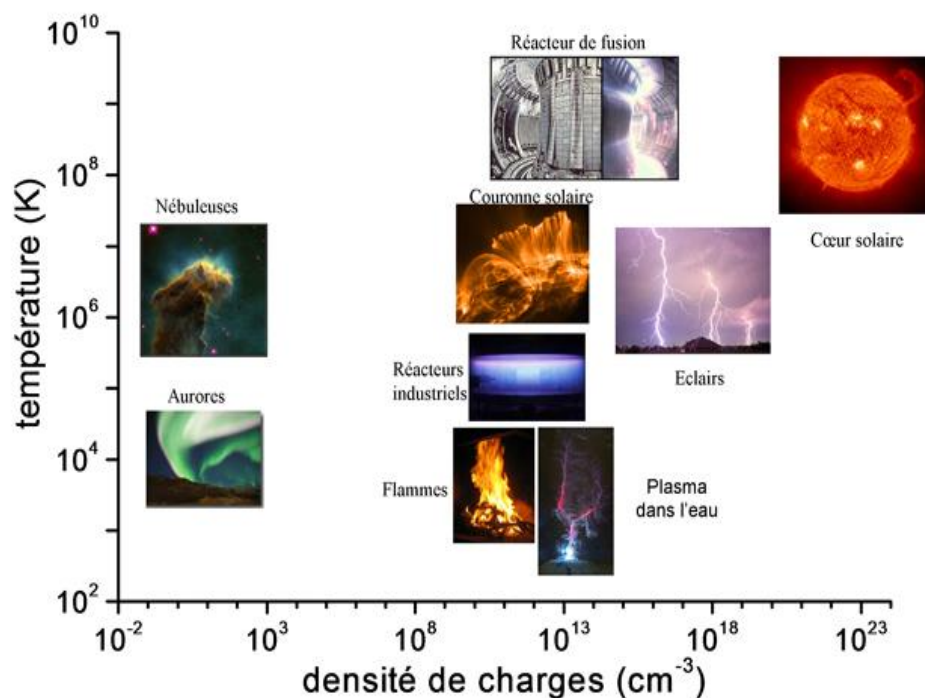


Fig. I.1 : Exemples de plasma naturel et de laboratoire en fonction de la densité de charges et la température [5].

On parle de décharge électrique pour décrire tout processus au cours duquel un courant électrique circule dans un gaz. La décharge gazeuse est un phénomène crucial pour la production d'un plasma de décharge et pour une isolation électrique à haute

tension. Le mécanisme de la décharge est dû à la collision entre des électrons accélérés par un champ appliqué et les molécules qui composent le gaz [3-4].

I-1.2) Décharge électrique

Le nom "décharge" décrit un phénomène physico-chimique qui transfère de l'énergie électrique ou magnétique d'une source externe dans un gaz pour lui faire conduire l'électricité. Elle a été définie entre 1831 et 1835 par Micheal Faraday. La méthode de transfert d'énergie à un gaz dépend du couplage entre la source d'énergie et le gaz, ainsi que de la pression et des propriétés du gaz. Ces facteurs déterminent le type de plasma produit, qu'il soit thermique ou non équilibré, et son utilisation dans une application particulière.

Une décharge électrique se forme, sous certaines conditions, entre deux électrodes, à travers un gaz appliquant une tension continue entre deux électrodes.

Il existe une très grande variété de décharges électriques on cite : Décharge Luminescente, Décharge Pulsée, Décharge couronne...etc. mais toutes reposent sur le même mécanisme de formation : *le Claquage Electrique*. Qui est un processus physique qui transforme un milieu isolant, l'air en un milieu conducteur sous l'effet d'un champ électrique.

On s'intéresse tout particulièrement à la décharge couronne [6].

I-1.3) Décharge couronne

La décharge couronne fait partie de la catégorie des plasmas froids non thermique [7-8-9-10-11]. Et se produit à pression atmosphérique. Elle implique deux électrodes : une pointe de faible rayon de courbure soumise à une haute tension, et une plaque de rayon de courbure bien plus grand. La polarité de la décharge couronne est déterminée par la nature de la tension appliquée à l'électrode de faible rayon de courbure [12-13].

Dans une polarité positive, une haute tension positive est appliquée sur la cathode et l'anode est reliée à la masse, les électrons libres sont formés naturellement dans l'espace inter-électrode. La décharge électrique couronne positive est entretenue par des électrons secondaires qui sont produit par la photo ionisation du gaz dans la

région du Plasma. Par contre, le mécanisme de génération d'électrons et d'ions dans la décharge couronne négative sont à l'extérieur de la région d'ionisation et les électrons secondaires sont produits par la photoémission sur la surface de la cathode.

Les électrodes utilisées dans les décharges couronnes présentent généralement une géométrie de type : [2]

Les types d'électrodes	Utilisation
Fil-cylinder	Ce modèle de réacteur est largement employé pour effectuer une dépollution de grande ampleur volumétrique.
Pointe-plan	Le principal avantage de cette configuration géométrique est qu'elle permet d'isoler une décharge d'une part.
Fil-plan	La principale force de cette méthode réside dans sa capacité à réguler la distribution des décharges le long de l'écoulement.

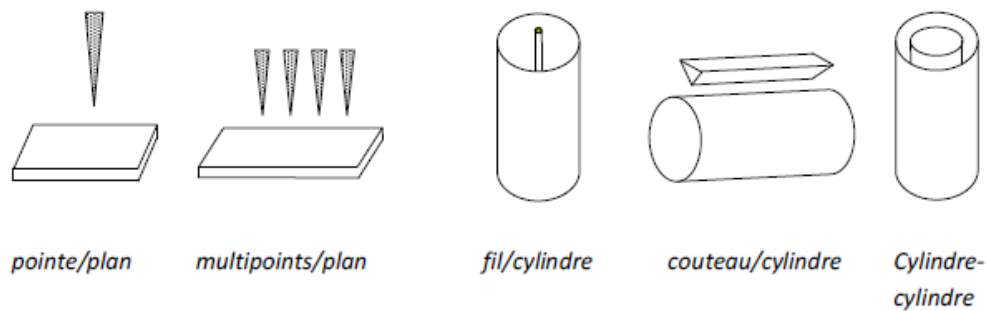


Fig. I.2 : Exemples de configurations de décharge couronne [14].

Les applications industrielles de la décharge couronne actuellement les plus répondues concernent :

- Les procédés de fabrications tel que la synthèse de l’ozone dans un gaz sec contenant de l’oxygène la formation de cette molécule présentent certains avantages puisque c’est un puissant.

- Les procédés de réduction, de traitement ou de destruction des polluants gazeux ou l'idée est d'exploiter la réactivité chimique des radicaux et des espèces génères dans le plasma pour convertir les molécules polluantes en molécules inoffensives. Ces réactions ont lieu dans l'air à pression ambiante, sans perte thermique, et les résidus obtenus peuvent parfois être valorisés. Les polluants cibles sont principalement les oxydes de soufre et d'azote, les composés organiques volatils (COV) et les molécules odorantes [15].

I-2. Dépollution des Gaz

Les activités économiques telles que l'industrie et la consommation énergétique intensive produisent des quantités significatives de déchets nocifs pour la santé et l'environnement. Ces polluants atmosphériques, notamment les oxydes de soufre (SO_x), les oxydes d'azote (NO_x), l'ozone (O_3), les composés organiques volatils (COV), le monoxyde de carbone (CO), sont principalement causés par les combustions de carbone et de pétrole et les activités humaines, tel que l'industrie, les transports, et les centrales thermique.

Les effets de cette pollution se répercutent sur différents domaines, notamment :

- ✓ Des changements climatiques : sécheresses, pluies acides ou tempêtes et très violentes.
- ✓ Les répercussions sur l'être humaine : problèmes respiratoires et cardiaques sur personnes âgées ou enfants.
- ✓ Les effets sur les matériaux : corrosion et détérioration des matériaux et des monuments.

Pour prévenir ces effets, il est nécessaire de mettre en place des conventions strictes et d'utiliser des moyens écologiques et moins nocifs.

Différentes techniques de dépollution des gaz existent, chacune présentant des avantages et des inconvénients en fonction des proportions des molécules nocives, du volume et des caractéristiques physiques du gaz à traiter [2].

La plus utilisée est la dépollution par *décharges couronnes*. Elles s'établissent dans un intervalle gazeux séparé par deux électrodes entre lesquelles s'établit un champ électrique.

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). Dans son principe, et comme nous l'avons déjà indiqué, la décharge couronne permet de créer des radicaux (espèces chimiques très réactives) qui vont réagir avec les espèces toxiques. Les oxydes seront transformés plutôt en acides puis neutralisés sous forme de sels solides [15].

I-3. Généralités sur les espèces chimiques

I-3.1) Le diazote

L'azote connu sous le nom de diazote est une molécule diatomique composée de deux atomes d'azote, et notée N_2 .

L'azote est le composant principal de l'air, il est incolore, inodore et insipide avec une concentration volumique de 78,06 % et une concentration pondérale de 75,5 % [16].

i. L'azote

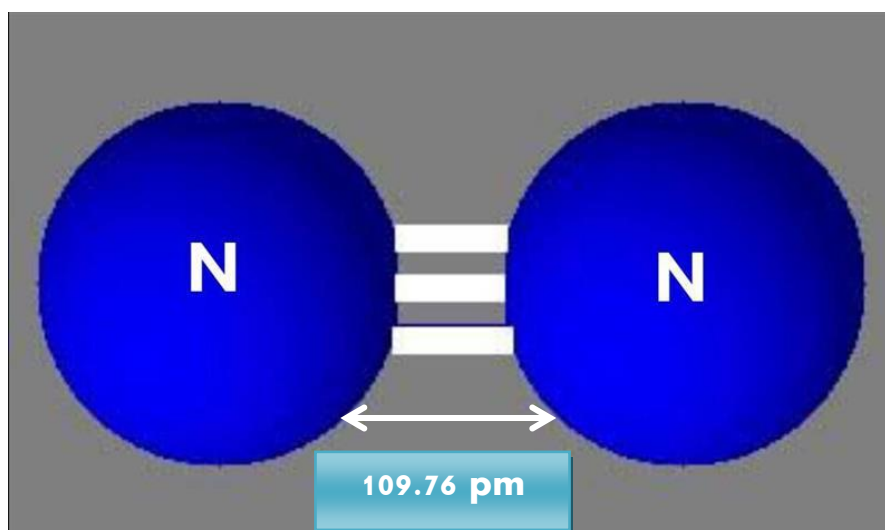
L'azote est un élément chimique avec un numéro atomique 7 et un symbole N. Il est classé comme tête de file du groupe des pnictogènes (bloc p), ce dernier est largement utilisé dans l'industrie, cette utilisation est devenue la principale source de pollution environnementale.

Sa configuration électronique : $1s^2 2s^2 sp^3$ [17-18].

ii. Propriétés physique et chimique du Diazote

Tableau. I.1 : Représentation des propriétés physique et chimique du diazote

Masse atomique	14.0067±0.0002 u [19]
Masse volumique	1.24982 g/l [19]
Point de fusion	-210.00 ° C [19]
Point d'ébullition	-195.798 ° C [18]
Energie de fusion	0.3604 kJ/mol [18]
Energie de vaporisation	2.7928 kJ/mol [18]
Température critique	-146.94 ° C[19]
Pression critique	3.3958 Mpa [18]
Conductivité thermique	0.02598 W.m ⁻¹ .k ⁻¹ [19]

**Fig. I.3 :** Représentation du modèle chimique de N₂

Le N₂ possède un totale de (3× 2) 6 électrons de valence. Il a donc une liaison triplet. Son Energie de liaison est 945 kJ/mol et sa longueur des liaisons est de 110pm [20].

iii. L'utilisation dans la dépollution

L'azote est principalement utilisé pour ses propriétés inertes et non-réactives, ce qui peut être utile dans certaines applications de dépollution.

Dans le domaine de l'épuration des eaux usées, l'azote peut être utilisé pour prévenir la croissance excessive d'algues et d'autres organismes aquatiques. L'azote est ajouté aux eaux usées sous forme d'azote gazeux pour limiter la quantité de

nutriments disponibles pour la croissance des organismes aquatiques, ce qui peut réduire la prolifération de la vie marine dans les eaux traitées.

L'azote liquide peut également être utilisé pour la destruction des déchets médicaux et des produits chimiques. Dans ce processus, les déchets sont placés dans un bain d'azote liquide, où ils sont refroidis à une température très basse, souvent inférieure à -100 °C. Cette technique permet de détruire les produits chimiques et les déchets médicaux en les dégradant à des températures très basses, ce qui permet de préserver la qualité de l'air et de l'eau.

Enfin, l'azote peut également être utilisé dans le processus de carbonatation minérale, qui consiste à transformer le dioxyde de carbone en carbonate minéral stable pour le stockage géologique du CO₂. Dans ce processus, l'azote est utilisé pour contrôler la réaction de carbonatation et empêcher la formation de sous-produits indésirables.

En conclusion, bien que l'utilisation de l'azote dans la dépollution soit moins courante que celle de l'oxygène, elle peut offrir des avantages importants dans certains domaines de la dépollution, notamment dans la prévention de la croissance d'organismes aquatiques et la destruction des déchets médicaux et des produits chimiques.

I-3.2) le dioxygène

L'oxygène, également connu sous le nom de dioxygène, est une molécule constituée de deux atomes d'oxygène O qui se maintient sous forme gazeuse à pression atmosphérique et température terrestre.

Cette molécule est couramment commercialisée sous le nom d'oxygène [21].

i. L'oxygène

L'élément chimique O, connu sous le nom d'oxygène, possède un numéro atomique de 8 et appartient au groupe des calogènes. En tant que non-métal, l'oxygène est extrêmement réactif et forme des composés, tels que les oxydes, avec la plupart des autres éléments chimiques. Cette grande réactivité se manifeste par des énergies de formation élevées.

L'oxygène est le troisième élément le plus présent dans l'Univers en termes de masse, après l'hydrogène et l'hélium, et le plus abondant des éléments dans l'écorce terrestre. De ce fait, l'oxygène constitue une part importante de l'environnement terrestre.

Sa configuration électronique est : $1s^2 2s^2 sp^4$ [17-18].

ii. Propriétés physique et chimique de dioxygène

Tableau. I.2 : Représentation des propriétés physique et chimique de dioxygène

Masse atomique	15.9994±0.0003 u [18]
Point de fusion	-218.79° C [18]
Point d'ébullition	-182.95° C [18]
Energie de fusion	0.22259 kJ/mol [18]
Energie de vaporisation	3.4099 kJ/mol [18]
Température critique	-118.56° C [18]
Pression critique	5.043 Mpa [18]
Conductivité thermique	0.02674W.m ⁻¹ .k ⁻¹ [18]

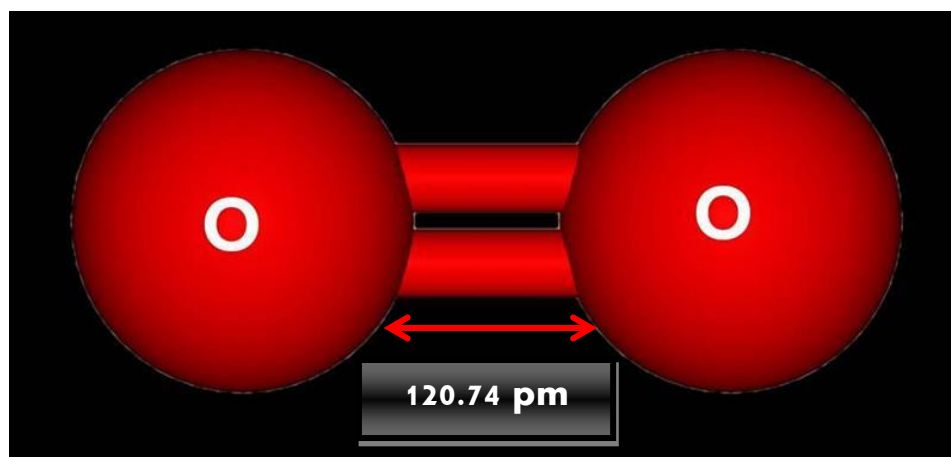


Fig. I.4 : Représentation du modèle chimique de O₂

Le O₂ est un gaz incolore, inodore et paramagnétique, il possède un totale de $(4 \times 2)8$ électrons de valence, il a donc une liaison covalente. Son Energie de liaison est 498 kJ/mol et sa longueur des liaisons est 121pm [20].

iii. L'utilisation dans la dépollution

Tout d'abord, l'oxygène peut être utilisé pour soutenir la croissance des bactéries aérobies qui dégradent les contaminants organiques dans les eaux usées et les sols contaminés. Ces bactéries ont besoin d'oxygène pour respirer et pour décomposer les contaminants en dioxyde de carbone et en eau. L'ajout d'oxygène dans les milieux contaminés peut donc stimuler la croissance de ces bactéries et accélérer la dégradation des contaminants.

Ensuite, l'oxygène peut être utilisé pour soutenir les processus d'oxydation avancée (POA) dans lesquels des oxydants tels que l'ozone ou le peroxyde d'hydrogène sont utilisés pour décomposer les contaminants organiques. L'oxygène peut être ajouté pour soutenir ces réactions d'oxydation et accélérer la dégradation des contaminants.

Enfin, l'oxygène peut être utilisé pour activer des réactions de réduction chimique qui permettent de dégrader les contaminants inorganiques tels que les métaux lourds. Dans ce cas, l'oxygène réagit avec les contaminants pour former des complexes oxydés, qui sont ensuite convertis en produits inoffensifs.

En somme, l'oxygène peut être un élément clé dans la dépollution de l'eau et des sols, soutenir les réactions d'oxydation avancée et activer des réactions de réduction chimique.

I-3.3) Les Oxydes d'azote NO_x

Les NO_x est la famille des oxydes d'azote comprennent le NO, le NO₂, le N₂O, le N₂O₄ et N₂O₃, se sont des gaz odorants et toxiques qui sont produits par l'oxydation de l'azote de l'air ou du carburant avec l'oxygène de l'air, dans des conditions de températures élevées.

Les NO_x sont émis lors des phénomènes de combustion, et les sources principales sont les véhicules et les installations de combustion.

Ces derniers ont des effets néfastes sur l'environnement et la santé. Ils interviennent dans la formation d'ozone, contribuent au phénomène des pluies acides et peuvent entraîner des problèmes respiratoires, [22].

i. Définition du monoxyde d'azote NO

Le monoxyde nitrique NO appelé aussi le monoxyde d'azote est une petite molécule gazeuse très réactive, composé d'un atome d'oxygène O et d'un atome d'azote [22].

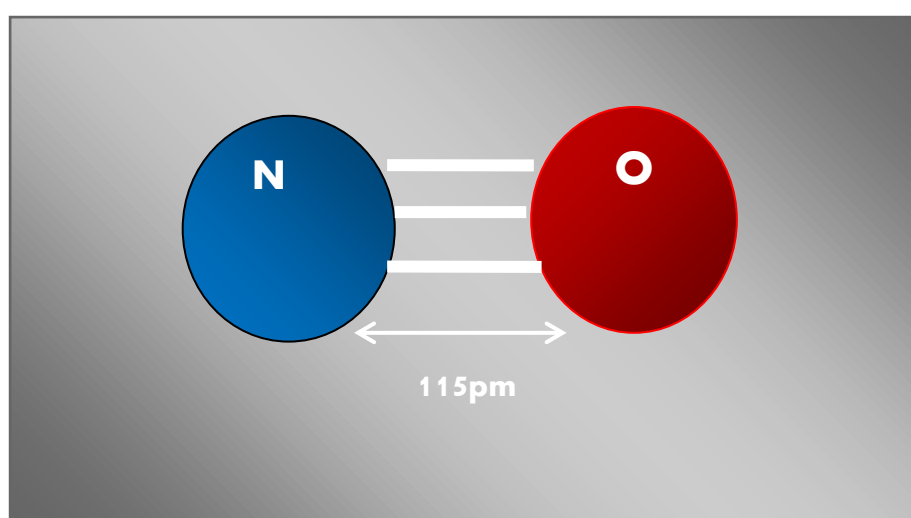


Fig. I.5 : Représentation du modèle chimique de NO

ii. Propriétés physique et chimique du monoxyde d'azote

Tableau. I.3 : Représentation des propriétés physique et chimique de l'oxyde d'Azote

Poids molaire	30g /mol
Masse volumique	1,25 g/L
Point de fusion	-210°C
Point d'ébullition	-196°C
Densité Gaz/vapeur	1.04
Temperature auto inflammation	in inflammable

L'oxyde d'azote est une molécule incolore, instable dans l'aire, soluble dans l'eau, Il est très toxique par inhalation et susceptible de provoquer des brûlures chimiques [23].

iii. Les effets du monoxyde d'azote NO dans l'environnement

- A haute température, l'azote N_2 et l'oxygène moléculaire O_2 peuvent se combiner pour former l'oxyde nitrique NO.
- Les activités humaines ont considérablement augmenté la présence d'oxyde d'azote gazeux dans l'atmosphère.
- Le NO et NO_2 sont partiellement responsables du trou dans la couche d'ozone.
- Il contribue au réchauffement climatique [24-25].

I-4 Conclusion

A travers ce 1^{er} chapitre, nous avons donné une présentation brève et efficace sur les plasmas en général, sur leurs propriétés électriques et plus spécialement la décharge du type corona dans le but de comprendre les phénomènes qui régissent afin d'exploité les atouts de la technologie dans le procédé de dépollution de l'air.

Dans une autre partie, nous avons présenté les caractéristiques physico-chimique des molécules qui composent notre gaz plasmagène à savoir le diazote, l'oxygène et l'oxyde d'azote.

Références

- [1] S.I.MEDJAHDI, Modélisation de la cinétique chimique dans la réduction des oxydes d'azote par décharge couronne, Thèse de Doctorat , Université Abou Bekr Belkaid Tlemcen (2009).
- [2] N. TABET AOUL, Etude de l'influence du monoxyde d'azote dans un mélange gazeux N_2/O_2 , Mémoire de Master, Université Abou Bekr Belkaid Tlemcen (2018).
- [3] P.FAUCHAIS ,Plasmas thermiques : aspects fondamentaux, les techniques de l'ingénieur Dossier D2 810 (2007).
- [4] A.M.POINTU, J.PERRIN, J.JOLLY ,Plasmas froids de décharge: Propriétés électriques, les techniques de l'ingénieur Dossier D2 830 (2007).
- [5] https://www.researchgate.net/figure/Comparaison-des-differents-types-de-plasma-en-les-classant-en-fonction-de-leurs-densite_fig1_278644956
- [6] M.Lemerini., Décharge Electrique , Université de Tlemcen (2022).
- [7] CONVENTION DE KYOTO ,Protocole de Kyoto sur les changements climatiques, Nations Unis (1998).
- [8] D. J.KIM, Y.Choi, K. S.Kim, , Effects of Process Variables on NOx Conversion by Pulsed Corona Discharge" Process Plasma Chemistry and Plasma, **21**(4) (2001).
- [9] S. LACHAUD , Décharge pointe – plan dans les mélanges gazeux correspondant aux effluents industriels: étude électrique et physico-chimique , application à la destruction du dioxyde d'azote , Thèse de doctorat ,Université de Toulouse France (2002).
- [10] S. SAMSON, Etude de la réactivité physico-chimique d'une décharge filamentaire à pression atmosphérique dans l'air. Application au contrôle de la pollution ,Thèse de doctorat, [Université Paris-Sud](#) (1997).
- [11] B. HELD. "Physique des plasmas froids", ED :Masson (1994).
- [12] L.B.Loeb, Fundamental processes of electrical discharge in gases, Ed : John Wiley and sons, Inc,New York (1947).
- [13] J.D.COBBINE,Gaseous conductor : theory and engineering applications,Dover publication,Inc,New York (1958).
- [14] A.E.H.BOUHADBA , Etude de la production de l'ozone et du traitement des molécules Nox dans le mélange N_2/O_2 par décharge électrique pulsée, Diplôme de Magister, Université d'Oran des Sciences et de la Technologie (USTO-MB) (2015).
- [15] N.Ait Hamouda, Etude De La Reduction Des Oxydes D'Azote Et De L'Ozone Par Décharge Couronne, Diplôme de Magister , Université des Sciences et de la Technologie d'Oran- Mohamed BOUDIAF (2012).
- [16] <http://www.plongeplo.ch/wiki/index.php/N2>
- [17] A.HADDOUCHE, Etude électrique et physico chimique de la décharge couronne en vue de son application dans la réactivité des mélanges gazeux correspondants aux effluents industriels, Thèse de Doctorat , Université Abou Bekr Belkaid Tlemcen (2015).

[18] tableau périodique : <https://ptable.com/?lang=fr#Propri%C3%A9t%C3%A9s>

[19] R .David, *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, ED :CRC Press Inc (2009).

[20] http://wiki.scienceamusante.net/index.php?title=Longueurs_et_%C3%A9nergies_de_liaisons_covalentes

[21] <http://www.plongeplo.ch/wiki/index.php?title=Dioxyg%C3%A8ne>

[22]

https://www.actuenvironnement.com/ae/dictionnaire_environnement/definition/oxyde_d_azote_nox.php4#:~:text=Le%20monoxyde%20d%27azote%20NO,%20chauffages...

[23] Journal, Monoxyde d'azote, la molécule cachée du nez, par Yvan, , | biologie, Comprendre la pratique, Respirât Yvan ion, science (2019).

[24] site web : <https://www.gazdetect.com/informations-gaz/detecteur-gaz-no/>

[25] site web: <https://www.aquaportail.com/definition-8860-oxyde-nitrique.html>

Chapitre II

*Modèle physique, cinétique
et électrique de la décharge*

II-1. Introduction

Aujourd'hui, la modélisation des plasmas de décharge est considérée comme un outil très complémentaire pour l'analyse expérimentale de la conception et de l'optimisation des réacteurs à plasma. Leurs modélisations et simulations numériques nous ont permis de dimensionner précisément le réacteur avec les paramètres de fonctionnement optimaux (composition des gaz, pression et débit, configuration des électrodes, température, puissance...). Grâce à la simulation numérique, des réponses peuvent être rapidement obtenues sur l'impact de tous ces différents paramètres de fonctionnement sur les performances globales du système.

Nous avons choisi un modèle mathématique pour résoudre les équations de transport de la densité des différentes espèces présentes dans un plasma froid, en particulier les mélanges gazeux. Ce modèle repose sur l'équation de transport, connue sous le nom de l'équation de Boltzmann, et ses moments :

- ✓ le moment d'ordre un.
- ✓ le moment d'ordre deux.
- ✓ le moment d'ordre trois

II-2. Modèle physique de la décharge électrique

Les simulations numériques des différents types de décharges électriques dans les plasmas froids [1-2] ont également largement utilisé le modèle fluide. Ce modèle permet de décrire le transport des différentes composantes du plasma en utilisant des grandeurs macroscopiques. Le modèle mathématique basée sur les équations de transport pour les particules chargées (les électrons, les ions et les neutres), obtenues en prenant les trois premiers moments de l'équation de transport qui correspondent aux grandeurs physiques caractéristiques du plasma, telles que la densité, la quantité de mouvement, la pression cinétique, le flux d'énergie thermique, etc...[3].

II-2.1) Equation de Boltzmann

L'équation de Boltzmann est une équation de continuité de la fonction de distribution dans l'espace des phases d_r^3, d_W^3 .

Il découle du théorème de Liouville (plus de détails sur ce théorème voir les références [4-2]) que la densité de probabilité est conservée, et la fonction de distribution des particules obéit à l'équation de Boltzmann comme suit :

$$\frac{\partial}{\partial t} f(\vec{r}, \vec{w}, t) + \vec{w} \cdot \vec{\nabla}_r f(\vec{r}, \vec{w}, t) + \frac{\vec{F}}{m} \cdot \vec{\nabla}_w f(\vec{r}, \vec{w}, t) = \left\{ \frac{\partial}{\partial t} f(\vec{r}, \vec{w}, t) \right\}_{coll} \quad (II-1)$$

Sachant que $f(\vec{r}, \vec{w}, t)$ est la fonction de distribution des vitesses d'un ensemble de N particules et w désigne la vitesse dans l'espace [5].

avec :

- $\frac{\vec{F}}{m}$: l'accélération imposée aux particules de masse m par les forces extérieures.
- $\vec{\nabla}_r$: le gradient dans l'espace des positions.
- $\vec{\nabla}_w$: le gradient dans l'espace des vitesses.
- $\left(\frac{\partial f(\vec{r}, \vec{w}, t)}{\partial t} \right)_{Coll}$: représente le terme de collisions.
- $\frac{\vec{F}}{m} \cdot \vec{\nabla}_w f(\vec{r}, \vec{w}, t)$: représente l'effet des forces extérieures.
- $\vec{w} \cdot \vec{\nabla}_r f(\vec{r}, \vec{w}, t)$: la diffusion des particules.
- $\frac{\partial f}{\partial t}$ Représente la variation temporelle de la fonction de distribution $f(\vec{r}, \vec{w}, t)$.

En l'absence de collisions, le nombre de particules contenues dans un élément de volume de l'espace des phases est conservé et la fonction de distribution n'est donc pas modifiée, de sorte que le terme de collisions s'annule, et l'équation (II-1) s'écrit alors :

$$\frac{\partial}{\partial t} f(\vec{r}, \vec{w}, t) + \vec{w} \cdot \vec{\nabla}_r f(\vec{r}, \vec{w}, t) + \frac{\vec{F}}{m} \cdot \vec{\nabla}_w f(\vec{r}, \vec{w}, t) = 0 \quad (II-2)$$

Cette équation porte le nom d'équation de VLASOV (ou *équation de Boltzmann sans Second membre*).

L'équation de Boltzmann s'applique aux gaz neutres pas trop denses et aux plasmas faiblement ionisés qui sont régis essentiellement par des interactions binaires à courte portée entre particules chargées (ions et électrons) et neutres [2].

Les propriétés générales de cette équation sont les suivantes :

- ❖ C'est une équation locale.
- ❖ Elle conserve les densités locales macroscopiques des particules, de la quantité de mouvement et de l'énergie cinétique.
- ❖ Elle est non linéaire et décrit une évolution irréversible du gaz vers l'équilibre thermodynamique local.

II-2.2) Equation de transport de la continuité

L'équation de transport de la continuité est une équation qui exprime la conservation de la masse ou du volume d'un fluide au cours du temps et de l'espace. Elle est utilisée en mécanique des fluides pour étudier le mouvement des fluides et leur comportement en écoulement. Cette équation décrit comment la masse ou le volume d'un fluide est transporté à travers un milieu en fonction de la vitesse du fluide et de la variation de densité ou de concentration dans ce milieu. Elle est généralement écrite sous forme suivant [5]:

$$\frac{\partial n_a}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (n_a \vec{w}) = S \quad (\text{II-3})$$

où

n_a : représente la densité des particules chargé.

S : désigne le nombre de particule de type considère créés algébriquement par unité de volume et par unité de temps. S dépend des processus de créations et de pertes de particules (l'ionisation par impact électronique, l'attachement, et la recombinaison électron-ion,...) [2].

II-2.3) Equations de transport de la quantité de mouvement

L'équation de transport de la quantité de mouvement est une équation fondamentale de la mécanique des fluides qui décrit comment la quantité de mouvement (ou moment linéaire) est transportée dans un fluide au cours du temps et de l'espace. Cette équation est dérivée à partir de la seconde loi de Newton qui stipule que la somme des forces appliquées à un objet est égale à la variation de sa quantité de mouvement. En utilisant cette loi pour un élément de volume de fluide, on peut dériver l'équation de transport de la quantité de mouvement. Elle exprime comment la

force extérieure appliquée sur un fluide entraîne un changement dans la quantité de mouvement du fluide, qui se traduit par un écoulement. Cette équation est souvent écrite sous forme suivant [3-5-6] :

$$\frac{\partial}{\partial t}(nm\vec{w}) + nm\left(\vec{w}\frac{\partial}{\partial \vec{r}}\right)(\vec{w}) - \vec{w}\left(\frac{\partial}{\partial \vec{r}}(nm\vec{w}) + \vec{\nabla}_{\vec{r}}\text{rot}(\vec{P}) - n\vec{F} = \int \left(\frac{\partial}{\partial t}f(\vec{r}, \vec{w}, t)\right)_{coll}d^3\vec{w} \quad (\text{II-4})$$

\vec{F} : représente les forces extérieures qui s'appliquent au système dues aux champs électrique et magnétique s'il existe.

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

Le terme droit représente la variation de la quantité de mouvement des particules considérées sous l'effet des collisions.

II-2.4) Equation de transport de l'énergie

En faisant l'hypothèse que la particule ne possède pas de degré de liberté interne et en négligeant les énergies potentielles d'interaction et gravitationnelle, l'énergie totale de la particule peut être exprimée comme $E_t = \frac{1}{2}mw^2$, nous obtenons immédiatement [6]:

$$\frac{\partial}{\partial t}\left(n\frac{1}{2}m\vec{w}^2\right) + \frac{\partial}{\partial r}\left(n\left(\frac{1}{2}m\vec{w}^2\vec{w}\right)\right) - \gamma n\left(\frac{\partial}{\partial \vec{w}}\frac{1}{2}m\vec{w}^2\right) = \int \left(\left(\frac{\partial}{\partial t}f(\vec{r}, \vec{w}, t)\right)_{coll}\frac{1}{2}m\vec{w}^2d^3\vec{w}\right) \quad (\text{II-5})$$

$$\Rightarrow \frac{\partial}{\partial t}(n\vec{w}^2) + \frac{\partial}{\partial r}(n(\vec{w}^2\vec{w})) - 2\frac{\vec{F}}{m}n\vec{w} = \int \left(\left(\frac{\partial}{\partial t}f(\vec{r}, \vec{w}, t)\right)_{coll}\vec{w}^2d^3\vec{w}\right) \quad (\text{II-6})$$

Avec : $\gamma = \frac{\vec{F}}{m}$

II-3. Modèle cinétique chimique

En 1889, le scientifique August Arrhenius a remarqué que la constante de vitesse de nombreuses réactions chimiques. Il a ainsi introduit la loi empirique connue sous le nom de loi d'Arrhenius, qui stipule que le coefficient de réaction k dépend également de la température [7].

$$k(t) = A \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (\text{II-7})$$

où

E_a : représente l'énergie d'activation d'Arrhenius (l'énergie que les molécules doivent acquérir pour pouvoir franchir une barrière d'énergie puis réagir).

R : est la constante des gaz parfaits (= 8,314 J.mol⁻¹K⁻¹).

A : représente une constante appelée facteur pré-exponentiel prenant en compte à la fois la fréquence des collisions et les effets stériques.

La modélisation de la cinétique chimique dans la décharge électrique permet de prédire les espèces produites lors de la phase de réactions chimiques, qui permet de décrire l'évolution des espèces neutres. Le modèle va se reposer sur la résolution de l'équation de continuité pour les différentes espèces neutres qui peut s'écrire pour une espèce k ; l'équation de continuité peut s'écrire pour une espèce k de particule comme suit [7] :

$$\frac{d[X_k]}{dt} = S_k \quad (\text{II-8})$$

où

$[X_k]$: la densité de l'espèce k

S_k : le terme source de l'équation de continuité qui tient compte de tous les processus de création et de perte de l'état k (ionisation par étape, excitation, recombinaison...).

II-3.1) Les équations cinétiques dans le mélange N₂-O₂

Pour analyser le comportement de la décharge dans ce mélange, plusieurs modèles théoriques et expérimentaux ont été élaborés par de nombreux chercheurs [8,9]. Il est important de souligner que ce modèle prend en compte les électrons ainsi que les espèces neutres, excitées et chargées positivement et négativement.

Les réactions sont généralement caractérisées par un coefficient k , par exemple si on présente une réaction par deux réactifs tels que :



Le coefficient k, détermine le changement de la concentration dans le temps du réactif X qui dépend de la concentration des deux réactifs X et Y (n_X et n_Y).

$$\frac{dn_X}{dt} = -k \cdot n_X \cdot n_Y \quad (\text{II-10})$$

L'unité de k est [cm^3/s].

Dans le cas d'une réaction à trois corps, la concentration d'un réactif X dépend également de la concentration du troisième corps Z comme le montre le schéma suivant :



$$\frac{dn_X}{dt} = -k \cdot n_X \cdot n_Y \cdot n_Z \quad (\text{II-12})$$

Dans ce cas k est exprimé par [cm^{-6}/s]

Exemple de Calcul du Coefficient de Vitesse

Dans notre exemple, nous écrivons les équations d'évolution des espèces NO, NO₂ sachant que le signe (-) correspond à la réduction de l'espèce donnée et le signe (+) correspond à sa production.

Concernant les différents k_i ($i=1$ à 116) voir l'annexe.

$$\begin{aligned} \frac{dn_{NO}}{dt} = & -k_4 n_N n_O - k_{14} n_O n_{NO} n_{O_2} - k_{15} n_{NO} n_O n_{N_2} - k_{21} n_{NO} n_{O_3} - k_{22} 2n_{NO} n_{O_2} - \\ & k_{23} n_{NO} n_O - k_{24} n_{NO} n_{NO_3} - k_{40} n_{NO} n_O - k_{41} n_{NO} n_N - k_{43} n_{NO} n_{O_2} - k_{44} n_{NO} n_{O_2} - \\ & k_{72} n_{N_2(A1)} n_{NO} - k_{79} n_{N(2D)} n_{NO} - k_{102} n_{O(1D)} n_{NO} + k_1 n_N n_{O_2} + k_6 n_N n_{NO_2} + \\ & k_{12} n_O n_N n_{O_2} + k_{13} n_{N_2} n_N n_O + k_{16} n_O n_{NO_2} + k_{20} n_N n_{O_3} + k_{27} n_O n_{N_2} + k_{51} n_N 2n_O + \\ & k_{52} 2n_N n_O + k_{56} n_{NO_3} n_{NO_2} + k_{57} n_{NO_2} n_{O_3} + \\ & k_{65} n_{N_2(A3)} n_{NO_2} + k_{67} n_{N_2O} n_{N_2(A3)} + k_{70} n_{N_2(A3)} n_O + k_{76} n_{O_2(A1)} n_N + k_{78} n_{N(2D)} n_{O_2} + \\ & k_{81} n_{N(2D)} n_{NO_2} + k_{82} n_{N(2D)} n_{N_2O} + k_{85} n_{N(2P)} n_{O_2} + k_{88} n_{N_2O} n_{N(2P)} + \\ & k_{87} n_{N(2P)} n_{NO_2} + k_{98} n_{N_2O} n_{O(1D)} + k_{100} n_{N_2O} n_{O(1D)} + k_{101} n_{O(1D)} n_{NO_2} + \\ & k_{110} n_N n_{NO_2} \end{aligned} \quad (\text{II-13})$$

$$\begin{aligned}
\frac{dn_{NO_2}}{dt} = & -k_5 n_{NO_2} n_N - k_6 n_{NO_2} n_N - k_{16} n_{NO_2} n_O - k_{17} n_{NO_2} n_O n_{O_2} - \\
& k_{18} n_{NO_2} n_O n_{N_2} - k_{25} n_{NO_2} n_{O_3} - k_{29} n_N n_{NO_2} - k_{57} n_{NO_2} n_{O_3} - k_{65} n_{NO_2} n_{N_2(A3)} - \\
& k_{80} n_{NO_2} n_{N(2D)} - k_{81} n_{NO_2} n_{N(2D)} - k_{86} n_{NO_2} n_{N(2P)} - k_{87} n_{NO_2} n_{N(2P)} - \\
& k_{101} n_{NO_2} n_{O(1D)} - k_{103} n_{NO_2} n_{NO_3} - k_{104} n_{NO_2} n_{NO_3} n_{O_2} - k_{105} n_{NO_2} n_{NO_3} n_{N_2} - \\
& k_{109} n_N n_{NO_2} - k_{110} n_{NO_2} n_N + k_{14} n_O n_{NO} n_{O_2} + k_{15} n_O n_{NO} n_{N_2} + k_{19} n_{NO_3} n_O + \\
& k_{21} n_{NO} n_{O_3} + k_{22} n_{NO} n_{O_2}^2 + k_{24} n_{NO} n_{NO_3} + k_{26} 2 n_{NO_3} + k_{106} n_{N_2O_5} + \\
& k_{107} n_{N_2O_5} n_{O_2} + k_{108} n_{N_2O_5} n_{N_2}
\end{aligned} \tag{II-14}$$

Références

- [1] J. P Boeuf., Numerical model of RF glow discharges, *Phy. Rev. A*, **36**, 2782-2792 (1987).
- [2] I. S.Medjahdi, A. K. Ferouani, M. Lemerini, and M. Sahlaoui ,Numerical Modeling of Impact Effect of Chemical Reactions on Nitrogen Oxide Conversion in N₂/O₂ Mixtures Under Various X%O₂ Concentrations, *IEEE Transactions on Plasma Science*. **49**(3), 1181-1189 (2021).
- [3] M. Lemerini, Modelisation et simulation numerique de l'empreinte thermique d'une decharge pointe-plan. Application à l'étude de la dynamique des neutres, Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur Strasbourg-France (1993).
- [4] J. L. Delcroix, and A. Bers, Physique des Plasmas, 1, *Monographies Dunod*, Paris-France (1994).
- [5] J. L. Delacroix. and A .Bers, Physique des plasmas–Inter Ed et CNRS Ed (1994).
- [6] Z.Eldjouzi., Calcul des sections efficaces et coefficient de transport dans un plasma d'oxygène, Mémoire de Master, Université Ahmed Draia-Adrar (2020).
- [7] I. A.Kossyi, A. Y.Kostinsky, A. A.Matveyev and V. P.Silakov, Kinetic scheme of the non-equilibrium discharge in nitrogen-oxygen mixtures, *Plasma Sources Science and Technology*, **1**(3), 207-220 (1992).
- [8] O.Eichwald, N. A.Guntoro, M.Yousfi and M.Benhenni, Chemical kinetics with electrical and gas dynamics modelization for NO_x removal in an air corona discharge, *Journal of Physics D: App Phy*, **35**(5), 439-450 (2002).
- [9] O. Eichwald, M.Yousfi , A.Hennad and M. D.Benabdessadok, Coupling of chemical kinetics, gas dynamics, and charged particle kinetics models for the analysis of NO reduction from flue gases, *Journal of Applied Physics*, **82**, 4781-4794 (1997).

Chapitre III

Application au mélange
 $N_2 - X\%O_2$

III-1. Introduction

Comme il a été mentionné auparavant (chapitre II). Le formalisme mathématique est basé sur la résolution des trois premiers moments de l'équation de transport issues de l'équation de Boltzmann. Ces trois moments représentent : les équations de continuité, de transfert de la quantité de mouvement et les équations d'énergies.

Nous simulons dans ce chapitre l'évolution de la densité et du taux de réaction des espèces présentes dans le mélange gazeux composé $N_2-X\%O_2$ soumis à une décharge couronne pointe-plan polarité négative, pour plusieurs valeurs du champ réduit E/N (où E : champ électrique et N la densité des neutres). Nous analysons tout particulièrement l'influence de la concentration X , c'est-à-dire le mouvement des particules neutres dans plusieurs cas de $X= 7\%$, 15% et 30% , mentionnons que la durée d'application de cette décharge s'étend de 10^{-9} s jusqu'à 10^{-4} s.

III-2. Position de problème

On présume l'existence de la symétrie de révolution autour de l'axe de la décharge, le cadre de résolution est ensuite schématisé comme suit (Fig.III.1).

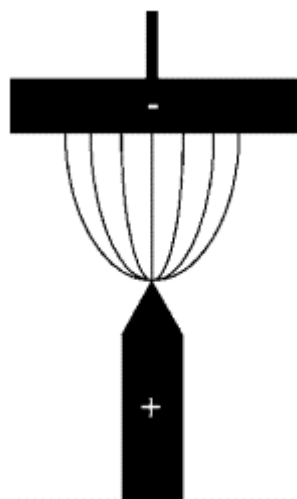


Fig. III.1 : Géométrie typique du réacteur corona (décharge de type pointe-plan).

III-3. Conditions initiales

Les conditions aux limites utilisées dans cette simulation, sont les conditions de Neumann [1,2] :

- La pression atmosphérique $p = 1 \text{ atm}$.
- La température ambiante $T = 300\text{K}$.
- Un potentiel négatif de $U = 7 \text{ kV}$.
- La distance inter-électrode $d = 20 \text{ mm}$.
- La durée (t) de la décharge varie entre $10^{-9} \text{ s} \leq t \leq 10^{-4} \text{ s}$.

III-4. Données de base

Le but de la présente étude est de simuler différentes valeurs de concentrations $X\%O_2$ l'évolution temporelle de vingt-cinq espèces chimiques (ces différentes espèces réagissent selon 150 réactions chimiques sélectionnées) ont été choisies en raison de leur importance relative, plus particulièrement, les oxydes d'azotes :

- ❖ électrons : e^-
- ❖ molécules : N_2, O_2, O_3
- ❖ atomes : N, O
- ❖ oxydes nitriques : $NO, N_2O, NO_2, NO_3, N_2O_5$
- ❖ ions positifs : $O^+, O_2^+, O_4^+, N^+, N_2^+, NO^+$
- ❖ ions négatifs : $O^-, O_2^-, O_3^-, O_4^-, NO_2^-, NO_3^-$
- ❖ espèces métastables : $N(^2D), O(^1D)$.

Il faut mentionner que dans notre travail nous avons supposons divers effets induits par le passage d'une décharge corona dans un gaz mélangé. Pour simplifier, nous supposons que le gaz n'a pas de gradients de mouvement convectif et que la température reste constante.

Un ensemble de réactions retenues ainsi que leurs coefficients de réactions, des différentes réactions chimiques, qui peuvent avoir lieu dans ce mélange sont reportés dans le Tableau. III.1.

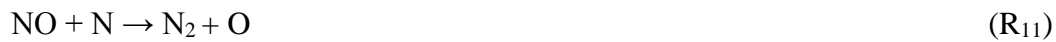
Tableau. III.1 : Les principales réactions du plasma pour générer les principales espèces pour la création et la réduction du NO et leurs coefficients (le taux de réactions sont exprimés en cm³.molecule⁻¹.s⁻¹ et pour les réactions bimoléculaires sont exprimés en cm⁶.molecule⁻¹.s⁻¹).

	Réaction chimique	Coefficients de taux	Réf
R₁	$N(^2D) + O_2 \rightarrow NO + O$	$k_1 = 0.97 \times 10^{-11}$	[5]
R₂	$N + O_2 \rightarrow NO + O$	$k_2 = 0.44 \times 10^{-11}$	[4]
R₃	$O_3^- + N \rightarrow NO + O_2 + e^-$	$k_3 = 4.31 \times 10^{-7}$	[5]
R₄	$O_2^+ + N_2 \rightarrow NO + NO^+$	$k_4 = 1.0 \times 10^{-17}$	[5]
R₅	$O_2^- + NO^+ \rightarrow NO + O_2$	$k_5 = 4.0 \times 10^{-7}$	[3]
R₆	$N_2O_5 + NO_2^- \rightarrow NO + NO_3^- + NO_3$	$k_6 = 7.0 \times 10^{-10}$	[3]
R₇	$O(^1D) + NO_2 \rightarrow NO + O_2$	$k_7 = 0.14 \times 10^{-9}$	[3]
R₈	$N^+ + NO_2 \rightarrow NO + NO^+$	$k_8 = 5.00 \times 10^{-10}$	[3]
R₉	$O_3 + N_2^+ \rightarrow N_2 + O + O_2^+$	$k_9 = 1.00 \times 10^{-10}$	[5]
R₁₀	$NO + O + N_2 \rightarrow NO_2 + N_2$	$k_{10} = 2.5 \times 10^{-10}$	[4]
R₁₁	$NO + N \rightarrow N_2 + O$	$k_{11} = 0.32 \times 10^{-10}$	[5]
R₁₂	$NO + O_3^- \rightarrow NO_3^- + O$	$k_{12} = 1.0 \times 10^{-10}$	[5]
R₁₃	$NO + N(^1D) \rightarrow O_2 + N$	$k_{13} = 1.5 \times 10^{-10}$	[3]
R₁₄	$NO + O_3 \rightarrow NO_2 + O_2$	$k_{14} = 0.18 \times 10^{-11}$	[3]
R₁₅	$NO + O \rightarrow N + 2O$	$k_{15} = 0.18 \times 10^{-11}$	[3]
R₁₆	$NO + O_3^- \rightarrow NO_2^- + O_2$	$k_{16} = 2.6 \times 10^{-12}$	[4]
R₁₇	$NO + O_4^- \rightarrow NO_3^- + O_2$	$k_{17} = 2.5 \times 10^{-10}$	[5]
R₁₈	$NO + O_2^+ \rightarrow NO^+ + O_2$	$k_{18} = 3.0 \times 10^{-10}$	[3]
R₁₉	$NO + O^+ \rightarrow NO^+ + O$	$k_{19} = 1.0 \times 10^{-12}$	[3]
R₂₀	$NO + O^- \rightarrow NO_2 + e^-$	$k_{20} = 2.6 \times 10^{-10}$	[3]
R₂₁	$O_4^+ + O^- \rightarrow O_2 + O_3$	$k_{21} = 4.00 \times 10^{-7}$	[3]
R₂₂	$N_2O + O^+ \rightarrow N_2 + O_2^+$	$k_{22} = 2.00 \times 10^{-11}$	[5]
R₂₃	$O_4^- + O \rightarrow O_3^- + O_2$	$k_{23} = 4.00 \times 10^{-10}$	[4]
R₂₄	$O_4^+ + NO \rightarrow NO^+ + 2O_2$	$k_{24} = 1.00 \times 10^{-10}$	[4]
R₂₅	$e^- + O_2 \rightarrow O + O(^1D) + e^-$	$k_{25} = 3.2 \times 10^{-11}$	[4]
R₂₆	$e^- + N_2 \rightarrow N + N + e^-$	$k_{26} = 2.0 \times 10^{-11}$	[5]

Nous allons maintenant analyser (tableau III-1), nous analyserons les effets des réactions chimiques importantes qui ont participé à la création ou à la réduction de l'espèce NO. Dans notre travail, nous avons constaté que les réactions suivantes sont les plus influentes sur *la création* de NO :



Les réactions suivantes sont les plus influentes sur *la réduction* des NO :



Nous avons mis au point un programme informatique en langage **Fortran 90** (en collaboration avec Pr M. Lemerini, professeur à l'Université de Tlemcen) pour résoudre les équations du modèle à savoir les équations de transport de la densité et de l'énergie de toutes les espèces qui participent à mélange gazeux composé $N_2-X\%O_2$. Il faut mentionner que dans notre travail nous avons adopté pour la résolution du système, la procédure dite F.C.T. (Flux Corrected Transport) [6-10].

Nous permis de déterminer les variations :

- Les densités.
- Les taux de réaction...

III-5) Résultats & Discussions

Les influences de la proportion X sur les mélanges $N_2 - X\%O_2$ sont étudiées, la composition du plasma composé d'oxyde d'azote (N_2) et d'oxygène (O_2) est calculée numériquement, et nous retraçons et discutons les différents résultats. Dans tous les résultats présentés dans les figures III.2 à III.7, le mélange $N_2 - X\%O_2$ est calculé pour trois valeurs de concentration X sélectionnées (7 %, 15 % et 30 %).

III-5-1) Evolution temporelle de la densité

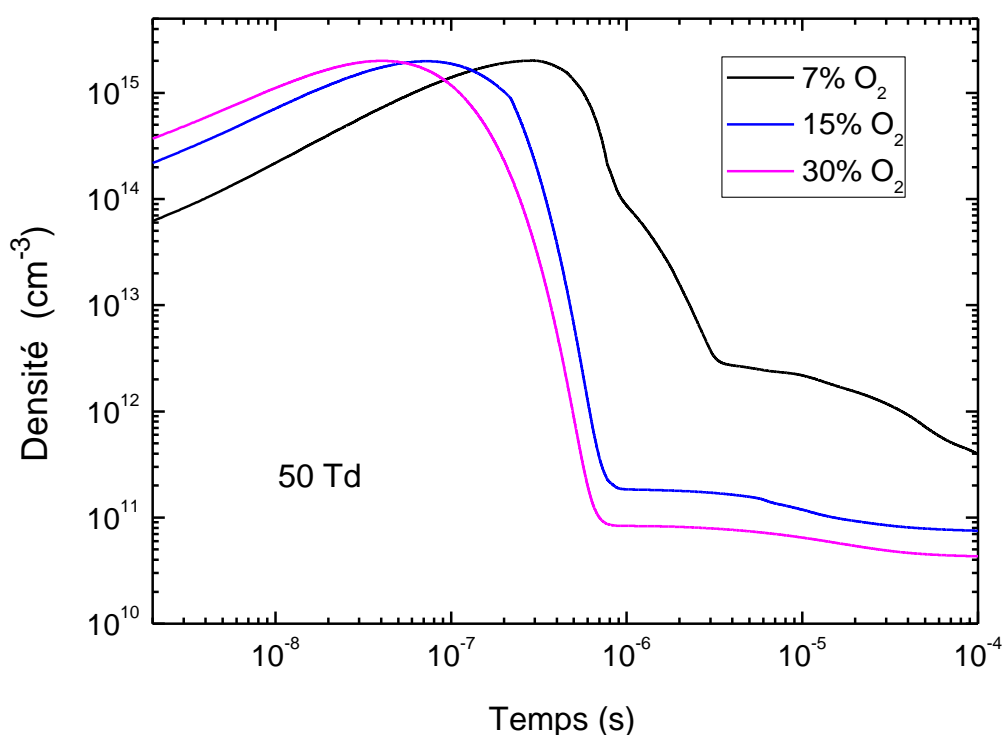


Fig. III.2 : Evolution temporelle de la densité de $N(^2D)$ qui participe à la création des espèces NO dans le mélange N_2-O_2 , en fonction du temps, pour trois valeurs sélectionnées de concentration $X\%O_2$, pour le champ électrique réduit $E/n = 50$ Td.

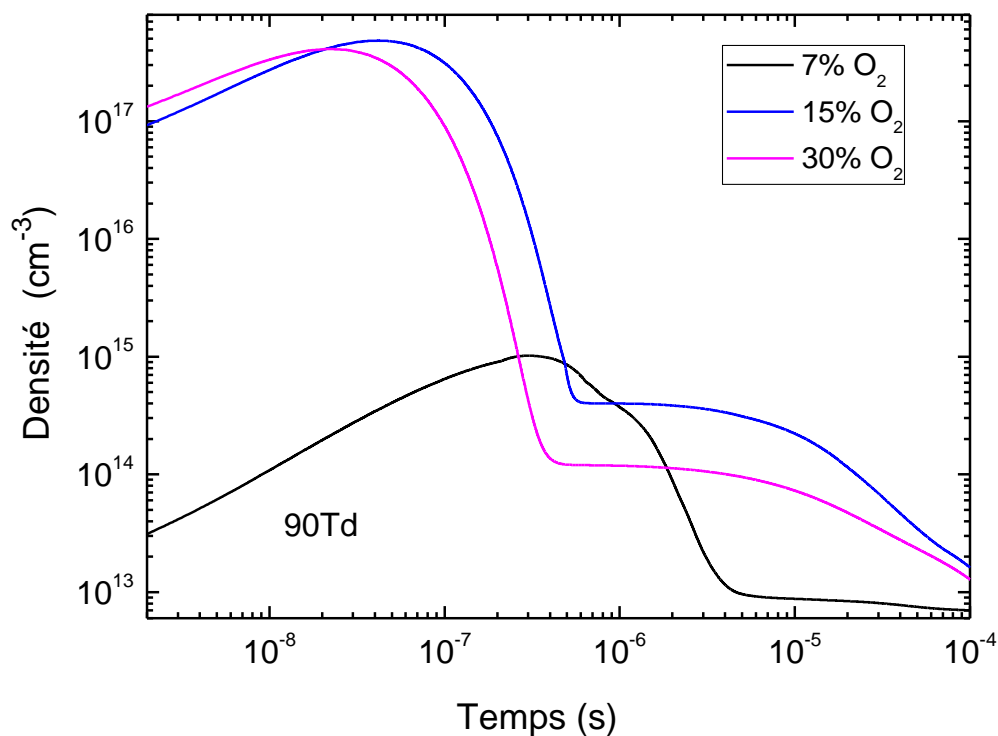


Fig. III. 3 : Même légende que pour la figure III. 2 sauf que le champ électrique réduit $E/n=90$ Td.

Les figures **III. 2** et **III. 3**, montrent l'évolution temporelle de la densité des espèces $N(^2D)$ qui ont participé à la création d'oxyde d'azote dans le mélange N_2-O_2 à 50Td et 90 Td sous différentes concentrations $X\%O_2$. Comme illustré sur ces courbes, l'évolution de la densité de $N(^2D)$ dépend des concentrations en O_2 . Cependant, on remarque que lorsque la concentration en O_2 augmente la densité de $N(^2D)$ augmente puis diminue, sauf pour la valeur 90Td où l'on note une diminution de la densité à la concentration 7% beaucoup plus rapide. Globalement, on observe sur ces deux figures, une première étape qui monte à $4 \times 10^{-7}s$ où la densité augmente, et une deuxième étape qui monte à $10^{-4}s$ où la densité diminue. On remarque également que l'écart entre les différentes courbes diminue lorsque la concentration en oxygène augmente. Cela s'explique par le fait qu'il y a un dépeuplement plus important dans l'espace inter électrode. On peut voir clairement sur l'ensemble de ces deux figures **III. 2** et **III. 3** que l'inclusion de la composante $X\%O_2$ peut modifier considérablement l'évolution temporelle de la densité $N(^2D)$ lorsque le temps varie entre de Laps de temps.

On peut également noter le changement de préférence de l'évolution de la densité de $N(^2D)$ en fonction des concentrations de $X\%O_2$; cependant, on remarque que lorsque la concentration en X augmente, la densité de $N(^2D)$ augmente pour que la densité de NO augmente. A l'exception de la figure III. 3 (c'est-à-dire, $E/n = 90$ Td), où l'on note une diminution de la densité à la concentration $X\%O_2$. Nous remarquons également que l'écart entre les différentes courbes diminue lorsque la concentration en oxygène $X\%O_2$ augmente. Clairement, nous avons observé, sur cet ensemble de courbes, que le dépeuplement dépend de la variation de $X\%O_2$ et de E/n .

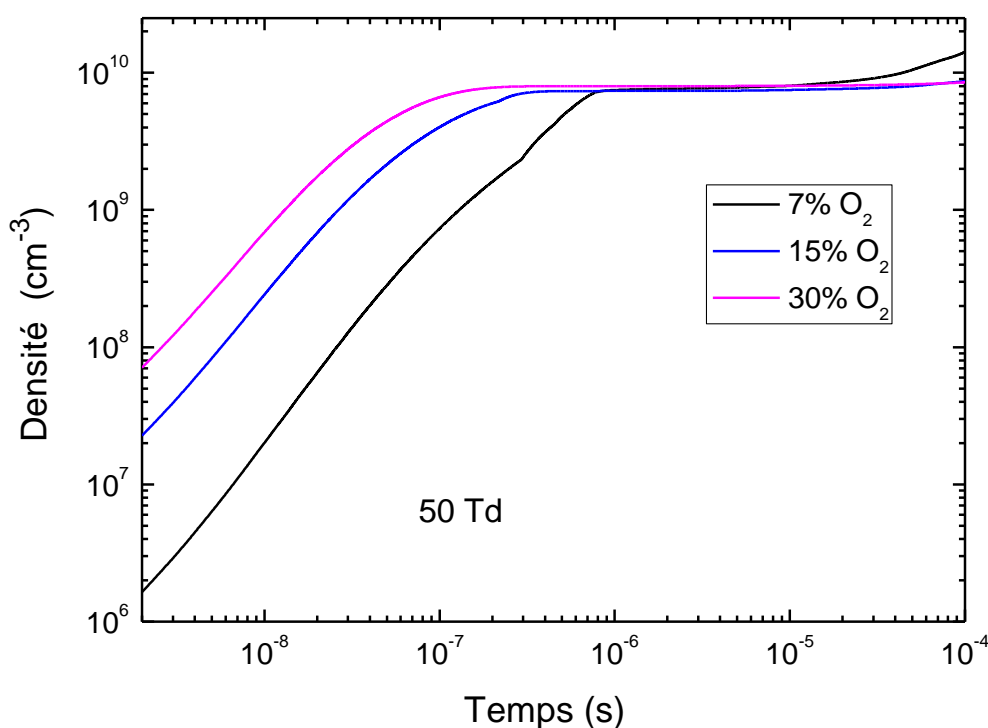


Fig. III. 4 : Evolution temporelle de la densité de O qui participe à la réduction des espèces NO dans le mélange N_2-O_2 , en fonction du temps, pour trois valeurs sélectionnées de concentration $X\%O_2$, pour le champ électrique réduit $E/n= 50$ Td.

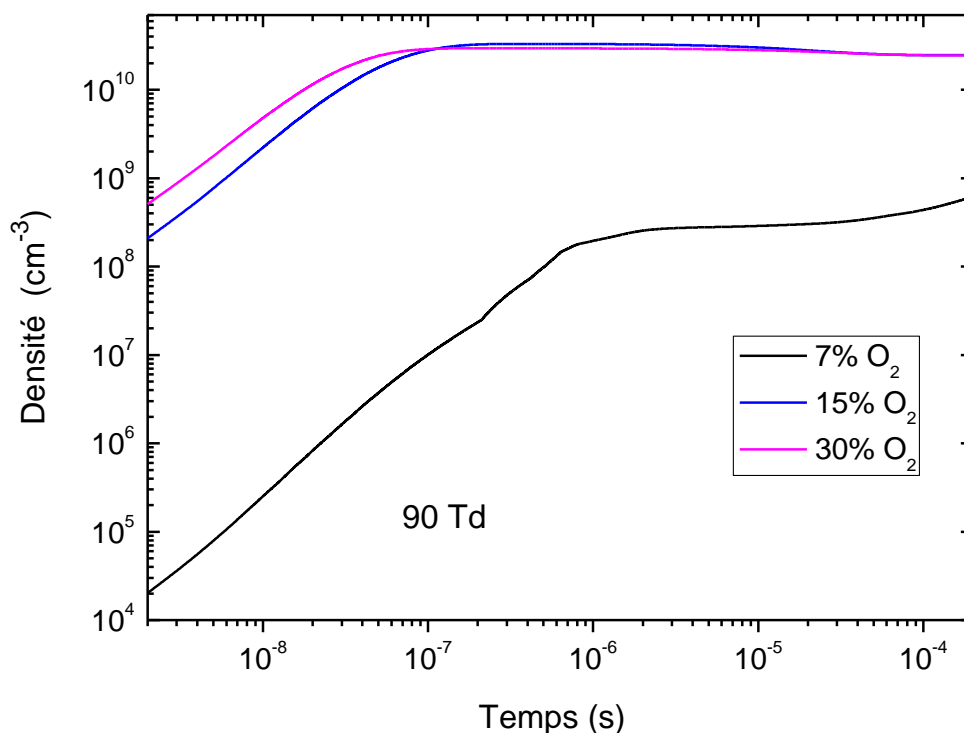


Fig. III. 5 : Même légende que pour la figure III. 4 sauf que le champ électrique réduit $E/n=90$ Td.

Nous avons montré sur l'ensemble des figures **III. 4** & **III. 5**, notre résultat de l'évolution temporelle de la densité O qui participe à la réduction des espèces de NO dans le mélange N_2-O_2 , en fonction du temps, calculée pour deux valeurs de champs électriques réduits de 50 et 90 Td et mêmes concentrations $X\%O_2$ que précédemment. On peut noter sur ces deux figures que l'évolution de la densité d'oxygène dépend des concentrations en $X\%O_2$. Il est clair que l'inclusion de la composante $X\%O_2$ peut modifier considérablement l'évolution temporelle de la densité de l'oxygène lorsque le temps varie. Par exemple, lorsque le temps varie entre 2×10^{-9} à 5×10^{-7} s à $X=15\%$, pour la figure **III. 4** ($E/n=50$ Td), l'évolution de la densité de O augmente et atteint $\sim 2,26 \times 10^7$ à $7,37 \times 10^9$ cm^{-3} . On peut également remarquer sur les figures **III. 4** et **III. 5**, qu'il y a d'abord une augmentation de la densité jusqu'à 10^{-6} s, suivie d'une stabilisation. Deuxièmement, nous observons que l'augmentation de la concentration en $X\%O_2$ induit l'augmentation de la densité atomique en oxygène.

III-5-2) Evolution temporelle du taux de réaction

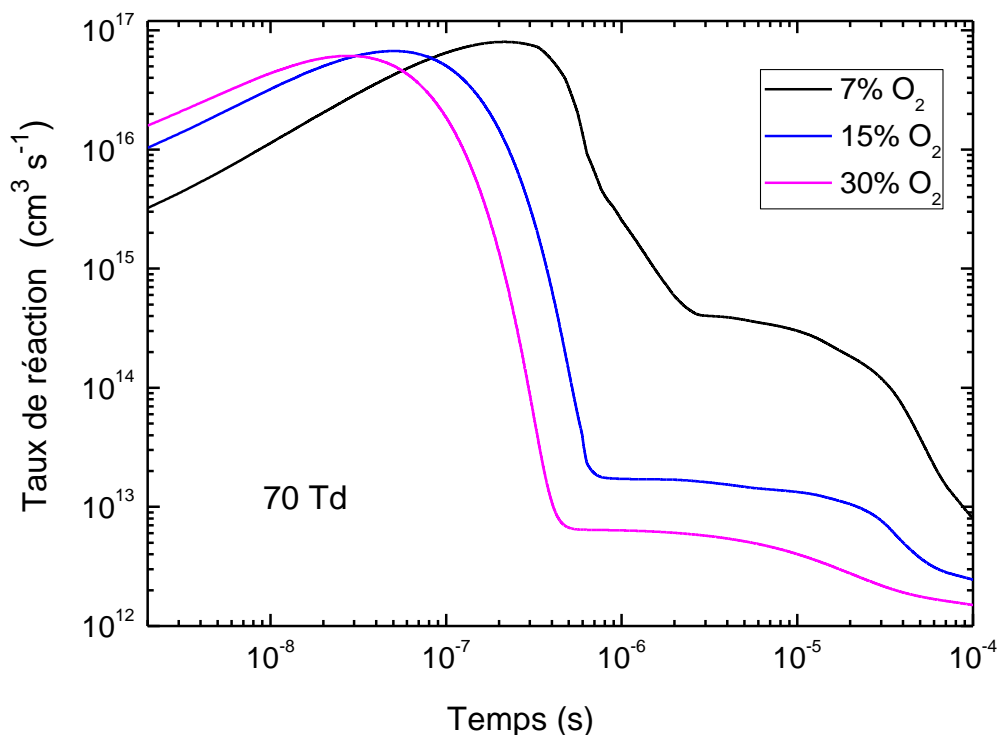


Fig. III.6 : Evolution temporelle du taux de réaction R_1 : $N(^2D) + O_2 \rightarrow NO + O$, qui a contribué à la création d'espèces de NO dans le mélange N_2-O_2 , en fonction du temps et pour trois valeurs sélectionnées de concentration $X\%O_2$, pour le champ électrique réduit $E/n=70$ Td.

Nous avons représenté sur la figure III.6, l'évolution temporelle du taux de réaction R_1 : $N(^2D) + O_2 \rightarrow NO + O$, qui participent à la production d'espèce NO dans le mélange N_2-O_2 lorsque le champ réduit $E/n=70$ Td, sous trois valeurs de concentration $X\%O_2$: 7%, 15% et 30%. Il est intéressant de noter que l'effet de la réaction passe par trois étapes :

1. Lorsque t varie entre 10^{-9} et 10^{-7} s, l'influence de la réaction augmente avec l'augmentation des concentrations en $X\%O_2$.

2. Lorsque t varie entre de 10^{-7} à 10^{-6} s, l'impact de la réaction diminue rapidement tandis que les concentrations $X\%O_2$ augmentent et sa domination est obtenue pour 7 %.
3. Lorsque t augmente jusqu'à 10^{-6} s, et que l'impact de la réaction diminue rapidement, alors que les concentrations en $X\%O_2$ augmentent.

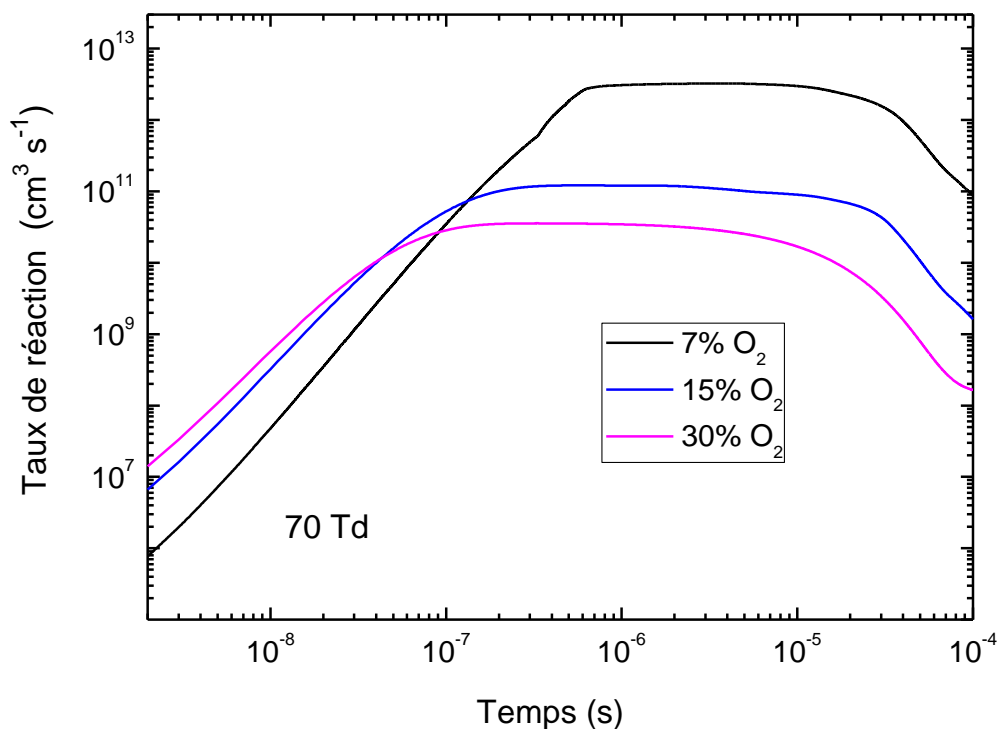


Fig. III.7 : Evolution temporelle du taux de réaction R_{10} : $NO + O + N_2 \rightarrow NO_2 + N_2$, qui a contribué à la réduction d'espèces de NO dans le mélange N_2 - O_2 , en fonction du temps et pour trois valeurs sélectionnées de concentration $X\%O_2$, pour le champ électrique réduit $E/n=70$ Td.

Analysons maintenant l'influence de la réaction (R_{10}) qui est la réaction principale dans la consommation d'oxyde d'azote. Pour cette raison, nous avons représenté sur le la figure **III.7** l'évolution de taux de réaction en fonction du temps et pour trois valeurs sélectionnées de concentration $X\%O_2$, pour le champ électrique réduit $E/n=70$ Td. On remarque que NO, peut réagir avec le radical oxydant tel que O

pour former notamment NO_2 . On constate tout d'abord que l'efficacité de ces concentrations est plus élevée à la fin qu'au début. Dans un second temps, on observe deux stades d'évolutions:

1. Lorsque t varie entre 10^{-9} et 10^{-7} s : plus la valeur des concentrations en O_2 augmente plus la réaction est efficace.
2. Lorsque t varie entre 4×10^{-7} et 10^{-4} s : le phénomène s'inverse et on observe que plus la concentration en O_2 augmente, plus l'effet de la réaction diminue.

Références

- [1] J. P. Nougier, Méthodes de calcul numérique. Ed Masson (1987).
- [2] M.Lemrini, Modélisation et simulation numérique de l’empreinte thermique d’une décharge pointe-plan. Application à l’étude de dynamique des neutres, Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur Strassbourg-France (1993).
- [3] I. A. Kossyi, A. Y. Kostinsky, A. A. Matveyev, and V. P. Silakov, Kinetic scheme of the non-equilibrium discharge in nitrogen-oxygen mixtures, *Plasma source Sci Technol*, **1**(3), 207–220 (1992).
- [4] O. Eichwald, N. A. Guntoro, M. Yousfi, and M. Benhenni, Chemical kinetics with electrical and gas dynamics modelization for NO_x removal in an air corona discharge, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **35**, 439–450 (2002).
- [5] I. Orlandini and U. Riedel, Chemical kinetics of NO removal by pulsed corona discharges, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **33** (19), 2467–2474 (2000).
- [6] A.K. Ferouani, M. Lemerini, and S.Belhour, Numerical modelling of nitrogen thermal effects produced by the negative dc corona discharge, *Plasma Science and Technology*, **12**, 208 (2010).
- [7] A.K.Ferouani, M.Lemrini, L.Merad, and M.Houalef, Numerical Modelling Point-to-Plane of Negative Corona Discharge in N_2 Under Non-Uniform Electric Field, *Plasma Science and Technology*, **17**(6), 469 (2015).
- [8] J. P. Boris and D. L. Book, Flux-corrected transport. I. SHASTA, a fluid transport algorithm that works, *J. Comput. Phys*, **11**, 38–69 (1973).
- [9] J. P. Boris et al, New insights into large eddy simulation, *Fluid Dyn. Res*, **10**, 4–6 (1992).
- [10] I.S.Medjahdi, A.K.Ferouani, M.Lemerini, and M.Sahlaoui, Numerical Modeling of Impact Effect of Chemical Reactions on Nitrogen Oxide Conversion in N_2/O_2 Mixtures Under Various $X\%O_2$ Concentrations, *IEEE Transactions on Plasma Science*, **49**, 1181-1189 (2021).

*Conclusion
Générale et
Perspectives*

Dans cette étude, nous simulons numériquement l'évolution de la densité des neutres et du taux de réaction des espèces présentes dans le mélange gazeux composé $N_2-X\%O_2$ soumis à une décharge corona de type pointe-plan à la masse et de polarité négative, pour plusieurs valeurs du champ réduit E/N . Nous analysons tout particulièrement l'influence de la concentration X , c'est-à-dire le mouvement des particules neutres dans plusieurs cas de X tel que $X= 7\%$, 15% et 30% , mentionnons également que la durée d'application de cette décharge s'étend de 10^{-9} s jusqu'à 10^{-4} s.

Nous nous sommes concentrés sur deux espèces qui sont $N(^2D)$ et O . Les résultats obtenus montrent que la conversion de l'oxyde d'azote est différente pour toutes les concentrations d'oxygène ($X\%O_2$). En effet, on observe que l'augmentation et la diminution de ces espèces sont différentes et dépendent fortement des valeurs des concentrations en X .

Nous pouvons résumer les principaux résultats obtenus à travers cette mémoire de Master comme suite :

- ✓ Le mécanisme de création de NO se produit principalement par les espèces $N(^2D)$ par le biais de la réaction : $N(^2D) + O_2 \rightarrow NO + O$.
- ✓ Le mécanisme de réduction du NO est dû principalement aux espèces O par le biais de la réaction : $NO + N \rightarrow N_2 + O$.
- ✓ On note qu'à $E/N= 50$ et 90 Td, pour la création, l'influence de la réaction R_1 a été obtenue pour la faible concentration en $X=7\%$.

En effet, l'évolution temporelle du taux de réaction R_1 lorsque le champ réduit $E/N= 70$ Td, montre que du début de l'opération 10^{-9} s jusqu'à 10^{-7} s, l'influence de la réaction augmente avec l'augmentation des concentrations en $X\%O_2$, puis l'impact de la réaction diminue rapidement tandis que les concentrations $X\%O_2$ augmentent.

- ✓ Pour la réduction, nous observons également que, à 50 et 90 Td, l'influence de la réaction R_{10} a été obtenue pour la faible concentration en $X=7\%$.
- ✓ Nous avons obtenu, pour le champ électrique réduit $E/n= 70$ Td, que l'évolution passe par une phase entre 10^{-9} et 10^{-7} s, où l'efficacité de la réaction augmente avec l'augmentation de la valeur des concentrations en O_2 , au delà de 10^{-4} s, le phénomène s'inverse. Enfin, les résultats obtenus montrent clairement le rôle important joué par les réactions chimiques et la concentration en X dans le processus de l'élimination ou la création d'oxyde d'azote.

De multiples perspectives peuvent être investiguées dans de cette recherche, on propose de :

- ✓ Faire varier la concentration pour plus de valeurs de la concentration de l'espèce O_2 pour avoir véritablement une idée exacte et plus réelle sur l'influence de l'espèce.

- ✓ Permuter la polarisation de la tension appliquée au réacteur, (prendre une polarité positive ou bien pulsées) pour définir au mieux l'impact du plasma sur l'assortiment des espèces dans le réacteur.

- ✓ Suivre l'évolution d'autres espèces qui subsistent en même temps que l'oxyde d'azote NO telles que le dioxyde d'azote N_2O , le radical Nitrate NO_3 , ou le dinitrogène pentoxyde N_2O_5 pour étaler l'importance de la réactivité des ces espèces entre elles et sur le cinétique chimique de manière générale.

Annexe

L'ensemble des réactions chimiques, leurs taux de réactions issues du mélange N₂-O₂

<i>N°</i>	<i>Réaction</i>	<i>Taux de réaction (cm³ s⁻¹)</i>
R ₁	e+N ₂ →N ₂ ⁺ +2e	K ₁ = b
R ₂	e+O ₂ →O ₂ ⁺ +2e	K ₂ = b
R ₃	e+O→O ⁺ +2e	K ₃ =9×10 ⁻⁹ ×Te ^{0.7} ×e ^(-13.6/Te)
R ₄	e+O(¹ D)→O ⁺ +e	K ₄ =9×10 ⁻⁹ ×Te ^{0.7} ×e ^(-11.6/Te)
R ₅	e+O ⁻ →O+2e	K ₅ =5.47×10 ⁻⁸ ×Te ^{0.324} ×e ^(-2.98/Te)
R ₆	e+N ₂ →N ₂ (A) +2e	K ₆ =b
R ₇	e+O ₂ →O ₂ (¹ Δg)+e	K ₇ =b
R ₈	e+O ₂ →O(¹ D)+O+e	K ₈ =4.8×10 ⁻⁹
R ₉	e+O→O(¹ D)+e	K ₉ =4.2×10 ⁻⁹ × e ^(-2.25/Te)
R ₁₀	e+ O(¹ D)→O+e	K ₁₀ = 8X10 ⁻⁹
R ₁₁	O+N ₂ ⁺ →N(² D)+N	K ₁₁ =2×10 ⁻⁷ ×Te ^{0.5}
R ₁₂	O+NO ⁺ →N+O	K ₁₂ =4× 10 ⁻⁷ × (300/Te) ^{1.5}
R ₁₃	O+NO ⁺ →N(² D)+O	K ₁₃ =2×10 ⁻⁷ ×Te ^{0.5}
R ₁₄	O+NO ⁺ →N+O(¹ D)	K ₁₄ =2×10 ⁻⁷ ×Te ^{0.5}
R ₁₅	e+NO ₂ ⁺ →NO+O	K ₁₅ =2×10 ⁻⁷ ×Te ^{0.5}
R ₁₆	e+NO ₂ ⁺ →NO+O(¹ D)	K ₁₆ =2×10 ⁻⁷ ×Te ^{0.5}
R ₁₇	e+O ₂ ⁺ →O+O(¹ D)	K ₁₇ =2×10 ⁻⁷ ×Te ^{0.5}
R ₁₈	e+O ₂ →O ⁻ +O	K ₁₈ =5.276×10 ⁻¹¹
R ₁₉	e+O ₂ +O ₂ →O ₂ ⁻ +O ₂	K ₁₉ =1×10 ⁻³¹

R ₂₀	$e+O_2 \rightarrow O_2^-$	$K_{20}=b$
R ₂₁	$O^-+N \rightarrow NO+e$	$K_{21}=0.26 \times 10^{-9}$
R ₂₂	$O^-+NO \rightarrow NO_2+e$	$K_{22}=0.26 \times 10^{-9}$
R ₂₃	$O^-+O \rightarrow e+O_2$	$K_{23}=5 \times 10^{-10}$
R ₂₄	$O^-+O_2(^1\Delta g) \rightarrow e+O_3$	$K_{24}=3 \times 10^{-8}$
R ₂₅	$O_2^-+O \rightarrow e+O_3$	$K_{25}=1.5 \times 10^{-10}$
R ₂₆	$O^{2-}+O_2(^1\Delta g) \rightarrow e+2O_2$	$K_{26}=2 \times 10^{-10}$
R ₂₇	$O^-+N_2 \rightarrow N_2O+e$	$K_{27}=5 \times 10^{-13}$
R ₂₈	$O^-+O_2 \rightarrow e+O_3$	$K_{28}=5 \times 10^{-15}$
R ₂₉	$O^-+O_3 \rightarrow e+O_2+O_2$	$K_{29}=3 \times 10^{-10}$
R ₃₀	$e+O_3 \rightarrow e+O_2+O(^1D)$	$K_{30}=5 \times 10^{-10}$
R ₃₁	$e+O_3 \rightarrow e+O_2+O$	$K_{31}=5 \times 10^{-9}$
R ₃₂	$e+NO \rightarrow e+N+O$	$K_{32}=6.4 \times 10^{-10}$
R ₃₃	$N_2(A)+O_2 \rightarrow O+O+N_2$	$K_{33}=1.5 \times 10^{-12}$
R ₃₄	$N_2(A)+NO_2 \rightarrow NO+O+N_2$	$K_{34}=10^{-12}$
R ₃₅	$N_2(A)+N_2O \rightarrow 2N_2+O$	$K_{35}=0.8 \times 10^{-10}$
R ₃₆	$N_2(A)+O_2 \rightarrow N_2O+O(^1D)$	$K_{36}=0.3 \times 10^{-13}$
R ₃₇	$N_2(A)+O_2 \rightarrow N_2O+O$	$K_{37}=2 \times 10^{-14} \times (Tg/300)^{0.5}$
R ₃₈	$N_2(A)+O \rightarrow NO+N(^2D)$	$K_{38}=7 \times 10^{-12}$
R ₃₉	$N(^2D)+NO_2 \rightarrow NO+NO$	$K_{39}=1 \times 10^{-12}$
R ₄₀	$N(^2D)+O_2 \rightarrow NO+O$	$K_{40}=5.2 \times 10^{-12}$
R ₄₁	$N(^2D)+NO \rightarrow N_2+O$	$K_{41}=1.8 \times 10^{-10}$

R ₄₂	$O_2(^1\Delta g)+O_3\rightarrow 2O_2+O$	$K_{42}=0.75\times 10^{-10}\times e^{(-2840/Tg)}$
R ₄₃	$O_2(^1\Delta g)+N\rightarrow NO+O$	$K_{43}=2\times 10^{-14}\times e^{(-600/Tg)}$
R ₄₄	$O_2(^1\Delta g)+O_3\rightarrow 2O_2+O(^1D)$	$K_{44}=5.2\times 10^{-11}\times e^{(-2840/Tg)}$
R ₄₅	$O+O_3\rightarrow O_2+O_2(^1\Delta g)$	$K_{45}=10^{-11}\times e^{(-2300/Tg)}$
R ₄₆	$O_2(^1\Delta g)+O\rightarrow O_2+O$	$K_{46}=7\times 10^{-16}$
R ₄₇	$O_2(^1\Delta g)+O_2\rightarrow O_2+O_2$	$K_{47}=3.8\times 10^{-18}\times e^{(-205/Tg)}$
R ₄₈	$O_2(^1\Delta g)+N_2\rightarrow O_2+N_2$	$K_{48}=3\times 10^{-21}$
R ₄₉	$O_2(^1\Delta g)+NO\rightarrow O_2+NO$	$K_{49}=2.5\times 10^{-11}$
R ₅₀	$O(^1D)+O_3\rightarrow O_2+2O$	$K_{50}=1.2\times 10^{-10}$
R ₅₁	$O(^1D)+NO\rightarrow O_2+N$	$K_{51}=1.7\times 10^{-10}$
R ₅₂	$O(^1D)+NO_2\rightarrow O_2+NO$	$K_{52}=2.5\times 10^{-10}$
R ₅₃	$O(^1D)+N_2O\rightarrow 2NO$	$K_{53}=7.2\times 10^{-11}$
R ₅₄	$O(^1D)+N_2O\rightarrow NO+O_2$	$K_{54}=0.49\times 10^{-10}$
R ₅₅	$O(^1D)+O_3\rightarrow 2O_2$	$K_{55}=1.2\times 10^{-10}$
R ₅₆	$O(^1D)+N_2O\rightarrow N_2+O_2$	$K_{56}=4.4\times 10^{-11}$
R ₅₇	$O+O_3\rightarrow 2O_2$	$K_{57}=2\times 10^{-11}\times e^{(-2300/Tg)}$
R ₅₈	$O+NO_2\rightarrow NO+O_2$	$K_{58}=9.1\times 10^{-12}\times (Tg/300)^{0.18}$
R ₅₉	$O+NO_3\rightarrow NO_2+O_2$	$K_{59}=10^{-11}$
R ₆₀	$O+NO_2\rightarrow 2NO$	$K_{60}=2.3\times 10^{-12}$
R ₆₁	$O+NO_2\rightarrow N_2+O_2$	$K_{61}=0.7\times 10^{-12}$
R ₆₂	$N+O_3\rightarrow NO+O_2$	$K_{62}=5\times 10^{-16}$
R ₆₃	$NO+NO_3\rightarrow 2NO_2$	$K_{63}=1.7\times 10^{-11}$

R ₆₄	$N+O_2 \rightarrow NO+O$	$K_{64}=3.2 \times 10^{-12} \times (Tg/300) \times e^{(-3150/Tg)}$
R ₆₅	$N+NO \rightarrow N_2+O$	$K_{65}=1.8 \times 10^{-11} \times (Tg/300)^{0.5}$
R ₆₆	$NO+O_3 \rightarrow NO_2+O_2$	$K_{66}=2.5 \times 10^{-13} e^{(-765/Tg)}$
R ₆₇	$NO_2+O_3 \rightarrow NO_3+O_2$	$K_{67}=1.2 \times 10^{-13} e^{(-2450/Tg)}$
R ₆₈	$O+O_2+O_2 \rightarrow O_2+O_3$	$K_{68}=6.9 \times 10^{-34} \times (300/Tg)^2$
R ₆₉	$O+O_2+N_2 \rightarrow N_2+O_3$	$K_{69}=6.9 \times 10^{-34} \times (300/Tg)^2$
R ₇₀	$O+NO+O_2 \rightarrow NO_2+O_2$	$K_{70}=1.2 \times 10^{-31} \times 0.78 \times (300/Tg)^{1.8}$
R ₇₁	$O+NO+N_2 \rightarrow NO_2+N_2$	$K_{71}=1.2 \times 10^{-31} \times (300/Tg)^{1.8}$
R ₇₂	$O+NO+N_2 \rightarrow O_2+N_2$	$K_{72}=2.76 \times 10^{-34} \times e^{(720/Tg)}$
R ₇₃	$O+O+O_2 \rightarrow O_2+O_2$	$K_{73}=2.41 \times 10^{-31} \times Tg^{-0.63}$
R ₇₄	$N+O+N_2 \rightarrow NO+O_2$	$K_{74}=10^{-32} \times (300/Tg)^{0.5}$
R ₇₅	$N+O+O_2 \rightarrow NO+O_2$	$K_{75}=10^{-32} \times (300/Tg)^{0.5}$
R ₇₆	$O+NO_2+N_2 \rightarrow NO_3+N_2$	$K_{76}=8.9 \times 10^{-32} \times (Tg/300)^{-2}$
R ₇₇	$O+NO_2+O_2 \rightarrow NO_3+O_2$	$K_{77}=8.9 \times 10^{-32} \times (Tg/300)^{-2}$
R ₇₈	$N+NO_2 \rightarrow N_2+O+O$	$K_{78}=0.9 \times 10^{-12}$
R ₇₉	$2NO_3 \rightarrow 2NO_2+O_2$	$K_{79}=4.3 \times 10^{-12} \times e^{(-3850/Tg)}$
R ₈₀	$NO+NO_3 \rightarrow 2NO+O_2$	$K_{80}=6.2 \times 10^{-5} \times (300/Tg)^2 \times e^{(-25000/Tg)}$
R ₈₁	$N+NO_2 \rightarrow N_2O+O$	$K_{81}=3 \times 10^{-12}$
R ₈₂	$O+N_2 \rightarrow NO+N$	$K_{82}=3 \times 10^{-10} \times e^{(-38370/Tg)}$
R ₈₃	$O+O+N \rightarrow O_2+N$	$K_{83}=3.2 \times 10^{-33} \times (300/Tg)^{0.41}$
R ₈₄	$O+N \rightarrow e+NO^+$	$K_{84}=2.33 \times 10^{-18} \times Tg^{1.5} \times e^{(-31900/Tg)}$

R ₈₅	$\text{NO} + \text{N}_2 \rightarrow \text{N} + \text{O} + \text{N}_2$	$K_{85} = 8.7 \times 10^{-9} \times e^{(-75994/Tg)}$
R ₈₆	$\text{NO} + \text{O}_2 \rightarrow \text{N} + \text{O} + \text{O}_2$	$K_{86} = 8.7 \times 10^{-9} \times e^{(-75994/Tg)}$
R ₈₇	$\text{NO} + \text{O} \rightarrow \text{N} + \text{O} + \text{O}$	$K_{87} = 17.4 \times 10^{-8} \times e^{(-75994/Tg)}$
R ₈₈	$\text{NO} + \text{NO} \rightarrow \text{N} + \text{O} + \text{NO}$	$K_{88} = 17.4 \times 10^{-8} \times e^{(-75994/Tg)}$
R ₈₉	$\text{O} + \text{NO} \rightarrow \text{N} + \text{O}_2$	$K_{89} = 7.5 \times 10^{-12} \times (300/Tg)^{-0.5}$
R ₉₀	$\text{O}_2 + \text{NO}_2 \rightarrow \text{NO} + \text{O}_2$	$K_{90} = 2.8 \times 10^{-12} \times e^{(-25400/Tg)}$
R ₉₁	$\text{NO}_3 + \text{O}_2 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_3$	$K_{91} = 1.5 \times 10^{-12} \times e^{(-15020/Tg)}$
R ₉₂	$\text{O}_2^+ + \text{NO} \rightarrow \text{NO}^+ + \text{O}_2$	$K_{92} = 6.6 \times 10^{-10}$
R ₉₃	$\text{O}_2^+ + \text{NO}_2 \rightarrow \text{NO}_2^+ + \text{O}_2$	$K_{93} = 6.6 \times 10^{-10}$
R ₉₄	$\text{O}^+ + \text{N}_2 \rightarrow \text{NO}^+ + \text{N}$	$K_{94} = 1.2 \times 10^{-12}$
R ₉₅	$\text{O}^+ + \text{NO} \rightarrow \text{NO}^+ + \text{O}$	$K_{95} = 2.4 \times 10^{-11}$
R ₉₆	$\text{O}^+ + \text{NO} \rightarrow \text{O}_2^+ + \text{N}$	$K_{96} = 3 \times 10^{-10}$
R ₉₇	$\text{O}^+ + \text{NO}_2 \rightarrow \text{NO}_2^+ + \text{O}$	$K_{97} = 1.6 \times 10^{-9}$
R ₉₈	$\text{N}^+ + \text{NO} \rightarrow \text{NO}^+ + \text{N}_2$	$K_{98} = 3.3 \times 10^{-10}$
R ₉₉	$\text{N}_2 + \text{NO}_2 \rightarrow \text{NO}_2^+ + \text{N}_2$	$K_{99} = 3.3 \times 10^{-10}$
R ₁₀₀	$\text{N}_2^+ + \text{NO}_2 \rightarrow \text{NO}^+ + \text{N}_2\text{O}$	$K_{100} = 5 \times 10^{-11}$
R ₁₀₁	$\text{O}^+ + \text{O}_3 \rightarrow \text{O}_2^+ + \text{O}_2$	$K_{101} = 10^{-10}$
R ₁₀₂	$\text{N}_2^+ + \text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{NO}^+ + \text{N} + \text{N}_2$	$K_{102} = 4 \times 10^{-10}$
R ₁₀₃	$\text{O}_2^+ + \text{N}_2 \rightarrow \text{NO}^+ + \text{NO}$	$K_{103} = 10^{-17}$
R ₁₀₄	$\text{O}_2 + \text{N} \rightarrow \text{NO} + \text{O}$	$K_{104} = 1.2 \times 10^{-10}$

R ₁₀₅	$O_2 + N_2O \rightarrow NO + NO$	$K_{105} = 2.3 \times 10^{-10}$
R ₁₀₆	$O^- + O_2^- \rightarrow O_2^- + O$	$K_{106} = 10^{-10}$
R ₁₀₇	$O^- + O_2(^1\Delta g) \rightarrow O_2 + O$	$K_{107} = 10^{-10}$
R ₁₀₈	$O_2 + N_2 \rightarrow N_2 + O_2$	$K_{108} = 2 \times 10^{-6} \times (300/Tg)^{-0.5}$
R ₁₀₉	$O^- + O_2^+ \rightarrow O + O_2$	$K_{109} = 3 \times 10^{-6} \times (300/Tg)^{-0.5}$
R ₁₁₀	$O_2 + O_2 \rightarrow O_2 + O_2$	$K_{110} = 2 \times 10^{-6} \times (300/Tg)^{-0.5}$
R ₁₁₁	$NO^+ + O_2^- \rightarrow NO + O_2$	$K_{111} = 2 \times 10^{-6} \times (300/Tg)^{-0.5}$
R ₁₁₂	$NO_2 + O_2 \rightarrow NO_2 + O_2$	$K_{112} = 2 \times 10^{-6} \times (300/Tg)^{-0.5}$
R ₁₁₃	$O^- + O_2^- \rightarrow O + O_2$	$K_{113} = 2 \times 10^{-6} \times (300/Tg)^{-0.5}$
R ₁₁₄	$O^- + NO^+ \rightarrow NO + O$	$K_{114} = 3 \times 10^{-6} \times (300/Tg)^{-0.5}$
R ₁₁₅	$O^- + NO_2^+ \rightarrow NO_2 + O$	$K_{115} = 3 \times 10^{-6} \times (300/Tg)^{-0.5}$
R ₁₁₆	$O^- + N_2^+ \rightarrow O + N_2$	$K_{116} = 3 \times 10^{-6} \times (300/Tg)^{-0.5}$

Références

[1] I. A. Kossyi, A. Y. Kostinsky, A. A. Matveyev, and V. P. Silakov, Kinetic scheme of the non-equilibrium discharge in nitrogen-oxygen mixtures, *Plasma source Sci Technol*, **1**(3), 207–220 (1992).

[2] O. Eichwald, N. A. Guntoro, M. Yousfi, and M. Benhenni, Chemical kinetics with electrical and gas dynamics modelization for NO_xremoval in an air corona discharge, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **35**, 439–450 (2002).

[3] I. Orlandini and U. Riedel, Chemical kinetics of NO removal by pulsed corona discharges, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **33** (19), 2467–2474 (2000).



Mémoire de Master en Physique de l'Université Abou bekr Belkaïd – Tlemcen
Spécialité : Physique des Plasmas
Présenté par :
M^{elle} MEKHFI MAISSA



Résumé

L'objectif principal de cette étude de mémoire de Master est de comprendre l'influence des diverses réactions chimiques qui œuvrent à la création ou à la diminution du NO dans le mélange gazeux N_2-O_2 induit par une décharge corona négative sous différentes concentrations de $X\%O_2$ dans les laps de 7%-30%. La chimie fondamentale régissant l'évolution du NO est basée sur un ensemble complet de processus regroupés en 150 réactions chimiques sélectionnées impliquant 25 espèces moléculaires, excitées, atomiques et chargées. La densité a été calculée en utilisant l'équation de continuité sans les termes de diffusion et de convection, sous différentes valeurs de champs électriques réduits dans la gamme de 50-90 Td. Les résultats de nos simulations numériques montrent le rôle joué par différentes réactions chimiques sur la production et la réduction de NO, et nous avons constaté qu'à 50 et 70 Td, la création d'oxyde d'azote domine lorsque la concentration d' O_2 est égale à 7 %, tandis qu'à 90 Td. lorsque la concentration de $X\%O_2$ est égale à 15%.

Termes de l'index

Décharges Corona- mélange gazeux- chimie du plasma- coefficients de vitesse.

Abstract

The main objective of this Master study is to understand the influence of various chemical reactions that participate in NO creation or reduction in N_2-O_2 mixed gas induced by negative corona discharge under different $X\%O_2$ concentrations in the ranges 7%-30%. The fundamental chemistry governing NO evolution developed is based on a full set of processes regrouped in 150 selected chemical reactions involving 25 molecular, excited, atomic, and charged species. The density was calculated using the continuity equation without the diffusion and convective terms, beneath different values of electric reduced fields within the laps of 50–90 Td. The results of our numerical simulations show the role played by different chemical reactions on NO production and reduction, we have found that, at 50 and 70 Td, nitrogen oxide creation dominates when O_2 concentration equals 7%, while, for 90 Td, creation dominates when $X\%O_2$ concentration equals 15%.

Index Terms

Corona discharges- gaseous mixture- plasma Chemistry- rate coefficients.

ملخص

الهدف الرئيسي من هذه الدراسة العلمية لنيل شهادة الماستر, هو فهم تأثير التفاعلات الكيميائية المختلفة التي تشارك في تكوين أو تقليل أكسيد النيتروجين NO في الخليط الغازي N_2-O_2 الناتج عن تفريغ كوني سلبي تحت تركيزات مختلفة من $X\%O_2$ في نطاقات من 7%-30%, تعتمد الكيمياء الأساسية التي تحكم تطور أكسيد النيتروجين في هذه الاطروحة على مجموعه كاملة من التفاعلات مجمعة في 150 تفاعلا كيميائيا تشمل على 25 تفاعلا نوعيا مختارا يحتوي على جزيئات ذرية و مشحونة , ثم حساب الكثافة باستخدام معادلة الاستمرارية بدون شروط الانتشار و الانتقال الحراري , تحت قيم مختلفة لمجالات كهربائية مخفضة في نطاق 50 الى 90 Td , تظهر نتائج عمليات المحاكاة العددية التي اجريناها الدور الذي تلعبه التفاعلات الكيميائية المختلفة في انتاج و تقليل أكسيد النيتروجين , بالإضافة الى ملاحظة انه عند 50 Td , يسود تكوين أكسيد النيتروجين عندما يكون تركيز O_2 يساوي 7% , بينما عند 90 Td عندما يكون تركيز $X\%O_2$ يساوي 15%.

الكلمات الدالة

تفريغ سلبي – خليط غاز – كيمياء البلازما – معامل السرعة الكيميائي .