



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

**UNIVERSITE ABOU-BEKR BELKAID - TLEMCEM**

# MEMOIRE

Présenté à :

FACULTE DES SCIENCES – DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

MASTER EN PHYSIQUE

Spécialité : Physique des plasmas

...

Par :

**M<sup>elle</sup> SIFI HAYAT**

Sur le thème

---

## **Etude physico-chimique de l'évolution de l'ozone O<sub>3</sub> induit par décharge électrique dans un gaz pur d'oxygène**

---

Soutenu publiquement le 10 juin 2024 à Tlemcen devant le jury composé de :

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

# *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 Inès**, 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 "A" 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 accomplie 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 : *Mohamed* et *Mofek, Djelloul*

A mon fiancé Youcef, et toute sa famille.

A toute ma famille : *SIFI* et *ZAHZAH*.

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.

*SIFI Hayat*

# Table de Matières

<b>INTRODUCTION GENERALE .....</b>	<b>2</b>
<b>CHAPITRE I GENERALITES SUR LES GAZ PLASMAGENES .....</b>	<b>4</b>
<b>I.1 C'EST QUOI UN PLASMA .....</b>	<b>5</b>
I.1.1 INTRODUCTION.....	5
I.1.2 DEFINITION D'UN PLASMA : .....	6
<b>I.2 FONCTIONNALISATION DU PLASMA MOLECULAIRE O<sub>2</sub>.....</b>	<b>8</b>
I.2.1 GENERALITES SUR LES PLASMAS DE DIOXYGENE ET LEUR REACTIVITE.....	9
I.2.2 COMPOSITION DES PLASMAS O <sub>2</sub> .....	9
<b>I.3 FONCTIONNALISATION DU PLASMA MOLECULAIRE O<sub>3</sub>.....</b>	<b>10</b>
I.3.1 DEFINITION DE L'OZONE .....	10
I.3.2 PROPRIETES PHYSICO-CHIMIQUES DE L'OZONE .....	11
I.3.3 STRUCTURE MOLECULAIRE DE L'OZONE .....	12
I.3.4 GENERATION D'OZONE .....	12
a. Définition de la Décharge couronne.....	12
b. L'ozone : bon ou mauvais.....	15
<b>REFERENTS BIBLIOGRAPHIQUES.....</b>	<b>18</b>
<b>CHAPITRE II MODELE MATHEMATIQUE DU PLASMA.....</b>	<b>20</b>
<b>II.1 INTRODUCTION.....</b>	<b>21</b>
<b>II.2 THEORIE CINETIQUE DES PLASMAS .....</b>	<b>22</b>
II.2.1 LE MODELE PHYSIQUE OU LE MODELE FLUIDE DE LA DECHARGE ELECTRIQUE.....	22
II.2.1.1 L'équations de Boltzmann.....	23
II.2.1.2 Equation de transport de la continuité .....	24
II.2.1.3 Equations de transport de la quantité de mouvement.....	25
II.2.1.4 Equation de transport de l'énergie .....	26
II.2.1.5 Equation de Poisson : .....	26
II.2.2 LE MODELE CINETIQUE CHIMIQUE .....	27
<b>REFERENTS BIBLIOGRAPHIQUES.....</b>	<b>29</b>

<b>CHAPITRE III</b>	<b>RESULTATS &amp; INTERPRETATIONS</b>	<b>30</b>
<b>III.1</b>	<b>INTRODUCTION</b>	<b>31</b>
<b>III.2</b>	<b>LA SIMULATION DE LA DYNAMIQUE DU GAZ PUR DE O<sub>2</sub></b>	<b>32</b>
III.2.1	LES CONDITIONS DE SIMULATION	32
III.2.2	ETUDE DE LA VARIATION TEMPORELLE DE LA DENSITE DES ESPECES CONSIDEREES	33
III.2.3	ETUDE DE LA VARIATION TEMPORELLE DES ESPECES CONSIDEREES EN FONCTION DE E/N	38
a.	Pour un champ réduit E/N= 100 Td	38
b.	Pour un champ réduit E/N= 160 Td	39
c.	Pour un champ réduit E/N= 200 Td	40
	<b>REFERENTS BIBLIOGRAPHIQUES</b>	<b>42</b>
	<b>CONCLUSION GENERALE &amp; PERSPECTIVES</b>	<b>43</b>
	<b>ANNEXE</b>	<b>46</b>
	<b>REFERENTS BIBLIOGRAPHIQUES</b>	<b>48</b>
	<b>RÉSUMÉ</b>	<b>51</b>

## Liste Des Tableaux

<b><i>TABLEAU I-1 : PROPRIETE PHYSICO-CHIMIQUE DU GAZ OXYGENE .....</i></b>	<b><i>9</i></b>
<b><i>TABLEAU I-2 : PROCESSUS IMPLIQUANT LA CONSOMMATION ET EL CREATION DE O<sub>2</sub>.....</i></b>	<b><i>10</i></b>
<b><i>TABLEAU I-3 : PRINCIPALES CONSTANTES PHYSIQUES DE L'OZONE.....</i></b>	<b><i>11</i></b>
<b><i>TABLEAU I-4 : LES PRINCIPALES AVENAGES ET DES INCONVENIENTS DE L'OZONE.....</i></b>	<b><i>16</i></b>
<b><i>TABLEAU II.1 : LES PARAMETRES DE L'EQUATION DE BOLTZMANN .....</i></b>	<b><i>23</i></b>
<b><i>TABLEAU II.2 : LES PARAMETRES DE L'EQUATION DE TRANSPORT DE LA CONTINUITE.....</i></b>	<b><i>25</i></b>
<b><i>TABLEAU II.3 : LES PARAMETRES DE L'EQUATION TRANSPORT DE LA QUANTITE DE MOUVEMENT</i></b>	<b><i>26</i></b>
<b><i>TABLEAU III.1 : LES CARACTERISTIQUES PHYSICO-CHIMIQUE DE LA SIMULATION.....</i></b>	<b><i>32</i></b>

## Liste Des Figures

<b>FIGURE I-1 : LES PRINCIPAUX CHANGEMENTS D'ETAT DE LA MATIERE [9].....</b>	<b>5</b>
<b>FIGURE I-2 : LES PLASMAS NATURELS : (A) LE SOLEIL, (B) LES ETOILES ET LES COMETES (C) LES AURORES BOREALES, (D) LA Foudre .....</b>	<b>6</b>
<b>FIGURE I-3 : LES APPLICATIONS INDUSTRIELLES IMPLIQUANT LE PLASMA (A) LES BOULES (B) LES ECRANS PLASMAS. (C) LES SOUDEURS A ARC, (D) LAMPE A PLASMA .....</b>	<b>6</b>
<b>FIGURE I-4 : PRINCIPE DE CREATION D'UN PLASMA A PARTIR DE GAZ NEUTRE [7]......</b>	<b>7</b>
<b>FIGURE I-5 : STRUCTURE MOLECULAIRE DE L'OZONE .....</b>	<b>12</b>
<b>FIGURE. I.6 : QUELQUES EXEMPLES DE CONFIGURATIONS DE DECHARGE COURONNE [17].....</b>	<b>13</b>
<b>FIGURE I-7 : CONFIGURATION D'UNE CELLULE DE DECHARGE ELECTRIQUE .....</b>	<b>14</b>
<b>FIGURE I. 8: ETAPES DE FORMATION DE L'OZONE PAR DECHARGE ELECTRIQUE .....</b>	<b>15</b>
<b>FIGURE II.1 : INTERACTION ENTRE LES PARAMETRES OPERATOIRES DES EQUATIONS PHYSICO-CHIMIQUE DU PLASMA.....</b>	<b>22</b>
<b>FIGURE III.1 : SCHEMA DE SIMULATION BASE SUR LE COUPLAGE DE DES PROPRIETES PHYSICO-CHIMIQUE DU PLASMA ET DE LA DECHARGE. ....</b>	<b>31</b>
<b>FIGURE III.2 : LA CONFIGURATION FIL- CYLINDRE DE LA DECHARGE COURONNE .....</b>	<b>32</b>
<b>FIGURE III.3 : VARIATION TEMPORELLE DE LA DENSITE DE L'ESPECE <math>O_2</math> APRES LE PASSAGE D'UNE DECHARGE COURONNE DANS LE GAZ PUR <math>O_2</math>, POUR PLUSIEURS VALEURS DU CHAMP REDUIT E/N. ....</b>	<b>33</b>
<b>FIGURE III.4 : VARIATION TEMPORELLE DE LA DENSITE DE L'ESPECE <math>O</math> APRES LE PASSAGE D'UNE DECHARGE COURONNE DANS LE GAZ PUR <math>O_2</math>, POUR PLUSIEURS VALEURS DU CHAMP REDUIT E/N. ....</b>	<b>34</b>
<b>FIGURE III.5 : VARIATION TEMPORELLE DE LA DENSITE DE L'ESPECE <math>O_3</math> APRES LE PASSAGE D'UNE DECHARGE COURONNE DANS LE GAZ PUR <math>O_2</math>, POUR PLUSIEURS VALEURS DU CHAMP REDUIT E/N. ....</b>	<b>35</b>
<b>FIGURE III.6 : VARIATION TEMPORELLE DE LA DENSITE DE L'ESPECE <math>O_2^-</math> APRES LE PASSAGE D'UNE DECHARGE COURONNE DANS LE GAZ PUR <math>O_2</math>, POUR PLUSIEURS VALEURS DU CHAMP REDUIT E/N. ....</b>	<b>36</b>

**FIGURE III.7 : VARIATION TEMPORELLE DE LA DENSITE DE L'ESPECE  $O^-$  APRES LE PASSAGE D'UNE DECHARGE COURONNE DANS LE GAZ PUR  $O_2$ , POUR PLUSIEURS VALEURS DU CHAMP REDUIT  $E/N$ .**  
..... 37

**FIGURE III.9 : VARIATION TEMPORELLE DE LA DENSITE DES ESPECES  $O_2$ ,  $O$ ,  $O_3$ ,  $O^-$ ,  $O_2^-$ , ET  $O_3^-$  POUR UNE VALEUR DU CHAMP REDUIT  $E/N=100$  TD.....** 39

**FIGURE III.10 : VARIATION TEMPORELLE DE LA DENSITE DES ESPECES  $O_2$ ,  $O$ ,  $O_3$ ,  $O^-$ ,  $O_2^-$ , ET  $O_3^-$  POUR UNE VALEUR DU CHAMP REDUIT  $E/N=160$  TD.....** 40

**FIGURE III.11 : VARIATION TEMPORELLE DE LA DENSITE DES ESPECES  $O_2$ ,  $O$ ,  $O_3$ ,  $O^-$ ,  $O_2^-$ , ET  $O_3^-$  POUR UNE VALEUR DU CHAMP REDUIT  $E/N=200$  TD.....** 41

# INTRODUCTION GÉNÉRALE

## Introduction Générale

Les dispositions socio-économiques et environnementales sont de plus en plus exigeantes pour rendre les pratiques de l'industrie plus efficaces, plus écologiques, moins dangereuses et moins chères. Cette conjoncture s'applique de manière générale aux plasmas et tout particulièrement aux industries chimiques

C'est dans cet esprit de travail, La réalisation de cette recherche pour Master a eu lieu au laboratoire de physique théorique LPT de l'université de Tlemcen et qui a pour but de suivre l'évolution des principales espèces chimiques créés par décharge couronne dans un réacteur fil-cylindre activé par un plasma gaz pur d'oxygène en s'intéresse tous particulièrement a la synthèse de l'ozone.

Le plasma est un état de la matière très réactif, se compose d'électrons, d'ions, de radicaux, de neutres et de particules excités. Cette forte réactivité peut être utilisée, pour produire des réactions chimiques, à pression atmosphérique et à température ambiante à l'aide d'un champ électrique, pour une grande variété de gaz, on peut dire que le plasma est une source d'énergie d'activation adéquate pour la synthèse chimique.

La décharge couronne appliqué au gaz par l'emploi d'un champ électrique assez important dans une géométrie d'électrodes bien définis qui libère des électrons par ionisation initiale, ils sont ensuite accélérés dans le champ électrique imposé. Les Collisions inélastiques des électrons et des molécules de gaz neutres produisent plus d'électrons secondaires pour soutenir la décharge, propose potentiellement un grand nombre de réactions et une réactivité forte mais contrôlée, activé par le plasma cette technique pourraient ainsi s'imposer comme une technologie précieuse pour la synthèse des espèces en industrie ou dans la recherche. La chimie des plasmas, encore peu expérimentée, pourrait nous faire découvrir de nouvelles voies de synthèses insoupçonnées.

Cette thèse a établie comme objectif d'explorer en fonction des propriétés physico-chimique d'un gaz pur  $O_2$ , la réactivité des espèces  $e^-$ ,  $O_2$ ,  $O_2^-$ ,  $O$ ,  $O^-$ ,  $O_3$ , et  $O_3^-$  réagissant entre elles suivant 38 réactions chimiques préalablement sélectionnées sous différents valeurs du champ électrique réduit variant entre 100 Td et 200 Td.

Les réactions prises en compte sont données en annexe.

Le contenu des différents chapitres de ce manuscrit sont présenté comme suit :

Un premier chapitre introductif permettra de définir le plasma en générale et surtout la nature du gaz plasmagène que nous utilisons en rappelant ces propriétés physique et chimique ce qui permettra d'identifier les principales espèces engendrées.

Le second chapitre sera dédié à l'étude du modèle mathématique sur le quel se base notre simulation numérique. Ce dernier repose sur l'équation de Boltzmann et de ces moments couplé avec les équations de la cinétique chimique.

Plus exploratoire, le dernier chapitre propose l'étude des réactions d'oxydations et expose des résultants pour suivre l'évolution de la densité des espèces présentes pour plusieurs valeurs du champ réduit  $E/N$ .

On s'intéresse tout particulièrement à l'évolution des espèces  $O_2$ ,  $O$  et  $O_3$ , et leurs ions négatifs qui ont un impacte important dans le bilans des réactions chimique dans à la création ou à la réduction d'autre particules.

Au final, une Conclusion Générale est donnée pour appuyer la validation des résultats obtenues et propose des perspectives futures mais importante pour développer et englober ce domaine d'étude très vaste.

# **CHAPITRE I**

## **GÉNÉRALITÉS SUR LES GAZ PLASMAGÈNES**

## I.1 C'est quoi un Plasma

### I.1.1 Introduction

Les premières études des plasmas remontent à l'étude des orages et des arcs électriques, qui débuté au e XIXème, néanmoins l'appellation « plasma » n'est défini qu'en 1928 par Irving Langmuir, qui compara le transport, dans le plasma sanguin, au mouvement des particules (ions, électrons, molécules) du plasma physique. [1]

Notre environnement est constitué de matière qui se présente sous forme solide, liquide ou gazeuse, mais en transitant vers des hautes températures un nouveau type d'état s'installe qui se distinguent par l'apparition d'une grande diversité de phénomènes physiques nouveaux [2-3]

On sur nomme un plasma ou un gaz ionisé cet état qui représente plus de 99% de la matière de l'univers.

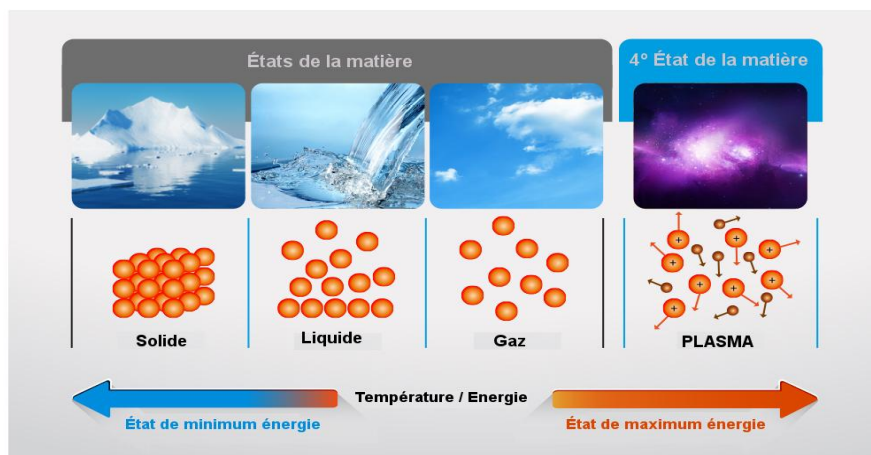
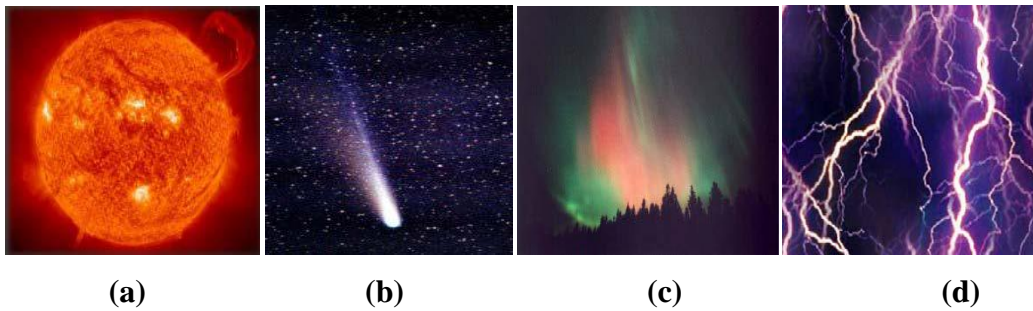


Figure I-1 : Les Principaux Changements d'Etat de la Matière [3]

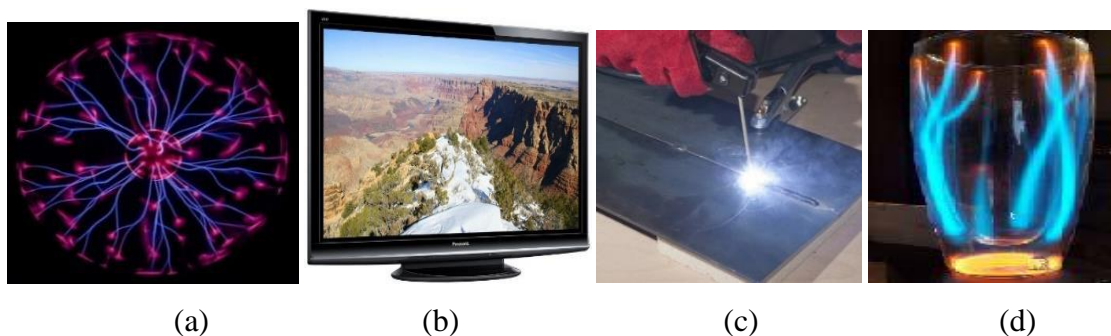
Cet état de la matière est également omniprésent. A l'état naturel, dans plasmas spatiaux qui sont caractérisé par une ionisation totale ou dans les plasmas Terrestres distincts par une ionisation partielle, on les trouve dans le plasma astrophysique, les étoiles, les nébuleuses gazeuses, les aurores boréales, la foudre etc.



**Figure I-2 : Les plasmas naturels : (a) le soleil, (b) les étoiles et les comètes  
(c) les aurores boréales, (d) la foudre**

Tandis qu'au quotidien, les technologies plasmas sont employées par tous : écrans plasmas, Les plasmas d'arcs dans le Soudage et le découpage, Plasmas de traitement pour dépôt, gravure, modification de surface, Lampe à plasma, qui utilise la luminosité du plasma.. [4].

Autant de phénomènes et d'outils parfaitement connus par tous, et pourtant rarement associés aux plasmas.

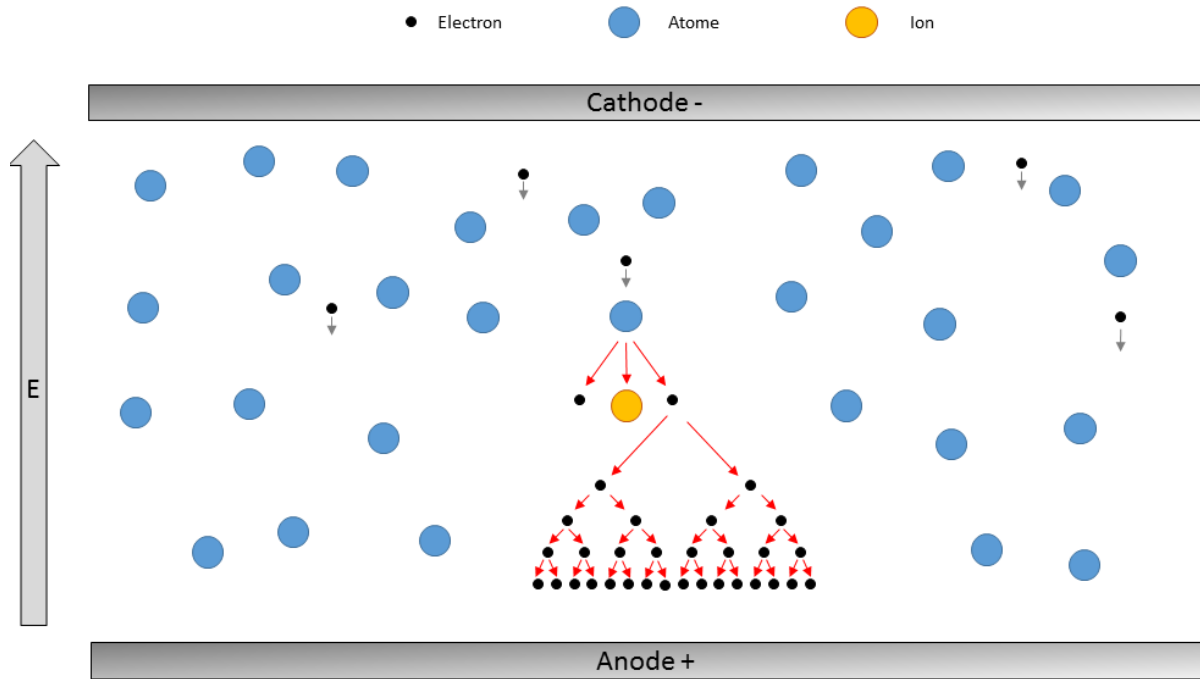


**Figure I-3 : Les applications industrielles impliquant le plasma (a) les boules (b) les écrans plasmas. (c) les soudeurs à arc, (d) Lampe à plasma [5]**

### **I.1.2 Définition D'un Plasma :**

Un plasma est obtenu à partir d'un gaz en lui apportant suffisamment d'énergie pour qu'une partie des particules neutres constituant ce gaz se transforment en espèces chargées Positivement ou négativement. Le plasma est un gaz ionisé, il est donc constitué en général d'électrons, d'ions, de particules neutres (atomes, molécules, radicaux libres) et de photons. Il existe aussi dans un plasma des atomes ou molécules dits « excités » (les électrons ne sont pas

arrachés, mais portés dans des états d'énergie potentielle élevée en restant liés au noyau) qui peuvent se désexciter en émettant de la lumière [1-2].



*Figure I-4 : Principe de création d'un plasma à partir de gaz neutre [6].*

En d'autres termes La physique des plasmas est une étude fluide de particules chargées interagissant avec des champs électriques et magnétiques auto-cohérents. Il s'agit d'une discipline de recherche fondamentale qui a de nombreux domaines d'application différents pour s'adapter aux problèmes complexe par nature de l'étude d'un ensemble disparate de particules chargées et non chargées soumises à divers champs électrique et magnétique de force.

La branche chimie y tient également une part importante de la physique des plasmas dans les collisions et les réactions chimiques [7].

La recherche fondamentale en physique des plasmas se concentre sur la recherche de processus fondamentaux qui se produisent dans le plasma, l'étude des phénomènes de transport des particules chargées comme les ions et électrons, ainsi que les particules neutres, les atomes et les molécules. [8].

Sous l'effet d'un champ électrique généré entre deux électrodes, on parvient à produire des électrons qui sont des vecteurs de plusieurs réactions de formation des espèces au sein d'une décharge plasma. Les différents types de réactions qui se produisent au sein du plasma peuvent donc se regrouper en termes de réactions d'excitation, d'ionisation, de dissociation, de recombinaison et d'autres. Ces réactions se regroupent en deux grands processus : le processus primaire étroitement lié à la physique de la décharge et le processus secondaire [9].

Le processus primaire regroupe des réactions d'ionisations et d'excitation initiées par les électrons produits en appliquant une différence de potentiel appropriée, suivie des réactions de transfert de charge. Les principales espèces résultantes sont les électrons, des radicaux atomiques, et des espèces ioniques ayant des charges positives et négatives.

Le second processus qui est la partie chimique du plasma produit les importantes réactions de formation des espèces actives et oxydantes. Ces espèces peuvent se former par recombinaison des espèces et par des réactions radicalaires.

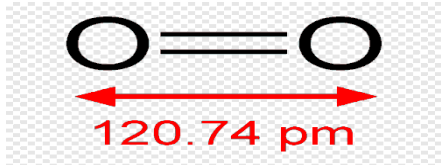
## **I.2 Fonctionnalisation du plasma moléculaire O<sub>2</sub>**

Les plasmas froids ont déjà pu être exploités à des fins de synthèses chimiques. Dans cette section Nous nous intéresserons aux réactivités proposées par le plasma de dioxygène O<sub>2</sub>, dans le but de réaliser des réactions d'oxydation.

Dans un plasma O<sub>2</sub> purs, de nombreux processus chimiques peuvent intervenir, pour générer de nombreux états réactifs et excités : radical oxygène O, ozone O<sub>3</sub>... Dans un premier temps, nous décrirons ainsi la composition riche de ces plasmas, et les nombreuses réactivités qu'ils peuvent proposer à travers ces nombreuses espèces chimiques réactives.

### I.2.1 Généralités sur les plasmas de dioxygène et leur réactivité

Les plasmas  $O_2$  ont déjà fait l'objet de nombreuses études par le passé. Les nombreuses applications potentielles et la forte disponibilité de ce gaz, composant à 20 % l'air qui nous entoure, les rendent en effet particulièrement attractifs d'un point de vue industriel.

Caractéristique physique du gaz oxygène		Caractéristique chimique du gaz oxygène
Masse atomique	31.9988g/mol	
Diamètre moléculaire	0.292 nm	
Température de fusion	-219°C	
Température d'ébullition	-183°C	
Pression de vapeur (à -118°C)	5.080 k Pa <sup>-1</sup>	

**Tableau I-1 : propriété physico-chimique du gaz oxygène [10]**

Les caractéristiques de ce plasma lui donnent des applications industrielles dans la stérilisation d'appareils médicaux [5]. La purification d'effluents liquide [6], gazeux [7], ou des sols [8]. Constitue une autre application prometteuse, tant à l'échelle domestique qu'industrielle. Enfin, de nombreux travaux de recherches récents visent à utiliser les propriétés oxydatives générées par les plasmas  $O_2$  dans les cellules du vivant à des fins thérapeutiques, notamment en oncologie [9].

En synthèse organique, le plasma de dioxygène est notamment utilisé pour la génération de l'ozone  $O_3$ , une molécule fortement réactive et donc impossible à stocker. Cet intérêt, mais également le rôle majeur de l'ozone dans la réactivité des plasmas d'oxygène, a suscité un nombre important d'étude sur la production de cette molécule [10].

### I.2.2 Composition des plasmas $O_2$

Afin de déterminer fidèlement la composition réelle d'un plasma  $O_2$ , de très nombreuses réactions sont nécessaires. Pour décrire un plasma d'oxygène pur, les simulations les plus complètes comprennent jusqu'à 175 réactions, réparties en 16 catégories.

Ces modèles, nous présente les principales réactions encadrant les interactions entre particules dans un plasma  $O_2$  pur.

Réaction	Type de réaction
$O_2 + e \rightarrow O_2 + e$	Collision élastique
$O_2 + e \rightarrow O^- + O(^3P)$	Attachement électronique dissociatif
$O_2 + e \rightarrow O(^3P) + O(^1D) + e$	Dissociation
$O_2 + e \rightarrow O_2^+ + 2e$	Ionisation directe
$O_2 + O(^3P) \rightarrow O_3$	/
$O_3 + e \rightarrow O_2 + O(^3P) + e$	Dissociation
$O_3 + e \rightarrow O_2 + O(^1D) + e$	Dissociation
$O_3 + e \rightarrow O_2 + O^-$	Attachement électronique dissociatif

**Tableau I-2 : Processus impliquant la consommation et la création de  $O_2$  [10]**

Le plasma  $O_2$  est donc un mélange complexe de plusieurs espèces extrêmement réactives avec différentes molécules organiques, des principaux agents réactifs, on s'intéresse tout particulièrement à l'ozone  $O_3$ .

### I.3 Fonctionnalisation du plasma moléculaire $O_3$

Il y a un certain temps que l'ozone est sujet de recherches, et en 1840, Christian Friedrich Schönbein [11] découvrit officiellement ce gaz à l'odeur spécifique, le nommant Ozone du mot grec « ozein ». Ce gaz émet une odeur âcre lors de sa formation dans les décharges électriques. En 1865, par une détermination indirecte de la densité, on démontra la composition chimique de l'ozone aboutissant à la formule  $O_3$ .

En 1879, la découverte fut, que seule une petite partie des UV-B du soleil atteignait la surface terrestre. L'année suivante, les scientifiques démontrèrent que l'ozone absorbait fortement ces rayons et pouvait être responsable de la filtration de ces UV-B.

#### I.3.1 Définition de l'ozone

L'ozone, gaz composé de trois atomes d'oxygène et également appelé trioxygène, possède un pouvoir oxydant élevé. Il se décompose rapidement en dioxygène ( $O_2$ ) dans l'air ambiant, que ce soit sous forme gazeuse, liquide, ou dilué dans l'eau, représentée chimiquement  $O_3$ . Présent en petites proportions dans l'atmosphère, il est plus lourd que l'air. L'ozone se forme par des réactions en chaîne avec rayonnement solaire ultra-violet,

provenant du soleil au détriment de l'oxygène existant dans l'atmosphère [11]. Ce gaz forme une couche autour de 20 km d'altitude connue sous le nom de couche d'ozone.

Cette couche agit comme filtre invisible, protégeant toutes les formes de vie contre une surexposition aux rayons UV nocifs du soleil. La mesure de l'ozone peut se faire en ppm ou en ppb.

A noter que l'ozone est un gaz instable avec une demi-vie d'environ 15 minutes.

### I.3.2 Propriétés physico-chimiques de l'ozone

La chimie de l'ozone contribue à sa polyvalence. Ce gaz, qui adopte une apparence incolore ou bleu pâle, se distingue par son fort pouvoir oxydant, sa grande réactivité, sa pénétrabilité et sa décomposition naturelle en font un désinfectant idéal assurant la sécurité microbiologique sans laisser de résidus chimiques.

L'importance de la molécule d'ozone réside dans ses fortes propriétés oxydantes [12]. Elle est utilisée pour purifier l'air, purifier l'eau, traiter les gaz..., etc. [13]. Cela signifie que l'efficacité de la production d'ozone est un paramètre très important.

Les constantes physiques incluant ses propriétés sont résumés dans le tableau suivant :

Symbole	O <sub>3</sub>
Masse molaire	47.9982 g/mol
Point de fusion	-197.2 °C
Point d'ébullition	-111.9 °C
Point critique	-12.1 °C à 5460 kPa
Poids spécifique du liquide	1.574 kg/L à -183 °C
Pression Critique	1.660 à 25 °C
Densité relative à air	2.144 à 20 °C
Enthalpie standard de formation	+142,3 kJ/mol
Energie de dissociation	-144,8 kJ/mol

**Tableau I-3 : Principales constantes physiques de l'ozone [12]**

### I.3.3 Structure moléculaire de l'ozone

Dans sa structure, l'ozone  $O_3$  est un allotrope de l'oxygène tout comme le diamant et le graphite sont des allotropes du carbone. Elle est formée par l'association de trois atomes d'oxygène et se présente sous la forme d'un triangle isocèle d'angle au sommet de  $116^{\circ}45'$  et deux liaisons interatomiques de  $1,278 \cdot 10^{-10} m$ ; cette géométrie angulaire distinctive contribue aux propriétés physiques et chimiques uniques de la molécule d'ozone.

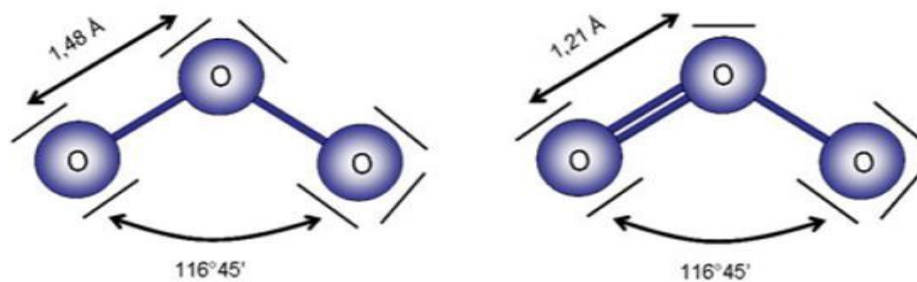


Figure I-5 : Structure moléculaire de l'ozone [13]

### I.3.4 Génération d'ozone

La génération d'ozone à l'échelle industrielle privilégie souvent le procédé de décharge couronne en raison de ses avantages.

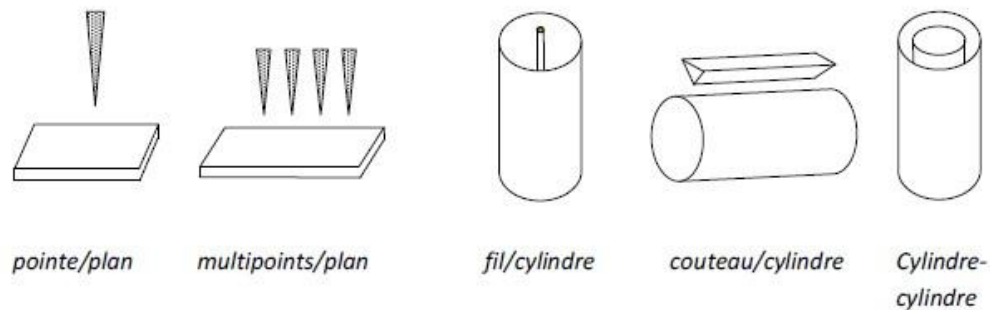
#### a. Définition de la Décharge couronne

La décharge couronne, appartenant à la catégorie des plasmas froids non thermiques [14]. 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 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 [15].

Dans une polarité positive, une haute tension positive est appliquée sur la cathode, avec l'anode reliée à la masse, ce qui génère des électrons libres dans l'espace inter-électrode. La décharge couronne positive est maintenue par des électrons secondaires produits par la photo ionisation du gaz dans la région du plasma.

En revanche, le mécanisme de génération d'électrons et d'ions dans la décharge couronne négative se situe à l'extérieure de la région d'ionisation. Les électrons secondaires sont produits par la photoémission à partir de la surface de la cathode.

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



**Figure. 1.6 : Quelques exemples de configurations de décharge couronne [15].**

La décharge couronne trouve diverses applications industrielles, dont certaines sont très répandues actuellement :

- La décharge couronne est utilisée dans la synthèse de l'ozone à partir de l'oxygène. ce procédé présente des avantages, car l'ozone généré est un puissant oxydant, utile dans diverses applications, telles que le traitement de l'eau et la désinfection.
- La décharge couronne est exploitée dans des procédés visant à réduire, traiter ou détruire les polluants gazeux. En utilisant la réactivité chimique des radicaux et des espèces générées dans le plasma, on convertit les molécules polluantes en substances inoffensives. Ces réactions ont lieu à pression ambiante, sans perte thermique importante, et les résidus obtenus peuvent parfois être valorisés, ce qui en fait une méthode écologiquement avantageuse.

Effectivement, l'ozone se forme naturellement dans la nature, souvent généré par des éclairs pendant les orages. Ce processus naturel implique, libérant une quantité significative de chaleur.

Les générateurs d'ozone basés sur la décharge électrique opèrent sur le principe de dissociation des molécules d'oxygène en atomes, qui se recombinaient avec d'autres molécules d'oxygène pour former l'ozone. La chaleur générée pendant ce processus est évacuée du générateur pour prévenir la décomposition de l'ozone [16-17-18].

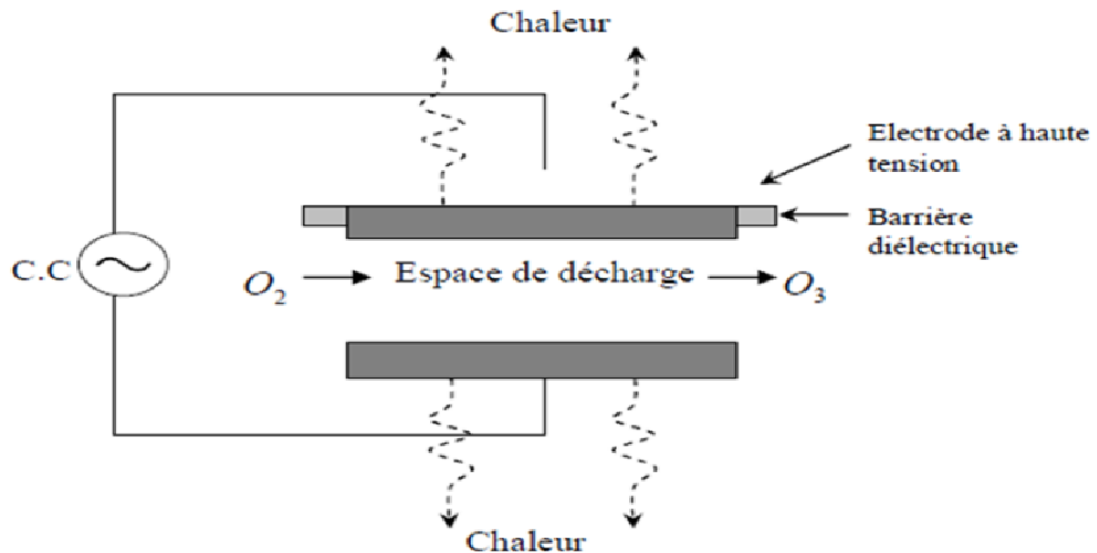


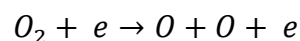
Figure I-7 : Configuration d'une cellule de décharge électrique [15]

La production d'ozone par décharge électrique est influencée par divers paramètres tels que la pression du gaz, la largeur de l'espace, le type d'électrodes, l'énergie d'alimentation et l'humidité. La majorité de l'énergie électrique utilisée est dissipée sous forme de chaleur, avec une faible portion sous forme de lumière. Les générateurs peuvent produire de l'ozone à des concentrations spécifiques, nécessitant un gaz d'alimentation sec et exempt de contaminants pour éviter l'oxydation.

Don on peut dire que la formation de l'ozone par décharge électrique [13] passe par deux étapes :

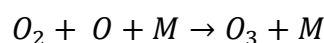
#### 1ère étape :

- Les ions et électrons générés lors de la décharge corona entraînent la dissociation des molécules d'oxygène ( $O_2$ ) en atomes d'oxygène (O).



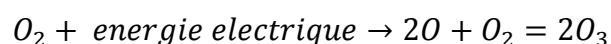
#### 2ème étape :

- Les atomes d'oxygène libres (O) réagissent avec d'autres molécules d'oxygène ( $O_2$ ) pour former l'ozone ( $O_3$ ).



( $M = O_3$  ou  $M = N_2$  ou  $M = O_2$  ...etc.)

Le processus global peut être représenté chimiquement comme suit :



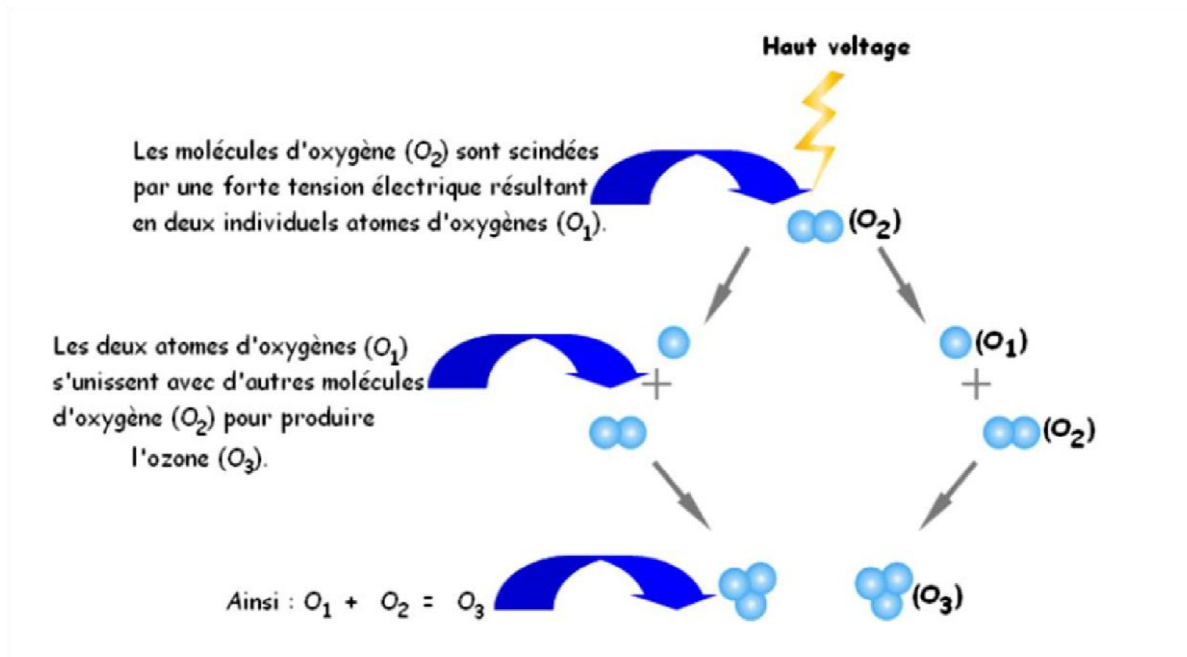


Figure I. 8 : Etapes de formation de l'ozone par décharge électrique [13]

La génération d'ozone par décharge corona est actuellement plus courante et présente plusieurs avantages [19].

#### b. L'ozone : bon ou mauvais

##### ➤ *Le bon ozone*

L'ozone est bon car il va former une couche protectrice située dans la stratosphère (c'est-à-dire entre 10 et 50 km d'altitude), celui que l'on appelle donc ozone stratosphérique.

Bon ozone sert ici, à absorber le rayonnement ultraviolet qui nous arrive du soleil. Un rayonnement particulièrement dangereux pour les êtres vivants, à l'origine de la plupart des cancers de la peau.

Outre cette efficacité redoutable, nous savons également que l'ozone est sain à utiliser. Mais son odeur, est relativement déplaisante. C'est cette odeur déplaisante qui permet de concevoir des moyens de productions sûrs [18].

##### ➤ *Le mauvais ozone*

L'ozone est un polluant « secondaire », se trouve dans la couche basse de l'atmosphère et provient de l'activité humaine, il se révèle être un gaz irritant pour les voies respiratoires.

Effectivement, dans la basse atmosphère, l’ozone se forme par la réaction chimique des polluants émis par diverses sources industrielles en présence de lumière solaire. A ce niveau, l’ozone devient un polluant atmosphérique nocif, émis notamment par des véhicules, centrales électriques, chaudières industrielles, raffineries et usines chimiques, contribuant aux problèmes de qualité de l’air.

Des études postérieures montrent que la formation d’ozone est également liée à la présence de composés organiques volatils (COV), dont 10% sont issus des activités industrielles et urbaines et 90% sont d’origines naturelles [19].

<b>Les avantages de L’ozone</b>	<b>Les inconvénients de L’ozone</b>
<ul style="list-style-type: none"> <li>-L’ozone est un désinfectant puissant pour traiter l’eau.</li> <li>-L’ozone est moins irritant pour la peau</li> <li>-L’ozone n’est pas combustible</li> <li>-L’ozone est un puissant oxydant.</li> <li>-L’ozone se décompose naturellement en oxygène</li> <li>-L’utilisation de l’ozone peut effectivement réduire la dépendance à l’égard de certains produits chimiques oxydants.</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>-L’ozonisation peut entraîner des coûts d’investissement très élevés pour produire de l’ozone.</li> <li>-La production d’ozone est associée à une consommation énergétique plus élevée, impliquant des processus de décharge électrique.</li> <li>-L’ozone pose des défis particuliers dans certaines industries, en raison de l’absence de membranes résistantes de l’ozone.</li> <li>-Le processus de production de l’ozone, sa dissolution dans l’eau, et son extraction du gaz résiduel présente une complexité importante.</li> </ul>

**Tableau I-4 : Les principales avantages et des inconvénients de l’ozone [20]**

**c. Les applications industrielles d’ozone**

- L’utilisation de l’ozone dans le traitement de l’eau potable est en effet répandue en raison de ses propriétés de désinfection et oxydation [20, 21].
- La désinfection à l’ozone repose sur la capacité de cette molécule à détruire les micros– organismes, virus et bactéries. On le trouve dans :
  - Stérilisation d’hôpitaux
  - Stérilisation médicale
  - Blanchissement
  - Désinfection des abattoirs
  - Entrepôts de fruits et légumes
  - Lavage de fruits et légumes et le lavage d’œufs.

## Référents bibliographiques

- [1] C. F. Shobein, *Hebd. Scanees Acad. Sci.*, vol. 10, p.706-710, 1840.
- [2] Kurt H. Backer, « The use of non-thermal plasmas in environmental applications », SpringerVerlag Berlin Herdelberg, 2010
- [3] J. Hoigné, in S. STUCKI (Ed.), « The chemistry of ozone in water, process technologies for water treatment », Plenum Press, New York, 1988.
- [4] B. Held. "Physique des plasma froids", ED : Masson (1994).
- [5] Aronsson, B.-O. et al. Glow Discharge Plasma Treatment for Surface Cleaning and Modification of Metallic Biomaterials. 25.
- [6] Lesage, O.; Falk, L.; Tatoulian, M.; Mantovani, D.; Ognier, S. Treatment of 4-Chlorobenzoic Acid by Plasma-Based Advanced Oxidation Processes. *Chem. Eng. Process. Process Intensif.* 2013, 72, 82–89.
- [7] Aerts, R.; Tu, X.; Van Gaens, W.; Whitehead, J. C.; Bogaerts, A. Gas Purification by Nonthermal Plasma: A Case Study of Ethylene. *Environ. Sci. Technol.* 2013, 47 (12), 6478–6485. <https://doi.org/10.1021/es400405c>. | 402.
- [8] Lerouge, S.; Wertheimer, M. R.; Yahia, L. Plasma Sterilization: A Review of Parameters, Mechanisms, and Limitations. *Plasmas Polym.* 2001, 14.
- [9] Ja Kim, S.; Min Joh, H.; Chung, T. H. Production of Intracellular Reactive Oxygen Species and Change of Cell Viability Induced by Atmospheric Pressure Plasma in Normal and Cancer Cells. *Appl. Phys. Lett.* 2013, 103 (15), 153705. <https://doi.org/10.1063/1.4824986>.
- [10] Jodzis, S. Application of Technical Kinetics for Macroscopic Analysis of Ozone Synthesis Process. *Ind. Eng. Chem. Res.* 2011, 50 (10), 6053–6060. <https://doi.org/10.1021/ie102603z>.
- [11] S. Chapman, « A theory of upper-atmospheric ozone », *Memoirs of the royal meteorological society*, Edward Stanford, 1930.
- [12] C. Gtiérrez-Tapia, E. camps, *o.olea-cardoso, IEEETrans.Pplasma Sci.* 22(5) (1994) 979.
- [14] L. B. Loeb, *Fundamental processes of electrical discharge in gases*, Ed: John Wiley and sons, Inc, New York (1947).
- [15] Rompps Chemie-Lexicon et Nummular, « Stabilization and storage of ozone », *Ozone Academic Press, London*, Ed.1985, chapter 4, p. 232-238,1974.
- [16] N. Tabet Aoul, Etude de l'influence du monoxyde d'azote dans un mélange gazeux N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>, Mémoire de Master, Université Abou Bekr Belkaid Tlemcen (2018).

- [17] A.E.H. Bouhadba, Etude de la production de l'ozone et du traitement des molécules Nox dans le mélange N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> par décharge électrique pulsée, Diplôme de Magister, Université d'Oran des Sciences et de la Technologie (USTO-MB) (2015).
- [18] G.S. Peter-Castle, Ion I. Inculet, et K. Irwin Burgess, « Ozone generation in positive corona electrostatic precipitators », IEEE Transactions on industry and general applications, Vol. IG. 5, n°4, 1969.
- [19] conservation de Kyoto, Protocole de Kyoto sur les changements climatiques, Nations Unis (1998).
- [20] 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).
- [21] B. Langlais, D.A.Reckhow, et D.R. Brink, « Ozone in drinking water treatment: application and engineering », Awwarf and Lewis Publishers, Boca Raton, FL, 1991

**CHAPITRE II**

**MODÈLE MATHÉMATIQUE DU**

**PLASMA**

## II.1 Introduction

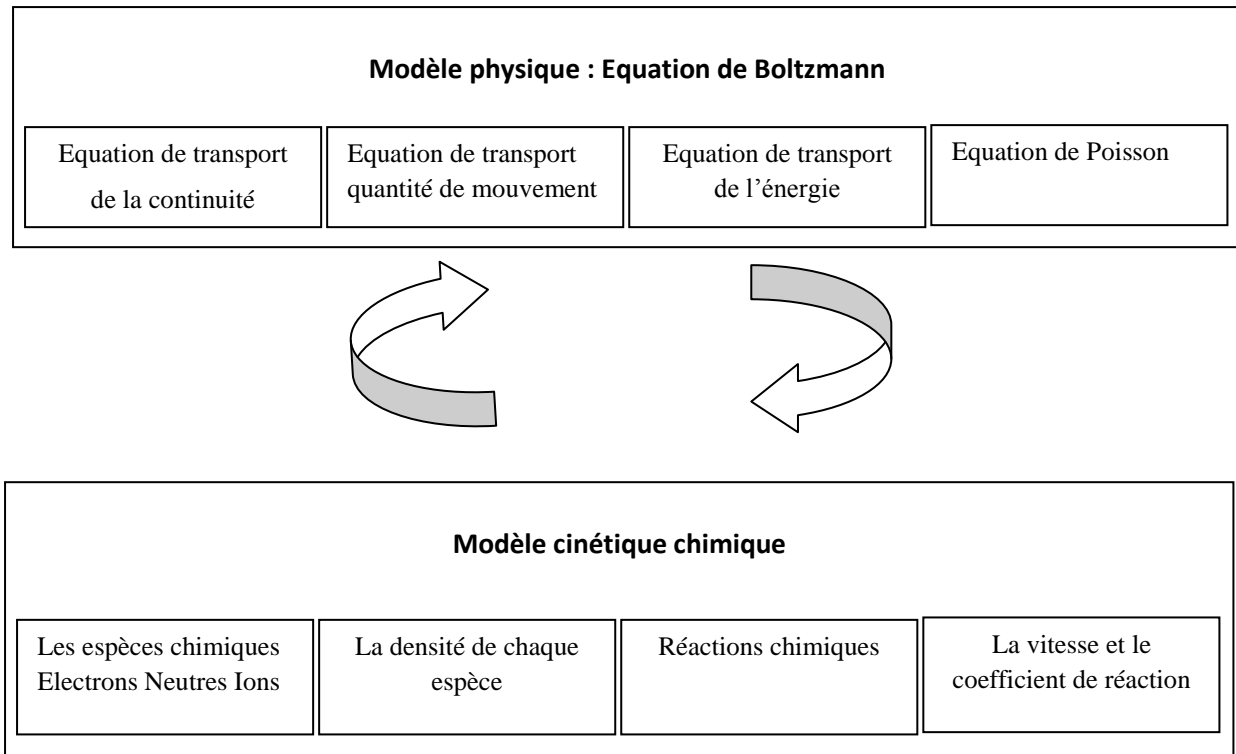
Dans ce chapitre nous allons présenter les différentes formulations mathématiques modélisant le dispositif à plasma (équations de transport des espèces) couplé à la cinétique chimique du gaz (réactions chimiques).

La modélisation des plasmas de décharge avec des simulations numériques offre une approche précise et efficace pour optimiser les réacteurs à plasma froid. La capacité à ajuster les paramètres tels que la composition des gaz, la pression, le débit, la configuration des électrodes, la température et la puissance permet une conception plus fine, avec des réponses rapides sur l'influence de ces paramètres sur les performances globales du système [1].

L'utilisation de l'équation de Boltzmann et de ses moments pour résoudre les équations de transport de la densité des espèces dans un plasma froid est une approche sophistiquée et fondamentale. Ce modèle mathématique offre une base solide pour le comportement des mélanges gazeux dans le plasma, contribuant ainsi à une modélisation précise des réacteurs à plasma [2].

La modélisation de la cinétique chimique dans la décharge électrique permet de prédire les espèces produites lors de la phase de réactions chimiques, et permet de décrire l'évolution des espèces [3].

En général les propriétés physico-chimiques de la décharge sont complètement décrites par les équations Boltzmann couplées avec l'équation Poisson pour la détermination du champ électrique et la cinétique chimique pour déterminer l'ordre et la vitesse des réactions [2-3]



*Figure II.1 : Interaction entre les paramètres opératoires des équations physico-chimique du plasma*

## II.2 Théorie cinétique des plasmas

### II.2.1 Le Modèle physique ou le modèle fluide de la décharge électrique

Le modèle fluide est un modèle de décharge dans lequel le transport des particules chargées est décrit et résolu à l'aide des valeurs moyennes pour certains paramètres du plasma de décharge. [3].

La cinétique des électrons des ions et des neutres dans un gaz faiblement ionisé peut être décrite à l'aide de l'équation de Boltzmann en prenant les trois premiers moments de l'équation de transport. Ces moments correspondent à des grandeurs physiques caractéristiques du plasma, comme la densité, la quantité de mouvement, la pression cinétique, le flux d'énergie thermique contribuant ainsi à une compréhension approfondie du comportement des plasmas lors des décharges électriques dans les plasmas froids [4].

### II.2.1.1 L'équation de Boltzmann

Le théorème de Liouville énonce que la densité de probabilité dans l'espace des phases reste constante le long des trajectoires des particules. Cela conduit à l'équation de Boltzmann, décrivant l'évolution temporelle de la fonction de distribution des particules dans un système Hamiltonien. [4-5].

On peut définir l'équation de Boltzmann, par une équation de continuité dans un espace des phases  $(\vec{r}, \vec{w}, t)$  qui détermine la fonction de distribution des particules  $f(\vec{r}, \vec{w}, t)$ , à chaque position et vitesse  $(\vec{r}, \vec{w}, t)$  à l'instant  $t$ , sous l'effet de processus et de forces de collision avec les molécules de gaz [6].

La solution de l'équation de Boltzmann multidimensionnelle et dépendante du temps constitue une fonction numérique extrêmement difficile qui fournit une description cinétique détaillée. L'équation de Boltzmann s'exprime généralement comme suit :

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

avec :

Les termes de la fonction	La signification
$f(\vec{r}, \vec{w}, t)$	La fonction de distribution des vitesses d'un ensemble de $N$ particules
$\vec{F}/m$	L'accélération des particules de masse $m$ .
$\vec{\nabla}_r$	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 $f(\vec{r}, \vec{w}, t)$ .

Tableau II.1 : les paramètres de l'équation de Boltzmann

Dans le cas d'un plasma faiblement ionisé, l'absence de collisions, annule le terme  $\left(\frac{\partial f(\vec{r}, \vec{w}, t)}{\partial t}\right)$  L'équation de Boltzmann simplifiée s'écrit comme suit [6]. :

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

Les propriétés générales de cette équation sont les suivantes :

- Elle est locale, décrivant l'évolution dans l'espace des phases à un point spécifique.
- Elle conserve les densités locales macroscopiques des particules, de la quantité de mouvement et de l'énergie cinétique, ce qui est essentiel pour modéliser le comportement macroscopique des systèmes.
- Elle est non linéaire, ce qui signifie que l'effet collectif des particules n'est pas simplement la somme des effets individuels.
- Elle décrit une évolution irréversible du gaz vers l'équilibre thermodynamique local, reflétant le caractère dissipatif des processus collisionnels.

### II.2.1.2 Equation de transport de la continuité

Le moment le plus bas de l'équation de Boltzmann est obtenu en intégrant tous les termes de l'équation de Boltzmann sur l'espace des vitesses, ce qui donne l'équation de continuité macroscopique [7].

Cette équation de transport est fondamentale en mécanique des fluides pour modéliser la conservation de la masse ou du volume d'un fluide dans l'espace - temps, en tenant compte de la vitesse du fluide ainsi que des variations de densité ou de concentration.

Elle permet d'étudier le mouvement des fluides et leur comportement en écoulement. Elle est généralement écrite sous la forme suivante :

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

Les termes de la fonction	La signification
$\frac{\partial n_a}{\partial t}$	La variation de densité des particules chargées par rapport au temps
$\vec{\nabla}(n_a \vec{w})$	La divergence du produit de la densité du fluide par sa vitesse.
S	Un terme source

*Tableau II.2 : les paramètres de l'équation de transport de la continuité*

Le terme source représente une source ou un puits de masse dans le système, il dépend des processus de créations et de pertes de particules, ces processus peuvent inclure des phénomènes tels que l'ionisation par impact électronique, l'attachement de particules, et la recombinaison électron-ion [5].

### II.2.1.3 Equations de transport de la quantité de mouvement

L'équation de transport de la quantité de mouvement, aussi appelée équation de Navier-Stokes, est un outil essentiel en mécanique des fluides, décrivant le transfert de la quantité de mouvement dans fluide à travers le temps et l'espace.

Cette équation dérive de la seconde loi de Newton, affirmant que la somme des forces appliquées à un objet est égale à la variation de sa quantité de mouvement.

En appliquant cette loi à un élément de volume de fluide, on peut obtenir l'équation de transport de la quantité de mouvement.

Elle montre comment une force externe appliquée sur un fluide induit un changement dans sa quantité de mouvement, se manifestant par un écoulement.

Cette équation est souvent écrite sous forme suivant [3-8-9] :

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

Les termes de la fonction	La signification
$\vec{F}$	Les forces extérieures qui s'appliquent au système dues aux champs électriques et ou magnétique
$\vec{P}$	Le tenseur de pression cinétique c'est un flux de quantité de mouvement dans un référentiel se déplaçant à la vitesse $\vec{w}$ .
$\int \left( \frac{\partial}{\partial t} f(\vec{r}, \vec{w}, t) \right)_{coll} d^3\vec{w}$	La variation de la quantité de mouvement des particules en raison des collisions

*Tableau II.3 : les paramètres de l'équation transport de la quantité de mouvement*

#### II.2.1.4 Equation de transport de l'énergie

L'équation de conservation de l'énergie est obtenue en multipliant l'équation de Boltzmann par  $E_t = \frac{1}{2} m w^2$  et en intégrant sur la vitesse. On pose dans ce calcul l'hypothèse que la particule ne possède pas de degré de liberté interne et que l'on néglige les énergies gravitationnelle et potentielles d'interaction [10]

Elle peut être exprimée par :

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

Pour la plupart des décharges en régime permanent, le flux d'énergie thermique macroscopique est équilibré par rapport aux processus de collision, ce qui donne l'équation plus simple.

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

#### II.2.1.5 Equation de Poisson :

Le traitement auto-cohérent du transport de particules chargées dans les décharges électriques est assuré en couplant l'ensemble d'équations ci-dessus avec l'équation de Poisson. Le champ électrique dépend fortement à la fois de la tension externe appliquée et de la séparation interne des particules chargées.

Dans une décharge à pression atmosphérique, quand les densités de particules chargées atteignent de fortes valeurs impliquant de l'ordre de  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$ , le champ perd alors sa nature strictement géométrique et intègre celle de la charge d'espace de même nature que de petites variations de densité de particules neutres  $N$ . tous les coefficients de transport fondamentaux s'expriment en fonction du champ réduit  $E/N$ .

En raison du rôle fondamental du champ électrique qui s'écrit sous la forme [11].

$$E(r, z, t) = -\nabla_{r,z} V(r, z, t) \quad (\text{II-7})$$

$V(r, z, t)$ : Représente le potentiel correspondant dans la décharge, calculée à l'aide de l'équation de poisson.

On pose la loi des gaz parfait :  $PV = n RT$  (II-8)

### II.2.2 Le modèle cinétique chimique

La modélisation de la cinétique chimique [12] dans la décharge électrique permet de prédire les espèces constituées lors de la phase de réactions chimiques, qui permet de décrire l'évolution des espèces neutres. Le modèle repose sur la résolution de l'équation de continuité des différentes espèces neutres.

L'équation de continuité d'une espèce A est de la forme :

$$\frac{d[Z_{\bar{A}}]}{dt} = S_{\bar{A}} \quad (\text{II-9})$$

$[Z_{\bar{A}}]$  : la densité de l'espèce a

$S_{\bar{A}}$  : le terme source de l'équation de continuité

Le terme source qui représente la réactivité du gaz prend en considération tous les processus de production et de la destruction de l'espèce  $\bar{A}$  (ionisation par étape, excitation, recombinaison...).

Pour analyser le comportement de la décharge dans un gaz, 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 régulièrement caractérisées par un facteur K qui représente le coefficient de réaction donné par la loi d'Arrhenius :

$$K(t) = A \exp\left(-\frac{Ea}{RT}\right) \quad (\text{II-10})$$

$Ea$  : L'énergie d'activation d'Arrhenius (l'énergie nécessaire aux molécules pour réagir).

$R = 8,314 \text{ J.mol}^{-1}\text{K}^{-1}$  : la constante des gaz parfaits

$A$  : représente un facteur pré-exponentiel qui tient compte prenant en compte de la fréquence des collisions.

Le coefficient K, détermine le changement de la concentration du réactif M qui dépend de la concentration des deux réactifs M et N ( $n_M$  et  $n_N$ ).

Pour une réaction de la forme :  $M + N \rightarrow MN$

On a

$$\frac{dn_M}{dt} = -k \cdot n_M \cdot n_N \quad (\text{II-11})$$

On donne exemple de calcul qui d'écrit l'évolution de l'espèce  $O_3$ ,

On indique qu'elle signe (+) correspond à sa production de l'espèce et le signe (-) correspond à la réduction de cette dernière.

Concernant les différents  $K_j$  ( $j=1$  à  $38$ ) voir l'annexe.

$$\begin{aligned} \frac{dn_{O_3}}{dt} = & -k_{11}n_{O_2}n_{O_2} - k_{13}n_{O^-}n_{O^-} - k_{15}n_{O_2}n_{O^-} - k_{16}n_{O_2^-}n_{O^-}n_{O_2} - k_{17}2n_{O^-}n_{O_2} \\ & - k_{18}n_{O^-}n_{O_3} - k_{19}n_{O_3^-}n_{NO_3} - k_{23}n_{O^-}n_{O_3} - k_{29}n_{O^-}n_{O_3^-} - k_{30}n_{O^-}n_{O_2}n_{O_2} \\ & - k_{32}n_{O^-}n_{O_3} - k_{33}n_{O^-}n_{O_2^-} - k_{37}n_{O_2}n_{O_2} - k_{38}n_{O^-}n_{O_2^-} + k_{14}n_{O_3} + k_{15}n_{O_3} \\ & + k_{16}n_{O^-}n_{O_3} + k_{18}n_{O_2}n_{O_2} + k_{19}n_{O^-}n_{O_2} + k_{20}n_{O^-}n_{O_2} + k_{24}n_{N_2} + k_{25}n_{O_2}n_{O_2} \end{aligned}$$

## Référents bibliographiques

- [1] E.I. Vorobyov , C. Theis : "Boltzmann Moment Equation Approach for the Numerical Study of Anisotropic Stellar Discs", Monthly Notices of the Royal Astronomical Society, 2006, Vol. 373, pp. 197–208, (USA).
- [2] B.Y.Kraloua: "Modélisation Bidimensionnelles des Décharges Electriques à Basse Pression : Modèle Fluide du Deuxième Ordre ", Thèse de Doctorat, Université des Sciences et Technologies- USTO-MB d’Oran, (Algérie).
- [3] J. PBoeuf., Numerical model of RF glow discharges, *Phy. Rev. A*, 36, 2782-2792 (1987).
- [4] M. Lemerini, modélisation et simulation numérique de l’empreinte thermique d’une décharge pointe-plan. Application à l’étude de la dynamique des neutres, Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur Strasbourg-France (1993).
- [5] Lemerini M., Modélisation des plasma froids, Université de Tlemcen (2022).
- [6] GF1 Bertsch, H Kruse, and S Das Gupta. “Boltzmann equation for heavy ion collisions”. In: *Physical Review C* 29.2, p. 673, 1984.
- [7] C.Li, W. J.M. Brok, and al., « Deviations from the Local Field Approximation in Negative Streamer Heads », *J. Appl. Phys.* 101 123305, 2007.
- [8] J. L. Delacroix. and A.Bers, *Physique des plasmas–Inter Ed et CNRS Ed* (1994).
- [9] Z.Eldjouzi., Calcul des sections efficaces et coefficient de transport dans un plasma d’oxygène, Mémoire de Master, Université Ahmed Draia-Adrar (2020).
- [10] T.J.M. BOYD, J.J. SANDERSON, *The Physics of Plasmas*, Cambridge University Press, New York, 2003
- [11] Chen, K.; Eddy, T. L. Thermodynamic Properties of Molecular Hydrogen Plasma in Thermal and chemical Nonequilibrium. *J. Thermophys. Heat Transf.* 1993, 7 (2), 277–284.
- [12] 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).

## **CHAPITRE III**

# **RÉSULTATS & INTERPRÉTATIONS**

### III.1 Introduction

Par la suite de ce chapitre nous allons décrire la production de certaines espèces majoritaires qui se sont constituées après le passage d'une décharge électrique dans un gaz pur de  $O_2$ .

La simulation numérique du plasma se fait d'une manière qui consiste à étudier le comportement de chaque particule par le biais d'un modèle cinétique chimique simple qui suit le comportement de 6 espèces dans un ensemble de 38 réactions [1-2].

Ce modèle introduit :

- Les processus chimiques principaux impliquant des espèces d'oxygène neutres dans leurs états fondamentaux ( $O_2$ ,  $O$ ,  $O_3$ ), dissocié par impact électronique après l'application de la décharge électrique, cette 1ère étape correspond à la création des radicaux primaires [3].
- Les radicaux secondaires représentés par les ions négatifs  $O^-$ ,  $O_2^-$ , et  $O_3^-$  [4].
- Le conjunction avec les propriétés physique de la décharge couronne de géométrie de type fil-cylindre tel que le fil correspond a anode, et le cylindre a la cathode [5-6].

L'originalité de ce travail s'exprime dans l'application de différentes valeurs d'un champ réduit  $E/N$  variant entre 100Td et 200 Td.

On mentionne que  $1Td = 10^{-21} \text{ V.m}^2$ .

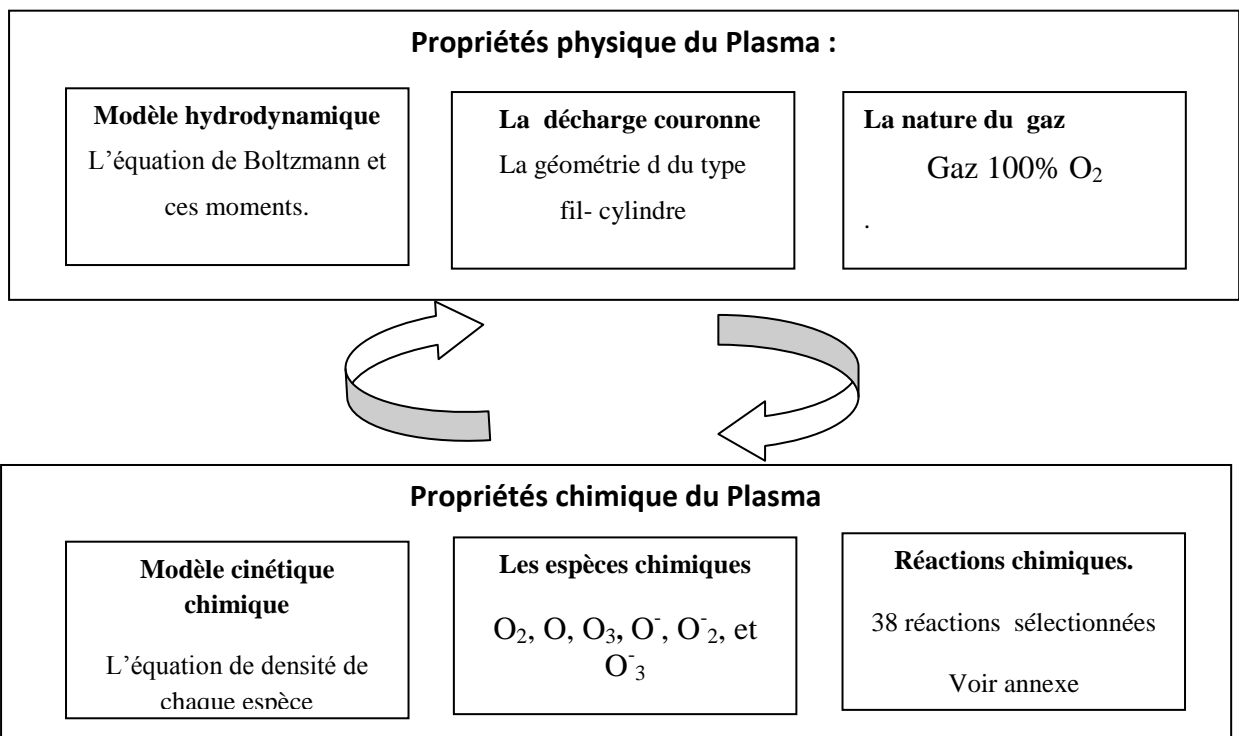


Figure III.1 : Schéma de simulation basé sur le couplage de des propriétés physico-chimique du Plasma et de la décharge.

## III.2 La Simulation de la dynamique du gaz pur de O<sub>2</sub>

### III.2.1 Les Conditions de simulation

On rappelle que la configuration de la décharge et du type fil –cylindre dans le quel on introduit un gaz pur O<sub>2</sub>

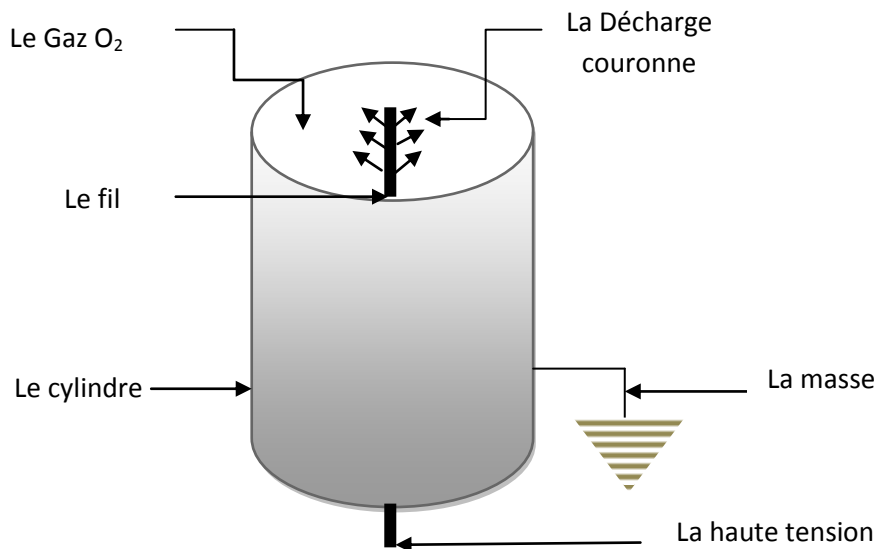


Figure III.2 : La configuration Fil- cylindre de la décharge couronne

Les caractéristiques de la décharge qui traverse notre gaz se résument dans le tableau suivant :

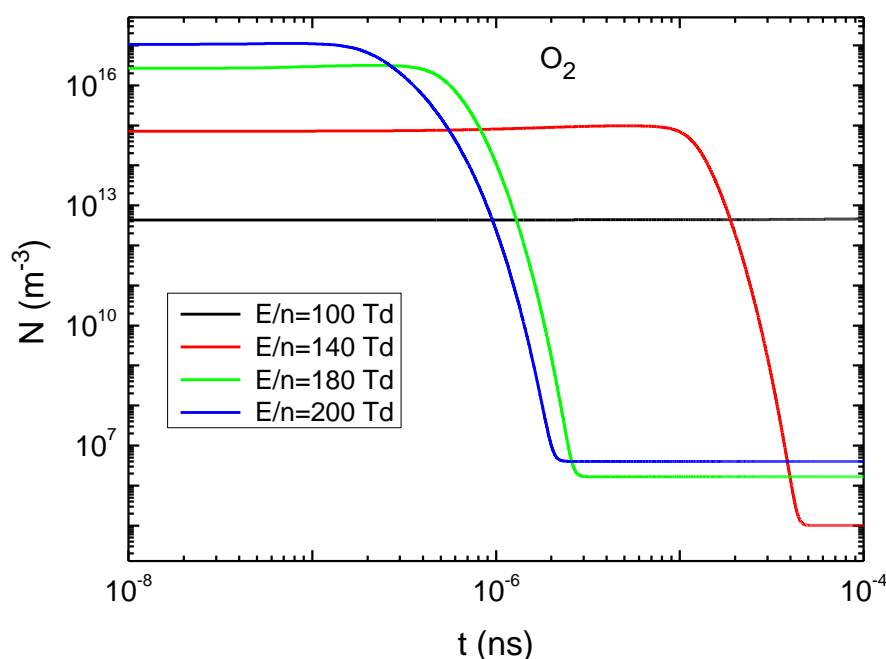
Caractéristiques physiques				
Type de décharge	Configuration décharge	Pression initiale	Température gaz	Champs réduits
Couronne	Fil-cylindre	10 <sup>5</sup> Pa	300 K	De 100 à 200Td
Caractéristiques chimique				
Composition du gaz	Les espèces créées		Les réactions chimiques	
100% de O <sub>2</sub>	O <sub>2</sub> , O, O <sub>3</sub> , O <sup>-</sup> , O <sub>2</sub> <sup>-</sup> , et O <sub>3</sub> <sup>-</sup>		38 réactions chimiques	

Tableau III.1 : Les caractéristiques physico-chimique de la simulation

### III.2.2 Etude de la variation temporelle de la densité des espèces considérées

En cette étape, nous analysons, la composition du plasma généré par le passage de la corona décharge en suivant l'évolution temporelle, de la densité des différentes espèces qui sont inengendrées a partir d'un gaz pur d'oxygène 100 %  $O_2$  et cela pour des valeurs de champ réduit sélectionnées. ( $E/N=100, 140, 180$  et  $200$  Td).

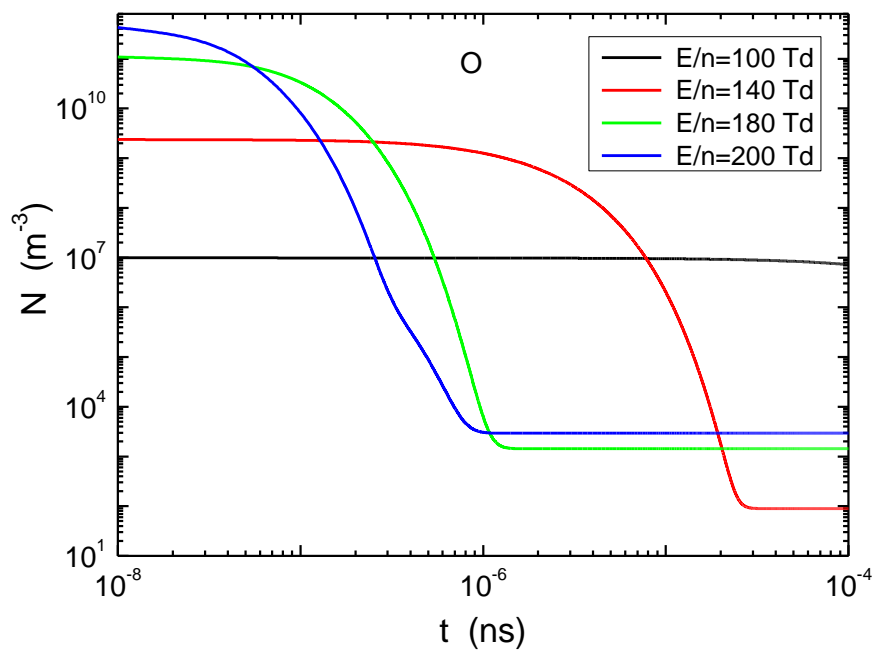
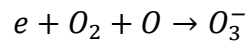
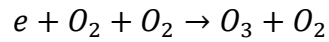
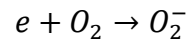
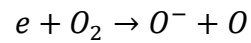
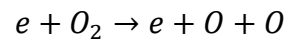
On débute par l'évolution des radicaux primaire qui indique le commencement de la réactivité chimique et pour les quelles les déviations en fonction du temps sous l'influence de multiple valeurs du champ réduit se manifeste.



*Figure III.3 : Variation temporelle de la densité de l'espèce  $O_2$  après le passage d'une décharge couronne dans le gaz pur  $O_2$ , pour plusieurs valeurs du champ réduit  $E/N$ .*

Dans la figure (III.3), on constate que après l'application de la décharge électrique, l'impacte électronique avec les particule qui compose notre gaz à savoir 100 %  $O_2$  dans le laps de temps considéré par notre simulation comprit entre  $10^{-8}$  ns et  $10^{-4}$  ns et pour un champ réduit  $E/N < 140$  Td, la réactivité chimique n'est pas important pour influer sur la concentration de  $O_2$  mais a fur et a mesure qu'on augmente la tension, la densité de  $O_2$  commence a se décliné pour laisser place a d'autre espèces, a savoir le  $O$  le  $O^-$  et le  $O_2^-$  et surtout le  $O_3$  et  $O_3^-$ .

Selon le bilan chimique suivant :

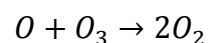
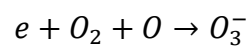


**Figure III.4 : Variation temporelle de la densité de l'espèce O après le passage d'une décharge couronne dans le gaz pur  $O_2$ , pour plusieurs valeurs du champ réduit  $E/N$ .**

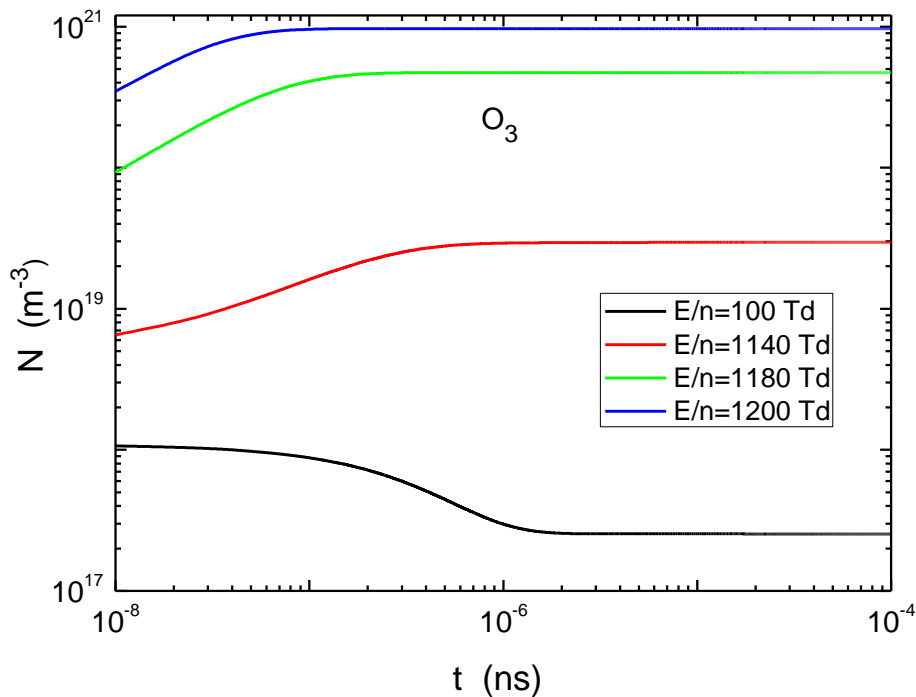
Dans la figures (III.4), la fabrication de l'espèce O est maintenu par la présence de  $O_2$  bombardé par la décharge couronne, la aussi cette composante importante, se crée amplement. Au delà de 140 Td, elle se produit mais se consomme rapidement au profil de du  $O_3$  et du  $O_3^-$

La production :  $e + O_2 \rightarrow O + O^-$

La consommation :  $O + O_2 + O_2 \rightarrow O_3 + O_2$



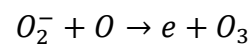
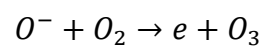
Ces dernières réactions expliquent la nouvelle production de  $O_2$  entre  $10^{-6}$  ns et  $10^{-4}$  ns.



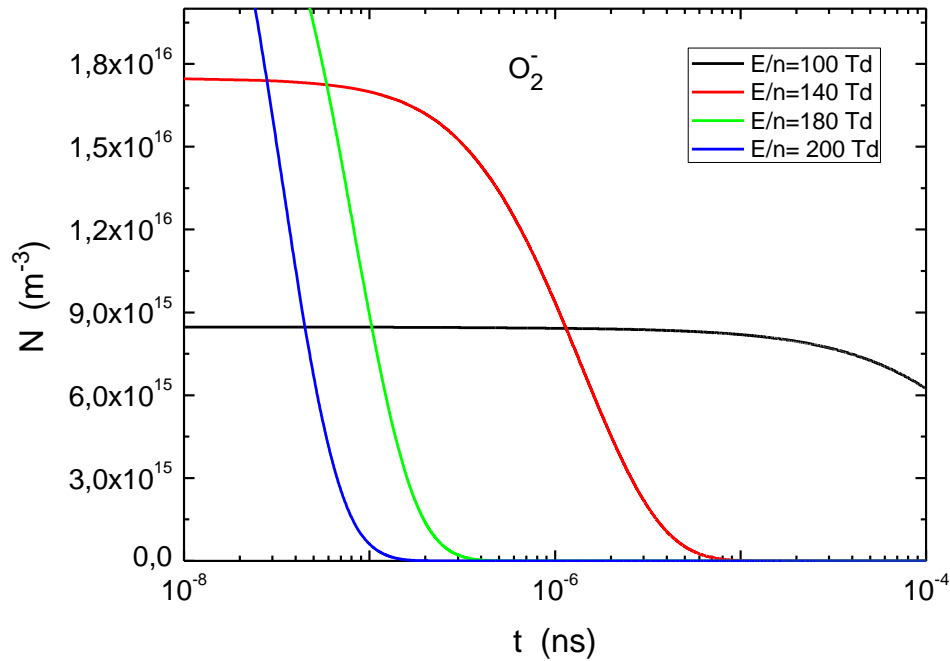
**Figure III.5 : Variation temporelle de la densité de l'espèce  $O_3$  après le passage d'une décharge couronne dans le gaz pur  $O_2$ , pour plusieurs valeurs du champ réduit  $E/N$ .**

La figure (III.5) montre la production de l'ozone qui montre bien sa densité augmentée en fonction de l'augmentation de tension appliquée surtout pour 180 et 200 Td ce qui est maintenu par la réactivité chimique importante après la création des radicaux secondaires spécifiquement le  $O^-$  et le  $O_2^-$ .

Les ions négatifs jouent un rôle capital dans l'attitude du gaz selon le bilan suivant :

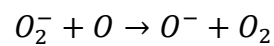


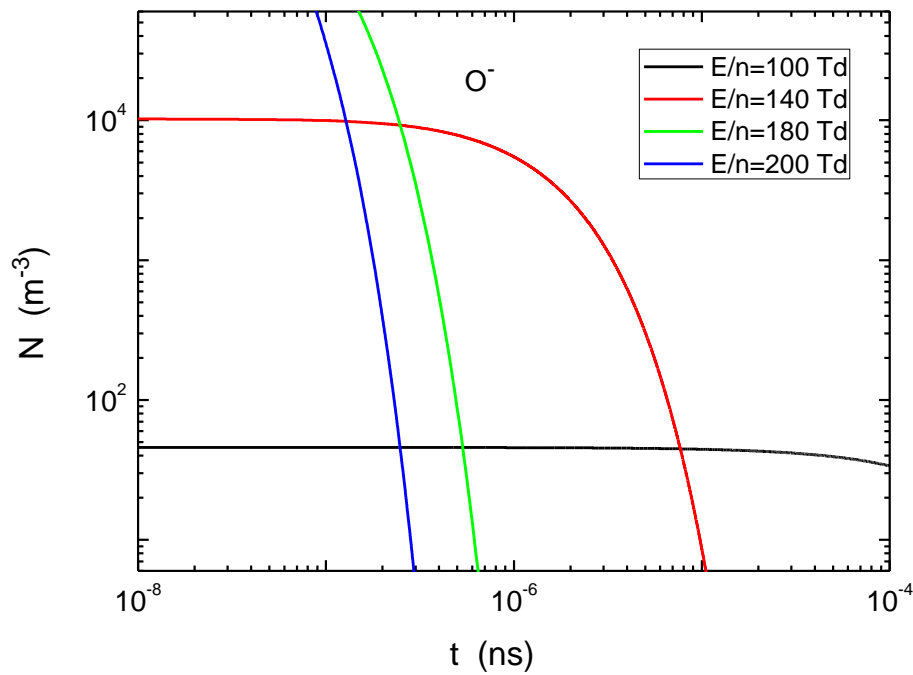
Les figures (III-6), (III-7) et (III-8) montrent la variation du comportement que se soit sous un aspect d'une dégradation rapide de  $O^-$  et de  $O_2^-$  sous haute tension et qui traduit par la génération du  $O_3$  et parallèlement le  $O_3^-$  et vis versa.



**Figure III.6 : Variation temporelle de la densité de l'espèce  $O_2^-$  après le passage d'une décharge couronne dans le gaz pur  $O_2$ , pour plusieurs valeurs du champ réduit  $E/N$ .**

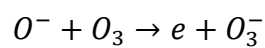
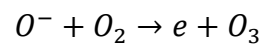
On ne constate que le processus de fabrication de  $O^-$  et la génération de  $O_2^-$  sont maintenues par la présence du radical  $O$  ceci apparait à 140 Td et s'accroît à 200 Td selon la réaction :

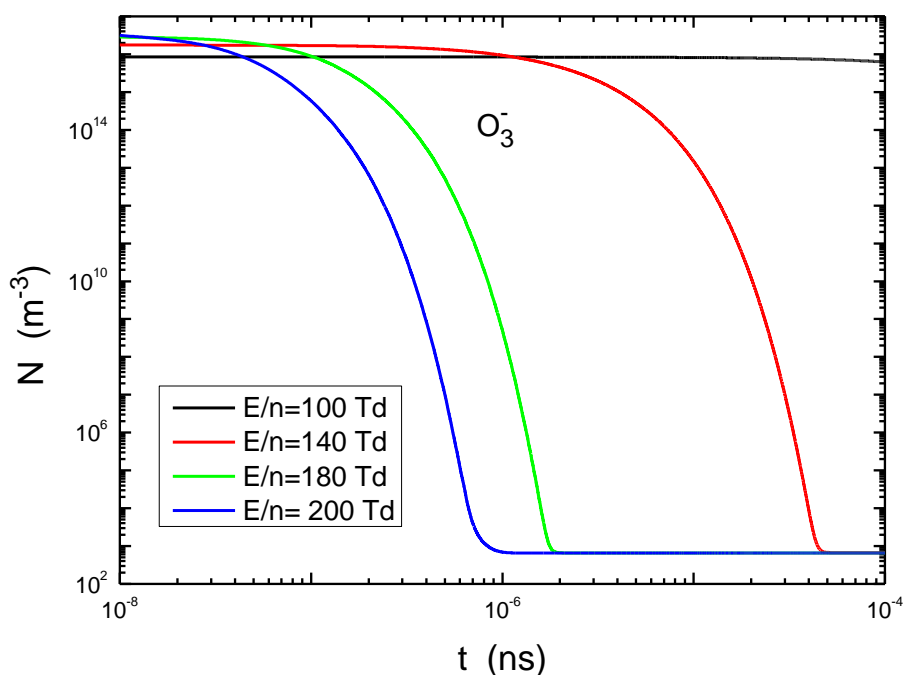




*Figure III.7 : Variation temporelle de la densité de l'espèce  $\text{O}^-$  après le passage d'une décharge couronne dans le gaz pur  $\text{O}_2$ , pour plusieurs valeurs du champ réduit  $E/N$ .*

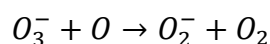
La forte présence de du  $\text{O}_3$  et du  $\text{O}_3^-$  pour les puissantes valeurs de  $E/N$  est lié a la recombinaison de l'ion négatif  $\text{O}^-$  aux molécules du gaz  $\text{O}_2$  par les réactions :





**Figure III.8 : Variation temporelle de la densité de l'espèce  $O_3^-$  après le passage d'une décharge couronne dans le gaz pur  $O_2$ , pour plusieurs valeurs du champ réduit  $E/N$ .**

La aussi la hausse de la fraction  $E/N$  fait apparaître e l'espèce  $O_3^-$  qui est créé massivement, mais se consomme et fait apparaître la particule  $O_2^-$  par la réaction :



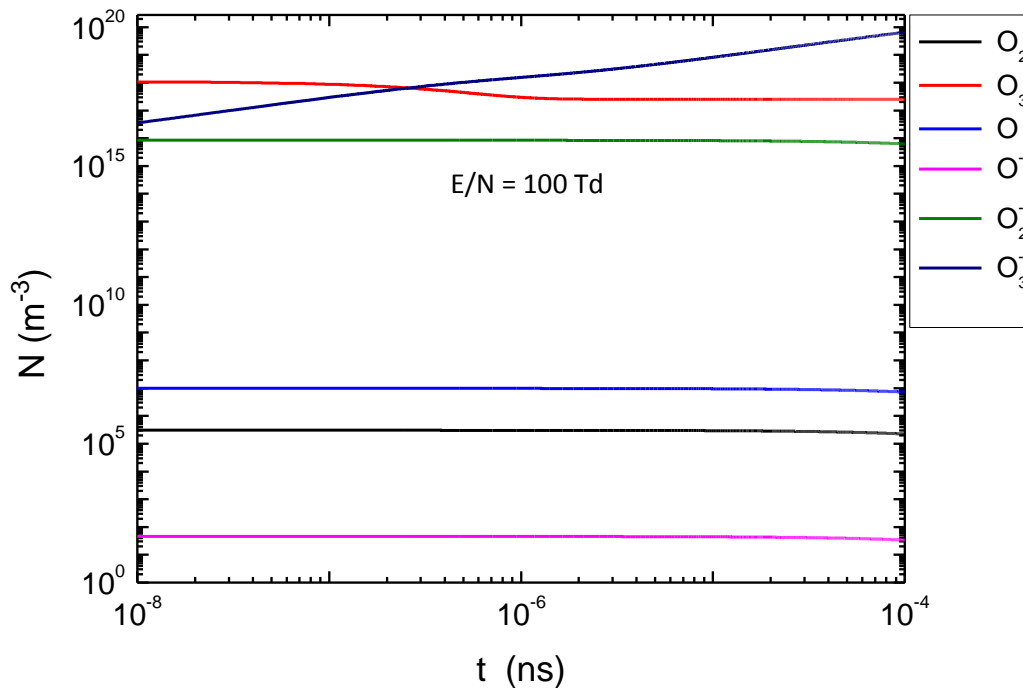
### III.2.3 Etude de la variation temporelle des espèces considérées en fonction de $E/N$

Pour une meilleure compréhension du phénomène de production, diminution ou consommation des espèces considérées dans notre modèle, les graphes qui suivent montrent la variation des  $O_2$ ,  $O$ ,  $O_3$ ,  $O^-$ ,  $O_2^-$ , et  $O_3^-$  dans le cas d'un champ réduit faible moyen ou fort.

#### a. Pour un champ réduit $E/N= 100$ Td

Pour cette valeur faible on remarque que les phénomènes de production des espèces,  $O_2$ ,  $O$ ,  $O^-$ ,  $O_3^-$  est indétectable, elle est a sensiblement apparente pour la particule  $O_3$  mais très perçus pour composante  $O_2^-$ .

Ces informations nous ramènent à la conclusion que les faibles intensités du champ réduit sont les déclencheurs de la formation de l'espèce  $O_3^-$ , ce dernier participe de manière significative à faire apparaître l'ozone  $O_3$ , pour revenir à une stabilité avec les autres.



*Figure III.9 : Variation temporelle de la densité des espèces  $O_2$ ,  $O$ ,  $O_3$ ,  $O^-$ ,  $O_2^-$ , et  $O_3^-$  pour une valeur du champ réduit  $E/N=100$  Td*

#### **b. Pour un champ réduit $E/N= 160$ Td**

Pour cette valeur moyenne qui représente une tension idéale pour la production d' $O_3^-$  et de manière directe à la création de  $O_3$ .

On remarque que cette tension est favorable pour la création de particule ensuite leurs consommation les uns aux profits des autres puisque on détecte la présence des autres composante qui commence à se manifester mais de manière non équitablement puisque le  $O^-$  ce produit rapidement et commence le premier à se dégradé par rapport au  $O$  et  $O_2^-$ , tout ces dernier seront réduit à la fin.

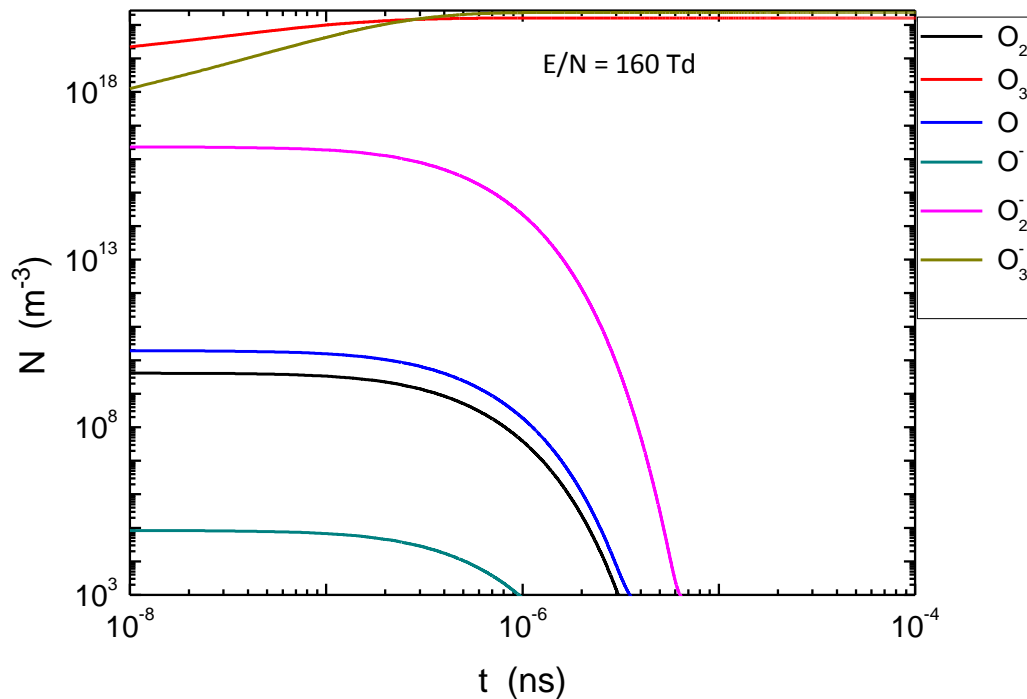
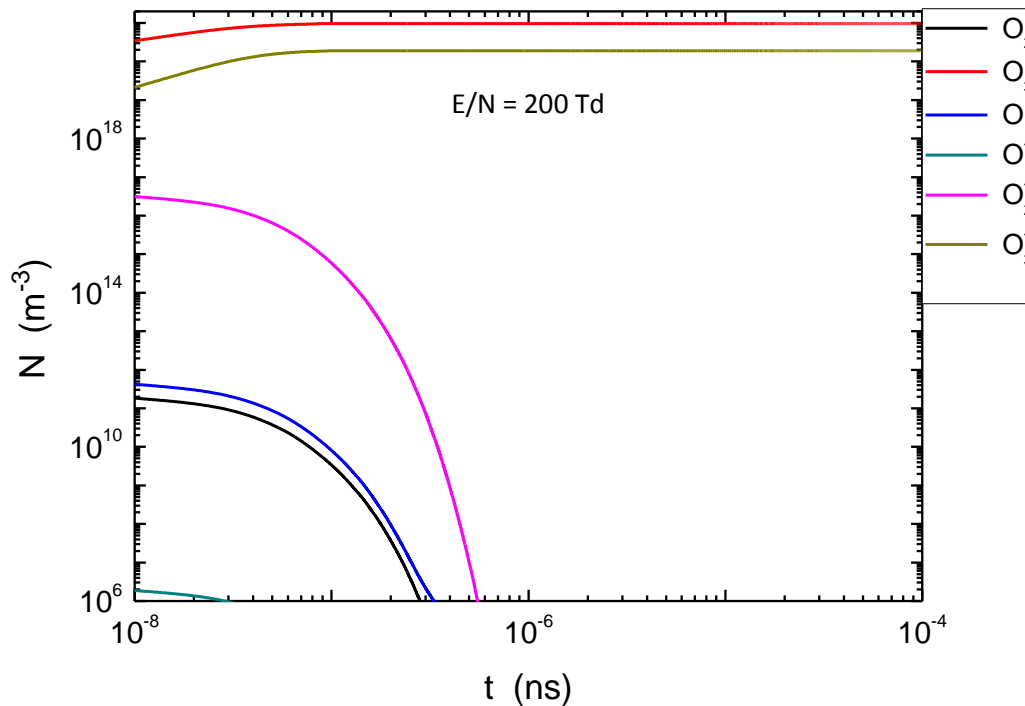


Figure III.10 : Variation temporelle de la densité des espèces,  $\text{O}$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{O}^-$ ,  $\text{O}_2^-$ , et  $\text{O}_3^-$  pour une valeur du champ réduit  $E/N=160 \text{ Td}$

### c. Pour un champ réduit $E/N= 200 \text{ Td}$

Pour une valeur  $E/N=200\text{Td}$  qui est relativement élevé, l'impacte électronique est très supérieur ou toutes les espèces se génèrent en suite se consomme en continue, hormis le  $\text{O}_3$  et le  $\text{O}_3^-$  qui le suit. On remarque leurs densités qui augmentent exponentiellement en fonction de l'augmentation de  $E/N$ .

La aussi on peut dire que  $\text{O}^-$  suivi de  $\text{O}_2^-$ , sont les espèces les plus favorable pour la production de  $\text{O}_3$ , cette aptitude se manifeste clairement a  $200\text{Td}$ .



*Figure III.11 : Variation temporelle de la densité des espèces,  $O$ ,  $O_3$ ,  $O^-$ ,  $O_2^-$ , et  $O_3^-$  pour une valeur du champ réduit  $E/N=200$  Td*

### III.3. Conclusion

Cette étude théorique nous a permis de montrer l'influence de l'application de différentes valeurs du champ réduit dans la synthèse des espèces considéré dans notre modèle. [6-7].

On a pu estimer de manière exacte les tensions favorables pour la création des radicaux secondaires  $O^-$ , et  $O_2^-$ , ces composantes participent activement à la création de l'ozone abondamment pour les puissantes tensions [8].

Pour un gaz pur d'oxygène  $O_2$ , la cinétique chimique nous montre aussi l'importance des radical primaires  $O$  et secondaires  $O^-$  responsable de la génération de l'ozone et aussi son ion négatif  $O_3^-$  [9].

## Référents bibliographiques

- [1] 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).
- [2] C. Soria, F. Pontiga, A. Castellanos: "Plasma Chemical and Electrical Modeling of a Negative DC Corona in Pure Oxygen", Plasma Sources Science and Technology, 2004, Vol.13, pp. 95-107, (USA).  
[https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig\\_q=RN:35024905](https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:35024905)
- [3] K. Yanallah, S. Hadj Ziane, A. Belasri, Y. Meslem: "Numerical Modeling of Ozone Production in Direct Current Corona Discharge", Journal of Molecular Structure, 2006, Vol. 777, pp. 125-129. (USA).  
<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0166128006004842>
- [4] A. Kossyi, A. Y. Kostinsky, A. A. Mataveyev, V. P. Silakov. "Kinetic scheme of the non equilibrium discharge in nitrogen- oxygen mixture", Plasma Source Sci. Technol, vol. 1, n°3, 207-220, 1992
- [5] N.A. Guntoro Thèse UPS, "Modélisation de la dynamique des neutres et de la cinétique chimique dans les réacteurs plasmas de dépollution des gaz d'échappement", 2001.
- [6] E.I. Vorobyov, C. Theis: "Boltzmann Moment Equation Approach for the Numerical Study of Anisotropic Stellar Discs", Monthly Notices of the Royal Astronomical Society, 2006, Vol. 373, pp. 197-208, (USA).  
<http://adsabs.harvard.edu/full/2006MNRAS.373..197V>
- [7] A.K. ferouani, M. Lemerini, ET I.S. Medjahdi "Modelling on function of distribution in an electric discharge wire- cylindre " American Institute of Physics, 1047, 232-235. 2008.
- [8] M. Lemerini, A.K. Ferouani ET I.S. Medjahdi "Numerical simulation of ozone dynamics in negative-corona discharge DC" International Review on Modelling and Simulation, 2, 291-295. 2009.
- [9] K. Yanallah: "Etude Expérimentale et par Modélisation 1D et 2D de la Production de L'ozone dans une Décharge Electrique Couronne Négative et son Absorption par les Parois", Thèse de Doctorat, Université des Sciences et Technologie d'Oran USTO-MB, 2010, (Algérie).

CONCLUSION GÉNÉRALE  
&  
PERSPECTIVES

## Conclusion Générale et Perspectives

---

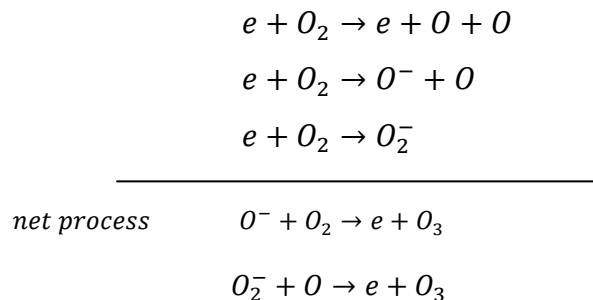
Le travail présenté dans cette étude de recherche de Master nous a permis d'investiguer la réactivité de plusieurs espèces au contact du plasma  $O_2$ , en suivant la variation temporelle de la densité des espèces présentes dans un gaz pur 100%  $O_2$  soumis à une décharge couronne de géométrie de type fi –cylindre. Nous analysons essentiellement l'influence de plusieurs valeurs du champ réduit prenant les valeurs 100, 140, 160 et 200 Td, durant un laps de temps qui s'étend de  $10^{-9}$  s jusqu'à  $10^{-4}$  s.

La cinétique chimique du gaz tient compte de 6 espèces réactives qui interagissent selon 38 réactions choisies pour suivre l'évolution de l'ozone, qui a des considérations importante sur l'environnement et des applications industrielles qui on un impacte dominant dans la prévention de la nature et la dépollution.

Le champ électrique réduit introduis dans notre simulation joue un rôle déterminant dans la production ou la consommation des espèces, de cela on a déduit :

- ✓ Une tension faible équivalent a 100Td n'a pas un rôle significatif dans le cas de notre étude puisque la totalité des particules se manifestent timidement.
- ✓ Une tension critique égale en fonction du champ réduit a 140 Td plus appropriés pour voir une réel réactivité au sein du gaz et qui participe activement a la création des radicaux secondaires et facteur déclencheur de production ou de consommation des espèces .
- ✓ Une forte concentration de la fraction E/N au alentours de 180Td jusqu'a 200Td a permis de montrer le rôles important joué par les réactions chimiques dans le processus de fabrication ou de l'élimination de  $O_3$ .

Les résultats obtenus montrent les réactions les plus importantes qui participent au processus de synthèse de l'ozone : récapitulé comme suit :



## Conclusion Générale et Perspectives

---

Enfin, on montre clairement le rôle important joué par  $O^-$  et  $O_2^-$  qui participe activement à l'augmentation de la concentration d' $O_3$  et en parallèle  $O_3^-$ .

Ces résultats ouvrent la voie à de nombreuses perspectives, qui permettront à l'avenir d'améliorer le rendement et sélectivité du gaz et des espèces sélectionnées.

Pour cela on propose de :

- ✓ Confronter les résultats théorique avec la pratique pour une meilleurs compréhension et faire un suivi réel des espèces qui ce créé ou se consomme lors de l'expérience.
- ✓ varier la concentration l'espèce  $O_2$  en fonction du pourcentage X%  $O_2$  pour une étude plus détaillée et plus approfondit.
- ✓ Employés d'autre gaz afin d'obtenir d'autres fonctionnalités, notamment l'utilisation de mélanges gazeux, notamment de gaz fonctionnalisant ( $O_2 + H_2$ ,  $O_2 + N_2$ ,  $O_2 + Ar...$ ) pourrait par ailleurs permettre de modifier fortement la réactivité du plasma
- ✓ Suivre l'évolution d'autres espèces tel que les ions positifs  $O^+O_2^+$   $O_3^+$  et les états excités  $O(^1D)$   $O_2(^1\Delta_g)$  pour une étude générale et plus réels de la réactivité chimique qui subsiste après le passage de la décharge.

# ANNEXE

Annexe

<b>N°</b>	<b>Réaction</b>	<b>Taux de réaction (cm<sup>3</sup> s<sup>-1</sup>)</b>	<b>Réf</b>
R <sub>1</sub>	$e+O_2 \rightarrow O_2^+ + 2e$	$K_1=9 \times 10^{-9} \times T_e^{0.7} \times e^{-13.6/T_e}$	[1]
R <sub>2</sub>	$e+O \rightarrow O^+ + 2e$	$K_2=9 \times 10^{-9} \times T_e^{0.7} \times e^{-13.6/T_e}$	[2]
R <sub>3</sub>	$e+O(^1D) \rightarrow O^+ + e$	$K_3=9 \times 10^{-9} \times T_e^{0.7} \times e^{-11.6/T_e}$	[3]
R <sub>4</sub>	$e+O^- \rightarrow O + 2e$	$K_4=5.47 \times 10^{-8} \times T_e^{0.324} \times e^{-2.98/T_e}$	[4]
R <sub>5</sub>	$e+O_2 \rightarrow O_2(^1\Delta_g) + e$	$K_5=2 \times 10^{-7} \times T_e^{0.5}$	[1]
R <sub>6</sub>	$e+O_2 \rightarrow O(^1D) + O + e$	$K_6=4.8 \times 10^{-9}$	[5]
R <sub>7</sub>	$e+O \rightarrow O(^1D) + e$	$K_7=4.2 \times 10^{-9} \times e^{-2.25/T_e}$	[6]
R <sub>8</sub>	$e+ O(^1D) \rightarrow O + e$	$K_8= 8 \times 10^{-9}$	[6]
R <sub>9</sub>	$e+O_2^+ \rightarrow O + O(^1D)$	$K_9=2 \times 10^{-7} \times T_e^{0.5}$	[7]
R <sub>10</sub>	$e+O_2 \rightarrow O^- + O$	$K_{10}=5.276 \times 10^{-11}$	[8]
R <sub>11</sub>	$e+O_2+O_2 \rightarrow O_2^- + O_2$	$K_{11}=1 \times 10^{-31}$	[7]
R <sub>12</sub>	$e+O_2 \rightarrow O_2^-$	$K_{22}=0.26 \times 10^{-9}$	[1]
R <sub>13</sub>	$O^- + O \rightarrow e + O_2$	$K_{13}=5 \times 10^{-10}$	[9]
R <sub>14</sub>	$O^- + O_2(^1\Delta_g) \rightarrow e + O_3$	$K_{14}=3 \times 10^{-8}$	[9]
R <sub>15</sub>	$O_2^- + O \rightarrow e + O_3$	$K_{15}=1.5 \times 10^{-10}$	[9]
R <sub>16</sub>	$O^{2-} + O_2(^1\Delta_g) \rightarrow e + 2O_2$	$K_{16}=2 \times 10^{-10}$	[9]
R <sub>17</sub>	$O^- + O_2 \rightarrow e + O_3$	$K_{17}=5 \times 10^{-15}$	[10]
R <sub>18</sub>	$O^- + O_3 \rightarrow e + O_2 + O_2$	$K_{18}=3 \times 10^{-10}$	[10]
R <sub>19</sub>	$e+O_3 \rightarrow e+O_2+O(^1D)$	$K_{19}=5 \times 10^{-10}$	[11]
R <sub>20</sub>	$e+O_3 \rightarrow e+O_2+O$	$K_{20}=5 \times 10^{-9}$	[12]

Annexe

R <sub>21</sub>	$O_2(^1\Delta g)+O_3 \rightarrow 2O_2+O$	$K_{21}=0.75 \times 10^{-10} x_e (-2840/Tg)$	[13]
R <sub>22</sub>	$O_2(^1\Delta g)+O_3 \rightarrow 2O_2+O(^1D)$	$K_{22}=5.2 \times 10^{-11} x_e (-2840/Tg)$	[10]
R <sub>23</sub>	$O+O_3 \rightarrow O_2+O_2(^1\Delta g)$	$K_{23}=10^{-11} x_e (-2300/Tg)$	[10]
R <sub>24</sub>	$O_2(^1\Delta g)+O \rightarrow O_2+O$	$K_{24}=7 \times 10^{-16}$	[10]
R <sub>25</sub>	$O_2(^1\Delta g)+O_2 \rightarrow O_2+O_2$	$K_{25}=3.8 \times 10^{-18} x_e (-205/Tg)$	[10]
R <sub>26</sub>	$O(^1D)+O_3 \rightarrow O_2+2O$	$K_{26}=1.2 \times 10^{-10}$	[10]
R <sub>27</sub>	$O(^1D)+O_3 \rightarrow 2O_2$	$K_{27}=1.2 \times 10^{-10}$	[13]
R <sub>28</sub>	$O(^1D)+N_2O \rightarrow N_2+O_2$	$K_{28}=4.4 \times 10^{-11}$	[10]
R <sub>29</sub>	$O+O_3 \rightarrow 2O_2$	$K_{29}=2 \times 10^{-11} x_e (-2300/Tg)$	[14]
R <sub>30</sub>	$O+O_2+O_2 \rightarrow O_2+O_3$	$K_{30}=6.9 \times 10^{-34} x(300/Tg)^2$	[14]
R <sub>31</sub>	$O+O+O_2 \rightarrow O_2+O_2$	$K_{31}=2.41 \times 10^{-31} xTg^{-0.63}$	[14]
R <sub>32</sub>	$O^++O_3 \rightarrow O_2^++O_2$	$K_{32}=10^{-10}$	[10]
R <sub>33</sub>	$O^-+O_2^- \rightarrow O_2^-+O$	$K_{33}=10^{-10}$	[10]
R <sub>34</sub>	$O^-+O_2(^1\Delta g) \rightarrow O_2+O$	$K_{34}=10^{-10}$	[10]
R <sub>35</sub>	$O(^1D)+O_3 \rightarrow 2O_2$	$K_{35}=2 \times 10^{-6} x(300/Tg)^{-0.5}$	[7]
R <sub>36</sub>	$O^-+O_2^+ \rightarrow O+O_2$	$K_{36}=3 \times 10^{-6} x(300/Tg)^{-0.5}$	[15]
R <sub>37</sub>	$O_2+O_2 \rightarrow O_2+O_2$	$K_{37}=2 \times 10^{-6} x(300/Tg)^{-0.5}$	[15]
R <sub>38</sub>	$O^-+O_2^- \rightarrow O+O_2$	$K_{38}=2 \times 10^{-6} x(300/Tg)^{-0.5}$	[15]

## Référents bibliographiques

- [1] Bolsig+, Kinema Software, [On-line]: <http://www.siglo-Kinema.com>
- [2] Lee, D.B. Graves, M.A. Lieberman and D.W. Hess "Global Model of Plasma Chemistry in a High Density Oxygen Discharge." *J. Electrochem. Soc.* 141(6), 1546-1555 (1994).
- [3] Gudmundsson, J.T, *Notes on the Electron Excitation Rate Coefficients for Argon and Oxygen Discharge*, Technical Report RH-21-2002, Science Institute, University of Iceland, Reykjavik, Iceland (2002).
- [4] Christensen, L.V, D.Kella, D.Mathur, H.B.Pedersen, H.T.Schmidt and L.H.Andersen, "Electron-impact detachment from negative ions". *Phys. Rev. A.* 53(4), 2371–2378 (1996).
- [5] A.V Phelps. *Tabulations of Collision Cross Sections and Calculated Transport and Reaction Coefficients for Electron Collisions with O<sub>2</sub>*. Report Number 28, University of Colorado, Boulder, CO: JILA Information Center (1985).
- [6] A.Belasri, Z.Harrache, and T.Baba-Hamed, High Pressure Electric Discharge Model Applied to the Halogen Depletion Instability Development in a XeCl Phototriggered Laser, *Physics of Plasmas*, 10 (12), 4874–80 (2003).
- [7] J. C. Person, D. O. Ham, *Removal of SO<sub>2</sub> and Nox from Stack Gases By Electron Beam Irradiation*, *Radiat. Phys. Chem.* 31(1-3), 1-8 (1988).
- [8] Y.Itikawa, M.Hayashi, A.Ichimura, K.Onda, K.Sakimoto, K.Takayanagi, M.Nakamura, H.Nishimura, T.Takayanagi, *Cross Sections for Collisions of Electrons and Photons with Nitrogen Molecules*, *J. Phys. Chem. Ref. Data.* 15(3), 985-1010 (1986).
- [9] J.Van Durme, Development of heterogeneous plasma catalysis for the abatement of health damaging organic micropollutants in indoor environments, PhD Thesis, Ghent University (2008).
- [10] M.Capitelli, C.M.Ferreira, B.F.Gordiets, A.I.Osipov, *Plasma Kinetics Atmospheric Gases*, Springer, (2000).
- [11] R.Dorai, *Modeling of Atmospheric Pressure Plasma Processing of Gases and Surfaces*, Ph. D.thesis, University of Illinois at Urbana-Champaign (2002).

- [12] B.Eliasson,U.Kogelschatz, *Basic Data for Modelling of Electrical Discharge in Gases*, Oxygen Technical Report KLR 86-11 C, Brown Boveri, (1986).
- [13] O.Eichwald,N.A.Guntoro.M.Yousfi and M.Benhenni, *Chemical Kinetics with Electrical and Gas Dynamics Modelization for NO<sub>x</sub> Removal in an Air Corona Discharge*, *J. Phys*, 35(5),439–450 (2002).
- [14] I. A. Kossyi, A.Yukostinsky,A.A.Matveyev, V. P. Silakov,*Kinetic Scheme of the Non-Equilibrium Discharge in Nitrogen-Oxygen Mixtures* ,*Plasma Sources Sci. Technol.*1(3),207-220 (1992).
- [15] R.E.Olson,J.R.Peterson,J.Moseley, *Ion-Ion Recombination Total Cross Sections2AAtomic Species*, *J. Chem. Phys*, 53(9),3391 (1970).



Mémoire de Master en Physique de l'Université Abou Bekr Belkaid – Tlemcen  
Spécialité : Physique des Plasmas  
Présenté par :  
Melle SIFI HAYAT



## RÉSUMÉ

Pour engendrer proprement et moins cher, les industries chimiques tentent optimiser les procédés et développer des voies de synthèse de particule chimique tel que l'ozone en choisissant la fonctionnalisation par plasma  $O_2$ .

Ce mémoire de master propose l'exploration des nouvelles réactivités qui se produisent au sein d'un gaz pur de d'oxygène traversé par une décharge couronne caractérisé par ces propriétés physique a savoir la géométrie du réacteur qui est du type fil –cylindre un champ réduit appliqué pour des valeurs allant de 100 a 200 Td dans des conditions de température ambiante et pression atmosphérique.

La simulation numérique de notre modèle mathématique tient compte des espèces suivantes :  $e^-$ ,  $O_2$ ,  $O_3$ ,  $O$ ,  $O_2(A_1)$ ,  $O^-$ ,  $O_2^-$  et  $O_3^-$  réagissant entre elles suivant 48 réactions chimiques préalablement sélectionnées

La mise en évidence des résultats montre le rôle joué par différentes réactions chimiques sur la production et ou la réduction de  $O_3$ , cette évolution est étroitement liée au champ électrique réduit, et que la synthèse de l'ozone est accompagnée par l'apparition et la disparition d'autres espèces.

## MOTS CLÉS

Plasma  $O_2$ , Décharge couronne, Réactivités du gaz, Simulation numérique, Synthèse de l'ozone

## ABSTRACT

To generate cleanly and less expensively, chemical industries are trying to optimize processes and develop pathways for the synthesis of chemical particles such as ozone by choosing functionalization by plasma  $O_2$ .

This master's thesis proposes the exploration of new reactivities which occur within a pure oxygen gas crossed by a corona discharge characterized by these physical properties namely the geometry of the reactor which is of the wire-cylinder type a field reduced applied for values ranging from 100 to 200Td under conditions of ambient temperature and atmospheric pressure.

The numerical simulation of our mathematical model takes into account the following species  $e^-$ ,  $O_2$ ,  $O_3$ ,  $O$ ,  $O_2(A_1)$ ,  $O^-$ ,  $O_2^-$  and  $O_3^-$  reacting with each other following 48 previously selected chemical reactions.

Highlighting the results shows the role played by different chemical reactions on the production and/or reduction of  $O_3$ , this evolution is closely linked to the reduced electric field, and that the synthesis of ozone is accompanied by the appearance and disappearance of other species.

## INDEX TERMS

Plasma  $O_2$ , Corona discharge, Gaz reactivities, Numerical simulation, Ozone synthesis.

## ملخص

لانتاج المواد الكيميائية بشكل فعال و بتكلفة منخفضة تحاول صناعات الكيمياء تحسين العمليات و تطوير طرق تخليق الجزيئات الكيميائية

مثل الاوزون باختبار تفعيل بواسطة البلازما .

يقترح هذا الأطروحة للماستر استكشاف تفاعلات جديدة تحدث داخل غاز الاوكسجين النقي المعبر عنه بتصريح الكورونا والذي يتميز بخصائصه الفيزيائية مثل هندسة المفاعل التي تكون من نوع الاسطوانة والحقل المنخفض المطبق بقيم تتراوح بين 100 و 200 تيرا لظروف درجة حرارة الغرفة و الضغط الجوي.

تأخذ المحاكاة الرقمية لنموذجنا الرياضي في الاعتبار الكائنات التي تتفاعل مع  $e^-$ ،  $O_2$ ،  $O_3$ ،  $O$ ،  $O_2(A_1)$ ،  $O^-$  و  $O_3^-$

بعضها البعض بناء على 48 تفاعلا كيميائيا تم اختيارها مسبقا.

توضح النتائج الدور الذي تلعبه مختلف التفاعلات الكيميائية في انتاج او تخفيض الاوزون ، وهذا التطور يرتبط ارتباطا وثيقا بتخفيض الحقل الكهربائي، وأن تخليق الاوزون يرافق ظهور و اختفاء كائنات اخرى.

## الكلمات الدالة

البلازما  $O_2$ ، تفريغ كورونا ، تفاعلات الغاز ، المحاكاة العددية ، تركيب الاوزون