HAL
open science

Étude des décharges électriques impulsionnelles à pression atmosphérique dans les milieux poreux et/ou alvéolaires

Pierre Le Delliou

To cite this version:

Pierre Le Delliou. Étude des décharges électriques impulsionnelles à pression atmosphérique dans les milieux poreux et/ou alvéolaires. Physique des plasmas [physics.plasm-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2014. Français. NNT : 2014PA112164 . tel-01062681

HAL Id: tel-01062681

https://theses.hal.science/tel-01062681v1

Submitted on 10 Sep 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

ECOLE DOCTORALE : ONDES ET MATIERES

Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas

THESE DE DOCTORAT

Pour l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS-SUD XI

Spécialité : PHYSIQUE DES PLASMAS

Soutenue le 21 juillet 2014

Par Pierre Le Delliou

Etude des décharges électriques impulsionnelles à pression atmosphérique dans les milieux poreux et/ou alvéolaires

Directeur de thèse :	Pierre TARDIVEAU	MCF-Université Paris-Sud
Composition du jury :		
Président du jury :	Tiberiu MINEA	PR2-Université Paris-Sud
Rapporteurs :	Thierry CALLEGARI	MCF-Université de Toulouse
	Eric ROBERT	CR1-Université d'Orléans
Examinateurs :	Anne BOURDON	DR2-Ecole Centrale Paris
	Sergey PANCHESHNYI	Principal Scientist-ABB Corporate
Membres invités :	Karol HENSEL	Associate Professor

Remerciements

Le travail présenté dans ce manuscrit a été réalisé au Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas et résume mes travaux de thèse sur l'étude des décharges électriques impulsionnelles à pression atmosphérique dans les milieux poreux et/ou alvéolaires. Je tiens à remercier l'ensemble des personnes côtoyées au cours de mes travaux sans qui rien n'aurait été possible.

Je voudrais remercier en premier lieu Pierre Tardiveau, mon directeur de thèse, qui m'a permis de réaliser ce travail. Je le remercie pour ses conseils et son soutien apportés tout au long de ma thèse malgré les difficultés rencontrées. Je tiens ensuite à remercier Stéphane Pasquiers, directeur de l'équipe DIREBIO, co-directeur du laboratoire, et responsable du projet ALVEOPLAS pour m'avoir accordé sa confiance.

Ces travaux de thèse s'inscrivent dans le cadre de ce projet ANR ALVEOPLAS (Grant No ANR-08-BLAN-0159-01) dont je remercie l'ensemble des intervenants. Je tiens particulièrement à remercier Anne Bourdon et son équipe du laboratoire EM2C Centrale Paris, pour toutes les réunions réalisées où nos discussions aussi intéressantes que passionnantes furent déterminantes quant au bon déroulement du projet et à l'écriture de ce manuscrit. Je remercie ainsi Jaroslav Jánský, François Peschereau et Fabien Tholin pour leurs contributions au projet.

Je voudrais remercier également Eric Robert et Thierry Callegari pour avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse. Je remercie également Tiberiu Minea, Anne Bourdon et plus particulièrement Sergey Pancheshnyi et Karol Hensel au regard des longs déplacements exigés, pour avoir fait partie du jury.

Je voudrais remercier ensuite l'ensemble de l'équipe DIREBIO pour tous les bons moments passés. Je tiens à remercier tout particulièrement Pascal Jeanney et Gérard Bauville pour leurs travaux et nos discussions consacrés aux divers montages expérimentaux.

Je remercie également Thibault Darny et Pierre Favier avec qui j'ai pris plaisir à travailler au cours de leurs stages respectifs relatifs à mes travaux de thèse.

Je voudrais remercier enfin toute ma famille ainsi que tous mes proches pour m'avoir soutenu au cours de cette thèse. Je tiens à remercier tout particulièrement ma mère qui a toujours été présente pour moi, et à qui je dédie ce manuscrit.

Introduction

Chapitre 1

Contexte et présentation de l'étude

A. Généralités sur les plasmas 5
1. Qu'est-ce qu'un plasma ? 5
2. La physique des plasmas dans la recherche et l'industrie 6
3. Les plasmas hors équilibre thermodynamique 7
a. Généralités 7
b. Les plasmas hors équilibre générés à P_{atm} 9
c. Configuration des réacteurs plasmas 13

B. Contrôle de la pollution par plasma. 15
1. Catalyse hétérogène seule : historique, principe et limites. 16
2. Le plasma, un outil pour la dépollution 19
3. Couplage plasma / catalyse 24
a. Système de catalyse à deux étages. 25
b. Système de couplage plasma/catalyse intégré 26

C. Plasmas hors-équilibre en milieu confiné 28
1. Etat de l'art 28
2. Problématiques de l'étude des décharges confinées 29
3. Approche expérimentale et modélisation sur des structures élémentaires 32

Chapitre 2

Montages et diagnostics expérimentaux

A. Présentation générale du montage 39

B. Le bloc d'alimentation électrique 40
1. L'alimentation haute tension pulsée 41
a. Génération de la haute tension 41
b. Mise en forme par éclateur à gaz et lignes coaxiales 42
2. L'adaptation en impédance 43
a. Théorie de propagation du signal 43
b. Maîtrise de l'impédance et du déclenchement 44
3. Sondes de tension 46

C. Le bloc optique 49
1. Présentation générale 49
2. Principe et modes opératoires 51
a. L'intensificateur 51
b. Reprise d'image CCD 52
c. Modes de fonctionnement 53
3. Synchronisation expérimentale des caméras 53

D. Le bloc réacteur : décharges et mesures 55
1. Réacteur de confinement radial des décharges 55
a. Structure mono-capillaire 57
b. Mesure de courant unique 59
c. Mesures optiques 59
2. Réacteur de confinement longitudinal des décharges 61
a. Membranes et système de fixation 64
b. Mesure de courants multiples 66
c. Mesures optiques 67
3. Traitement des données 69
a. Cas du traitement des signaux électriques 69
b. Cas du traitement des images 70
4. Conclusions et couplage au modèle numérique 70

Chapitre 3

Etude du confinement radial de décharges électriques nanosecondes en présence d'un capillaire

A. Corrélation des diagnostics 76

B. La décharge sans contrainte 79

C. Décharge contrainte radialement par la présence d'un capillaire 84
1. Influence de la géométrie sur le profil de la décharge 85
a. Cas des capillaires de sections carrées et rectangulaires 85
b. Cas des capillaires de sections circulaires 86
2. Les effets de la géométrie sur la vitesse de propagation 90
a. Cas de capillaires aux sections carrées et rectangulaires 90
b. Cas des capillaires à section circulaire 93
c. Discussion sur la comparaison expérience/modélisation 96
3. Effet de la permittivité diélectrique des capillaires 98
4. Influence de l'épaisseur des capillaires 102

D. Spectroscopie d'émission dans le cas de capillaire à section circulaire. 105
1. Caractérisation optique de la décharge 105
2. Etude spectrométrique de la décharge confinée 109

Chapitre 4

Etude du confinement axial des décharges par la présence de membranes poreuses ou non

A. Phénoménologie de la décharge axialement confinée : corrélation des diagnostics 116
1. La propagation de la pointe vers la membrane 118
2. La propagation radiale au voisinage de la membrane 119
3. La propagation de la membrane vers le plan 122
4. Corrélation courants / images sur un cas test 123

B. La décharge sans contrainte 126

C. Décharge contrainte axialement par la présence d'une membrane 132
1. Propagation d'une décharge axialement confinée par une membrane diélectrique non poreuse 132
a. Etude de l'influence de la position de la membrane 132
1) Influence de la position sur la propagation pointe/membrane 132
2) Influence de la position sur la propagation radiale au voisinage de la membrane 134
3) Influence de la position sur la propagation membrane/plan 136
b. Etude de l'influence de la permittivité diélectrique de la membrane 139
1) Influence de la permittivité diélectrique de la membrane sur la propagation dans le premier gap d'air 140
2) Influence de la permittivité diélectrique de la membrane sur la propagation radiale de la décharge 140
3) Influence de la permittivité diélectrique sur la propagation membrane/plan 142
c. Etude de l'influence de l'épaisseur sur la propagation de la décharge 143
1) Influence de l'épaisseur sur la propagation pointe/membrane 143
2) Influence de l'épaisseur sur la propagation au voisinage de la membrane 144
3) Influence de l'épaisseur sur la propagation membrane/plan 146
d. Comparaison expériences/simulations et discussion 148
1) Cas sans contrainte 148
2) En présence d'une membrane diélectrique non poreuse 150
2. Propagation au travers de membranes poreuses 156
a. Comparaison des comportements de décharges confinées par membrane poreuse et non poreuse. 156
b. Etude paramétrique de la propagation pointe-membrane 157
c. Propagation radiale au voisinage de la membrane poreuse 159
d. Effets sur la propagation membrane/plan 161
1) Influence de l'épaisseur 162
2) Influence de la porosité 163

Conclusion

Annexes **175**

Bibliographie **179**

Introduction

Ce manuscrit est dédié aux travaux de thèse consacrés à l'étude des décharges nanosecondes pulsées à pression atmosphérique se propageant au sein de milieux poreux et/ou alvéolaires. Ce travail s'articule plus particulièrement autour de l'étude paramétrique des décharges confinées submillimétriquement à l'aide de structures diélectriques élémentaires comme des capillaires ou des membranes.

Depuis les années 2000, les micro-décharges sont largement étudiées pour leurs nombreuses applications réelles et potentielles. Si la possibilité de générer des décharges au sein de microcavités a été démontrée dès les années 1950, ce sont les récentes avancées technologiques dans des domaines comme la microélectronique ou la dépollution, ainsi que l'émergence des applications plasma médecine, qui ont donné un regain d'intérêt pour ce type de décharges.

Dans le secteur de la dépollution, le couplage plasma catalyse a démontré son grand potentiel notamment pour le traitement des gaz faiblement pollués et de faibles flux. Ce couplage, dont l'effet synergétique entre l'action du plasma et celle du catalyseur a largement été démontré, implique la génération de micro-décharges se propageant directement au sein de microcavités ou de micropores. Si les lits de billes sont les supports catalytiques les plus couramment utilisés, des études ont récemment montré la possibilité de propager des décharges directement au sein de céramiques poreuses plus ou moins organisées pour lesquelles les surfaces spécifiques sont souvent optimisées. Les mécanismes autorisant et régulant la propagation de ces décharges confinées, dont les propriétés oxydantes contribuent aux processus de dépollution, ainsi que leurs interactions avec le milieu dans lequel elles sont générées, sont pourtant toujours méconnus. Ce travail propose ainsi d'étudier expérimentalement l'influence du confinement de décharges nanosecondes générées dans l'air à pression atmosphérique.

Ce manuscrit retranscrit l'ensemble des travaux expérimentaux effectués au Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas (LPGP) au cours de mes années de thèse sous la direction de Pierre Tardiveau. Cette étude s'inscrit dans le cadre du programme ANR ALVEOPLAS (Grant n°ANR-08-BLAN-0159-01) focalisé sur l'étude des décharges électriques nanosecondes se propageant au sein de milieux alvéolaires et/ou poreux. Ce programme implique plusieurs laboratoires aux expertises diverses, et permet ainsi la confrontation des approches théorique, expérimentale et numérique du problème. Une étroite collaboration avec le laboratoire EM2C attaché au volet modélisation des décharges confinées a notamment été menée au cours de cette thèse. La confrontation des résultats obtenus a largement contribué à l'interprétation des résultats et a conduit à plusieurs publications.

L'objectif principal de cette thèse est donc d'identifier les mécanismes responsables de la propagation des décharges dans des espaces confinées et de définir les influences des divers paramètres mis en jeu. Comme la décharge est directement au contact du matériau, les paramètres considérés seront principalement les conditions

électriques de génération de la décharge ainsi que ceux propres au matériau comme sa permittivité électrique, son épaisseur, ou encore sa géométrie…

Ce manuscrit, dédié à l'ensemble des résultats obtenus ainsi que leurs interprétations, est organisé en quatre chapitres.

Le chapitre 1 introduit le contexte dans lequel s'inscrit cette thèse. Après une brève présentation de la physique des plasmas et plus particulièrement de celle des plasmas hors équilibre à pression atmosphérique, ce chapitre sera consacré à présenter la pertinence du sujet notamment pour une des applications potentielles des micro-décharges : la dépollution. Le programme Alveoplas sera enfin détaillé afin de préciser les objectifs de ce travail de thèse.

Le chapitre 2 est consacré à la présentation des réacteurs expérimentaux, des diagnostics de pointe utilisés et de la méthode du traitement de données effectuée. Une présentation générale du montage montrera qu'il est possible de subdiviser les différents montages en blocs, le bloc électrique, le bloc optique et le bloc réacteurs et mesures.

Le chapitre 3 présente l'ensemble des résultats obtenus concernant l'étude du confinement radial des décharges par la présence d'un capillaire. Après la présentation de la corrélation des diagnostics optiques et de courant, ce chapitre présentera une étude de la décharge sans contrainte afin de mieux comprendre le rôle du confinement. Ensuite, l'étude paramétrique de l'influence du confinement radial sur la propagation et la structure de la décharge sera présentée. Enfin, une étude de spectroscopie d'émission sur des décharges radialement confinée sera développée.

Le chapitre 4 sera dédié quant à lui à l'étude du confinement axial des décharges par la présence de membranes diélectriques poreuses ou non. De la même manière que précédemment, une étude de la décharge sans contrainte fera office de témoin pour mieux interpréter l'influence du confinement axial sur la propagation des décharges. Ensuite, nous distinguerons l'importance du critère poreux ou non de la membrane sur la propagation en détaillant dans chacun des cas les influences des paramètres électriques de la décharge et ceux propres au matériau de confinement utilisé (épaisseur, permittivité diélectrique…).

Chapitre 1

Contexte et présentation de l'étude

A.Généralités sur les plasmas

1. Qu'est-ce qu'un plasma ?

Le plasma est un gaz partiellement ou totalement ionisé, qui combine des propriétés électromagnétiques, chimiques et fluides. Il représente plus de 99% de la matière connue de l'univers (étoiles, vent solaire…) [1]. Sur Terre, les plasmas naturels sont très rares (éclairs, aurores boréales), à l'inverse des plasmas artificiels, très présents dans de nombreuses industries de technologie de pointe comme la microélectronique, le traitement de surface, la propulsion spatiale, l'aviation [2-8]…

Du point de vue du physicien, il présente de nombreuses propriétés qui font appel à différents champs de connaissance : la physique atomique (collisions, spectroscopie), la physique des fluides et des processus de diffusion, l'électromagnétisme, la chimie réactionnelle, ou même la physique hamiltonienne et la théorie du chaos…

L'état plasma est fortement non linéaire puisque le mouvement des particules chargées est régi par le champ électromagnétique via les forces de Laplace et de Coulomb, et ce mouvement individuel des particules amène à des distributions de charges et de courant qui alimentent le champ électromagnétique. Ainsi, il est soit non linéaire (ionisation, chimie), soit auto-organisé (séparation de charge d'espace et réorganisation du potentiel électrique) soit turbulent. La dénomination générique de « matière ionisée » ne doit pas faire oublier que l'état plasma ne se limite pas à une plage restreinte de paramètres physiques, mais englobe une grande variété de situations : de l'ultravide à des pressions de plusieurs centaines d'atmosphère, du purement électrostatique au hautement magnétisé, thermique ou non…

De manière générale, la densité n_e et la température électroniques T_e du plasma sont les paramètres essentiels à considérer pour la classification des plasmas. Il peut alors être catégorisé selon son degré d'ionisation défini par le rapport :

$$\boxed{\delta = \frac{n_e}{n_e + N}}$$ où n_e est la densité électronique et N la densité des neutres

Selon la valeur de δ, les plasmas sont alors classés en deux grandes catégories :

- Les plasmas fortement ionisés ($10^{-3} < \delta < 10^{-1}$). Ces plasmas sont dits chauds car pour ces degrés d'ionisation élevés, la population électronique est suffisamment importante pour assurer un chauffage global du gaz. Ces plasmas sont donc généralement proches de l'équilibre thermodynamique.

- Les plasmas faiblement ionisés ($10^{-6} < \delta < 10^{-4}$). Ces plasmas sont dits froids puisque la population électronique très minoritaire n'est pas suffisante pour assurer un chauffage significatif du gaz.

Ces plasmas faiblement ionisés sont donc dits hors équilibre (thermodynamique), les populations se trouvant à des températures moyennes très différentes :

$$T_{neutre} < T_{ion} << T_{électron}$$

Les plasmas nous intéressant dans ce travail sont des plasmas hors équilibre à pression atmosphérique. Ces plasmas, chimiquement réactifs, possèdent des températures électroniques de l'ordre de plusieurs électrons-volts (eV) typiquement, nécessaires à l'obtention de collisions ionisantes et aux réactions d'excitation et de dissociation. Ces plasmas sont soit homogènes soit inhomogènes en fonction du gaz utilisé, du type de décharge, ou comme nous le verrons, en fonction des conditions électriques de génération de la décharge. Nous présenterons plus en détails ce type de plasma dans la section 3 de ce chapitre.

2. La physique des plasmas dans la recherche et l'industrie

La communauté scientifique des plasmiciens est très active en Europe et à travers le monde. Les recherches dédiées aux procédés plasmas, aux plasmas astrophysiques et aux plasmas de fusion concernent des centaines de laboratoires et d'entreprises. En France, les principales organisations publiques que sont l'université, le CNRS, l'ONERA et le CEA développent toutes des recherches dans le domaine de la physique des plasmas. De très gros projets sont également financés à l'échelle européenne comme les projets ITER, ou encore le Laser Megajoule…

Conjointement au développement de ces grands projets académiques, nous pouvons retrouver la présence des plasmas dans de nombreux domaines industriels :

- L'aérospatial où l'on peut citer les propulseurs spatiaux à effet Hall, les propulseurs Vasimir, ou encore les générateurs MHD.

- La microélectronique, où les réacteurs plasmas sont indispensables notamment pour la gravure du silicium ou pour le dépôt de couches minces.

- Le multimédia au travers des écrans plats, des ordinateurs, des téléphones…

- Le traitement de surface des métaux, des polymères et de biomatériaux ainsi que la modification de l'énergie de surface qui permettent, via un traitement plasma, de donner des propriétés particulières au matériau traité [9, 10]. Nous pouvons citer à titre d'exemple, la modification de la mouillabilité des surfaces de polymères, utilisées dans l'industrie agroalimentaire (emballages) ou encore dans l'industrie automobile (pare-brise hydrophobe) qui sont autant de procédés en développement. [11-13]

- Un autre domaine en plein essor utilisant les procédés plasmas concerne le contrôle de la pollution et la stérilisation [14,16]. C'est dans ce cadre que s'inscrit l'étude présentée dans ce manuscrit.

3. Les plasmas hors équilibre thermodynamique

a. Généralités

Un plasma est dit hors équilibre ou «froid» lorsque les particules qui le composent, électrons, ions, atomes et molécules, possèdent des énergies moyennes très différentes, et où la fonction de distribution des électrons est souvent très éloignée d'une distribution Maxwellienne. A titre d'exemple, dans ces plasmas, l'énergie moyenne des électrons peut être de plusieurs électrons-volts (eV) tandis que la température du gaz reste autour de 300°Kelvin (K).

Dans un plasma hors équilibre, l'énergie peut être transmise aux électrons de différentes manières. Des sources continues, radiofréquences, micro-ondes, à confinement magnétique, *etc.*, peuvent en effet assurer le « chauffage » des électrons. Ces derniers vont alors transmettre leur énergie sous forme d'excitation, de dissociation, d'ionisation et de collisions élastiques dans le milieu. Selon le type de décharge générée, soit parce que la densité d'énergie déposée ou le courant sont suffisamment faibles, soit parce que le chauffage des électrons par la source est rapidement stoppé, les atomes et molécules excités ne restituent que partiellement cette énergie aux électrons par collisions super-élastiques. Dans ces plasmas, ce sont donc principalement les électrons qui disposent de l'énergie dans le milieu.

De manière générale, une décharge est caractérisée par la tension de claquage du gaz dans lequel elle est générée. Cette tension disruptive est la tension minimale requise aux bornes des électrodes afin d'assurer le claquage du gaz. Cette valeur seuil va dépendre de la température du gaz, de la pression et de la distance inter-électrodes. Dans l'air, Ritz et al.[17] montrent empiriquement qu'elle répond à la relation suivante :

$$\boxed{V_c(T,P,d) = A.\rho(T,P).d + B\sqrt{\rho(T,P).d}}$$

avec A et B des constantes, ρ et d respectivement la densité du gaz et la distance inter-électrodes.

Plus que tout autre paramètre, c'est donc le produit de la pression par la distance inter-électrodes qui va principalement jouer sur le développement du plasma. Il existe ainsi des conditions de claquage propre à chaque gaz qui vont dépendre du produit P×d.[18]Dans une configuration de champ uniforme et à température fixée, Paschen a démontré empiriquement que la loi entre la tension de claquage au sein du volume et le produit Pd pouvait s'écrire :

$$\boxed{V_c^T(P,d) = \frac{C.P.d}{D + \ln(P.d)}}$$

où C et D sont des constantes qui dépendent de la nature du gaz et des électrodes.

Quelque soit la nature du gaz, la tension de claquage présente un minimum $V_{c\,\min}^T$ comme le montre la Figure 1.

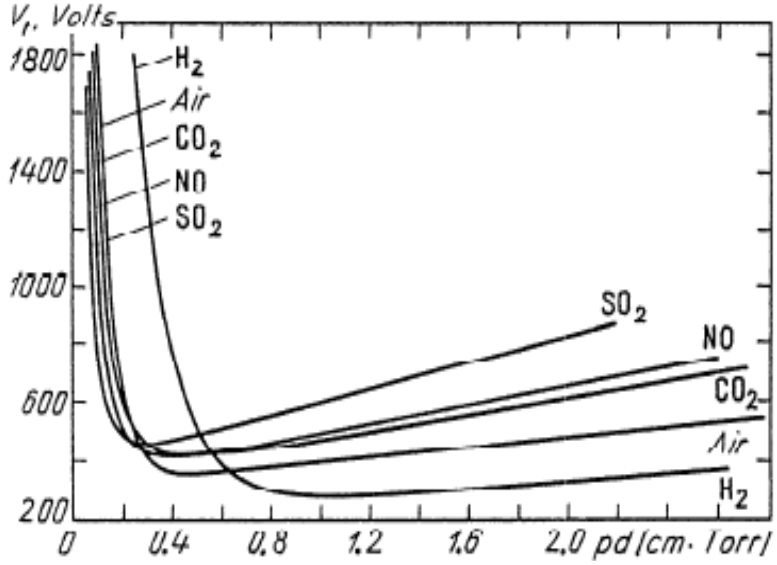


Figure 1. Courbes de Paschen pour différents gaz [18]

Dans les conditions d'obtention de ce minimum, la capacité d'ionisation des électrons dans le gaz est maximale. Aux petites valeurs de ce produit, le libre parcours moyen des électrons, c'est-à-dire la distance qu'un électron parcourt en moyenne entre deux collisions, devient grand devant la distance inter-électrodes, et il n'y a plus suffisamment de collisions ionisantes pour entretenir le plasma. Il est donc nécessaire d'augmenter le champ électrique afin d'augmenter la probabilité d'ionisation des neutres lors de chaque collision. A l'inverse, à droite de ce minimum, le nombre de molécules y est plus important et donc la fréquence de collision électrons-neutres l'est aussi. Le libre parcours moyen des électrons diminue, et les électrons n'ont alors plus le temps d'accélérer suffisamment pour obtenir une énergie nécessaire afin d'ioniser les neutres par collision. En augmentant le champ électrique, les électrons gagnent davantage en énergie entre deux collisions, compensant la diminution du libre parcours moyen en favorisant la probabilité d'ionisation.

De manière générale, plusieurs modes de claquage existent dans les gaz, le claquage de type Townsend décrit par la courbe de Paschen, le claquage de type streamer, et le claquage de type arc. La surtension $K=(U-U_{claquage})/U_{claquage}$ appliquée, va déterminer le régime de claquage adopté par la décharge. Y.D. Korolev et al. [19] ont représenté les domaines des deux premiers types de claquage dans l'air, en fonction de K et de la valeur du produit P*d de travail. Cette courbe, illustrée par la Figure 2 issue de [20], montre ainsi que pour d de l'ordre du centimètre, à basse pression, le claquage est de type Townsend qui amène à la génération de décharges homogènes (régime «glow»). La théorie de Townsend repose sur la multiplication d'avalanches électroniques avec comme source d'électrons secondaires, l'émission par bombardement ionique à la cathode. Dans ces conditions, la dynamique du processus de claquage est déterminée par le coefficient d'amplification électronique α lié en partie à la nature du gaz, par le coefficient d'émission secondaire γ lié à la nature de la cathode, et par le temps de transit des ions dans le gap inter-électrodes [21].

Pour d de l'ordre du centimètre, et P=1atm=760Torr, dès que K excède 10%, la théorie de Townsend n'est plus valable, et le claquage est de type streamer.

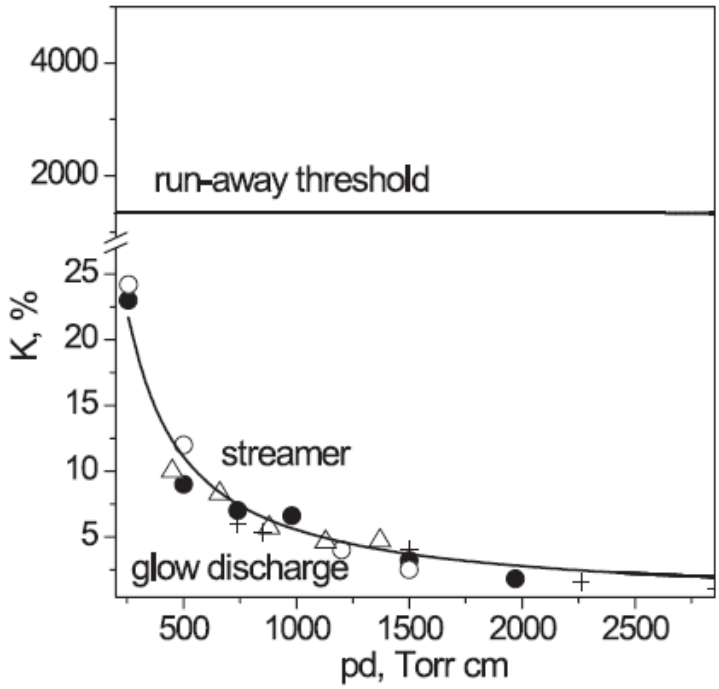


Figure 2. Domaines de génération des différents types de claquage par rapport à la surtension appliquée dans l'air [20].

Dans le cas de décharges nanosecondes pulsées, où K peut être de l'ordre de plusieurs centaines de pourcents, un autre régime peut également avoir lieu. En particulier, à basse pression et pour une grande distance inter-électrodes, des décharges appelées ondes d'ionisation rapides (« Fast Ionization Waves ») peuvent être générées, caractérisées par leur grand volume et leur grande vitesse de propagation (10^9cm.s^{-1}). Ces propriétés sont permises du fait de la superposition d'avalanches électroniques due à la génération d'électrons extrêmement énergétiques, continûment accélérés, appelés électrons run-away. Ces derniers permettent une forte pré-ionisation du volume en amont de la décharge, lui conférant une structure plus diffuse [22-24].

b. Les plasmas hors équilibre générés à P_{atm}

Afin de réduire les coûts des procédés plasmas et leur encombrement, il peut être très intéressant pour de nombreuses applications de s'affranchir des systèmes de mise sous vide habituellement utilisés, et de fonctionner ainsi à pression atmosphérique. Aux grandes valeurs du produit pression distance inter-électrodes, le libre parcours moyen des électrons devient très faible devant la distance inter-électrodes ce qui rend négligeable la contribution des surfaces au développement de la décharge, favorise une thermalisation rapide des électrons et permet une forte ionisation dans de petits volumes [25]. Les temps caractéristiques de claquage à haute pression sont beaucoup plus courts (~10^{-9}ns) et ne peuvent plus être expliqués par le mécanisme d'avalanches électroniques successives assistées par l'émission secondaire à la cathode. La tension disruptive n'est donc pratiquement plus influencée par le matériau constituant la cathode pour ce type de claquage.

Pour interpréter le mécanisme de propagation du plasma à pression atmosphérique, une nouvelle théorie a été développée qui repose sur les mécanismes de propagation du streamer. Un streamer est une charge d'espace qui va se propager de proche en proche, comparable à une onde d'ionisation. Les mécanismes responsables de sa propagation dépendent du critère positif ou négatif du streamer, selon qu'il se propage respectivement de l'anode vers la cathode ou inversement [18, 26].

L'application d'une différence de potentiel entre deux électrodes va permettre d'accélérer d'éventuels électrons libres environnants. Dans le cas d'un gaz neutre, ces électrons libres peuvent être créés par radiations cosmiques, avec un taux égal à 10^{-2} électrons par cm^3 et par seconde, auxquels s'ajoutent ceux issus de la désintégration d'éléments radioactifs présents dans l'air (~10 $e^-.cm^{-3}.s^{-1}$). Une faible densité initiale d'électrons libres de l'ordre de 10^3 à 10^5 cm^{-3} est ainsi disponible naturellement dans l'air à pression atmosphérique [27]. Dans le cas de décharges répétitives, si la cadence de répétition est suffisamment élevée, des ions négatifs, du type O_2^-, générés par la première décharge peuvent alors devenir une source conséquente d'électrons par phénomène de détachement pour la seconde [28]. La distribution de ces ions négatifs influence ainsi la propagation de la décharge suivante puisque cet effet mémoire du gaz favorise la propagation des streamers le long des mêmes canaux pré-ionisés par la précédente décharge. Ainsi, d'après Pancheshnyi et al., dans les gaz électronégatifs comme l'air ou les gaz contenant de l'oxygène et même dans le cas de décharges répétitives à basse fréquence (~0.5Hz), 10^5 à 10^7 $e^-.cm^{-3}.s^{-1}$ seraient disponibles dans le volume.

Lorsque le champ réduit $\mathbf{E_0}/N$ devient supérieur au champ critique, défini par l'égalité des coefficients d'ionisation α et d'attachement η, une première avalanche électronique peut se former. Les premiers électrons acquièrent alors suffisamment d'énergie sous l'effet du champ appliqué pour ioniser les molécules du gaz par collisions, et produire ainsi d'autres électrons. En configuration plan-plan, comme schématisé Figure 3, ces électrons, dont la vitesse de dérive est nettement supérieure à celle des ions créés, vont générer un front négatif dirigé vers l'anode, laissant ainsi un nuage positif en amont. Cette séparation engendre la création d'une charge d'espace qui peut être considérée comme un dipôle. Ce dipôle génère son propre champ électrique **E'**, qui est opposé au champ appliqué dans la zone entre les parties positives et négatives du dipôle au champ appliqué. A l'inverse, il s'y ajoute en amont, amplifiant ainsi l'accélération des électrons. Au fur et à mesure de la progression de cette avalanche électronique, **E'** devient d'autant plus intense que l'avalanche se voit multipliée et devient du même ordre de grandeur que le champ électrique appliqué $\mathbf{E_0}$. Ce dernier est donc localement écranté dans la zone se situant sous le nuage électronique qui devient provisoirement neutre, accélérant le processus d'ionisation au niveau du front de décharge.

Pour que l'avalanche primaire puisse se transformer en streamer, l'amplification doit être suffisamment importante. En configuration plan-plan, cette condition est atteinte lorsque l'avalanche primaire a généré 10^8 électrons. Cela signifie que le champ induit par le dipôle est équivalent au champ appliqué. Ce critère est appelé «critère de Raether-Meek» [29-31].

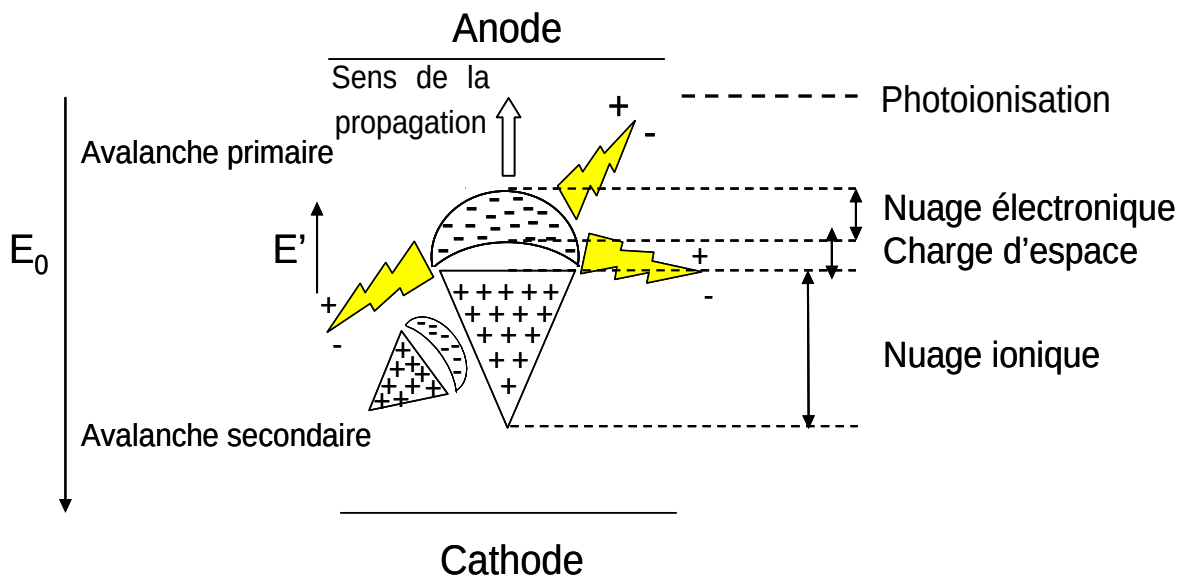


Figure 3. Schéma de l'avalanche primaire d'un claquage de type streamer positif

Dans le cas d'un streamer positif se propageant de l'anode vers la cathode, la « tête » est donc une zone attractrice d'électrons qui, pour se propager nécessite un apport continuel de nouveaux électrons en amont. A l'heure actuelle, il est communément admis que cet apport est assuré par un mécanisme de photo-ionisation [32,33]. Dans l'air, le rayonnement VUV émis par les molécules d'azote peut être absorbé par les molécules d'oxygène et ainsi créer de nouveaux électrons par photo-ionisation. Les électrons secondaires sont alors accélérés vers la charge d'espace positive et contribuent à la neutraliser. Derrière eux, ces électrons laissent une nouvelle tête positive et des espèces excitées. Ces dernières se désexcitent en émettant des photons qui, de nouveau, ionisent le gaz, et ainsi de suite. La tête positive se propage alors de proche en proche jusqu'à atteindre la cathode comme le montre la Figure 4. A la fin de la propagation, un canal faiblement conducteur est établi entre les électrodes dont le rayon est de l'ordre de la centaine de μm [34, 35]. La densité d'électrons peut atteindre dans ce canal des valeurs de 10^{14} à 10^{15} cm^{-3}.

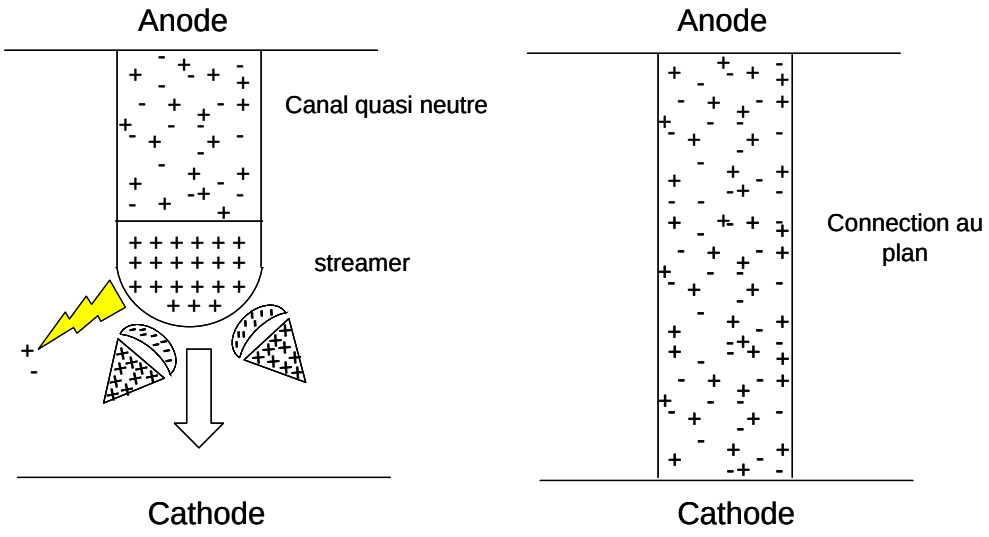


Figure 4. Propagation d'un streamer positif et connexion à la cathode

Dans un champ uniforme, si le critère de Meek est atteint à proximité de la cathode au lieu de l'anode, il y a formation d'un streamer négatif. Comme illustré par la Figure 5, issue de [18], une tête négative se propage dans ce cas dans le même sens que les électrons. Dans la zone d'amplification du champ, ils sont accélérés. Dans le canal, ils contribuent à sa neutralisation. Nous n'avons donc pas besoin dans ce cas d'une source d'électrons supplémentaires pour assurer la propagation de la décharge, même si des avalanches secondaires peuvent être également produites par photo-ionisation en aval de la tête.

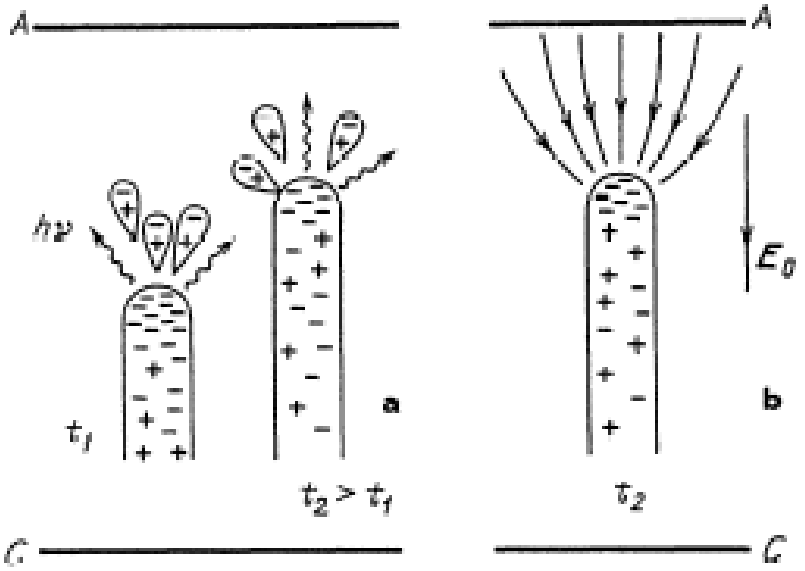


Figure 5. Propagation d'un streamer négatif.
(a) Photons et avalanches secondaires dans le front de décharge pour deux instants différents.
(b) Champ électrique au voisinage de la tête du streamer.

Une fois le contact établi entre l'anode et la cathode, si la puissance volumique dissipée dans le milieu dépasse une valeur critique sur un temps suffisamment long, le système peut se rapprocher de l'équilibre thermodynamique. En effet, si l'on augmente la densité d'énergie déposée dans le milieu, et donc la densité du plasma et la densité d'espèces excitées, le système se rapproche de la transition à l'arc électrique. Ainsi, dans beaucoup d'applications, on génère le plasma de façon impulsionnelle plutôt qu'en régime continu. Ceci permet en effet de contrôler et de limiter plus facilement l'énergie totale dissipée dans le milieu et dans certaines conditions d'éviter le passage à l'arc.

De manière générale, afin d'éviter ce passage à l'arc, plusieurs méthodes peuvent être mise en œuvre :

- Positionner un diélectrique sur le plan permettant de limiter le courant. C'est le principe des Décharges à Barrière(s) Diélectrique(s) [36].
- Diminuer le produit pression distance. C'est le principe des MicroHollow Cathode Discharge(MHCD) [37].
- Utiliser une configuration d'électrodes asymétriques (pointe–plan) qui assure la stabilité de la décharge par la distribution fortement inhomogène du champ électrique.
- Appliquer la tension sur un temps suffisamment court.

Comme nous le montrerons dans le chapitre 2, c'est une combinaison des deux dernières solutions qui a été adoptée dans le cadre de cette étude afin d'assurer le développement d'un plasma hors équilibre au sein de l'espace inter-électrodes.

A pression atmosphérique, dans l'air et en configuration plan-plan, un champ électrique de 30kV.cm^{-1} est nécessaire à la génération d'une décharge électrique, comme le montre la Figure 6, issue de [26]. Cette décharge se présente généralement sous forme de filaments, constitués en tête d'une charge d'espace et en queue d'un canal quasi neutre.

Nous avons vu pourtant que cette filamentation peut être évitée dans certains cas particuliers, par exemple sous l'effet de radiations UV, en présence de gaz rares ou encore d'une émission électronique secondaire importante. Dans le cas où les électrons possèdent des énergies très élevées (80-100eV), une décharge peut aussi prendre un aspect diffus du fait de la présence d'électrons run-away. Une pré-ionisation du gap inter-électrodes peut permettre également de donner une structure diffuse au plasma en augmentant la densité d'électrons germes au sein du gap [38].

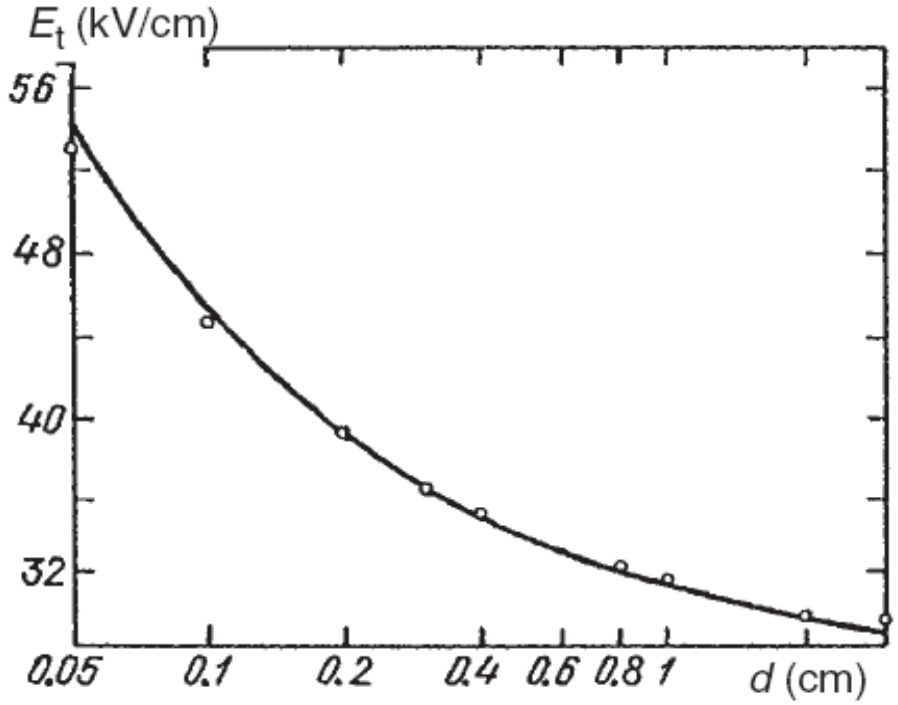


Figure 6. Champ électrique de claquage dans l'air atmosphérique [26]

c. Configuration des réacteurs plasmas

Il existe une grande variété de configurations de réacteurs plasma comme les décharges couronnes DC (courant continu), les décharges couronnes pulsées, les décharges pré-ionisées, les décharges à barrière(s) diélectrique(s) (DBD), les décharges de surfaces (gliding discharges), les décharges dans les milieux complexes (lit de billes ou packed-bed, monolithes, capillaires,...), les décharges micro-onde, les jets de plasma, les arc entravés...

Dans chacun des cas, ces réacteurs génèrent des plasmas de différentes natures selon :

- les caractéristiques électriques de l'alimentation : pulsée, DC, DC+pulse, AC (courant alternatif), AC+DC, RF (radiofréquence), micro-onde…)
- la présence ou non de diélectrique(s)
- la présence d'un milieu hétérogène
- la géométrie des électrodes

La classification de ces décharges est également déterminée par la polarité utilisée, l'amplitude de la tension appliquée et la composition du gaz. Comme la réactivité chimique de ces décharges va dépendre des modes du plasma généré [39], les technologies plasmas possèdent un énorme champ potentiel d'applications.

Dans le domaine du traitement des effluents gazeux, les configurations les plus couramment utilisées sont les réacteurs à décharges couronnes pulsées, à décharges de surfaces, les DBD, et les réacteurs de couplage plasma catalyse [40]. H H Kim [14] et al. présentent les réacteurs les plus fréquemment utilisés (Figure 7).

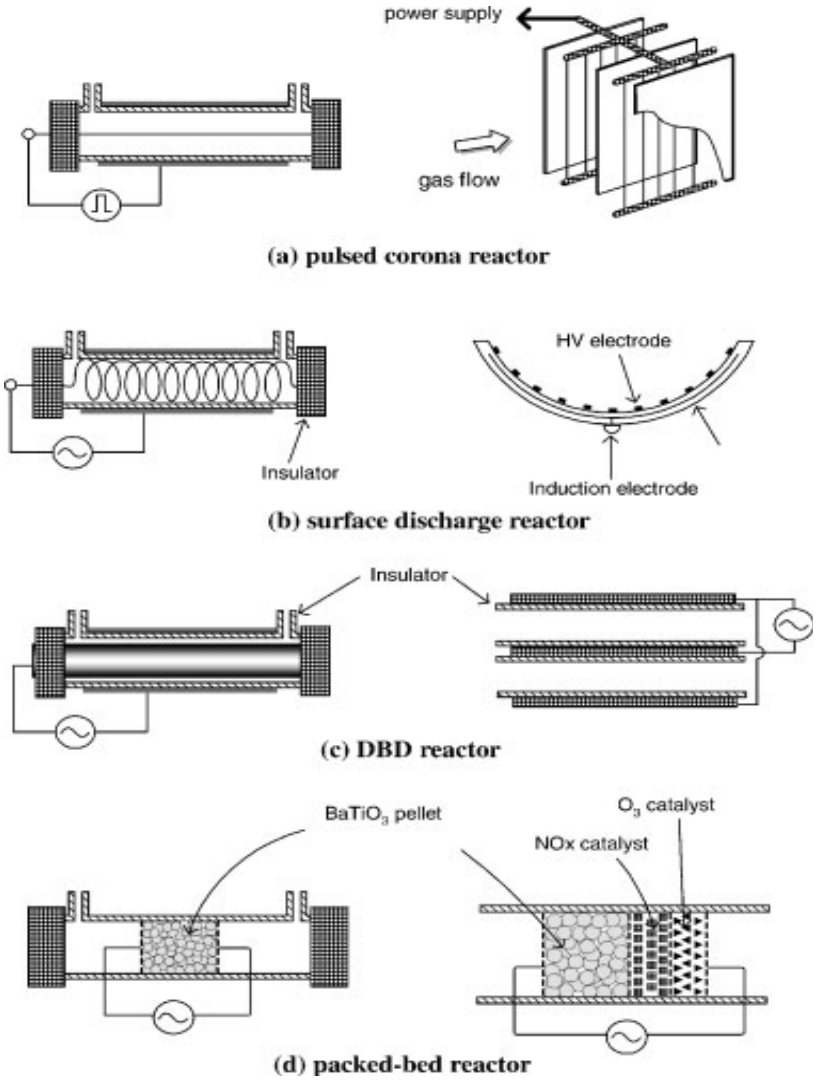


Figure 7. Configurations récurrentes des réacteurs de traitement des effluents gazeux [14]

B. Contrôle de la pollution par plasma.

Les plasmas à pression atmosphérique sont utilisés dans de nombreuses applications industrielles. Largement employés dans le domaine de la micro-électronique pour la gravure, le dépôt, ou encore le traitement de surface, les plasmas peuvent également être appliqués dans le domaine de la dépollution, pour le traitement des gaz et des liquides [41]. Le principe est le suivant : on utilise les radicaux, ions, et autres espèces actives produites par le plasma pour agir sur la composition chimique du gaz à dépolluer. Les espèces radicalaires produites par le plasma ont la plupart du temps un fort potentiel d'oxydation (O, O_3, ...) et sont alors capables d'oxyder de manière non sélective les molécules à traiter. Un plasma hors équilibre peut être ainsi considéré comme un système de conversion d'énergie dans lequel l'énergie cinétique est majoritairement transformée en énergie chimique. La possibilité de créer ce milieu chimiquement actif sans chauffer le gaz (ou modérément) rend le procédé très attractif du point de vue de son rendement énergétique.

Etudiés depuis plus de deux cents ans dans le secteur de la chimie, les plasmas hors équilibre sont des outils récents dans le secteur de la dépollution. Les premières applications à échelle industrielle de plasmas non thermiques pour la dépollution datent néanmoins du début du 20ième siècle, où ils furent utilisés notamment dans le traitement des eaux potables à Paris. Si c'est un groupe de chercheurs allemands qui a étudié en premier les effets de conversion chimique des hydrocarbures suite à l'application d'une décharge électrique sur des produits huileux [42], c'est l'invention de la Décharge à Barrière Diélectrique (DBD) par Siemens dès 1857 [43], pour la génération d'ozone qui a ouvert la voie aux plasmas hors équilibre pour la dépollution. L'invention du précipitateur électrostatique, développé pour le traitement des poussières par Cottrell dès 1908, a été également décisive dans l'émergence des techniques de dépollution par plasma [44]. Le but est de charger les diverses poussières à traiter afin de les défléchir vers des plaques métalliques collectrices sous l'effet d'un champ électrique appliqué. Cette technique est encore de nos jours très utilisée dans l'industrie, notamment en aval des procédés d'incinération des déchets ménagers. Malgré ces initiatives avant-gardistes, ce n'est qu'au début des années 70 que les nouvelles considérations de protection de l'environnement ont permis l'émergence de nouvelles recherches et de nouvelles technologie plasmas pour le traitement des polluants[45].

Ainsi, dès le milieu des années 1980, la conversion des polluants atmosphériques tels que les oxydes d'azote (NO_X), les oxydes de souffre (SO_X), les Composés Organiques Volatiles (COV) par application d'un plasma hors équilibre a été très étudiée [46, 47]. A titre d'exemple, l'industrie automobile a dédiée des années de recherche et de développement afin de traiter les effluents gazeux automobiles, d'optimiser le déclenchement de combustion dans les moteurs, ou encore afin de traiter l'air intérieur. Les recherches sur le traitement de l'air ont également permis d'ouvrir la voie à d'autres applications comme la fixation de l'azote [48-50], la génération d'hydrogène [51-58], la synthèse du méthanol [59-66], la conversion des hydrocarbures[67-73], la stérilisation [74-77]... Si les procédés industriels de contrôle de la pollution par plasma restent peu développés à travers le monde, nous pouvons cependant trouver de nos jours, quelques

entreprises commercialisant des dispositifs destinés au traitement des polluants par combinaison d'un étage catalytique et d'un étage plasma. Entre autres exemples, au Japon, la société Daihatsu réalise le traitement des moteurs diesels destinés au transport naval par réacteur plasma-catalytique [78]. En Europe, la société Paganetti notamment, propose le traitement d'odeurs par plasmas froids dans les stations d'épurations.

L'efficacité des procédés plasmas ainsi que leur innocuité restent cependant encore souvent à valider dans le cadre d'une industrialisation massive et d'applications grand public. Le faible rendement énergétique et la création non maîtrisée des sous-produits n'autorisent pas la généralisation des traitements des polluants atmosphériques par plasmas hors équilibre. Pour résoudre ces problèmes, des études ont proposé dès les années 90 de coupler le traitement plasma à un procédé catalytique classique, combinant la capacité des plasmas hors-équilibre à activer des catalyseurs à basse température et celle des catalyseurs chimiques à offrir une meilleure sélectivité que celle des plasmas. D'autre part, l'action d'un plasma est immédiate dès son application et cela permet de pallier la faible efficacité des catalyseurs seuls en début de fonctionnement d'un procédé catalytique (temps de chauffage). En adaptant le type de catalyseur en fonction du gaz à traiter et du plasma généré, ce couplage pourrait associer le pouvoir de dépollution des deux systèmes tout en limitant la création de sous produits. Dans un contexte où les normes environnementales deviennent de plus en plus drastiques, le couplage plasma/catalyse devient une des technologies les plus encourageantes pour le traitement des composés organiques volatiles (COV) ou même des oxydes d'azote (NO_x) en faibles concentrations et pour de faibles débits de gaz. Dans ces conditions de concentrations et de flux, les techniques habituelles de dépollution telles que l'incinération thermique, l'adsorption sur charbon actif, la condensation ou la biofiltration, montrent leurs limites.

Ce domaine de recherche reste encore très actuel puisque le rendement énergétique et la sélectivité de ce type de procédé mixte restent à être optimisés dans de nombreux cas. Entre autres, une meilleure compréhension du comportement des plasmas confinés dans les supports de catalyseurs et des mécanismes d'interactions plasma - surface catalytique est indispensable quant à l'optimisation de ces procédés.

1. Catalyse hétérogène seule : historique, principe et limites.

Depuis des décennies, de nombreux procédés de traitement d'effluents gazeux reposent sur la technologie des procédés catalytiques. Ces procédés de traitement permettent la dépollution d'un gaz grâce à des processus cinétiques et d'adsorption maîtrisés.

La catalyse est un phénomène d'accélération d'une réaction chimique par l'action d'une substance appelée catalyseur. Elle peut aussi avoir un effet sur la sélectivité d'une réaction chimique en favorisant la production d'un produit plutôt qu'un autre. Le catalyseur est une espèce chimique qui augmente la vitesse d'une réaction chimique spontanée. Il peut être solide, liquide ou même gazeux, et n'influence pas le sens d'évolution de la transformation, ni la composition du système dans l'état final. Utilisé en petite quantité, il est spécifique à une réaction donnée. Pour être chimiquement actif, tout catalyseur nécessite un apport d'énergie égal ou supérieur à son énergie

d'activation propre. Généralement, une source de chaleur ou une source de photons UV est utilisée selon l'emploi respectif de métaux précieux ou de semi-conducteurs comme catalyseurs.

Une catalyse est dite homogène lorsque le catalyseur et les réactifs forment une seule phase, généralement liquide ou gazeuse, hétérogène dans le cas contraire. Dans la majeure partie des applications industrielles, c'est ce dernier type de catalyse qui est employé. En effet, afin de baisser les énergies d'activation des réactions d'oxydo-réductions, et donc par conséquent la température au sein du réacteur, l'emploi de catalyseurs solides déposés sur un support est le plus souvent privilégié.

La réaction catalysée passe nécessairement par un certain nombre d'étapes élémentaires qui sont :

- l'adsorption sur le catalyseur, où les molécules sont chimisorbées pour être transformées,
- une ou plusieurs étapes à la surface du catalyseur, qui peuvent ne faire intervenir que des molécules adsorbées ou faire intervenir des molécules issues de la phase fluide,
- la désorption qui consiste à libérer les sites recouverts, permettant une nouvelle adsorption sur les sites catalytiques.

Comme la réaction a lieu aux interfaces solide-gaz, l'augmentation de la surface totale d'interaction conduit à une meilleure efficacité du procédé. Pour cette raison, les supports de catalyseurs présentent généralement des surfaces spécifiques très importantes. La surface spécifique désigne la superficie réelle de l'ensemble des surfaces du solide par rapport à sa surface apparente. Elle est exprimée en m^2kg^{-1} et est de ce fait parfois dénommée aire massique. Les lits de billes (packed-bed), les monolithes, les mousses et les éponges sont les supports de catalyseurs les plus couramment utilisés puisqu'ils possèdent une grande surface spécifique ainsi qu'une bonne tenue en pression et peu de pertes de charges. Intacts en fin de réactions, ces supports inertes sont souvent des structures d'alumine, de céramique, ou encore d'aluminosilicate, sur lesquelles sont déposés les catalyseurs qui sont le plus souvent des métaux précieux comme le rhodium (Rh), le platine (Pt), ou encore le palladium (Pd). Cependant, de nombreuses recherches sont toujours consacrées à l'optimisation des supports catalytiques [79-81].

Si les premiers pas dans le domaine des procédés catalytiques datent du milieu du 19ième siècle, c'est le développement de la chimie du début du 20ième siècle qui a permis d'ouvrir de larges possibilités d'applications de ce type de procédés. Le développement de la polymérisation dans les années 1950, puis les découvertes des zéolithes de synthèse dans les années 1960 sont d'autant de raisons qui ont justifiées un engouement accru de cette technologie durant la deuxième partie du 20ième siècle. La décennie 1970 voit apparaître le pot d'échappement catalytique à base de métaux précieux qui permet une avancée considérable dans le traitement des gaz d'échappement [82-84].

De nos jours, les procédés de catalyse hétérogène sont omniprésents dans de nombreux domaines. La synthèse des molécules est certainement le domaine le plus marqué par le développement de la catalyse hétérogène. A titre d'exemple, Richard

Heck, Ei-ichi Negishi et Akira Suzuki ont reçu le Nobel de chimie en 2010 pour avoir développé des réactions chimiques catalysées au palladium et permettant de faciliter la formation de liaisons carbone-carbone. Dans le domaine du traitement des polluants atmosphériques, les procédés de catalyses hétérogènes sont également très nombreux comme le montre la table de la Figure 8 issue de W B Li et al. [85].

La catalyse seule ne résout pourtant pas tous les problèmes de pollution des gaz d'échappement ou plus généralement de l'air atmosphérique. Elle ne présente notamment qu'un faible rendement pour le traitement des gaz à faible flux et à faible concentration de polluants. En outre, le catalyseur n'est efficace qu'à partir d'une certaine température d'activation obtenue à partir d'une source externe ou interne de chauffage, de l'ordre de 400°C dans le cas des pots catalytiques. Cette inefficacité à faible température limite considérablement le rendement du procédé.

De manière générale, le COV est piégé par un matériau poreux (charbon actif, zéolite, polymère) par processus d'adsorption physique sous l'effet des forces de Van der Waals. Lorsque le filtre est saturé, c'est-à-dire quand tous les sites d'adsorption sont occupés, il faut le régénérer, ce qui peut être coûteux en énergie. Par ailleurs, si les filtres au charbon actif sont, par exemple, particulièrement bien adaptés pour des COV ayant une température d'ébullition comprise entre 35 °C et 260 °C, par leur inflammabilité, ils sont inefficaces sur des COV ayant une température d'ébullition élevée. L'humidité est également un paramètre crucial dans l'utilisation de ce genre de filtre puisque les molécules d'eau peuvent venir combler les sites d'adsorption et provoquer ainsi une saturation précoce du filtre. Si l'emploi de zéolite, dont certaines sont hydrophobes, peut permettre de pallier à ces difficultés, la zéolite possède néanmoins une taille de pores fixe qui empêche certaines molécules de venir se fixer, limitant elle aussi les procédés d'adsorption sur les surfaces catalytiques.

Catalyst	VOC concentration in volume[b]	VOC conversion
CeO_2	TCE (1000 ppm)	90% at 205 °C
CeO_2	TCE (1000 ppm)	90% at 490 °C
ZrO_2	TCE (1000 ppm)	90% at 500 °C
$Ce_{0.5}Zr_{0.5}O_2$	TCE (1000 ppm)	90% at 465 °C
$Ce_{0.15}Zr_{0.85}O_2$	TCE (1000 ppm)	90% at 450 °C
CeO_2	Toluene (0.7 vol.%)	50% at 600 °C
Au/CeO_2	Toluene (0.7 vol.%)	100% at 360 °C
Au/TiO_2	*n*-hexane (125 ppm)	98% at 340 °C
$Au/\gamma\text{-}MnO_2$	*n*-hexane (125 ppm)	100% at ~170 °C
Cr–Cu/HZSM	TCE (2500 ppm)	94.2% at 400 °C
$\gamma\text{-}MnO_2$	*n*-hexane (125 ppm)	100% at 180 °C
$Mn_{0.4}Zr_{0.6}O_2$	DCE (1000 ppm)	100% at 450 °C
$Mn_{0.4}Zr_{0.6}O_2$	TCE (1000 ppm)	100% at 550 °C
Mn–Zr	Toluene (0.35%)	100% at 260 °C
$Mn_{0.67}$–$Cu_{0.33}$	Toluene (0.35%)	100% at 220 °C
Mn–Ce	Ethanol (1600 ppm)	100% at 170 °C
Mn–Cu	Ethanol (1%)	100% at 210 °C
$LaFe_{0.7}Ni_{0.3}O_3$	Ethanol (1%)	50% at 220 °C
$LaFe_{0.7}Ni_{0.3}O_3$	Acetyl acetate (1%)	50% at 282 °C
$20\%LaCoO_3/Ce_{0.9}Zr_{0.1}O_2$	Toluene (1000 ppm)	50% at 192 °C
$10\%LaCoO_3/Ce_{0.9}Zr_{0.1}O_2$	Toluene (1000 ppm)	50% at 268 °C
$Ce_{0.9}Zr_{0.1}O_2$	Toluene (1000 ppm)	50% at 295 °C
Cr–PILC	CB (0.57%)	100% at 600 °C
Cr–PILC	Xylene (0.57%)	100% at 600 °C
Ag–HY	BA (1000 ppm)	100% at 400 °C
Ag–HZSM-5	BA (1000 ppm)	100% at 400 °C
Ag–HY	Toluene (1000 ppm)	100% at 290 °C
Ag–HY	MEK (1000 ppm)	100% at 260 °C

Figure 8. Table de conversion de différents COV par procédés de catalyse hétérogène [85].

2. Le plasma, un outil pour la dépollution

La génération d'un plasma engendre la création d'espèces chimiquement actives à partir d'un milieu neutre simplement sous l'effet d'un champ électrique appliqué. Dans l'air, les plasmas produisent des champs de charge d'espace relativement intenses (environ 120kV.cm^{-1} en tête de streamer soit environ 500Td à pression atmosphérique et température ambiante) qui permettent l'excitation, l'ionisation et la dissociation des molécules de dioxygène et de diazote par impact électronique. La Figure 9 issue de Dorai et al. [86], illustre les différentes contributions énergétiques des processus liés aux collisions électroniques en fonction du champ électrique réduit.

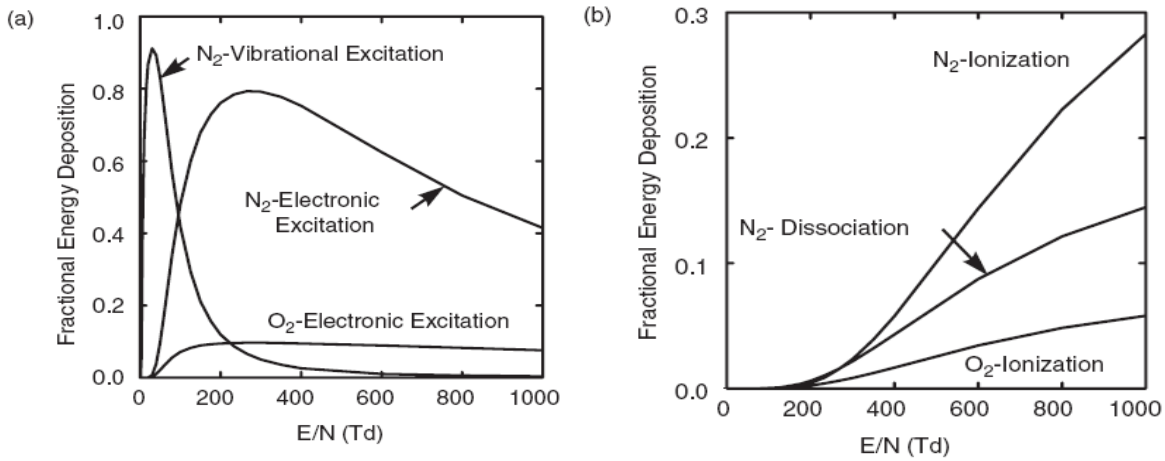


Figure 9. Répartition du dépôt d'énergie selon les processus liés aux impacts électronique en fonction du champ électrique réduit dans l'air.

(a) Excitation électronique et vibrationnelle
(b) Dissociation et ionisation

L'oxygène atomique qui résulte de la dissociation par impact électronique, possède de très hautes propriétés d'oxydation qui contribuent à la minéralisation des polluants ($O(^3P)$, $O(^1D)$). Pour la conversion des COV, $O(^1D)$ joue un rôle particulièrement important malgré le fait qu'il soit rapidement quenché sur $O(^3P)$[87]. Les électrons peuvent également produire des radicaux hydroxyles par excitation dissociative par impact électronique. O et OH sont des espèces chimiques qui possèdent de très fortes propriétés oxydantes en comparaison des molécules neutres d'oxydation classiques. Le plasma peut également créer des espèces ioniques plus complexes comme O_2^- et N_4^+, qui sont des radicaux chimiques qui peuvent diffuser et réagir avec d'autres molécules organiques.

De manière générale, outre $O(^3P)$, $O(^1D)$ et OH, les espèces actives créées le plus couramment utilisées dans les processus de dépollution sont $O_2^*(a^1\Delta_g)$, $N_2^*(A^3\Sigma_u^+)$, $N_2^*(B^3\Pi_g)$, $N(^4S)$ et $N(^2D)$. Ces dernières vont scinder les polluants pour les transformer en molécules plus petites. Les sous produits de ces réactions peuvent à leur tour réagir pour être détruits ou minéralisés en CO, CO_2 et H_2O. [88]

Ces processus élémentaires induits par la génération d'un plasma froid peuvent être divisés en processus primaires et secondaires selon l'échelle de temps sur laquelle ils ont lieu. Ainsi, comme on peut le voir sur la Figure 10, les processus d'ionisation, d'excitation, de dissociation, d'émission et de transfert de charges peuvent être regroupés en une première catégorie puisqu'ils ont cours pendant la propagation de la décharge.

Les processus secondaires que sont les réactions radicalaires d'oxydo-réductions notamment, et de recombinaison n'ont lieu qu'ensuite, dans la phase de « post décharge ». Dans le cadre de la dépollution, le ratio CO_2/CO doit être maximal dans le but d'éliminer ou du moins détruire le plus possible la molécule toxique CO. L'optimisation de la sélectivité en faveur de la production de CO_2 est souvent le but recherché des procédés de dépollution puisqu'elle est une molécule inoffensive pour l'homme, toute considération de réchauffement climatique gardée. Plus généralement, le souhait de ces

procédés est de convertir les composants toxiques en composants dont la dangerosité est moindre ou nulle comme par exemple en O_2, CO_2, et H_2O.

L'utilisation des plasmas hors équilibre à des fins de traitement d'effluents gazeux est étudiée depuis les années 1980 [89]. Dans la littérature, nous pouvons trouver de nombreuses publications sur l'efficacité de traitement de tel ou tel polluant à partir de plasmas aux configurations diverses comme les décharges à barrière(s) diélectrique(s), les décharges couronnes, les décharges de surface, les décharges capillaires… Contrairement aux procédés catalytiques classiques, ils sont efficaces à faible température et pour des concentrations faibles en polluants. Des études ont en effet étudié la plage des paramètres du gaz pollué sur laquelle le traitement par plasma hors équilibre devient rentable d'un point de vue économique au regard des autres méthodes chimiques de traitement, qu'elles soient de destruction ou de conversion [90]. Ainsi, pour un flux de gaz compris entre 0.01 et 1000Nm^3h^{-1} et une concentration en polluants comprise entre 1 et 10000ppmv (inférieur à 1%), le traitement par plasma est une solution particulièrement efficace et économiquement avantageuse [91]. Les plages d'utilisation des différents procédés de traitement des COV sont grossièrement représentées Figure 11 tirée de [92] en fonction de la concentration du polluant et du débit de gaz.

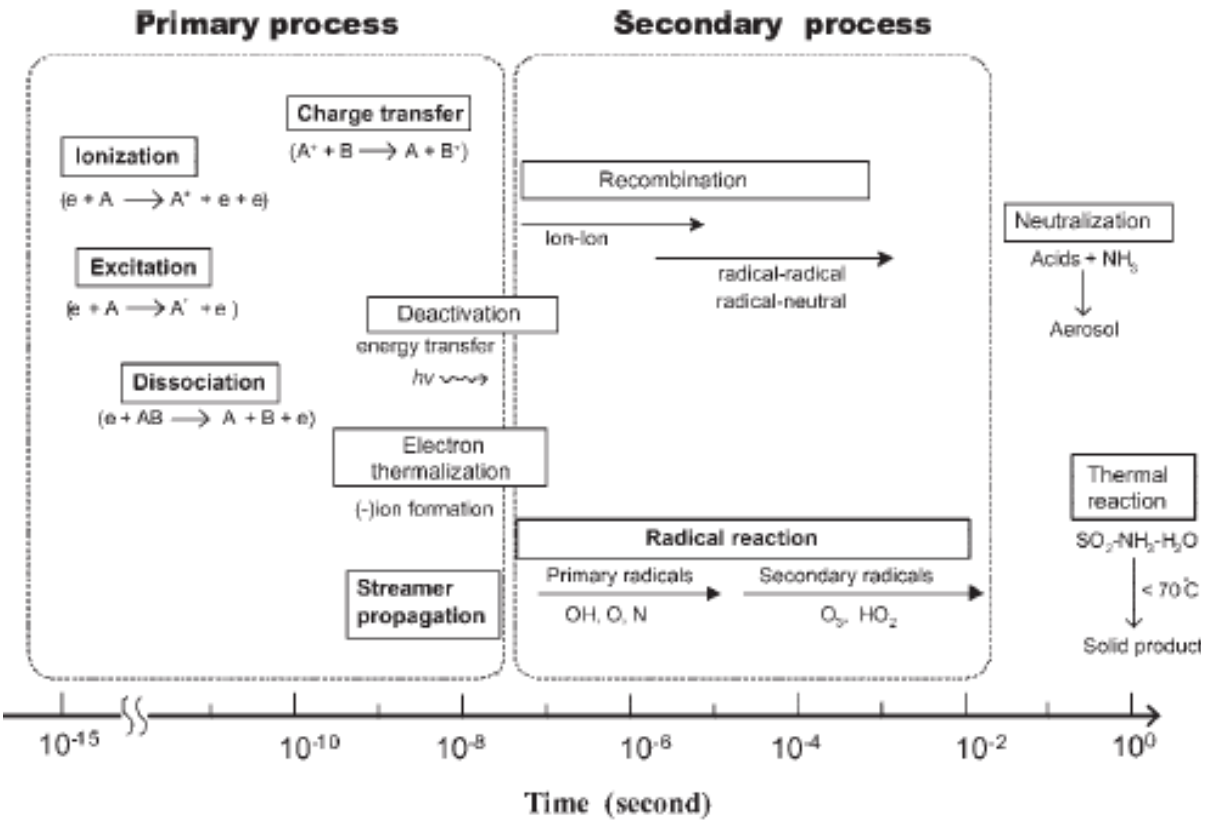


Figure 10. Chronologie des processus physicochimiques induits par le traitement plasma sur le gaz à dépolluer [14]

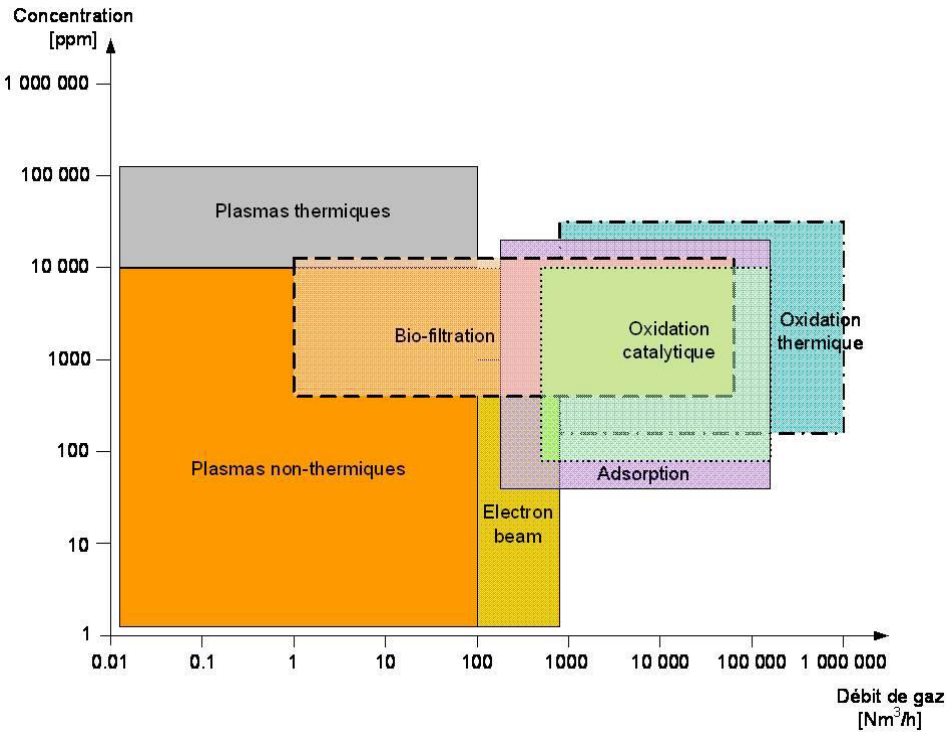


Figure 11. Plage d'utilisation des différents procédés de dépollution de gaz chargé en COV

L'utilisation des plasmas hors équilibre pour la dépollution a été ainsi largement étudiée au cours des dernières décennies. Une grande partie des études est dédiée à la décomposition des oxydes d'azote et de souffre ou des COV comme les composés hydrocarbonés, chlorocarbonés ou chlorofluorcarbonés, perflurorocarbonés… Le contrôle des odeurs est également très étudié en évaluant la destruction de H_2S et NH_3 le plus souvent [93, 94].

Pour ce faire, de nombreuses configurations de génération du plasma sont adoptées. Parmi elles, les DBD sont certainement la configuration la plus développée pour le traitement des COV. Nous trouvons ainsi dans la littérature le traitement par DBD du méthane [95-98], du butane [99], du propène [100], du benzène [101-106], du toluène [106-111], du formaldéhyde [112-113], de l'acétaldéhyde [114], de l'éthanol, du propanol [115], etc…

Nous trouvons également un certain nombre de publications traitant du traitement de COV par décharges couronnes pulsées [116]. Cette configuration plus adaptée au traitement des effluents gazeux est cependant moins fréquente. En effet, l'efficacité supérieure des décharges couronnes pour les procédés de dépollution en appliquant des tensions pulsées par rapport à une excitation continue ou bien sinusoïdale a été démontrée dès le début des années 1980 par plusieurs auteurs [117, 118]. Cependant, du fait du coût élevé d'investissement et les difficultés inhérentes à la construction de ces générateurs impulsionnels haute tension, cette technologie fût longtemps limitée. Pourtant, depuis le développement des sources impulsionnelles de tension permettant de générer des surtensions très importantes, les configurations d'électrode permettant de générer des décharges couronne (multi-pointes/plan, fil/plan, fil/cylindre,…) ont eu un regain d'intérêt. Okasaki et al, [119] montrent que le rendement de production d'ozone passe de 50g/kWh dans le cas d'une tension

sinusoïdale à plus de 250g/kWh dans le cas d'impulsions de tension. Panchesnyi et al, [120], ont également démontré qu'une configuration pointe-plan était plus efficace que les DBD et les réacteurs à lit de bille dans le cas de flux de gaz relativement importants. Ils observent également une homogénéisation du plasma sous conditions particulières qui peut être dans certains cas une condition nécessaire à l'optimisation du procédé considéré. C'est le cas par exemple des décharges de type FIW [121, 122]. Cet aspect diffus peut être très avantageux dans le cas par exemple de traitement de surface ou même en déclenchement de combustion [123]. Dans le secteur de la dépollution, nous pouvons penser qu'un plasma plutôt diffus permettrait de déclencher davantage de réactions de dissociation au sein du réacteur, et donc d'optimiser les processus de minéralisation pour une même énergie injectée (COV=>CO_2, H_20).

Dans le cas du traitement des émissions de moteur diesel, principales sources des NO_x, un traitement plasma conduit à un milieu au pouvoir extrêmement oxydant du fait de la présence préalable d'oxygène et de vapeur d'eau. La conversion de NO en N_2 et O_2 désirée n'est plus favorisée. Sous la présence de résidus d'hydrocarbures imbrûlés des recherches ont cependant montré que cette sélectivité pouvait être augmentée tout en réduisant la production de sous produits indésirables [124].

Ces techniques de traitement par plasma hors équilibre présentent cependant des limites. Le rendement du procédé et la sélectivité en CO_2 ne sont pas complètement satisfaisants. Le plasma génère en effet des sous produits comme du monoxyde de carbone, qui limitent la sélectivité définie comme telle :

$$S_{CO_2} = \frac{[CO_2]}{[CO_x]+[C_{org}]}$$

où $[C_{org}]$ représente la concentration de l'ensemble des espèces organiques présentes.

Dans la littérature, nous trouvons des valeurs de sélectivité des procédés de traitement par plasma comprise entre 0.3 et 0.7 selon les conditions. Du fait de leur grande complexité, les réactions chimiques ayant lieu dans la phase plasma ne sont donc pas parfaitement maîtrisées. L'énergie injectée, consommée par les processus d'excitation, d'ionisation et de dissociation peut conduire à des espèces non désirées dans le processus de dépollution qui peuvent être encore plus problématiques que la molécule initiale à traiter (O_3, N_2O, NO_x).

Le faible rendement énergétique et la création non maîtrisée des sous-produits n'autorisent donc pas la généralisation des traitements des polluants atmosphériques par plasmas hors équilibre. Pour résoudre ces problèmes, des études dès les années 90 proposent de coupler le traitement plasma à un procédé catalytique classique. Cette technique combinerait alors l'avantage d'une grande sélectivité offerte par la catalyse hétérogène ainsi que la réponse rapide apportée par le traitement plasma. En adaptant le type de catalyseur en fonction du gaz à traiter, ce couplage pourrait associer le pouvoir de dépollution des deux systèmes tout en limitant la création de sous-produits.

3. Couplage plasma / catalyse

Les premiers travaux dédiés à l'association d'un plasma avec des techniques de catalyse hétérogène ont été publiés à la fin des années 80. Ces études se sont essentiellement consacré au couplage d'une catalyse hétérogène avec un plasma thermique de source soit micro-onde soit inductive ou encore sous forme de torche [125, 126]. La majeure partie de ces publications fut le fruit de l'industrie chimique dont les motivations s'articulaient autour de la synthèse de l'alumine ou encore de la dissociation des hydrocarbures lourds [127]. Certains auteurs se sont également intéressés à la composition du plasma au voisinage d'une petite surface catalytique au sein d'un volume de plasma [128]. D'autres ont également utilisé un procédé plasma/catalyse à deux étages où le premier module consistait en un réacteur plasma servant à générer les espèces excitées tandis que le second était en général un réacteur à lit de bille ou à lit fluidisé recevant le flux de réactifs issus de l'étage plasma ainsi que le flux de gaz à traiter [129].

Dans les années 90, les systèmes à couplage plasma-catalyse ont particulièrement gagné en intérêt, notamment grâce aux nouvelles normes environnementales en vigueur Une grande partie de la communauté scientifique s'est tournée vers les décharges atmosphériques qui paraissaient dès lors plus adaptées pour répondre aux contraintes liées aux applications environnementales désirées. Des prototypes de plasma catalyse intégré (IPC), c'est-à-dire où le plasma est directement au contact de la zone catalytique, ont alors émergé notamment pour la synthèse du méthane, pour le traitement des NOx dans les flux d'échappement des moteurs diesel, pour le traitement des COV émis par les diverses industries et par les produits manufacturés, pour la réduction du CO_2 ou encore la conversion du méthane en gaz de synthèse ou même pour la production d'hydrogène [130]. Pour ces applications, le couplage plasma/catalyse s'est en effet montré très avantageux, notamment grâce à l'effet synergétique observé et le faible coût du procédé.

Dans les années 2000, la majeure partie des publications s'est ainsi focalisée sur l'efficacité du couplage plasma/catalyse sur telle ou telle molécule polluante, COV ou NOx particulièrement. Les influences de tel ou tel catalyseur, de la présence d'eau, du support de catalyseur employé, du flux de gaz et de sa concentration en polluants, à la fois sur le rendement du procédé et sur la sélectivité présentée ont ainsi été très étudiées [131,132]. Cependant, dans le cadre de ces études, le réacteur plasma catalytique est souvent perçu telle une boîte noire dont les paramètres ainsi que leurs diverses influences ne sont pas pris en compte. Les auteurs essaient souvent de trouver expérimentalement les meilleurs paramètres qui conduisent à la conversion ou la destruction de la molécule considérée. Peu d'auteurs ont tenté de déterminer et de comprendre les phénomènes basiques qui gouvernent le dépôt d'énergie électrique dans le réacteur, la réactivité du plasma, le transport de charges ou encore les interactions entre le plasma et le catalyseur, ou du moins son support physique. L'étude de la technologie du couplage plasma/catalyse est donc encore d'actualité aujourd'hui puisqu'elle nécessite une meilleure compréhension des phénomènes mis en jeu afin d'optimiser les réacteurs plasma catalytiques. Si l'efficacité du couplage plasma/catalyse a déjà été démontrée notamment pour l'oxydation de composés organiques volatils, il demeure une méconnaissance de la physique de la décharge et la production d'espèces chimiques hautement réactives comme les atomes d'oxygènes et les radicaux hydroxydes au voisinage ou même à l'intérieur du milieu poreux. Quelques études ont

néanmoins été consacrées sur la physique des décharges initiées au contact d'un matériau poreux comme des lits de billes, sur des DBD dans des monolithes de cordiérite ou en contact avec un support plan dopé au TiO_2, sur des décharges « glissantes » (sliding discharges) dans des structures en nid d'abeilles, et sur des décharges DC dans des céramiques poreuses…

De nombreuses études sont donc consacrées à couplage qui permet de combiner l'efficacité basse température du système issu du procédé plasma avec la bonne sélectivité apportée par la catalyse, tout en réduisant l'énergie consommée par un procédé plasma seul, ainsi que la création des sous produits non maitrisée. Parmi ces travaux, qui traitent essentiellement du rendement énergétique du système et de la sélectivité associée, nous pouvons distinguer deux catégories de réacteurs de couplage plasma catalyse, ceux à un étage (IPCR, CPC, PDC, IPC) et ceux qui en comportent deux (PPCR, PPC, PEC). Quelque soit le dispositif adopté, un effet synergétique est observé entre le plasma et le catalyseur, c'est-à-dire que l'efficacité du couplage est supérieure à celles des procédés plasmas et catalytique seuls.

a. Système de catalyse à deux étages.

Dans la littérature, le réacteur à plasma peut être disposé soit en aval soit en amont du procédé catalytique. Cette dernière configuration est cependant bien plus répandue puisque les produits issus de la catalyse sont plus stables que ceux issus d'un traitement par plasma. En outre la synergie observée dans le cas où le plasma est disposé en aval du procédé catalytique est très faible. A l'inverse, dans le cas où le gaz subit un prétraitement plasma, l'effet synergétique est fort puisque le plasma, via les réactions d'oxydations, crée des espèces plus faciles à traiter. Ainsi, sous certaines conditions spécifiques, qui dépendent notamment de la nature des sous-produits créés par le traitement plasma, un simple post-traitement catalytique à l'issue du traitement plasma permet d'optimiser le processus de dépollution [133,134].

La littérature présente un large panel d'études de l'efficacité de ces réacteurs post-traitement plasma. Nous trouvons ainsi une bibliographie fournie sur l'efficacité de ce procédé sur des polluants divers, appartenant essentiellement aux familles des COV et des NOx. De manière générale, la séparation de la zone plasma de la zone catalytique fait que l'ensemble des produits de faible durée de vie créés par le traitement plasma disparait par désexcitation, quenching, recombinaison, transferts radiatifs…, et seules les espèces actives de longue durée de vie vont pénétrer dans la zone catalytique (O_3, N_2^*,…). Ce sont uniquement ces dernières qui vont modifier les mécanismes d'adsorption et de réactions en surface.

Le plasma est donc un modificateur chimique du gaz à dépolluer avant son arrivée dans l'étage catalytique. Dans de tels systèmes, outre le fait qu'il permet de s'affranchir de l'apport extérieur en énergie, le plasma joue un double rôle, celui d'une conversion partielle des polluants et celui de générer de l'ozone.

La création d'ozone au sein du réacteur est une condition importante dans le traitement des NO_x notamment, où la conversion de NO en NO_2 permet une meilleure efficacité du catalyseur en post-décharge (meilleur rendement catalytique sur NO_2 que

sur NO). Le réacteur PE-SCR (Plasma Enhanced Selective Catalytic Reduction) qui consiste à un prétraitement plasma suivi d'un traitement catalytique a montré un grand potentiel dans le traitement des émissions de moteur diesel [135,136]. La génération d'ozone permet également dans le cas des COV, une meilleure efficacité de traitement en favorisant les procédés d'oxydation au sein du réacteur. Enfin, ces réacteurs sont prometteurs quant à la génération du dihydrogène issu de la conversion d'hydrocarbures à des fins énergétiques.

b. Système de couplage plasma/catalyse intégré

Dans de nombreux cas, un traitement catalytique post-plasma ne permet pas d'obtenir des résultats optimisés. Les effets synergétiques observés entre le plasma hors équilibre et les processus de catalyse sont en effet plus importants dès lors que le plasma est généré directement au sein du réacteur catalytique. Pour ces réacteurs, les mécanismes responsables de cette synergie sont plus difficiles à interpréter. En effet, la présence du support catalytique va directement influencer le type de décharge générée, modifiant la distribution des électrons au sein du réacteur [131]. Les interactions directes entre le plasma et le réacteur catalytique vont également induire des modifications physicochimiques à la fois du plasma lui-même et du support catalytique, changeant ainsi les mécanismes d'adsorption et de désorption au niveau des sites catalytiques. En outre, pour ces configurations, toutes les espèces créées par le plasma, de courte et de longue durée de vie, vont interagir avec la zone catalytique, rendant la compréhension des mécanismes mis en jeu très difficile.

De nombreuses études ont été consacrées à ces réacteurs afin de quantifier leur efficacité de traitement sur tel ou tel polluant en fonction de la sélectivité et du rendement du procédé. Les mécanismes responsables de l'effet synergétique observé n'ont été quant à eux que très peu commentés. Des études ont cependant démontré qu'intégrer le traitement plasma à la zone catalytique permettait de confiner le plasma au voisinage des surfaces catalytiques, augmentant ainsi le temps effectif des réactions d'adsorption sur la surface [137]. Ceci favoriserait la sélectivité de la réaction vers une oxydation totale. Les molécules polluantes sont alors plus directement concernées puisque leur adsorption est favorisée par rapport aux molécules d'air présentes en surplus dans la phase gazeuse. Les espèces actives vont participer préférentiellement aux réactions d'oxydation en surface, ce qui diminue les réactions non contrôlées dans la phase gazeuse amenant à la création de sous-produits indésirables. Ces espèces au fort pouvoir d'oxydation (O,O_3) vont également permettre d'abaisser les températures de réactions de dépollution sur les surfaces catalytiques comparées à celles requises dans le cas d'une catalyse hétérogène seule. Il peut y avoir également la création de nouveaux sites catalytiques actifs par impact de la décharge, comme observé avec l'emploi de silice ou de zéolithes Y [138,139]. Le plasma peut également photo-activer le catalyseur s'il est un semi-conducteur(TiO_2), le rendant opérant dès le début du traitement [140].

Dans la littérature, les systèmes à double étage ont donc laissé place aux systèmes intégrés, qui présentent une meilleure efficacité ainsi que de meilleurs rendements. Nous trouvons ainsi de nombreux réacteurs de plasma catalyse intégrés dont la représentation la plus courante est un lit de billes de différentes caractéristiques électriques et catalytiques compactées au sein d'un réacteur DBD. Dans ces réacteurs, les

micro-filaments, caractéristiques d'une DBD, sont contraints de se propager aux interstices des billes, augmentant le temps effectif des réactions de dépollution au voisinage des surfaces catalytiques. F Holzer et al. [137] montrent même que la porosité des billes est un facteur déterminant de l'efficacité du procédé. Si ces réacteurs à billes sont les plus couramment étudiés, l'utilisation de monolithes en structure de nid d'abeille semble néanmoins être plus avantageuse dans le domaine du traitement des effluents gazeux du fait de leur grande surface spécifique, de leur bonne tenue en pression, et de leur plus faible perte de charges. Pourtant, très rares sont les études utilisant ce type de support catalytique malgré les promesses évidentes de propagation de décharges électriques en son sein.

C. Plasmas hors-équilibre en milieu confiné

1. Etat de l'art

Au cours des dernières décennies, un intérêt croissant s'est donc porté sur l'utilisation des décharges électriques à pression atmosphérique dans les milieux poreux et/ou alvéolaires comme les monolithes, les lits de billes ou même des éponges. Le couplage décharge-milieu poreux via de telles configurations a en effet montré un large potentiel applicatif dans diverses activités. Dans les secteurs de la chimie de synthèse, ou encore celui de la dépollution et plus particulièrement du traitement des effluents gazeux, ce couplage prometteur aussi bien d'un point de vue économique que de l'efficacité de traitement lui a valu d'être très largement étudié. L'émergence de nouvelles applications comme la modification de surface pour l'élaboration de matériaux hautement adsorbant, ou encore les jets de plasmas à intérêt médical font partie des nombreux exemples qui justifient l'obtention d'une meilleure compréhension des mécanismes d'interactions entre les décharges et le milieu dans lequel elles se propagent.

De manière générale, les micro-décharges ont été très étudiées depuis les années 2000. Ces décharges peuvent être générées non seulement aux surfaces de DBD, mais aussi au sein de volumes confinés tels que des microcavités ou des micropores de divers matériaux isolants, diélectriques ou conducteurs. De nombreux dispositifs permettent de générer de telles décharges. Parmi elles, les MHCD et les Capillary Plasma Electrode Device (CPED) ont été largement étudiés [4]. Ces dernières ont la particularité d'utiliser des capillaires microscopiques comme sources des micro-décharges. Ces micro-décharges se comportent comme des jets de plasma dont la dynamique et la stabilité vont dépendre notamment de la géométrie des capillaires utilisés (ratio longueur/diamètre), du matériau diélectrique, du champ électrique [141-143]…

Récemment, des matériaux poreux ont été disposés sur les électrodes en lieu et place des capillaires [144, 145]. K. Hensel et al. [146,147], étudient également la possibilité de propager des micro-décharges au sein de milieux poreux en combinant une matrice de capillaires avec un lit de bille. Il y est rapporté que la propagation de micro-décharges au sein de ces capillaires est permise à l'aide d'une surtension élevée qui permet de faire basculer le régime de décharges de surfaces au voisinage de l'entrée des capillaires à un régime de CPED en leur sein. Ils montrent également dans leurs conditions expérimentales que plus la taille des pores diminue, plus la tension de claquage nécessaire au sein des pores augmente sur la gamme de porosité 2-200µm étudiée. Par ailleurs, lorsque la taille des pores augmente, la décharge se propage davantage au sein des cavités. Koo et al. [148, 149] utilisent des décharges se propageant au sein de céramiques poreuses de porosité de l'ordre de la centaine de micromètres pour la génération d'hydrogène. Ils rapportent que ces micro-décharges, en dépit de leurs instabilités, sont très efficaces pour générer de l'hydrogène. Kraus et al. [150], utilisent également des micro-décharges au sein de céramique poreuse et démontrent leur potentiel dans la conversion du méthane en CO_2. Ils démontrent en

effet que la présence de la céramique affecte le comportement de la décharge, et augmente de façon significative l'efficacité des réactions chimiques dans le réacteur. Ils montrent que c'est bien le confinement des décharges, qui augmente l'énergie moyenne des électrons, et qui constitue le mécanisme responsable de l'optimisation des réactions de conversion.

En 2005, Tardiveau et al. [151] ont en effet montré en configuration DBD qu'à partir d'une impulsion unique microseconde de 20kV d'amplitude environ, il est possible de propager une décharge au sein d'une structure inhomogène de type monolithe de cordiérite. La présence du support au sein du réacteur DBD donne à la décharge un aspect filamentaire, alors qu'elle apparait normalement diffuse sans contrainte. Kim et al. [152] ont quant à eux démontré l'efficacité de ces micro-décharges générées au sein de monolithe en structure de nids d'abeille pour le traitement des NO_x. N. Blin Simiand et al. [153], ainsi que Ayrault et al. [154], étudient et démontrent le potentiel de dégradation de composés malodorants par un plasma directement généré au sein d'un monolithe de cordierite. K Hensel et al, [155] démontrent que la taille des pores est une nouvelle fois un paramètre prépondérant pour la génération de micro-décharges dans ce type de structures inhomogènes.

Plus récemment encore, Xiong et al. [156-158] ont démontré la faisabilité de propager des décharges à la pression atmosphérique au sein de capillaires longs et flexibles, ainsi que le transfert de la décharge au travers d'une surface diélectrique. Cependant, malgré toutes ces études, les travaux dédiés à la compréhension des caractéristiques physiques des décharges électriques en milieu confiné et des mécanismes responsables de leur propagation restent cependant rares. Les influences des divers paramètres électriques, ainsi que des propriétés solides du support de catalyseur comme la porosité moyenne, la distribution des pores, leurs géométries… sont encore aujourd'hui méconnues.. Ainsi, afin de promouvoir le développement de nombreuses applications exploitant le procédé de couplage plasma/catalyse, une meilleure compréhension de l'ensemble de ces mécanismes est nécessaire. Par ailleurs, l'étude des décharges confinées pourrait également ouvrir de larges perspectives dans le domaine du traitement des matériaux par exemple, ou encore dans celui de la stérilisation via les jets de plasma.

2. Problématiques de l'étude des décharges confinées

Les décharges générées directement au sein de milieux poreux ou alvéolaires sont des phénomènes complexes résultant d'une combinaison de plusieurs phénomènes :

- La propagation de décharges électriques dans des milieux confinés (pores, canaux de monolithes, alvéoles, etc…), et donc limitée par des surfaces diélectriques.

- Le transport d'espèces chargées dans les milieux poreux et les mécanismes de charge des surfaces.

- Le rôle des transferts de charge entre les phases gazeuses et solides en présence sur la propagation de la décharge.

- Un éventuel chauffage thermique induit par le confinement et qui pourrait modifier directement le champ électrique réduit déterminant le terme source d'ionisation et les coefficients de transport des espèces chargées à la fois dans le diélectrique et la phase gazeuse, et modifier ainsi la dynamique de la décharge.

Les phénomènes de transport, d'ionisation et de chauffage qui ont lieu dans les deux phases sont donc fortement couplés et leurs études nécessitent la combinaison d'une expertise dans le domaine de la physique des décharges et de celle des phénomènes de transport dans ce type de structure. Une étude fondamentale de la physique du dépôt d'énergie électrique dans de tels milieux est également nécessaire, aussi bien spatialement que temporellement, afin d'améliorer les processus de conversion chimique sur les surfaces catalytiques et de pouvoir optimiser à terme des systèmes applicatifs tels que les IPC (Integrated Plasma Catalyst systems).

D'un point de vue pratique, cette étude a pour but de répondre à des questions simples que l'on peut formuler comme suit :

- Quelles sont les conditions assurant la propagation d'une décharge au sein de matériaux poreux comme des monolithes, des lits de billes ou des éponges ?

- Comment les décharges se propagent-elles au sein de ces milieux ?

- Sur quelle profondeur les décharges peuvent elle pénétrer dans ces solides au regard de leur porosité ?

- Comment les caractéristiques du matériau comme la distribution des pores, ou ses propriétés diélectriques et thermiques peuvent venir affecter les mécanismes de propagation de la décharge ?

Ces questions ne possèdent pas encore de réponses à notre connaissance. Seules quelques expériences préliminaires ont été faites où des décharges électriques étaient directement initiées au sein de structures monolithiques ou dans des mousses céramiques [151]. Ces expériences ont révélé la possibilité de propager une décharge électrique nanoseconde dans l'air à pression atmosphérique directement au sein de telles structures comme l'illustre la Figure 12 à partir d'une configuration DBD plan-plan.

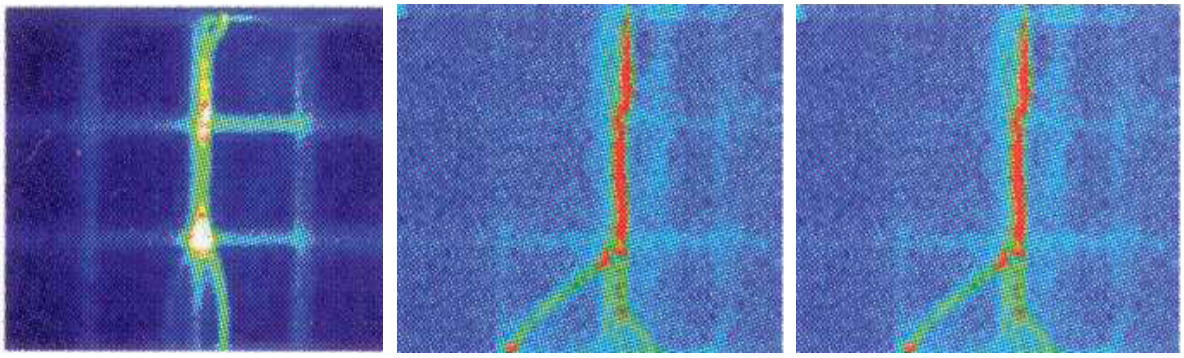


Figure 12. Décharges se propageant au sein d'un monolithe de cordiérite [151]

L'étude des décharges hors-équilibre confinées dans des milieux poreux ou alvéolaires fut l'objet du programme blanc ANR «Alveoplas» de 2008 à 2012. Ce programme eût pour objectif de répondre à la problématique exposée précédemment et pour cela, quatre laboratoires ont collaboré, le Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas (LPGP), le laboratoire Energétique Moléculaire et Macroscopique, Combustion (EM2C), le Laboratoire de Sciences des Procédés et des Matériaux (LSPM), le Laboratoire Modélisation et Simulation Multi-Echelle (LMSME). Les compétences impliquées ont permis de balayer l'ensemble des mécanismes mis en jeu dans les procédés plasma/catalyse : expérimentation et modélisation en physique des décharges, adsorption et écoulement dans les milieux poreux, thermique ainsi que génie des procédés.

Mes travaux de thèse s'inscrivent dans ce programme en se limitant aux mécanismes liés à la physique des décharges dans les milieux poreux sur des échelles de temps de l'ordre de quelques dizaines de nanosecondes. En conséquence, les aspects «chimie», et «thermique» ayant lieu majoritairement sur des échelles de temps beaucoup plus grandes ne seront pas considérées au cours de ce travail. De la même façon, les effets de rémanence de charges sur les surfaces diélectriques ne seront pas spécifiquement considérés dans le cas où la plupart des expériences menées correspondent à une excitation impulsionnelle «mono-coup». L'hypothèse sera donc faite d'une évacuation ou d'une recombinaison des charges électriques avant l'application d'une nouvelle impulsion et la création d'une nouvelle décharge. Pour certaines interprétations, nous garderons toutefois à l'esprit la possible influence des charges laissées par une décharge sur l'état initial de la suivante.

Le programme Alveoplas a eu pour ambition d'analyser et de comprendre les mécanismes physico-chimiques dans des milieux poreux possédant une distribution aléatoire de cavités de gaz et de surfaces diélectriques. Ainsi, nous pouvons distinguer dans ces systèmes trois régions distinctes où les phénomènes mis en jeu diffèrent et où la propagation des décharges sera probablement modifiée :

- Les « grands » volumes gazeux où les décharges se propagent quasi librement selon les mécanismes classiques des décharges couronnes. Dans ces régions, la décharge interagit alors très peu avec les surfaces avoisinantes.

- Les régions solides où les décharges ne peuvent pas pénétrer et se propagent dès lors uniquement en surface et où les effets de charge de surface sont prépondérants.

- Les régions solides poreuses, avec une distribution de pores dont la dimension est inférieure ou de l'ordre de celle classiquement attribuée au streamer, soit environ une centaine de micromètres, qui n'autorisent pas l'application des mécanismes classiques responsables de la propagation des streamers.

La complexité de ces milieux ne permet pas une approche expérimentale simple utilisant des diagnostics électriques et optiques courants. De la même façon, la modélisation de ces configurations nécessiterait une approche tridimensionnelle impossible à ce jour. Le choix a donc été fait d'adopter une approche progressive et une décomposition de l'étude en structures élémentaires.

3. Approche expérimentale et modélisation sur des structures élémentaires

En premier lieu, nous proposons l'étude de la propagation d'une unique décharge générée dans l'air à pression atmosphérique et confinée radialement par la présence d'un capillaire diélectrique de diverses natures. Le but est ici de comprendre le rôle de paramètres clés tels que le diamètre interne ou la permittivité diélectrique du capillaire sur les modes de propagation de la décharge (Figure 13).

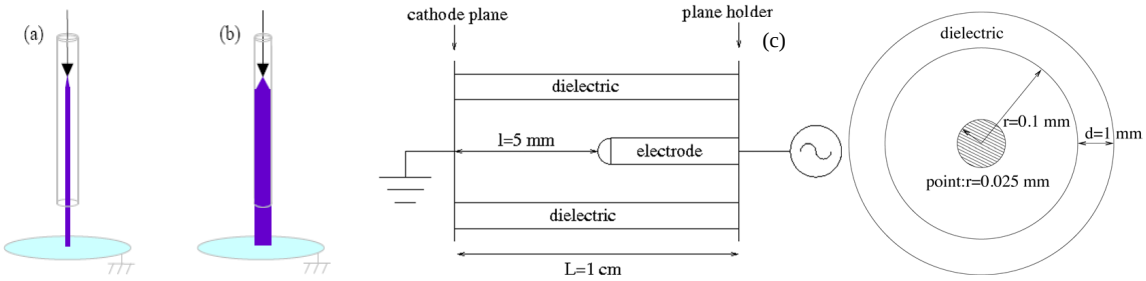


Figure 13. Cas de décharges radialement confinées par capillaires
(a) type streamer
(b) type diffus
(c) Configuration du modèle associée

Pour réaliser cette étude, une approche expérimentale utilisant des techniques d'imagerie ultra rapides et de spectroscopie, ainsi que des techniques de caractérisation électrique ultra précises, sera systématiquement comparée à une approche de modélisation. La modélisation de cette configuration « capillaire » a été effectuée par l'équipe de A. Bourdon au laboratoire EM2C et en particulier par J. Jansky. Afin de simuler au mieux les expériences réalisées, l'ensemble des pièces du réacteur expérimental a été pris en compte. Dans certain cas, afin de réduire le temps de calcul, la géométrie a été modifiée en prenant soin de conserver le profil du champ Laplacien entre la configuration réelle et la configuration simplifiée. L'impulsion de tension a également été modélisée en tenant compte des fronts de montée et de descente ultra rapides.

Le modèle mis en œuvre pour simuler la décharge électrique est un modèle fluide classiquement utilisé pour décrire le mécanisme du streamer et couplant les équations de dérive-diffusion des espèces chargées à l'équation de poisson. Pour plus de détail, le lecteur pourra se référer à l'annexe 2. La confrontation des résultats obtenus expérimentalement et numériquement a conduit à plusieurs publications et fût très précieuse pour la compréhension des mécanismes mis en jeu. Elle sera présentée au chapitre 3.

Nous nous sommes ensuite intéressés à la propagation d'une décharge axialement confinée par la présence d'une membrane diélectrique non poreuse. Le but est de simuler l'interaction entre la décharge et une surface diélectrique disposée perpendiculairement à la direction de propagation. Nous étudierons l'influence des caractéristiques électriques de la décharge et de celles du diélectrique sur l'aspect et la propagation de la décharge, via des paramètres comme l'épaisseur, la permittivité diélectrique, l'amplitude de tension, la position du diélectrique au sein de l'espace inter-

électrodes… Nous tenterons ici de déterminer le rôle respectif des mécanismes de propagation de surface et en volume de la décharge dans cette configuration, et quelles sont les conditions requises pour qu'il y ait un ré-allumage de l'autre côté de la membrane (Figure 14c).

La modélisation de cette configuration « membrane » a été également effectuée au laboratoire EM2C et en particulier par F. Pechereau (Figure 14(d)). Les influences des paramètres électriques de génération de la décharge et celles propres au matériau utilisé (permittivité diélectrique, épaisseur, opacité) ont notamment été soumis à investigations.

Dans un troisième temps, nous nous intéresserons au cas de membranes poreuses disposées perpendiculairement à l'axe de propagation de la décharge et dont la porosité macroscopique est de l'ordre de la taille classique des streamers soit 100µm environ. Le but sera alors de comprendre quel rôle joue la porosité sur la dynamique de la décharge, et quelles sont les conditions requises afin de propager la décharge au-delà de la membrane. Pour des raisons évidentes de complexité, cette configuration n'a pas fait l'objet de modélisation.

Le programme Alveoplas prévoyait l'étude de décharges se propageant dans des milieux plus représentatifs des systèmes utilisés en plasma/catalyse comme un monolithe, un lit de bille, ou des mousses, qui sont des supports de catalyseurs couramment utilisés. Cette dernière partie du programme fût malheureusement trop peu étudiée pour pouvoir donner des résultats. Seules quelques expériences sur des monolithes de céramiques ont pu être réalisées, et ce travail demanderait certainement une nouvelle thèse tant les nombreux résultats issus des parties précédentes ont été dignes d'intérêt. Nous n'en parlerons donc pas dans ce manuscrit.

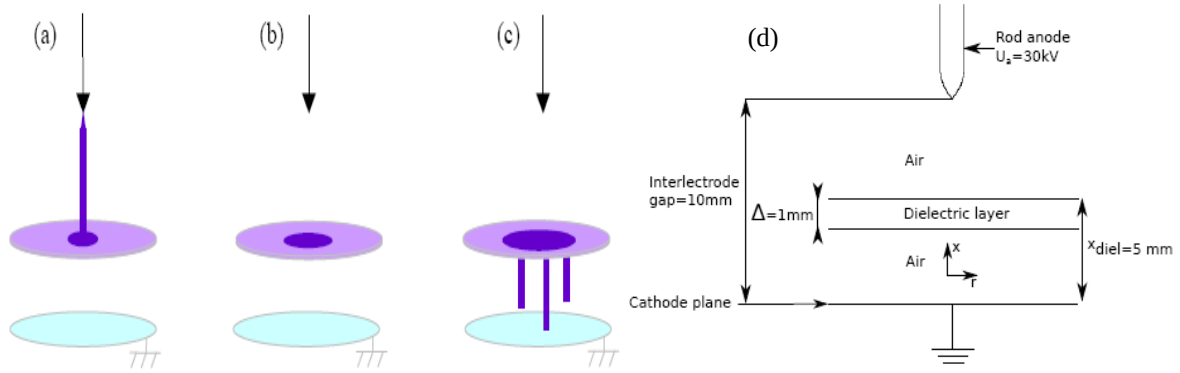


Figure 14. Cas de décharges axialement confinées par membranes
(a) Propagation de la décharge de la pointe vers la membrane,
(b) Propagation de la décharge au voisinage de la membrane
(c) Ré-allumage de l'autre côté de la membrane vers le plan
(d) Configuration du modèle

Chapitre 2

Montages et diagnostics expérimentaux

Divers montages expérimentaux ont été conçus et réalisés au laboratoire dans le but d'étudier et d'analyser la propagation de décharges couronnes nanosecondes au sein de milieux alvéolaires. La compréhension de la propagation de décharges électriques au sein de milieux poreux, par la complexité même des phénomènes mis en jeu, demeure encore un défi important à relever dans l'optique d'optimiser les réacteurs plasma-catalyse.

Les supports de catalyseurs les plus couramment utilisés, cités dans le chapitre 1, sont en réalité un assemblage plus ou moins ordonné et structuré de pores. La décharge se propageant au sein de tels milieux se voit alors alternativement contrainte radialement puis longitudinalement, voire simultanément dans les deux directions. La présence d'un unique pore suffit en effet à confiner aussi bien radialement qu'axialement la décharge, lorsque notamment la cavité possède des dimensions proches de celle des streamers donnée par la littérature (environ de la centaine de µm de diamètre) [1]. C'est pourquoi il nous a paru primordial, avant d'entreprendre directement les investigations sur un milieu complexe tel un monolithe ou un lit de billes, d'étudier la propagation de décharges nanosecondes au sein d'une unique cavité, puis sous l'influence de la présence d'une seule paroi, symbolisant une frontière de cavité.

Dans le cadre de cette étude, nous avons donc choisi expérimentalement de poser le problème de la dynamique d'une décharge dans un milieu poreux en fonction des différentes possibilités de confinement induites par la présence du support de catalyseur. Les nombreux paramètres inhérents au matériau (dimensions et géométries des cavités, permittivité diélectrique, composition chimique…) et les conditions de génération de la décharge (tension appliquée, distance inter-électrodes, fréquence…) sont autant de paramètres qui vont influer sur les propriétés physico-chimiques des décharges et sur les effets d'interaction entre ces décharges et les différentes surfaces diélectriques. Cette étude a donc nécessité la décomposition de la dynamique des décharges en différentes « situations » caractéristiques et l'utilisation d'une très large gamme d'échantillons de milieux diélectriques :

- Dans un premier temps, le cas de la propagation confinée radialement, simulant une propagation de décharge dans le sens d'une cavité. Dans ce cas, la décharge est directement initiée au sein d'un unique capillaire submillimétrique. La grande diversité de capillaires utilisés dans ce travail a permis de réaliser une étude paramétrique approfondie ayant pour but de comprendre l'influence des principaux paramètres et de prédire ainsi le comportement de la décharge confinée en fonction des paramètres choisis et/ou en fonction de la structure de la décharge souhaitée, voire même du chemin espéré.

- Dans un deuxième temps, le cas du confinement perpendiculaire au sens de propagation de la décharge par insertion d'une membrane, correspondant à l'arrivée de la décharge sur la paroi d'une cavité. Dans ce cas, une grande diversité de membranes a été étudiée afin de réaliser une étude paramétrique sur la structure et la vitesse de propagation des décharges ainsi confinées.

Ce chapitre est destiné à présenter les divers montages expérimentaux réalisés pour étudier ces deux types de confinement et leur influence sur la propagation des

décharges. Il s'attachera à décrire les parties constituantes du montage électrique, les diagnostics mis en place et leurs caractéristiques, ainsi que les divers réacteurs utilisés en fonction de l'étude réalisée.

A. Présentation générale du montage

Le schéma de la Figure 15 présente le montage général des expériences effectuées au cours de la thèse. L'ensemble des montages expérimentaux réalisés peut toujours se décomposer en trois blocs distincts : un bloc électrique, un bloc optique et le bloc réacteur et mesures. Les blocs électrique et optique étant communs à tous les montages, ceux-ci vont être détaillés respectivement dans la section B et C de ce chapitre. Une dernière section présentera les divers réacteurs conçus au laboratoire selon le type de confinement étudié. Les expériences qui y sont présentées, ont néanmoins toutes été effectuées en configuration pointe-plan, où la pointe est soumise à une impulsion de haute tension délivrée par le bloc électrique du montage. Le plan est quant à lui connecté à la masse, et est placé à une distance de l'ordre du centimètre en regard de la pointe. Cette configuration assure l'initiation de la décharge à la pointe, la distorsion des lignes de champ par effet de pointe créant un renforcement local du champ géométrique.

La précision de mesure des divers diagnostics implémentés dans nos montages dépend grandement de la maîtrise des perturbations électromagnétiques. Un effort important a donc été porté sur le contrôle des perturbations générées par l'ensemble des composants du montage afin de s'affranchir de signaux électriques et d'images parasites. Les retours de masse ont ainsi été minimisés en distance afin d'éviter toute création de boucles électromagnétiques favorables aux rayonnements parasites. En outre, des cages de Faraday « maisons » ont été conçues pour réduire ces perturbations, notamment autour de leurs principales sources que sont l'éclateur à gaz du générateur haute tension et la décharge elle-même, mais aussi autour de chacun des instruments de mesures (caméras ICCD et oscilloscope) afin de mieux les protéger.

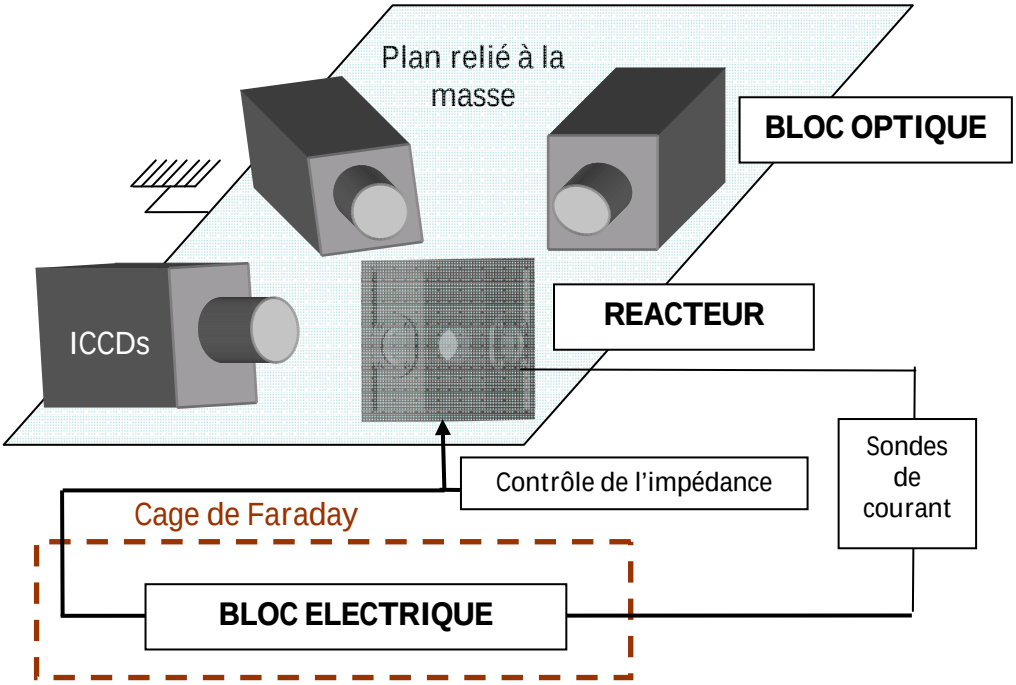


Figure 15. Montage général des expériences effectuées

B. Le bloc d'alimentation électrique

La partie électrique du montage présentée sur la Figure 16, isolée entièrement au sein d'une cage de Faraday, se compose :

- d'une alimentation haute tension pulsée constituée d'un éclateur à gaz à pression contrôlée et permettant la génération d'un unique créneau de haute tension positive,
- de deux sondes de tension « maison » réalisées sous forme de ponts diviseurs capacitifs. L'une assure la lecture de la tension délivrée en sortie de l'éclateur, l'autre permet le déclenchement des caméras,
- d'un boîtier de contrôle, uniquement dans le cas où la ligne coaxiale HT reliant le bloc électrique au réacteur n'est pas adaptée,
- d'un oscilloscope Lecroy 640Zi 4GHz nécessaire aux acquisitions à la fois de la tension, des signaux de courant, et des portes de déclenchement des caméras.

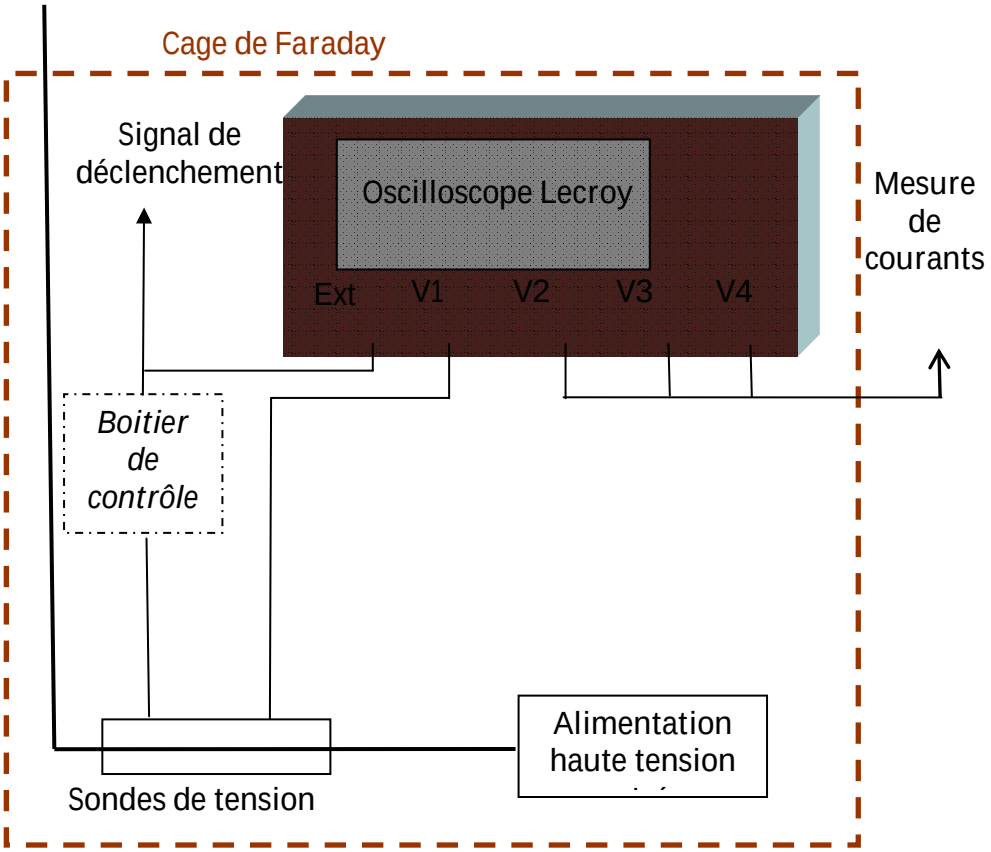


Figure 16. Bloc électrique

1. L'alimentation haute tension pulsée

L'alimentation haute tension pulsée, utilisée dans le cadre de notre étude, a été réalisée au sein du laboratoire LPGP avant mon arrivée. Certains ajustements ont néanmoins dû être apportés au cours de la thèse dans le but de stabiliser la génération de l'impulsion ainsi que de minimiser les perturbations électromagnétiques générées. Cette alimentation haute tension pulsée se compose de deux parties, l'une nécessaire à la génération de la haute tension, l'autre à la mise en forme de l'impulsion sous forme de créneau.

a. Génération de la haute tension

Comme illustré par la Figure 17, le générateur se compose d'une alimentation 12V régulée, qui assure la charge du primaire d'une bobine lorsque le transistor jouant le rôle d'interrupteur, est fermé. Un boîtier de déclenchement permet de commander à l'aide d'un bouton poussoir la fermeture de ce transistor. A la fin du temps de conduction dont la durée est réglable, l'énergie stockée est transférée au secondaire de la bobine, générant ainsi la charge d'une ligne coaxiale haute tension T_1.

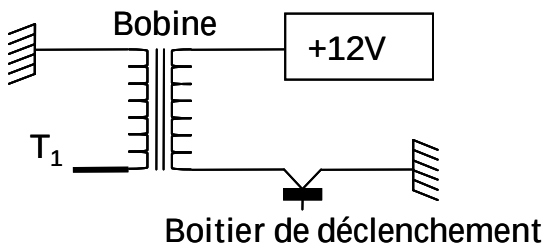


Figure 17. Schéma de principe de génération HT

Le temps de charge du câble coaxial T_1 est imposé par l'impédance du circuit, fixée par les capacités parasites de la bobine, la capacité de la ligne et le câble résistif reliant le secondaire de la bobine à la ligne. Cette constante de temps étant très supérieure au temps de propagation des ondes, la tension augmente de manière uniforme sur toute la longueur de l'âme de la ligne. Le réglage du temps de conduction du transistor permet d'ajuster la quantité d'énergie chargeant T_1 et donc la tension maximale qu'il est possible d'imposer. L'extrémité du câble T_1 est reliée à l'anode d'un éclateur à gaz calibré dont le rôle est de générer un créneau haute tension pulsée avec un front de montée ultra raide, tel que décrit dans la section suivante. A l'aide du boîtier de déclenchement, il est également possible de faire fonctionner l'alimentation en fréquence. La gamme de fréquence accessible est cependant très réduite à cause du fonctionnement de l'éclateur à gaz, peu stable aux fréquences élevées. Elle ne peut ainsi pas excéder 100 Hz, restreignant les études concernant ce paramètre. Une étude élargie de l'influence d'un fonctionnement en fréquence aurait donc demandé la conception d'une nouvelle alimentation. Cependant, l'expérience a montré qu'un fonctionnement en fréquence autour de 60 Hz provoque déjà de nombreuses perturbations, endommageant même les divers outils de diagnostics en présence. Nous avons donc choisi de nous limiter à cette gamme étroite de fréquences, désirant conserver le même générateur, celle-ci n'étant pas un paramètre clé dans notre étude.

b. Mise en forme par éclateur à gaz et lignes coaxiales

Comme nous le montre la Figure 18, la haute tension est transmise par le câble coaxial T_1 vers un éclateur à azote, avant d'être amenée au réacteur de décharge par un deuxième câble coaxial haute tension T_2. L'éclateur à gaz, constitué de deux électrodes hémisphériques en regard, est placé dans une cellule contrôlée en pression et isolée par une cage de Faraday « maison ».

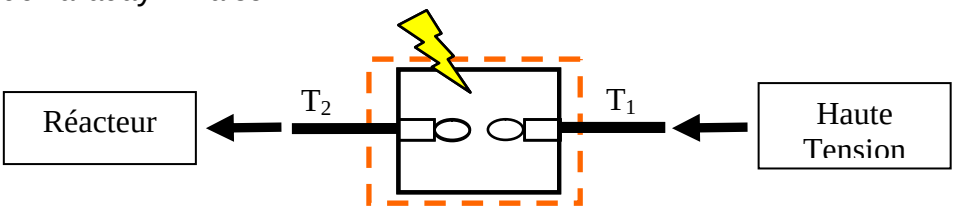


Figure 18. Eclateur à gaz

La distance entre les deux électrodes ainsi que la pression fixent la tension de claquage V_c de l'éclateur. Lorsque la tension de charge de T_1 atteint la valeur V_c, l'éclateur entre en conduction, générant deux ondes électromagnétiques d'amplitudes égales à $V_C/2$. Un premier front d'onde vient charger T_2, c'est une onde de polarisation, tandis qu'un deuxième front décharge T_1 correspondant à une onde de dépolarisation. La réflexion de ce front en tête de ligne de T_1 provoque la génération d'un créneau de tension dont l'amplitude vaut $V_C/2$ et dont les fronts de montée et de descente correspondent au temps de mise en conduction de l'éclateur. La durée de l'impulsion est fixée par le temps que met l'onde de dépolarisation à faire un aller-retour sur T_1. Par la connaissance de la vitesse de propagation c des ondes sur les lignes coaxiales de 50Ω d'impédance, nous pouvons fixer la durée de l'impulsion τ en ajustant la longueur l de T_1.

$$\boxed{\tau = \frac{2l}{c}}$$

La longueur du câble T_1 choisie a permis de fixer la durée de l'impulsion autour de 25 ns. Une calibration de l'éclateur a permis d'obtenir des fronts de montée et de descente ultra-rapides de seulement deux nanosecondes, permettant d'obtenir des taux de variation compris entre 4 et 10 $kV.ns^{-1}$. Le profil de tension obtenu sera donc un créneau positif de tension dont l'amplitude dépendra de la pression d'azote au sein de l'éclateur et du caractère adapté ou non de la ligne T_2, comme nous le préciserons dans le paragraphe suivant. La Figure 19 montre qu'il peut être décomposé en trois parties : le front de montée de 2 ns, un plateau d'environ 20 ns et enfin le front de descente d'environ 2 ns. Ce temps de montée ultracourt est un facteur prépondérant sur le développement des décharges, aussi bien sur leur structure propre, que sur leur initiation et même leur vitesse de propagation. Disposer d'un front de montée raide amène en effet à plusieurs avantages. Cela assure, en premier lieu, le développement de décharges nanosecondes à la pointe avec des délais d'initiation très courts, pendant le front de montée, limitant ainsi le jitter lié à l'initiation de la décharge inférieur à la nanoseconde. Cette caractéristique fut capitale dans l'analogie réalisée entre diagnostics électriques de courant et optiques que nous présenterons par la suite.

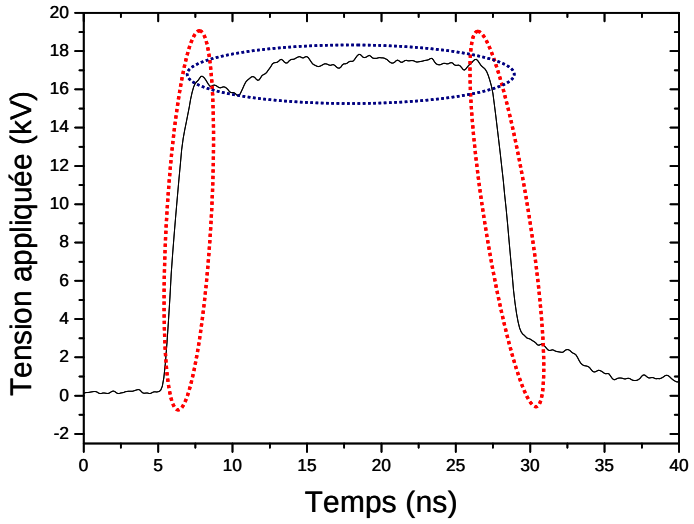


Figure 19. Profil type de tension appliquée

En second lieu, ces fronts de montée vont faciliter la synchronisation des caméras avec la décharge dont le principe sera décrit dans la partie optique de ce chapitre. Il permet enfin d'appliquer quasi instantanément la surtension souhaitée, correspondant à la valeur de l'amplitude du créneau de tension mesurée, mettant ainsi en exergue l'influence réelle de ce paramètre clé. Un front de montée lent laisse en effet la possibilité d'initier et de propager la décharge à des tensions bien inférieures à la tension maximale délivrée, biaisant ainsi l'influence de l'amplitude de la tension.

Si l'éclateur à gaz permet d'obtenir un front de montée en tension raide, il permet également de faire varier l'amplitude de la tension appliquée. Selon la loi de Paschen, à distance inter-électrodes constante, si l'on augmente la pression au sein de l'éclateur, alors la tension de claquage V_C augmente, ainsi que l'amplitude de la tension appliquée en sortie. Après calibration par une sonde haute tension disposée à la pointe, nous pouvons donc également déterminer l'amplitude de la tension appliquée à la pointe par la connaissance de la pression d'azote au sein de l'éclateur. Néanmoins, pour une pression donnée dans l'éclateur, une incertitude sur l'amplitude de la tension existe : 1 à 2 kV pour les hautes pressions, 3 à 4 kV parfois pour les très basses tensions. Afin de connaître précisément la tension délivrée à la pointe, il a donc été nécessaire d'implémenter une sonde de tension que nous décrirons dans le paragraphe 3 de ce chapitre.

2. L'adaptation en impédance

a. Théorie de propagation du signal

D'après la théorie de la transmission des signaux dans des lignes coaxiales annexe 3), il est nécessaire d'adapter l'impédance caractéristique d'une ligne avec l'impédance de sa charge (ici le réacteur) afin de transférer le maximum de puissance. Cette même théorie permet la définition de la vitesse de propagation des signaux

électriques de tension u(x,t) et de courant i(x,t) en chaque point x du câble d'après l'équation des télégraphistes suivante :

$$\boxed{\frac{d^2u}{dx^2} = LC\frac{d^2u}{dt^2}}$$

Tension et courant se propagent ainsi à la même vitesse $c=1/\sqrt{LC}$ et, en chaque point x du câble et à chaque instant t, leur rapport reste constant et égal à l'impédance caractéristique Z_c de la ligne.

On distingue alors deux cas possibles, selon la valeur de l'impédance Z_R de la charge (réacteur) en bout de ligne et donc selon la valeur du coefficient de réflexion ρ défini par :

$$\boxed{\rho = \frac{Z_R - Z_C}{Z_R + Z_C}}$$

- Cas d'une ligne "adaptée" : l'extrémité de la ligne est "fermée" sur son impédance caractéristique. On a donc $Z_R = Z_C$ et donc $\rho = 0$. Il n'y a pas de réflexion du signal en bout de ligne et l'amplitude de la tension en bout de ligne est identique à celle du signal se propageant dans la ligne.

- Cas d'une ligne "ouverte". L'extrémité de la ligne est en circuit ouvert ce qui correspond à $Z_R = \infty$ et donc $\rho = 1$. Cela provoque une réflexion du signal en bout de ligne, qui retourne vers le générateur (réflexion "positive"). Le coefficient de réflexion, qui vaut +1, signifie que l'amplitude de la tension réfléchie est égale à celle de la tension incidente. En bout de ligne, leurs amplitudes s'ajoutent, ce qui permet de doubler la plage de tension délivrée. Ce cas correspond à la configuration expérimentale utilisée par défaut puisque le réacteur de décharge présente a priori une impédance élevée.

b. Maîtrise de l'impédance et du déclenchement

Afin d'éviter les réflexions de ce premier front d'onde, on peut donc adapter l'impédance de la charge à celle de la ligne. Dans le cas de l'étude consacrée au confinement radial des décharges présentée dans ce chapitre, nous avons choisi de toujours adapter la charge en impédance par rapport à T_2. Cela a pu être réalisé par la mise en parallèle sur le réacteur d'un ensemble de dix résistances de 500 Ω montées en parallèle ($Z_R = 500/10 = Z_C$). Ce montage en parallèle permet de diviser par 10 le courant qui les traverse et de limiter ainsi la puissance dissipée dans chacune d'elle.

Dans le cadre de l'étude dédiée au confinement longitudinal des décharges, la ligne a été volontairement désadaptée afin de doubler la gamme de tensions accessibles à la pointe. En contrepartie, cette désadaptation provoque des rebonds de signaux haute tension dans la ligne T_2 qu'il convient alors de prendre en considération :

- Dans le cas non adapté, l'impulsion est réfléchie en bout de ligne T_2 et retourne vers le début de ligne (bobine ou éclateur à gaz selon son état de conduction) où elle y est à nouveau réfléchie (réflexion positive). Ce va-et-vient dure jusqu'à ce que toute l'énergie se dissipe à travers les pertes linéiques et les résistances de fuite de la ligne T_2. Etant donné que la longueur de cette ligne (environ 45 m) est très grande devant celle de la ligne T_1 (l = 2m50), on retrouve alors une suite d'impulsions distantes d'une durée équivalente à un aller-retour sur T_2 (Figure 20). Ainsi tout phénomène (décharges secondaires ou perturbations électromagnétiques) se produisant à la pointe pendant ces rebonds ne seront pas gênants pour une étude se focalisant sur la première impulsion.

- Si ces rebonds ne sont pas préjudiciables au développement de la décharge, ils pourraient l'être néanmoins pour le bon déclenchement des caméras. Le signal de déclenchement étant issu de la sonde capacitive en sortie d'éclateur, celui-ci est dépendant du profil de la tension appliquée, et perçoit donc les rebonds dans la ligne HT. Ces derniers incitent alors les intensificateurs des caméras à se déclencher de manière intempestive et donc à intégrer les phénomènes lumineux issus de chacun des rebonds sur la même image CCD. Afin d'éviter ce problème de déclenchement, un boitier de contrôle a été disposé entre la sonde de tension qui délivre le signal et les entrées de chacune des caméras (cf Figure 16). Son rôle est de détecter le premier front et de maintenir l'amplitude de la tension de déclenchement sur plusieurs millisecondes. Ce système inhibe donc tout déclenchement intempestif des intensificateurs des caméras. L'inconvénient est que ce boîtier de contrôle ajoute un délai de transmission des signaux qui a automatiquement nécessité d'allonger la ligne coaxiale T_2 pour retarder l'initiation de la décharge et garder la synchronisation des différents signaux. Cette longueur de câble supplémentaire provoque malheureusement une atténuation de signal HT plus importante, ce qui modifie le coefficient de calibration de la sonde de tension décrite dans le paragraphe suivant.

- Si la ligne T_2 se retrouve « déconnectée » à ses deux extrémités (éclateur ouvert et décharge éteinte respectivement en entrée et en bout de ligne), la dissipation d'énergie contenue dans les rebonds peut ne pas être totale et il peut exister une tension continue résiduelle sur l'ensemble de la ligne et sur des temps très longs. Dans ce cas, les conditions d'initiation d'une décharge peuvent être différentes d'un coup à l'autre. Afin de d'assurer du retour au zéro de tension au niveau de la pointe avant un nouveau déclenchement, une résistance de ballast de 1kΩ est ajoutée en parallèle du réacteur. Sa valeur étant grande devant l'impédance de 50 Ω de la ligne, elle n'aura pas d'effet sur le coefficient de réflexion et le doublement de tension aura bien lieu.

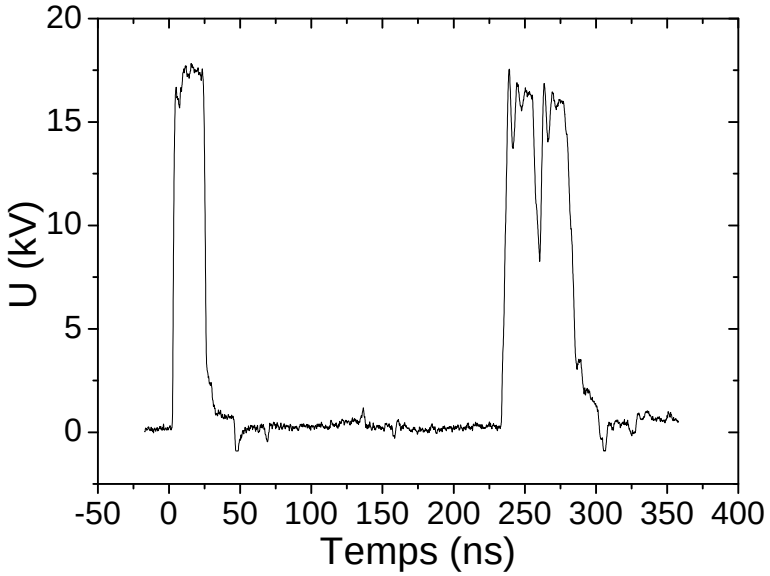


Figure 20. Impulsion caractéristique de tension à large échelle de temps dans le cas non adapté

3. Sondes de tension

Pour avoir une connaissance exacte de la tension appliquée, une première sonde haute tension a été intégrée à la ligne coaxiale T_2 en sortie de l'éclateur. Cette sonde repose sur le principe d'un pont diviseur capacitif délivrant une tension plus basse d'amplitude inférieure à 1 kV, mesurable au travers d'une sonde d'oscilloscope basse tension classique. L'utilisation d'un pont diviseur de tension intégré à la ligne présente plusieurs avantages. En effet, cela ne perturbe pas la propagation de l'impulsion, mais surtout, cela offre une bande passante en fréquence plus élevée que celle obtenue à partir d'une sonde haute tension classique, nécessaire pour la mesure d'impulsions et de fronts nanosecondes. [2]

Cette sonde est constituée de deux condensateurs. Le premier condensateur C_1 du pont a pour première armature l'âme du câble coaxial T_2. Séparé par le diélectrique de T_2, un cylindre de scotch cuivre de 3 cm de long sert de deuxième armature. Le second condensateur C_2 du pont possède pour armature interne ce même cylindre métallique et pour armature extérieure, la tresse de masse de la ligne T_2. Le diélectrique, réalisé par une feuille de kapton ($\varepsilon_r = 3$), est enroulé autour de l'armature extérieure de C_1 sur une épaisseur de 150µm.

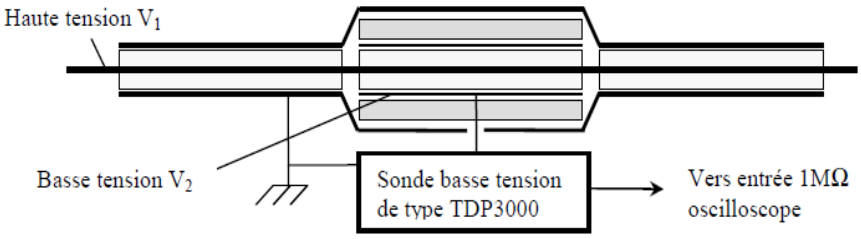


Figure 21. Principe de fonctionnement de la sonde haute tension

Le schéma électrique équivalent est donc le suivant :

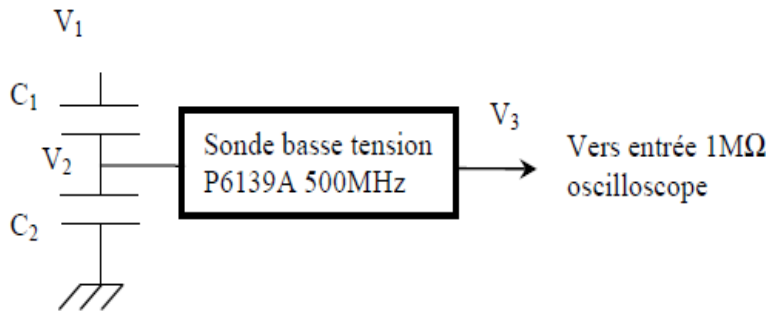


Figure 22. Schéma équivalent de la sonde haute tension

La sonde P6139A de Tektronix est une sonde basse tension qui possède l'avantage d'avoir une bande passante plus élevée que les sondes haute tension classiques. Elle divise la tension par un facteur 10. La tension V_3 est alors donnée par la relation :

$$V_3 = \frac{1}{10}\frac{C_1}{C_1 + C_2}V_1$$

Les valeurs de C_1 et C_2 sont données par la formule générale :

$$C = \frac{2\pi\varepsilon_0\varepsilon_r}{\log(\frac{r_1}{r_0})}L$$

où ε_r, r_0, r_1 et L désignent respectivement la permittivité, les rayons intérieur et extérieur, et la longueur du diélectrique.

Nous obtenons d'après ces formules un rapport théorique : $\frac{V_3}{V_1} = \frac{1}{20}$

D'un point de vue expérimental, une calibration de cette sonde est réalisée à partir d'une sonde haute tension Lecroy placée directement à la pointe, offrant ainsi une lecture maîtrisée de la tension appliquée à chaque évènement. Le graphique de la Figure 23 montre le résultat de cette calibration dans le cas où la ligne T_2 n'est pas adaptée en sortie. Elle se traduit par une relation linéaire entre la tension lue par la sonde capacitive ($x = U_{sonde_tension_maison}$) et la tension réellement appliquée à la pointe ($y = U_{sonde_HT}$) de la forme :

$$y = 18{,}2x - 387{,}9$$

Dans le cas d'une ligne non adaptée, on obtient de la même manière : $y = 32{,}6\,x - 452{,}3$

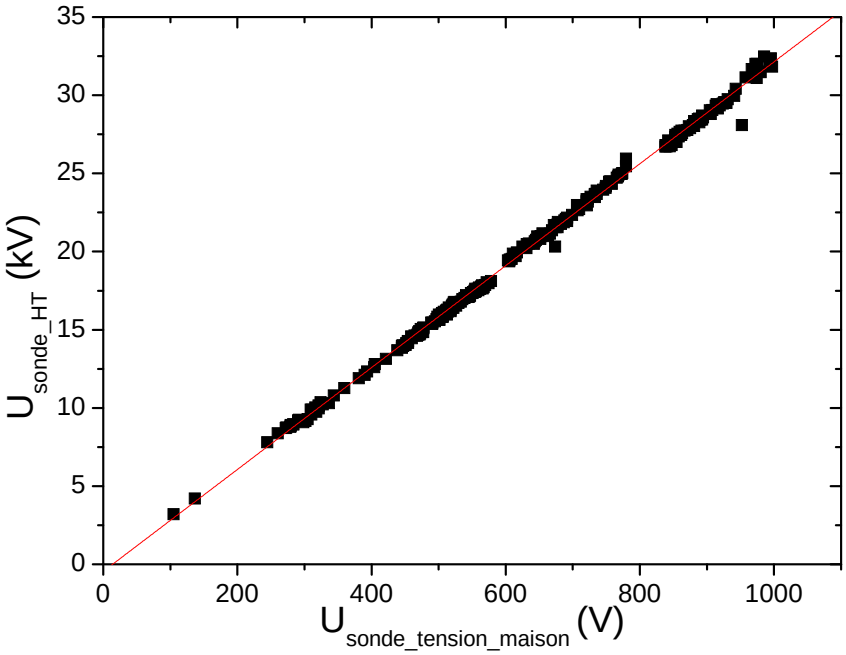


Figure 23. Calibration de la sonde haute tension dans le cas de lignes non adaptées

Nous remarquons que le coefficient n'a pas exactement été doublé sous l'effet de la désadaptation (32,6 au lieu de 2*18,2 = 36,4). Cela peut s'expliquer par la position de la sonde haute tension à la pointe lors de l'expérience de calibration qui ne fût pas nécessairement la même dans les deux cas, et qui aurait engendré des différences de valeurs des capacités en bout de ligne modifiant légèrement la relation linéaire entre les deux sondes. L'augmentation de la longueur de la ligne T_2 dans le cas de lignes non adaptées, nécessaire au maintien de la synchronisation des signaux, engendre également davantage de perte de signal et contribue à la modification du coefficient de calibration. Dans toutes nos expériences, par souci d'uniformisation des résultats que nous présenterons, l'amplitude de la tension appliquée à la pointe et lue par la sonde capacitive a subi un post-traitement informatique afin de s'affranchir du caractère aléatoire des fluctuations du créneau haute tension. En effet, pour chacune des décharges effectuées, le créneau de tension obtenu par la sonde est moyenné sur toute la durée du plateau composant le créneau, avant d'être multiplié par la relation issue de la calibration, donnant ainsi une valeur moyenne de l'amplitude de la tension appliquée. Dans les différents graphiques présentés, ce sont ces valeurs qui y seront reportées.

Un oscilloscope Lecroy 640Zi 4GHz est utilisé pour visualiser les signaux obtenus. Sa fréquence d'échantillonnage de 40GS/s est adaptée à l'extrême rapidité des évènements que l'on désire observer. Nous y visualisons ainsi le signal de tension appliquée et les signaux issus des mesures de courant effectuées.

Par ailleurs, dans notre montage, une deuxième sonde haute tension reposant sur le même principe de fonctionnement que celui décrit précédemment permet de fournir un signal similaire au profil de tension délivrée et d'amplitude comprise entre 3 et 6 V. Ce signal permet de déclencher et de synchroniser les diagnostics optiques de notre montage comme nous le présenterons dans les paragraphes suivants.

C. Le bloc optique

La section suivante permet de présenter de manière générale les diagnostics optiques communs aux différentes études menées, la méthodologie ainsi que les principes et modes opératoires des caméras utilisées. La méthodologie expérimentale de la synchronisation des caméras sera également présentée dans une dernière partie.

1. Présentation générale

Les travaux expérimentaux menés dans cette thèse nécessitent des outils de diagnostics optiques de très grande précision à la fois temporelle et spatiale permettant de visualiser la propagation de phénomènes lumineux très rapides, très localisés et peu lumineux. Le but des mesures optiques est de comprendre les différentes phases de la propagation d'une unique décharge mais aussi de faire des calculs de vitesse permettant de mettre en exergue l'influence des divers paramètres étudiés au cours de nos expériences.

Figure 24. Photographie de la caméra 4 Picos Stanford Computer Optics

Nous avons ainsi utilisé trois caméras ICCDs ultra rapides de type 4-Picos (Stanford Computer Optics) présentées Figure 24. Les trois caméras ont été disposées sur les différents montages expérimentaux à 45° afin de pouvoir décrire la décharge en volume et de s'affranchir des effets de projection. Si une description plus exhaustive des caractéristiques de ces caméras est évidemment disponible auprès du fournisseur, les principales caractéristiques de ces caméras peuvent se résumer comme suit :

- Une grande sensibilité de capteur.
- Un bruit CCD de simplement 10 $e^{-}.pix^{-1}.sec^{-1}$.
- Une réponse spectrale étendue, de 110 nm à 1300 nm de longueur d'onde, permettant ainsi la visualisation des UV, si l'objectif associé est évidemment adapté.

- Une échelle dynamique élevée, typiquement de 14 bits, contribuant à leur excellente résolution.

Le principal atout de ces caméras réside cependant dans leur temps minimal d'exposition. En effet, la durée d'ouverture de chacune de ces caméras peut être réduite par pas de 100 ps jusqu'à une valeur minimale de seulement 200 ps. Grâce à cette caractéristique assez unique, les caméras 4-Picos Stanford utilisées permettent d'obtenir des acquisitions très précises des différentes évolutions des décharges dans l'espace inter-électrodes.

Pour réaliser nos acquisitions optiques, nous avons utilisé deux types d'objectifs montés sur ces caméras :

- deux objectifs visibles macros TAMRON de focale 90 mm ayant une ouverture maximale de f/2.8.

- un objectif sensible dans le domaine UV (EADS SODERN 100F/2.8) de focale 100 mm.

Ces deux objectifs n'ayant pas rigoureusement les mêmes réponses spectrales, les images obtenues ne seront pas strictement identiques. Si cela peut être préjudiciable par la différence de contraste des acquisitions réalisées, liée au fait que l'objectif UV captera plus de lumière que le visible, cela ne gêne en rien une lecture commune précise du front d'ionisation au sein de l'espace inter-électrodes. Ce dernier demeure en effet très lumineux quelque soit l'objectif monté sur la caméra. Ces différences d'objectifs renseignent ainsi sur l'importance de l'émission dans la gamme UV tout en n'étant pas gênantes pour les mesures de vitesses.

L'ouverture utilisée dans toutes nos expériences était maximale afin de collecter le maximum de lumière soit une ouverture de f/2.8. Chacun des objectifs est couplé à une ou plusieurs bagues allonges selon le grossissement et/ou la profondeur de champ désirés. La Profondeur de Champ (PdC), qui correspond au champ de netteté de la caméra, peut s'exprimer de la manière suivante :

$$\boxed{PdC = \frac{2NcD^2}{f^2}}$$

où N est l'ouverture du diaphragme, f la focale, c le cercle de confusion et D la distance de mise au point.

Dans le cadre de nos expériences, nous avions une PdC de l'ordre du millimètre pour l'étude du confinement radial et de l'ordre du centimètre pour l'étude du confinement longitudinal des décharges couronnes générées.

2. Principe et modes opératoires

Une caméra intensifiée, comme illustrée par la Figure 25, se compose d'un tube intensificateur d'images et d'un capteur CCD contrôlés par une carte d'acquisition commandée par un ordinateur. Les photons émis par la décharge sont collectés par la photocathode de l'intensificateur au travers de l'objectif. Ils sont convertis en électrons par effet photoélectrique dont le nombre va dépendre directement de l'intensité de la lumière incidente. Ces électrons vont être accélérés sous l'effet d'un champ électrique appliqué sur l'étage amplificateur de l'intensificateur.

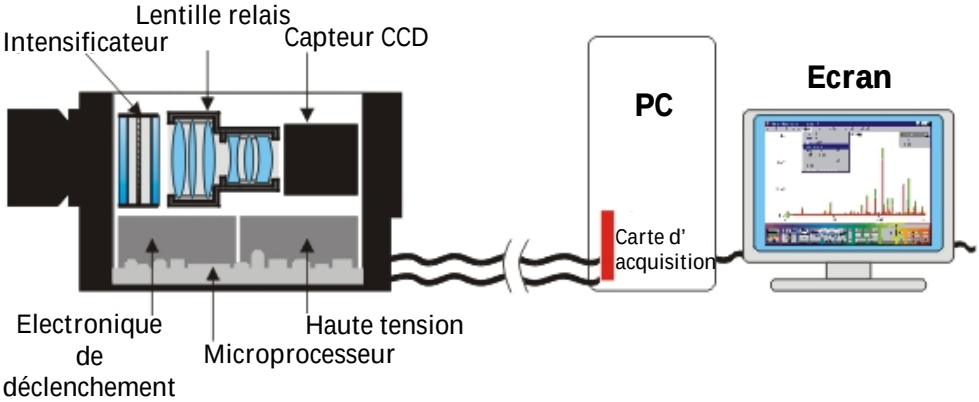


Figure 25. Principe de la caméra CCD intensifiée [3]

a. L'intensificateur

Le cœur de l'intensificateur, représenté Figure 26a, est constitué d'un assemblage de microcapillaires de verre (Micro Channel Plate/MCP) formant une « galette » de 18mm de diamètre. Les microcapillaires jouent le rôle de photomultiplicateurs, et fonctionnent de manière indépendante. La Figure 27b illustre comment les électrons issus de la photocathode sont multipliés et accélérés dans cette galette de microcanaux par application d'une tension V_{MCP} entre ses deux extrémités. Ils vont ensuite frapper une couche de phosphore déposée sur un écran fluorescent qui les convertit en photons visibles. Une image intensifiée (par tension variable V_{MCP}) d'électrons secondaires est ainsi délivrée avec une grande résolution spatiale sur l'écran phosphoré. La tension qui contrôle le gain, peut être ajustée sur un large domaine, entre 0 et 1000 V pour le MCP dont on dispose ici. Cette tension est contrôlée directement via le port numérique et le gain résultant maximum de courant est de $4*10^4$. Le volet du MCP est activé par application d'une tension négative V_{PC} de 120 V à la photocathode et dont la durée est déterminée par le temps d'ouverture du volet. Pour tous les autres temps, une tension positive de 100 V maintient le volet fermé.

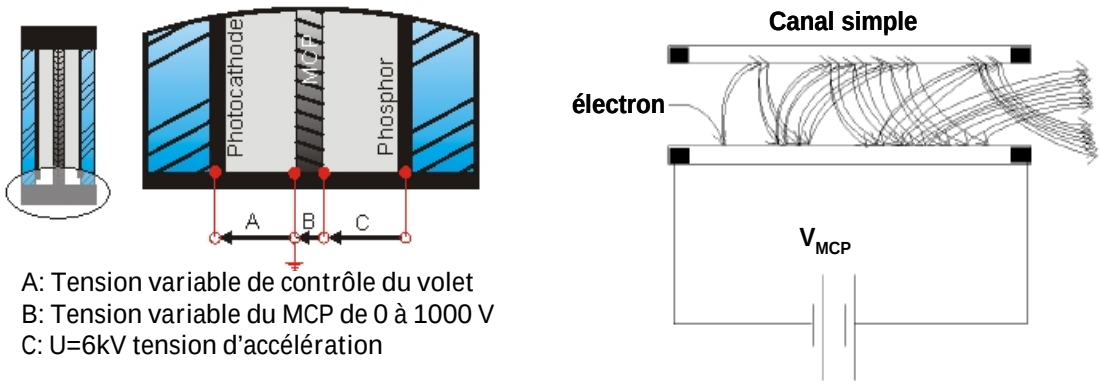


Figure 26. Fonctionnements de l'intensificateur et d'un unique microcapillaire du MCP

Pour le contrôle de ce volet, le déclenchement a lieu lorsque la tension atteint +1,63V. Il permet un contrôle numérique sur la caméra sur une plage de temps de 200 ps à 80 s avec des pas de simplement 0,01 ns.

b. Reprise d'image CCD

L'image intensifiée est transférée du MCP via des lentilles relais vers la caméra CCD où ils sont ensuite transformés en un signal numérique qui est envoyé au logiciel d'exploitation. Elle est en effet convertie en niveau de gris dont le nombre dépend du convertisseur analogique numérique utilisé. Dans notre cas, les caméras 4Picos Stanford utilisent des convertisseurs 12 bits permettant d'obtenir 16384 niveaux.

Le couplage entre le CCD et le MCP est assuré par six lentilles relais de focale f/0.8. Ce couplage permet de s'assurer de l'absence de distorsion optique de l'image de surface égale à 14.4 mm*10.8 mm. Ce système d'intégration très performant lié à la proximité du MCP et de la CCD permet donc une très bonne résolution des acquisitions.

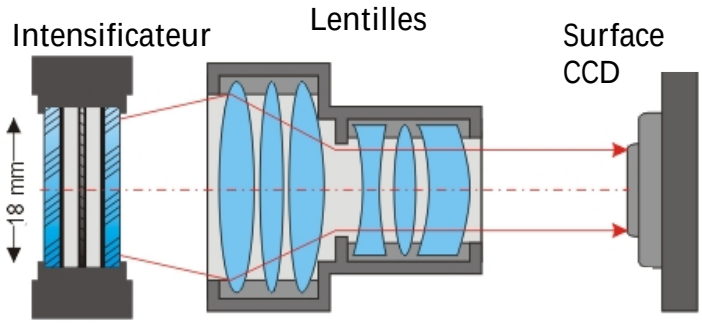


Figure 27. Principe de fonctionnement de la CCD

La caméra numérique possède un capteur ½" haute résolution structuré en 1360*1024 pixels pour une taille de pixel de 4.7*4.7 µm². Le capteur CCD intègre toute la lumière frappant sa surface durant un temps qui est déterminé par le taux de répétition du mode utilisé.

c. Modes de fonctionnement

Différents modes opératoires sont permis par les caméras 4Picos Stanford. Dans ce paragraphe, nous avons choisi de décrire uniquement les modes qui ont été le plus couramment utilisés dans le cadre de notre étude :

- Le mode «continu». Dans ce mode, la caméra délivre des images successives à une fréquence correspondant au mode de capteur de la caméra souhaité. Ce mode, indispensable à la mise au point des caméras, a été également très utile pour connaître les positions exactes de la pointe et du plan, ainsi que celles des différentes pièces de confinement.

- Le mode «déclenché». L'évènement déclenche l'ouverture de l'intensificateur, faisant ainsi débuter le temps d'intégration du capteur préalablement fixé par l'opérateur directement via l'interface du logiciel. Tant que l'intensificateur reste fermé, le bruit intégré sur la CCD est continuellement éliminé. Ce mode est le mode le plus utilisé au cours de mes travaux de thèse. Il permet d'acquérir une unique image d'un évènement par caméra avec un temps d'exposition minimum de 200 ps et des délais à l'ouverture contrôlés par pas minima de 100 ps.

3. Synchronisation expérimentale des caméras

Nous avons vu que les caméras sont déclenchées à l'aide d'un front de montée qui doit atteindre +1.63V pour commander l'ouverture du volet des caméras. La sonde de tension capacitive disposée en sortie d'éclateur et délivrant un signal compris entre 3 et 6 V permet ce déclenchement. La qualité du signal obtenu permet de synchroniser parfaitement les ouvertures des caméras avec la décharge. En effet, ce signal possède un front de montée ultra rapide qui annihile tout jitter sur le déclenchement des caméras. En outre, par la position même de la sonde directement disposée en sortie d'éclateur à gaz, ce signal parvient rapidement aux caméras, ce qui est un avantage pour une parfaite synchronisation des caméras. Il est nécessaire en effet que les délais liés au traitement d'image auxquels s'ajoute le délai de traitement du signal dans le cas d'une ligne non adaptée (par la présence du boîtier de sécurité) soient inférieurs à celui lié à la propagation du signal haute tension dans le câble de l'éclateur jusqu'à la pointe. Le déclenchement de portes ultra précises nécessite donc une attention particulière sur le délai interne inhérent (délai de propagation du signal propre à la caméra). Ce délai, fixé à 40 ns correspond au délai entre le déclenchement de la caméra et la génération de son impulsion interne. Pour passer outre ce délai, il suffit alors de retarder l'arrivée de la tension à la pointe en augmentant la longueur de câble pour s'assurer de visualiser la décharge par les caméras. Expérimentalement, une marge suffisante en longueur de câble a été laissée pour la retarder, permettant d'adapter le délai directement par l'interface du logiciel pour visualiser l'initiation de la décharge. L'ouverture des volets étant correctement commandée par le signal, il nous reste à régler les délais d'ouverture via l'interface numérique de chaque caméra. Cette étape est nécessaire pour la synchronisation parfaite des caméras entre elles, pour ensuite obtenir des images à partir des trois caméras dont les déclenchements seront maîtrisés dans le temps.

Les trois caméras ne perçoivent pas le signal de déclenchement simultanément, du fait d'un câblage propre à chacune et donc de longueurs différentes. Afin de pallier ce problème, il est nécessaire d'ajuster précisément les délais d'ouverture de chacune d'entre elles à l'aide du logiciel d'exploitation. Nous avons donc mis au point pour ce faire une méthodologie qui consiste, après avoir soigneusement fixé les échelles et la hauteur des caméras de façon strictement identique, à réaliser des acquisitions ultra courtes de décharges très lumineuses (on se place typiquement à haute tension) qui permettent aisément une synchronisation parfaite des caméras entre elles.

En premier lieu, il s'agit donc de calibrer les échelles sur les images issues des acquisitions numériques des caméras. Pour ce faire, un réglet micrométrique est directement placé devant chacun des axes des caméras afin d'avoir la même échelle pour toutes. Afin d'ajuster la hauteur de chacune des caméras, la pointe est illuminée par une lampe. Les Figure 28 a et b illustrent cette étape. Il suffit ensuite de comparer par post-traitement informatique le front de décharge obtenu par chacune des acquisitions. Les délais à l'ouverture de chaque caméra peuvent être alors ajustés par pas de 100 ps, de façon à obtenir trois acquisitions strictement équivalentes. Pour faciliter l'obtention d'une synchronisation parfaite des caméras, comme le montre la Figure 28c, nous avons également toujours choisi de contraindre la décharge radialement afin de s'affranchir des branchements de la décharge et de n'avoir qu'un seul front de décharge très lumineux. La synchronisation des caméras est assurée en jouant sur la commande des délais des caméras précises à 10 ps près, avec des temps d'exposition ultra courts pour obtenir trois images similaires comme expliqué précédemment. La Figure 28c présente un exemple typique d'une synchronisation expérimentale des caméras par paramétrage individualisé des délais à l'ouverture, commandés par le logiciel d'exploitation. Ces acquisitions, intégrées sur 200 ps, doivent être parfaitement similaires (contraste lié à l'objectif U.V excepté). Si un des fronts de décharge ne se situe pas strictement au même niveau que les deux autres, il suffit alors d'adapter le délai via le logiciel par pas de 10 ps afin que ceux-ci soient perçus strictement au même endroit au sein de l'espace inter-électrodes.

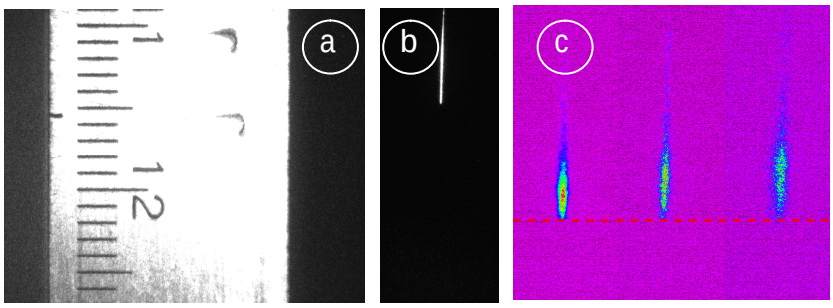


Figure 28. Mise à l'échelle et synchronisation expérimentale des caméras
(a) réglet millimétrique
(b) pointe illuminée
(c) Synchronisation expérimentale des trois caméras

Cette synchronisation étant réalisée, on peut désormais jouer sur les délais d'ouverture pour précisément les décaler temporellement de façon maîtrisée par pas de 10 ps. Nous pouvons par exemple acquérir trois images par décharge avec des temps d'acquisitions de 200 ps minimum, chacune décalée en temps de 10 ps minimum. Nous verrons dans le paragraphe suivant de ce chapitre comment cette procédure servira par exemple pour des mesures de vitesses de propagation de la décharge.

D. Le bloc réacteur : décharges et mesures

Les différents réacteurs conçus au laboratoire pour l'étude des décharges confinées vont être présentés dans ce chapitre. Une première partie présentera le bloc dédié à l'étude du confinement radial tandis qu'une seconde s'attachera à décrire celui consacré à l'étude du confinement longitudinal. Pour chacune de ces parties, le réacteur ainsi que les mesures de courants et les mesures optiques associées seront détaillés. La méthodologie de traitement des données recueillies par les divers diagnostics sera ensuite présentée, avant de conclure en présentant notamment le couplage entre nos expériences et la modélisation réalisée à l'EM2C par l'équipe d'Anne Bourdon.

1. Réacteur de confinement radial des décharges

Dans cette partie, nous nous sommes intéressés au confinement radial des décharges nanosecondes pulsées. Dans ce but, différents capillaires ont été utilisés. Les nombreux échantillons dont nous disposions, ont en effet permis d'étudier l'influence de nombreux paramètres, aussi bien sur la structure de la décharge que sur sa propagation au sein du milieu.

La nomenclature présentée dans le Tableau 1 dresse l'ensemble des capillaires utilisés dans le cadre de notre étude. Grâce à ce large panel d'échantillons, les influences de paramètres clés sur l'aspect de la décharge et sur leur vitesse de propagation dans l'espace inter-électrodes ont pu être étudiées, en fonction de l'amplitude de la haute tension appliquée à la pointe.

Les résultats de cette étude, présentés dans le chapitre 3, tiennent compte :

- du diamètre interne des capillaires
- de l'épaisseur des parois
- de la géométrie de la section des capillaires (cylindrique, carré et rectangulaire)
- de la permittivité du matériau via leur différente nature (verre, polymère, céramique)

FOURNISSEUR	MATERIAU	FORME		
		Rond Φint(Φext)	**Carré**	**Rectangle**
VITROCOM	**Borosilicate**	75µm (5,5mm)	50µm	50µm*(500µm et 1mm)
	Non poreux	100µm (5,5mm)		
		200µm (5,4-5,5mm)	200µm	200µm*(2 ou 4mm)
		300µm (4,8mm)		
		500µm (1mm)	500µm	500µm*5mm
		600µm (2mm)		
		1mm (2mm)	1mm	1mm*10mm
		2mm (3mm)	2mm	
UMICORE	**Alumine Al23 (99,7%)**	200µm (500µm)		
	Non poreux	300µm (600µm)		
		600µm (1mm)		
		1mm (1,5mm)		
		1mm (2mm)		
		2mm (4mm)		
		3mm (6mm)		
PARADIGM OPTICS	**Polymères non poreux**			
	PMMA	50, 100, 200, 300 et 1400µm		
	PS	125, 250 et 550µm		
	PC	60, 120, 300, 400, 600 et 1200µm		
	PETG	150µm		
	COP (Zeonor 1020R)	100, 200 et 300µm		
	PSU (Udel P-3700HC, P-1700)	95, 120 et 176µm		
	PTFE (Teflon)	300, 560 et 1000µm		
	PP	100, 200 et 270µm		
	COC (Topas 6013)	150µm		
FLUOROTECHNICS	**PTFE (Teflon)**	3mm		
	Poreux			
ADTECH	**Fluoropolymères non poreux**			
	PTFE	200, 400, 500, 1300, 1600 et 2000µm		
POLYFLUOR Plastics	PTFE	300, 500, 800 et 1000µm		
RAUMEDIC	PVC	100µm à 50mm		
	LDPE, MDPE, HDPE	380µm		
	PEEK	500µm		
	PEI	410µm		
	PA	100µm à 50mm		
	PUR	100µm à 50mm		
	FEP	420 et 530µm		
EARTHWATERFIRE	Alumine (étanche à 99,7%)	800µm		
	Mullite (étanche à 60% d'alumine)	500µm et 800µm		
VICI	PEEK non poreux	130, 500 et 750µm		
	PTFE	250 et 500µm		

Tableau 1. Nomenclature des différents capillaires étudiés

a. Structure mono-capillaire

La Figure 29 présente le réacteur conçu et réalisé pour l'étude du confinement radial des décharges.

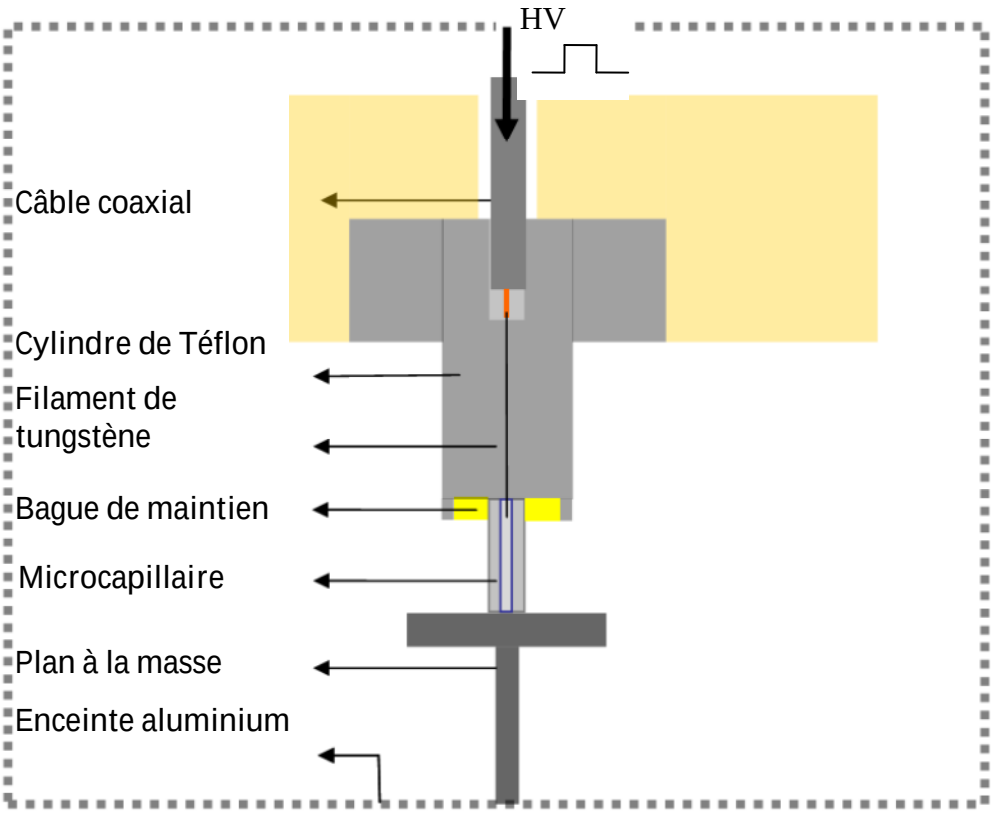


Figure 29. Réacteur destiné à l'étude du confinement radial des décharges

La haute tension délivrée par le bloc électrique arrive à la pointe via un câble coaxial encastré dans un manchon de téflon reposant sur le plan de travail relié à la masse. La pointe est en réalité un fil de tungstène, souple et fragile, de 50 µm de diamètre. Par ailleurs, les difficultés évidentes directement liées aux petites dimensions mises en jeu pour le maintien de la pointe au centre du capillaire étudié, ont nécessité la conception de différentes pièces au sein de notre laboratoire. Ce sont conjointement deux demi-cylindres de téflon et des bagues de serrage des capillaires qui vont assurer le maintien et le centrage du filament dans le capillaire. Ces derniers assurent en effet respectivement le maintien du filament dans l'axe pointe/plan et le maintien du capillaire au centre du cylindre en téflon sur lequel il repose. Différentes bagues ont été réalisées afin de s'adapter aux différents diamètres externes des échantillons. On s'assure de ce fait du caractère symétrique de notre configuration. Cette condition est prépondérante quant au développement de la décharge. Si le filament venait en effet à être décentré, la physique de la décharge serait modifiée sous l'effet des surfaces internes du capillaire. Cela fausserait en outre toute l'analyse de l'influence des divers paramètres de confinement. Cette précaution expérimentale de première importance fût vérifiée par l'imagerie en éclairant de l'extérieur le capillaire et la pointe.

Ce réacteur permet également de régler la distance inter-électrodes de quelques millimètres à un peu plus d'un centimètre. Dans le cadre de notre étude, deux valeurs

différentes de l'espace inter-électrodes ont été utilisées proches du centimètre. Réduire le gap amène à un renforcement du champ géométrique dans l'espace inter-électrodes.

Du fait du faible diamètre de l'anode, de 50 µm seulement, de très hautes valeurs de champ sont obtenues au sein du gap. Diminuer le gap en deçà du centimètre amène ainsi à la génération de décharges extrêmement énergétiques qui véhiculent de forts courants. Cela engendre également plus de difficultés pour le bon fonctionnement des diagnostics expérimentaux. Les perturbations électromagnétiques créées par les décharges, malgré la présence des cages de Faraday (oscilloscope et caméras), peuvent en effet fausser les différentes acquisitions Une attention particulière a donc été portée sur le retour de masse du réacteur afin de minimiser les parasites sur la mesure du courant. En effet, nous avons minimisé toutes les distances de rebouclage des masses afin d'optimiser les signaux obtenus à l'oscilloscope à l'aide d'une enceinte en aluminium. Cette dernière va également contribuer à réduire les perturbations électriques créées par la décharge.

La décharge couronne est donc générée dans une configuration pointe/plan. Cette configuration induit l'obtention d'un champ électrique non homogène amplifié au voisinage de la pointe. Cette amplification est d'autant plus importante qu'est petit le rayon de courbure R_e de la pointe. A titre d'exemple, en configuration de pointe parabolique, l'expression du champ axial peut s'écrire : [4]

$$E(x) = \frac{U}{[(x + \frac{R_e}{2}).\ln(1 + \frac{2d}{R_e})]}$$

où U, d, R_e et x sont la tension appliquée à la pointe, l'espace inter-électrodes, le rayon de courbure de la pointe, et la distance à la pointe sur l'axe inter-électrodes respectivement.

En appliquant cette formule, nous trouvons pour 12 kV une valeur de champ d'environ 160 kV.cm^{-1} à proximité de la pointe. Le champ électrique Laplacien obtenu dans nos conditions peut être également obtenu à partir de la résolution de l'équation de Poisson par le modèle numérique décrit dans le chapitre1 section C paragraphe 2. La simulation numérique donne un excellent accord puisqu'elle donne une valeur de champ électrique à la pointe de l'ordre de 180 kV.cm^{-1} environ pour U = 12kV.

Dans cette configuration, nous avons travaillé uniquement dans le cadre d'un montage adapté en impédance, aucune réflexion n'ayant lieu dans le câble coaxial haute tension. Dans ces conditions, la tension peut varier en amplitude entre 7 et 18 kV environ. Aux amplitudes de tension appliquée minimales correspond presque toujours un développement d'une décharge à la pointe. Celle-ci peut cependant ne pas avoir le temps d'atteindre la cathode, du fait même du caractère ultra court de l'impulsion de tension générée. Dans ce cas, aucun signal de décharge n'est perceptible par notre méthode de diagnostic de courant.

b. Mesure de courant unique

Pour chaque montage expérimental conçu et réalisé dans l'optique de l'étude de la propagation de décharges confinées, une mesure de courant de décharge a été implémentée. Ces mesures de courant reposent toutes sur le même principe, à savoir l'utilisation d'un shunt résistif placé entre le plan et la masse au travers duquel on mesure le courant.

Dans le cas de la configuration destinée à l'étude du confinement radial des décharges, un plan unique de cuivre d'un diamètre de 1cm relié à la masse par l'intermédiaire d'un câble coaxial adapté sur 50 Ω, a été utilisé comme contre-électrode. Pour cette étude, nous avons réalisé des mesures de courant résolus temporellement. Ce plan de cuivre va en effet collecter le courant constitué d'un courant capacitif et du courant de décharge. En effet, lorsqu'une tension impulsionnelle V(t) est imposée à la pointe, l'espace inter-électrodes génère un courant capacitif $i_c(t)$ à travers le shunt résistif de 50 Ω de la forme :

$$\boxed{i_c(t) = C_{gap} \times \frac{dV(t)}{dt}}$$

Des variations brusques de tension, typiquement au cours des fronts de montée et de descente, vont ainsi engendrer de fortes valeurs de cette composante capacitive du courant, qui peut dès lors être nettement supérieure au courant de décharge, masquant ainsi la contribution de celui-ci. Ces valeurs vont dépendre également de la valeur de la capacité pointe/plan, directement corrélée au profil des électrodes. Afin de réduire la partie capacitive du courant dans le but de pouvoir observer l'impulsion de la décharge, une approche expérimentale simple a été réalisée. Nous avons délibérément choisi un évènement où aucune décharge ne s'est propagée au sein du gap. On s'affranchit ainsi de tout courant de conduction de décharge, visualisant la partie capacitive du courant uniquement. Connaissant le profil de tension appliqué, il est alors trivial de remonter à la valeur C_{gap}. Dans nos conditions expérimentales, celle-ci a été évaluée à 4 pF. Nous pouvons ainsi retrancher le signal capacitif au courant total de décharge obtenu pour n'avoir que le courant de conduction de décharge. Ce traitement mathématique ayant cependant rendu plus difficile l'appréciation du pic représentatif de l'initiation de la décharge, nous avons finalement choisi de conserver le courant total de décharge.

c. Mesures optiques

Pour cette expérience, nous avons en priorité étudié les différents capillaires de verre qui permettent par leur nature transparente l'utilisation des diagnostics optiques. La visualisation des différentes phases de la propagation des décharges au sein des capillaires ainsi que des mesures de vitesse de propagation ont donc été réalisées. Les trois caméras sont focalisées sur la décharge à travers les trois hublots de quartz du réacteur, et synchronisées très précisément sur celle-ci. Dans le cadre de cette étude, les petites dimensions mises en jeu n'impliquent pas la nécessité de posséder une profondeur de champ relativement importante, ce qui permet d'adopter un fort grandissement obtenu à l'aide de bagues allonges, pour visualiser la décharge. Dans le

cadre de notre étude sur le confinement radial des décharges nous avons opté pour un grandissement d'environ 0.34, et d'une profondeur de champ de l'ordre du millimètre.

En ajustant les délais d'ouverture et les temps d'intégration des caméras, une observation tridimensionnelle précise de la décharge peut être réalisée. Par ailleurs, comme nous disposons de trois acquisitions par décharge, des mesures de vitesses de propagation des décharges ont été effectuées en dérivant les positions relevées sur chacune d'entre elles par rapport au délai choisi entre les différentes acquisitions. Dans ce contexte, des temps d'intégration ultra courts ont été utilisés, généralement de l'ordre de la nanoseconde ou moins (600-800 ps), afin d'obtenir trois positions différentes de la décharges à trois instants distincts de sa propagation dans l'espace inter-électrodes. Un post-traitement informatique, via le logiciel vectoriel InkScape permet de visualiser au pixel près le déplacement du front d'ionisation. Il met en effet à disposition des outils vectoriels précis permettant de lire minutieusement le déplacement de la décharge entre chaque acquisition. Connaissant le délai entre chaque acquisition, on remonte ainsi pour chaque décharge à deux vitesses instantanées de propagation. Comme nous le verrons par la suite, dans les cas où ces valeurs de vitesses sont proches, c'est-à-dire dans les cas où la vitesse de propagation de la décharge ne dépend pas ou peu de sa position dans le gap, nous reporterons pour chaque graphique la moyenne de ces deux valeurs de vitesses instantanées.

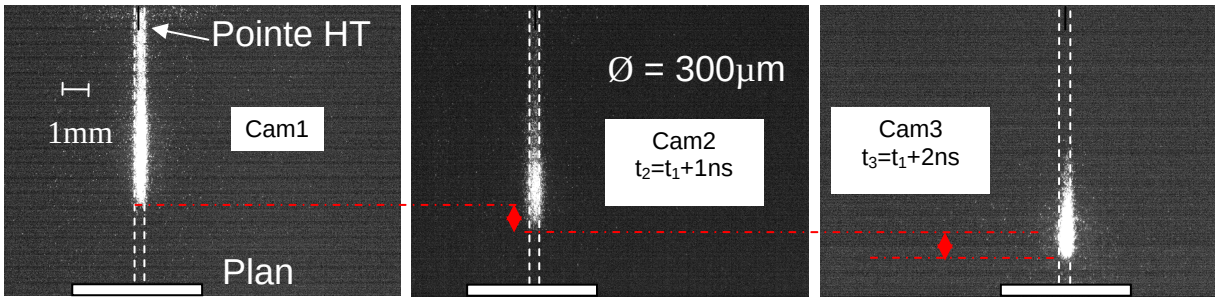


Figure 30. Exemple de mesure de vitesses

La Figure 30 illustre cette méthodologie pour des images prises sur un unique évènement se propageant au sein d'un capillaire de verre de rayon 300 µm. Chaque image, obtenue avec le même grossissement, est intégrée sur 1 ns dans cet exemple. Les acquisitions sont décalées en temps les unes par rapport aux autres de 1 ns. La pointe alimentée par la haute tension positive se trouve en haut de l'image alors que le plan lui fait face à 1.2 cm de l'extrémité de celle-ci. Afin de pouvoir bien interpréter les acquisitions optiques de la décharge, il est primordial de tenir compte de la projection 2D des caméras. Ces dernières intègrent en effet la lumière sur davantage de distance au centre du capillaire. Ainsi, à éclairement uniforme, nous verrons toujours un maximum d'émission au centre. A l'inverse, dans le cas où un anneau se propagerait au sein du capillaire, nous distinguerons un minimum d'émission au centre du fait de l'intégration d'une distance où il n'y a pas d'émission (Figure 31).

Comme les diagnostics d'imagerie ne peuvent être utilisés qu'en milieu transparent, seules les mesures de courant sont accessibles au sein de capillaires opaques. L'étude de la propagation de la décharge nécessite alors la parfaite compréhension des courants mesurés. L'utilisation de capillaires transparents

autorisant une visualisation précise de la décharge, cela a permis de réaliser une corrélation entre diagnostics optique et de courant. Balayant les différentes évolutions des décharges en jouant directement à la fois sur les délais à l'ouverture et sur les temps d'acquisitions des caméras, nous avons pu en effet faire correspondre les profils de courant obtenus aux phénomènes observés, permettant de s'affranchir désormais des images. Les résultats de ces corrélations seront présentés à la fois pour le confinement radial et pour le confinement longitudinal des décharges nanosecondes générées dans les paragraphes 1 des chapitres 3 et 4 respectivement.

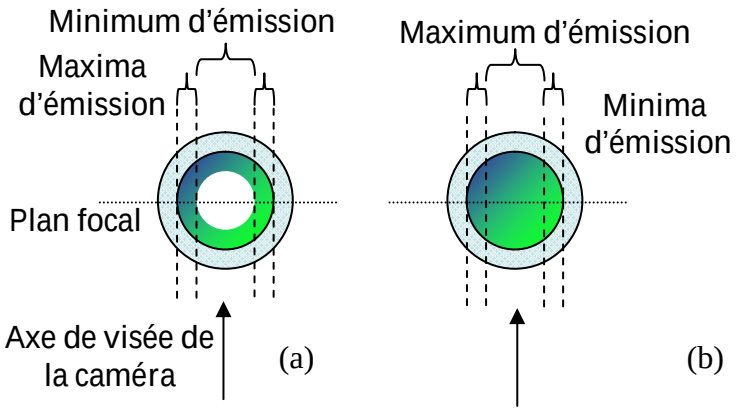


Figure 31. Rôle explicite de la projection 2D des caméras en fonction de la structure de la décharge
(d) Maxima et minima d'émission en fonction d'une structure annulaire
(e) Maxima et minima d'émission en fonction d'une structure homogène

2. Réacteur de confinement longitudinal des décharges

Dans cette partie, nous allons désormais nous intéresser à l'étude de la propagation de décharges nanosecondes contraintes perpendiculairement. Cette étude simule l'interaction directe entre les parois du support de catalyseur et la décharge. La décharge est alors contrainte par l'insertion de membranes dans l'espace inter-électrodes, perpendiculairement à l'axe pointe-plan. Il s'agit alors de déterminer les paramètres qui gouvernent les différentes étapes de propagation de la décharge ainsi confinée et d'en déduire leurs influences sur la décharge. Un effort particulier s'est porté sur l'importance du critère poreux ou non des membranes intercalées. Les modes de propagation susceptibles d'être adoptés par la décharge ainsi confinée sont illustrés à la Figure 32. Nous avons en particulier étudié l'influence des paramètres autorisant une propagation au-delà de la membrane de confinement, comme décrit par la Figure 32(c).

Des membranes de divers matériaux aux permittivités diélectriques et aux épaisseurs différentes, poreuses ou non, sont donc disposées perpendiculairement à l'axe pointe-plan et à différentes positions dans l'intervalle pointe-plan. Les influences de l'ensemble de ces paramètres sur la morphologie et la dynamique des décharges seront présentées dans le chapitre 4. La nomenclature du Tableau 2 dresse l'ensemble des membranes poreuses ou non utilisées pour cette étude.

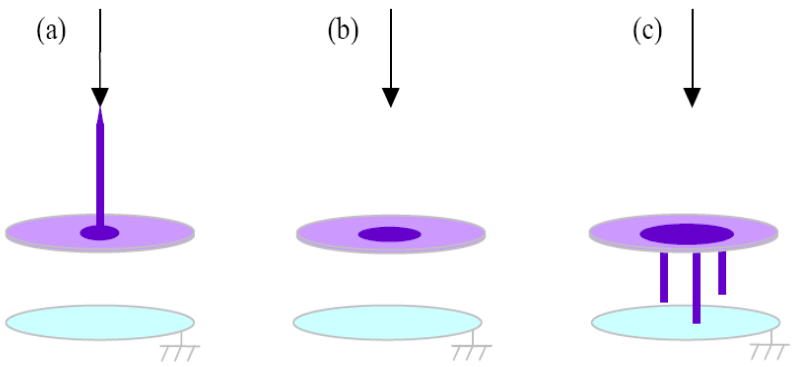


Figure 32. Schéma prospectif de la propagation d'une décharge couronne au travers d'une membrane diélectrique

L'étude a évidemment nécessité la conception d'un nouveau réacteur expérimental décrit dans le paragraphe suivant. Elle a également demandé une nouvelle approche expérimentale de l'utilisation des diagnostics que nous expliciterons également. Nous nous attacherons notamment à présenter les mesures spécifiques de courant, ainsi que le paramétrage des caméras qui a été utilisé. Cette étude a également nécessité une gamme de tensions accessibles plus étendue que dans le cas du confinement radial. En effet, comme nous le montrerons, le changement de pointe conjugué à la présence d'une membrane diélectrique perpendiculaire au champ électrique appliqué provoque une diminution du champ électrique à la fois au voisinage de la pointe, mais aussi au sein de l'espace inter-électrodes. Nous avons donc été contraints de volontairement désadapter la ligne en tension afin d'observer certaines étapes de propagation. La gamme de tension accessible se voit donc doublée comme nous l'avons expliqué dans le paragraphe 2 de ce chapitre. La gamme de tension disponible à la pointe s'étend alors de 8 kV environ à 32.5 kV, comme illustré par la Figure 33.

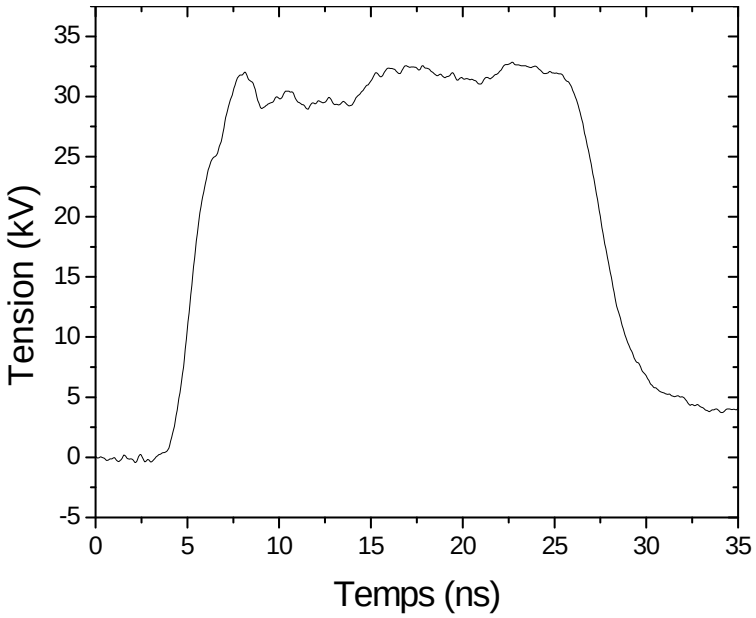


Figure 33. Amplitude de tension appliquée doublée sous l'effet de la désadaptation

Fournisseur	Matériau	Epaisseur	Porosité
SPC Technologies	PE	600µm	Poreux
		3mm	
3M	COTRAN 9702	51µm	Non poreux
	COTRAN 9705	76µm	Non poreux
	COTRAN 9706	102µm	Non poreux
	COTRAN 9719	43µm	Non poreux
	COTRAN 9720	76µm	Non poreux
	COTRAN 9726	51µm	Non poreux
	3M1774W	560µm	Poreux
	3M9772L	860µm	Poreux
	3M9773	940µm	Poreux
	3M1772	1,6mm	Poreux
TOPAS	Topas, COP Resin	50-100-250-500-1mm	
GE	EX5P0055	125µm	
	Ultem1000B	125µm	Non poreux
FLUOROTECHNICS	PTFE	300 à 600µm	Poreux
NITTO DENKO	PTFE	50-100-300-500-1mm	Non poreux
	PTFE	100 ou 150 ou 350 µm	Poreux
	PE	100, 200, 300 et 500 µm	Poreux
VICTREX	PEEK	50-250-500µm	Non poreux
GENPORE	PP	1,6mm	Poreux (de 10 à 125µm)
THERMOPORE	PE, PP, PVDF, PTFE	200µm et 1,6mm	Poreux

Tableau 2. Nomenclature des différentes membranes étudiées

a. Membranes et système de fixation

Nous allons présenter dans cette partie le réacteur développé pour l'étude du confinement longitudinal des décharges couronnes nanosecondes.

La Figure 34 présente une vue éclatée du réacteur, réalisée sous SOLIDWORKS, qui a été conçu au laboratoire et réalisé en partie par l'entreprise Mécanique du Plateau. Ce réacteur présente la possibilité de travailler sous pression contrôlée, ou même avec un flux de gaz. Trois hublots de quartz permettent la visualisation de la décharge selon les trois mêmes axes que ceux décrits précédemment. La haute tension est délivrée à la pointe à l'aide d'un connecteur métallique dont le pas de vis micrométrique permet d'ajuster la hauteur de la pointe.

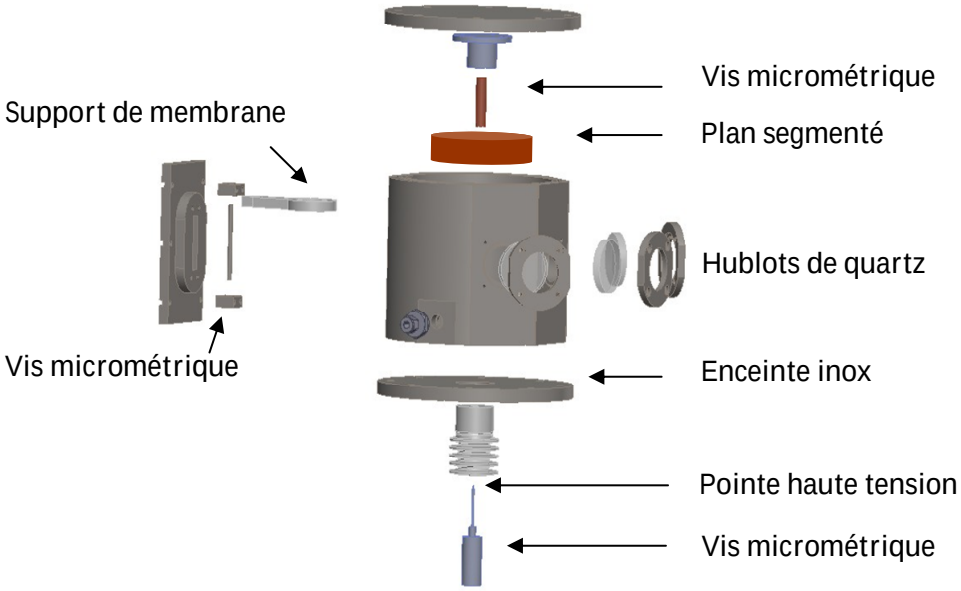


Figure 34. Vue éclatée du réacteur dédié à l'étude expérimentale du confinement longitudinal

La partie importante de ce réacteur est la pièce qui va assurer le maintien des membranes perpendiculairement au sens de propagation de la décharge. Cette pièce de plexiglas possède une extrémité reliée à une vis micrométrique permettant d'ajuster sa position dans l'espace inter-électrodes. L'autre extrémité sert de support aux membranes perpendiculaires et centrées sur l'axe pointe plan. Comme illustré par la Figure 35, cette pièce d'épaisseur 1cm est percée d'un trou de 1.8 cm de diamètre. Les membranes seront directement posées sur ce support ou fixées par un adhésif biface. Ces adhésifs permettent également la superposition de plusieurs membranes au sein du gap.

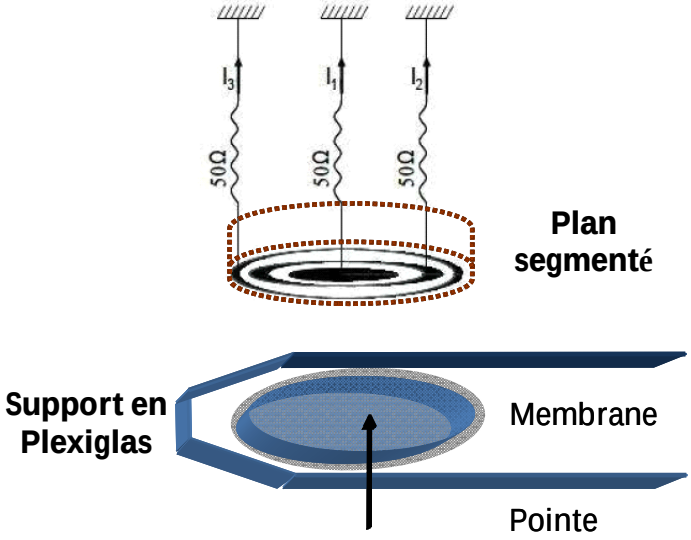


Figure 35. Schéma représentatif de l'espace interélectrode avec la présence du support

Ce support possède également un autre intérêt dans notre expérience puisqu'il qui va confiner les charges au niveau de la membrane, les empêchant de les contourner. Des bagues de constriction de la décharge ont même été implémentées afin de réduire le volume pointe-membrane accessible pour la décharge. Une bague de restriction de diamètre interne de 1cm a ainsi été principalement utilisée.

Les pointes utilisées sont des pointes de tungstène que nous avons usinées et calibrées au laboratoire. Cette nouvelle configuration rend difficile l'utilisation d'un filament de tungstène. Ce dernier est trop souple pour rester rigide sur la longueur nécessaire pour sa visualisation par les caméras. De plus, il est de nature à se segmenter facilement lorsque l'on augmente sa longueur. Pour ces raisons, nous avons volontairement opté pour une pointe à profil parabolique, dont la courbure vaut 50 ± 10 µm, dans le souci de conserver des conditions d'initiation quasi similaires à l'étude précédente. La Figure 36 illustre un exemple de pointe de 50 µm de rayon de courbure usinée au laboratoire utilisée dans le cadre de cette expérience.

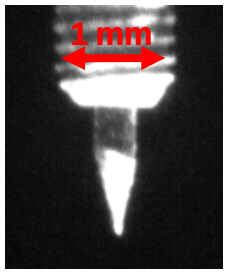


Figure 36. Pointe de 50µm de courbure usinée au laboratoire

Le plan disposé en regard de la pointe est maintenu par une vis à pas millimétrique qui permet de fixer sa position dans l'espace inter-électrodes. Ce plan est constitué d'un bloc de cuivre sur lequel est maintenue une plaque d'époxy dont la partie conductrice est volontairement segmentée en trois pistes concentriques (Figure 37). Le

bloc de cuivre assure un retour de masse optimal nécessaire à la haute précision des mesures des courants issus de ces pistes. Dans notre étude, nous avons fixé le plan à 1 cm en regard de la pointe dans un souci de cohérence avec l'étude précédente. Dans ces conditions, la simulation indique une valeur à la pointe du champ électrique d'environ 160 kV.cm^{-1} pour U=12kV, assurant le développement d'une décharge couronne à la pointe.

b. Mesure de courants multiples

Dans nos conditions expérimentales, plusieurs streamers peuvent se développer simultanément dans l'espace inter-électrodes. Plusieurs cas vont être mis en évidence, notamment en fonction du critère poreux ou non de la membrane intercalée dans le gap, mais on montrera que l'on peut observer des décharges filamentaires en deçà de la membrane. Chacun de ces filaments va induire une impulsion de courant. Dans le cas d'un plan unique, toutes ces impulsions vont se superposer. La segmentation du plan permet une différenciation des différents filaments de plasma créés entre la membrane et le plan. Nous avons choisi ainsi de segmenter le plan en trois pistes concentriques. La première est un disque plein de 12.62 mm de diamètre, la seconde espacée de la première de 1.19 mm est une piste de 2.3 mm de large. Enfin, la troisième piste espacée de 1.2 mm de la deuxième, est une piste de 1.68 mm de large, de telle manière que ces trois pistes possèdent une même surface de 1.25 cm².

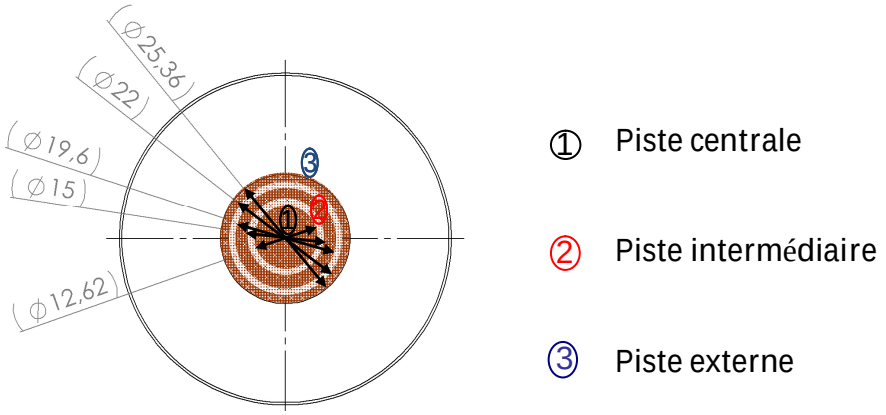


Figure 37. Schéma de la répartition concentrique des pistes du plan segmenté

Chacune des trois pistes constituant le plan est reliée à un shunt résistif de 50 Ω qui permet la visualisation à l'oscilloscope de chaque courant au cours de la propagation de la décharge. Dans le cas où une décharge se propage vers le plan, la charge positive développée en son front engendre l'apparition d'une densité surfacique de charges négatives (électrons) sur chacune des pistes du plan qui sera proportionnelle à l'angle solide sous lequel la dite décharge perçoit les pistes. Si le front d'ionisation s'approche de l'une des pistes, l'impulsion de courant qu'il génère s'amplifie à travers uniquement la résistance de cette piste. A l'instant t du contact de ce front au plan, tous les électrons collectés sur les autres pistes s'engouffrent dans le canal laissé par ce front. Nous visualiserons donc un pic de courant positif sur le signal issu de cette piste simultanément à des impulsions négatives sur les autres voies.

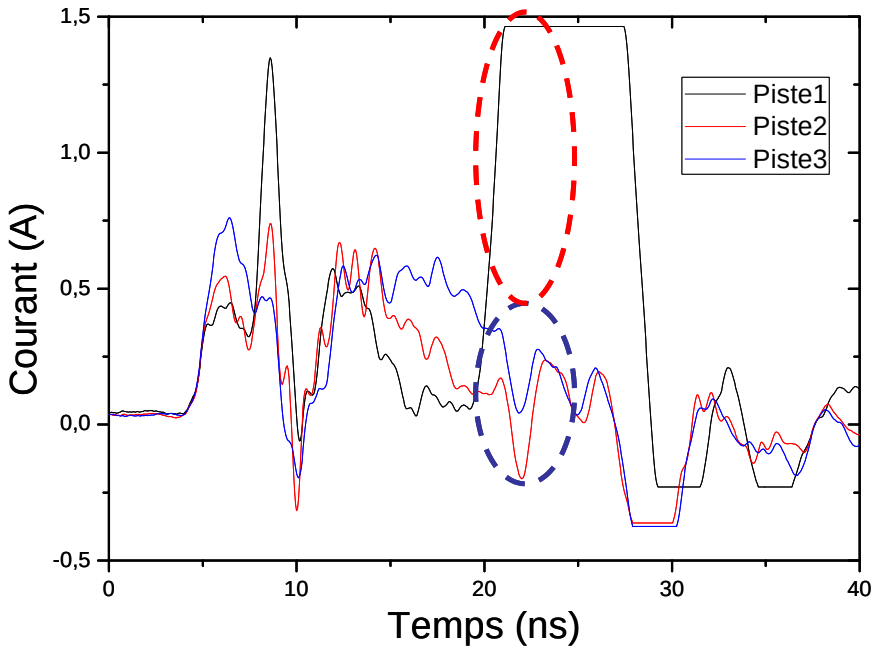


Figure 38. Signaux caractéristiques issus de la mesure de courant.

Pic Positif correspondant à l'arrivée d'une décharge sur la piste centrale
Pics Négatifs associés

Les trois pistes concentriques sont de surfaces équivalentes afin de comparer directement les signaux obtenus à l'oscilloscope. Le « découpage » du plan en plusieurs pistes et l'analyse comparative des courants obtenus avec les diagnostics optiques permettent de caractériser la répartition spatiale des différents fronts de décharge. Par ailleurs, cela permet de réduire la composante capacitive du courant. Lorsque le plan est segmenté en pistes, chacune d'elles voit une composante de courant capacitif dont l'amplitude est réduite relativement à la surface des pistes. Le courant i_c sera ainsi plus faible et la lecture du courant de décharge en sera facilitée [3].

c. Mesures optiques

Pour cette étude, il est clair que le confinement va induire un étalement de la décharge sur la membrane qui induit une répartition spatiale de la décharge bien plus étendue que dans le cas du confinement radial. Il a fallu donc jouer sur une optimisation du grandissement tout en gardant une profondeur de champ suffisante pour une bonne netteté de la décharge. La méthodologie de calibration des caméras est inchangée et leur synchronisation est à nouveau vérifiée à l'aide d'une décharge témoin fortement radialement confinée. Dans le cadre de notre étude sur le confinement longitudinal des décharges, nous avons opté pour un grossissement de 0,18 et une profondeur de champ de l'ordre du centimètre.

L'opacité générée à la fois par la présence d'une bague de constriction et dans une moindre mesure par le support de membrane lui-même, prive toute visualisation du gap pointe/membrane. Les mesures de vitesse de propagation ont donc été principalement évaluées par identification des courants. Cependant, comme nous le verrons dans le chapitre 4, la décharge se propage radialement au voisinage de la membrane,

perpendiculairement à l'axe pointe/plan. Nous avons donc volontairement positionner la bague au sein du support de telle manière qu'un millimètre soit visible entre le bord de la bague et la membrane. En ajustant très proprement les délais d'ouverture et le temps d'intégration des caméras pendant cette phase d'étalement radial, l'observation de trois positions successives du front d'ionisation permet de remonter à sa vitesse de propagation radiale au voisinage du diélectrique.

Dans ce contexte, des temps d'intégration courts, de l'ordre de 2 ns, ont été utilisés pour des décalages temporels entre caméras adaptatifs suivants les paramètres mis en jeu, autour de 3 ns environ. Là encore, un post-traitement informatique via le logiciel InkScape, illustré à la Figure 39, permet de calculer précisément l'étalement de la décharge entre deux acquisitions, et donc de calculer une vitesse instantanée de propagation. Ces images ont été prises sur une unique décharge se propageant au sein d'un gap d'air avec la présence d'une membrane non poreuse de Téflon fixée à 5 mm de la pointe. Chaque image, de même grossissement optique, est intégrée sur 1 ns dans cet exemple et décalée en temps les unes par rapport aux autres de 2 ns. La pointe alimentée par la haute tension positive se trouve en haut de l'image alors que le plan segmenté lui fait face à 1 cm de l'extrémité de celle-ci. Certaines acquisitions optiques corrélées aux signaux de courant ont également contribué à la bonne compréhension de ces derniers. Les images ont aussi permis de cartographier les décharges dans l'espace membrane/plan et d'obtenir ainsi une meilleure compréhension de certains signaux électriques comme nous le verrons dans le chapitre 4.

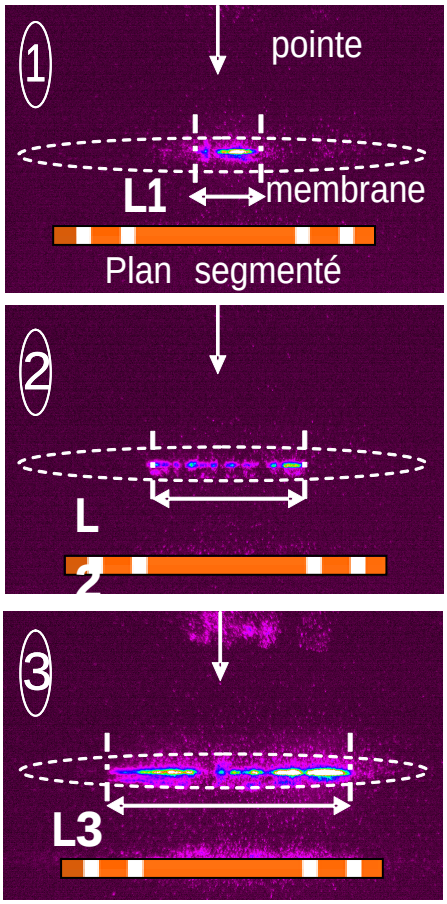


Figure 39. Exemple de mesure de vitesses de la propagation radiale des décharges

3. Traitement des données

Ce paragraphe s'intéresse à décrire les différentes étapes de traitement des données issues des images et des mesures de courant. La description exhaustive de cette procédure étant longue et fastidieuse, seuls les principaux résultats issus des différentes étapes successives de traitement seront abordés. Il est important de noter que cette procédure fût appliquée pour toutes les études réalisées au cours de cette thèse.

a. Cas du traitement des signaux électriques

Dans l'optique de traiter les données issues de l'oscilloscope et face à la multitude des données recueillies, plusieurs macro Excel ont été développées. Une décharge pouvant amener à la génération de onze fichiers distincts, trois images et jusqu'à huit signaux électriques (via les voies mathématiques), il était primordial d'optimiser ce traitement des données.

La première étape de la macro consiste à retraiter les fichiers issus de chaque voie de l'oscilloscope afin qu'ils soient lisibles (entêtes supprimées, écriture conforme au logiciel Excel). La seconde procède au regroupement des données de chaque voie par évènement. La troisième étape consiste alors à tracer les graphiques de la tension appliquée et des signaux de courants obtenus. Elle permet également d'avoir une lecture de la tension appliquée moyennée sur le plateau du créneau de tension généré. Enfin la quatrième étape juxtapose les acquisitions optiques avec les signaux de courant obtenus du même et unique évènement. La Figure 40 illustre un exemple de graphiques ainsi obtenus.

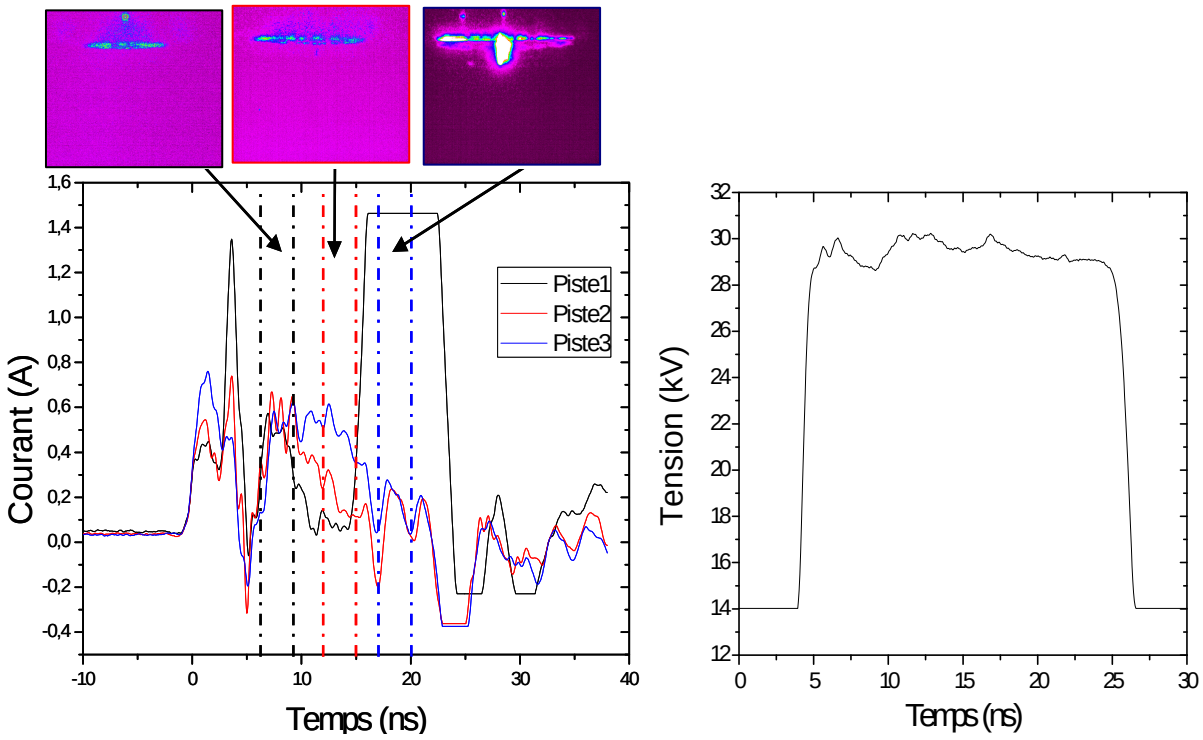


Figure 40. Exemple de graphiques obtenus après traitement des données

b. Cas du traitement des images

En premier lieu, il est nécessaire de distinguer le format même des acquisitions optiques provenant directement du logiciel d'exploitation des caméras 4Picos Stanford qui va dépendre de l'approche expérimentale choisie. Dans le cas où l'expérience demandait un enregistrement automatique des données, les acquisitions originellement numérisées sous un format propre au logiciel d'exploitation, sont directement soumises à une conversion par ce logiciel pour s'enregistrer en .tif. Une seconde conversion est alors nécessaire en .bmp (bitmap), qui est assurée par le logiciel XnView. A cette conversion s'ajoute un ajustement du niveau de gris, qui fait revenir l'image à un contraste acceptable. Dans le cas d'un enregistrement manuel des données (l'expérimentateur choisit ses évènements), les acquisitions peuvent être directement enregistrées en .bmp par le logiciel. Ces dernières nécessitent tout de même un retraitement du niveau de gris. Le format .bmp est nécessaire pour l'analyse des images par le logiciel InkScape. Ce logiciel d'outils et de mesures vectorielles, via un code, permet de disposer judicieusement les images, en grande quantité, de manière à pouvoir rapidement les comparer pour chaque évènement.

4. Conclusions et couplage au modèle numérique

Les divers montages expérimentaux et leurs diagnostics associés ont été présentés dans ce chapitre. La confrontation des résultats expérimentaux avec ceux issus du modèle numérique sera une contribution essentielle quant à la discussion et la compréhension des phénomènes mis en jeu.

Dans les chapitres suivants, les résultats expérimentaux seront donc présentés, commentés puis comparés à ceux issus du modèle. Ce modèle numérique, développé au laboratoire EM2C par l'équipe d'A. Bourdon et décrit en annexe 2, est adaptable aux différentes géométries de confinement étudiées, et permet une comparaison directe des modes de propagation de la décharge confinée. En effet, dans le cas de l'étude sur le confinement radial des décharges, la géométrie modélisée est conforme à l'expérience, avec une pointe métallique de 50 µm de diamètre finissant en une demi-sphère, immergée au sein d'un tube diélectrique relié à un plan de masse. La Figure 41 représente quant à elle la configuration dans le cas de l'étude sur le confinement longitudinal des décharges, également conforme à l'expérience adoptée. La pointe est un cylindre de 500 µm de rayon qui se finit par une demi-sphère de rayon 50 µm. Le plan est situé à 1 cm en regard de la pointe et un plan diélectrique est intercalé dans le gap. Pour plus de détails sur ces configurations de modélisation, le lecteur pourra se reporter à la thèse de F. Péchereau [5] et aux références [6,7].

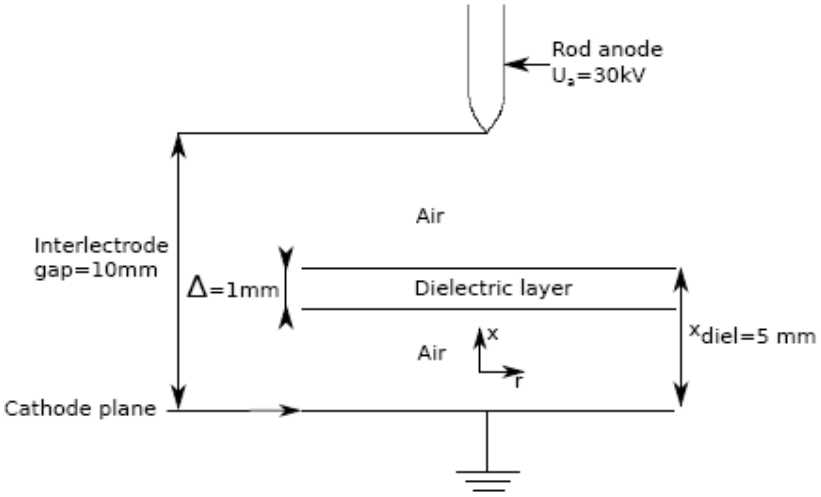


Figure 41. Modélisation des conditions expérimentales dans le cas de l'étude du confinement longitudinal des décharges.

Chapitre 3

Etude du confinement radial de décharges électriques nanosecondes en présence d'un capillaire.

Après avoir présenté dans le chapitre précédent les divers montages expérimentaux, les diagnostics, et les méthodes expérimentales, nous nous intéressons désormais à l'étude du confinement radial des décharges couronnes nanosecondes. Ce chapitre, dédié à la présentation des résultats expérimentaux, débute par la mise en corrélation des diagnostics optiques avec les mesures de courants. Cette corrélation permettra l'étude du développement des décharges dans des capillaires de confinement opaques. L'étude préalable de la décharge non confinée sera présentée, dans le but de les comparer aux décharges radialement contraintes, et de renseigner sur le rôle du confinement.

La meilleure compréhension des mécanismes d'interactions entre le plasma confiné et les supports de catalyseurs classiques comme les monolithes de cordiérite nécessite en premier lieu davantage de connaissance sur les paramètres qui régissent une décharge confinée par des structures élémentaires. C'est cette approche qui a été validée par le programme Alveoplas, dont ce chapitre présentera les résultats. Nous proposons en effet l'usage d'un capillaire unique à l'intérieur duquel nous amorçons directement le plasma. La décharge va être ainsi radialement confinée par les parois internes du capillaire utilisé.

L'étude du confinement radial des décharges nanosecondes a été réalisée à l'aide de nombreux capillaires disposés directement au voisinage de la pointe et centrés sur l'axe pointe-plan. La grande diversité des capillaires disponibles a permis d'effectuer une étude paramétrique poussée. L'influence de la forme de la cavité ainsi représentée est un premier paramètre ayant un impact important sur la structure et la vitesse de propagation des décharges dans l'espace inter-électrodes. Une part importante de l'étude s'est alors portée sur les capillaires cylindriques pour lesquels le diamètre interne a un effet important sur les caractéristiques de la décharge. Cette étude a également permis de mettre en évidence le rôle de l'épaisseur des parois du capillaire ainsi que celui de la permittivité électrique du matériau au travers des différents matériaux de capillaires utilisés (verre, PolyTetraFluoroEthylène (PTFE), alumine). Pour chacun des paramètres précités, l'influence de la tension appliquée sera également étudiée.

Pour ces expériences, comme annoncé dans le chapitre précédent, la ligne coaxiale est adaptée en impédance. Dix résistances de 500Ω montées en parallèle fixent en effet l'impédance de charge à 50Ω, n'autorisant aucun rebond du signal dans la ligne. La gamme disponible d'amplitude de la tension appliquée se voit réduite de moitié, et variera donc entre 7 et 18 kV environ. Les capillaires sont centrés sur la pointe qui est un filament de tungstène de 50µm de diamètre.

A. Corrélation des diagnostics

Dans cette partie, nous allons présenter les résultats issus de la corrélation des diagnostics en présence. Le but de cette étude est de pouvoir décrypter la propagation de la décharge par simple lecture des courants obtenus. Pour ce faire, nous visualiserons très précisément les différentes phases de la décharge à l'aide des caméras tout en analysant la dynamique de comportement du signal de courant obtenu. Comme énoncé précédemment et présenté en Figure 42, un shunt résistif de 50Ω connecté au plan de masse permet de collecter le courant total composé de parties capacitives et d'un courant de décharge.

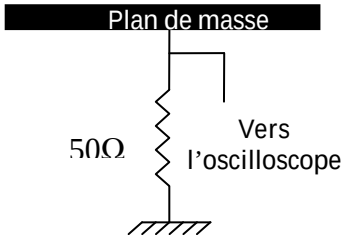


Figure 42. Principe de la mesure de courant

Une première corrélation des données issues des divers diagnostics de la propagation de la décharge sans contrainte a été réalisée avec un gap inter-électrodes de 7.5 mm. Sur le signal de courant total obtenu, nous pouvons isoler la partie capacitive formée de deux pics, l'un positif et l'autre négatif, correspondants respectivement aux fronts de montée et de descente du créneau haute tension appliqué, comme le montre le graphique de la Figure 43 (parties cerclées de rouge). Le courant de décharge, entouré de bleu, apparaît clairement et son maximum peut être raisonnablement identifié comme l'arrivée de la décharge au plan.

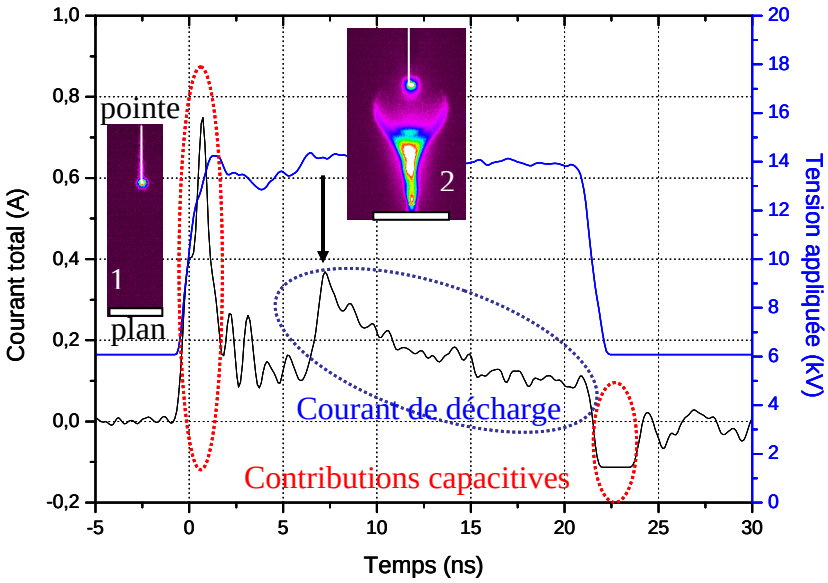


Figure 43. Signal de courant obtenu issu de la propagation d'une décharge sans contrainte (noir) et profil de tension appliquée à la pointe (bleu).

1. Initiation de la décharge à la pointe (intégrée sur 1ns)
2. Connexion au plan (intégrée sur 1ns)

Après ce maximum, nous observons une décroissance du courant typique d'une décharge couronne, attestant de la recombinaison et de l'attachement des charges selon une constante de temps de type RC. Par l'utilisation de portes ultra-courtes pour les caméras, nous avons pu reconstituer l'ensemble de la dynamique d'une décharge sans contrainte en identifiant l'instant précis où la décharge s'amorce à la pointe et celui où elle atteint le plan. Nous avons ainsi pu identifier le fait que la décharge débute sa propagation quasi systématiquement au cours du front de montée et ce sur toute la gamme de tension appliquée. Les images 1 et 2 reportées sur la Figure 43 témoignent respectivement de l'initiation et de l'arrivée au plan de la décharge.

Cette observation permet ainsi de mettre en corrélation les diagnostics optiques et électriques. Nous pouvons désormais calculer uniquement à partir de la lecture du signal de courant total obtenu, une vitesse moyenne de propagation V_{moy} de la décharge au sein de l'espace inter-électrodes définit comme suit :

$$V_{moy} = \frac{d_{gap}}{t_f - t_i}$$

où :

- d_{gap} est la distance inter-électrodes
- t_f est l'instant correspondant à l'arrivée de la décharge au plan identifié comme étant le maximum de courant de décharge
- t_i est l'instant t correspondant à l'initiation présumée de la décharge

Pour uniformiser le traitement de données, toutes les valeurs des vitesses obtenues par les courants et reportées dans la suite ont été calculées en prenant pour initiation l'instant t_0 correspondant au pied du pic capacitif auquel on ajoute la moitié du front de montée en tension, soit 1 ns.

Cette méthode de corrélation étant mise en évidence, il est possible de la valider dans le cas où les décharges sont confinées radialement. L'utilisation de capillaires de verre permet en effet de comparer directement les vitesses de propagation obtenues à partir des courants à celles obtenues en moyennant les deux vitesses instantanées obtenues par l'analyse des images de la propagation. La Figure 44 présente les résultats issus de cette comparaison pour des confinements réalisés à partir de capillaires de verre de 200 µm et 300 µm de diamètres internes en noir et en rouge respectivement. Le graphique de gauche présente les vitesses de propagation des décharges confinées par lecture des courants (carrés) et par l'analyse des images (ronds). Le graphique de droite présente quant à lui les erreurs relatives associées en fonction de la tension appliquée entre les deux méthodes selon le calcul suivant :

$$e = \frac{\left| v_{optique} - v_{courant} \right|}{v_{courant}} \times 100$$

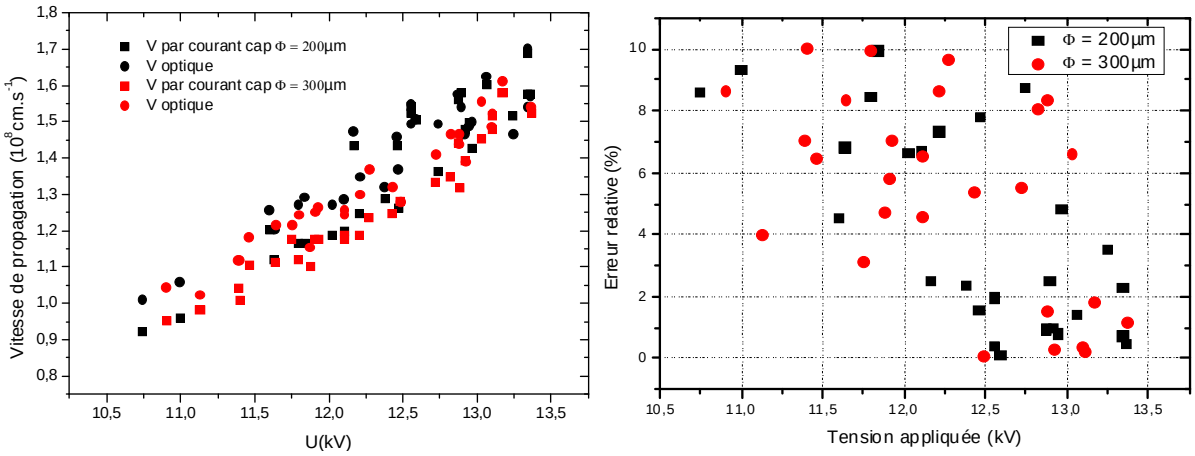


Figure 44. Comparaison des deux méthodes de mesure de la vitesse de propagation

L'excellente concordance des points donnés par les deux méthodes atteste de la validité de notre méthode de calcul via la mesure des courants. En effet, nous pouvons remarquer que l'erreur relative liée à la méthode des courants par rapport à celle propre aux caméras n'excède jamais 10% quelle que soit la tension appliquée à la pointe. En outre, cette erreur tombe rapidement à moins de 2% dès lors que la tension appliquée excède 13.5 kV. Pour ces raisons, nous validons cette méthode qui nous permettra d'autoriser des mesures de vitesses moyennes de propagation de décharges confinées par des capillaires opaques où les caméras sont inopérantes. Les erreurs plus importantes aux basses tensions s'expliquent notamment par notre méthode d'approximation de l'instant t de l'initiation de la décharge à la pointe. Pour ces tensions, nous avons remarqué en effet que la décharge pouvait s'initier quelques nanosecondes après le front de montée de l'impulsion de tension. Elles peuvent également s'expliquer par un changement de structure de la décharge comme nous le présenterons par la suite.

Les incertitudes de chacune des mesures présentées dans la suite sont difficilement quantifiables du fait des nombreuses étapes de traitement de données. Cependant, afin de pallier à ces fluctuations, nous avons délibérément multiplié les mesures expérimentales réalisées. Les barres d'erreurs relatives à l'expérience réalisée peuvent être raisonnablement identifiées comme étant l'écart maximal de deux points de mesure à tout autre paramètre constant.

B. La décharge sans contrainte

Afin de comprendre les différentes influences des paramètres de confinement que nous allons étudier, il était primordial de caractériser en premier lieu la décharge que l'on génère dans nos conditions expérimentales sans aucune contrainte de propagation. Ce paragraphe est dédié à cette étude, s'attachant à décrire et à comprendre les phénomènes mis en jeu, ainsi que les différentes caractéristiques de la décharge. Une étude plus approfondie de cette configuration étant proposée dans la référence [1], une brève description des mécanismes responsables de ce type de décharge sera simplement donnée ici.

La décharge générée se propage donc entre un fil de tungstène de 50 µm de diamètre et un plan en regard relié à la masse. L'étude dynamique du développement de la décharge laisse apparaître deux phases distinctes de propagation, et ce, quelle que soit la tension appliquée. En effet, nous observons en premier lieu une propagation isotrope à partir de la pointe quel que soit le cas. Comme l'atteste la Figure 45, une « boule » plasma se propage vers le plan sur une distance qui va dépendre à la fois de la distance inter-électrodes et de la tension appliquée. Cette boule plasma générée par les valeurs intenses de champ électrique au voisinage de la pointe sous l'effet de sa géométrie, est également observée par le modèle numérique comme nous le montrerons par la suite.

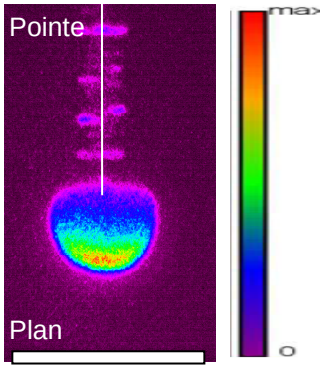


Figure 45. **Première phase de propagation de la décharge sans contrainte**
Image en échelle de fausse couleur, U=15kV, gap = 7.5mm

Après cette première phase de propagation, deux structures distinctes apparaissent suivant la tension appliquée à la pointe. En effet, aux basses tensions, la décharge est de nature filamentaire alors qu'à haute tension elle est de nature diffuse. Lorsque la tension maximale à la pointe varie entre 8 kV et 13 kV environ, des streamers partent en direction de la contre électrode après la phase de propagation de la boule plasma (Figure 46.1). Dans tous les cas, nous observons un streamer principal axial comme rapporté préalablement dans des conditions expérimentales proches [2]. Au-delà de 13 kV, à l'issue de la propagation de la boule plasma, apparaît une forme conique qui atteint le plan accompagnée de quelques streamers. Ces derniers disparaissent complètement lorsque la tension dépasse les 15 kV, ne laissant place qu'à l'observation de ce cône. La décharge reste donc diffuse jusqu'au plan (Figure 46.2).

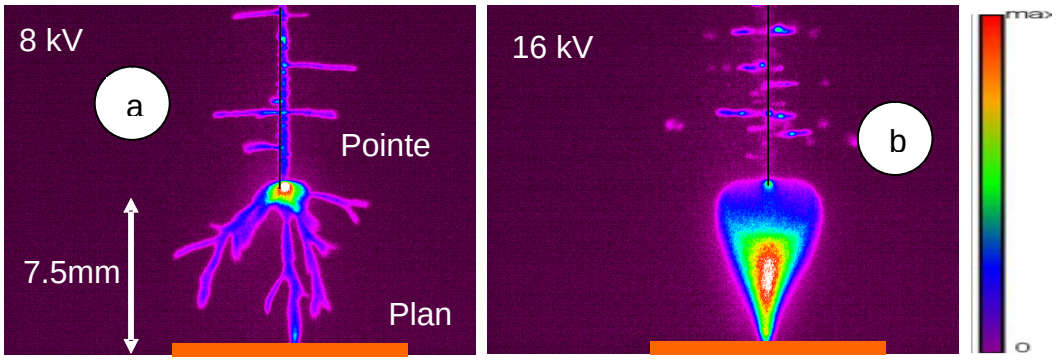


Figure 46. Profils types de la décharge sans contrainte
a : U=8kV, gap=7.5mm, intégrée sur 10ns
b : U=16kV, gap=7.5mm, intégrée sur 3ns

La Figure 47 illustre les deux structures types obtenues expérimentalement et numériquement pour des conditions de tensions appliquées et de distance inter-électrodes identiques. Nous remarquons un très bon accord des résultats obtenus. Dans chacun des cas, on retrouve en premier lieu la boule plasma qui se développe dans l'espace inter-électrodes dont le diamètre dépend de la tension appliquée, puis une structure soit en streamer classique aux faibles tensions, soit en profil conique aux tensions plus élevées. Il est à noter que dans les résultats reportés Figure 47, la simulation présentée n'utilise pas des valeurs de champ Laplacien adaptées puisque la configuration expérimentale n'est pas strictement respectée. Si tel était le cas, le diamètre de la boule plasma serait multiplié par un facteur 2.5, le rendant alors strictement équivalent au diamètre expérimental observé. [3]

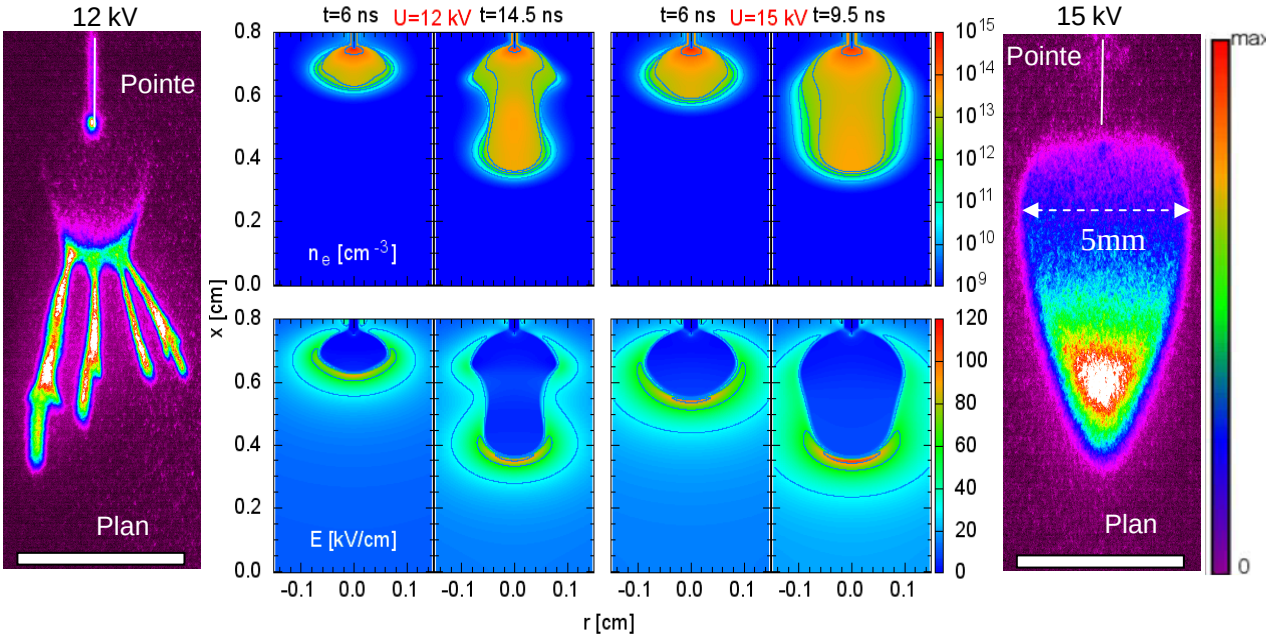


Figure 47. Comparaison des profils de densité électronique et du champ électrique simulés avec l'émission des décharges expérimentales sans contrainte à 12kV (à gauche) et 15kV (à droite).

Sur le graphique de la Figure 48, les vitesses de propagation sont reportées en fonction de la tension appliquée, témoignant encore de l'existence des deux modes distincts de propagation. Pour des tensions inférieures à 13 kV, on remarque en effet un accroissement linéaire de la vitesse de propagation avec la tension appliquée, conformément à la littérature [2]. Pour des tensions supérieures, dans nos conditions expérimentales, les résultats obtenus illustrent un tout autre mode de propagation, nettement plus rapide, correspondant à la structure conique adoptée par la décharge. Nous notons également l'influence du gap inter-électrodes sur la vitesse de propagation de la décharge. En effet nous remarquons le fait que plus le gap diminue, plus cette vitesse augmente, conséquence du renforcement du champ géométrique.

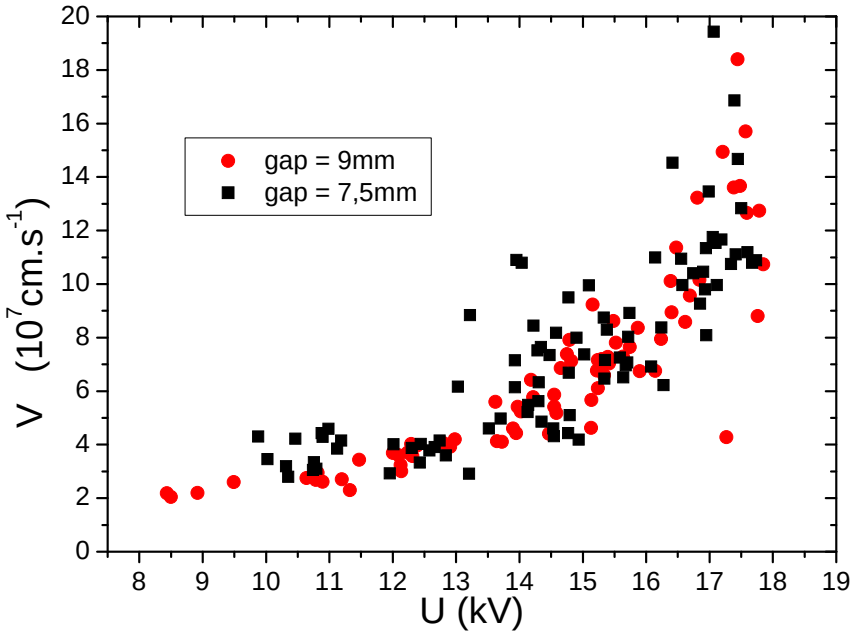


Figure 48. Graphique de vitesse de propagation de la décharge sans contrainte en fonction de la tension appliquée pour deux valeurs de la distance interélectrode

Les mesures de vitesses effectuées sur cette décharge sont en bon accord avec les simulations effectuées comme le montre le graphique de la Figure 49. Des flèches sont utilisées pour la plage de valeurs obtenues par le modèle. En effet, les simulations montrent une dépendance de la vitesse en fonction de la position du front d'ionisation au sein du gap. Ce phénomène a également été mis en évidence expérimentalement où l'on a clairement identifié une augmentation de la vitesse instantanée de la décharge au voisinage des deux électrodes. Cependant, en prenant compte uniquement les enregistrements où le front de décharge ne se situe pas dans ces zones de renforcement du champ, nous avons limité l'influence de cette dépendance sur les résultats obtenus. Néanmoins, la simulation montre que plus on augmente la tension, plus la vitesse de la décharge dépend de la position du front de décharge au sein du gap, illustré par l'étendue des flèches reportées à haute tension. Cette observation peut expliquer qu'à haute tension, les valeurs expérimentales sont plus dispersées qu'à basse tension. En effet, le jitter lié à l'initiation de la décharge, aussi limité qu'il soit (~1ns) par la rapidité du front de montée, peut suffire à ce que la décharge ne se trouve pas d'un coup sur l'autre au même endroit dans le gap pour un délai d'acquisition inchangé.

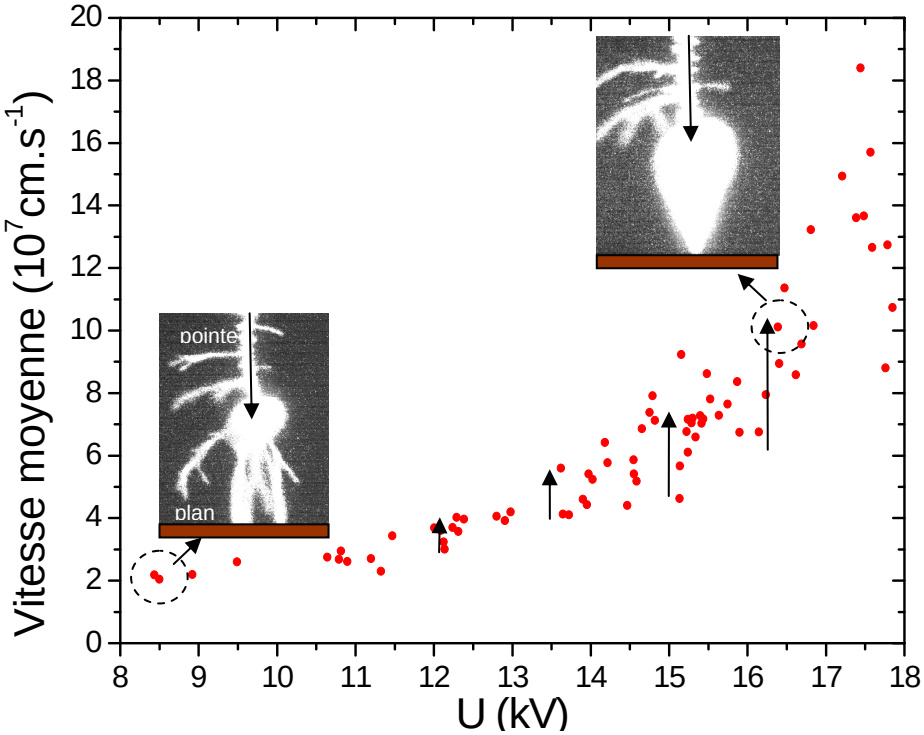


Figure 49. Comparaison des données expérimentales et numériques des vitesses de propagation des décharges générées sans constriction géométrique en fonction de la tension appliquée.

Comme la vitesse dépend peu de la position du front de décharge au sein du gap à basse tension, les points expérimentaux restent relativement groupés. Inversement, à haute tension, cette dépendance devient forte et amène ainsi à une dispersion des données.

D'après l'étude de P Tardiveau et al. [1] effectuée à tension bien plus élevée sur ce type de décharge, divers mécanismes pourraient être responsables de cet aspect diffus. D'après les expériences réalisées, un rayonnement X a été détecté au voisinage de la pointe. Ce rayonnement serait induit par l'impact d'électrons run-away sur la pointe anodique et permettrait la génération de photo-électrons relativement loin de la pointe et distribués de manière plutôt isotrope. L'e recouvrement de l'ensemble des avalanches issues des ces électrons germe expliquerait alors l'aspect diffus de la décharge. La structure de la décharge étant étroitement corrélée à la tension appliquée, elle peut également trouver son explication par l'évolution spatio-temporelle du champ électrique de charge d'espace. Si celui-ci est nettement supérieur au champ critique d'ionisation, les collisions ionisantes peuvent se faire dans toutes les directions, amenant ainsi à une structure sphérique du plasma. Comme celui-ci décroît au cours de la propagation, dû aux pertes énergétiques causées par les collisions et par la configuration géométrique, il peut devenir insuffisant pour ioniser dans toutes les directions de l'espace. Dès lors, l'influence du champ géométrique devient non négligeable devant le champ généré par la charge d'espace et des streamers se forment alors pour se propager jusqu'au plan. Lorsque l'on augmente la tension, cette compétition est déplacée au voisinage du plan. Le champ créé par la charge d'espace peut être alors efficacement suppléé par le champ géométrique et par le phénomène de charge image du plan et ainsi

assurer suffisamment de collisions ionisantes permettant de garder l'aspect diffus de la décharge jusqu'au plan.

Par ailleurs, comme l'ont montré différents auteurs [4-6], la vitesse de propagation de la décharge dépend également de la structure et des dimensions de celle-ci. D'après Jansky et al., en comparant le terme source d'ionisation intégré dans tout le volume au champ électrique de claquage de 25 $kV.cm^{-1}$, on s'aperçoit qu'au voisinage du front de décharge, le champ est supérieur dans un volume d'autant plus important que l'est la tension appliquée. Ainsi, pour des tensions plus élevées, les avalanches électroniques peuvent se produire sur une distance plus longue avant d'atteindre le front de décharge, ce qui induit un terme source d'ionisation plus élevé et donc une vitesse de propagation plus importante.

C. Décharge contrainte radialement par la présence d'un capillaire

Dans une première approche, nous étudions l'influence d'un confinement radial sur la propagation de la décharge à partir de géométries de confinement élémentaires. Afin de faciliter l'utilisation et la compréhension de l'ensemble des diagnostics mis en œuvre, le plan a été fixé à environ 1 cm en regard de la pointe. L'arrivée au plan est donc retardée, permettant ainsi de mieux distinguer les différentes phases de propagation. Le filament de tungstène est inséré au sein du capillaire, centré en celui-ci, comme le montre la Figure 50, qui assure le développement d'une décharge directement au sein de la cavité.

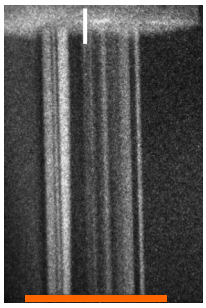


Figure 50. Photographie du confinement radial des décharges par un capillaire de verre

De nombreux capillaires de géométries de dimensions et de matériaux différents ont été utilisés afin de réaliser ce confinement. Ce large panel d'échantillons a permis de réaliser une étude paramétrique approfondie aussi bien sur la propagation que sur la structure de la décharge confinée. L'effet de la géométrie du confinement sur le développement de la décharge par l'emploi de capillaires ronds, carrés et rectangulaires a été mis en évidence. Les dimensions de ceux-ci jouent évidemment un rôle primordial sur le comportement des décharges. En effet, comme nous le verrons par la suite, la section du capillaire est un facteur prépondérant sur le comportement de la décharge dans l'espace inter-électrodes. Un effort particulier a été porté sur les capillaires circulaires où l'on montrera que le rayon de ces derniers est un paramètre essentiel à la fois sur la structure et sur la propagation des décharges confinées. Par ailleurs, l'épaisseur des parois du capillaire utilisé est un autre paramètre dimensionnel dont l'influence sera discutée.

Enfin la corrélation réalisée entre les diagnostics optiques et les mesures de courants présentée précédemment a permis l'utilisation et l'étude de capillaires opaques. Nous avons ainsi pu tester les influences des paramètres précités pour des matériaux de différentes permittivités électriques. Ainsi, comme en témoigne la liste de l'ensemble des capillaires mis à disposition présentée dans le chapitre 2, de nombreux matériaux plastiques ainsi que des capillaires d'alumine ont pu être étudiés.

1. Influence de la géométrie sur le profil de la décharge

Les effets de la géométrie de confinement sur l'aspect des décharges couronnes nanosecondes se propageant au sein de capillaires de verre sont présentés dans ce chapitre. Pour cette étude, la haute tension délivrée à la pointe varie entre 8 et 18 kV environ et l'espace inter-électrodes est fixé à 1.2cm.

a. Cas des capillaires de sections carrées et rectangulaires

La géométrie de confinement est un facteur important qui va déterminer le profil adopté par la décharge au cours de la propagation. L'utilisation de capillaires de section rectangulaire et carrée a montré l'importance des arêtes qui vont attirer la décharge pour la guider jusqu'au plan.

Dans ce type de confinement, la décharge va en effet présenter une propagation par étapes quelle que soit la section du confinement. En premier lieu, celle-ci va se développer sous forme de boule plasma similairement à la première phase de propagation dans le cas sans contrainte. Lorsque la décharge atteint les arêtes du capillaire la confinant, celle-ci va alors se « coller » aux parois puis sera guidée jusqu'au plan. La taille de la section va donc déterminer l'aspect de la décharge. Plus celle-ci sera grande, moins vite la décharge atteindra les arrêtes et donc plus grande sera la possibilité pour la décharge d'être filamentaire au sein du capillaire (Figure 51).

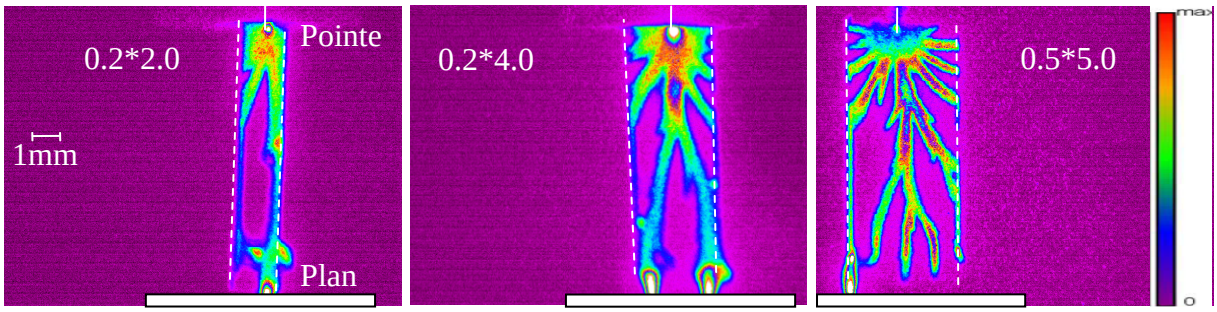


Figure 51. Effets de la section du capillaire de confinement à tension constante (15kV) sur l'aspect de la décharge

Dans le cas où la section est suffisamment petite, la décharge semble homogène comme nous pouvons le voir Figure 52, et ce tout au cours de la propagation.

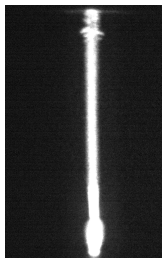


Figure 52. Propagation diffuse tout au long de la propagation dans un capillaire de verre de section rectangulaire 0.05*1.0mm²
Image intégrée sur 7 ns

Ce comportement s'explique par les effets de renforcement de champ créés par la simple présence du confinement. En effet, comme en attestent les simulations numériques, aux arêtes des capillaires correspondent les zones de champs forts. La décharge couronne est attirée par ces zones et va donc se propager préférentiellement aux arêtes avant d'atteindre le plan.

En résumé, la décharge se propage en premier lieu sous forme diffuse comme dans le cas non confiné, puis est soumise au confinement par la présence des parois du capillaire sur lesquelles la décharge va préférentiellement venir se coller. Attirée par les zones de champ fort, la décharge se propage au voisinage interne des parois jusqu'à atteindre l'une des arêtes du capillaire pour être enfin guidée jusqu'au plan. Plus on augmente les dimensions de la section du tube de confinement, plus la décharge adopte un profil filamentaire au sein du capillaire. Des sections de tube suffisamment petites permettent cependant l'observation d'une décharge diffuse tout au long du capillaire.

b. Cas des capillaires de sections circulaires

La présence d'arêtes modifiant extrêmement le profil adopté par la décharge, un effort particulier s'est porté sur les capillaires à section circulaire. En l'absence de zones de champs forts créées par la présence d'angles géométriques, le diamètre interne du capillaire de confinement utilisé devient le paramètre prépondérant responsable de la structure de la décharge. Comme le montre les images de la Figure 53, des capillaires aux diamètres internes de l'ordre du millimètre ou plus engendre un comportement similaire de la décharge que celui décrit précédemment. La décharge se développe dans un premier temps en une boule plasma puis des streamers sont créés au voisinage des parois internes du capillaire avant de rejoindre le plan.

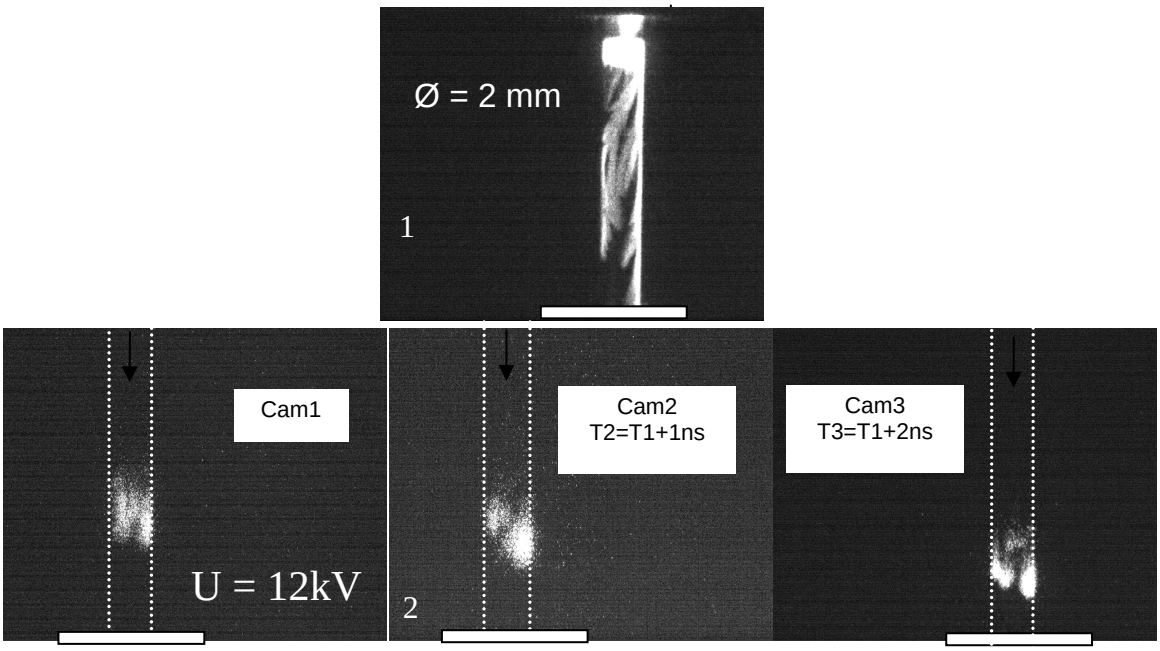


Figure 53. Propagation confinée par un capillaire de verre de 2mm de diamètre
1 : Image intégrée sur 10ns
2 : Images intégrées sur 1ns

La tension appliquée permet de développer la boule plasma plus ou moins loin dans le capillaire mais n'en modifie pas l'aspect général. Cependant, dans le cas où la boule n'atteint pas directement les parois du capillaire (aux faibles tensions), la décharge peut se propager en un profil se rapprochant du cas sans contrainte. Nous pouvons remarquer sur l'image 1 de la même figure que la décharge adopte bien par la suite un profil filamentaire au sein du capillaire où il semblerait que les streamers formés décrivent une propagation hélicoïdale au voisinage des parois jusqu'à atteindre le plan.

Pour des diamètres internes submillimétriques, la décharge présente une toute autre organisation sous l'effet du confinement radial imposé par les parois du capillaire. Deux structures distinctes apparaissent alors en fonction du diamètre interne du capillaire utilisé. Comme illustré par la Figure 54, et quelle que soit la tension appliquée dans la gamme de tension disponible (7-18 kV), la décharge se propage en une structure tubulaire au sein du capillaire pour des diamètres compris entre 400 et 800 µm. La décharge, plus intense au voisinage des parois, se propage sur toute la durée de sa propagation en adoptant cette structure en anneau. Dès lors que l'on se place après la phase d'expansion de la boule plasma au sein du capillaire, cette structure annulaire s'identifie facilement car chacune des caméras offre une image similaire, où les maxima d'émission sont déplacés vers les parois, et le minimum d'intensité se trouve au centre.

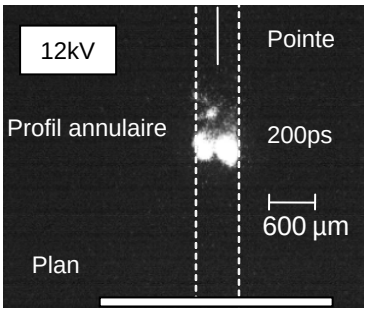


Figure 54. Photographie intégrée sur 200 ps de la structure tubulaire d'une décharge confinée par un capillaire cylindrique de diamètre interne de 600µm.

Pour des diamètres inférieurs (75-300 µm), la décharge semble être homogène dans le capillaire quelque soit la tension appliquée. En tenant compte des effets de projection expliqués précédemment Figure 31 , il apparaît bien un maximum d'intensité au centre du capillaire comme l'illustre la Figure 55.

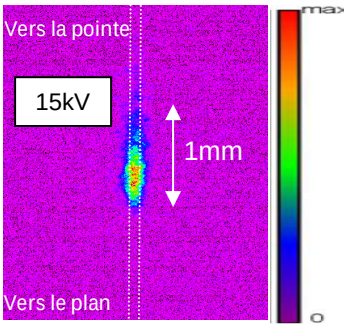


Figure 55. Photographie intégrée sur 200 ps de la structure homogène d'une décharge confinée dans un capillaire cylindrique de diamètre interne de 200µm.

Ces observations que l'on retrouve dans [7] sont en bon accord avec les résultats obtenus par la simulation. Dans le cas des décharges dans l'air à pression atmosphérique, l'émission associée au second système positif de l'azote est reconnue comme étant la plus intense. Ainsi pour comparer avec les expériences, des intégrations d'Abel de cette émission lumineuse ont été simulées et sont présentées Figure 56. Les images expérimentales qui y sont présentées sont intégrées sur 1 ns. Conformément aux résultats expérimentaux, le maximum d'émission se situe toujours derrière le front de la décharge. Pour un capillaire de diamètre interne égal à 600 µm, la structure tubulaire apparaît clairement avec un maximum d'émission proche des parois, tandis qu'elle semble quasi homogène pour un capillaire de diamètre interne égal à 200 µm.

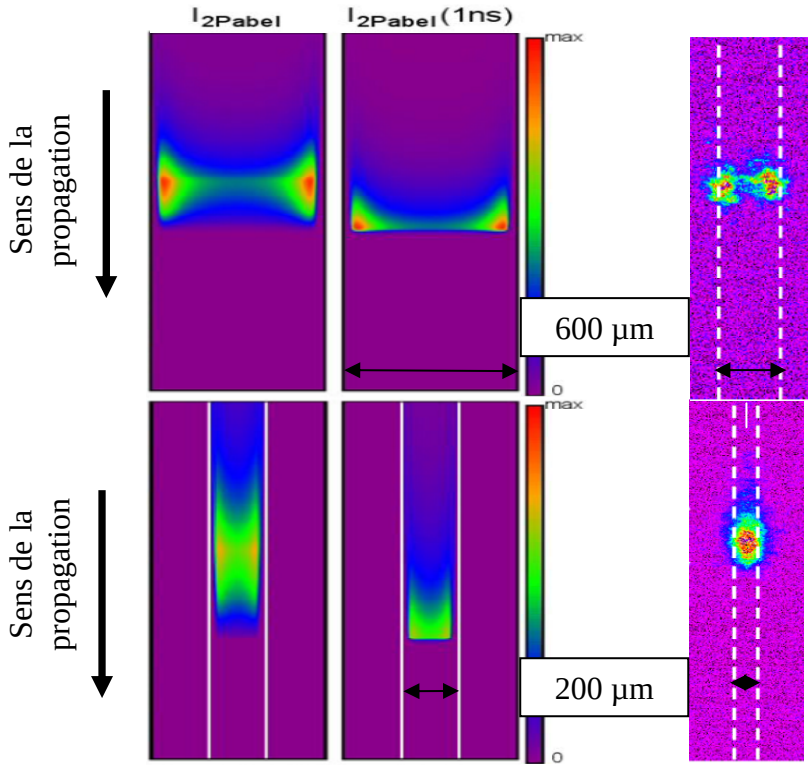


Figure 56. Comparaison de l'émission de la décharge entre simulations (à gauche) et expériences (à droite) à 9 kV pour des diamètres internes de 600µm (en haut) et 200µm (en bas). [8]

Pour de tels rayons, la simulation montre en outre que la décharge se propage avec des densités électroniques plus élevées que dans le cas sans contrainte aux mêmes tensions appliquées. La Figure 57 témoigne de valeurs de densité électronique de l'ordre de 10^{15}cm^{-3} au sein des capillaires de confinement tandis qu'elles ne dépassent pas 10^{13}cm^{-3} dans le cas sans contrainte quelque soit la tension appliquée. Par ailleurs, le champ électrique est également renforcé par la seule présence du capillaire, d'autant plus que son diamètre interne est petit. Les différentes structures observées peuvent s'expliquer ainsi au regard des zones de renforcement de champ induites par la présence du capillaire. Pour des rayons supérieurs à 200 µm, les zones de champ fort apparaissent au voisinage des parois tandis que le champ électrique semble s'uniformiser pour des rayons internes plus faibles.

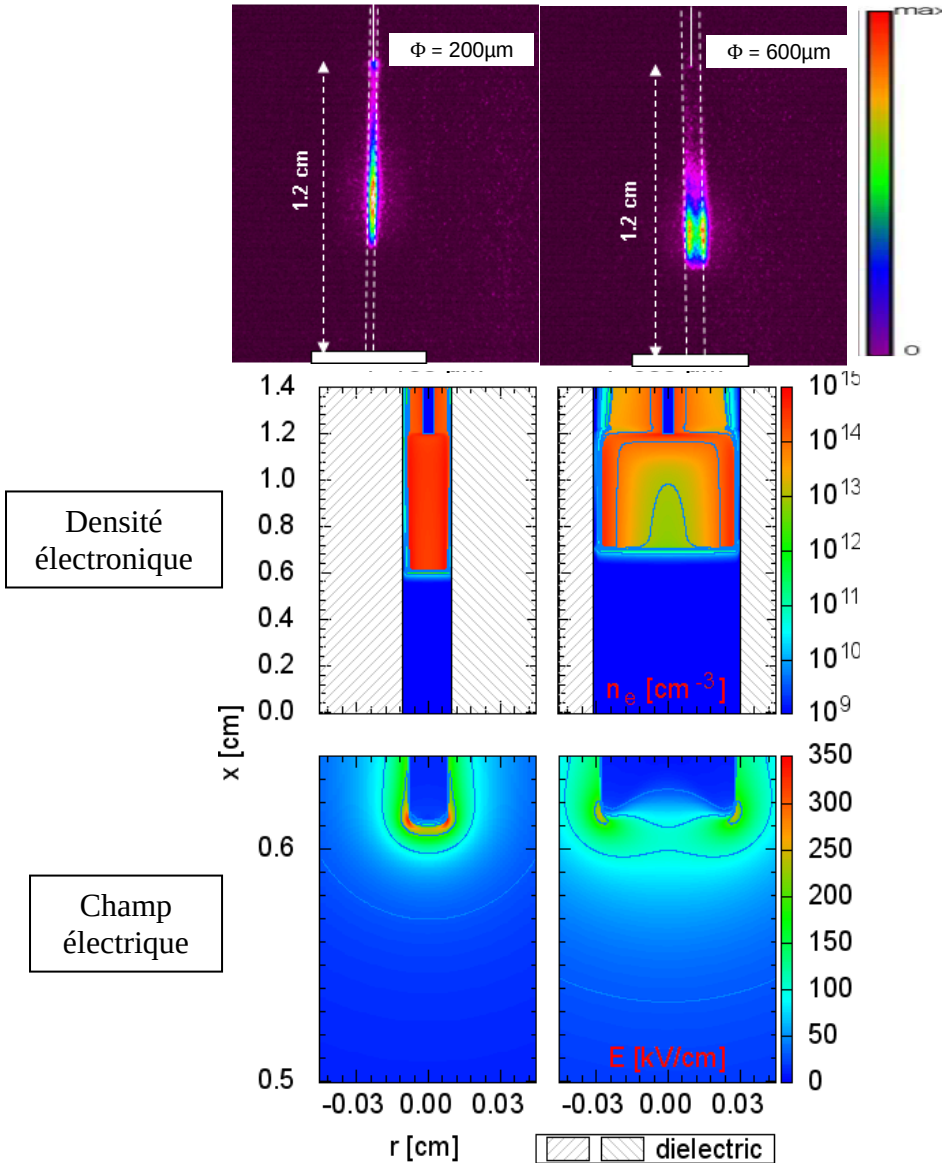


Figure 57. Comparaison entre décharges expérimentales et profils de champs électriques et densités électroniques simulés au cours de la propagation pour des capillaires de 200µm (à gauche) et de 600µm (à droite) de diamètres internes.

Pour conclure, nous pouvons donc affirmer que la géométrie de confinement détermine la structure de la décharge. Pour les cavités de sections carrées ou rectangulaires, la présence d'arêtes créée des renforcements de champ locaux où la décharge va préférentiellement se développer quelles que soient leurs dimensions. Pour les plus petites sections étudiées, la décharge semble néanmoins s'homogénéiser. Réaliser le confinement à partir de tube capillaire permet de s'affranchir de ces zones de champs forts. Néanmoins, nous constatons là encore que la structure de la décharge va être étroitement corrélée au diamètre interne de confinement. En effet, pour des diamètres de l'ordre du millimètre, la décharge est filamentaire, et ces filaments se propagent préférentiellement au voisinage des surfaces internes. Pour des diamètres compris entre 300 et 800 µm, la décharge possède un aspect tubulaire, tandis qu'elle semble homogène pour des diamètres internes inférieurs.

2. Les effets de la géométrie sur la vitesse de propagation

A l'aide des caméras calibrées, nous vérifions que le filament est maintenu droit, centré au sein du capillaire. Les trois caméras ICCD sont synchronisées pour évaluer la vitesse de propagation de la décharge à partir d'un unique évènement. Les temps d'ouverture des caméras peuvent être réduits à 200ps au minimum afin de calculer précisément la vitesse instantanée de la décharge. Ainsi, à partir d'une unique séquence, en maîtrisant les délais entre caméras, le déplacement du front d'émission de la décharge, mesuré avec précision par le logiciel inkScape, permet de calculer les vitesses de propagation de la décharge au sein du capillaire (Figure 58).

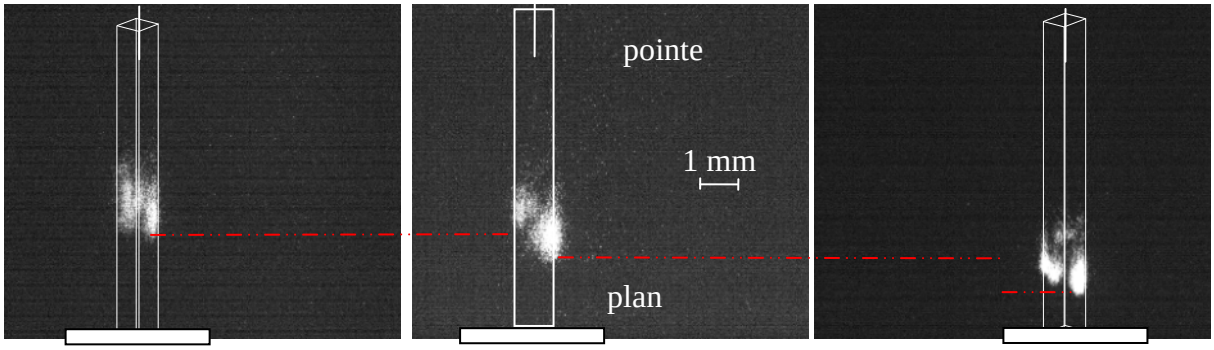


Figure 58. Séquence dédiée à une mesure de vitesse de propagation d'une décharge confinée sous l'effet d'un capillaire de section carré de 1mm de côté

Afin d'étudier l'influence d'un paramètre donné en s'affranchissant d'une quelconque perturbation de mesures, les vitesses reportées dans les prochains graphiques ont donc été réalisées à partir des séquences où la décharge se situe à une distance raisonnable de la cathode. Les temps d'intégration des acquisitions ont été adaptés en fonction de la luminosité de l'évènement mais n'excèdent jamais 1ns dans le cadre de mesure de vitesses. A chaque point de mesure reporté correspond deux vitesses de propagation instantanées, $Vcam_{1-2}$ et $Vcam_{2-3}$ qui sont moyennées entre elles. Les cas où une de ces deux vitesses est nettement supérieure à l'autre sont éliminés et, images à l'appui, attestent là encore de l'influence de la proximité du plan sur la vitesse de propagation de la décharge.

a. Cas de capillaires aux sections carrées et rectangulaires

Une expérience simple, consistant à délibérément coller la pointe à une plaque de verre maintenue verticale dans l'espace inter-électrodes, fait office de référence. Cet étalonnage par ce type de décharge permet également de mieux comprendre l'influence de la géométrie de confinement sur la propagation. Les résultats de la Figure 59 montre que cette décharge qui se propage le long de la plaque se déplace avec des vitesses qui sont en accord avec la littérature [9,10]. La comparaison directe avec le cas sans contrainte montre que la décharge guidée par la plaque de verre est toujours plus rapide, sauf quelques exceptions à très hautes tensions, malgré un gap pointe plan plus important.

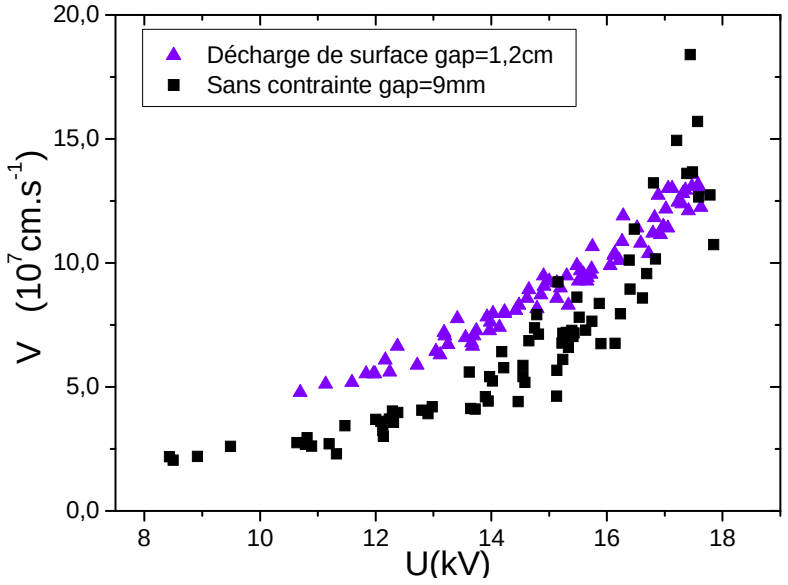


Figure 59. Vitesses de propagation obtenues dans le cas d'une décharge de surface en fonction de la tension appliquée, comparées au cas sans contrainte.

Nous observons par ailleurs que ces vitesses de propagation dans le cas de la décharge se propageant au voisinage de la plaque semblent être linéairement dépendantes de la tension appliquée. Ces premiers constats laissent supposer le fait que guider la décharge par la présence d'un diélectrique suffit à accélérer la propagation. Ils prouvent également que les mécanismes responsables de la propagation dans le cas d'une décharge surfacique sont régis par d'autres phénomènes que dans le cas d'une décharge se propageant librement. Les vitesses de propagation des décharges confinées radialement par des tubes de différentes tailles de section rectangulaire sont présentées dans le graphique de la Figure 60 en fonction de la tension appliquée.

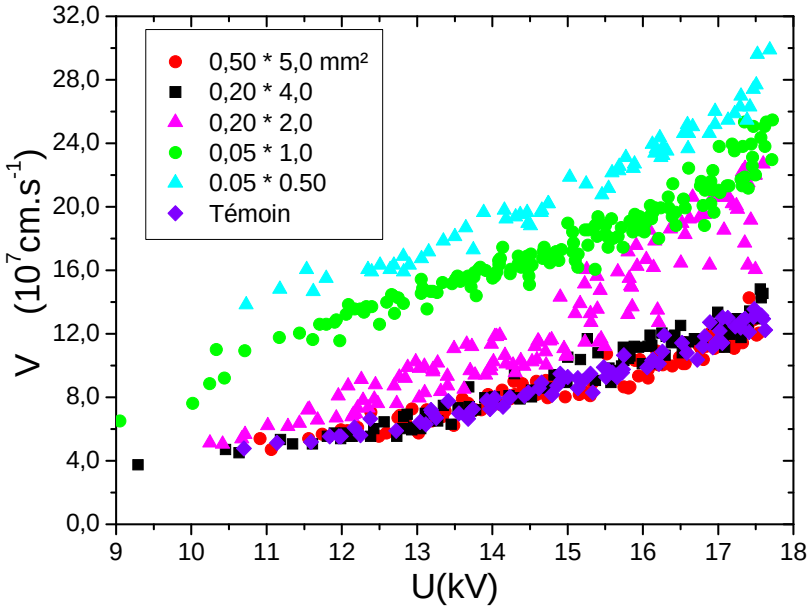


Figure 60. Vitesses de propagation des décharges confinées par des capillaires rectangulaires aux dimensions diverses en fonction de la tension appliquée pour un gap de 1,2cm.

Nous pouvons remarquer à nouveau une dépendance linéaire de la vitesse de propagation des décharges ainsi confinées par rapport à la tension appliquée. Pour les grandes sections de tubes, il est évident que le confinement n'a d'autre effet que de ramener la décharge à une décharge de surface classique, qui fait office de témoin de notre expérience (violet). Ce premier mode de propagation est également associé à des ramifications de la décharge qui sont plus fréquentes à basse tension. Lorsque la section du tube est réduite, typiquement en deçà de 0,5mm², la décharge est accélérée selon un deuxième mode de propagation favorisé par la proximité des arêtes et le renforcement de champ associé.

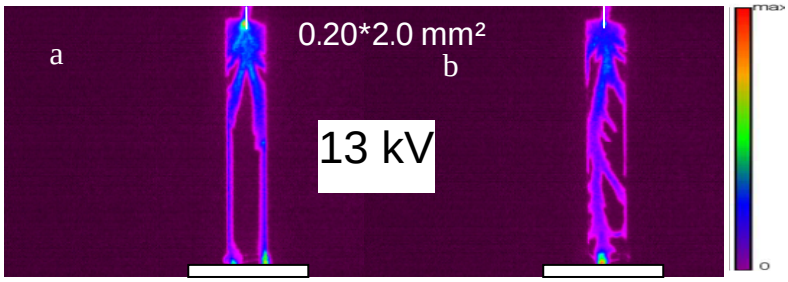


Figure 61. Photographies types des structures adoptées aux faibles tensions intégrées sur 6ns

Un cas particulier semble se dégager cependant pour le cas du capillaire rectangulaire de dimensions 0.20*2.0 mm², où la dispersion des points de mesure reportés semble témoigner de la compétition entre les deux modes de propagation précités. Quelle que soit la tension appliquée à la pointe, la décharge est guidée et accélérée par la présence des arêtes du capillaire dès que celle-ci les atteint (Figure 61 a) mais la décharge peut également présenter des effets de filamentation, limitant ainsi la composante axiale de sa vitesse de propagation (Figure 61. b).

Aux tensions plus élevées, nous retrouvons le même phénomène de branchement qui limite la vitesse de propagation de la décharge, auquel s'additionne l'influence de l'épaisseur des parois qui devient critique pour le capillaire utilisé. En effet, dans le cas de faibles épaisseurs, nous observons par instant une propagation externe au capillaire à laquelle correspond un ralentissement de la décharge. Comme le montre la Figure 62, les points de mesure des vitesses obtenues dans ce capillaire semblables à ceux issus de capillaire de moindres sections sont obtenus dès lors qu'il n'y a ni branchement (ou peu) au sein du capillaire ni de branchement externe directement lié à l'épaisseur des parois.

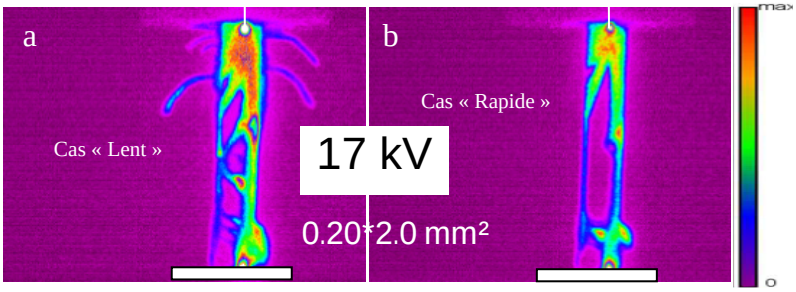


Figure 62. Clichés types des structures de la décharge aux fortes tensions intégrées sur 6ns

b. Cas des capillaires à section circulaire

Le large panel d'échantillons de capillaire de forme cylindrique, plus faciles à étudier que ceux présentant des arêtes, a naturellement incité à étudier plus particulièrement cette géométrie de confinement. Un effort particulier a donc été porté sur l'influence du diamètre interne de confinement sur les vitesses de propagation de la décharge en fonction de la tension appliquée. Les résultats obtenus pour ces capillaires cylindriques sont reportés dans le graphique de la Figure 63.

Nous remarquons en premier lieu que le confinement des décharges par la présence d'un quelconque capillaire submillimétrique a pour effet d'accélérer la décharge. De plus, contrairement au cas sans contrainte, la vitesse de propagation dépend linéairement de la tension appliquée à la pointe quel que soit le diamètre interne du capillaire étudié. Le coefficient de proportionnalité semble dépendre quant à lui de la valeur du diamètre interne de confinement.

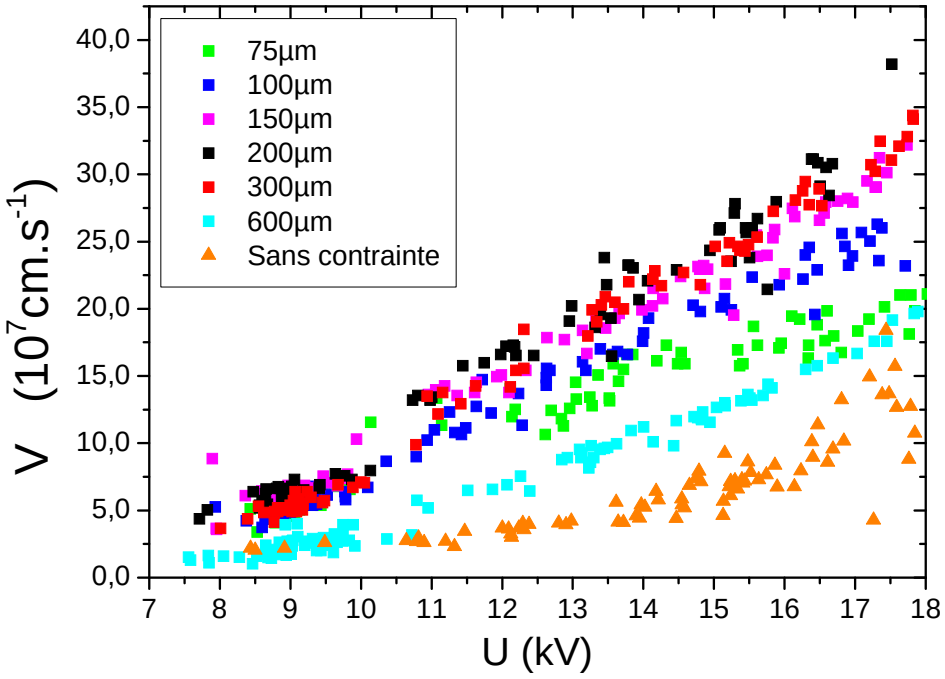


Figure 63. Graphique des vitesses de propagation obtenues dans des capillaires de verre de divers diamètres internes en fonction de la tension appliquée

Le graphique Figure 63 témoigne en outre de l'existence d'un rayon optimum pour la vitesse de propagation au sein du capillaire. En effet, pour des capillaires aux rayons internes proches de 100 µm, les vitesses de propagation sont optimales et sont trois à quatre fois plus rapides que dans le cas sans contrainte. Comme illustré par le graphique Figure 64 les vitesses de propagation présentent cet optimum quelle que soit la tension appliquée.

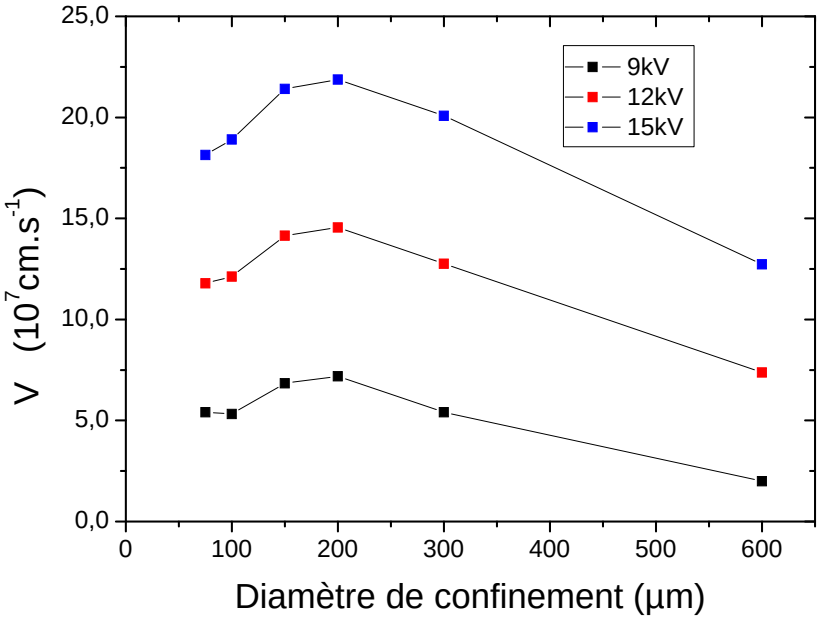


Figure 64. Influence du diamètre de confinement radial sur les vitesses de propagation des décharges à 9kV en noir, 12kV en rouge et 15kV en bleu.

Cette dépendance pourrait renseigner sur les processus qui dominent au sein du capillaire en fonction du diamètre interne de celui-ci. En effet, on peut supposer qu'en deçà de 200µm, les processus de recombinaisons aux parois deviennent importants devant les processus d'ionisation et donc créent un ralentissement de la décharge. A l'inverse, pour de grands diamètres, ce sont les processus d'ionisation qui sont moins efficaces dans l'espace inter-électrodes. Pour des diamètres proches de 200 µm, on peut supposer qu'il y ait un bon équilibre entre ces différents mécanismes.

Les résultats issus de la simulation illustrent également cette relation linéaire entre vitesse de propagation et tension appliquée en présence de capillaires submillimétriques. Cette relation correspond à une augmentation du champ électrique dans le front de décharge mise en évidence dans les simulations. Par ailleurs, c'est pour un diamètre interne de 200 µm que le front de décharge reste le plus homogène dans les simulations et ce pour toute la gamme de tension étudiée.

Les simulations montrent également que la vitesse de propagation dépend de la position du front de décharge dans l'espace inter électrode. Cette dernière décroît en effet dès lors que le front s'éloigne de la pointe. Les flèches du graphique de la Figure 65, où la vitesse de propagation est représentée en fonction du rayon interne du capillaire pour quatre tensions différentes, représentent ainsi la gamme de vitesses obtenues par la modélisation en fonction de la position du front de décharge au sein du capillaire. Ce graphique donne une comparaison des vitesses de propagation au sein d'un capillaire de diamètre interne de 200 µm en fonction de la tension appliquée obtenues expérimentalement et par les simulations. Nous remarquons malgré un bon accord aux faibles tensions qu'aux plus hautes tensions, les vitesses obtenues semblent sous-estimées d'un facteur 2 par rapport à celles obtenues expérimentalement. Le graphique de la Figure 66 illustre quant à lui les vitesses de propagation mesurées et calculées en fonction du rayon interne du capillaire de verre utilisé.

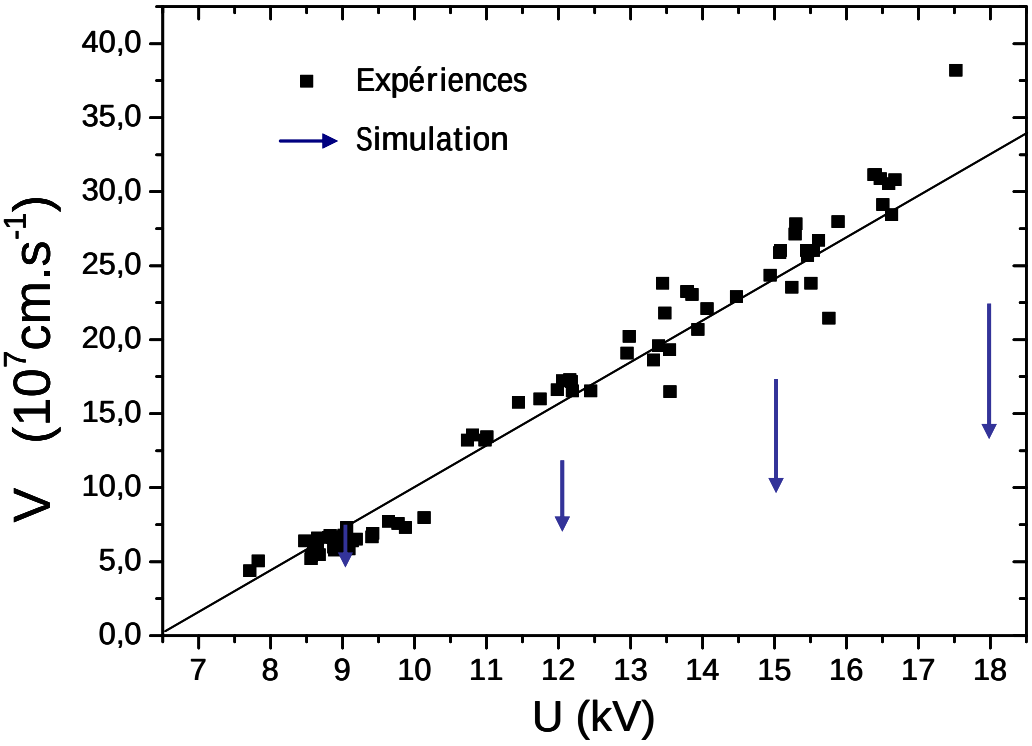


Figure 65. Comparaison des résultats issus de la simulation et de l'expérience des vitesses de propagation de la décharge confinée par un capillaire de 200µm de diamètre interne.

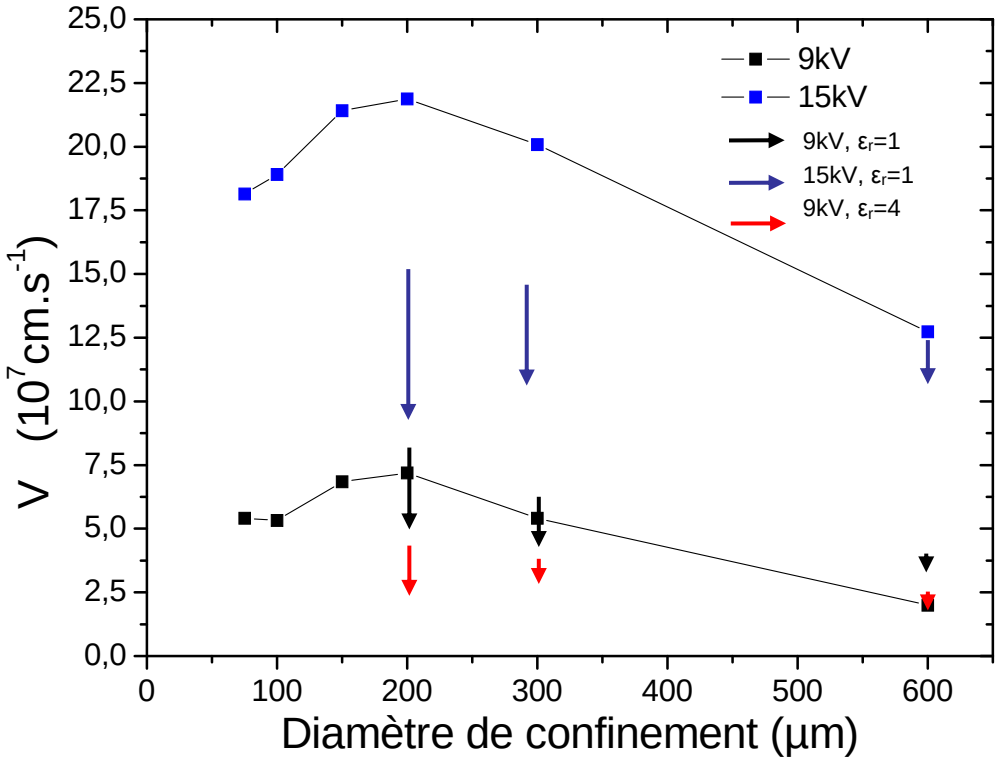


Figure 66. Comparaison entre expériences et simulations des vitesses obtenues en fonction du rayon de confinement pour 9kV (rouge et noir) et 15kV (bleu).

Dans les simulations, les fortes valeurs du champ électrique et les forts gradients au voisinage des parois internes n'ont pas permis de simuler la propagation au sein de capillaire aux rayons inférieurs à 100 µm. Pour des tensions supérieures à 12 kV, une permittivité égal à 4, conforme au capillaires de verre utilisés conduit une nouvelle fois à des valeurs non modélisables du champ. Seul le cas ε_r=1 à 15kV est alors représenté.

Les simulations, ainsi que l'expérience comme nous le verrons par la suite, ont montré que la vitesse de propagation de la décharge augmente dès lors que la permittivité électrique du matériau de confinement diminue. Ce cas permet ainsi d'obtenir les valeurs maximales possibles de vitesses de propagation à 15kV. Toutefois, la comparaison des résultats valide le fait que pour des rayons internes supérieurs à 100 µm, la vitesse de propagation décroît avec l'augmentation de ce dernier quelle que soit la tension appliquée. Pour les grands rayons, un bon accord se dégage entre les résultats obtenus. Nous remarquons en outre une meilleure concordance pour les faibles tensions. Néanmoins, les différences entre les résultats obtenus deviennent non négligeables pour les faibles rayons, et sont d'autant plus importantes que la tension appliquée est élevée.

c. Discussion sur la comparaison expérience/modélisation

Nous avons tenté de comprendre l'origine des différences obtenues entre résultats expérimentaux et résultats calculés par la simulation. Le paragraphe suivant propose une discussion des effets qui pourraient être responsables de ces différences.

Expérimentalement, la rapidité du phénomène observé requiert une extrême précision de l'expérience et des diagnostics associés. Sur les petites distances mises en jeu, une légère erreur de synchronisation peut facilement amener à une erreur de lecture des vitesses observées. Les différentes étapes de traitement des données ajoutent de possibles incertitudes supplémentaires. Cependant, il est primordial de préciser qu'un très grand nombre d'expériences ont été réalisées afin de gommer statistiquement les erreurs produites. Ces dernières sont tout d'abord liées à l'acquisition même de la décharge. La décharge étant très lumineuse, les gradients de luminosité importants combinés à la présence du verre qui disperse quelque peu la lumière émise par la décharge, contribuent à une erreur sur la lecture de la localité très exacte du front de décharge dans le capillaire. Comme la structure de la décharge reste inchangée au cours de sa propagation, les possibles erreurs commises seront équivalentes en tout point de la propagation, et cette considération n'exerce ainsi qu'un effet négligeable sur les vitesses mesurées.

La lecture de la tension appliquée peut également être source des différences observées. Comme énoncé dans le chapitre précédent, les tensions reportées dans les graphiques sont issues de la moyenne de l'amplitude de la tension sur toute la durée de l'impulsion. Si la simulation modélise au plus près le profil de tension expérimental, ce dernier est du reste en réalité un créneau non parfait dont la valeur à l'issue du front de montée, considérée par la simulation, peut être inférieure à la valeur moyenne reportée par le traitement des données expérimentales. Nous pouvons ainsi surestimer la valeur de la tension appliquée à la pointe lors de l'initiation, qui est prépondérante sur la propagation. Les erreurs estimées par ce traitement statistique n'excèdent cependant jamais 1 kV et n'expliquent donc pas là encore les différences obtenues. Par ailleurs la

reproductibilité des résultats expérimentaux, mise en exergue par l'aspect non dispersé des points reportés, laisse à penser que ces erreurs restent très négligeables.

Nous proposons donc de discuter de l'influence des conditions initiales sur les résultats de la simulation. Ce travail consiste à estimer successivement divers paramètres susceptibles d'accélérer la décharge, dans l'optique d'obtenir des résultats par le modèle conformes à ceux issus de l'expérience.

En premier lieu, il est important de rappeler que les décharges ont été réalisées coup par coup avec des délais supérieurs à la seconde d'un évènement à l'autre. Cependant, les propriétés diélectriques des capillaires étudiés peuvent nous amener à nous interroger sur l'état initial de deux évènements distincts. En outre, l'odeur caractéristique de l'ozone, sentie après quelques heures d'expérience, atteste que la chimie post-décharge est susceptible de modifier l'état initial d'une décharge à l'autre. A l'aide de l'alimentation électrique dont nous disposons, quelques expériences ont été réalisées à des fréquences pouvant aller jusqu'à 60 Hz. Aucune influence de cette dernière n'a été perçue sur les vitesses de propagation des décharges confinées. Cette reproductibilité des évènements confirme notamment le fait que le chauffage du gaz dans le tube peut être négligé dans la gamme de fréquence étudiée.

La simulation de la post-décharge a montré que l'excédent de charges positives aux surfaces du capillaire diélectrique laissé par la décharge au cours de la propagation, égal à environ 1 $nC.cm^{-1}$, s'annule en quelques nanosecondes après la fin de l'impulsion. Il demeure cependant une grande densité d'électrons et d'ions dans le gaz après le passage de la décharge qui vont alors diffuser vers les parois où des processus de recombinaison vont avoir lieu. Les conditions initiales d'un évènement à l'autre sont donc difficiles à déterminer précisément aussi bien dans le gaz qu'au voisinage des parois du capillaire. Des simulations ont alors été réalisées afin d'étudier l'influence des conditions initiales sur la propagation de la décharge, en modifiant en premier lieu les densités électroniques et d'ions positifs initiales. Elles ont montré qu'elles n'ont que très peu d'influence sur les vitesses de propagation des décharges. La pré-ionisation au sein du gap n'a elle aussi qu'une influence très négligeable sur ces décharges confinées radialement.

La dynamique des charges de surface pendant la post-décharge n'ayant pas été étudiée, l'influence de l'état initial sur la vitesse de propagation a été mise en évidence en fixant arbitrairement une certaine valeur de densité de charges de surfaces aux parois interne du tube diélectrique. Les résultats ont alors démontré qu'un apport de charges négatives aux surfaces du capillaire engendre une augmentation de la vitesse de propagation quel que soit le rayon de confinement. Les charges négatives en surface vont en effet renforcer le champ dans le front de décharge tandis qu'à l'inverse, un dépôt de charges positives entraîne un écrantage du champ et donc une vitesse de propagation moindre. Il est important de noter cependant qu'un apport de charges égal à -0.1nC/cm équivalent au maximum plausible de dépôt négatif de charges aux surfaces des parois, contribue simplement à une augmentation de 10% de la vitesse de propagation de la décharge. Cela ne contribue donc pas là encore à expliquer les différences observées.

La valeur du coefficient d'émission secondaire possède elle aussi une influence négligeable quant à la vitesse de propagation calculée. Par ailleurs, les processus de

photo-émission favorisent, à rayon constant, la structure tubulaire de la propagation. Les résultats obtenus tenant compte de ces processus montrent que la vitesse diminue. Nous retrouvons ainsi le fait que les processus et paramètres responsables d'une propagation tubulaire ont pour conséquence de freiner la propagation. De plus, l'ensemble des processus d'émission additionnels tels que l'émission de champ ou encore l'émission secondaire d'électrons liée à l'impact de métastables, n'explique pas les différences de résultats obtenues.

Les questions se sont alors tournées sur l'ensemble de valeurs choisies pour les termes sources du modèle. Ce dernier utilise des valeurs issues des données présentées dans l'article de Morrow et al, [11]. Cependant, il existe d'autres valeurs issues de la littérature pour ces paramètres en présence d'un champ extrêmement fort (E > 200kV/cm). Liu et al, [12] propose une valeur source pour le coefficient d'ionisation environ deux fois supérieure. L'utilisation de leurs données par le modèle développé à EM2C aboutit à une augmentation d'un facteur 2 pour une tension appliquée de 15 kV et d'un facteur 1.5 à 9 kV. Si l'application de ces facteurs conduit à une surestimation aux plus grands diamètres de confinement, nous aurions à l'inverse obtenu un très bon accord pour les faibles diamètres. Nous pouvons donc supposer que le modèle, qui donne de très bons résultats aux grands diamètres, n'est plus valable dès lors que l'on réduit le diamètre de confinement où les zones de champ extrêmement fort créées semblent venir modifier les valeurs de termes sources à prendre en compte.

3. Effet de la permittivité diélectrique des capillaires

Pour comprendre les différences observées, nous avons tenté de comprendre quels paramètres pouvaient jouer sur la propagation de la décharge. Après s'être intéressé à l'influence du facteur géométrique de confinement radial à la fois sur la structure de la décharge et sur les vitesses de propagation, nous allons étudier désormais l'influence de la permittivité diélectrique du matériau de confinement. Un effort particulier a été porté sur l'alumine où $\varepsilon_r = 9$, et le poltytétrafluoroéthylène (PTFE) plus connu sous le nom de Téflon ($\varepsilon_r = 2.2$). L'alumine étant couramment utilisée en procédés de dépollution et le Téflon dans la microélectronique notamment en tant que membranes isolantes, ce sont de très bon candidats pour notre étude.

Comme expliqué précédemment, la méthode de mesure des vitesses par les courants a été validée au sein des capillaires. Nous avons donc pu étudier la propagation de décharges nanosecondes au sein de plusieurs matériaux semi-transparents voire opaques aux permittivités diélectriques différentes. Les graphiques présentés Figure 67 et Figure 68 dressent l'ensemble des résultats obtenus pour les vitesses de propagation de la décharge confinée par des capillaires d'alumine et de Téflon respectivement, avec des rayons de confinement divers, et ce, sur l'ensemble de la gamme de tension appliquée disponible. Les résultats obtenus illustrent un comportement similaire à l'étude consacrée aux capillaires de verre. Nous pouvons remarquer en effet une nouvelle fois, la relation linéaire entre la vitesse de propagation et la tension appliquée et ce quels que soient le matériau et le rayon du capillaire utilisé. Nous notons cependant dans le cas du Téflon, la présence d'une légère dispersion des données à haute tension qui témoigne de l'influence de l'épaisseur des parois du capillaire (cf

paragraphe 4). Cela s'explique également par l'approximation moins robuste à basses tensions effectuée par notre méthode de détermination de la vitesse de propagation.

Nous remarquons en outre que plus le diamètre interne du capillaire se rapproche de la valeur pour laquelle nous avons mis en évidence un optimum de la vitesse de propagation dans le cas de capillaires de verre, *id est* 200µm, plus les vitesses de propagation reportées sont élevées. Malheureusement pour ces deux matériaux, il n'a pas été possible de mettre en évidence l'existence d'un rayon optimum par manque de capillaire de dimensions inférieures. Le graphique de la Figure 69 présente cependant les données recueillies pour ces matériaux en fonction du diamètre de confinement et pour trois valeurs de tension appliquée différentes, 9 kV, 12 kV et 15 kV. Les données relatives au capillaire en alumine à 9 kV n'apparaissent pas sur ce graphique pour des problèmes d'échelle.

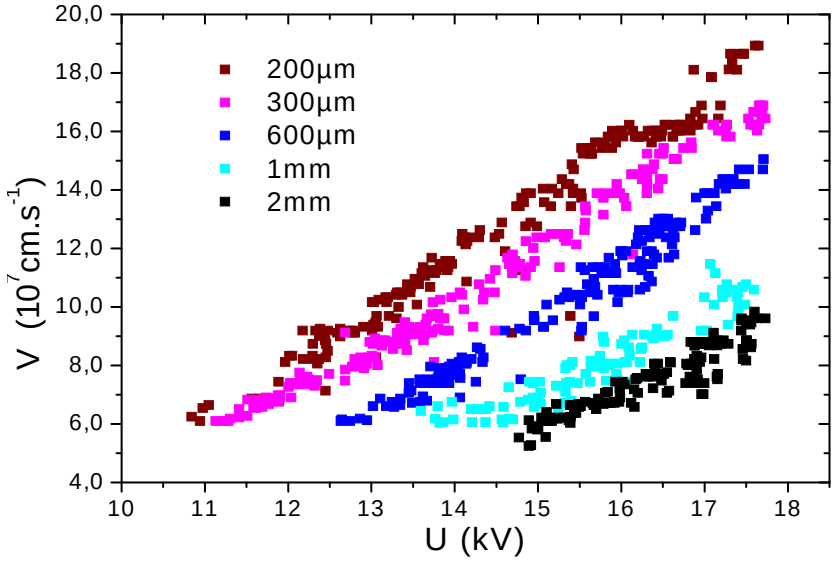


Figure 67. Vitesses de propagation obtenues suite à des confinements par de capillaires d'alumine aux divers diamètres internes.

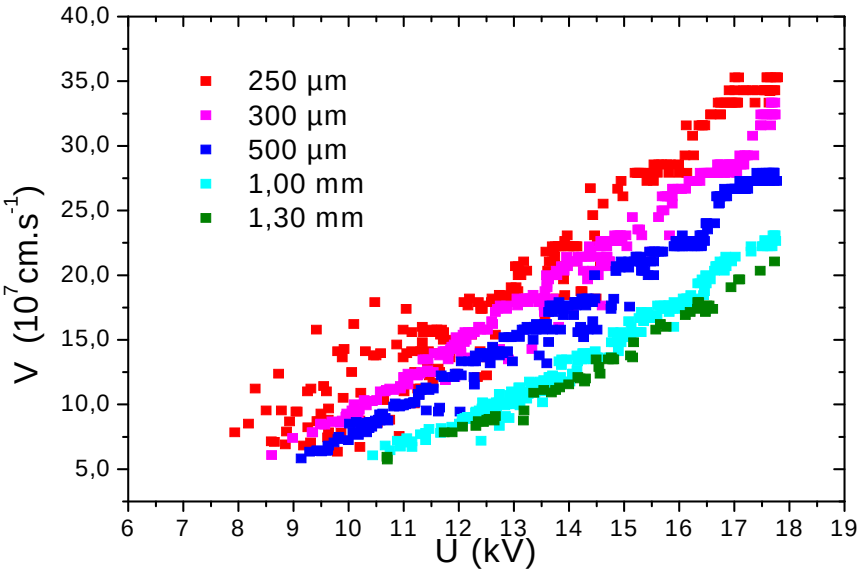


Figure 68. Vitesses de propagation obtenues suite à des confinements par de capillaires de Téflon aux divers diamètres internes.

Nous observons que les profils de vitesse obtenus semblent en effet reproductibles quel que soit le matériau étudié. Il parait évident par ailleurs que diminuer la permittivité diélectrique du matériau engendre une augmentation de la vitesse de propagation au sein du cylindre de confinement.

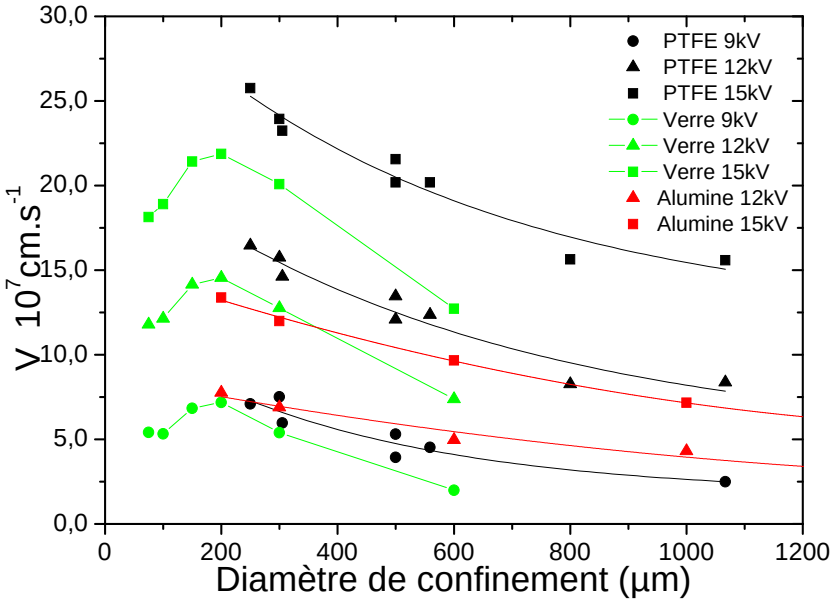


Figure 69. Vitesses de propagation moyennes en fonction du diamètre de confinement pour le PTFE, le verre et l'alumine pour différentes tensions.

La comparaison directe des vitesses de propagation calculées en fonction d'un même confinement géométrique mais de divers matériaux met en évidence le rôle prépondérant que joue la valeur de la permittivité diélectrique. Comme le confirme le graphique de la Figure 70, plus celle-ci augmente, plus la vitesse de propagation diminue.

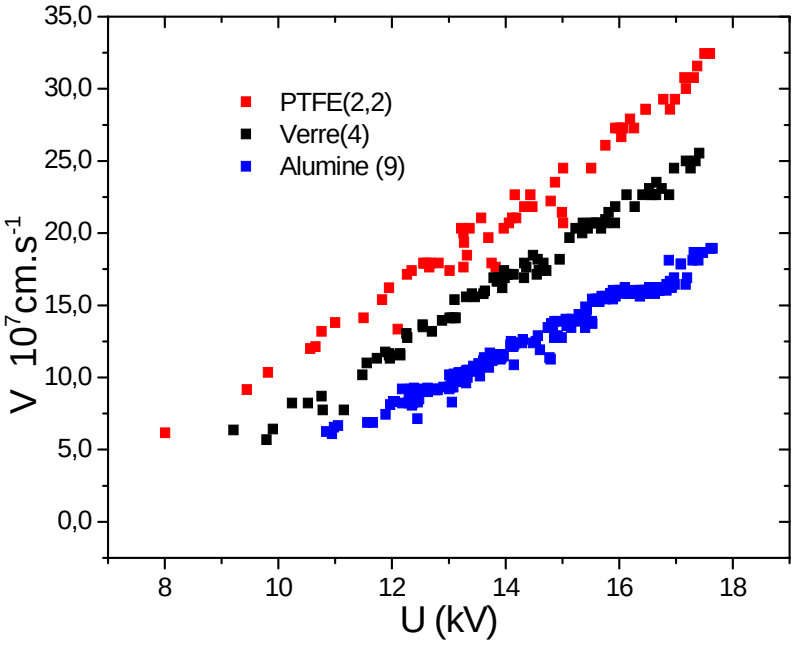


Figure 70. Influence de la permittivité diélectrique du matériau sur la propagation d'une décharge confinée par un capillaire de 300µm de diamètre.

Ce résultat est conforme aux résultats issus de la simulation que l'on peut retrouver dans [13,14].

Malgré le manque de preuves expérimentales de l'existence d'un optimum de vitesse de propagation dans des capillaires d'alumine ou de Téflon, il semblerait que cet optimum existe pour tous types de capillaires et que celui-ci serait dépendant du matériau considéré. C'est ce qu'illustre le graphique Figure 71, où est reporté l'ensemble des résultats obtenus pour de nombreuses familles de plastiques aux permittivités diélectriques très proches.

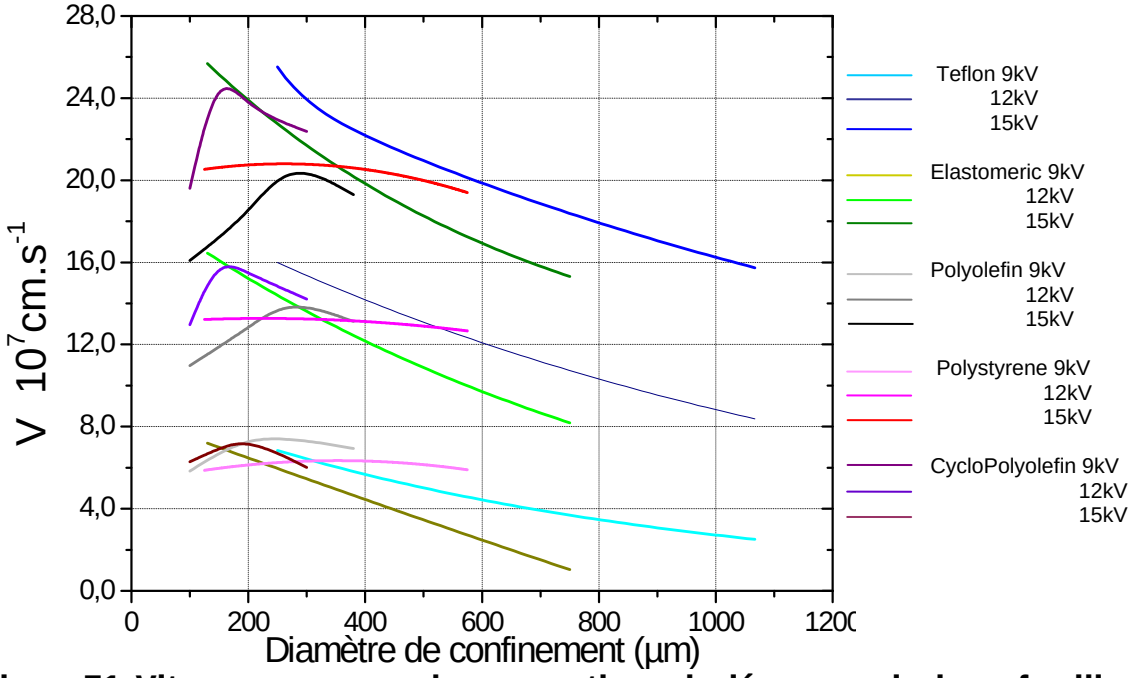


Figure 71. Vitesses moyennes de propagation calculées pour plusieurs familles de plastiques en fonction du diamètre de confinement pour différentes tensions.

Ce résultat pourrait être révélateur de l'importance de la nature chimique du matériau, au même titre que celle de sa permittivité diélectrique. Selon la constitution chimique du capillaire, les effets d'interaction de la décharge avec les parois pourraient être modifiés. Il est en effet légitime de penser que les coefficients d'émission, d'attachement et de recombinaison des charges en surface, par exemple, sont dépendants de la nature chimique du matériau. Cette hypothèse reste toutefois difficile à vérifier, le modèle utilisé à Em2C ne permettant pas en l'occurrence de décrire de manière précise les mécanismes physico-chimiques d'interaction charges/surfaces.

Le graphique de la Figure 72 compare les vitesses de propagation obtenues en fonction de la famille de polymère utilisée pour le confinement. Les paramètres géométriques de chacun des capillaires reportés sont quasi similaires dans le sens où le diamètre interne des capillaires utilisés vaut 300 µm ± 50 µm et pour lesquels l'influence de l'épaisseur des parois reste négligeable.

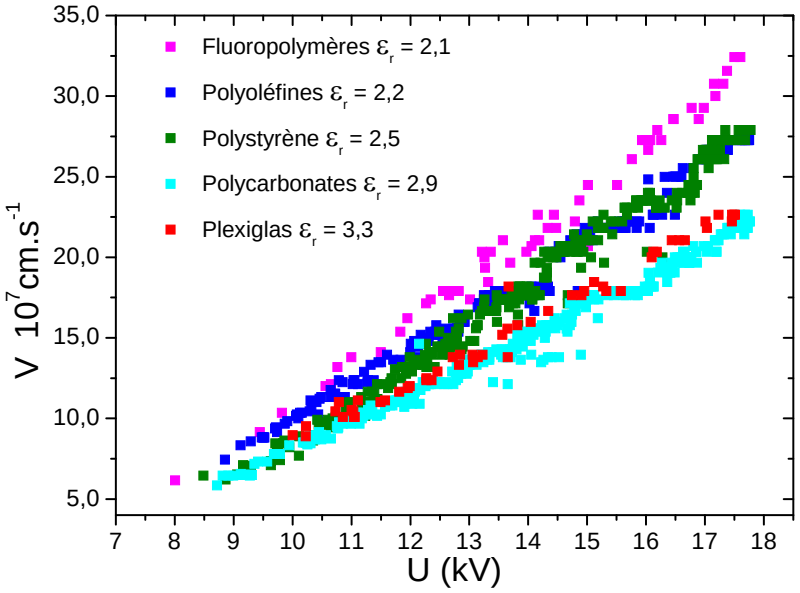


Figure 72. Vitesse de la décharge confinée par des capillaires de 300µm de diamètre de natures plastiques différentes.

Nous pouvons observer ainsi que la dépendance de la dynamique des décharges en fonction de la permittivité diélectrique demeure vraie sur une plus petite gamme de valeurs. Seul le cas du polycarbonate (PC) en regard de celui du Plexiglas, amène à une contradiction. Celle-ci peut s'expliquer néanmoins par les propriétés intrinsèques du polycarbonate notamment. Le caractère plus opaque du PC par rapport aux autres plastiques lui confère probablement un coefficient de photo-émission moindre que pour les autres familles de plastiques mis à l'étude.

La permittivité diélectrique du matériau de confinement est donc un paramètre prépondérant sur la propagation de la décharge confinée radialement. Plus celle-ci augmente, moins la décharge se propage rapidement au sein du capillaire. La permittivité diélectrique d'un matériau peut être assimilée comme étant la grandeur macroscopique liée à la polarisabilité électrique des molécules qui constituent le matériau. D'un point de vue microscopique, lorsque la permittivité diélectrique du capillaire augmente, celle-ci possède alors une meilleure capacité à orienter les dipôles qui le composent. Les surfaces internes du capillaire se chargent davantage au passage de la décharge, ce qui renforce le phénomène d'écrantage du champ électrique appliqué, diminuant ainsi les collisions ionisantes au niveau du front, et implique donc un ralentissement de la propagation dans l'espace inter-électrodes.

4. Influence de l'épaisseur des capillaires

L'épaisseur des parois des pores ou des cavités simulées par le capillaire possède également un rôle prépondérant dans la propagation de la décharge. En effet, selon que l'épaisseur des parois est de l'ordre du millimètre ou plutôt de quelques dizaines de microns, nous observons des effets importants sur la propagation de la décharge. Les graphiques présentés Figure 73 montrent que la diminution de l'épaisseur des parois conduit en effet à une augmentation de la vitesse de propagation de la décharge.

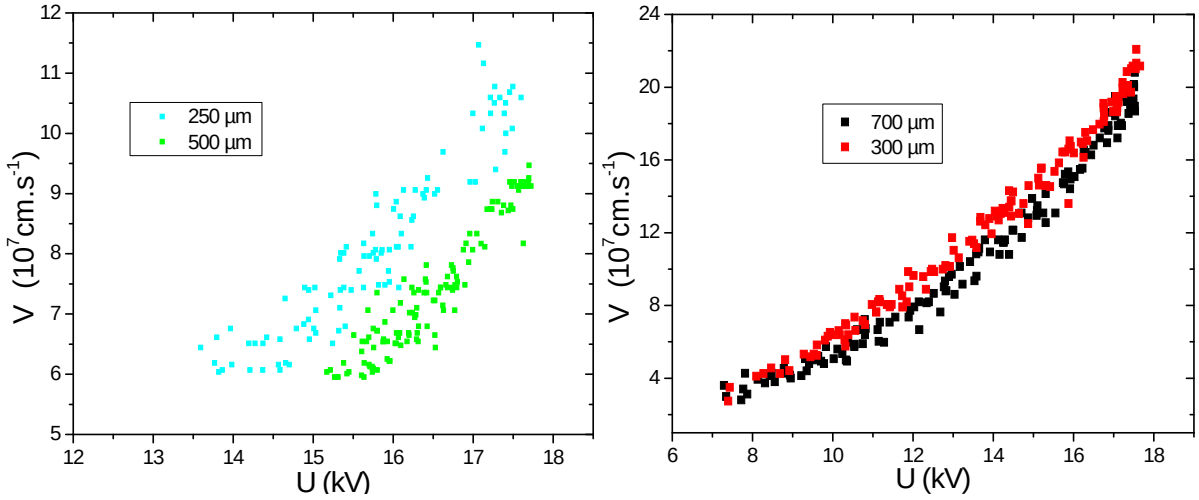


Figure 73. Effet accélérateur de la diminution de l'épaisseur des parois
A gauche, pour un capillaire d'alumine d'un millimètre de diamètre
A droite, capillaire de verre de 600µm de diamètre interne

Dans le cas du capillaire de section rectangulaire de 0.2*2mm² présenté au paragraphe 2a précédent ainsi qu'à la Figure 74, la dispersion des données observée à haute tension pouvait être interprétée comme l'apparition d'un facteur limitant de la vitesse de propagation liée à l'épaisseur des parois. Nous remarquons en effet que pour des épaisseurs suffisamment petites, typiquement inférieures à 200 µm, la décharge est capable de se « déconfiner » pour se propager à l'extérieur du capillaire comme le montre la Figure 74. Ce phénomène est favorisé à haute tension et a pour conséquence de ralentir la propagation de la décharge dans l'axe pointe/plan. Cela a clairement été mis en évidence par la superposition des images obtenues dans le cas des vitesses calculées les plus faibles, où l'on observe quasi systématiquement une propagation externe. Pour ce capillaire, les phénomènes de branchement à l'intérieur et à l'extérieur du tube de confinement contribuent donc à expliquer ainsi le caractère dispersé des données expérimentales obtenues.

Concernant les tubes aux épaisseurs encore plus fines (dizaines de µm), il semble que la décharge, dont la propagation reste favorisée aux arêtes du capillaire, présente toujours une propagation au niveau des surfaces externe du capillaire ainsi qu'une filamentation externe au niveau de la pointe. Cette propagation externe est directement liée à l'épaisseur et s'explique par le fait que, pour ces épaisseurs, le champ électrique véhiculé par le front de la décharge est suffisamment important pour accélérer les électrons au voisinage de la surface externe du capillaire et provoquer ainsi des collisions ionisantes à l'extérieur du tube de confinement. Dans certains cas, cette filamentation externe peut même s'observer tout le long du tube au cours de la propagation. Nous pouvons supposer que dans ces cas, la décharge est suffisamment « lente » pour que des instabilités électrohydrodynamiques aient davantage le temps de se développer au cours de la propagation, générant ce branchement externe tout le long du tube (Figure 74 a). A l'inverse, si la propagation est suffisamment rapide sous l'effet du confinement, comme dans le cas des plus petites sections, la décharge arriverait au plan avant que ces instabilités ne puissent se développer. Le canal conducteur généré par la connexion au plan empêcherait alors davantage de filamentation et la propagation extérieure s'effectuerait uniquement le long des parois externes (Figure 74 b).

Nous ne pouvons cependant pas confirmer cette observation par le fait même que l'on ne peut pas dissocier l'effet de l'épaisseur des parois des effets liés aux dimensions du capillaire. En effet, comme les fournisseurs diminuent malheureusement les épaisseurs des capillaires conjointement à la diminution de la section du tube, il est fastidieux d'identifier véritablement le paramètre responsable de ces ré-allumages externes ainsi que de leur répartition au sein de l'espace inter-électrodes.

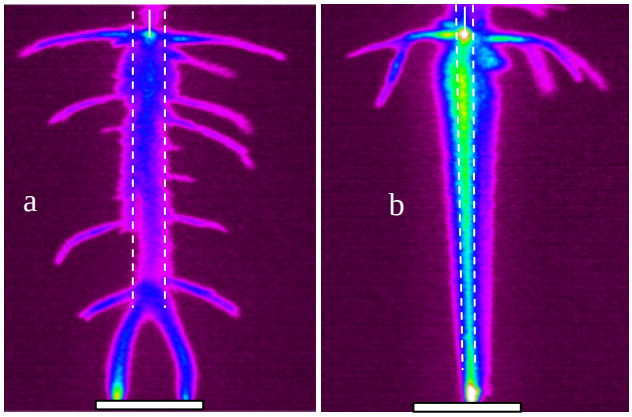


Figure 74. Filamentation externe de la décharge au capillaire de 50µm d'épaisseur
(a) tout au long du tube 0.05*1.0
(b) uniquement au niveau de la pointe (tube 0.05*0.50)

Cette observation de propagation à l'extérieur du tube demeure néanmoins primordiale dans le cadre de l'application de décharges confinées dans des réacteurs plasma/catalyse. Nous pouvons en effet imaginer raisonnablement un support de catalyseur dont les dimensions ont été choisies afin qu'une seule pointe puisse générer des décharges diffuses, tubulaires ou filamentaires au sein des cavités en fonction de l'application souhaitée et qui se propagent de cavités en cavités à travers les différentes parois. La Figure 75 illustre cette possibilité où, à partir d'une seule pointe, il est tout à fait possible de propager la décharge au-delà des parois, au sein de plusieurs cavités. Deux capillaires de sections 0.05*0.50 mm² et d'épaisseur 50 µm ont été juxtaposés et l'on remarque que la décharge directement initiée au sein de l'un des deux se propage également au sein de l'autre.

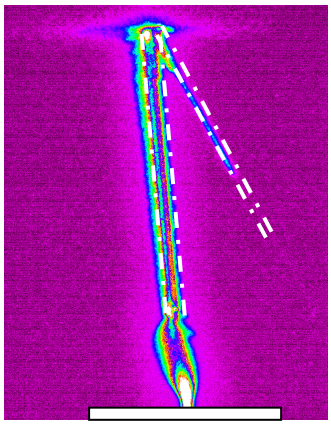


Figure 75. Propagation de cellule en cellule permise grâce à la finesse des parois
Capillaires de 0.05*0.50 mm² et d'épaisseur 50µm

D. Spectroscopie d'émission dans le cas de capillaire à section circulaire.

Dans le but d'analyser plus précisément l'effet du confinement sur les décharges, une étude complémentaire d'imagerie et de spectroscopie d'émission sur des décharges confinées par des capillaires de verre submillimétriques a été réalisée. Les objectifs sont d'identifier les différentes structures du plasma en fonction du diamètre de confinement et d'effectuer une caractérisation spectrale de la décharge. A l'aide de comparaison entre spectres expérimentaux et spectres simulés par le logiciel Spécair, cette étude a permis entre autres de déduire la température du plasma. Ces travaux ont fait l'objet du stage de Pierre Favier, étudiant en 3ème année de Licence Physique à l'Université Paris Sud.

1. Caractérisation optique de la décharge

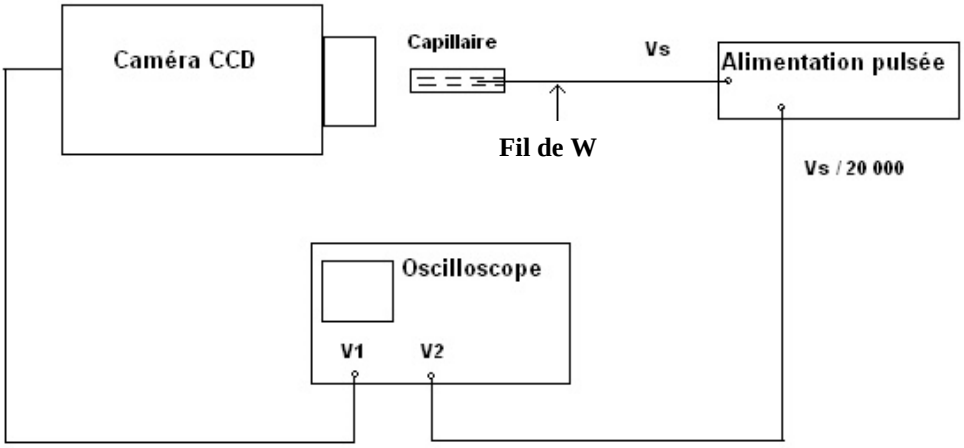


Figure 76. Schéma expérimental relatif à la détermination des modes de propagation.

Le schéma de la Figure 76 présente le dispositif expérimental mis en place afin de caractériser les décharges. Une caméra ICCD Princeton Instrument de bonne résolution est disposée face à l'extrémité de la pointe, permettant d'obtenir une coupe radiale du plasma. L'ouverture de la caméra est fixée à 370 µs pour visualiser la décharge sans accumuler trop de bruit. Aucune cathode n'est présente afin de permettre la visualisation de la décharge.

Conformément à l'étude de la propagation des décharges confinées radialement, la pointe est un filament de tungstène de 50 µm de diamètre. Celui-ci est inséré au sein de capillaires de verre de différents diamètres internes. Sur ce filament, sont appliquées des impulsions de tension différentes de celles utilisées pour les études précédentes.

Comme illustré par la Figure 77, l'alimentation fournit une série d'impulsions de 18 kV sur un front de montée d'environ 35 $V.ns^{-1}$, ce qui est beaucoup plus lent que dans le cas précédent (autour de 10 $kV.ns^{-1}$). La fréquence, quant à elle, peut être contrôlée et varie entre 8 et 100 Hz.

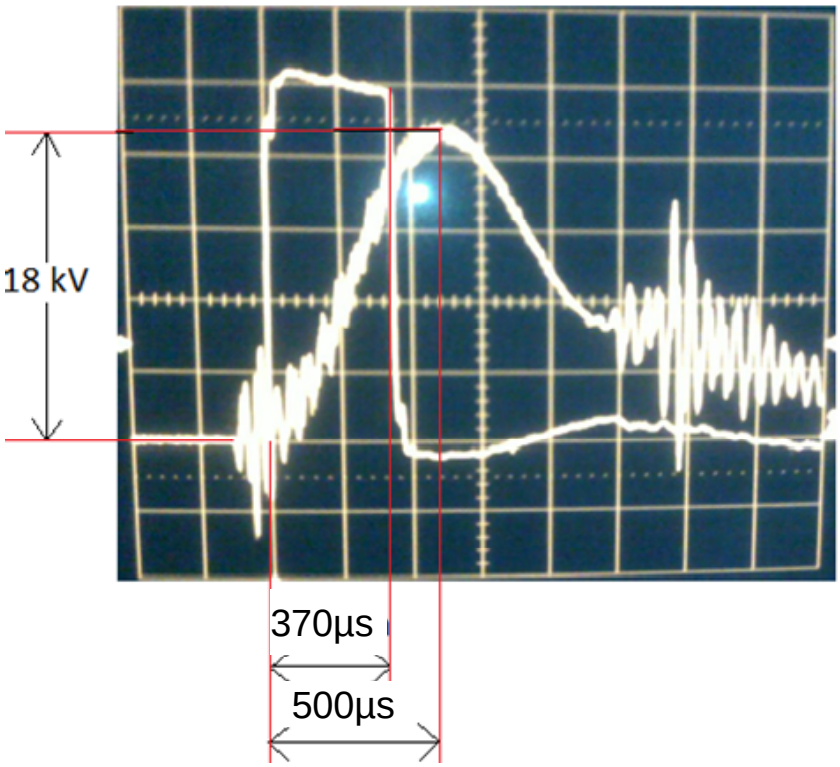


Figure 77. Signaux de l'impulsion de tension et de la porte de la caméra.

Les caractéristiques de l'impulsion de tension étant radicalement différentes, les décharges générées ici ne seront pas directement comparables à celles présentées à la section précédente. Par ailleurs, l'absence de contre-électrode modifiant la distribution du champ Laplacien à l'intérieur du capillaire, la morphologie des décharges ainsi générées sera également perturbée. Cependant, dans le cas où les observations obtenues seraient similaires, le rôle prépondérant de la géométrie de confinement indépendamment des paramètres électriques de la décharge pourrait être confirmé.

L'intérêt de cette configuration expérimentale est qu'elle permet de s'affranchir des effets d'optique liés au rayon de courbure des capillaires, et d'obtenir ainsi une image représentative de la répartition spatiale du plasma au sein du capillaire. Les difficultés expérimentales résident dans ce cas dans l'alignement de la caméra avec les capillaires, la détermination du plan de focalisation et de la profondeur de champ. L'alignement est assuré par la mise au point de la caméra sur l'extrémité du capillaire.

Pour identifier la position exacte du plan de focalisation sur l'axe des capillaires, nous avons dû, lors de chaque observation, repérer dans un premier temps la pointe du fil de tungstène puis remonter à la position cherchée à l'aide des vis micrométriques du montage. L'observation directe entraîne nécessairement la prise en compte de la profondeur de champ du montage. L'objectif que nous avons majoritairement utilisé est un objectif x10 qui possède une profondeur de champ d'environ 1.5 mm tandis que l'objectif x4 utilisé pour l'alignement a une profondeur de champ de plus de 4.5 mm. Ceci entraîne qu'une image prise avec l'objectif x10 sera entachée par la lumière provenant de 0.75 mm en amont et en aval du point de focalisation. Cette profondeur de champ reste néanmoins acceptable au regard de la luminosité plus importante au niveau du point de focalisation et de la longueur des capillaires (de 10 à 20 mm).

Nous avons étudié plusieurs diamètres internes de capillaires : 200, 300, 400, 500 et 2000 µm avec pour certains des longueurs différentes de 1, 1.5 et 2 cm. Chaque expérience fût effectuée à une tension constante de 18 kV et une fréquence constante de 100 Hz. Les photographies qui seront présentées proviennent toutes d'une accumulation de 100 décharges sur le capteur CCD de la caméra, la luminosité perçue pour une unique décharge étant trop faible. Il est important de dire que les résultats présentés ici ont été obtenus avec une bonne reproductibilité.

Les résultats obtenus dans le cadre de cette étude peuvent ainsi être résumés dans le Tableau 2. Celui-ci révèle les images caractéristiques des décharges obtenues pour l'ensemble des capillaires de confinement étudiés, aux longueurs et diamètres internes différents, en fonction de la position du point de focalisation de la caméra, à savoir soit au milieu du capillaire, soit en sortie de ce dernier. Le milieu du capillaire étant défini par la moitié de la distance allant de la pointe au bord du capillaire.

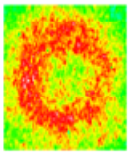
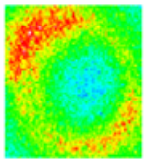
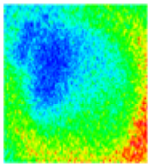
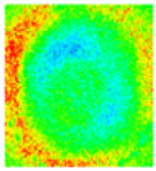
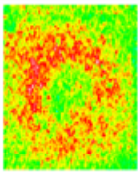
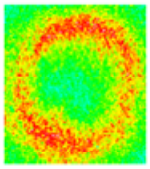
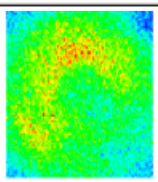
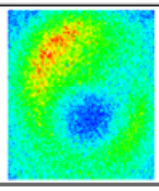
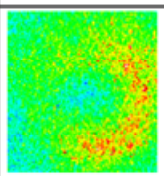
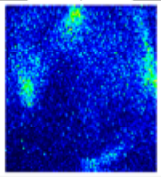
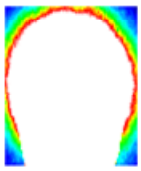
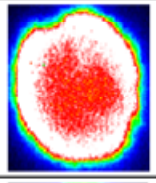
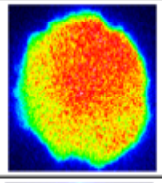
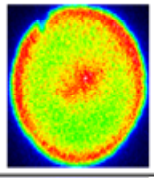
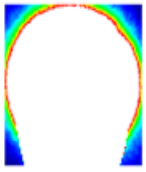
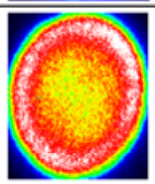
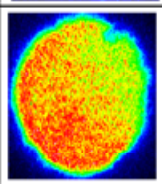
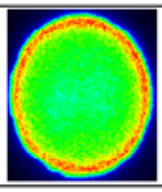
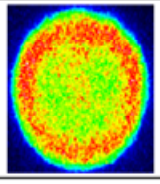
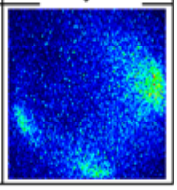
Position	Diamètre / Longueur	200 µm	300 µm	400 µm	500 µm	2 mm
Milieu du capillaire	1 cm					
	1.5 cm					1 coup ↓
	2cm					
Sortie du capillaire	1 cm					
	1.5 cm					1 coup ↓
	2cm					

Tableau 2. Tableau récapitulatif des résultats obtenus pour chacun des capillaires

Ces résultats sont en excellent accord avec ceux obtenus précédemment. Comme le montre la Figure 78, nous retrouvons en effet les différentes structures que peut adopter la décharge en fonction du diamètre interne du capillaire de confinement. Nous remarquons de nouveau que la structure tend à être homogène dès lors que l'on diminue le diamètre interne en deçà de 500 µm, qu'elle parait tubulaire pour des diamètres internes submillimétriques supérieurs à 500 µm puis filamentaire aux diamètres internes plus importants.

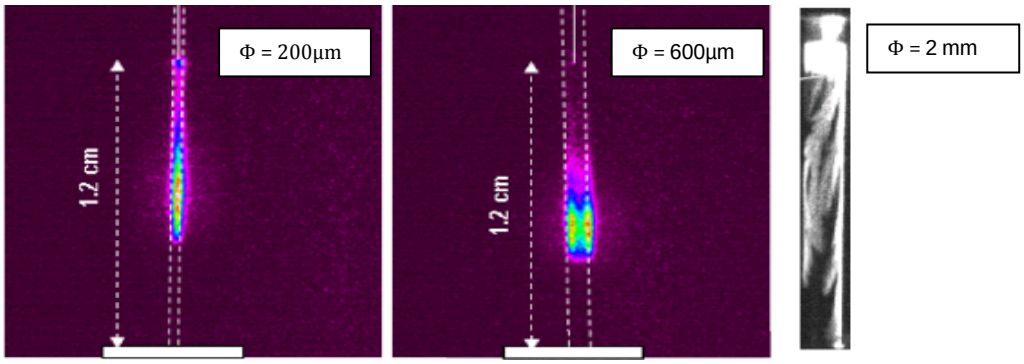


Figure 78. Rappel des structures observées précédemment en fonction du diamètre de confinement.

Une image obtenue à partir d'une unique décharge confinée par un capillaire de 500 µm de diamètre interne, présentée Figure 79, laisse même apparaître ce profil tubulaire de la propagation.

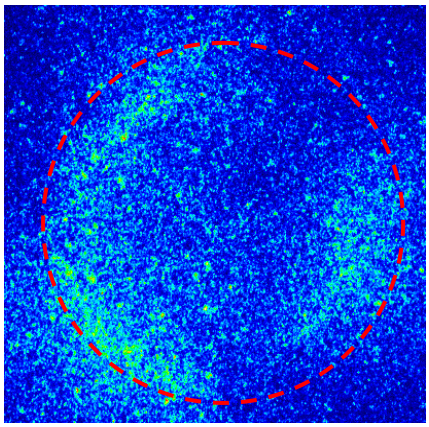


Figure 79. Photographie d'une unique décharge se propageant au sein d'un capillaire de 500 µm de diamètre focalisée sur son plan médian.

Ces résultats attestent du caractère prépondérant de la géométrie de confinement sur la structure de la décharge, et ce, indépendamment des paramètres électriques permettant de les générer. Ils confortent ainsi l'analyse précédente qui consiste à présenter l'équilibre entre les processus d'ionisation d'une part et les processus de recombinaisons aux parois de l'autre, auquel s'additionnent les effets de renforcement du champ électrique géométrique aux parois internes du capillaire, comme responsables de la structure de la propagation de la décharge.

2. Etude spectrométrique de la décharge confinée

Pour cette étude, nous avons utilisé une fibre optique permettant de capter la lumière générée par la décharge jusqu'au spectromètre. Le dispositif expérimental mis en place est décrit par le schéma de la Figure 80.

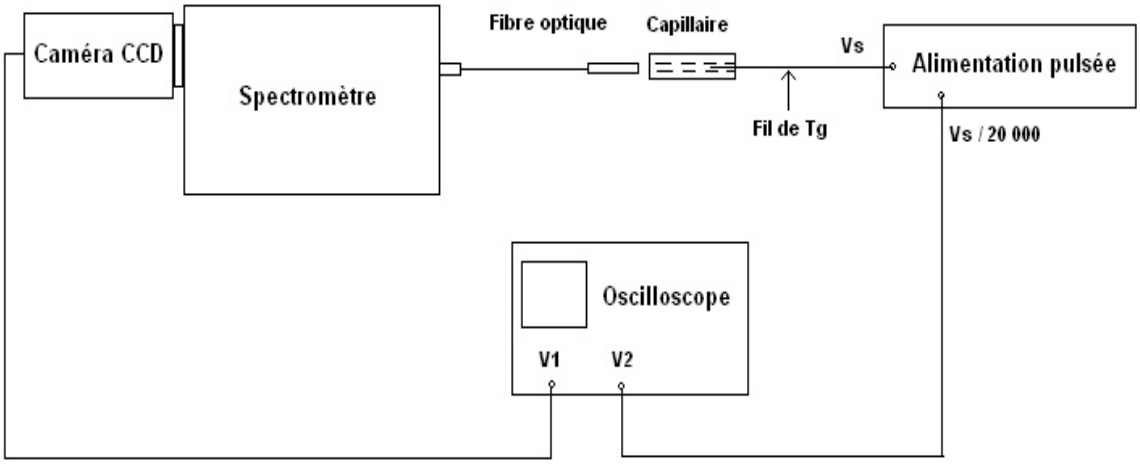


Figure 80. Montage expérimental relatif à l'étude spectrométrique.

La Figure 81 détaille le principe du spectromètre utilisé dans le cadre de cette expérience. Il s'agit d'un spectromètre Acton SP 2750 de Princeton Instrument disposant de 3 réseaux de 2400 traits/mm, 1200 tr/mm et 600 tr/mm respectivement. Pour effectuer les mesures, nous n'avons utilisé que le réseau le plus dispersif, à savoir le 2400 tr/mm, qui offre la plus grande précision sur les spectres obtenus.

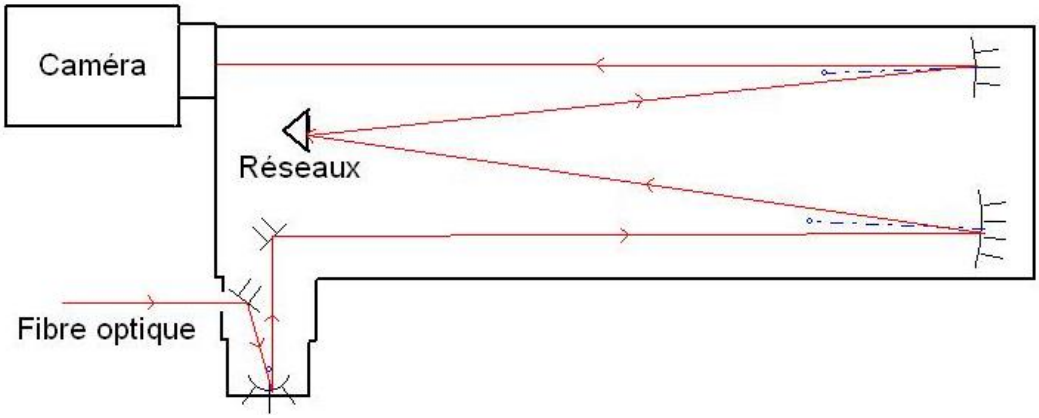


Figure 81. Principe du spectromètre utilisé.

La visualisation du système obtenue à partir du logiciel WinSpec permet l'alignement optique entre la caméra, le spectromètre, la fibre et le capillaire. Dans le cadre de ce travail, plus de 20 000 accumulations de décharges sont réalisées dans le but d'obtenir une bonne luminosité de la décharge tout en minimisant le bruit.

Le spectromètre est réglé de telle sorte à observer la dispersion sur des longueurs d'onde comprises entre 377 et 381 nm puisque qu'elles correspondent aux transitions les plus intenses du second système positif de l'azote ($C_3\Pi_u \rightarrow B_3\Pi_g$). Nous étudions principalement ces raies car ce système est principalement responsable de l'émission de la décharge dans l'air à pression atmosphérique.

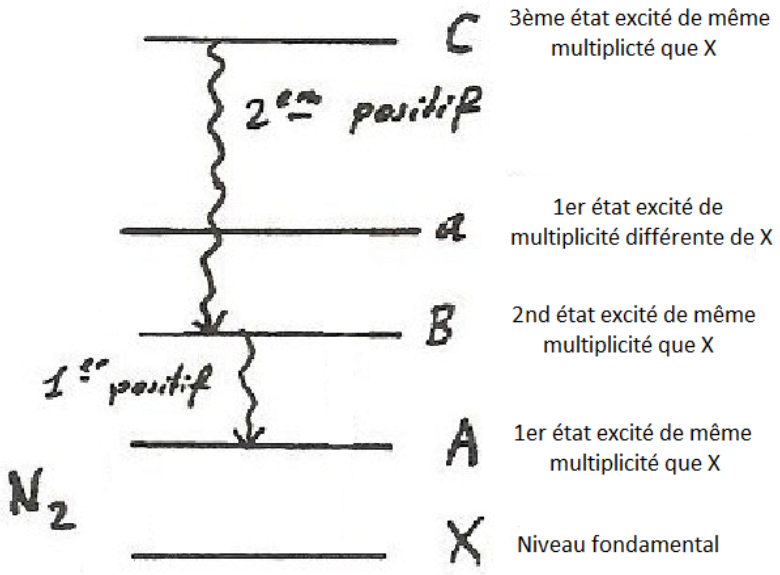


Figure 82. Premiers niveaux énergétiques du diazote.

Comme le montre la Figure 82, nous rappelons que sont dénommés 1er et 2nd systèmes positifs de N_2, les transitions électroniques entre les premiers niveaux excités de même multiplicité que son niveau fondamental. Pour le diazote, la durée de vie du niveau C est d'environ 37ns tandis que celle du niveau B est de 8,7µs. Par conséquent le second système positif est bien plus facilement observable que le premier, c'est pourquoi nous n'avons considéré que celui-ci lors de nos approximations.

Afin de comparer les spectres obtenus aux spectres théoriques, nous avons utilisé le logiciel Specair. Ce dernier permet à l'utilisateur de définir les températures électronique, rotationnelle, translationnelle et vibrationnelle correspondant chacune à des éléments distincts du plasma (dans notre cas nous avons mis 80% de N_2 et 20% de O_2). La température qui nous intéresse ici est la température des atomes neutres et des ions, soit la température rotationnelle. Chaque niveau électronique se divise en niveaux vibrationnels qui se subdivisent en niveaux rotationnels. Dans le cadre de plasma non thermique, les temps de relaxation des niveaux rotationnels sont infimes et dire que les températures rotationnelle et translationnelle sont identiques reste une approximation valide. La température rotationnelle correspond alors également à la température du gaz dans ce cas.

Un exemple de spectre expérimental obtenu est présenté Figure 83. Ce spectre est comparé au spectre théorique pour lequel nous jouons directement sur la température rotationnelle afin de s'en approcher le plus finement possible. Nous constatons dans le cas d'un confinement par emploi de capillaire de 500 µm de diamètre interne une bonne adéquation pour T_{rot} = 330 K.

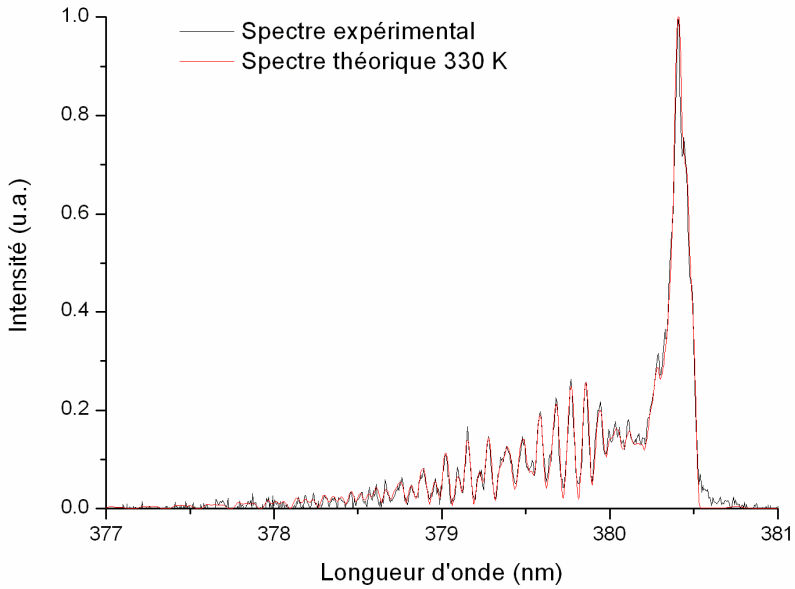


Figure 83. Comparaison entre spectre simulé et spectre expérimental pour le capillaire de 500 µm de diamètre.

Les plus petits pics correspondant aux niveaux d'énergies rotationnelles, ce sont ces profils que nous tentons d'approximer au mieux. Le pic le plus élevé est quant à lui significatif du niveau vibrationnel. Comme les températures électroniques et vibrationnelles nécessitent une étude sur tout le spectre, nous ne nous y intéresserons pas. Les résultats de l'étude spectroscopique d'émission sont résumés dans le graphique présenté Figure 84. Après avoir enregistré plusieurs spectres d'émission pour chaque capillaire, il en ressort une augmentation de la température du plasma avec la diminution du diamètre des capillaires, les barres d'erreur sur le graphique correspondant aux valeurs extrêmes obtenues dans chacun des cas étudiés. Cette observation semble logique dans la mesure où nous laissons moins d'espace aux molécules du gaz pour se déplacer, qui vont alors davantage collisionner entre elles, augmentant ainsi la température globale du plasma.

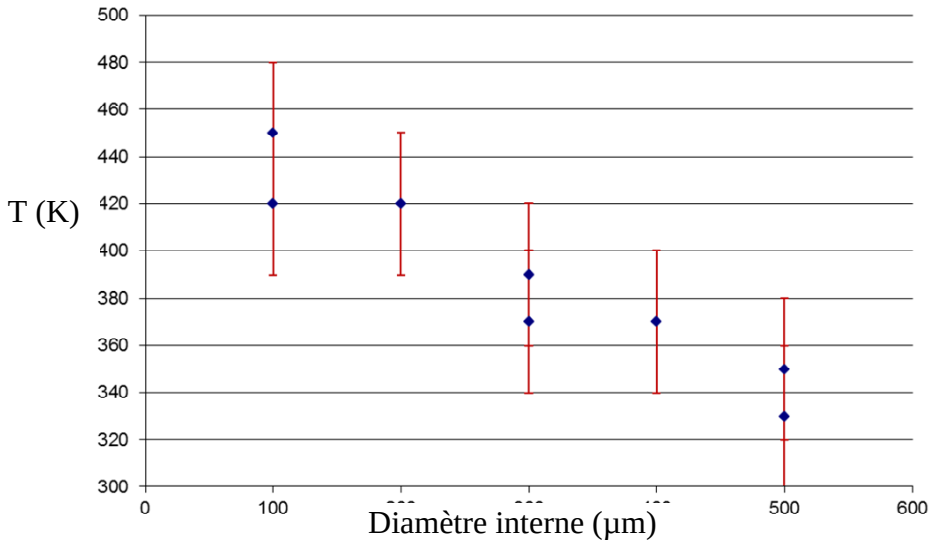


Figure 84. Evolution de la température rotationnelle du plasma (K) en fonction du diamètre interne des capillaires (µm).

Néanmoins, une variation de près de 120° entre un capillaire de 500 µm et un de 100 µm semble surprenante. Ce constat, difficilement transposable quantitativement à l'étude précédente du fait du changement de l'alimentation électrique utilisée, renseigne cependant qualitativement sur la relation entre température et diamètre de confinement.

La température du plasma peut être un facteur prépondérant sur la propagation de la décharge puisqu'elle va directement jouer sur les fréquences de collisions entre les électrons, les ions et les neutres, modifiant le coefficient d'ionisation, les coefficients de réactions, et donc toute la physicochimie de la décharge. En effet, le chauffage thermique induit par le confinement modifie directement le champ électrique réduit qui détermine le terme source d'ionisation et les coefficients de transport des espèces chargées à la fois dans le diélectrique et la phase gazeuse.

Dans le cas d'un capillaire de confinement de diamètre interne de 100 µm, cette augmentation de température du plasma au sein du capillaire va favoriser les processus d'ionisation dans tout le volume et diminuer les pertes aux parois. Elle pourrait donc être responsable de l'homogénéisation du plasma observé dans le cas de faibles diamètres internes des capillaires de confinement.

Par ailleurs, d'un point de vue applicatif, cette hausse de la température est susceptible d'accélérer et de rendre plus efficaces les cinétiques de conversion de certaines espèces [15,16]. En particulier, elle peut jouer un rôle prépondérant sur la cinétique de l'oxygène, permettant une amélioration des réactions de conversion et la diminution des sous produits issus de la réaction, augmentant ainsi la sélectivité. Généralement dépendant d'un dispositif de chauffage additionnel qui possède un coût énergétique non négligeable, une hausse de température du milieu par le simple effet du confinement pourrait permettre également d'activer davantage de sites catalytiques avec des délais d'activation plus courts.

Chapitre 4

Etude du confinement axial des décharges par la présence de membranes poreuses ou non

Ce chapitre est consacré à l'étude de la propagation de décharges nanosecondes contraintes perpendiculairement, pour laquelle un nouveau réacteur ainsi qu'une nouvelle approche expérimentale, tous deux décrits dans le chapitre2 section D paragraphe 2, ont été nécessaires.

Dans cette nouvelle configuration illustrée Figure 85 , seront explicitées dans un premier temps la mise en corrélation des diagnostics électriques et optiques puis les caractéristiques des décharges obtenues sans contraintes. Pour cela, la tension appliquée, dont la gamme accessible est doublée sous l'effet de la désadaptation volontaire de la ligne de transmission, reste l'un des principaux paramètres d'étude.

Les modifications induites par la présence d'une membrane diélectrique seront ensuite analysées. Pour réaliser une étude paramétrique approfondie, des membranes en matériaux isolants présentant des permittivités diélectriques et des épaisseurs différentes sont disposées perpendiculairement à l'axe pointe/plan à différentes positions dans l'espace inter-électrodes. La porosité de certaines membranes, et plus particulièrement le diamètre moyen de leurs pores, sera également un paramètre important de l'étude. Les influences de ces différents paramètres sur la morphologie et sur la vitesse de propagation des décharges seront présentées et discutées, le point déterminant étant d'identifier les paramètres critiques autorisant les décharges à continuer leur propagation au-delà des membranes poreuses ou non, soit en les traversant directement, soit en se ré-allumant de l'autre côté.

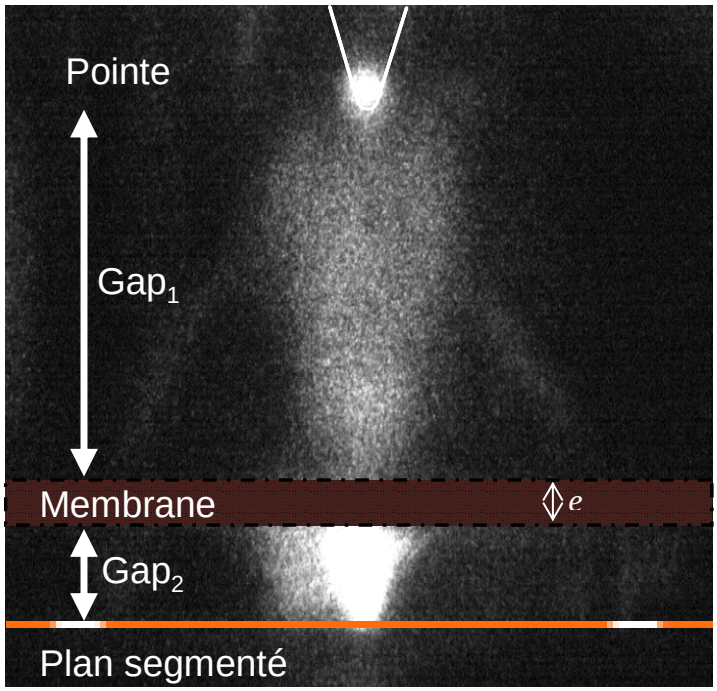


Figure 85. Propagation dans l'ensemble du gap inter-électrodes d'une décharge axialement confinée par une membrane diélectrique non poreuse
U =30kV, ε_r=2.3, e=175µm

A. Phénoménologie de la décharge axialement confinée : corrélation des diagnostics

Dans le cadre de cette étude, nous rappelons que l'anode utilisée est une pointe de tungstène d'environ 50 µm de rayon de courbure et que la cathode est un plan divisé en trois pistes concentriques de même aire. Cette segmentation a pour objectif d'identifier et de différencier les parties constituantes de la décharge en fonction de leur distance radiale par rapport à l'axe pointe/plan. Ces pistes conductrices sont reliées à la masse via des résistances de 50 Ω qui permettent la visualisation des courants à l'oscilloscope. La distance inter-électrodes est fixée à 1 cm. Comme illustré à la Figure 86, une fine membrane, poreuse ou non, est disposée perpendiculairement à l'axe pointe/plan grâce à un support de plexiglas dont la position est déterminée par la coordonnée z de sa face supérieure, où l'on vient positionner la membrane. Trois positions de support ont été ainsi étudiées, correspondant à trois distances pointe/membrane de 3 mm, 5 mm et 7,5 mm. Un anneau de constriction en Plexiglas de diamètre 1 cm peut être ajouté au support afin de s'assurer du confinement de la décharge avant d'atteindre la membrane et d'éviter son contournement.

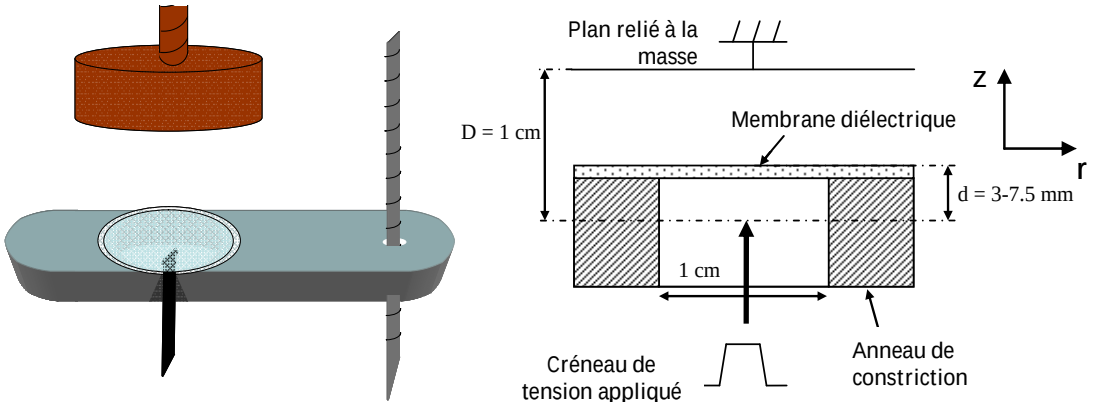


Figure 86. Schémas 3D (gauche) et 2D (droite) du montage dédié à l'étude du confinement longitudinal des décharges.

La corrélation réalisée entre les diagnostics optiques et les mesures électriques permet encore une fois de révéler la dynamique de la décharge axialement confinée. En s'assurant de la bonne synchronisation des caméras, nous avons en effet pu observer les différentes étapes de propagation pendant l'impulsion haute tension. Malgré la technique de séparation des courants par segmentation de la cathode, les forts couplages capacitifs qui sont apparus sur les signaux électriques n'ont pas permis l'usage unique de cette technique électrique pour la détermination de vitesses de propagation pendant les différentes étapes. Afin d'interpréter les différents signaux électriques, il a donc fallu systématiquement les corréler avec les diagnostics optiques. La comparaison des signaux acquis avec ceux obtenus dans le cas où aucune décharge ne se propage dans l'espace inter-électrodes permet toutefois de comprendre les contributions respectives des différentes phases de propagation d'une décharge aux

signaux de courants mesurés. Cette corrélation réalisée, nous pouvons dès lors théoriquement nous affranchir des acquisitions optiques de la décharge.

La Figure 87 est un exemple type de signaux obtenus dans le cas où aucune décharge ne se propage dans l'espace inter-électrodes, typiquement à très faible tension. Trois signaux de courants sont obtenus à partir des mesures de courant relatives à chacune des pistes du plan. Les trois signaux obtenus possèdent des profils évidemment similaires que l'on peut décomposer en deux contributions distinctes. Nous observons en effet les parties capacitives du courant, cerclées de vert sur le graphique, ainsi qu'une petite contribution liée aux perturbations électromagnétiques inhérentes à notre expérience, cerclée de noir. Ces signaux seront des témoins de l'analyse de corrélation des diagnostics utilisés. Le signal en noir représente le courant collecté par la piste 1 qui est la piste centrale du plan. Les signaux en rouge et en bleu sont les courants relatifs aux pistes 2 et 3 respectivement, la dernière étant la piste la plus éloignée de l'axe pointe/plan.

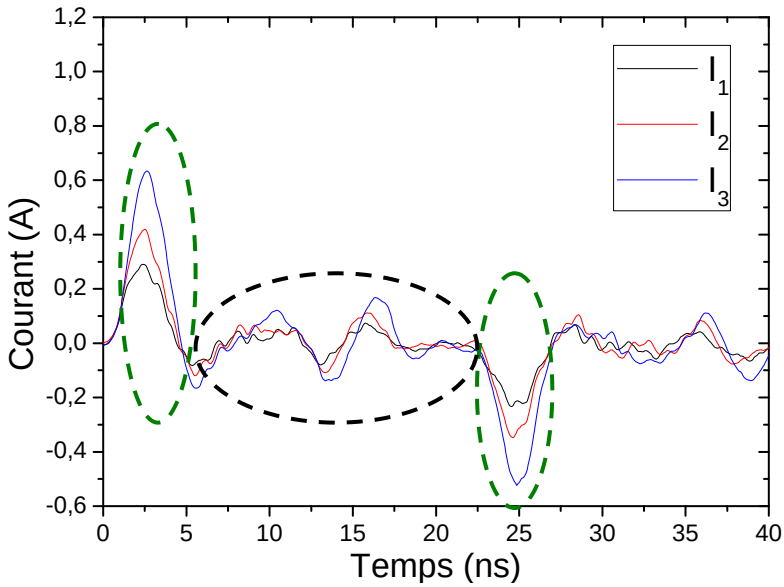


Figure 87. Signaux de courant types obtenus sans aucune propagation de décharge

L'utilisation séquentielle des caméras sur l'ensemble de la durée de l'impulsion de tension montre que les décharges axialement confinées se propagent par étapes quelle que soit la position de la membrane au sein de l'espace inter-électrodes. Ces étapes peuvent être identifiées comme suit :

- **La propagation pointe/membrane :** la décharge générée à la pointe se propage dans l'espace pointe/membrane, en direction de la membrane, sous l'effet du champ laplacien.

- **L'étalement de la décharge au voisinage de la membrane :** la décharge, après avoir atteint la membrane, se propage radialement au voisinage de sa surface.

- **La propagation membrane/plan :** sous certaines conditions que l'on décrira par la suite, la décharge peut se propager enfin dans l'espace membrane/plan jusqu'à atteindre ce dernier.

Nous verrons que ces étapes de propagation seront continues ou discontinues en fonction du critère poreux ou non des membranes de confinement utilisées.

1. La propagation de la pointe vers la membrane

Conformément à l'étude précédente, la décharge se développe de manière diffuse au cours du front de montée du créneau de tension appliquée. Si ce développement diffus peut être maintenu jusqu'à la membrane, en particulier à haute tension ou pour une faible distance pointe/membrane, il semble évident que pour des distances pointe-membrane de 5 mm ou 7.5 mm ou pour les plus faibles tensions, la décharge peut transiter de sa forme diffuse à une structure plus classique de streamers avant d'atteindre la membrane. Ainsi, selon la configuration utilisée, le nombre de points d'impacts d'une décharge sur la membrane peut fortement varier et ainsi influer sur l'analyse de la deuxième de propagation au voisinage de la membrane.

A l'aide des diagnostics de courant, nous pouvons identifier la propagation de la décharge ou du moins de son streamer principal. En effet, sur la gamme de tension considérée et pour des fronts de montée rapides (jusqu'à 16 kV/ns), nous nous assurons que le développement de la décharge débute toujours au cours de la montée en tension. Ceci ayant été confirmé par nos diagnostics optiques, l'approche statistique qui consiste à approximer l'initiation de la décharge à une nanoseconde après le début de l'application de la tension à la pointe reste donc valide :

$$\boxed{t_1 = t_0 + 1\text{ns}}$$

Par ailleurs, nous remarquons qu'en présence d'une décharge atteignant la membrane et en comparant les signaux de courant obtenus à ceux obtenus en l'absence totale de décharge, un second pic proche de la composante capacitive positive apparaît. Cela est illustré à la Figure 88, où les diagnostics optiques confirment que le pic de courant mesuré est bien révélateur de l'arrivée de la décharge sur la membrane et correspond une brusque modification de la répartition des charges dans l'espace inter-électrodes.

Le calcul de la vitesse de propagation lors de la première phase est donc réalisable via la lecture des courants et s'exprime selon la formule suivante :

$$\boxed{V_1 = \frac{(t_2 - t_1)}{gap_{anode\ /\ membrane}}}$$

où t_1 correspond à l'instant statistique de l'initiation de la décharge et t_2 à l'instant d'arrivée de la décharge à la membrane.

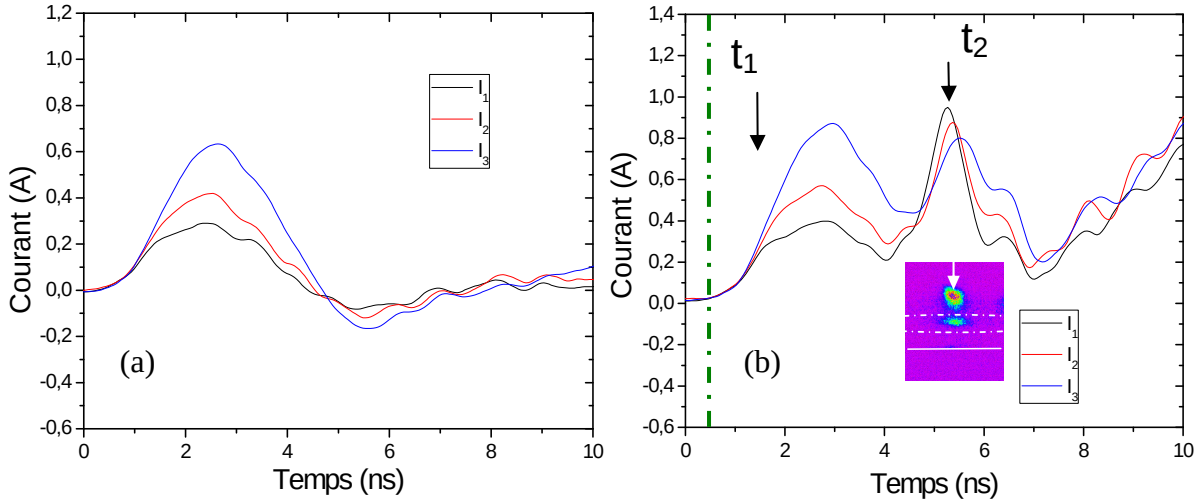


Figure 88. Comparaison des signaux obtenus dans le cas sans décharge (a) et dans le cas d'une décharge se propageant jusqu'au diélectrique d'1 mm d'épaisseur à 25 kV (b).

Dans la suite du chapitre, l'influence de la nature du diélectrique, de son épaisseur et de sa position au sein du gap, sur cette première étape de propagation sera discutée en fonction de la tension appliquée. L'ensemble des résultats qui seront présentés sera donc issu du calcul de vitesse de propagation par mesure des courants. L'opacité générée à la fois par le support mais surtout par la présence de l'anneau de constriction empêche l'utilisation des diagnostics optiques pour l'analyse de cette première étape. Nous sommes ainsi privés du visuel gap pointe/membrane qui renseignerait pourtant sur la structure adoptée par la décharge avant l'impact sur la membrane, déterminante pour le calcul des vitesses d'étalement radial lors de la seconde étape de propagation.

2. La propagation radiale au voisinage de la membrane

Après l'impact sur la membrane diélectrique, nous observons une redistribution de la décharge en plusieurs streamers se propageant radialement en surface de la membrane et ce, dans toutes les directions à partir du point d'impact. Dans le cas de matériau non poreux, cet étalement en surface est précédé d'un temps de latence juste après l'instant d'impact. Ce délai pourrait correspondre au temps nécessaire pour redistribuer le potentiel électrique dans l'ensemble du gap, autorisant la propagation radiale de la décharge. Ce phénomène est clairement observé par les caméras et peut être corrélé au retour à zéro de chacun des signaux de courant, comme le montre la Figure 89. Les charges se réorganisant au niveau de la membrane, le champ entre la pointe et la membrane est petit à petit écranté, et la décharge entre la pointe et le plan s'éteint presque. Conformément aux travaux de R.S. Nema et al. [1], la composante du champ axial diminue alors en faveur de sa composante radiale, et la seule source d'électrons disponibles devient alors les électrons présents au voisinage de la surface du diélectrique. La décharge se divise donc à partir du point d'impact en plusieurs streamers qui se propagent radialement dans toutes les directions du plan.

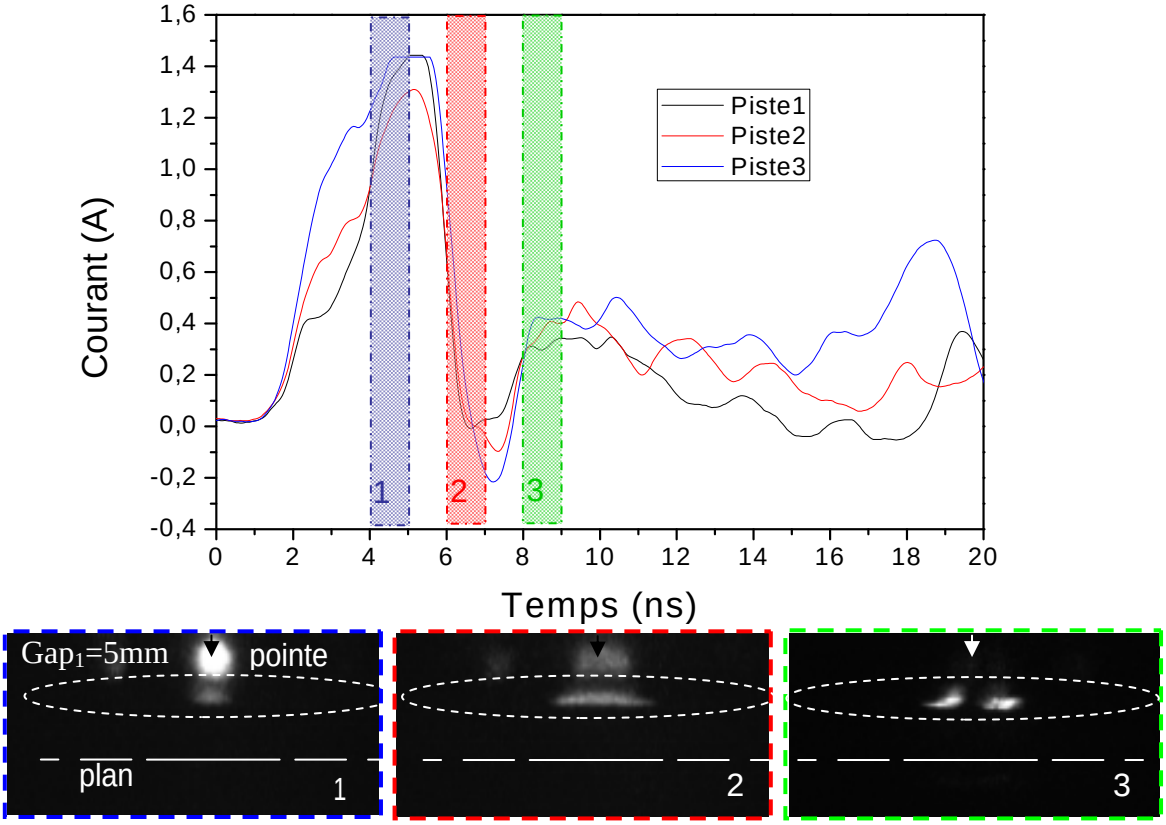


Figure 89. Dynamique des premiers instants de la propagation radiale de la décharge au voisinage de la membrane

1. Contact au niveau de la membrane
2. Extinction de la décharge entre la pointe et le diélectrique
3. Apparition de fronts lumineux se propageant au voisinage de la surface

Les courants renseignent là encore sur cette propagation radiale. En effet, la réorganisation des charges au niveau du plan induite par la propagation de la décharge au niveau de la membrane fait que chronologiquement, nous pouvons identifier des maxima de courant sur la piste 1, puis 2, puis 3, comme le montre la Figure 90. Ces maxima peuvent être identifiés comme étant les instants respectifs où les fronts d'ionisation sur la membrane se situent strictement à la même coordonnée radiale que les pistes concernées.

La détermination par les courants de ces vitesses $V_{radiale}$ demeure cependant très fastidieuse. Les difficultés ne sont pas liées à la méthodologie mais sont essentiellement physiques, et résident notamment dans la structure de la décharge juste avant l'impact. Dans le cas où la décharge est diffuse jusqu'à atteindre la membrane, les points d'impacts seront réduits et V_{rad} pourra se calculer relativement facilement par les courants. Si ce n'est pas le cas et que la décharge filamente en plusieurs streamers avant d'atteindre la membrane, la mesure est rendue difficile par la distribution complexe des charges sur l'ensemble des points d'impact. Le cas idéal d'un unique point d'impact n'est pas nécessairement plus trivial dans le cas où celui-ci ne se situe pas sur l'axe pointe/plan. Un point d'impact décalé par rapport au centre présenterait une dissymétrie par rapport au système de mesure qu'il ne serait pas facile d'analyser.

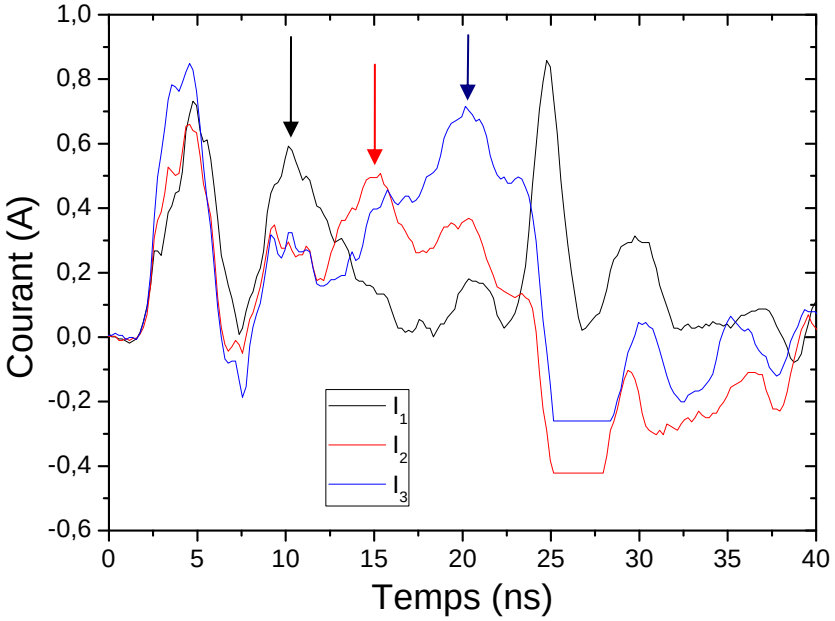


Figure 90. Signaux obtenus témoins d'une propagation radiale sur un diélectrique.
ε_r=2.2 ; e=170µm U=32.5 kV ; gap$_1$=5mm.

Pour ces raisons, il fut délicat de réaliser des mesures uniquement à partir des signaux de courant et les diagnostics optiques seront systématiquement couplés aux mesures électriques pour caractériser parfaitement cette deuxième phase de propagation. Si l'anneau de constriction rend opaque l'ensemble de la propagation pointe/membrane, il laisse néanmoins visible 1 mm en deçà de la membrane, permettant l'observation de l'étalement radial.

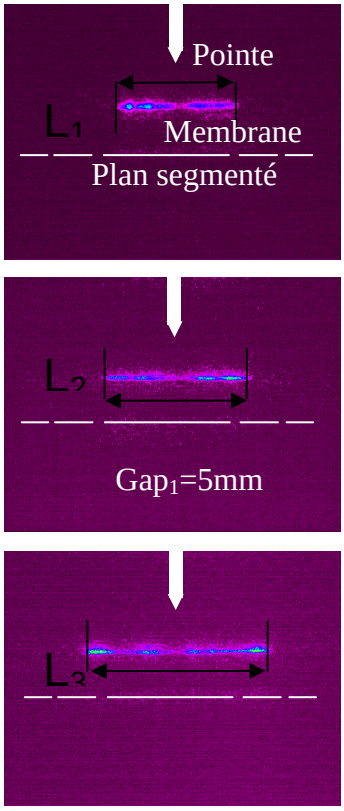


Figure 91. Rappel de la méthodologie de calcul de vitesse radiale des décharges.

Les positions successives des fronts de décharge au voisinage de la membrane ont donc été déterminées et les vitesses de propagation calculées selon la méthodologie présentée au chapitre 2 et rappelée brièvement Figure 91.

Cette méthode optique présente toutefois quelques contraintes à prendre également en considération. Il faut en premier lieu prendre en compte la profondeur de champ réduite des caméras qui engendre des flous optiques dès lors que l'étalement est conséquent. Ce problème peut être contourné en tenant compte uniquement des premiers moments de la propagation radiale lors du calcul des vitesses. Inversement, il faut s'affranchir de l'instant de latence de la décharge lié à l'écrantage progressif du champ pointe/membrane, qui pourrait minimiser les valeurs des vitesses. Dans le cas de membranes poreuses, ce temps de latence n'existe pas et, en même temps qu'elle s'étale en surface de la membrane, la décharge continue sa propagation au travers des pores du matériau pour atteindre le plan. Si les vitesses d'étalement radial n'ont pas pu être mesurées, des valeurs d'étalement maximal de la décharge pourront être obtenues et discuté en fonction de la porosité de la membrane.

3. La propagation de la membrane vers le plan

Lorsque la décharge rencontre la membrane, elle s'étale donc dans toutes les directions radiales au voisinage de sa surface. Dans certaines conditions que nous avons tenté de mettre en évidence au cours de l'étude, la décharge va également se propager au-delà de la membrane pour arriver jusqu'au plan.

Nous pourrons distinguer deux cas physiques différents représentatifs de cette troisième et ultime étape de propagation, dépendant du critère poreux ou non de la membrane :

- Dans le cas poreux, nous verrons que la décharge passe à travers les pores du matériau dont les effets de taille moyenne seront discutés. La décharge se propage alors de manière continue et ne semble pas marquer d'arrêt au moment de l'impact.

- Dans le cas où la membrane est non poreuse, la propagation devient discontinue. Nous parlerons de « ré-allumage » de la décharge, car celle-ci semble partir de l'autre côté de la membrane.

Certains cas de ré-allumage sont relativement faciles à identifier par le relevé des courants. Ainsi, lorsque de nombreux ré-allumages se produisent de manière simultanée sur une même piste du plan, le courant lu sur la piste impactée sature instantanément, induisant des courants négatifs sur les deux autres pistes. Comme illustré à la Figure 92, la saturation du signal renseigne sur l'instant où la décharge arrive au plan. Cependant, comme il est impossible de connaître le moment précis de l'initiation de ce ré-allumage, aucune mesure de vitesse de propagation de ce phénomène n'est possible. Nous comparerons donc uniquement dans ce cas les délais d'arrivée au plan de la décharge.

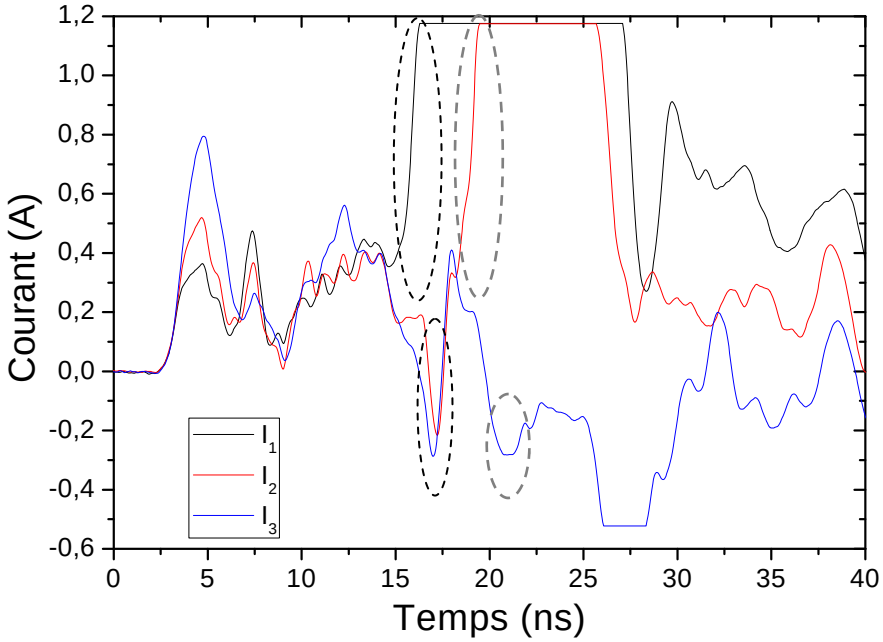


Figure 92. Saturations des signaux caractéristiques d'arrivées sur la piste concernée de la décharge et pics négatifs correspondants.

D'autres situations restent au contraire très problématiques à identifier. L'une d'elle correspond au cas où plusieurs ré-allumages arrivent simultanément en faible nombre sur différentes pistes, engendrant une compensation générale des courants et rendant ainsi invisible l'effet d'un ré-allumage sur les signaux.

4. Corrélation courants / images sur un cas test

Un autre cas correspond aux signaux et aux images reportés sur le graphique de la Figure 93 où il peut n'y avoir qu'un seul et unique ré-allumage dont la faible contribution en amplitude ne permet pas de l'isoler facilement de l'ensemble du signal de courant et du bruit résiduel. En effet, pour tous les signaux de courants mesurés et de manière très reproductible, nous retrouvons toujours deux signaux parasites, l'un entre 22 et 25 ns, et l'autre entre 25 et 27 ns. Malgré les efforts de minimisation de ces parasites, nous n'avons pas pu totalement nous en affranchir. Ces signaux peuvent malheureusement masquer la contribution d'un ré-allumage unique aux signaux de courant et la résolution temporelle fine obtenue par les images devient alors indispensable. Ainsi, l'image 4 présente un ré-allumage unique dans le second gap d'air qui arrive sur la piste 2 du plan (effet de projection 2D). Au même moment, le courant collecté par cette piste devient manifestement plus élevé que le signal perçu par la piste 3 qui, jusqu'à 25 ns, était encore le plus fort. Cela témoigne bien d'un appel de charges sur la piste 2, en lien avec l'arrivée d'un ré-allumage.

D'une manière générale, les positions et le nombre de ré-allumages sont stochastiques et leur présence reste très difficile à identifier uniquement à partir des profils de courants. Le couplage entre imagerie et mesures électriques reste encore une fois indispensable à l'étude. Il est important de souligner que ces situations de ré-allumage unique correspondent à des décharges très peu lumineuses et générant de très faibles courants. Les résultats de simulation montrent également que le champ

électrique associé à la propagation d'un front d'ionisation dans l'intervalle membrane/plan reste relativement faible devant les champs caractéristiques de streamer [2].

L'exemple présenté à la Figure 93 illustre parfaitement la complémentarité entre mesures électriques et acquisitions optiques, et renseigne sur l'ensemble de la phénoménologie observée au cours de la propagation des décharges confinées axialement.

Nous pouvons identifier de manière chronologique les différentes étapes de propagation d'une décharge ainsi que les différentes composantes des signaux de courant associées :

- Les contributions du courant capacitif, encadrées de vert.
- L'arrivée de la décharge à la membrane identifiée par le pic de courant de l'encadré rouge (étape 1).
- L'écrantage du champ axial par charge de la membrane et l'extinction rapide de la décharge dans l'espace pointe/membrane. Cet écrantage coïncide avec un délai de propagation au voisinage de la membrane et la chute des courants électriques identifiée par l'encadré bleu (étape 2). Ce temps de latence semble correspondre au temps nécessaire pour charger localement le diélectrique et renforcer la composante radiale du champ assurant une propagation en surface [3,4]
- La propagation radiale de la décharge au niveau de la surface de la membrane. A cet étalement radial de la décharge correspond trois maxima distincts de courant sur chacune des pistes qui renseignent sur le passage de la décharge à l'aplomb de celles-ci (étape 3).
- Un ré-allumage possible de l'autre côté de la membrane qui se traduit par un pic positif sur la piste sur laquelle la décharge frappe le plan et deux pics négatifs sur les deux autres (étape 4).

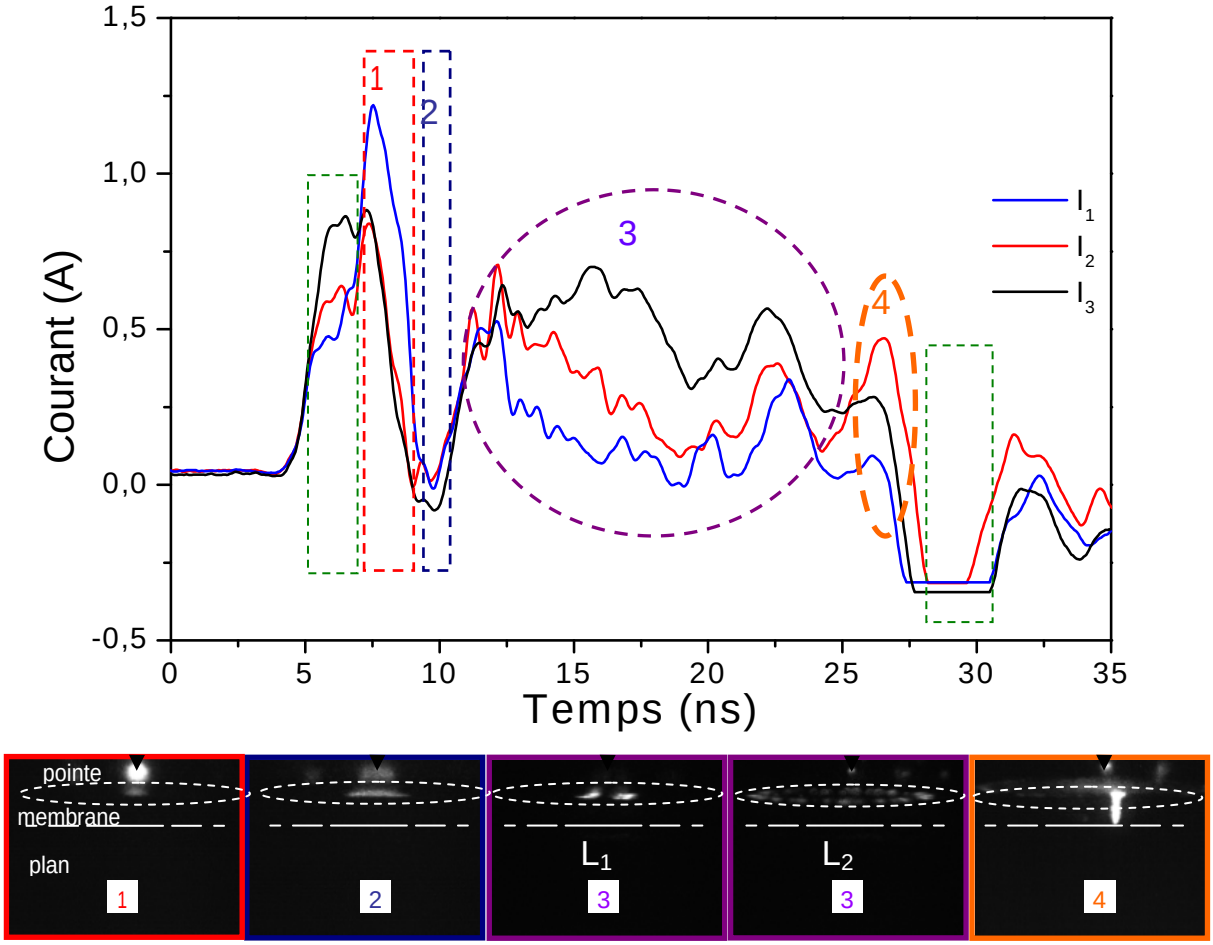


Figure 93. Corrélation type entre signaux obtenus dans le cas d'un unique ré-allumage et acquisitions optiques de la décharge.

B. La décharge sans contrainte

Le changement de réacteur imposé par l'étude du confinement axial nécessite de caractériser une nouvelle fois la décharge sans contrainte. En particulier, la désadaptation en impédance des lignes de transmission, l'utilisation d'une autre géométrie de pointe haute tension et surtout la présence d'un support et d'un anneau de constriction en plexiglas sont autant de raisons suffisantes pour valider l'intérêt de cette étude. Un exemple de décharge sans contrainte, et sans support avec la nouvelle configuration de réacteur est donné en Figure 94.

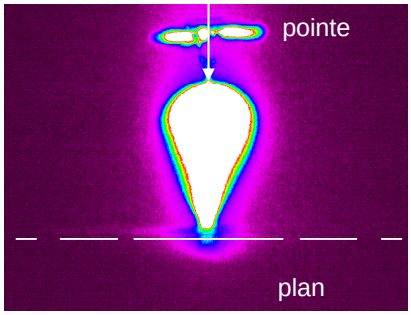


Figure 94. Décharge type sans contrainte en échelle de fausses couleurs
U = 25 kV ; Gap = 1cm ; image intégrée sur 3 ns

Cette section s'attachera donc en particulier à comprendre l'influence que peut avoir le support de membrane sur la décharge. Nous étudierons pour cela les caractéristiques de la décharge générée en l'absence complète de support, puis nous tenterons de comprendre les modifications induites selon sa position dans l'espace inter-électrodes notamment.

En l'absence de support, la vitesse de la décharge peut être déterminée en fonction de la tension appliquée, en distinguant la vitesse du streamer principal se propageant sur l'axe de celle du premier streamer secondaire frappant la piste 2, comme le montre la Figure 95. Ce graphique témoigne, comme dans le cas sans contrainte associé à l'étude du confinement radial des décharges, d'une relation exponentielle entre la vitesse de propagation du streamer principal et la tension appliquée à la pointe. L'utilisation du plan segmenté permet en outre de mettre en évidence une relation linéaire de la vitesse du premier streamer secondaire avec la tension. Ces résultats sont en accord avec [5]. Nous remarquons en outre que les décharges générées dans cette nouvelle configuration sont légèrement moins rapides que celles obtenues avec le réacteur précédent. Ces différences quantitatives peuvent s'expliquer par un effet de pointe moins important que celui induit par le filament de tungstène de 50 µm et par la modification de la capacité équivalente de l'espace inter-électrodes par le changement du plan de masse. D'un point de vue qualitatif, ce graphique renseigne également sur la structure adoptée par la décharge. En effet, nous observons, aux plus basses tensions, uniquement des relevés de vitesse de propagation pour le streamer principal. Cela traduit le fait que seul celui-ci est en mesure d'atteindre la cathode pour des tensions comprises entre 12 et 17 kV.

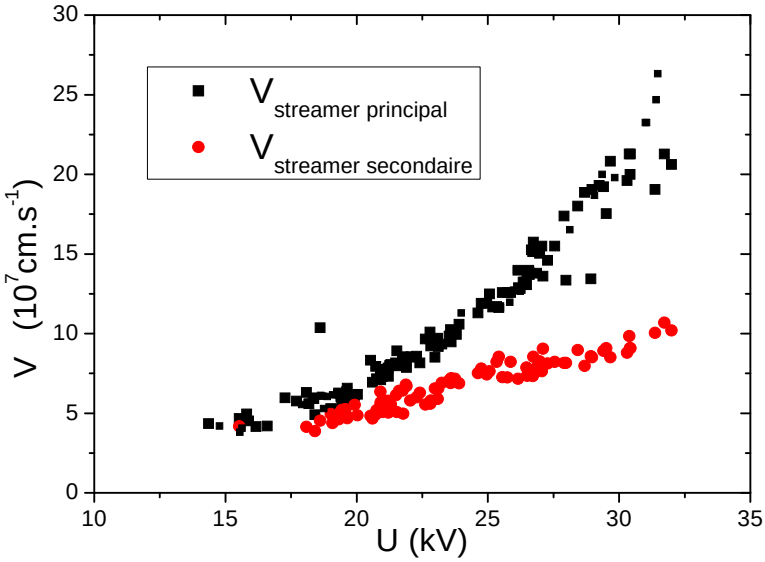


Figure 95. Vitesse de propagation de la décharge non confinée pour un gap de 1cm arrivant à la fois sur la piste centrale du plan et sa piste la plus proche

Entre 18 kV et 23 kV, nous remarquons la présence de nombreuses mesures de vitesse relatives à l'arrivée du premier streamer secondaire de la décharge. Ces mesures sont en nombre proches de celles réalisées sur le streamer principal. Cela illustre que, dans cette gamme de tensions, la décharge se propage dans l'espace inter-électrodes de manière filamentaire. A partir de 23 kV, nous notons enfin qu'il y a de moins en moins de points de mesure relatifs à la propagation d'un streamer secondaire au regard de ceux effectués sur le streamer principal. L'explication réside une nouvelle fois dans la strucutre que va adopter la décharge. Pour de telles tensions, la décharge privilégie en effet une structure diffuse, et se filamente de moins en moins en streamers secondaires. Ces comportements sont illustrés par les images de la Figure 96.

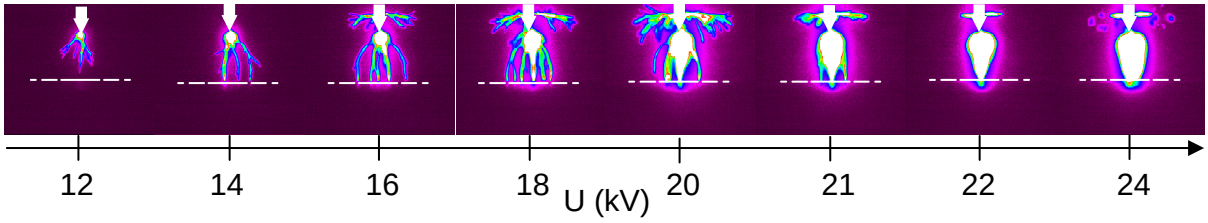


Figure 96 - Structures types de décharges sans contraintes en fonction de la tension appliquée à la pointe

Par ailleurs, nous remarquons bien sur cette figure que la décharge possède les mêmes dépendances structurales relatives à la tension appliquée que dans la configuration précédemment étudiée. Seules les valeurs en tension sont légèrement décalées vers le haut afin d'obtenir des profils identiques. En effet, pour toutes les décharges ainsi générées, nous observons une première étape de propagation où une boule plasma se développe dans toutes les directions de l'espace et ce d'autant plus loin que la tension appliquée est élevée. La Figure 97 montre qu'il existe une dépendance linéaire entre le rayon observé de cette boule plasma et l'amplitude de la tension appliquée. Aux plus hautes tensions, cette relation n'est plus vérifiée du fait que la décharge perçoit le plan trop rapidemment pour que la boule se développe suffisamment.

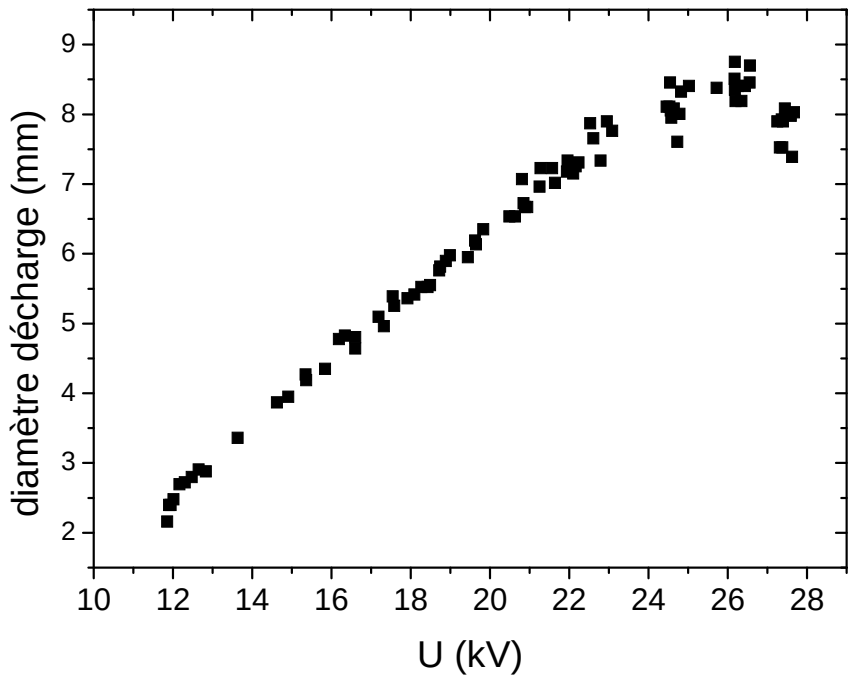


Figure 97. Diamètre de la « boule » plasma en fonction de la tension appliquée

Après le développement de cette boule, des streamers se forment pour atteindre le plan. Dès lors que l'on augmente la tension, ces streamers deviennent moins nombreux. Si elle devient suffisamment élevée, typiquement de l'ordre de 19 kV dans nos conditions, un cône se développe autour du streamer principal accompagné de rares filaments secondaires. Enfin, au-delà de 21 kV, ce cône se développe seul à partir de la boule pour atteindre le plan.

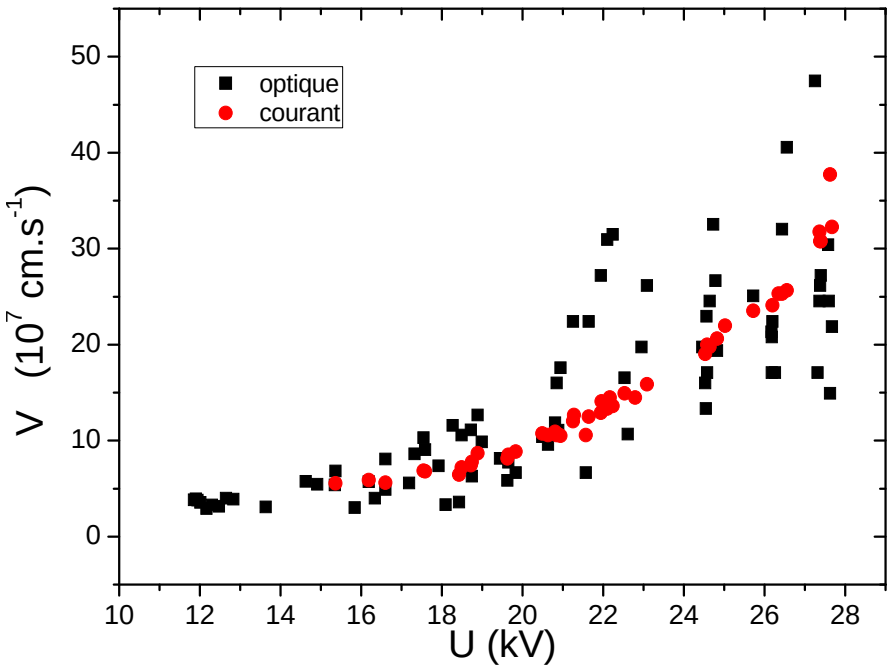


Figure 98. Comparaison des vitesses obtenues par les deux méthodologies dans le cas d'une décharge non confinée pour une distance inter-électrodes de 1 cm.

L'étude du cas sans contrainte permet également de vérifier le calcul des vitesses de propagation de la décharge. La Figure 98 compare les différentes valeurs de vitesses obtenues par le relevé des courants (points rouges) et par dérivation des positions des fronts de décharge observés par caméras. Nous notons alors l'excellente concordance des deux méthodes aux basses tensions. Aux hautes tensions, où de telles vitesses de propagation engendrent des erreurs plus importantes de mesure par méthode optique, nous remarquons néanmoins que les points obtenus par la lecture des courants moyennent ceux issus des diagnostics optiques. Ce bon accord permet ainsi de valider l'approche de calcul des vitesses de propagation au sein de l'espace inter-électrodes via la lecture des signaux de courants.

Une fois étudiée la décharge sans aucune contrainte, il reste maintenant à comprendre l'influence de la seule présence du support de membrane, placé à différentes positions z par rapport à la pointe, et de l'anneau de constriction dont le diamètre interne est fixé à 1 cm. Les résultats présentés par la suite tiennent compte de ces deux contraintes. Quelle que soit la position du support dans l'espace, la décharge est modifiée par sa simple présence. Le support joue en effet un rôle important sur la structure de la décharge, ce qui va directement influencer sa vitesse de propagation au sein du gap. La Figure 99 présente un cas de décharge filamentaire pour une tension appliquée de 23 kV, amplitude pour laquelle une décharge non contrainte apparaîtrait sous forme diffuse avec un profil conique.

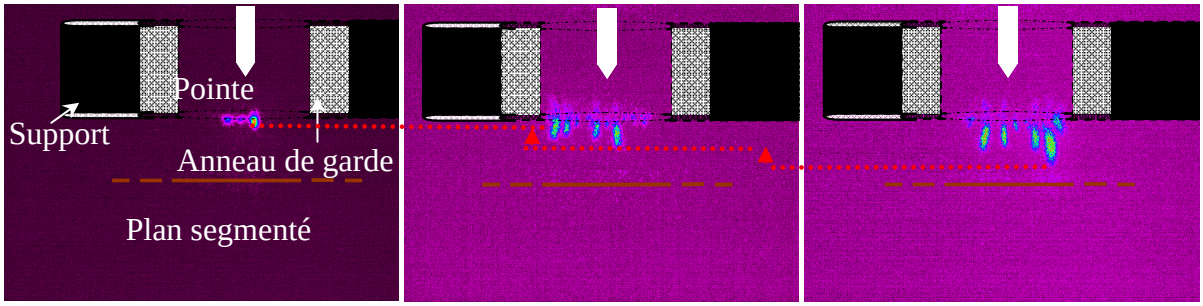


Figure 99. Structure de la décharge après le passage du support pour une décharge générée à 23kV

Sur l'image de gauche de cette figure est schématisée en gris la bague de confinement de 1cm de diamètre insérée dans le support de membrane représenté en blanc. Malgré le caractère opaque de la bague ne permettant de voir l'allure de la décharge qu'à sa sortie, il est possible de ne déterminer les vitesses des décharges que lorsqu'elles se situent entre le support et la contre-électrode. La Figure 100 présente ainsi un graphique dans lequel sont reportées les vitesses de propagation obtenues par les courants (en rouge) ou par les images (en noir). Afin de comprendre l'influence du support sur ces vitesses de propagation, nous y avons reporté en bleu la courbe du cas sans contrainte et sans support, obtenue par la méthode de mesure des courants. Il parait alors évident que le support suffit à ralentir la décharge. Les vitesses reportées sont divisées par 2 à 22 kV, jusque par 3 à 27 kV. En outre, nous remarquons que les données obtenues par la méthode des courants ne moyennent pas rigoureusement les mesures issues de la méthode optique. La différence semble plus notable dès lors que l'amplitude de la tension appliquée augmente. Cela n'est guère surprenant dans la mesure où les données issues de la détermination des vitesses de propagation par la méthode optique sont obtenues après le passage du support, où la proximité de la contre-électrode induit une augmentation de vitesse de la décharge. Cet effet est en

accord avec les déductions faites au chapitre 3 sur l'influence de la position du front de décharge au sein de l'espace inter-électrodes sur la vitesse de propagation.

Nous remarquons par ailleurs que les courbes obtenues sans contraintes et en présence du support deviennent distinctes dès que la tension appliquée devient supérieure à 20 kV environ. Cela correspond au fait que la décharge acquiert, dans le cas sans contrainte et pour de telles tensions, un aspect diffus tout au long de sa propagation. Pour des tensions inférieures, nous avons montré que la décharge sans contrainte est filamentaire.

Les effets du support sur la structure et la vitesse de propagation des décharges sont également confirmés par les résultats de la Figure 101, où nous avons reporté les vitesses déterminées par la méthode des courants dans le cas sans contrainte (en rouge), et pour trois positions z différentes du support par rapport à la pointe (3mm, 5mm et 7.5mm respectivement en bleu, violet et cyan). Des zones délimitées en pointillés rouge et bleu indiquent les plages de tensions pour lesquelles la structure de la décharge respectivement dans les cas sans contrainte et en présence du support, se voit modifiée. Ce graphique contient plusieurs informations. En premier lieu, il parait évident que le support, quelle que soit sa position au sein de l'espace inter-électrodes et quelle que soit la tension appliquée à la pointe, a pour effet de ralentir l'arrivée de la décharge au plan. Cet effet est d'autant plus important que la tension appliquée est importante. En second lieu, ce graphique révèle l'étroite corrélation entre les vitesses de propagation de la décharge reportées et la structure de celle-ci. En effet, les acquisitions optiques de la décharge réalisée en présence du support montrent que ce dernier contraint la décharge à adopter un profil filamentaire sur une gamme de tensions bien plus importante.

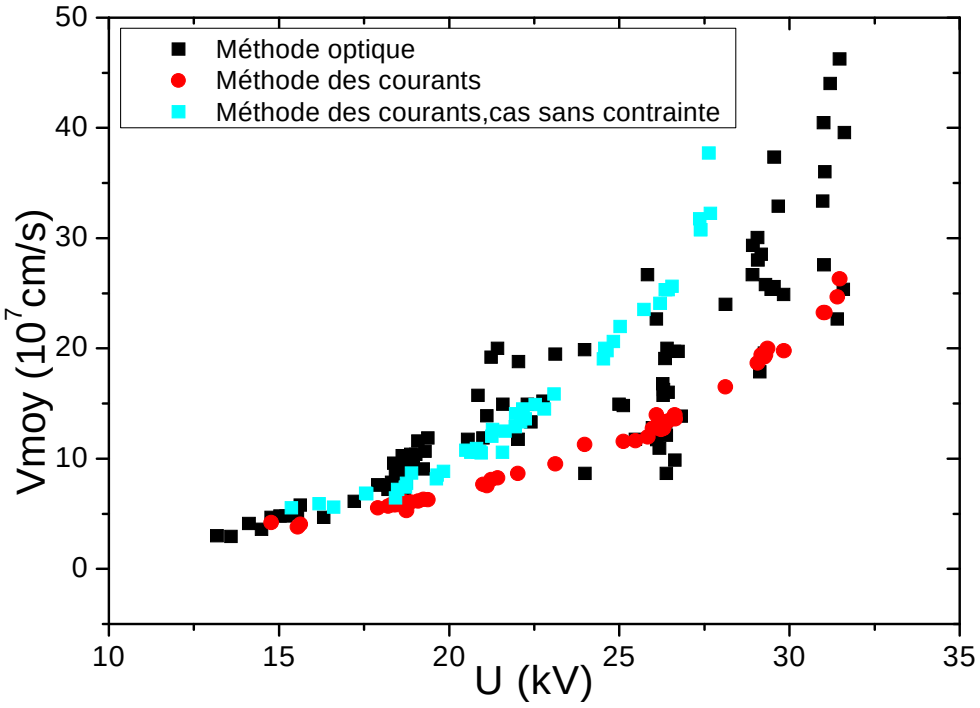


Figure 100. Influence de la présence du support sur les vitesses de propagation de la décharge.

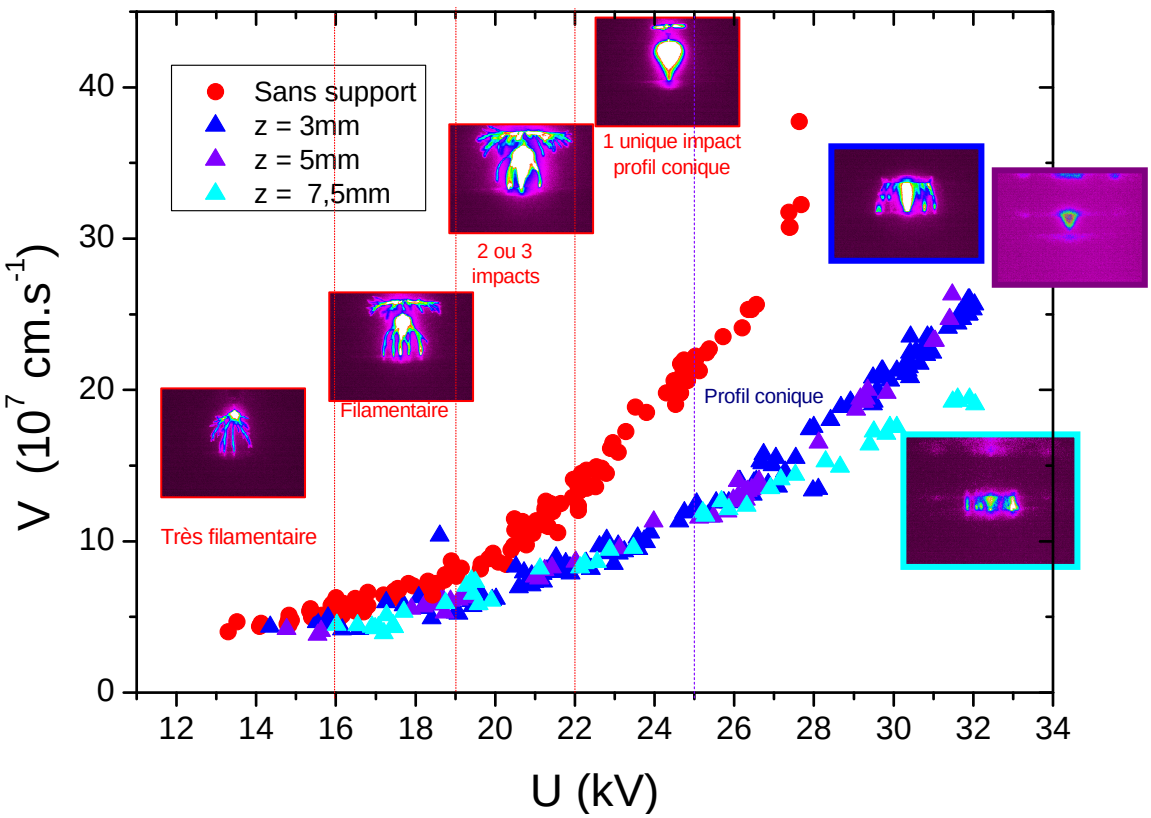


Figure 101. Influence de la position du support sur les vitesses de propagation et sur la structure de la décharge.

Nous notons qu'il faut typiquement 25 kV appliquée à la pointe pour que le profil conique de la décharge apparaisse au sein du gap en présence du support et ce quelle que soit sa position. Ce changement structural de la décharge correspond dans tous les cas à une rupture de pente de chacune des courbes. Si le changement est moins significatif en présence du support, cela est dû à l'interaction de la décharge avec celui-ci. Pour des tensions supérieures à 25 kV, nous avons vu que la boule plasma peut avoir un diamètre de près de 9 mm. Avec la présence du support qui renforce le champ au voisinage des parois, nous pouvons supposer que la décharge vient effectivement se coller en partie sur les surfaces internes de la bague de constriction pour s'y propager. Il en résulte un profil conique diffus au centre, dans l'axe pointe plan, et des streamers qui sont issus des décharges se propageant au voisinage des surfaces internes de la bague. La rupture de pente est donc moins perceptible du fait même que le changement structural est moins marqué en présence du support. La différence observée dans le cas où le support est disposé à 7.5 mm de la pointe s'explique également par le fait que le support est un facteur limitant la vitesse de propagation de la décharge. Moins la pointe est immergée au sein du support, plus la distance sur laquelle la décharge perçoit les effets de surface est importante et plus sa propagation sera ralentie.

C. Décharge contrainte axialement par la présence d'une membrane

1. Propagation d'une décharge axialement confinée par une membrane diélectrique non poreuse

Dans cette partie, nous allons nous consacrer à l'étude du confinement axial des décharges par introduction de membranes non poreuses dans l'espace inter-électrodes. Le nouveau réacteur expérimental élaboré au cours de ma thèse et présenté dans le chapitre 2, permet d'insérer une ou plusieurs membranes diélectriques perpendiculairement à l'axe pointe/plan. Les influences des paramètres électriques de la décharge ainsi que celles liées aux paramètres propres de la membrane (nature, épaisseur, constante diélectrique,...) sur la propagation de la décharge vont être étudiées et présentées.

a. Etude de l'influence de la position de la membrane

Les résultats présentés dans ce paragraphe sont consacrés à l'étude de l'influence de la position de la membrane dans l'espace inter-électrodes sur l'ensemble de la dynamique de la décharge depuis sa création à la pointe jusqu'à son arrivée au plan de masse. L'étude ayant été portée sur un large panel d'échantillons, seule une synthèse de l'ensemble des résultats obtenus sera présentée ici.

1) Influence de la position sur la propagation pointe/membrane

Pour cette première étape de la propagation, la décharge se déplace dans l'espace compris entre la pointe et la membrane, délimité par les surfaces internes de l'anneau de constriction. Nous rappelons que ce dernier rend impossible la visualisation du développement de la décharge au sein de ce volume et ne laisse optiquement accessible que la face inférieure de la membrane dirigée vers la pointe. Les résultats qui vont être présentés ici sont donc tous issus de la méthode de lecture des courants.

En premier lieu, la position de la membrane va influencer la vitesse de propagation de la décharge. En effet, comme illustré par la Figure 102, lorsque la distance entre la pointe et la membrane est augmentée, la vitesse de propagation de la décharge dans ce volume augmente considérablement. A tout autre paramètre constant, lorsque l'on modifie la position z de la membrane, la taille des gaps d'air varie et donc leurs capacités électriques varient également. En l'occurrence, l'espace membrane/plan de masse est comparable à un condensateur plan dont la capacité C est proportionnelle à la surface S commune et inversement proportionnelle à la distance e entre la membrane et le plan.

De manière générale, la capacité d'un diélectrique peut s'exprimer de la manière suivante :

$$C = \varepsilon_0 \varepsilon_r \frac{S}{e}$$

où ε_0 est la permittivité diélectrique du vide égale à 8,85.10^{-12} [F .m^{-1}], et ε_r la permittivité diélectrique du milieu.

Ainsi, si l'on diminue la distance entre la pointe et la membrane et que l'on augmente celle entre la membrane et le plan de masse, la capacité du gap pointe/ membrane augmente. Cela s'accompagne alors d'un accroissement global du champ Laplacien dans l'intervalle pointe/membrane. La position de la membrane au sein de l'espace inter-électrodes va ainsi déterminer le profil du champ électrique, comme cela a pu être montré au cours de la thèse de F. Pechereau [6]. C'est donc un paramètre influençant de manière importante l'ensemble des mécanismes de propagation de la décharge axialement confinée. On pourrait donc supposer que le rapprochement de la membrane diélectrique vers la pointe conduise à une propagation plus rapide sous l'effet d'un champ globalement plus intense. Pourtant, les résultats reportés Figure 102 montrent une tendance clairement inverse.

Une autre interprétation peut alors se faire en regard de la morphologie que la décharge peut prendre. En effet, dans la configuration sans membrane, nous avons montré dans la section B de ce chapitre que la décharge générée à la pointe se développe dans une première phase sous la forme sphérique d'une « boule » plasma qui, selon la tension et selon la distance pointe / plan, se transforme dans une seconde phase en de multiples filaments ou en cône. Des mesures montrent alors que la première phase est bien plus lente que la seconde. D'autre part, dans les cas où la membrane est placée respectivement à 3, 5 ou 7.5 mm de la pointe, alors la « boule » plasma intercepte la membrane pour une amplitude de tension supérieure à 13, 17 et 28 kV respectivement. Ainsi, à 25 kV, la vitesse mesurée sera évidemment bien plus faible si la membrane est placée à 5 mm de la pointe plutôt qu'à 7.5 mm. Enfin, la vitesse de développement isotrope de la « boule » plasma dépend faiblement de la tension appliquée contrairement à celle des filaments ou du cône dirigés vers le plan.

Nous pouvons ainsi voir apparaître pour chacune des trois positions étudiées des profils de vitesses similaires en fonction de la tension appliquée. On observe une forte dépendance avec la tension appliquée dès lors que la membrane n'intercepte pas la boule plasma, en deçà de 13 et 17 kV pour les deux plus petites positions. A l'inverse, lorsque la membrane intercepte cette boule, la vitesse de propagation pointe/membrane ne varie plus que très faiblement, marquant un point de rupture sur chacune des courbes.

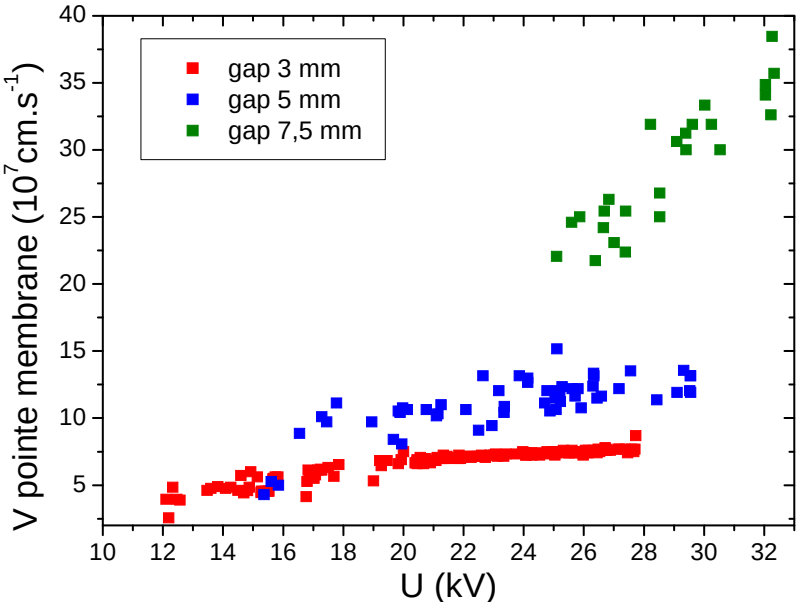


Figure 102. Influence de la distance pointe/membrane sur la propagation de la décharge de la pointe vers une membrane de 250 µm d'épaisseur.

2) Influence de la position sur la propagation radiale au voisinage de la membrane

D'après la méthodologie rappelée dans ce chapitre section A paragraphe 2, nous sommes en mesure de déterminer les vitesses de propagation radiale de la décharge au voisinage de la surface du diélectrique. A tous paramètres constants et au fur et à mesure que les fronts d'ionisation s'éloignent du point d'impact sur la membrane, la vitesse de propagation de ces derniers décroît rapidement. La Figure 103 illustre cet effet en mesurant la vitesse pour différents délais entre l'impact de la décharge sur la membrane et l'ouverture de la première caméra. La courbe noire montre bien que la vitesse V_{moy} de la décharge moyennée entre les acquisitions des trois caméras dépend de la position du front de décharge par rapport à l'axe pointe/plan. Sont également reportées les valeurs de la vitesse radiale instantanée V_1 entre la première et la seconde acquisition optique uniquement. Le ralentissement de la décharge est également observé lorsque les fronts de décharge s'éloignent du point d'impact, puisque la vitesse radiale chute de $1.4*10^8$cm.s^{-1} à $5.5*10^7$cm.s^{-1} lorsque la première acquisition est prise à 3 et 9 ns après l'impact respectivement. La courbe rouge indique cependant que 3 ns après l'instant de l'impact, la décharge se propage plus vite qu'une nanoseconde après. Ce résultat peut s'expliquer par le temps de latence de la propagation de la décharge après l'impact sur la membrane, du fait de la répartition du potentiel électrique au sein de l'espace inter-électrodes. Comme illustré précédemment par la Figure 93 notamment, ce temps oscille autour de 2 ns selon les paramètres mis en jeu. Il se peut ainsi que la première image acquise 1 ns après l'impact précède la propagation radiale de la décharge et sous-estime ainsi la vitesse radiale de la décharge à proximité du point d'impact. Afin de s'affranchir de ces phénomènes physiques qui fausseraient la mesure et de pouvoir faire une étude paramétrique précise, nous nous sommes assurés que le délai de la première acquisition après impact à partir de laquelle les vitesses radiales sont calculées, soit environ le même pour toutes les mesures réalisées, soit de 4 ns.

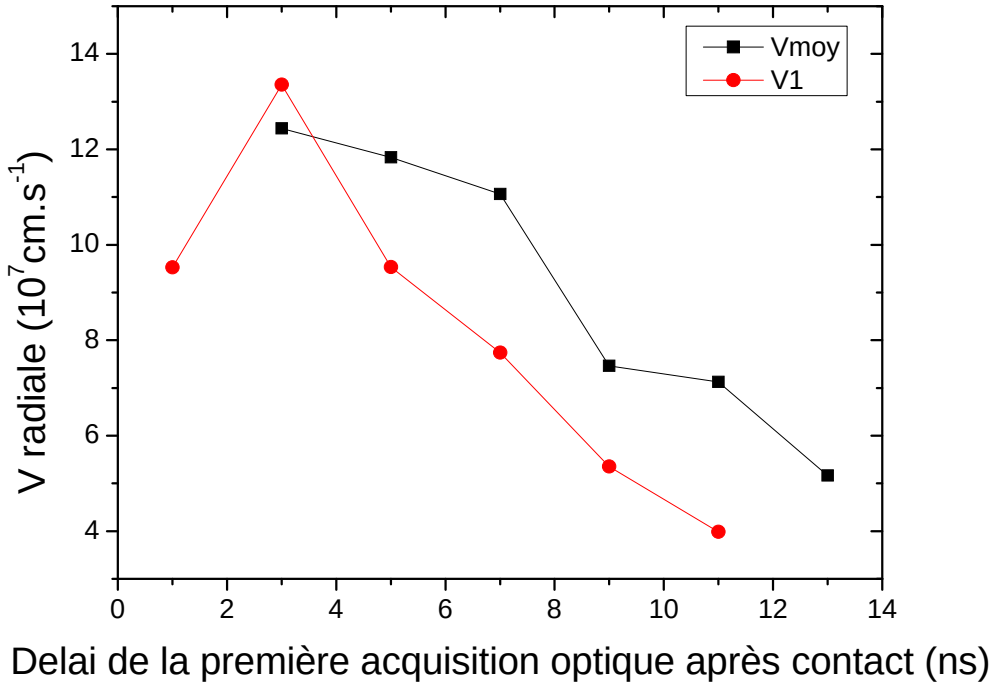


Figure 103. Vitesse radiale de la décharge en fonction du délai d'acquisition de la première image après l'instant de l'impact sur la membrane

L'influence de la position de la membrane sur la propagation radiale a été étudiée en tenant compte de cette forte dépendance radiale. La Figure 104 ci-dessous résume les résultats obtenus. Nous observons que la vitesse radiale de propagation de la décharge au voisinage de la surface de la membrane diminue lorsqu'on l'en éloigne de la pointe.

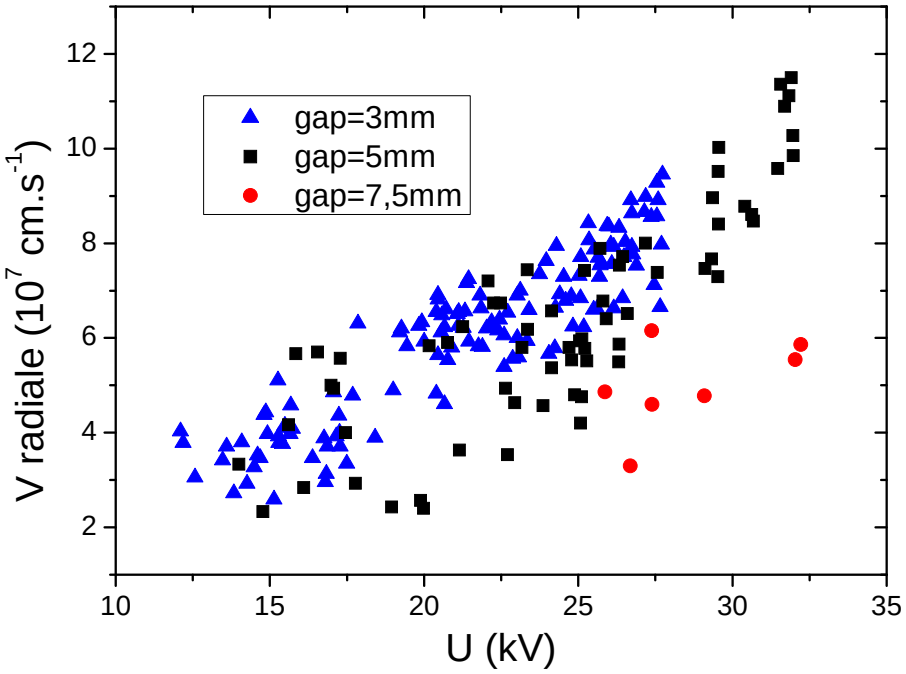


Figure 104. Vitesse de propagation radiale de la décharge au voisinage de la membrane en fonction de la tension appliquée et de sa position dans le gap.
ε_r = 2.2 ; épaisseur = e = 250µm

Lorsque la décharge impacte la membrane, une grande partie de la chute de potentiel propagée par la décharge est transférée à la gaine formée entre la décharge et la surface, ce qui a pour conséquence d'augmenter le champ au sein de la membrane. Des simulations réalisées à EM2C montrent que cette gaine d'environ 35 µm peut développer des champs électriques de plus de 350 $kV.cm^{-1}$. Après l'impact, conformément aux travaux de Celestin et al.[4], la décharge se propage en filaments et de manière isotrope sur la membrane, comme le montre la Figure 105. Les simulations montrent qu'en tête de ces filaments, les champs électriques sont de l'ordre de ceux typiques des streamers (150-200 $kV.cm^{-1}$). Au cours de leur propagation, ces streamers vont venir charger positivement la surface du diélectrique en regard de la pointe. Des charges négatives apparaissent alors de l'autre côté de la membrane, en regard du plan de masse, puisque les électrons situés dans l'espace membrane/plan et qui dérivent sous l'effet du champ vers la pointe sont dès lors stoppés par le diélectrique.

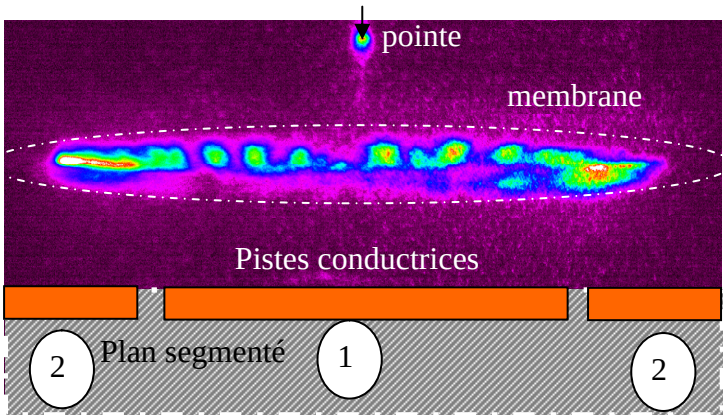


Figure 105. Propagation radiale de la décharge au voisinage de la surface du diélectrique côté pointe
z=5mm ; ε_r = 2.2 ; e = 250µm ; U=26kV

Si l'apport de charges positives sur la surface de la membrane en regard de la pointe reste faible quelle que soit la position de la membrane, celui-ci sera tout de même plus important lorsque l'on rapproche la membrane de la pointe. Par ailleurs, comme l'impact de la décharge sur la membrane a lieu plus rapidement dans ce cas, la décharge a plus le temps de se propager et de déposer des charges positives. L'apport de charges positives au voisinage de la surface en regard de la pointe défavorise cependant la propagation radiale de la décharge. En effet, plus la surface se charge, plus le phénomène d'écrantage du champ entre la membrane et la pointe se renforce, contribuant à freiner la propagation radiale. Ainsi, si V_{rad} est plus grande dans le cas où z = 3mm, cela est une nouvelle fois principalement dû au renforcement du champ Laplacien dans l'espace pointe/membrane dès lors que l'on rapproche la membrane de la pointe.

3) Influence de la position sur la propagation membrane/plan

Un certain temps de latence après son impact sur la membrane, la décharge se propage radialement au voisinage de la surface. Lorsque la décharge est très proche de la membrane ou lorsque celle-ci se charge pendant la propagation radiale des streamers, le champ électrique au sein de la membrane et au-delà de celle-ci augmente, favorisant

un ré-allumage et une propagation dans le reste de l'espace inter-électrodes. D'un point de vue électrostatique, un disque de charges positives au voisinage d'une surface diélectrique augmente en valeur absolue le champ électrique axial de l'autre côté de cette surface. Cet effet reste toutefois rapidement atténué par l'accumulation de charges négatives de l'autre côté de la membrane, affaiblissant la probabilité de ré-allumage côté plan. Si toutefois le champ électrique induit dans l'espace membrane/plan devient supérieur au champ critique de claquage, des avalanches électroniques peuvent alors se produire et une seconde décharge est générée à partir de la surface du diélectrique côté plan et se propage jusqu'à atteindre la cathode comme le montre la Figure 106. Dans ce cas, la décharge s'est propagée dans l'ensemble de l'espace inter-électrodes, signifiant que les conditions de claquage sont maintenues dans l'ensemble du gap.

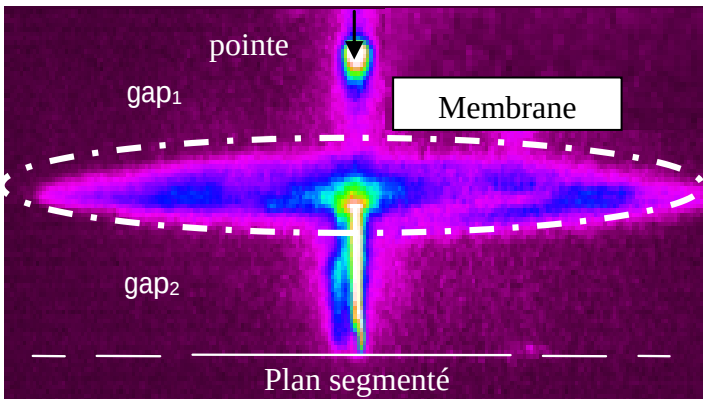


Figure 106. Propagation d'une seconde décharge dans l'espace membrane / plan.
Temps d'intégration = 20ns, délai d'acquisition = t_i +10ns,
gap_1=5mm, U=30kV, ε_r= 2.2, e=250µm

La dynamique de cette seconde décharge présente une multitude de phénoménologies. Ces ré-allumages peuvent apparaître sous la forme d'un unique ou de nombreux filaments qui se propagent jusqu'au plan. La répartition de ces filaments à tout paramètre constant est très stochastique. Néanmoins, ces filaments possèdent en commun une forme conique, dont la base, située au voisinage de la membrane, est une conséquence directe du renforcement du champ électrique dû à la charge de la membrane par la première décharge (Figure 107).

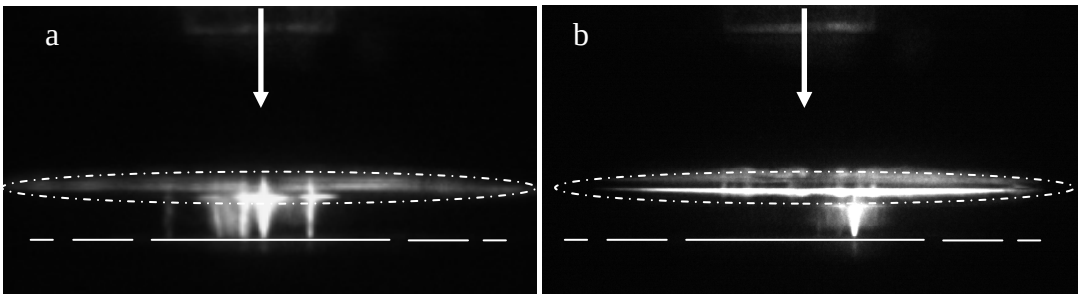


Figure 107. Profils coniques de ré-allumages dans l'espace membrane/plan
(a)Ré-allumages multiples
(b)Ré-allumage unique
z=7.5 mm, U=30kV, ε_r=2.2, *e*=1mm

Nous avons tenté de déterminer l'influence de la position de la membrane diélectrique sur les conditions de claquage dans l'ensemble de l'espace inter-électrodes. Pour une membrane d'1 mm d'épaisseur et de permittivité diélectrique ε_r = 2.2, nous avons reporté sur la Figure 108 les délais de propagation de la décharge dans l'ensemble du gap, estimés par la méthode des courants. En premier lieu, nous remarquons qu'il n'existe pas de propagation dans l'espace membrane/plan dans le cas où z = 3 mm, c'est-à-dire lorsque la membrane est placée au plus près de la pointe. Il apparaît même évident que plus la membrane est placée proche du plan, plus il est aisé d'observer une propagation dans tout le gap. Il faut appliquer 31 kV à la pointe pour z = 5 mm, tandis que 26 kV suffisent lorsque la membrane est à z = 7.5 mm de celle-ci (soit à 1.5 mm du plan). Par ailleurs, pour une tension fixe de 31 kV, la probabilité d'avoir une propagation dans l'ensemble du gap est presque de 100 % lorsque z = 7.5 mm alors qu'elle n'est que de 10 % pour z = 5mm. Nous pouvons également constater que les délais de propagation dans l'ensemble du gap ont tendance à diminuer lorsque la tension augmente et ce quelle que soit la position de la membrane. Enfin, ces délais semblent d'autant plus rapides que la membrane se trouve proche du plan.

La position de la membrane, déterminant la dynamique de la décharge entre la pointe et la membrane et au voisinage de celle-ci, va donc également conditionner la dynamique de ré-allumage derrière celle-ci. Modifier la position de la membrane revient en effet à changer l'épaisseur des intervalles d'air de part et d'autre de la membrane et donc leur capacité respective. Le rapprochement de la membrane vers la pointe conduit en outre à augmenter la distance membrane/plan, diminuant sa capacité et donc la valeur du champ électrique. Pour ces raisons, la propagation dans l'ensemble du gap est donc favorisée lorsque le diélectrique est placé proche du plan, induisant des tensions de claquage globalement plus faibles.

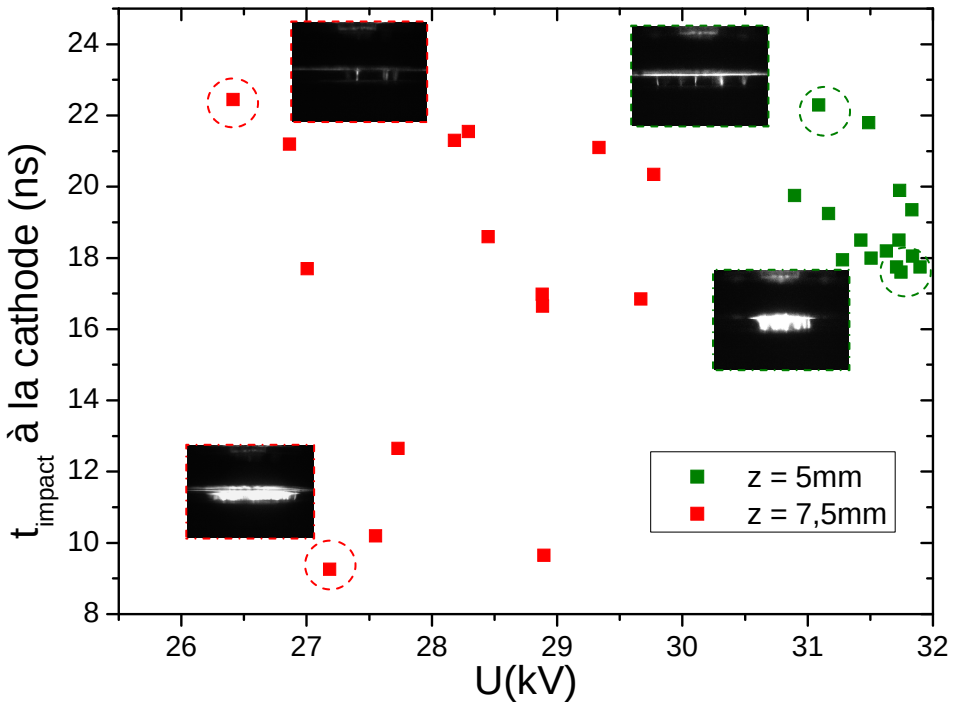


Figure 108. Délai total de propagation de la décharge entre la pointe et le plan.
e=1mm ; ε_r=2.2

D'après les acquisitions de la décharge en l'absence d'anneau de constriction, les décharges paraissent moins intenses dans l'intervalle membrane/plan qu'entre la pointe et la membrane. Par ailleurs, elles semblent moins intenses lorsque la membrane est proche de la pointe, comme le montre la Figure 108. Comme le champ électrique est plus faible entre le plan et la membrane lorsque celle-ci est proche de l'anode, s'il y a un ré-allumage, celui-ci sera moins intense. Le nombre stochastique de ré-allumages semble également jouer sur l'intensité lumineuse des filaments dans l'intervalle. Dans le cas où la membrane est proche du plan (z = 7,5 mm), les ré-allumages sont généralement davantage centrés sur l'axe pointe plan que dans le cas z = 5mm. Ces observations semblent indiquer que le profil radial des charges déposées sur la membrane ainsi que la localité des fronts de décharges se déplaçant radialement au voisinage de la surface de la membrane, influencent les réamorçages. En effet, il semblerait qu'ils soient générés dans l'axe pointe/plan et à la verticale des fronts de décharge se propageant sur la surface en regard de la pointe. Comme dans le cas z = 5mm, la décharge possède plus de temps afin de se propager radialement que dans le cas z=7.5mm, les ré-allumages seront davantage répartis spatialement dans l'espace membrane/plan. Enfin, on remarque que pour les positions de 5 et 7.5 mm, il existe des cas où les délais de propagation totale au sein de l'espace inter-électrodes sont nettement moindres. Ces cas de ré-allumages précoces coïncident avec une forte intensité lumineuse qui pourrait traduire une brusque décharge de la membrane. Nous pouvons alors nous poser la question de la rémanence de charges sur les surfaces diélectriques entre deux décharges successives et donc de l'effet de la fréquence de répétition des décharges sur nos résultats. Il se pourrait en effet que l'intervalle membrane/plan soit plus ou moins pré-ionisé d'une décharge à l'autre, ou même que les membranes étudiées conservent et piègent une certaine quantité de charges, comme le font les électrets, modifiant ainsi l'état initial de la décharge suivante. Kumada et al. [8] montre que la propagation d'un streamer positif sur une surface diélectrique laissent 10^{-11} nC en surface du diélectrique juste après le passage de la décharge, ce qui nous incite à prendre en considération l'influence de l'état initial de la distribution des charges au sein du gap et au voisinage du diélectrique. Nous discuterons de ce point dans la partie d de ce chapitre.

b. Etude de l'influence de la permittivité diélectrique de la membrane

Dans cette partie, nous proposons l'étude de l'influence de la permittivité diélectrique de la membrane sur la dynamique de la décharge. Si l'effet de ce paramètre sur l'ensemble des étapes de propagation dans l'intervalle pointe/plan est moindre que celui de la position de la membrane, son influence est néanmoins non négligeable. De manière générale, les études paramétriques en fonction de la permittivité diélectrique du matériau ou, comme nous le verrons plus loin, de son épaisseur, ont été réalisées pour des membranes situées à 3 et 5 mm de la pointe. Lorsque l'on se place à z = 7.5 mm et que la membrane est proche du plan, la possibilité d'atteindre les conditions de claquage entre la membrane perturbe la dynamique de la décharge au voisinage de la surface et rend les différents effets liés aux paramètres du matériau de confinement difficiles à observer. Afin d'étudier plus particulièrement l'influence de la permittivité diélectrique sur la dynamique de la décharge axialement confinée, nous disposons de fines plaques de verre et d'alumine, ainsi qu'un panel d'échantillons de différentes familles de plastique. La gamme de permittivité diélectrique accessible s'étend ainsi de 2 à 9.

1) Influence de la permittivité diélectrique de la membrane sur la propagation dans le premier gap d'air

Les résultats de la Figure 109 montrent que la propagation entre la pointe et la membrane s'accélère lorsque la permittivité diélectrique ε_r de la membrane augmente. Cet effet semble s'amplifier lorsque la tension appliquée à la pointe augmente.

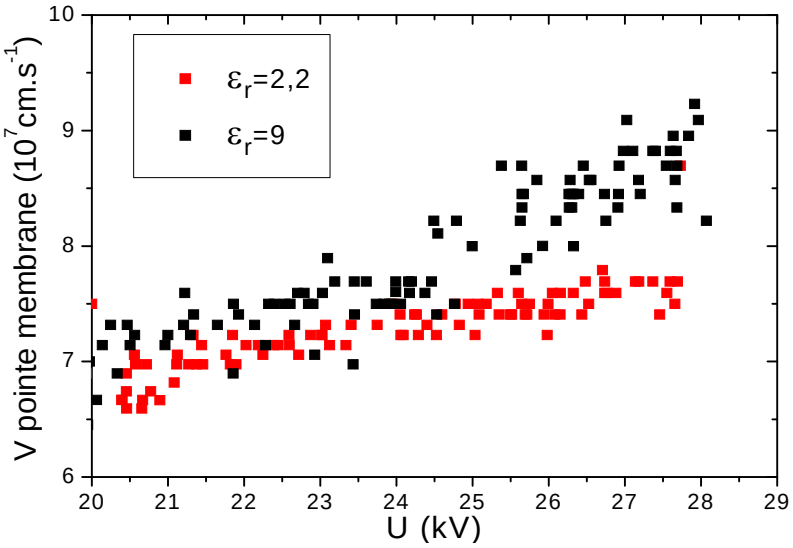


Figure 109. Influence de la permittivité sur la propagation de la décharge de la pointe à la membrane

Gap_1 = 3 mm ; *e* = 250 µm.

La variation de la permittivité diélectrique de la membrane va directement jouer sur la capacité du diélectrique. Augmenter la permittivité diélectrique du matériau revient à augmenter la capacité du diélectrique et donc à augmenter le champ électrique Laplacien dans l'ensemble du gap. Les résultats présentés ci-dessus s'expliquent donc par l'accroissement du champ électrique lorsque ε_r augmente qui a pour conséquence directe d'accélérer la propagation de la décharge dans le premier gap d'air. Ces résultats sont en bon accord avec la simulation [6]. Ils corroborent également les résultats de M L Coulibaly [7] qui indiquent que le champ Laplacien augmente entre la pointe et la surface du diélectrique lorsque la permittivité diélectrique du matériau augmente.

2) Influence de la permittivité diélectrique de la membrane sur la propagation radiale de la décharge

Le graphique de la Figure 110 présente l'influence de la permittivité diélectrique sur la vitesse de propagation radiale au voisinage de la surface de la membrane orientée côté pointe en fonction de la tension appliquée pour un gap pointe/membrane de 3mm.

Nous remarquons en premier lieu sur ce graphique que la vitesse de la propagation radiale de la décharge augmente quasi-linéairement avec la tension appliquée. Il semblerait en outre qu'augmenter la permittivité diélectrique du matériau engendre une accélération de la décharge se propageant radialement au voisinage de la membrane, et que cet effet semble d'autant plus important que l'est la tension appliquée.

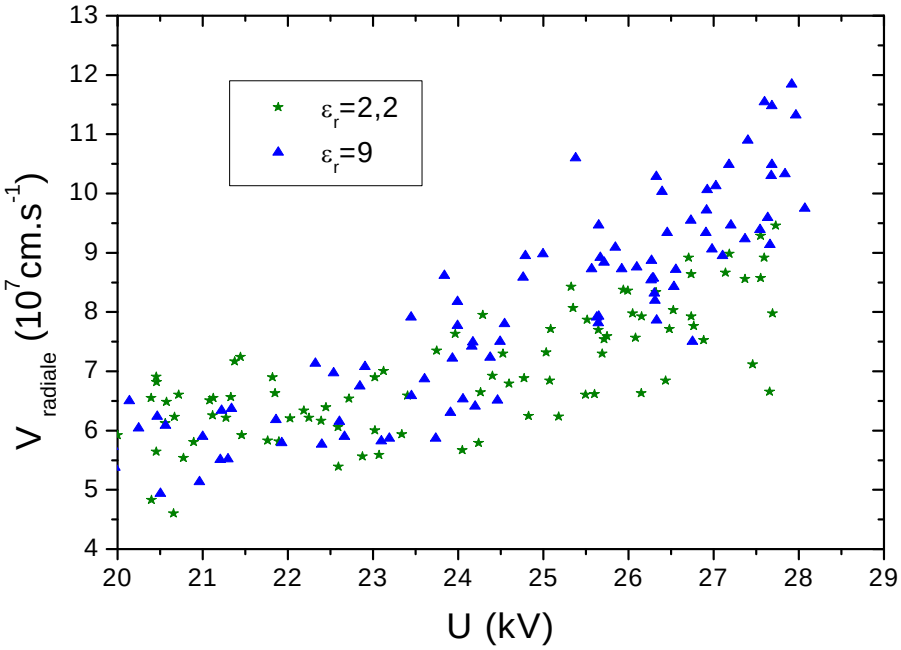


Figure 110. Influence de la permittivité diélectrique sur la vitesse de propagation radiale des streamers au voisinage de la membrane.

Gap_1 =3mm ; *e* =250 µm

Ces résultats sont en accord avec les travaux de [7], où il est reporté qu'une augmentation de la permittivité diélectrique du matériau amène à un renforcement du champ à proximité de celui-ci, favorisant la propagation radiale de la décharge au voisinage de ses surfaces.

La même expérience effectuée pour z = 5 mm ne semble cependant pas dégager de tendance particulière selon la permittivité diélectrique utilisée. Au-delà de 31kV, la Figure 111 semble même montrer une tendance inverse, la propagation radiale semble d'autant plus rapide qu'est faible la permittivité diélectrique. Pour de telles tensions, c'est-à-dire dans des conditions où la propagation de la décharge dans l'ensemble du gap est possible, il se pourrait que les effets de charge de surface aient une influence sur la propagation radiale au voisinage de la membrane.

Lorsque z = 5 mm, le rapport de la composante axiale du champ sur la composante radiale est beaucoup plus faible que dans le cas où z = 3 mm, du fait de l'éloignement de la pointe et de la structure de la décharge. Ce rapport considérablement modifié pourrait alors déterminer la propagation radiale de la décharge. La composante axiale du champ va dépendre notamment de la dynamique des charges négatives au voisinage de la membrane orientée vers le plan qui tendent à écranter le champ et donc des caractéristiques de la membrane. A tout autre paramètre constant, F. Peschereau [6] montre que le dépôt de charges de surface est d'autant plus important qu'est grande la permittivité diélectrique du matériau. C'est pourquoi, pour ces hautes tensions, l'influence du dépôt de charge de part et d'autre de la membrane pourrait être responsable de l'inversion de la tendance précédemment observée, c'est-à-dire que pour ces tensions la vitesse de la propagation radiale est d'autant plus forte qu'est faible la permittivité diélectrique du matériau.

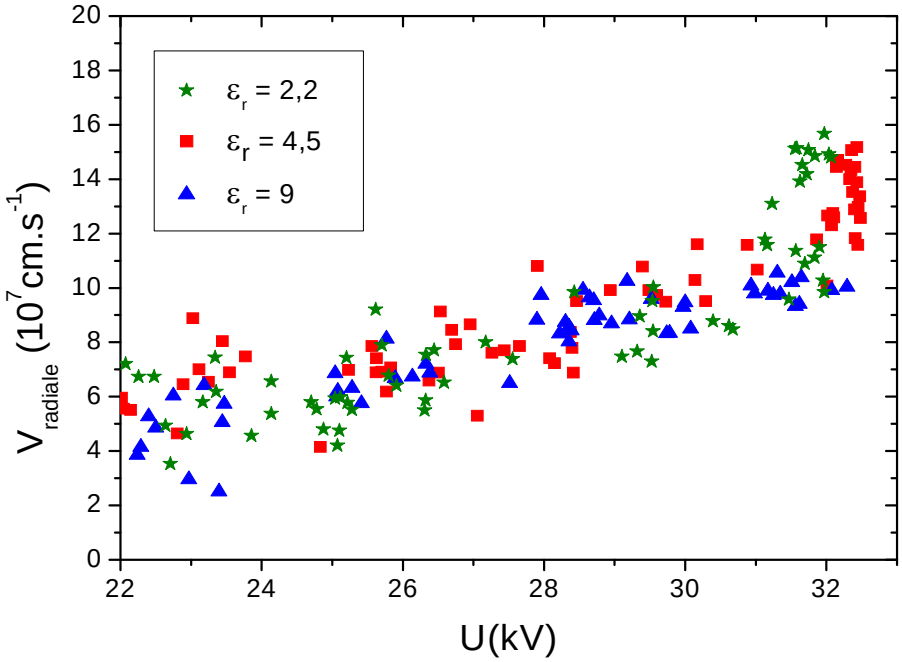


Figure 111. Influence de la permittivité diélectrique sur la vitesse de propagation radiale des streamers au voisinage de la membrane.
Gap_1 =5mm ; *e* =250µm

3) Influence de la permittivité diélectrique sur la propagation membrane/plan

L'effet de la permittivité diélectrique sur la possibilité de propager la décharge jusqu'au plan a été étudié en relevant les délais totaux de propagation par rapport à la tension appliquée. Le graphique de la Figure 112 montre que plus la permittivité diélectrique augmente, plus il semble difficile d'atteindre les conditions de claquage entre la membrane et le plan de masse. Diminuer la permittivité diélectrique du matériau faciliterait ainsi les ré-allumages dans notre configuration.

Changer la nature du matériau afin de modifier la valeur de la permittivité diélectrique peut cependant également faire intervenir d'autres paramètres liés à la nature du matériau. Par exemple, l'opacité de la membrane peut conditionner la capacité des photons émis par la décharge pendant la propagation pointe/membrane à traverser la membrane et à photo-ioniser le gaz entre la membrane et le plan, ce qui aurait comme effet global de changer la valeur du coefficient de photo-ionisation. De même, la composition chimique du matériau peut quant à elle interagir avec les processus de dépôt de charges en surface. La transmission du matériau aux U.V peut également varier et jouer ainsi directement sur le coefficient de photo-émission.

Afin de révéler l'influence réelle de ce paramètre sur la probabilité de ré-allumage, il aurait été nécessaire de faire davantage d'expériences sur une plus grande plage de valeurs. Les quelques résultats obtenus avec des plaques de verre et d'alumine semblent néanmoins corroboré cette tendance.

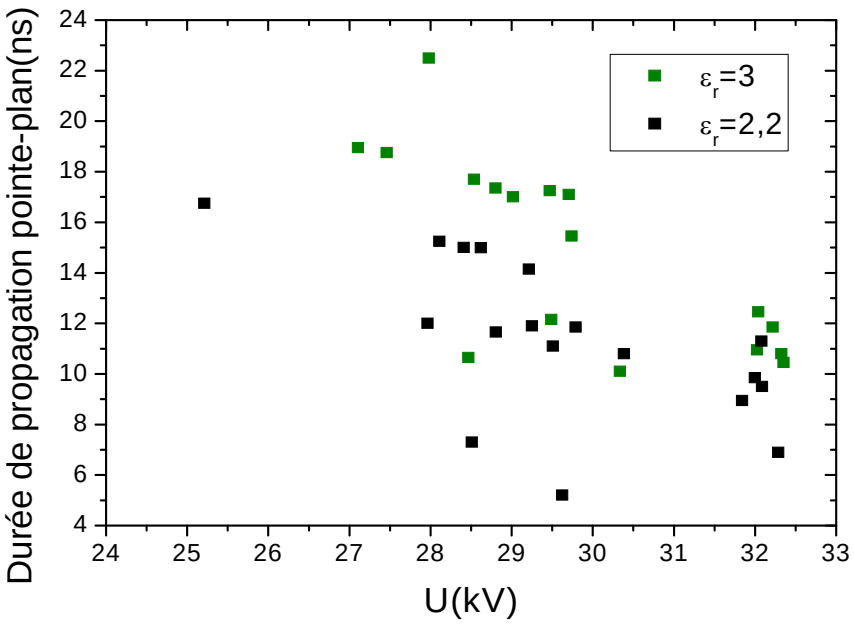


Figure 112. Durée de propagation entre la génération de la décharge à la pointe et l'arrivée au plan pour des échantillons de Téflon (noir) et de polyétheréthercétone (vert)

c. Etude de l'influence de l'épaisseur sur la propagation de la décharge

Dans cette partie, nous allons tenter de déterminer l'influence de l'épaisseur de la membrane sur l'ensemble des étapes de propagation de la décharge. La modification de l'épaisseur est faite en maintenant la distance z entre la pointe et la membrane constante. Ainsi, seule la distance membrane/plan sera modifiée. Augmenter l'épaisseur d'une valeur δe revient donc à diminuer cette distance de δe. Il aurait été judicieux d'adapter la distance pointe/plan globale de manière à garder toutes les distances à la membrane constantes mais la vis millimétrique permettant l'ajustement de la position du plan par rapport à la pointe ne nous permettait pas de le faire de manière suffisamment précise.

1) Influence de l'épaisseur sur la propagation pointe/membrane

Les résultats qui sont présentés ici témoignent des influences de l'épaisseur sur la propagation de la décharge au sein du premier gap d'air. Nous avons vu précédemment que la capacité du diélectrique est inversement proportionnelle à son épaisseur. Ainsi, lorsque cette dernière augmente, la capacité du diélectrique diminue. A l'inverse, la capacité du second gap d'air augmente, et donc le champ Laplacien, aussi bien dans le second gap d'air que dans l'ensemble du gap, augmente lui aussi. De ce fait, la vitesse de la décharge dans le premier gap d'air devrait augmenter lorsque l'épaisseur du diélectrique augmente. Les résultats de la Figure 113 illustrent bien cette relation puisque la vitesse de la propagation de la décharge augmente bien lorsque l'épaisseur du diélectrique passe de 250µm à 1mm, conformément aux résultats de la simulation [6].

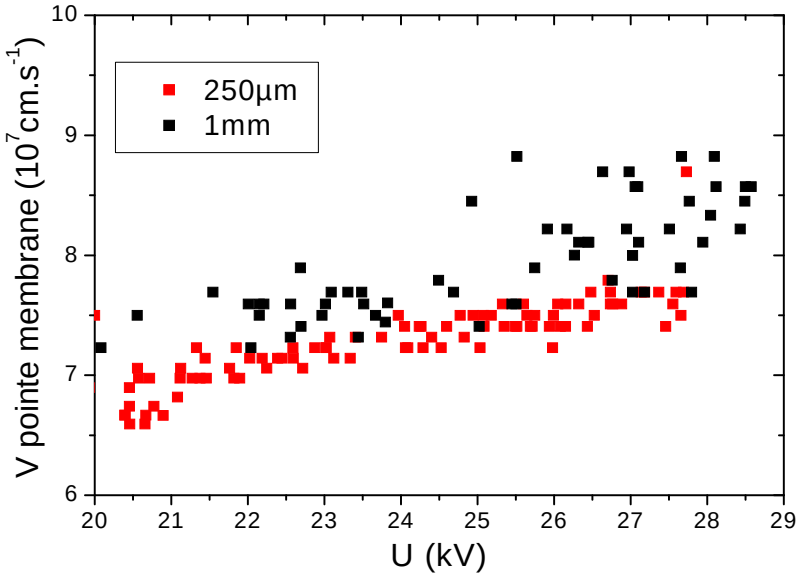


Figure 113. Vitesse moyenne de propagation de la décharge entre la pointe et le diélectrique pour deux épaisseurs différentes

Gap_1 = 3mm, ε_r=2.2

2) Influence de l'épaisseur sur la propagation au voisinage de la membrane

Le graphique de la Figure 114 témoigne des résultats obtenus lorsque la distance pointe/membrane est fixée à 3 mm. Ces derniers semblent indiquer que la vitesse de propagation radiale de la décharge au voisinage de la membrane augmenterait lorsque l'épaisseur du diélectrique est moindre.

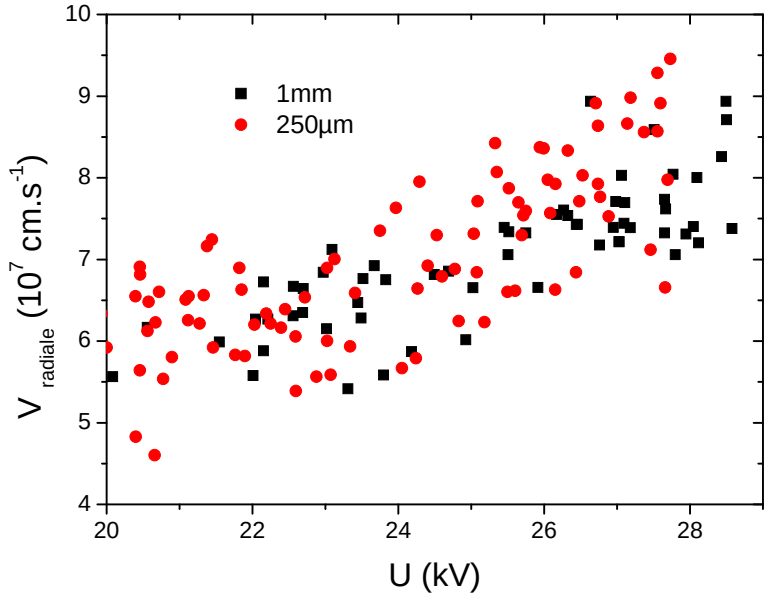


Figure 114. Influence de l'épaisseur sur la vitesse de propagation radiale des streamers au voisinage de la membrane.

Gap_1 =3 mm ; ε_r = 2.2

A ce stade et au vu des résultats des études paramétriques faites selon la permittivité et l'épaisseur des membranes, nous remarquons que la vitesse de propagation radiale de la décharge au voisinage de la membrane disposée à 3 mm de la pointe est proportionnelle au ratio ε_r/e, c'est-à-dire qu'elle est proportionnelle à la capacité électrique de la membrane, et donc à la valeur du champ Laplacien au voisinage des surfaces. Ainsi, lorsque z = 3 mm, les effets de champ liés aux propriétés capacitives du matériau qui conditionne les mécanismes d'interaction aux surfaces, prédominent sur la dynamique de la décharge au voisinage de la membrane. Lorsque l'on augmente la capacité du diélectrique, soit en augmentant sa permittivité diélectrique, soit en diminuant son épaisseur, cela revient à augmenter le champ au voisinage de la membrane et engendre ainsi l'accélération de la propagation radiale de la décharge. D'après Akishev et al. [10], la propagation radiale est alors davantage déterminée par les mécanismes aux surfaces du diélectrique que par la dynamique des fronts d'ionisation.

Le graphique de la Figure 115 donne les résultats obtenus pour la position z = 5 mm. Nous remarquons une tendance inverse pour cette position puisque l'augmentation de l'épaisseur de la membrane conduirait à une augmentation de la vitesse de la propagation radiale. L'inversion de l'effet de l'épaisseur peut néanmoins s'expliquer par l'augmentation du champ électrique dans le second gap d'air lié à la diminution d'un δe de la distance membrane/plan. A partir de z=5mm, la dynamique des charges dans le second gap d'air semble influencer grandement la dynamique de la décharge au voisinage de la membrane comme l'avait laissé supposer les résultats de la Figure 111. La dynamique de la décharge au voisinage de la membrane semble davantage gouvernée par le rapport de la composante axiale du champ sur sa composante radiale. D'après F. Pechereau et al., augmenter l'épaisseur du diélectrique ou diminuer la valeur de la permittivité diélectrique revient à diminuer le nombre de charges négatives au voisinage de la membrane côté plan, et à augmenter celui des charges positives côté pointe. Ces dernières qui ont un effet d'écrantage sur le champ entre la pointe et la membrane, implique une diminution du ratio de la composante axiale sur la composante radiale du champ électrique et favorisent ainsi la propagation radiale. Lorsque z = 5 mm et z = 7.5 mm dont les résultats paraissent similaires, il se pourrait que ces effets liés à la dynamique des charges dominent les effets liés au renforcement du champ au voisinage des surfaces.

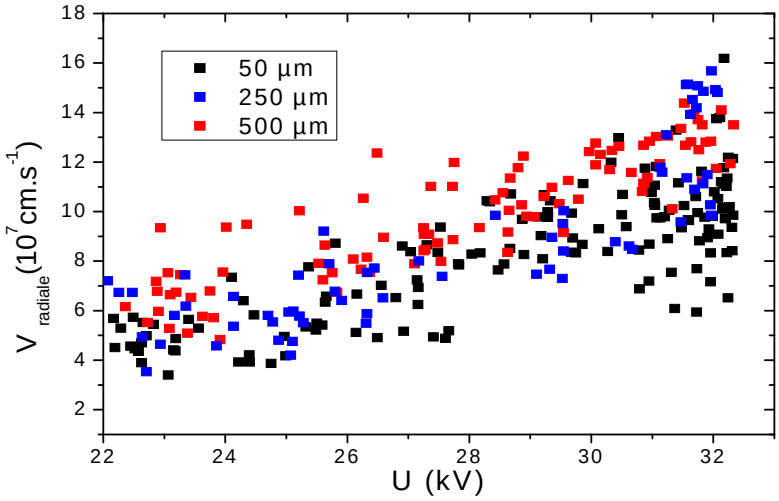


Figure 115. Influence de l'épaisseur du diélectrique sur la propagation radiale de la décharge

Gap_1=5mm ; ε_r=2.2

3) Influence de l'épaisseur sur la propagation membrane/plan

Comme expliqué précédemment, lorsque l'épaisseur du diélectrique augmente, la taille du second gap d'air diminue. Augmenter l'épaisseur du diélectrique revient donc à diminuer la taille du second gap d'air et à augmenter les probabilités de ré-allumages côté plan. Par ailleurs, lorsque l'épaisseur du diélectrique augmente, après l'impact de la décharge sur celui-ci, l'apport de charges négatives de l'autre côté du diélectrique sera moindre. Comme d'un point de vue électrostatique, le dépôt de charges négatives de l'autre côté de la membrane diminue les probabilités de ré-allumages, augmenter l'épaisseur du diélectrique favoriserait les ré-allumages.

Les graphiques de la Figure 116 illustrent l'ensemble des résultats obtenus pour l'étude de l'influence de l'épaisseur sur la dynamique de la décharge dans tout l'espace inter-électrodes pour une membrane de Téflon (ε_r=2,2) placée à 5 et 7,5 mm de la pointe. Pour z = 5 mm, 50 décharges ont été effectués au coup par coup sur chacun des échantillons, contre deux fois moins pour z=7.5mm. Nous pouvons remarquer que plus l'épaisseur du diélectrique augmente, plus nombreux sont les cas de ré-allumages observés entre la membrane et le plan.

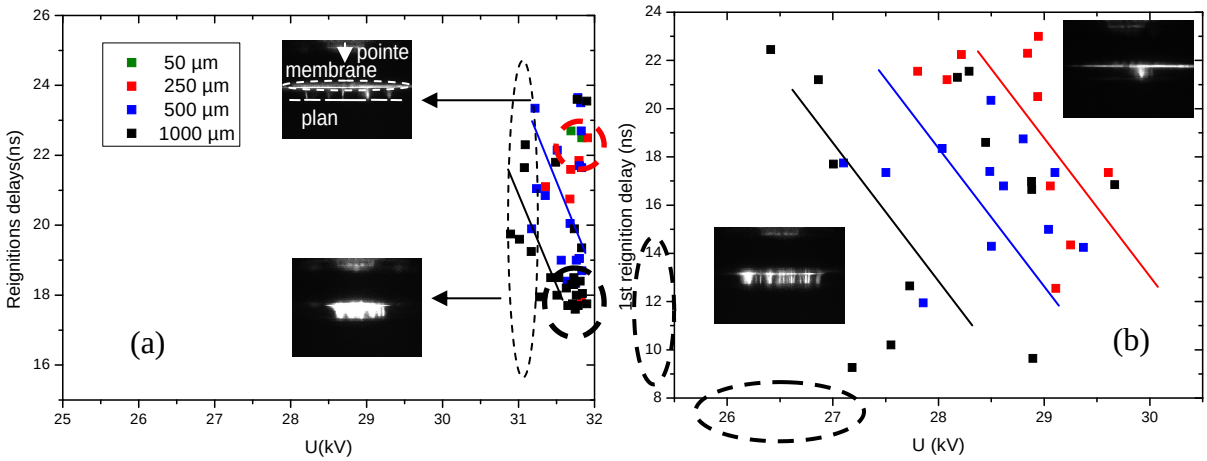


Figure 116. Délais totaux de propagation de la décharge entre les deux électrodes en fonction de l'épaisseur de la membrane de confinement utilisée

(f) Gap_1=5mm ; ε_r=2.2 (b) Gap_1=7.5mm ; ε_r=2.2

La Figure 116 montre bien que l'augmentation de l'épaisseur favorise la propagation de la décharge dans l'ensemble du gap inter-électrodes. Lorsque l'on augmente l'épaisseur de la membrane, nous observons davantage de cas de ré-allumages, quelle que soit la position de la membrane au sein du gap. Par ailleurs, il apparaît nécessaire d'augmenter l'amplitude de la tension appliquée à la pointe afin d'observer une propagation dans l'ensemble du gap inter-électrodes au travers de membranes plus minces. En effet, dans le cas où z = 7.5 mm, les premiers cas de ré-allumages apparaissent dès 26 kV pour *e* = 1 mm contre 28 kV lorsque *e* = 250 µm. En séparant par les courants les points d'impact des ré-allumages sur le plan, l'influence de l'épaisseur à la fois sur la probabilité de ces ré-allumages dans le gap_2 ainsi que sur leur distribution spatiale est exacerbée. La Figure 117 présente les résultats obtenus pour les délais de propagation de la décharge axialement confinée entre sa génération à la pointe et le premier impact sur la piste centrale ou le premier impact sur la piste 2.

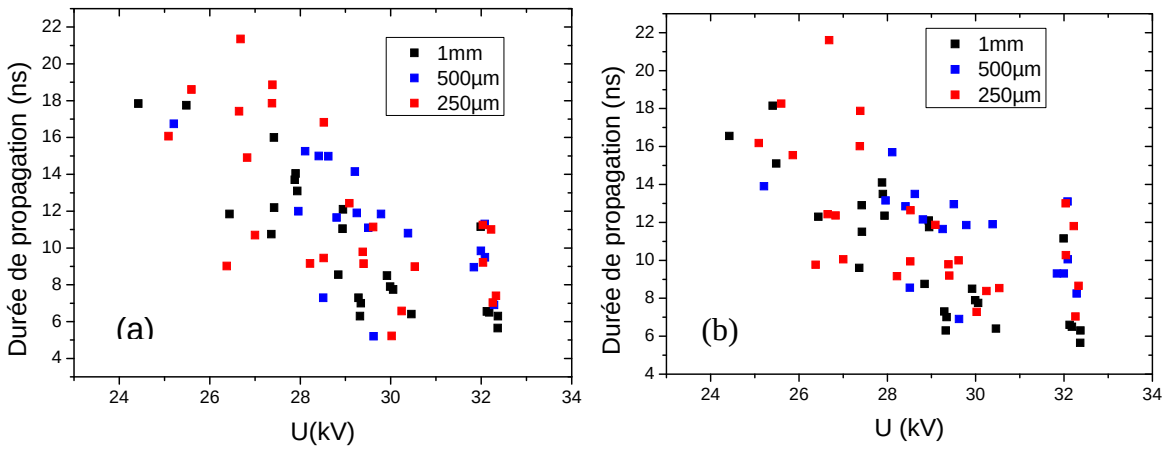


Figure 117. Durée de propagation de la décharge entre la pointe et le plan

a) Impacts sur la piste centrale

b) Impacts sur la première piste concentrique (piste 2)

La tendance observée confirme qu'une épaisseur de 1 mm est plus favorable qu'une épaisseur de 250 µm pour observer une propagation dans l'ensemble du gap dans nos conditions expérimentales.

En ne considérant désormais uniquement que les premiers impacts sur la piste la plus éloignée de l'axe pointe-plan, la piste n°3, cette tendance apparait d'autant plus clairement comme le montre la Figure 118.

L'ensemble de ces résultats montre que le paramètre déterminant pour la propagation dans l'ensemble de l'intervalle pointe/membrane/plan est la distance entre la membrane et le plan. La capacité équivalente de la membrane elle-même, dépendante de ε_r /e, est également un paramètre important qui va influer sur la dynamique. Dans notre configuration, diminuer la capacité du diélectrique, soit en augmentant l'épaisseur de la membrane, soit en diminuant la valeur de sa permittivité diélectrique, favorise la propagation dans l'ensemble du gap. Il est important de noter cependant qu'un échantillon de 2 mm d'épaisseur ne conduit à aucun ré-allumage. Dans le futur, afin de déterminer précisément l'influence de l'épaisseur de la membrane sur la dynamique de propagation de la décharge, il serait judicieux d'implémenter une vis micrométrique réglant la position du plan. Cela permettrait, sous l'effet d'un changement d'épaisseur du film, d'ajuster la distance entre la membrane et le plan afin de la garder constante, et d'ainsi différencier rigoureusement leur influence respective sur la probabilité de propagation dans l'ensemble du gap inter-électrodes.

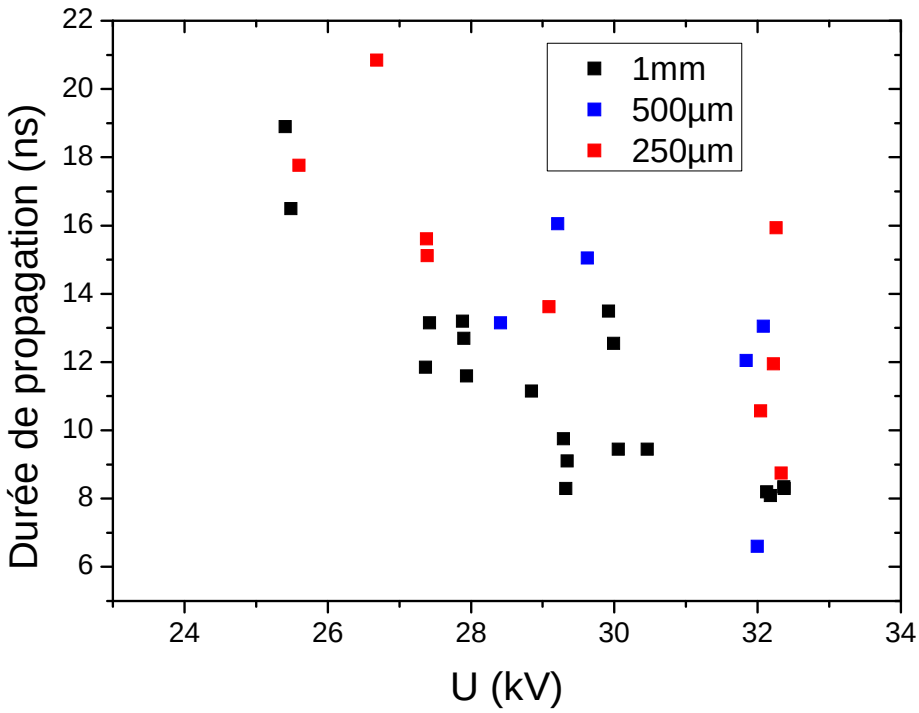


Figure 118. Durée de propagation entre la génération à la pointe et l'instant du premier impact de la décharge sur la piste 3 du plan

d. Comparaison expériences/simulations et discussion

1) Cas sans contrainte

Dans le cadre du programme Alveoplas dans lequel s'intègre cette étude, des travaux de modélisation sur l'interaction streamer / membrane diélectrique ont été effectués par F. Peschereau et A. Bourdon au laboratoire EM2C. Les résultats de simulation obtenus pour une configuration très proche du réacteur expérimental ont alors pu être confrontés aux résultats expérimentaux. Seul le support de membrane et l'anneau de constriction n'ont pas été pris en compte dans la modélisation.

Dans le cas d'une décharge sans contrainte, des profils de courant électrique et d'émission lumineuse de décharge ont pu être simulés et comparés. Le courant électrique est modélisé à partir de l'équation de conservation de la charge dans un volume fini :

$$\boxed{\iint_S \vec{J}.dS = 0}$$

où $\vec{J} = \vec{j}_c + \varepsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t}$ avec $\vec{j}_c = q_e \vec{j}$, $\vec{j}_c$ la densité de courant et $\vec{j}$ le flux d'électrons, q_e la valeur absolue de la charge de l'électron et S est considérée comme étant une surface fermée, perpendiculaire à l'axe pointe/plan.

En l'absence de confinement, les profils types du courant obtenus par le modèle sont également très proches des signaux expérimentaux comme le montre la Figure 119.

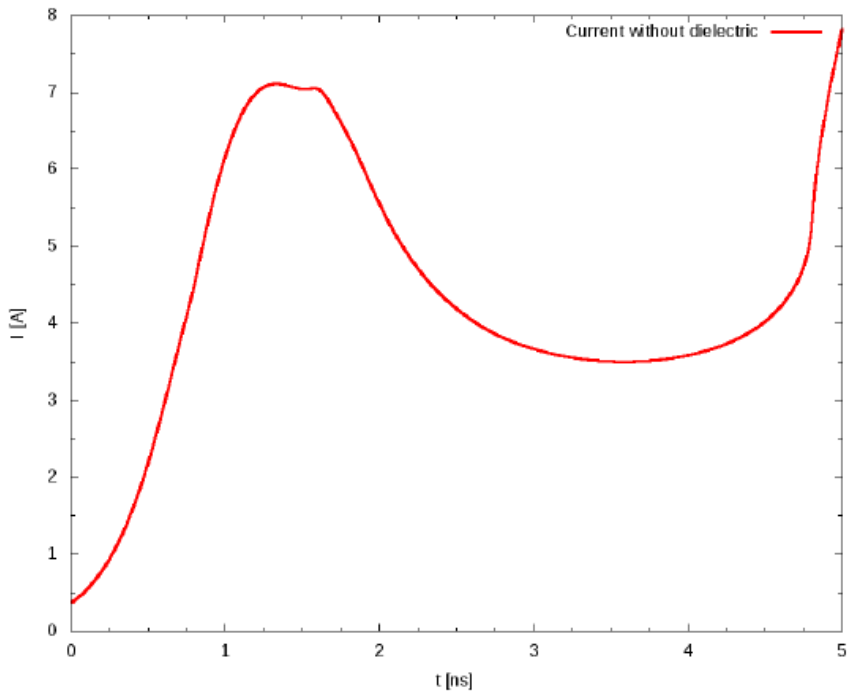


Figure 119. Profil de courant obtenu par la simulation dans le cas sans contrainte

Nous y retrouvons en effet le pic capacitif dans lequel est noyé la contribution liée à la génération de la décharge à la pointe, suivi d'une chute de courant correspondant à l'arrêt de la propagation sous forme de « boule» plasma de la décharge et le début de sa propagation uniquement dirigée vers la cathode. Cette diminution dure jusqu'à t = 3.5 ns. Une augmentation rapide et brutale du courant est ensuite observée et correspond comme dans le cas expérimental à l'arrivée au plan de la décharge.

Comme illustré par la Figure 120, l'émission optique de la décharge obtenue par le modèle est comparable à celle observée expérimentalement. A 30 kV, elles présentent toutes deux un diamètre équivalent de 8 mm. Dans les simulations, nous rappelons que l'émission optique de la décharge est obtenue en réalisant une intégration d'Abel à partir du second système positif de l'azote :

$$\boxed{N_2(C^3\Pi_u) \rightarrow N_2(B^3\Sigma_g^+) + h\nu}$$

De manière générale, une «boule» plasma est observée au commencement de la propagation de la décharge, laquelle adopte ensuite un aspect filamentaire classique ou un aspect conique diffus selon la valeur de l'amplitude de la tension appliquée à la pointe, conformément aux résultats expérimentaux.

Dans le cas U=12kV, la vitesse moyenne de propagation dans l'ensemble du gap vaut $2{,}6.10^7 cm.s^{-1}$, ce qui est également conforme aux résultats expérimentaux présentés Figure 95.

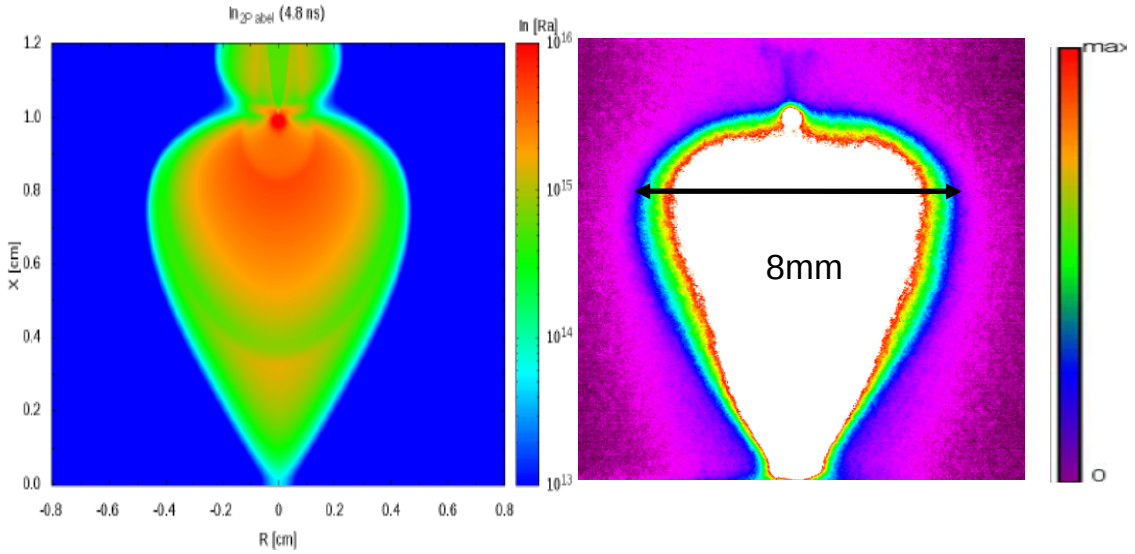


Figure 120. Comparaison entre l'émission optique simulée et expérimentale de la décharge avec U=30kV, gap=1cm

Les résultats issus de la simulation dans le cas sans contrainte et dans nos conditions expérimentales sont donc en excellents accords avec ceux présentés dans la section B de ce chapitre. En effet, la structure et la vitesse de propagation de la décharge non confinée sont équivalentes, et les profils de courants obtenus similaires. Par ailleurs, la corrélation de ces derniers avec la dynamique de la décharge par la modélisation confirme celle réalisée expérimentalement, et l'hypothèse du maximum de courant qui correspondrait au moment de l'impact de la décharge sur le plan est vérifiée. Enfin, les similarités du profil structural de la décharge assurent la pertinence du jeu de paramètres employés par le modèle.

Cet accord est fondamental puisqu'il nous permet de valider le modèle dans des conditions de tensions élevées et autorise une étude comparative entre expériences et simulations sur les effets du confinement axial sur la propagation de la décharge. Cette comparaison a donnée naissance à l'article « Large Conical Discharge Structure of an Air Discharge at Atmospheric Pressure in aPoint-to-Plane Geometry » [9].

2) En présence d'une membrane diélectrique non poreuse

En présence d'une membrane confinant axialement la décharge, les simulations donnent également des résultats très satisfaisants. Nous y retrouvons en effet les mêmes phases de développement de la décharge dans l'espace inter-électrodes que dans le cas expérimental. La décharge est générée à partir de la pointe et se propage jusqu'à atteindre la membrane de confinement. La décharge s'étale ensuite radialement, et l'amplitude du champ électrique entre la membrane et le plan de masse augmente alors. Lorsque celui-ci atteint une valeur supérieure au champ de claquage dans l'air soit supérieure à 30 kV.cm^{-1} environ, une seconde décharge s'amorce de l'autre côté de la membrane pour se propager jusqu'au plan.

La Figure 121 présente le profil typique du signal de courant issu de la modélisation dans le cas d'une décharge axialement confinée par une membrane.

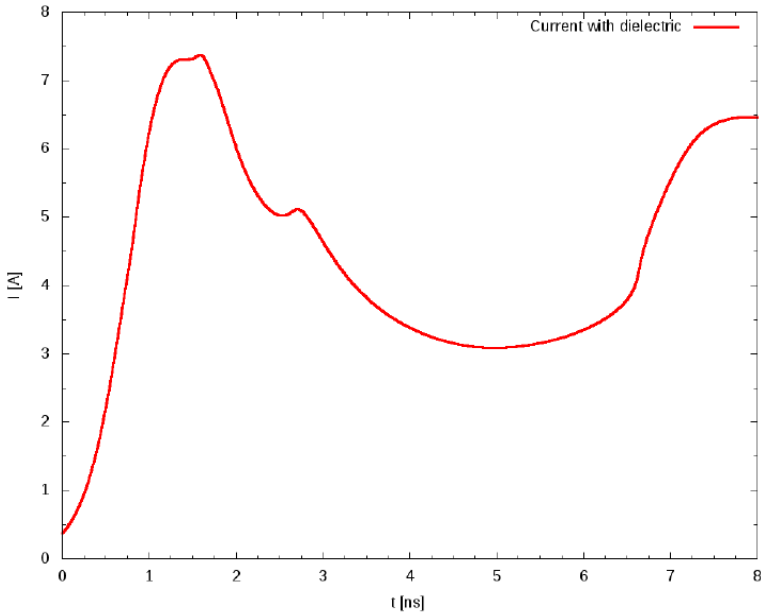


Figure 121. Profil de courant type obtenu en présence d'un diélectrique

Comme dans le cas sans contrainte, un premier pic de courant est observé entre 1 et 2 ns environ qui correspond à la partie capacitive du courant total représenté. Un second pic de courant apparaît ensuite à t = 2.6 ns. Ce pic de courant correspond dans les simulations à l'instant où la décharge intercepte la membrane, ce qui est conforme à nos expériences et conforte ainsi l'ensemble des résultats sur les vitesses de propagation dans l'intervalle pointe/membrane.

Nous remarquons sur ce graphique, à l'instar des mesures expérimentales, qu'il n'y pas de pic de courant révélateur du départ d'un ré-allumage au-delà de la membrane. Seul l'instant d'arrivée au plan est détectable par le maximum de courant du dernier pic observé, à t = 7.8 ns dans cet exemple. Du fait de la présence de la membrane, il n'y a pas de canal conducteur établit entre les deux électrodes, ce qui limite l'augmentation du courant liée à l'arrivée au plan.

En second lieu, comme le montre la Figure 122 l'émission optique de la propagation de la décharge dans l'ensemble du gap est très proche de celle observée dans le cadre expérimental en absence de bague de constriction. Suite à l'impact de la décharge sur le diélectrique, comme dans le cas expérimental, les simulations montrent que les émissions les plus intenses sont dès lors situées au voisinage de la membrane. Ces fronts de décharge se propagent radialement jusqu'à ce que le champ de l'autre côté de la membrane dépasse la valeur du champ critique de claquage dans l'air à pression atmosphérique. A cet instant, une seconde décharge se propage dans le second gap d'air, nettement moins intense que la première, jusqu'à atteindre le plan.

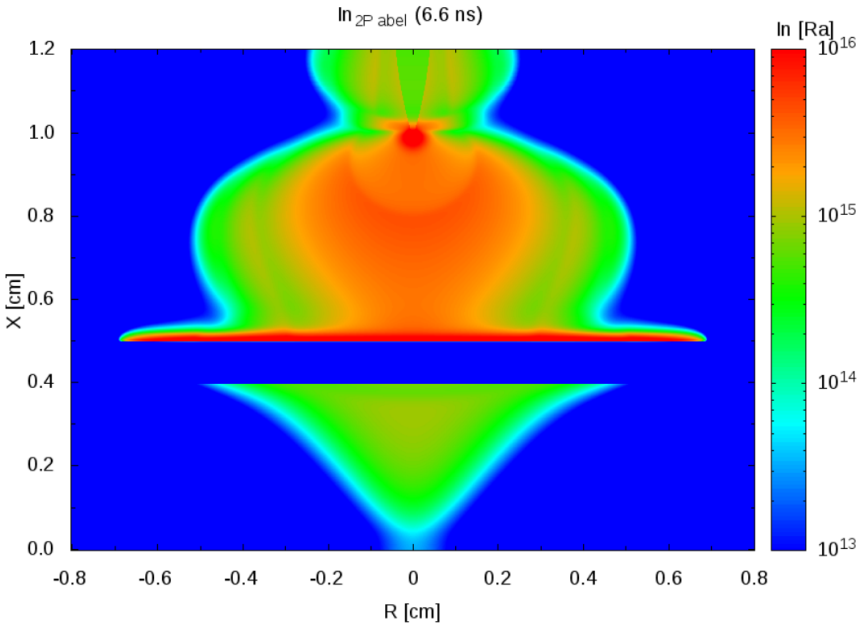


Figure 122. Emission optique de la décharge sur l'ensemble de la propagation dans l'espace inter-électrodes.

Si les phénoménologies de la décharge simulée et observée expérimentalement sont similaires, la quantification des délais des différentes phases de développement de la décharge ne coïncident pas. En effet, la simulation donne un délai de propagation de la décharge dans l'ensemble du gap de 5,6 ns pour U = 30 kV, z = 5 mm, ε_r = 2.2 et e = 1 mm, contre 18 –24 ns dans le cas expérimental.

Afin de comprendre ces différences et mieux interpréter les valeurs du délai de ré-allumage, nous proposons d'étudier plus en détails les différents processus qui pourraient entrer en compte. En premier lieu, nous pouvons nous poser la question de la valeur de la densité d'électrons germes initialement présents entre la membrane et le plan et nécessaires au développement d'avalanches. D'après les travaux de Panchesnyii et al. [10] basés sur la rémanence d'ions négatifs O_2- et le détachement rapide d'électrons, cette densité peut être estimée à environ 10^4 cm^{-3} pour des décharges successives réalisées avec quelques secondes d'intervalle dans l'air à pression atmosphérique. Si les expériences ont été réalisées en laissant des délais suffisamment longs entre deux décharges, la diffusion des ions aux parois sous-entend alors une valeur de densité probablement nettement inférieure à cette valeur.

Le modèle utilisé permet de nous placer dans le cas extrême où la densité électronique initiale n_e est nulle entre la membrane et le plan. Les seuls électrons disponibles se réduisent alors à ceux qui se détachent de la cathode. Dans ce cas, nous observons également une propagation dans l'ensemble du gap pointe/plan mais avec une propagation au-delà de la membrane d'air nettement différente. En effet, après les processus d'émission électronique à la cathode, la densité électronique augmente sous l'effet de la dérive des électrons vers la membrane. Une double décharge apparaît alors, composée d'une tête positive se déplaçant vers la cathode et d'une tête négative se propageant en direction de la membrane. Si ce cas extrême semble peu envisageable dans la réalité, il est cependant intéressant de dire que nous avons observé ce type de propagation à de très rares occasions, comme l'atteste la Figure 123.

Pour ce cas d'étude, dans les mêmes conditions que précédemment (U = 30 kV, z = 5 mm, ε_r = 2.2 et e = 1 mm), les simulations donnent une durée totale de propagation de la décharge dans l'espace inter-électrodes de 22.8 ns. Si ce délai appartient à la plage de délais caractéristiques relevés dans les expériences, il est cependant plus intéressant de noter l'importance de la valeur de la densité électronique initiale dans l'intervalle membrane/plan sur la durée de propagation de la décharge. Diminuer la densité d'électrons germes revient à augmenter significativement la durée de propagation de la décharge dans l'espace inter-électrodes.

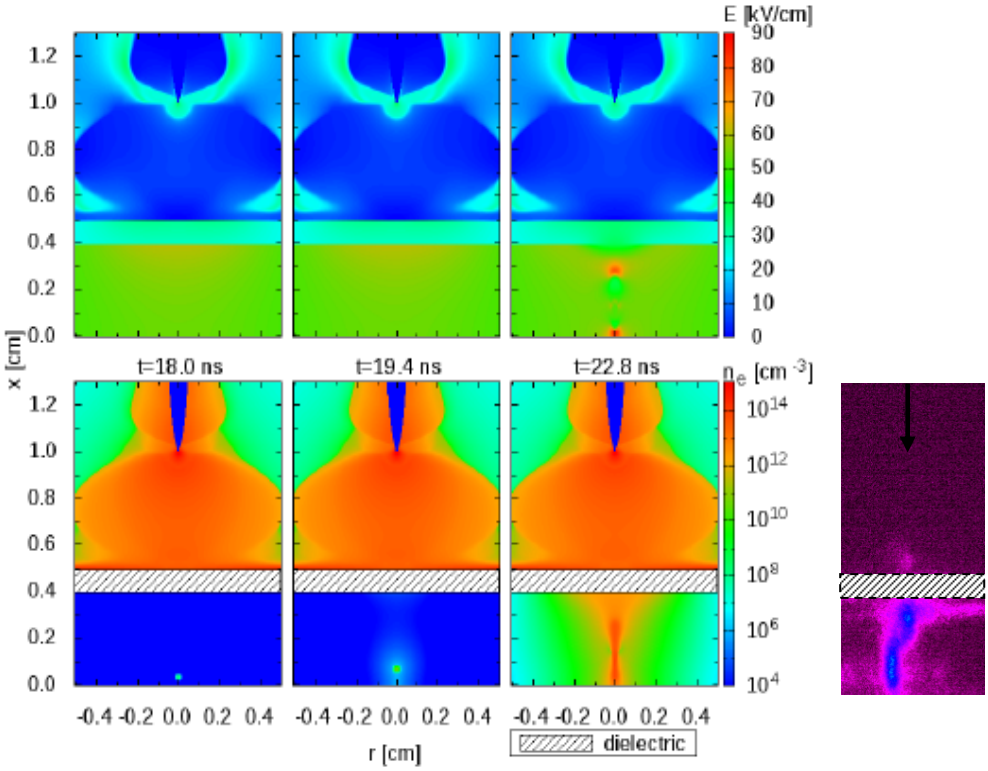


Figure 123. Ré-allumage « double-tête » dans le second gap d'air

Pour se rapprocher de la réalité, les simulations prennent en compte désormais les processus d'émission électronique à la cathode par émission de champ et par émission thermo-ionique. Les résultats obtenus montrent alors que le temps nécessaire pour émettre un électron à partir de la surface cathodique dépend fortement de paramètres comme la fonction de travail Φ de sa surface métallique et de son facteur d'amplification β, liés respectivement à la nature du matériau et à sa rugosité de surface. Néanmoins, sur la plage des valeurs de Φ et β étudiée, la durée maximale de propagation de la décharge dans l'ensemble du gap pour ce cas d'étude est de 13.2ns ce qui reste bien inférieur au délai expérimental minimal observé sous ces conditions (~18ns).

La variation de la densité électronique initiale dans l'espace inter-électrodes n'explique pas les différences observées entre l'expérience et la simulation. Nous pouvons alors nous poser la question du rôle des charges induites en surface de la membrane. Si les simulations montrent que l'apport de charges positives sur la surface en regard de la pointe et négatives sur l'autre n'a pas d'influence sur la dynamique de ré-allumage au cours de la propagation, nous avons vu qu'il pourrait perturber la dynamique de propagation radiale au voisinage de la membrane. Il est également possible que ce dépôt de charges vienne perturber l'état initial de la décharge suivante

par les propriétés d'électrets des matériaux utilisés. Comme la charge superficielle a une influence sur le phénomène de claquage du diélectrique soumis à un champ électrique élevé, et détermine également la forme de la décharge de surface [11], elle peut avoir un rôle clé sur la propagation de la décharge suivante.

D'un point de vue électrostatique, le dépôt de charges positives sur la surface du côté de la pointe va ralentir la décharge entre la pointe et la membrane par effet d'écrantage du champ, ainsi que la propagation radiale au niveau de la membrane. Le dépôt de charges négatives sur la surface du côté du plan va diminuer la probabilité de ré-allumage entre la membrane et le plan. Si l'on considère cette hypothèse, alors le dépôt de charges positives et négatives serait d'autant plus important à chaque décharge générée, jusqu'à ce qu'un nouvel évènement ne vienne décharger complètement la membrane en direction du plan, sous forme de nombreux ré-allumages intenses.

Si cette hypothèse aurait mérité d'être vérifiée plus précisément, il est néanmoins facile d'y apporter quelques pistes de réponses. En effet, en effectuant des décharges successives sur le même échantillon à une fréquence d'1Hz environ, nous nous sommes aperçus que les cas de ré-allumages devenaient de plus en plus rares mais en moyenne plus intenses. En outre, à paramètres constants, la réalisation de 50 décharges successives sur le même échantillon a conduit à deux fois moins de cas de propagation dans l'ensemble de l'espace que dans le cas où 50 décharges ont été effectuées en laissant un temps suffisamment long pour s'assurer du retour à l'état initial (10^{-3} Hz). Par ailleurs, comme l'illustre la Figure 124, les cas de propagation les plus rapides dans tout l'espace semblent coïncider avec des ré-allumages intenses et nombreux, laissant penser à un brusque déchargement de la membrane diélectrique. Enfin, ces effets de charge pourraient tout à fait être renforcés par la présence du support de membrane qui n'est pas pris en compte dans les simulations.

Pour conclure, il semblerait donc que deux processus peuvent expliquer les différences observées entre résultats expérimentaux et ceux issus de la simulation. En premier lieu, la densité électronique initiale dans le second gap d'air est un facteur prépondérant sur le délai de ré-allumage dans le second gap d'air, entre la membrane et le plan. Il se pourrait que cette dernière soit inférieure à celle utilisée de base dans le modèle inspirée de Panschesnyii et al.[10], ce qui ralentirait l'obtention des conditions de claquage dans le second gap. En second lieu, le dépôt de charges sur les surfaces de la membrane semble influencer la dynamique des ré-allumages. Les résultats tendent à démontrer que la membrane est capable de piéger des charges venant d'une part modifier la distribution spatiale initiale du potentiel pour la décharge suivante, et défavorisant d'autre part les processus de ré-allumage de l'autre côté de la membrane. Suite à une décharge qui serait stoppée par la membrane et n'arriverait pas à se propager au-delà, nous pouvons raisonnablement supposer que la décharge suivante aura encore plus de difficulté à provoquer un ré-allumage. En effet, la charge positive sur la surface de la membrane en regard de la pointe va écranter le champ et stopper la propagation radiale de la décharge. Le champ électrique au delà de la membrane augmente alors moins rapidement. Lorsque la membrane devient suffisamment chargée, alors une nouvelle décharge pourrait permettre sa brusque décharge et la faire revenir à un état initial « électriquement favorable ».

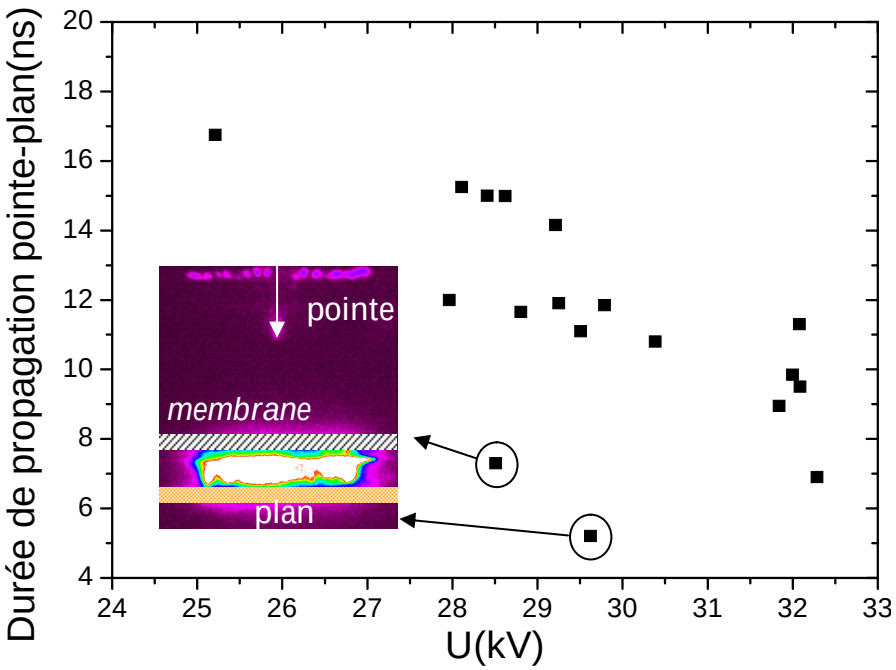


Figure 124. Propagation rapide due à une brusque décharge de la membrane

Gap_1=7.5mm ; ε_r=2.2 ; e=1mm

2. Propagation au travers de membranes poreuses

Dans le cadre du couplage des décharges à pression atmosphérique avec des surfaces catalytiques poreuses pour des applications de traitement de gaz ou de traitement de surfaces, nous devons nécessairement considérer les effets de la porosité des supports sur la dynamique des décharges. Nous entendons par porosité, la distribution aléatoire de très petites cavités aux fines parois diélectriques au sein desquelles une charge d'espace est dans la capacité de se créer et de se déplacer. Le comportement des décharges et la réactivité du plasma dans cette configuration seront donc fortement influencés par les propriétés de porosité du matériau via la taille moyenne de ses pores et sa permittivité diélectrique équivalente (tenant compte des pores). Dans l'optique d'optimiser les réacteurs de traitement, la profondeur de pénétration du plasma au sein de tels milieux poreux devient un paramètre clé.

Dans ce paragraphe, nous allons nous intéresser à une unique décharge axialement confinée par la présence d'un film poreux. Conformément au cas des membranes non poreuses, nous nous sommes attachés à réaliser une étude paramétrique de chacune des étapes de propagation de la décharge. L'épaisseur de la membrane et sa porosité seront les paramètres d'étude. Dans tous les résultats présentés, l'influence de la tension appliquée sera présentée et discutée, tout en gardant à l'esprit l'importance de l'influence de la structure de la décharge sans contrainte présentée en début de chapitre. Il est clair que les tendances qui vont se dégager aux plus hautes tensions seront plus révélatrices des influences des paramètres étudiés. En effet, pour ces tensions, le profil diffus constamment adopté par la décharge permet de s'affranchir des effets complexes liés à une structure filamentaire. Nous montrerons alors que la taille moyenne du pore est un paramètre critique aussi bien pour les vitesses de propagation que sur la morphologie de la décharge. Une comparaison directe avec l'étude faite sur les matériaux non poreux sera présentée en premier lieu, confirmant la compétition entre propagation continue au travers des pores accessibles au sein du matériau et propagation discontinue par ré-allumages obtenue dans le cas non poreux.

a. Comparaison des comportements de décharges confinées par membrane poreuse et non poreuse.

Afin de pouvoir discriminer l'hypothèse du caractère continu ou non de la propagation selon la porosité ou non de la membrane, le graphique de la Figure 125 présente la comparaison des durées de propagation totales des décharges, c'est-à-dire entre le départ présumé de la pointe et l'arrivée au plan, pour une membrane de Téflon non poreuse (ε_r = 2.2) de 500 µm d'épaisseur et une membrane poreuse d'un matériau équivalent avec une taille moyenne de pores égale à 140 µm. Dans cette expérience, les membranes sont disposées à 7,5 mm de la pointe. Nous pouvons remarquer que la décharge met davantage de temps à rejoindre le plan dans le cas non poreux, quelque soit la tension appliquée. Nous observons en effet une différence d'un facteur deux entre les délais relatifs à l'étude de la membrane non poreuse et ceux relatifs à la membrane poreuse.

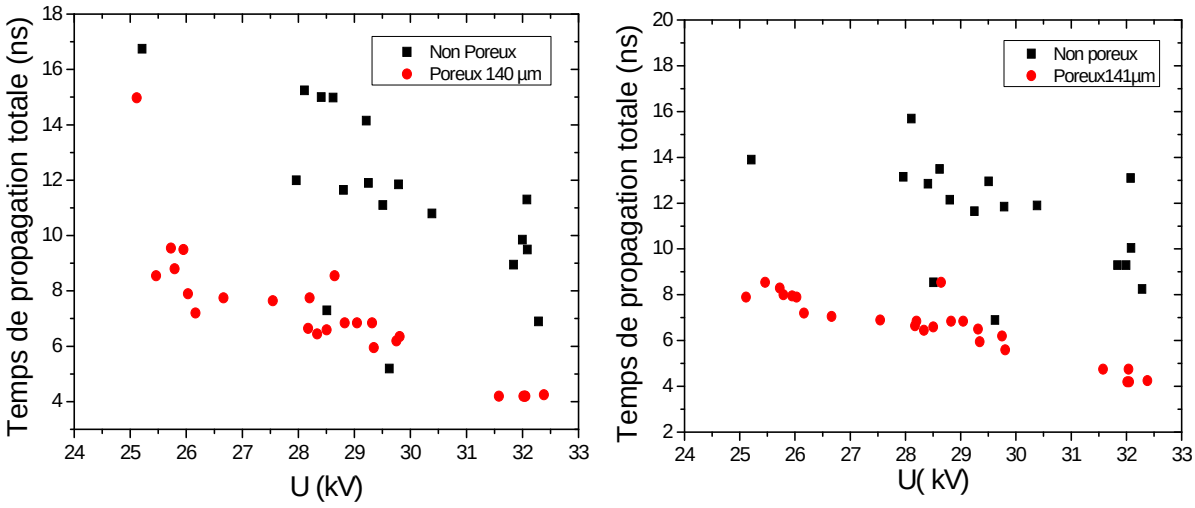


Figure 125. Comparaison des délais de propagation entre membrane poreuse et non poreuse

A gauche : via la piste centrale
A droite : via la piste 2

Il est intéressant de noter également que les différences constatées entre poreux et non poreux sont beaucoup plus importantes que celles obtenues en fonction des différentes porosités étudiées comme nous le verrons. Il semble que dans tous les cas de membranes poreuses, la décharge est toujours capable de traverser l'échantillon pour atteindre le plan. En effet, même dans le cas de très faibles porosités, la décharge trouve son chemin à travers le matériau pour se propager ensuite jusqu'à atteindre le plan. Si l'on se réfère aux résultats obtenus pour le confinement radial des décharges, nous pouvons supposer que pour des tailles de pores inférieures à 200 µm, plus les pores seront petits, plus la décharge se propagera lentement dans le matériau. A l'inverse, si la taille moyenne des pores excède 200 µm, alors la propagation de la décharge sera d'autant plus ralentie que la porosité est élevée. L'ensemble de ces résultats auquel s'ajoute la constatation de non-retour à zéro des signaux de courant après l'instant d'impact sur la membrane, confirme le caractère continu de la propagation dans le cas poreux, et discontinu dans le cas contraire.

La Figure 125 indique également que dans les cas les plus rapides de propagation pour une membrane non poreuse, précédemment identifiés comme étant révélateurs de sa brusque décharge, les durées de propagation sont équivalentes à celles observées dans le cas non poreux. Il se pourrait donc que ces cas rapides de propagation dans le cas non poreux soient en réalité dus à une propagation continue dans l'ensemble du gap du fait de micro-perçages de la membrane.

b. Etude paramétrique de la propagation pointe-membrane

La Figure 126 montre l'évolution de la vitesse de propagation entre la pointe et une membrane de 3 mm d'épaisseur aux différentes porosités. Les porosités reportées sont en réalité la taille moyenne des pores du matériau. Tous les matériaux utilisés ayant un rapport du volume total des pores sur volume total supérieur à 90 %, nous appellerons porosité du matériau la valeur de la taille moyenne des pores donnée par le

fournisseur. Ce graphique témoigne de l'influence de la porosité du film sur la première étape de propagation de la décharge. Pour des tensions inférieures à 22 kV, la vitesse semble augmenter lorsque la porosité diminue. L'amplitude de tension nécessaire pour propager la décharge vers la membrane doit être d'autant plus forte que la porosité de l'échantillon est élevée. Celle-ci semble être de 15 kV pour une porosité de 30 µm tandis qu'elle avoisine 18 kV pour une porosité autour de 170 µm. Aux tensions supérieures, cet effet semble s'inverser. Nous remarquons en effet que la décharge se propage alors plus rapidement pour des membranes dont la porosité est élevée.

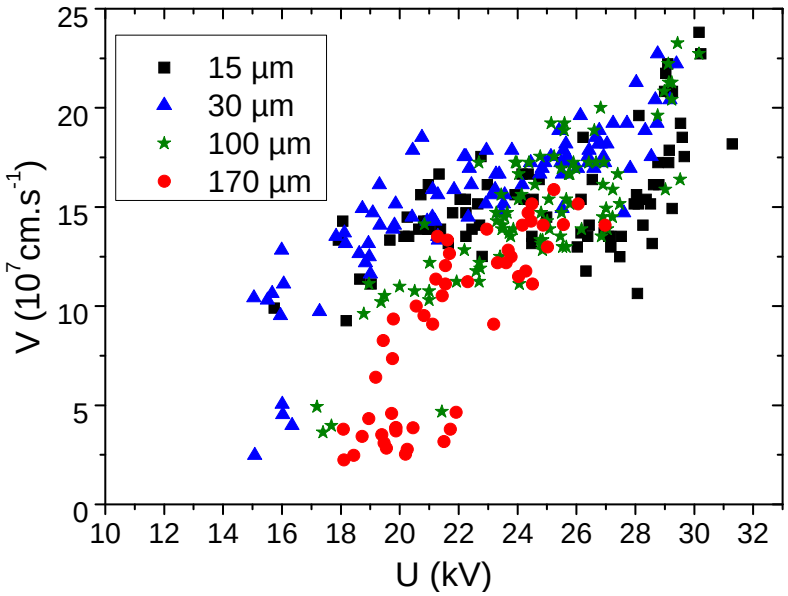


Figure 126. Vitesse de propagation pointe/membrane selon la porosité
ε_r = 2.2, e = 3 mm, gap$_1$ = 5 mm

Ces observations se confirment Figure 127, où sont reportées, pour de fortes tensions, les vitesses de propagation avant l'impact sur une membrane de Polyéthylène (PE) de 600 µm d'épaisseur et de porosité 140 µm (en rouge), comparées à celles obtenues avec une membrane non poreuse de Polytétrafluoroéthylène (PTFE) de 500 µm d'épaisseur (en noir). Etant donné que nous avons conclu au paragraphe C)1.c.1). q'une différence d'épaisseur ne pouvait pas conduire à des effets significatifs sur la vitesse, voire même plutôt que l'augmentation de l'épaisseur tendrait plutôt à la diminuer, il est raisonnable de penser que les effets observés sont bien liés exclusivement à la nature poreuse de la membrane.

Ces résultats interrogent sur l'influence que peut avoir la porosité du matériau avant même que la décharge n'ait pu interagir avec lui. Nous pouvons éventuellement supposer que la porosité induit une modification du champ électrique dans l'espace pointe/membrane par rapport au cas non poreux, ce qui engendrerait des effets sur la vitesse de propagation. Au cours de la propagation, la membrane se charge progressivement. Cette accumulation de charges contribue à diminuer le champ entre la pointe et le film. Dans le cas où la porosité est suffisamment grande, elles sont susceptibles de s'évacuer ou de se recombiner librement. Dans le cas où la porosité est réduite voire absente, l'accumulation de charges est plus importante et contribue davantage à écranter le champ entre la pointe et la membrane. Pour des tensions moins

élevées et donc pour des décharges moins puissantes, il semble que ces effets de charge ne prédominent plus. Dans ce cas, la diminution de la taille moyenne des pores du matériau pourrait induire une augmentation de la permittivité diélectrique équivalente de la membrane, à laquelle correspondrait une augmentation du champ au voisinage des surfaces et donc de la vitesse. L'hypothèse serait donc de considérer cet effet dominant à basse tension.

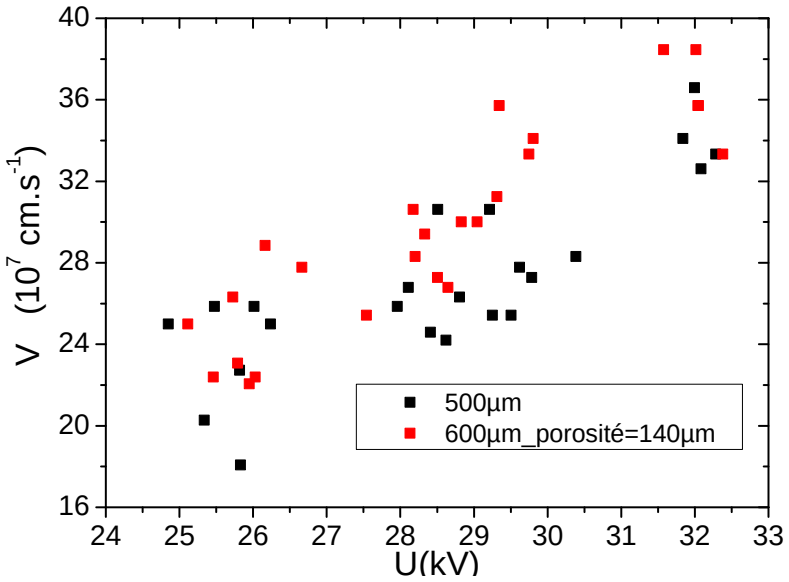


Figure 127. Effet de la porosité sur la propagation pointe/membrane à haute tension
Gap_1 = 7.5 mm, ε_r = 2.2

c. Propagation radiale au voisinage de la membrane poreuse

Après le développement de la décharge dans l'espace pointe/membrane, celle-ci atteint la membrane et s'y propage différemment selon sa porosité. Pour les plus petites porosités, la décharge est freinée dans sa propagation vers le plan de masse par le milieu poreux. Comme illustré par la Figure 128, un étalement de la décharge est clairement observé au niveau de la surface du poreux en regard de la pointe. Cet étalement semble permettre à toute la décharge de pénétrer au sein du matériau. Le graphique de la Figure 129 dresse les valeurs de l'étalement radial maximal depuis l'axe pointe plan de la décharge au voisinage des surfaces du diélectrique poreux, en fonction de la tension appliquée et de la porosité du film intercalé.

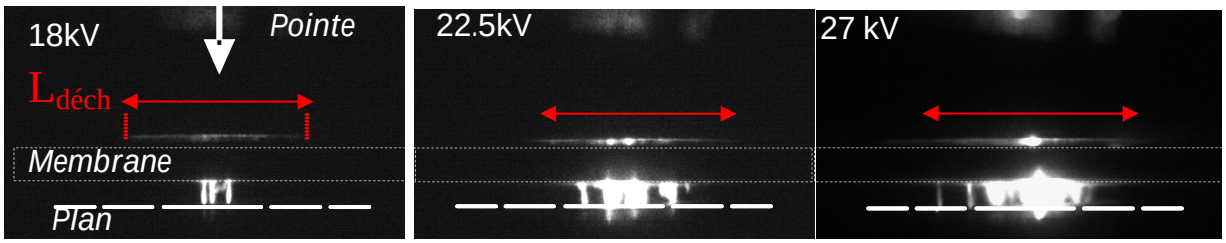


Figure 128. Images de l'étalement de la décharge sur une membrane poreuse et de sa propagation jusqu'au plan, pour différentes tensions.
Temps d'intégration = 25 ns, ε_r = 2.2, e = 3 mm, gap_1 = 5 mm, 15 µm de porosité

D'après ce graphique, la porosité semble être facteur suffisant pour changer le comportement de la décharge et sa façon de traverser la membrane pour se propager vers la cathode. Il apparaît évident que plus la porosité du matériau est petite, plus la décharge s'étale radialement en surface. Dans ce cas, si l'on observe bien un début de propagation au sein du matériau, c'est-à-dire que la décharge pénètre dans la membrane à proximité de l'impact, la décharge ne peut entièrement passer au travers. Cela implique de trouver des chemins supplémentaires pour l'ensemble des charges d'espaces créées, ce qui laisse apparaître un étalement de la décharge à partir du point d'impact. Pour des porosités de 15 et 30 µm, l'extension radiale maximale de la décharge semble décrire une relation linéaire avec la tension appliquée. A l'inverse, pour des porosités plus importantes, un plateau s'identifie clairement, indiquant un tout autre comportement de la décharge sur la surface. En effet, pour de telles porosités, la décharge pénètre et traverse le matériau instantanément après l'impact. Dans ce cas, la décharge n'a guère besoin de s'étendre radialement, et la longueur maximale de la décharge reste limitée au diamètre interne de l'anneau de constriction. Il faut appliquer 27 kV à la pointe afin d'observer un étalement de la décharge pour ces porosités.

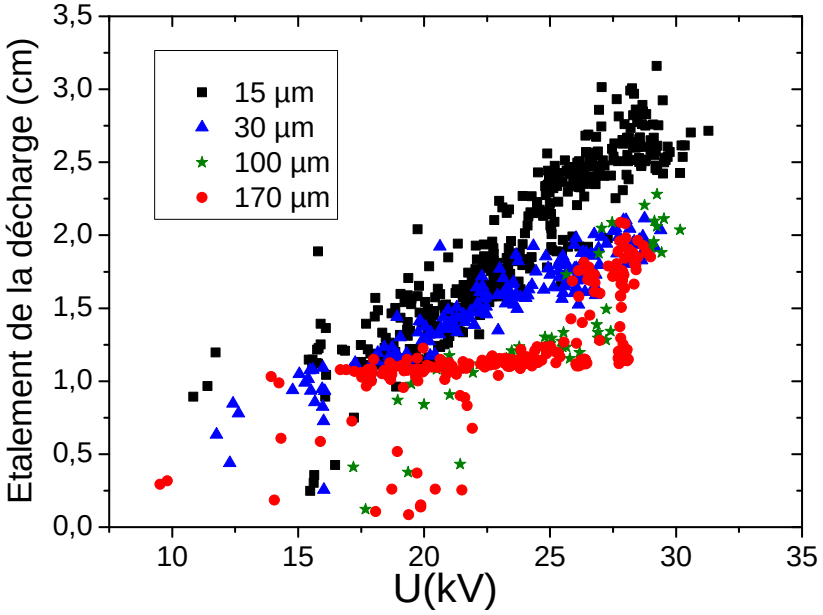


Figure 129. Etalement des décharges sur des surfaces de porosités différentes
e = 3 mm, ε_r = 2.2, gap_1 = 5 mm

Aux faibles tensions, nous pouvons également observer des comportements différents selon la porosité du film. Le graphique montre en effet que, pour une porosité donnée, il existe une valeur de tension seuil en deçà de laquelle l'étalement radial devient bien moins important et ce, de manière très aléatoire. Pour une porosité inférieure à 30 µm, cette tension seuil se trouve autour de 16 kV tandis qu'elle est autour de 22 kV pour une porosité supérieure à 100 µm. Ce phénomène peut être une conséquence du ralentissement de la décharge avant l'impact sur la membrane aux grandes porosités. La diminution de la tension appliquée va également induire une filamentation des décharges, impactant la membrane de manière plus locale, facilitant leur traversée au sein du matériau pour les plus grandes porosités et limitant ainsi leur étalement radial.

d. Effets sur la propagation membrane/plan

Nous nous intéressons désormais à la troisième étape de propagation de la décharge, issue de la traversée du film jusqu'au plan de masse, comme le montre la Figure 130. Cette étape dépend elle aussi grandement de la porosité du film intercalé dans l'espace inter-électrodes. L'influence de l'épaisseur de l'échantillon sera également discutée.

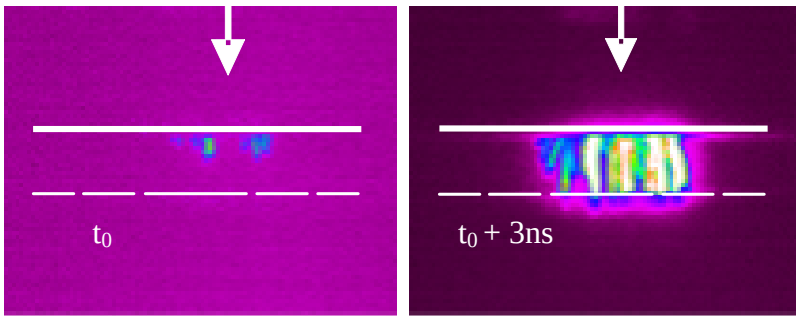


Figure 130. Propagation de la décharge de la membrane au plan de masse dans le cas d'un film poreux de 140 µm et d'une épaisseur de 600 µm à U = 22 kV.

Pour les plus petites porosités, typiquement inférieures à 50 µm, nous avons vu que les décharges ne sont pas capables de pénétrer totalement au sein du matériau et sont alors contraintes de se propager en surface de celui-ci. La membrane poreuse semble se comporter comme un matériau plein pour lequel les mécanismes de charge de surface sont dominants et pour lequel un mécanisme de ré-allumage doit être considéré. Il semble que les ré-allumages soient alors déterminés par des densités seuil de charges de surface (de l'ordre de quelques centaines de $pC.cm^{-2}$) et par des champs électriques induits au niveau de la surface supérieurs au champ critique d'ionisation (autour de 25 $kV.cm^{-1}$). Ces ré-allumages ne sont donc pas instantanés et correspondent à un processus en deux étapes. Suffisamment de charges doivent s'accumuler dans un premier temps sur la surface du matériau, ce qui est plus ou moins long selon les conditions de génération de la décharge, puis une décharge secondaire peut s'amorcer de l'autre côté de la membrane. Lorsque la porosité est plus importante, autour de 100 µm, il semblerait que la décharge puisse se propager directement au sein des pores du matériau. Il est dès lors possible que certaines charges puissent être piégées au sein des pores du matériau au cours de la propagation influençant les décharges suivantes en développant des chemins privilégiés au sein de la membrane. Afin de vérifier cette hypothèse, nous nous sommes intéressés conjointement à des échantillons d'épaisseur de 3mm aux porosités différentes, ainsi qu'à quelques échantillons poreux dont les caractéristiques sont semblables à celles étudiées dans le cas non poreux.

Dans chacun des cas étudiés, nous nous intéresserons à la fois au délai total de propagation de la décharge et au délai de propagation après impact sur la membrane. Pour ce dernier, il suffit de soustraire aux temps d'arrivées de la décharge sur chacune des pistes le temps t_2 caractéristique de l'arrivée de la décharge sur le film. Ces délais reportés concerneront à la fois ceux relatifs à la piste centrale ainsi que ceux relatifs à la piste 2.

1) Influence de l'épaisseur

L'épaisseur de la membrane possède évidement une grande influence sur la propagation de la décharge. Nous avons vu que la porosité détermine la possibilité pour la décharge de pénétrer plus ou moins facilement au sein du matériau. Pour des porosités supérieures ou égales à 100 µm, nous avons mis en évidence le fait que la décharge passe intégralement au travers des pores du film, sans s'étaler préalablement au voisinage des surfaces de celui-ci. Ainsi, pour de telles porosités, l'épaisseur ne devrait pas être un facteur influant. Le graphique de la Figure 131 montre que pour des tensions supérieures à 23 kV, il n'y a aucun effet de l'épaisseur du film sur la propagation du streamer principal. Nous observons cependant qu'en deçà de cette valeur de tension appliquée à la pointe, un effet de l'épaisseur est clairement identifiable.

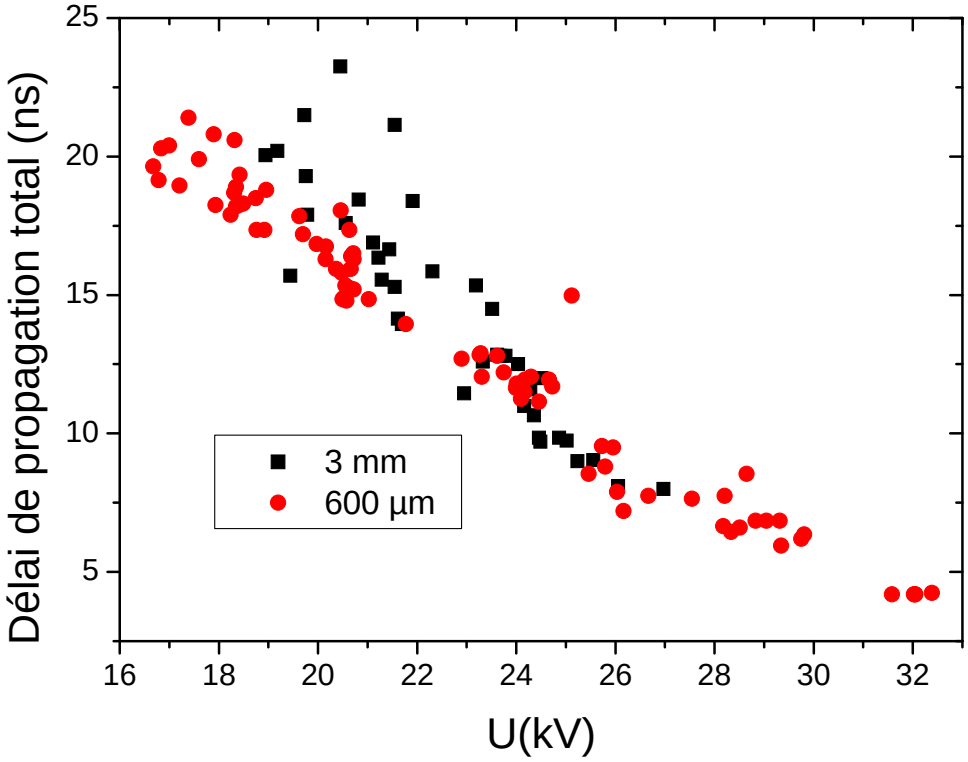


Figure 131. Délai de propagation relatif à la piste centrale pour des échantillons de 150 µm de porosité et d'épaisseur 3 mm (noir) ou 600 µm (rouge)

En premier lieu, l'épaisseur modifie la valeur seuil de la tension qu'il est nécessaire d'appliquer pour qu'une décharge parvienne jusqu'au plan. Nous remarquons que ces valeurs sont de 16.5 kV et de 19 kV pour des films de 600 µm et 3 mm d'épaisseur respectivement. Nous notons ensuite qu'entre 19 et 23 kV, les deux courbes sont distinctes, les délais reportés pour l'échantillon de 600 µm étant clairement inférieurs à ceux représentatifs de l'échantillon de 3 mm d'épaisseur. Cette différence indique qu'il est d'autant plus difficile de propager une décharge dans un matériau poreux que son épaisseur est grande. Aux tensions les plus élevées, nous ne disposons pas de données suffisantes concernant l'échantillon de 3 mm d'épaisseur pour identifier une quelconque influence sur la propagation. Les décharges générées à plus de 26 kV au travers de cet échantillon conduisaient à la création de perturbations électromagnétiques suffisamment fortes pour nuire à l'ensemble de nos outils de

diagnostics. Néanmoins, il semblerait qu'il y ait une inversion des deux courbes présentées à partir de 24 kV. Les quelques décharges reportées au-delà de 24 kV dans le cas de la membrane de 3 mm d'épaisseur semblent en effet indiquer qu'elles deviennent plus lentes que dans le cas d'un échantillon plus épais. Ces décharges, beaucoup plus lumineuses et générant beaucoup plus de courant, seraient donc globalement plus rapides que celles obtenues dans le cas d'une épaisseur de 600 µm. Cette considération ne doit néanmoins pas exclure la taille des pores qui est un facteur déterminant au regard des résultats présentés chapitre 3 à la fois sur la structure et sur la propagation de la décharge. Si l'on considère notre échantillon comme étant un assemblage plus ou moins ordonné de cavités, nous pouvons transposer les résultats obtenus chapitre 3 pour supposer le rôle de la géométrie d'un unique pore de la membrane. Dans le cas présenté Figure 131, la porosité vaut 150 µm environ. Dans le cadre de l'étude présentée au chapitre 3, pour ce diamètre de capillaire, nous avions obtenu des décharges diffuses, accélérées sous l'effet du confinement. Ainsi, aux tensions suffisamment élevées, c'est-à-dire dans le cas où le champ appliqué devient assez fort pour permettre à la décharge de traverser intégralement le matériau, il se pourrait que ce comportement se généralise à l'ensemble des pores où la décharge s'engouffre, accélérant sa propagation. L'épaisseur deviendrait alors un paramètre influant sur la propagation puisqu'elle correspond à la longueur de confinement de la décharge dans l'axe pointe/plan.

2) Influence de la porosité

L'influence de la porosité sur la troisième étape de propagation de la décharge est présentée par les graphiques de la Figure 132. Comme les influences restent faibles devant celle de l'amplitude de la tension appliquée, chaque graphique est accompagné d'un autre graphique qui est un zoom sur une plage de tension plus réduite qui rendent les influences de la porosité plus apparentes. Dans le cadre de cette étude, les échantillons étudiés possèdent tous une épaisseur de 3 mm et sont directement placés à 5 mm de la pointe. Les graphiques de la Figure 132 présentent les délais totaux de propagation, entre le départ de la pointe et l'arrivée sur la piste centrale, en fonction de la porosité du matériau et de la tension appliquée.

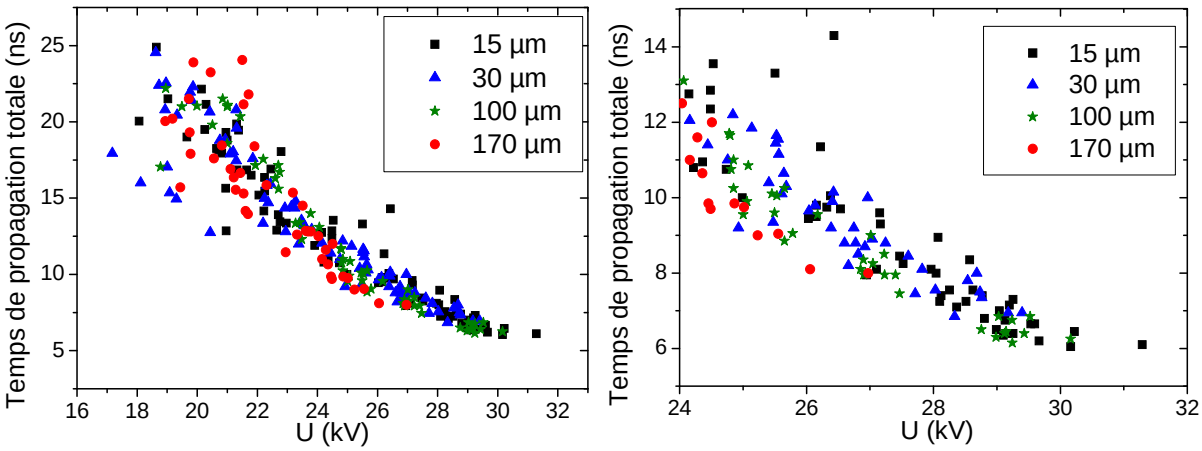


Figure 132. Délais totaux de la propagation de la décharge arrivant sur la piste centrale

Nous remarquons en premier lieu que ces délais sont étroitement corrélés à la tension appliquée. Ils varient en effet du simple au quadruple pour respectivement des amplitudes de 30 et 18 kV, et ce quelle que soit la porosité de la membrane intercalée. Il semblerait même qu'à partir de 24 kV, ces délais décrivent une relation linéaire avec la tension appliquée. Pour des tensions inférieures, les points obtenus sont quelque peu dispersés et cette relation n'est plus vérifiée. En dessous de 18 kV, aucune décharge ne parvient jusqu'au plan.

Le graphique de droite, qui présente les mêmes données que le précédent mais sur la plage de tension réduite 24 – 32 kV, montre que pour de telles tensions, la diminution de la porosité conduit à un ralentissement général de la propagation de la décharge.

Nous porterons un regard attentif à cet effet car nous rappelons que, pour de telles amplitudes, la décharge adopte une structure diffuse et est structurellement « stable ». Cette considération possède toute son importance car toute filamentation de la décharge avant son interaction avec la membrane rend une nouvelle fois difficile l'interprétation quantitative des différents phénomènes mis en jeu. L'étalement radial de la décharge peut être en effet faussé par l'arrivée d'un filament secondaire quelque part au niveau de la membrane. Les délais vont, quant à eux, être dépendants de la structure adoptée par la décharge puisque le nombre de filaments ainsi que leur taille diminuant avec la tension appliquée influencent la vitesse de propagation de la décharge ainsi que son cheminement au sein du matériau. Ainsi, à tous paramètres constants, en présence de filamentation, nous sommes sujets à de nombreuses fluctuations. Dans le cas d'une décharge diffuse, aux plus fortes tensions, il n'y a qu'une seule zone d'impact au niveau de la membrane, et dès lors l'influence des paramètres du matériau sur le cheminement de la décharge est plus facilement identifiable.

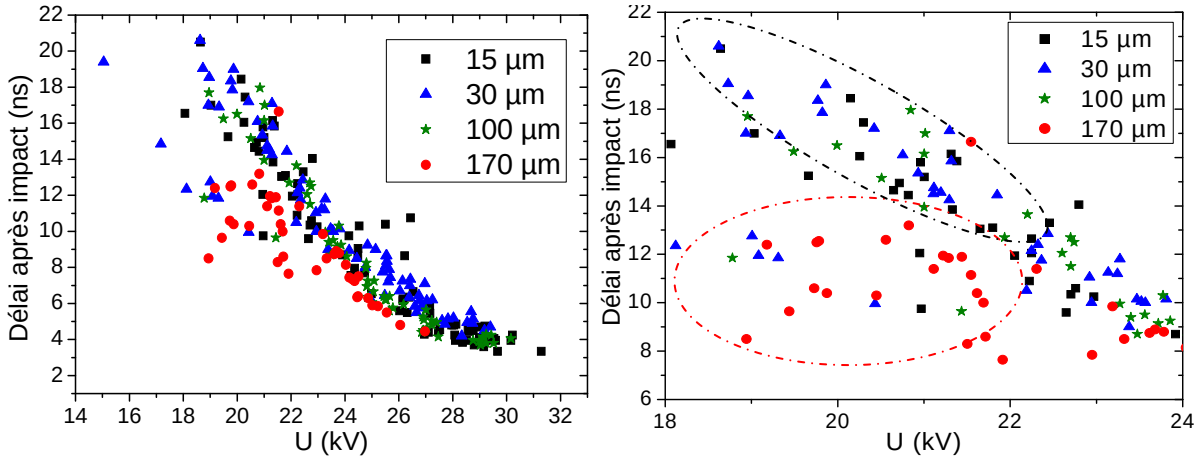


Figure 133. Délais de la propagation de la décharge arrivant sur la piste centrale du plan après impact sur la membrane

Les graphiques de la Figure 133 reportent les délais de propagation calculés entre le moment de l'impact sur la membrane et l'arrivée sur la piste centrale. L'intérêt de ces délais par rapport aux délais totaux est de s'affranchir des effets observés sur la propagation de la décharge dans l'espace pointe-membrane, et de renseigner sur la vitesse des différents phénomènes de ré-allumage au-delà de la membrane.

Nous notons, qu'en deçà de 22.5 kV, les points semblent décrire deux tendances distinctes qui dépendent de la porosité de l'échantillon. Sur le graphique de droite, un premier groupe de points, cerclé de noir, semble décrire une certaine continuité avec le cas des plus hautes tensions. Ils décrivent donc le cas où les décharges sont ralenties par la présence de la membrane. Proportionnellement au nombre de décharges réalisées par échantillon, la probabilité d'apparition de ces cas est plus forte lorsque la porosité est faible. Pour une porosité de 170 µm (rouge), aucun cas n'est recensé avant 22 kV. Pour ces tensions et concernant cet échantillon, les données relevées constituent un second groupe de données, cerclé de rouge, correspondant à des propagations beaucoup plus rapides. Ici, proportionnellement au nombre de décharges réalisées par échantillon, la probabilité augmente avec la porosité. A l'inverse, nous ne trouvons dans ce groupe aucun cas relatif à la plus petite porosité (15 µm) avant 21 kV. Considérant la diminution de la taille des filaments constituant la décharge avec la baisse de l'amplitude de la tension, il semble évident qu'en augmentant la taille des pores, la probabilité pour la décharge de traverser le matériau rapidement augmente à tension constante. Ainsi, dans le cas où la décharge est filamentaire, cette probabilité est presque totale pour une porosité de 170 µm et quasiment nulle pour une porosité de 15 µm. Nous remarquons même que plus nous diminuons la tension appliquée, plus nous augmentons la probabilité pour la décharge de traverser le matériau rapidement pour les petites porosités. Nous notons en effet la présence de cas rapides concernant la membrane de 30 µm de porosité dans le cas où la tension n'excède pas 18 kV à la pointe. Ces résultats montrent encore une fois l'importance cruciale de la structure de la décharge pour sa propagation au sein du matériau.

Afin de comprendre davantage l'influence de celle-ci, nous avons refaits la même étude en nous intéressant aux délais de propagation jusqu'à l'arrivée sur la piste 2 du plan. Les graphiques de la Figure 134 présentent les résultats obtenus. Nous observons en premier lieu que plus l'amplitude de la tension augmente, plus le nombre de décharges arrivant sur cette piste augmente. Nous rappelons qu'il n'y a pas de cas recensé au-delà de 27 kV pour la porosité de 170 µm pour cause de perturbations électromagnétiques trop importantes. Il parait en second lieu évident qu'au-delà de 24kV, diminuer la porosité revient à diminuer la vitesse de propagation de la décharge. Cependant, pour ces tensions, diminuer la porosité favorise la possibilité pour la décharge d'impacter la piste 2 en plus de la piste centrale. Cet effet est directement lié à l'étalement forcé de la décharge à la surface de la membrane pour les petites porosités. En deçà de cette tension seuil, aucune tendance ne se dégage réellement. Lorsque la tension appliquée baisse, la compétition entre l'augmentation de la probabilité de traverser rapidement le film du fait de la diminution de la taille des têtes de filaments, et à l'inverse la diminution de cette même probabilité du fait que le champ appliqué chute, rend difficile toute interprétation pour ces faibles tensions. Par ailleurs, en transposant les résultats obtenus dans le cas d'un confinement radial, nous pouvons raisonnablement supposer qu'aux faibles tensions il existe au sein des pores des régimes de propagation qui diffèrent en fonction de leur taille. Il pourrait exister pour chacune des tailles de pores étudiées une tension optimale où la décharge adopterait une structure telle que la traversée au sein du matériau en serait optimisée. Pour les plus petites porosités présentées, ce constat ne rentre pas en considération puisque la décharge et ses filaments sont trop volumineux par rapport à n'importe quelle cavité du matériau et ce quelle que soit l'amplitude de la tension appliquée.

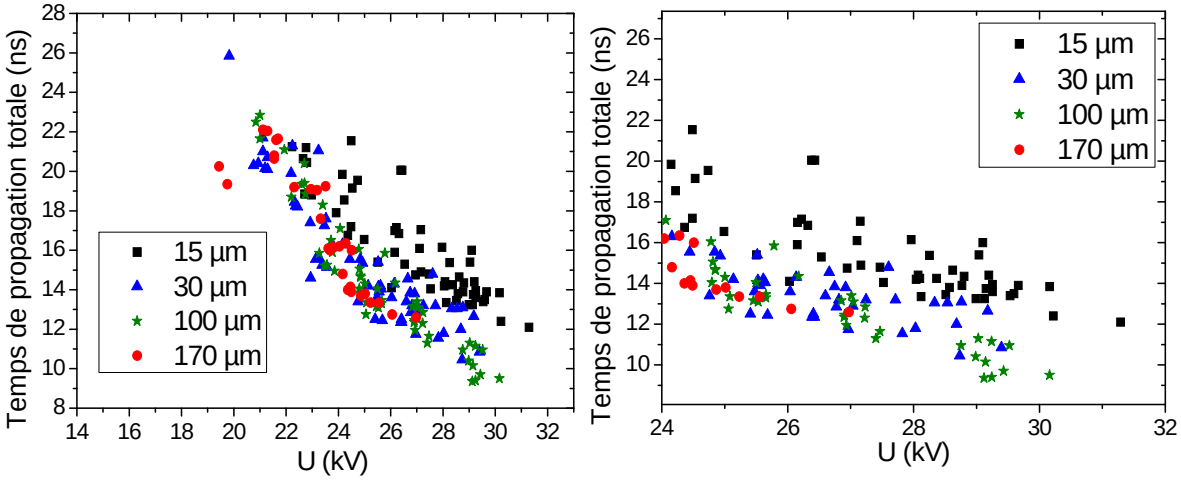


Figure 134. Délais totaux de la propagation de la décharge arrivant sur la piste 2 du plan

Les graphiques de la Figure 135 présentent les résultats obtenus pour les calculs des délais d'arrivée sur la piste 2 après impact de celle-ci sur la membrane poreuse. Ils confirment le fait que la traversée du film est d'autant plus lente que la porosité du matériau est faible. Ils suggèrent également qu'il pourrait bien avoir des cas de ré-allumages en deux étapes qui seraient les points les plus lents reportés sur les graphiques (cerclés de noir).

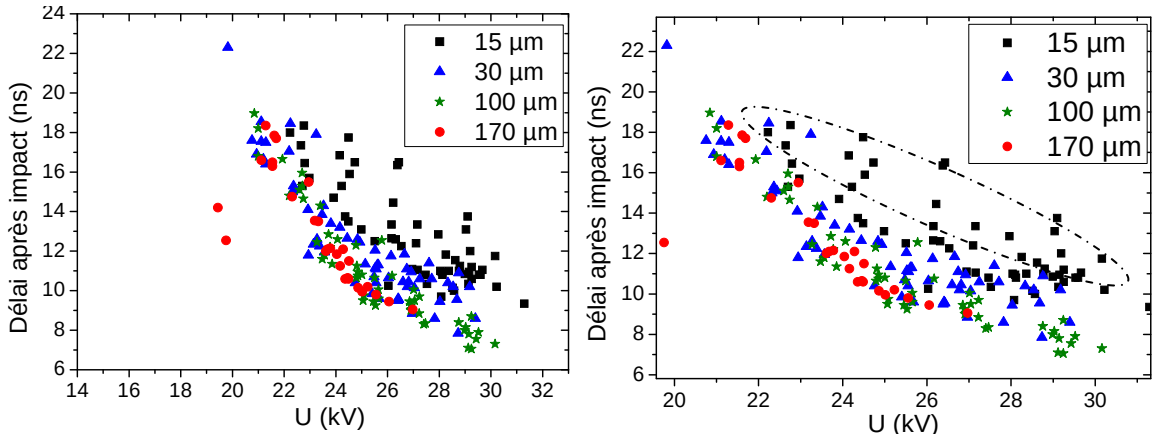


Figure 135. Délais de la propagation de la décharge arrivant sur la piste 2 après impact sur la membrane

Nous avons mis en évidence la phénoménologie de la décharge confinée par des membranes poreuses. Il est cependant délicat d'identifier clairement les différents mécanismes responsables des multiples comportements observés. Ce que l'on peut dire néanmoins c'est que la décharge présente dans tous les cas, trois phases de propagation que l'on peut distinguer comme étant la propagation dans le volume pointe/membrane, la propagation juste après l'impact de la décharge sur la membrane qui comprend à la fois une propagation radiale de la décharge en surface mais aussi la traversée du matériau par la décharge, et enfin la propagation de l'autre côté de la membrane. Pour résumer, nous pouvons dire que, pour chacune des différentes phases, les paramètres

électriques de génération de la décharge possèdent une importance cruciale dans la mesure où ils conditionnent la structure de la décharge avant l'impact. Les influences des paramètres de la membrane poreuse intercalée au sein de l'espace inter-électrodes ont eux aussi une grande importance dans le comportement de la décharge. Parmi eux, la taille de la porosité est le paramètre crucial puisqu'il détermine la facilité de la décharge à se propager au sein des pores et donc dans l'ensemble de l'espace inter-électrodes.

Conclusion

L'étude présentée dans ce manuscrit porte sur la propagation de décharges couronnes impulsionnelles à pression atmosphérique dans les milieux poreux et/ou alvéolaires. Devant la complexité des phénomènes mis en jeu, liés notamment aux interactions entre la décharge et le matériau qui la confine, les travaux ont été délibérément restreints à des géométries de confinement élémentaires. Le confinement radial des décharges a été ainsi étudié en générant le plasma directement au sein de capillaires submillimétriques. L'étude du confinement axial sur la propagation de la décharge a quant à elle été réalisée à l'aide de membranes diélectriques placées perpendiculairement à l'axe pointe plan. Pour chacune des configurations expérimentales considérées, les résultats obtenus en présence d'un confinement sont systématiquement comparés à ceux obtenus sans aucune contrainte, permettant de dégager véritablement l'influence du confinement sur la propagation. La combinaison des deux types de confinement est actuellement l'objet de nouveaux travaux. Les premières expériences réalisées sur un empilement de deux capillaires diélectriques séparés par une membrane semblent confirmer les tendances observées au cours de mes travaux de thèse, à savoir que la propagation dépend fortement de la géométrie de confinement et des conditions électriques de génération de la décharge et, dans une moindre mesure, des paramètres physiques du matériau.

En effet, dans le cas du confinement radial, la géométrie de confinement est un paramètre clé de la propagation de la décharge. Un capillaire de section carrée ou rectangulaire induit des zones de renforcement de champ au niveau des arêtes qui attirent la décharge. Dès lors que la décharge entre dans ces zones, elle vient s'y coller pour être guidée jusqu'à la cathode. Plus la section est grande, moins vite la décharge perçoit ces zones de renforcement de champ et plus elle aura la possibilité de se propager à la fois au voisinage des surfaces internes mais aussi en volume au sein du capillaire. Lorsque la section est suffisamment petite, la décharge parait homogène dans tout le volume du capillaire. Afin de s'affranchir de ces effets de champ, le confinement radial par capillaires cylindriques a été particulièrement étudié.

Dans ce cas, nous avons montré que le diamètre de confinement est le paramètre prépondérant agissant sur la propagation de la décharge. Ce diamètre joue directement sur la morphologie de la décharge dans l'espace inter-électrodes. Pour des capillaires dont le diamètre est inférieur à 300 µm, la décharge semble être homogène dans tout le capillaire. Pour des diamètres compris entre 300 et 800 µm, la décharge présente une propagation tubulaire. Enfin, pour des capillaires dont le diamètre interne est de l'ordre du millimètre ou plus, la décharge est filamentaire avec des fronts de décharges se propageant à la fois en volume et aux voisinages des surfaces internes. Le diamètre de confinement radial influence également la vitesse de propagation de la décharge au sein de l'intervalle. Quel que soit le diamètre de confinement submillimétrique utilisé, le confinement radial a pour conséquence d'accélérer la décharge. L'étude des décharges se propageant dans des capillaires de verre a également révélé l'existence d'un optimum de vitesse en fonction du diamètre interne de confinement, quelle que soit la tension

appliquée. En effet, dans le cas du verre, la vitesse semble maximale pour un capillaire de 200 µm de diamètre, semblant traduire un bon équilibre entre mécanismes d'ionisations par collisions électroniques au sein du capillaire et recombinaisons aux parois. Une étude complémentaire de spectroscopie d'émission a montré qu'indépendamment des conditions de génération de la décharge, le diamètre interne de confinement joue un rôle non négligeable sur l'échauffement du plasma. En effet, pour un capillaire de 100 µm de diamètre interne, ce dernier semble être d'environ 100 K supérieur à celui obtenu pour un capillaire de 500 µm de diamètre, ce qui pourrait contribuer à l'accélération de la décharge.

L'utilisation de capillaires de diverses natures permet de démontrer que cet optimum de vitesse existe quel que soit le matériau utilisé et pour des rayons de capillaires différents. Ces variations pourraient être associées à la dépendance des coefficients d'émission, d'attachement et de recombinaison des charges en surface, en fonction du matériau considéré. La permittivité diélectrique relative ε_r joue également un rôle non négligeable sur la vitesse de la décharge radialement confinée. Plus elle est élevée, plus la surface interne du capillaire se polarise au passage de la décharge, ce qui contribue à écranter le champ électrique appliqué. L'augmentation de la permittivité revient donc à favoriser l'effet d'écrantage et à diminuer la vitesse de propagation de la décharge. L'influence de l'épaisseur des capillaires de confinement a également été étudiée, révélant des comportements favorables à la propagation de décharges dans la seconde configuration de confinement. En effet, outre le fait que la diminution de l'épaisseur des capillaires induit une accélération de la décharge, nous avons pu observer la possibilité de « déconfiner » la décharge en utilisant des capillaires de très fines épaisseurs (~50 µm). Nous avons pu observer également la propagation de décharges dans deux capillaires distincts adjacents, l'un d'eux seulement étant soumis directement à l'impulsion haute tension.

Le second réacteur de décharges a ensuite permis l'étude du confinement longitudinal des décharges par introduction d'une membrane diélectrique de faible épaisseur perpendiculairement à l'axe pointe / plan. Pour cette étude, un large panel d'échantillons de membranes poreuses ou non a pu être testé. Quel que soit le cas étudié, nous avons tenté de mettre en évidence les conditions nécessaires à l'obtention du claquage dans l'ensemble de l'intervalle, en fonction de la position et des caractéristiques de la membrane. L'étude a révélé que la décharge axialement confinée se propage en trois étapes : la propagation dans l'espace pointe / membrane, la propagation radiale au voisinage de la surface de la membrane en regard de la pointe, et la propagation dans le second intervalle, entre la membrane et le plan de masse. Pour chacune de ces étapes, les diverses influences des paramètres mis en jeu comme la position de la membrane, son épaisseur et sa permittivité diélectrique, sous l'effet de la tension appliquée, ont été étudiées.

Dans le cas des membranes non poreuses, une phase intermédiaire entre la première et la deuxième étape a pu être observée. Au moment de l'impact de la décharge sur la membrane, nous avons observé un bref instant de latence correspondant à l'extinction de la décharge entre la pointe et la membrane suite à l'écrantage du champ sous l'effet des charges positives déposées. Ce délai semble aussi correspondre à la formation de fronts lumineux se propageant ensuite radialement au voisinage de la membrane. Cette phase de réorganisation des charges et de restructuration du champ

électrique dans l'espace est identifiée par l'annulation du courant capacitif après l'impact. Ainsi, dans le cas non poreux, la décharge est stoppée par la membrane et sa propagation est discontinue. Toutefois, la propagation peut se faire sur l'ensemble de l'espace inter-électrodes si les conditions de claquage sont atteintes dans le second intervalle grâce à des ré-allumages. La position relative de la membrane est un paramètre déterminant pour l'obtention de ces ré-allumages et son rapprochement du plan permet d'accélérer la propagation de la décharge dans l'intervalle pointe / membrane et de favoriser les conditions de claquage dans l'intervalle membrane/plan, réduisant la barrière de potentiel induite par la membrane. Ce résultat est cohérent avec l'effet de l'augmentation de l'épaisseur de la membrane qui, impliquant dans l'étude une diminution de l'espace membrane/plan, facilite également les ré-allumages. D'autres résultats ont permis d'observer enfin qu'une diminution de la valeur de la permittivité diélectrique favoriserait là encore la propagation des décharges dans l'ensemble du gap.

Si la distance membrane / plan semble être un critère prépondérant des conditions de maintien de la propagation de la décharge dans l'ensemble du gap, elle joue également un rôle sur la dynamique de la décharge se propageant au voisinage de la membrane. En effet, lorsque celle-ci est grande, la vitesse de propagation radiale dépend de ε_r/e, c'est-à-dire des caractéristiques capacitives de la membrane. Lorsque l'on diminue cette distance, la dynamique des charges de surface de part et d'autre de la membrane qui implique un renforcement du champ dans le volume membrane / plan, suite à l'impact de la décharge sur la membrane, influence la propagation radiale. En effet, celle-ci ne dépend plus de ε_r/e mais semble dès lors dépendre du rapport de la composante axiale du champ sur la composante radiale de celui-ci. Outre les caractéristiques de la membrane, la composante axiale va dépendre notamment de l'effet d'écrantage provoqué par le dépôt de charges négatives au voisinage de la surface de la membrane orientée vers le plan, tandis que la composante radiale va quant à elle dépendre fortement de la structure de la décharge, filamentaire ou non au moment de l'impact. Ainsi, plus le dépôt de charges négatives sera faible, plus la propagation radiale sera facilitée au voisinage de la membrane. Comme celui-ci est moindre dans le cas de fortes épaisseurs et de faibles permittivités, la propagation radiale tend même à dépendre de e/ε_r.

L'étude du confinement longitudinal par des membranes poreuses a démontré le caractère continu de la propagation de la décharge dans l'ensemble de l'intervalle pointe/plan. Les délais de propagation sont en effet beaucoup plus courts, et nous n'observons pas d'annulation des courants à la suite de l'impact. Une partie de la décharge passe directement au travers des pores accessibles et l'autre s'étale suffisamment afin de pouvoir traverser intégralement le matériau. Les paramètres électriques de génération de la décharge possèdent une importance cruciale dans la mesure où ils conditionnent la structure de la décharge avant l'impact. Les caractéristiques de la membrane poreuse intercalée ont-elles aussi une importance considérable dans le comportement de la décharge. Parmi elles, la porosité définie comme étant la taille moyenne des pores, est un paramètre crucial puisqu'il détermine la facilité de propagation de la décharge au travers du matériau et par la suite l'obtention du claquage de l'intervalle complet.

L'ensemble des configurations réalisées au laboratoire a été modélisé afin de confronter les résultats expérimentaux à ceux de la simulation réalisée au laboratoire

EM2C. La comparaison des résultats a donné naissance à plusieurs publications qui témoignent de l'excellent accord dans le cas sans contrainte notamment. Dans le cas du confinement radial des décharges, un très bon accord est établi aux faibles tensions. Lorsque la tension augmente, les résultats divergent davantage mais présentent néanmoins la même dépendance devant les paramètres étudiés (rayon interne de confinement, permittivité diélectrique…). Comme les simulations ne permettent pas de modéliser un capillaire de diamètre interne inférieur à 200 µm, nous n'obtenons pas dans ce cas une valeur optimale du diamètre de confinement quant à la vitesse de propagation en son sein.

Dans le cas du confinement longitudinal, les simulations donnent la même phénoménologie du développement de la décharge, en trois étapes. D'un point de vue plus quantitatif, nous observons des délais de propagation dans l'ensemble du gap bien plus importants que dans la simulation. Ces différences observées posent le problème des charges rémanentes sur les surfaces de la membrane diélectrique d'un coup sur l'autre. Il se pourrait en effet que l'état initial diffère d'une décharge à l'autre et modifie ainsi la dynamique de propagation au sein de l'intervalle. Par ailleurs, l'absence du support dans les modélisations, dont l'influence a pourtant été révélée comme étant non négligeable sur la dynamique de la décharge expérimentalement, pourrait contribuer aux différences quantitatives observées. Une analyse des courants plus détaillée en retranchant par exemple les contributions capacitives, le calcul des densités de charges en surface post décharge, ou encore tester le caractère opaque ou non de la membrane qui détermine le coefficient de photo-ionisation et donc la pré-ionisation du second gap seraient des approches intéressantes expérimentalement afin de vérifier les différentes hypothèses formulées qui seraient responsables de ces désaccords.

Pour conclure sur ces travaux qui contribuent à la compréhension des mécanismes d'interactions plasma / surface dans le cas de décharges confinées par l'ensemble des résultats proposés, nous aurions aimé évoquer le développement de ces mêmes décharges au sein de structures plus complexes. L'étude d'une décharge confinée axialement par un empilement de membranes devrait être réalisée afin de vérifier les divers effets rapportés dans ce manuscrit. La combinaison de ces deux confinements se doit également d'être étudiée dans l'optique d'une généralisation à un milieu poreux complexe tel qu'un monolithe de cordiérite. C'est pourquoi il avait été prévu de faire propager directement une décharge au sein d'un empilement de deux capillaires séparés par une membrane. Cette expérience, mise en place aujourd'hui, semble donner des prémices de résultats encourageants puisqu'à la fois le diamètre de confinement et les propriétés de la membrane semblent modifier la vitesse de propagation au sein du second capillaire. Ils montrent également que le dépôt de charge au niveau de la membrane est prépondérant sur la dynamique de la décharge. En effet, à tout paramètre constant, la vitesse de propagation dans le second gap semble dépendre de la fréquence des coups effectués, qui témoignent d'une modification de l'état initial d'une décharge sur l'autre.

Annexes

Annexe 1 : Que sont les COV et les NOx ?

Les COV sont des composés carbonés dont la particularité de s'évaporer facilement dans des contions normales de température et de pression a pour conséquence d'augmenter leur difficulté de traitement et leur dangerosité. Précurseurs de l'ozone troposphérique, ce sont des gaz à effet de serre. Certains sont irritants, d'autres allergènes ou mutagènes, voire cancérigènes pour l'homme.

L'émission des COV provient de sources aussi diverses que nombreuses, de l'industrie manufacturière à l'agriculture, en passant par le secteur résidentiel. L'Europe et plus particulièrement la France se sont engagées via le protocole de Göteborg afin de réduire les émissions des COV entre 1999 et 2010. A travers ce protocole, la France s'est engagée à faire passer ses émissions de 2300kT en 1998 à 1100kT en 2010. Ce protocole est en cours de révision et devrait imposer un nouvel objectif à la France pour l'horizon 2020 autour de 20% de réduction en émission supplémentaire. Si la feuille de route fût respectée en 2010, cela est principalement dû à la substitution des COV par des produits biochimiques, ou encore par l'émergence de procédés de filtration sur les principales sources de polluants atmosphériques que sont les cheminées d'usines… Dans le cas contraire, l'industrie eût recours à des techniques pour le traitement des COV plus ou moins bien maîtrisées que sont l'incinération thermique et catalytique, l'adsorption (sur lit de charbon actif, la condensation, la biofiltration, la séparation membranaire ou encore l'oxydation par rayonnement ultraviolet. Ces procédés, souvent très énergétiques, sont souvent peu efficaces pour des flux de gaz modérés contenant de faibles concentrations de polluants.

Les NOx sont également une famille de composés à risques. Le protoxyde d'azote N2O ou gaz hilarant est un puissant gaz à effet de serre. Le dioxyde d'azote NO2 et le monoxyde d'azote NO sont des gaz irritants, nocifs, précurseurs de l'ozone troposphérique, qui peuvent entraîner des insuffisances respiratoires voire une hyperactivité bronchique. Ils peuvent également contribués au phénomène des pluies acides. D'après le CITEPA (centre interprofessionnel technique d'études de la pollution atmosphérique) en 2008, le transport routier est la principale cause responsable de l'émission des NOx (environ 52 %), suivi par le secteur de l'agriculture avec 14 % des émissions puis le secteur de l'industrie manufacturière (12 %).

Annexe 2 : Le modèle numérique développé à l'EM2C par l'équipe d'A. Bourdon

Le paragraphe suivant va décrire les principales caractéristiques du modèle fluide développé à l'EM2C pour l'étude des décharges nanosecondes contraintes radialement. N'ayant pas développé ce modèle, le lecteur pourra se référer aux articles [3 chapitre 3 et 6 chapitre 4] qui offrent une compréhension plus exhaustive de ce dernier. Ce modèle numérique est un modèle fluide classique fondé sur les équations de continuité des électrons et des ions couplées à l'équation de Poisson afin de simuler la propagation en coordonnées cylindriques (x,r). Différents coefficients sont utilisés dans l'équation de Poisson afin de modéliser les permittivités diélectriques associées à l'air et au capillaire utilisé.

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} + \vec{\nabla}.\vec{j}_i = S_i$$
$$\vec{\nabla}.(\varepsilon\vec{\nabla}V) = -\sum_i q_i n_i - \sigma\delta_s$$

Où :

- i représente les différentes espèces mises en jeu (électrons, ions positifs et négatifs),
- n_i la densité de l'espèce,
- J_i le flux calculé selon l'approximation de drift-diffusion suivante :

$$\vec{j}_i = \mu_i n_i \vec{E} - D_i \vec{\nabla} n_i$$

où D_i et μ_i sont respectivement les coefficients de diffusion et de mobilité de l'espèce i et $\vec{E}$ le champ électrique.

- S_i le terme source,
- q_i la charge de l'espèce considérée.
- V représente le potentiel,
- ε la permittivité
- σ la densité de charges de surface
- δ_s la contribution des charges de surface.

Les concentrations des espèces donnent le champ via l'équation de Poisson. Le courant suit l'approximation de Drift-Diffusion et ferme ce système non-linéaire. Les termes sources correspondent à l'ionisation par collision électronique, la photo-ionisation, les termes de pertes sont l'attachement et la recombinaison. Ce modèle a été largement validé par de nombreuses expériences numériques durant les vingt dernières années.

Les paramètres de transport et les coefficients de réactions présents dans le modèle sont issus de [Morrow et Lowke,1997]. Ce sont des fonctions du champ électrique réduit (E/N), où E est la valeur du champ électrique et N, fixé à $2.45*10^{25}$ cm^{-3}, est la valeur de la densité des neutres dans l'air. Quant au terme source de photoionisation, celui-ci est pris sur la base des résultats publiés dans [Bourdon et al 2007] avec des conditions limites données dans [Liu 2007]. Un maillage fin et adapté est utilisé dans la zone de propagation de la décharge, typiquement de 5µm jusqu'à simplement 1µm dans la zone proche de la pointe. Enfin, les processus d'émission des surfaces n'ayant que très peu d'influence sur la propagation des décharges, seuls les

processus d'émission secondaire d'électrons par bombardement ionique sont considérés avec un coefficient d'émission secondaire égal à 0.1. Cette forte valeur permet d'intégrer les autres processus d'émission secondaire comme la photoémission, l'émission secondaire d'électrons par collisions de métastables et l'émission de champ.

Annexe 3 : adaptation en impédance

Soit une ligne de longueur l, alimentée à une extrémité par un générateur et fermée à l'autre extrémité sur une impédance ZR. Pour faire l'étude de la propagation le long de la ligne du signal, il faut modéliser la ligne en la décomposant en une suite de quadripôles mis en cascade. Nous pouvons schématiser en effet une très petite longueur dx de ligne de la manière suivante :

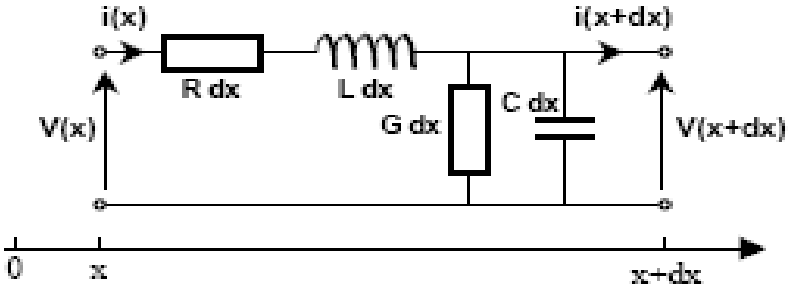


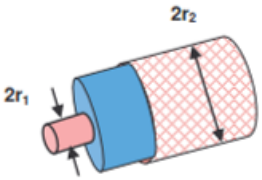
Schéma d'une petite longueur dx de la ligne de transmission

Où :
- R et L représentent la résistance et l'inductance du conducteur par unité de longueur (R en Ω.m-1 et L en H.m-1).
- G et C représentent respectivement la conductance et la "capacité" de l'isolant par unité de longueur (G en S.m-1 et C en F.m-1).

Pour un câble coaxial, la capacité linéique de la ligne peut s'écrire :

$$C = \frac{2\pi\varepsilon_0\varepsilon_r}{\ln(\frac{r_2}{r_1})}$$

avec r1 et r2 les rayons respectifs de l'âme du câble coaxial et de la gaine de ce même câble :



L'inductance linéique s'écrit quant à elle :

$$L = \frac{\mu_0\mu_r}{2\pi}\ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right)$$

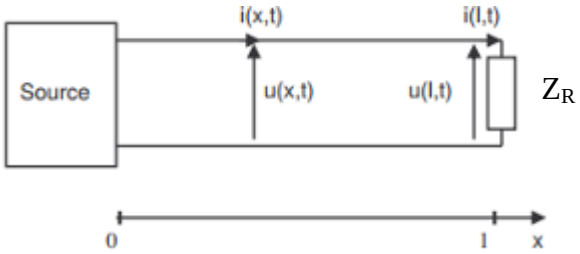
Lorsque le fil est infini (pas de réflexion en bout de ligne), on définit l'impédance caractéristique ZC de la ligne par :

$$Z_c = \sqrt{\frac{R + jL\omega}{G + jC\omega}}$$

Dans ces expériences, nous avons utilisé des câbles coaxiaux haute tension dont l'impédance est égale à ZC = 50 Ω.

La résolution des équations de propagation du signal (équations des télégraphes) dans la ligne amène à une superposition d'une onde incidente et d'une onde réfléchie.

On a en tout point de la ligne :



$$i(x,t) = \hat{I}_1 \cos\omega\left(t - \frac{x}{c}\right)$$

$$u(x,t) = \hat{U}_1 \cos\omega\left(t - \frac{x}{c}\right)$$

Qui donne après calculs les équations suivantes, nommées équations des télégraphistes :

$$\frac{d^2u}{dx^2} = LC\frac{d^2u}{dt^2}$$

Où i(x,t) et u(x,t) sont solutions de deux équations identiques qui possèdent donc des formes identiques qui témoignent de la présence d'une onde incidente et d'une onde réfléchie. Ces deux ondes se propagent à la même vitesse :

$$c = \frac{1}{\sqrt{LC}}$$

l'une se propageant de l'alimentation à la pointe, l'autre de la pointe à l'alimentation.

On a donc :

$$i(x,t) = \hat{I}_1 \cos\omega\left(t - \frac{x}{c}\right) + \hat{I}_2 \cos\omega\left(t + \frac{x}{c}\right)$$

$$u(x,t) = \hat{U}_1 \cos\omega\left(t - \frac{x}{c}\right) + \hat{U}_2 \cos\omega\left(t + \frac{x}{c}\right)$$

Bibliographie

Chapitre1

1. A. Rousseau, J-L. Raimbault, “Cours de Physique des Plasmas Froids”, Ecole Polytechnique 2008

2. U Kogelschatz, B Eliasson, W Egli, “From ozone generators to flat television screens: history and future potential of dielectric-barrier discharges”, *Pure Appl. Chem.*, 1999, Vol. **71**, n°10, 1819-1828,

3. U Kogelschatz, “Twenty Years of Hakone Symposia: From Basic Plasma Chemistry to Billion Dollar Markets”, *Plasma Processes and Polymers*, 2007, Vol.**4**, n°7-8, pp678-681.

4. K H Becker, U Kogelschatz, K H Schoenbach, RJ Barker, “Non-Equilibrium Air Plasmas at Atmospheric Pressure”, 2004

5. E Moreau, , “Airflow control by non-thermal plasma actuators”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 2007, Vol. **40**, n°3, 605

6. J Pons, E Moreau, G Touchard, “Asymmetric surface dielectric barrier discharge in air at atmospheric pressure: electrical properties and induced airflow characteristics”, J. Phys. D: Appl. Phys., 2005, Vol. **38,** n°19, *3635*,

7. S Han, Y Lee, H Kim, GH Kim, J Lee JH Yoon G Kim, “Polymer surface modification by plasma source ion implantation”, *Surface and Coatings Technology,* 1997, Vol. **93**, Issues 2–3, pp 261–264,

8. E.M. Liston, L. Martinu, M.R. Wertheimer, “Plasma surface modification of polymers for improved adhesion: a critical review”, *Journal of Adhesion Science and Technology*, 1993, Vol.7, Issue 10, pp 1091-1127,

9. P.K Chu, J.Y Chen, L.P Wang, N Huang, “Plasma-surface modification of biomaterials”, *Materials Science and Engineering: R: Reports,* 2002, Vol.**36**, Issues 5–6, pp 143–206,

10. M Strobel, CS Lyons, KL Mittal, “Plasma Surface Modification of Polymers : relevance to adhesion“,1994

11. R. Morent N. De Geyter, J. Verschuren, K. De Clerck, P. Kiekens, C. Leys, “Non-thermal plasma treatment of textiles”, *Surface and Coatings Technology*, 2008, Vol. **202**, Issue 14, pp 3427–3449,

12. T Yamamoto, M Okubo, N Imai, Y Mori, “Improvement on hydrophilic and hydrophobic properties of glass surface treated by nonthermalplasma induced by silent corona discharge”, Plasma chemistry and plasma, 2004, Vol.24, n°1, pp 1-12

13. K Teshima, H Sugimura, Y Inoue, O Takai, A Takano, “Transparent ultra water-repellent poly(ethylene terephthalate) substrates fabricated by oxygen plasma treatment and subsequent hydrophobic coating”, *Applied Surface Science,* 2005, Vol.**244**, Issues 1–4, pp619–622

14. H H Kim, Plasma Processes and Polymers, 2004, “Nonthermal Plasma Processing for Air-Pollution Control: A Historical Review, Current Issues, and Future Prospects”, Vol.**1**, Issue 2, pp 91–110,

15. M Laroussi, “Low Temperature Plasma-Based Sterilization: Overview and State-of-the-Art”, *Plasma Processes and*

Polymers, 2005, Vol.**2**, Issue 5, pp 391–400,

16. M Laroussi, “Non-thermal decontamination of biological media by atmospheric-pressure plasmas: review, analysis, and prospects”, *Plasma Science IEEE Transactions on*, 2002, Vol.**30**, Issue n° 4, pp 1409-1415

17. Ritz, “Surface discharge field strength for insulators”, *Arch, fur Elek.*, 1932,Vol.**26**, pp58

18. Y P Raizer “Gas Discharge Physics”, *Springer Verlag Berlin Heidelberg*, 1991

19. Y D Korolev, G A Mesyats, “Physics of pulsed breakdown in gases”, *Laser Physics*, 1999, Vol.**9**, n°6.

20. Stariskovskaia, “Pulsed breakdown at high overvoltage: development, propagation and energy branching”, *Plasma Sources Sci. Technol.,* 2001, Vol.**10**, pp344–355

21. J M Meek, J D Craggs, “Electrical breakdown of gases”,1978

22. E H Baksht, A G Buraschenko, I D Kostyrya, M I Lomaev, D V Rybka, M A Shulepov, V F Tarasenko, “Runaway-electron-preionized diffuse discharge at atmospheric pressure and its application”, *Journal of Physics D: Applied Physics,* 2009, Vol.**42**, n°18, 185201

23. V F Tarasenko, E K Baksht, A G Burachenko, I D Kostyrya, M I Lomaev, D V Rybka, “Supershort avalanche electron beams and X-rays in atmospheric-pressure air”, *Technical Physics*, 2010, Vol.**55**, Issue n°2, pp 210-218

24. K H Becker, U Kogelshatz, K H Schoenbach, R J Parker, “Non equilibrium air plasmas at atmospheric pressure”, *IOP*, 2005

25. A Fridman, A Chirokov, A Gutsol, “Non-thermal atmospheric pressure discharges”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2005, Vol.**38**, n°2

26. S Pancheshnyi, M Nudnova, A Starikovskii, *“Development of a cathode-directed streamer discharge in air at different pressures: experiment and comparison with direct numerical simulation”, Phys. Review E*, 2005, Vol.**71**, 016407

27. S Pancheshnyi, “Role of electronegative gas admixtures in streamer start, propagation and branching phenomena”, *Plasma Sources Sci. Technol.*, 2005, Vol.**14**, pp645

28. J M Meek, “A Theory of Spark Discharge”, Phys. Rev.,1940,Vol.**57**, 722

29. L B Loeb, J M Meek, “The mechanism of the electric spark”, 1941, (Stanford : Stanford University Press)

30. H Raether, “Electron avalanches and breakdown in gases”, 1964, (London Butterworth)

31. A A Kulikovsky, “The role of photoionization in positive streamer dynamics”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*,2000, Vol.**33**, pp 1514-1524

32. S V Pancheshnyi, S M Starikovskaia, A Y Starikovskii, “Role of photoionization processes in propagation of cathode-directed streamer”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*,2001, Vol.**34**, pp 1-11

33. A. Gilbert, F Bastien, "Fine structure of streamer," *J.Phys.D: Appl.Phys.*, 1989, Vol.**22**, pp. 1078-1082,

34. A Luque, V Ratushnaya, Ute Ebert ,“Positive and negative streamers in ambient air: modeling evolution and velocities”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 2008, Vol.**41**, n°23

35. S Pancheshnyi, M Nudnova, A Starikovskii, “Development of a cathode-directed streamer discharge in air at

different pressures: Experiment and comparison with direct numerical simulation", Phys. Rev. 2005, E 71, 016407

36. U Kogelschatz, "Filamentary, patterned and diffuse barrier discharges", *Plasma Science, IEEE Transactions on,* 2002

37. K H Schoenbach, R Verhappen, T Tessnow, and F E Peterkin, "Microhollow cathode discharges", *Appl. Phys. Lett.*, Vol.**68**, n°13

38. EE Kunhardt, "Generation of large-volume, atmospheric-pressure, nonequilibrium plasmas", *Plasma Science, IEEE Transactions on*, 2000, Vol.**28** , Issue n°1, pp 189-200.

39. D K Brandvold, P Martinez, D Dogruel, "Polarity dependence of N2O formation from corona discharge", 1989, *Atmospheric Environment (1967),* Vol.**23**, Issue 9, pp1881–1883

40. B. M. Penetrante, S. E. Schultheis, "Non-Thermal Plasma Techniques for Pollution Control", *Springer Verlag,* 1993

41. U Kogelschatz, "Atmospheric-pressure plasma technology", *Plasma Phys. Control. Fusion*, 2004, Vol.**46,** B63,

42. A. Kuppermann, M. Burton, *Radiat. Res.* 1959, 10, 636.

43. W Siemens, *Poggendorffs Ann. Phys. Chem.*, 1857, Vol.**102**, 66
Energy Fuels, **1998**, *12* (6), pp 1191–1199

44. F G Cottrell, "A CORPO"- US Patent 895,729, 1908 - Google Patents

45. J Sikich, "Corona discharge apparatus",- US Patent 3,979,193, 1976 - Google Patents

46. M Sato, T Ohgiyama, J S Clements, "Formation of chemical species and their effects on microorganisms using a pulsed high-voltage discharge in water", *Plasma Science IEEE Transactions on*, 1996, Vol.**32**, Issue n°1, pp 106 – 112,

47. A Mizuno, J S Clements, R H Davis, "A method for the removal of sulfur dioxide from exhaust gas utilizing pulsed streamer corona for electron energization", *Industry Applications, IEEE Transactions on*, 1986, Vol.**IA-22** , Issue n°3, pp 516-522,

48. L R O'hare, "Nitrogen fixation by electric arc and catalyst", Google US Patents 4451436 A, 1984

49. V Hessel, A Anastasopoulou, Q Wang, G Kolb, J Lang, "Energy, catalyst and reactor considerations for (near)-industrial plasma processing and learning for nitrogen-fixation reactions", *Catalysis Today*, 2013, Vol.**211**, pp9-28

50. V Hessel, G Cravotto, P Fitzpatrick, B S Patil, J Lang, W Bonrath, "Industrial Applications of Plasma, Microwave and Ultrasound Techniques: Nitrogen-Fixation and Hydrogenation Reactions", *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification,* 2013, Vol.**71**, pp 19–30

51. O Mutaf-Yardimci, A V Saveliev, A A Fridman, L A Kennedy, "Employing plasma as catalyst in hydrogen production", *International Journal of Hydrogen Energy,* 1998, Vol.**23**, Issue 12, pp 1109–1111

52. S Tanabe, H Matsuguna, K Okitsu, H Matsumoto, "Generation of hydrogen from methanol in a dielectric-barrier discharge-plasma system", *Chemistry Letters*, 2000, Vol. **29**, n°.10, pp-1116-1117.

53. Y F Wang, Y S You, C H Tsai, L C Wang, "Production of hydrogen by plasma-reforming of methanol", *International journal of hydrogen energy*, 2010, Vol.35, pp9637-9640

54. H Kabashima, H Einaga, S Futurama, Chemistry Letters, "Hydrogen generation from water with nonthermal plasma", 2001, Vol. **29**, n°.10, pp.1116-1117.

55. M Deminsky, V Jivotov, B Potapkin, V Rusanov, “Plasma-assisted production of hydrogen from hydrocarbons”, *Pure Appl. Chem*, 2002, Vol.**74**, n° 3, pp.413-418

56. B Sarmiento, J J Brey, I G Viera, A R González-Elipe, J Cotrino, V J Rico, “Hydrogen production by reforming of hydrocarbons and alcohols in a dielectric barrier discharge”, *Journal of Power Sources*, 2007, Vol.**169**, Issue 1, pp.140–143

57. H Kabashima, H Einaga, S Futamura, “Hydrogen generation from water, methane, and methanol with nonthermal plasma”, *Industry Applications, IEEE Transactions on*, 2003, Vol.**39**, Issue 2, pp.340- 345

58. M Okumoto, Z Su, S Katsura, A Mizuno, “Dilution effect with inert gases in direct synthesis of methanol from methane using nonthermal plasma”, *Industry Applications, IEEE Transactions on*, 1999, Vol.**35**, Issue 5, pp.1205-1210

59. M Okumoto, S Rajanikanth, S Katsura, A Mizuno, “Nonthermal plasma approach in direct methanol synthesis from CH_4 ”, *Industry Applications*, *IEEE Transactions on,* 1998, Vol.**34**, Issue 5, pp.940-944

60. M Okumoto, HH Kim, K Takashima, S Katsura, A Mizuno, “Reactivity of methane in nonthermal plasma in the presence of oxygen and inert gases at atmospheric pressure”, *Industry Applications, IEEE Transactions on,* 2001, Vol.**37**, Issue 6, pp.1618-1624

61. S L Yao, T Takemoto, F Ouyang, A Nakayama, E Suzuki, A Mizuno, M Okumoto, “Oxidative coupling and reforming of methane with carbon dioxide using a high-frequency pulsed plasma”, *Energy Fuels*, 2000, Vol.**14,** Issue 4, pp 910–914

62. S L Yao, T Takemoto, F Ouyang, A Nakayama, E Suzuki, A Mizuno ,and M Okumoto “Selective oxidation of methane using a non thermal plasma”, *Energy Fuels,* 2000, Vol.**14**, Issue 2, pp.459-463

63. Y Yang,“Direct non-oxidative methane conversion by non-thermal plasma: experimental study”, *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, 2003, Vol.**23**, Issue 2, pp 283-296

64. L M Zhou, B Xue, U Kogelschatz, B Eliasson, “Partial Oxidation of Methane to Methanol with Oxygen or Air in a Nonequilibrium Discharge Plasma”, *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, 1998, Vol.**18**, Issue 3, pp.375-393

65. Nozaki, A Hattori, K Okasaki, “Partial oxidation of methane using a microscale non equilibrium plasma reactor”, *Catalysis Today*, 2004, Vol.**98**, Issue 4, Pages 607–616

66. C J Liu, R Mallinson, L Lobban, “Conversion of greenhouse gases to synthesis gas and higher hydrocarbons over zeolites”, *Applied Catlaysi A : General,* 1999, Vol.**178**, pp17-27

67. Z Z Su, K Ito, K Takashima, S Katsura, K Onda, A Mizuno, “OH radical generation by atmospheric pressure pulsed discharge plasma and its quantitative analysis by monitoring CO oxidation”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2002, Vol.**35**, n° 24

68. L Magne, S Pasquiers, K Gadonna, P Jeanney, N Blin-Simiand, F Jorand, C Postel “OH kinetic in high-pressure plasmas of atmospheric gases containing C2H6 studied by absolute measurement of the radical density in a pulsed homogeneous discharge”, 2009*, J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.**42**, n°16

69. X Tao, M Bai, X Li, H Long, S Shang, Y Yin, X Dai, “CH4-CO2 reforming by plasma-challenges and opportunities”, *Progress in Energy and Combustion Scienc,* 2011, Vol.**37**, pp113-124

70. B Eliasson, C J Liu, U Kogelschatz, “Direct conversion of methane and carbon dioxide to higher hydrocarbons using catalytic dielectric barrier discharge”, *Ind. Eng. Chem. Res.,* 2000, Vol.**39,** Issue 5,pp 1221–1227

71. MW Li, GH Xu, YL Tian, Li Chen, HF Fu, “Effects of Catalysts in Carbon Dioxide Reforming of Methane via Corona Plasma Reactions”, *J. Phys. Chem. A*, 2004, Vol.**108**, Issue 10, pp.1687–1693

72. T Paulmier, L Fulcheri, *Chemical Engineering Journal*, 2005, Vol.**106**, Issue 1, pp.59-71

73. M L H Green, A K Cheetham, A T Ashcroft, 1992, *Catalysis Today*, Vol.**13**, Issues 2–3, pp.417–426

74. H Ayan, D Staack, G Fridman, A Gutsol, Y Mukhin, A Starikovskii, A Fridman and G Friedman, “Application of nanosecond-pulsed dielectric barrier discharge for biomedical treatment of topographically non-uniform surfaces”, *Journal of Physics D: Applied Physics,* 2009, Vol.**42**, n°12

75. H Jung, D B Kim, B Gweon, S Y Moon,W. Choe, “Enhanced inactivation of bacterial spores by atmospheric pressure plasma with catalyst TiO2”, Applied Catalysis B: Environmental, 2010, Vol.93, Issues 3–4, pp212–216

76. G Fridman, A Shereshevsky, M Peddinghaus, A Brook, M Balasubramanian, G Friedman, A Fridman, “Bio-Medical Applications of Non-Thermal Atmospheric Pressure Plasma”,2006, *37th AIAA Plasmadynamics and Lasers Conference*

77. F Iza, G J Kim, S M Lee, J K Lee, J L Walsh, Y T Zhang, M G Kong, “Microplasmas: Sources, Particle Kinetics and Biomedical Applications”, *Plasma Processes and Polymers,* 2008, Vol.**5**, Issue 4, pp322–344,

78. T Kuwahara, K Yoshida, K Hanamoto, K Sato, T Kuroki, T Yamamoto, M Okubo, “Pilot-Scale Experiments of Continuous Regeneration of Ceramic Diesel Particulate Filter in Marine Diesel Engine Using Nonthermal Plasma-Induced Radicals”, *Industry Applications, IEEE Transactions on*, 2012, Vol.**48** , Issue n° 5, pp1649-1656

79. W M Carty, P W Lednor, “Monolithic ceramics and heterogeneous catalysts : Honeycombs and foams”, *Current Opinion in Solid State & Materials Science*, 1996, Vol.**1,** pp 88-95

80. M V Twigg, J T Richardson, “Theory and applications of ceramic foams catalysts”, *Chemical Engineering Research and Design*, 2002,Vol.**80**, Issue 2, pp 183–189

81. M V Twigg, J T Richardson, 2007, “Fundamentals and Applications of Structured Ceramic Foam Catalysts”, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, Vol.**46**, n°12, pp 4166-4177

82. F G Dwyera, “Catalysis for control of automotive emissions”, *Catalysis Reviews: Science and Engineering,* 1972, Vol.**6**, Issue1, pp 261-291

83. M. Shelef, “Nitric Oxide: Surface Reactions and Removal from Auto Exhaust, *Catalysis Reviews: Science and Engineering,* 1975, Vol.**11**, Issue 1, pp 1-40

84. B Harrison, B J Cooper, A J J Wilkins, “Control of Nitrogen Oxide Emissions from Automobile Engines, the development of Rhodium/Platinium three ways catalyst systems”, 1981

85. W.B. Li, J X Wang, H Gong “Catalytic combustion of VOCs on non-noble metal catalysts”, 2009, *Catalysis Today*, Vol.**148**, Issues 1–2, pp 81–87

86. R Dorai, M J Kuschner, “Consequences of propene and propane on plasma remediation of NOx”, *Journal of Applied Physics*, Vol.**88**, Issue 6,

87. R A Young, Graham Black, The Journal of Chemical Physics, “Deactivation of O(1D)”, 1969, Vol.**47**, 2311

88. J Van Durme, Jo Dewulf, C Leys, H Van Langenhove, “Combining non-thermal plasma with heterogeneous catalysis in waste gas treatment: A review*”, Applied Catalysis B: Environmental*, 2008, Vol.**78**, pp 324–333

89. A Mizuno, J S Clements, R H Davis, “Device for the removal of sulfur dioxide from exhaust gas by pulsed energization of free electrons”, *Conf. Rec. of the IEEE IAS Ann. Meet.,* 1984, 1015-1020

90. B Lu, X Zhang, X Yu, T Feng, S Yao, “Catalytic oxidation of benzene using DBD corona discharges”, *Journal of hazardous materials*, 2006, Vol.**137**, pp633–637

91. K L L Vercammen, “Non-thermal plasma techniques for the reduction of voltage organic compounds in air streams: A critical review”, 1997, *Journal of Advanced Oxidation Technologies Journal of Advanced Oxidation Technologies*, 2, pp312-329,

92. N Mericam Bourdet, “Recherche d’optimisation énergétique d’un réacteur plasma froid de traitement d’effluents gazeux chargés en COV à pression atmosphérique”, 2012

93. K Urashima, J S Chang, “Removal of volatile organic compounds from air streams and industrial flue gases by non-thermal plasma technology”, *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, 2000, Vol.**7**, Issue 5, pp 602-614

94. H Ma, P Chen, R Ruan, “H2S and NH3 removal by silent discharge plasma and ozone combo-system”, *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, 2001, Vol.**21**, Issue 4, pp611-624

95. A Ogata, K Mizuno, S Kushiyama, T Yamamoto, “Methane decomposition in a barium titanate packed-bed nonthermal plasma reactor”, *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, 1998, Vol.**18**, Issue 3, pp363-373

96. S Nair, T Nozaki, K Okazaki, “Methane oxidative conversion pathways in a dielectric barrier discharge reactor—Investigation of gas phase mechanism”. *Chemical Engineering Journal*, 2007, 132(1-3), 85-95

97. S L Yao, T Takemoto, F Ouyang, A Nakayama,E Suzuki, A Mizuno, M Okumoto, “Selective Oxidation of Methane Using a Non-Thermal Pulsed Plasma”, 2000, 5(10), 459-463.

98. Y P Zhang, Y Li, Y Wang, C J Liu, B Eliasson, “Plasma methane conversion in the presence of carbon dioxide using dielectric-barrier discharges”, *Fuel Processing Technology*, 2003, 83(1-3), 101-109.

99. S Futamura, A Zhang, G Prieto, T Yamamoto, “Factors and intermediates governing byproduct distribution for decomposition of butane in nonthermal plasma”, *Industry Applications, IEEE Transactions on*, 1998, Vol.**34**, Issue 5, pp967 – 974

100. M C Hsiao, B T Merritt, B M Penetrante, G E Voglin, P M Wallman, R G Tonkyn, RR Shah, T M Orlando, “Plasma Assisted Oxidation of Propene”, *Journal of Advanced Oxidation Technologies,* 1996, 1, 79

101. A Ogata, K Yamanouchi, K Mizuno, S Kushiyama, T Yamamoto, “Decomposition of benzene using alumina-hybrid and catalyst-hybrid plasma reactors”, *Industry Applications, IEEE Trans. on*, 1999, Vol.**35**, Issue 6, pp 1289 – 1295

102. M P Cal, M Schluep, “Destruction of Benzene in a Dielectric Barrier

Discharge Plasma Reactor", 2001, Vol.**20**, Issue 3, pp151–156

103. Z L Ye, Y Shen, R Z Xi, H Q Hou, "Destruction of benzene in an air stream by the outer combined plasma photolysis method", *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2008, Vol.**41**(2).

104. W C Neely, E I Newhouse, E J Clothiaux, C A Gross, "Decomposition of Complex Molecules Using Silent Discharge Plasma Processing", *Non-Thermal Plasma Techniques for Pollution Control NATO ASI Series*, 1993, Vol.**34**, pp 309-320

105. B Lu, X Zhang, X Yu, T Feng, S Yao, "Catalytic oxidation of benzene using DBD corona discharges", *Journal of hazardous materials*, 2006, 137(1), 633-7.

106. K Shang, X Wang, X Zhou, N Wang, "Diagnosis of electron temperature in Ar/O2 mixed gas and destruction of toluene/benzene by positive dc discharge plasma", 2009, *Journal of Electrostatics*, Vol.**67,** 5, pp746-750

107. LA Rosocha , "Processing of hazardous chemicals using silent-electrical-discharge plasmas", *Plasma Science and the Environment,* 1997,

108. J V Durme, J Dewulf, W Sysmans, C Leys, H V Langenhove, "Plasma based toluene abatement in indoor air : removal efficiency and degradation pathways", 28th ICPIG, 2007, Prague, Czech Republik

109. J Mo, Y Zhang, Q Xu, Y Zhu, J J Lamson, R Zhao, 2009, "Determination and risk assessment of by-products resulting from photocatalytic oxidation of toluene". *Applied Catalysis B: Environmental*, Vol.**89**, 3-4, pp570-576.

110. J Van Durme, J Dewulf, W Sysmans, C Leys, H Van Langenhove, 2007, "Abatement and degradation pathways of toluene in indoor air by positive corona discharge", *Chemosphere*, Vol.**68**, n°10, 1821

111. N Blin-Simiand, F Jorand, S Pasquiers, C Postel, "Influence of Temperature on the Removal of Toluene by Dielectric Barrier Discharge", 2007, 64-70.

112. D G Starch, M J Kuschner, "Destruction mechanisms for formaldehyde in atmospheric pressure low temperature plasmas", *Journal of applied physics*, 1993

113. H X Ding, A M Zhu, F G Lu, Y Xu, J Zhang, X F Yang, "Low-temperature plasma-catalytic oxidation of formaldehyde in atmospheric pressure gas streams", *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2006, Vol.**39**(16),

114. A S Chiper, N B Simiand, F Jorand, S Pasquiers, G Popa, C Postel, "Influence of water vapour on acetaldehyde removal efficiency by DBD", *Journal of optoelectronics and advanced materials*, 2006, Vol.**8**, n° 1, pp 208 – 211

115. J R Vacher, F Jorand, N Blin-Simiand, S Pasquiers, "Partial ionisation cross-sections of 2-propanol and ethanol", *Chemical Physics,*2006, Vol.**23**, Issues 2–3, pp587–594

116. J S Chang, "Recent development of plasma pollution control technology: a critical review", *Science and Technology of Advanced Materials*, 2001, Volume 2, Issues 3–4, Pages 571–576

117. J Salge, P Braumann, "The Influence of the Voltage Wave on the Formation Of Ozone", *Proc. 4th Int. Sym p. on Plasma Chemistry*, pp. 735

118. S Masuda, M Sato, T Seki, "High-efficiency ozonizer using traveling wave pulse voltage", *Industry Applications, IEEE Trans. On,* 1986, Vol.**22**, Issue 5, pp 886 – 891

119. K Okazaki, T Nozaki, 2002, "Ultra-short pulsed barrier discharges and

applications", *Pure Appl. Chem.*, Vol.**74**, n°3, pp.447–452.

120. S V Pancheshnyi, S M Starikovskaia, A.Yu. Starikovskii, 2000, "Collisional deactivation of N2($C^3\Pi_u$, v=0, 1, 2, 3) states by N2, O2, H2 and H2O molecules", *Chemical Physics,* Vol.**262**, pp349-357

121. S M Starikovskaia, A Y Starikovskii, D V Zatsepin, "The development of a spatially uniform fast ionization wave in a large discharge volume", *Journal of Physics D: Applied Physics*, 1998, Vol.**31**, n° 9

122. S V Pancheshnyi, S M Starikovskaia and A Yu Starikovskii, "Population of nitrogen molecule electron states and structure of the fast ionization wave", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 1999, Vol.**32,** 1–9.

123. S M Starikovskaia, "Plasma assisted ignition and combustion", *J. Phys. D: Applied Physics*, 2006, Vol.**39**, n°16

124. A Khacef, J M Cormier, J M Pouvesle, "NOx remediation in oxygen-rich exhaust gas using atmospheric pressure non-thermal plasma generated by a pulsed nanosecond dielectric barrier discharge", *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2002, Vol.**35**, n°13, 1491

125. B. Mutel, O. Dessaux and P. Goudmand, "Energy cost improvement of the nitrogen oxides synthesis in a low pressure plasma", *Revue Phys. Appl.*, 1984, Vol.**19**, pp 461-464

126. A Gicquel, S Cavadias and J Amouroux , "Heterogeneous catalysis in low-pressure plasmas", 1986, J. Phys. D: Appl. Phys., Vol.19, n°11

127. K Sugiyama,, K Akazawa, M Oshima, H Miura, T Matsuda, O Nomura, "Ammonia synthesis by means of plasma over MgO catalyst",*Plasma Chemistry and Plasma Processing,* 1986, Vol.**6,** Issue 2, pp 179-193

128. J Amouroux, S Cavadias, "Process and installation for heating a fluidized bed by plasma injection", 1984, US Patent 4,469,508,

129. W. G. Filby, M. Mintas, H. Güsten, "Heterogeneous catalytic degradation of chlorofluoromethanes on zinc oxide surfaces", 1981, Vol.**85**, Issue 3, pages 189–192,

130. J Van Durme, J Dewulf, C Leys, H Van Langenhove, "Combining non-thermal plasma with heterogeneous catalysis in waste gas treatment: A review", Applied Catalysis B: Environmental, 2008, Vol.78, pp 324-333

131. H L Chen, H M Lee, S H Chen,Y Chao, M B Chang, "Review of plasma catalysis on hydrocarbon reforming for hydrogen production—Interaction, integration, and prospects", *Applied Catalysis B: Environmental,* 2008, Vol.**85**, pp1–9

132. H L Chen, H M Lee, S H Chen,Y Chao, M B Chang, S N Li, "Removal of Volatile Organic Compounds by Single-Stage and Two-Stage Plasma Catalysis Systems: A Review of the Performance nhancement Mechanisms, Current Status, and Suitable Applications, 2009, Environ. Sci. Technol. Vol.**43**, pp 2216–2227

133. K.-P. Francke, H. Miessner, R. Rudolph, "Plasmacatalytic processes for environmental problems", Catalysis Today, 2000, Vol.**59**, pp 411–416

134. H. Miessner, K.-P. Francke, R. Rudolph, "Plasma-enhanced HC-SCR of NOx in the presence of excess oxygen", *Applied Catalysis B: Environmental*, 2002, Vol.**36**, pp 53–62

135. B. M. Penetrante, R. M. Brusasco, B. T. Merritt, G. E. Vogtlin, *Pure Appl.* Chem, 1999, Vol.**71**, n°10, pp 1829-1835

136. T. Hammer, S. Bröer, and T. Kishimoto, "Pulsed Excitation of Silent Discharges for Diesel Exhaust Treatment, *Journal of Advanced*

Oxidation Technologies, 1999, Vol.**4**, n°4, pp. 368-374(7)

137. F Holzer, U. Roland, F.-D. Kopinke, "Combination of non-thermal plasma and heterogeneous catalysis for oxidation of volatile organic compounds: Part 1. Accessibility of the intra-particle volume", *Appl. Catal. B: Environ.,* 2002, Vol.**38**, Issue 3, pp163-181

138. S.M. Oh, H.H. Kim, A. Ogata, H. Einaga, S. Futamura, D.W. Park, "Effect of zeolite in surface discharge plasma on the decomposition of toluene", Catal.Lett. 2005, Vol.**99**, Issue 1-2, pp101–104.

139. S M Oh, H H Kim, H Einaga, A Ogata, S Futamura, D W Park, "Zeolite-combined plasma reactor for decomposition of toluene", Thin Solid Films, 2006, Vol.**506–507**, pp418–422

140. O Guaitella, F Thevenet, C Guillard, A Rousseau, "Dynamic of the plasma current amplitude in a barrier discharge: influence of photocatalytic material", *Journal of Physics D :Applied Physcis*, 2006, Vol.**39**, pp 2964–2972

141. P Kurunczi, N Abramzon, M Figus, K Becker, "Measurement of rotational temperatures in high pressure Microhollow Cathode (MHC) and Capillary Plasma Electrode (CPE) discharges", acta physica slovaca, Vol.**54**, n° 2, pp 115 – 124

142. A Koutsospyros, S M Yin, C Christodoulatos, K Becker, "Destruction of hydrocarbons in non-thermal, ambient-pressure, capillary discharge plasmas", 2004, International Journal of Mass Spectrometry, Vol.**233**, Issue 1-3, pp 305-315

143. N S Panikov, S Paduraru, R Crowe, P J Ricatto, C Christodoulatos, K Becker, "Destruction of Bacillus Subtilis cells using an atmospheric-pressure capillary plasma electrode discharge", *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 2002, Vol.**30**, Issue 4, pp 1424-1428

144. J H Cho, I G Koo, M Y Choi, W M Lee, "Ozone production by nanoporous dielectric barrier glow discharge in atmospheric pressure air", *Appl. Phys.Lett.*, 2008, Vol.**92**, Issue 10, pp1504

145. S J Park, J G Eden, "Microdischarge devices with a nanoporous Al_2O_3 dielectric: operation in Ne and air", *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 2005, Vol.**33**, Issue 2, pp 572-573

146. K Hensel,V Martisovits, Z Machala, M Janda, M Lestinsky, P Tardiveau, A Mizuno, "Electrical and Optical Properties of AC Microdischarges in Porous Ceramics", Plasma Processes and Polymers, 2007, Vol.4, Issue 7-8, pp 682–693,

147. K. Hensel, M. Janda, M. Lestinsky, Z. Machala, V. Martisovits, P. Tardiveau, A. Mizuno, "Electrical and optical properties of AC microdischarges in porous ceramics", 10th International Symposium on High Pressure Low Temperature Plasma Chemistry, pp. 41-46, 2006

148. I Gyo Koo, Myeong Yeol Choi, Jong Hoon Kim, Jin Hoon Cho, W. M. Lee, "Microdischarge in Porous Ceramics with Atmospheric Pressure High Temperature H2O/SO2 Gas Mixture and its Application for Hydrogen Production", Japanese Journal of Applied Physics, 2008, Vol.47, n°6R,

149. I. G. Koo, J. H. Cho, M. Y. Choi, and W. M. Lee, "Room-temperature slot microplasma in atmospheric pressure air between cylindrical electrodes with a nanoporous alumina dielectric," Appl. Phys. Lett., 2007, Vol.91, n° 4, pp 041 502.

150. M Kraus, B Eliasson, U Kogelschatz, A Wokaun , "CO2 reforming of methane

by the combination of dielectric-barrier discharges and catalysis“, Phys. Chem. Chem. Phys.,2001,Vol.3, pp294-300

151. P. Tardiveau, C. Boyer, F. Jorand, C. Postel, S. Pasquiers, “Optical and electrical characterization of pulsed dielectric barrier discharges in heterogeneous structures”, *IEEE transactions on plasma science*, 2005, Vol.**33**, n°2, pp. 314-315

152. H H Kim, K Takashima, S Katsura, A. Mizuno, “Low-temperature NOx reduction processes using combined systems of pulsed corona discharge and catalysts”, 2001, *J. Phys. D: Appl. Phys*., Vol.34, n° 4

153. N Blin-Simiand, P Tardiveau, A Risacher, F Jorand, S Pasquiers, “Removal of 2-Heptanone by Dielectric Barrier Discharges – The Effect of a Catalyst Support”, *Plasma Process. Polym*. 2005, 2, pp 256–262

154. C. Ayrault, J Barrault, N Blin-Simiand F Jorand, S Pasquiers, A Rousseau, J M Tatibouët, “Oxidation of 2-heptanone in air by a DBD-type plasma generated within a honeycomb monolith supported Pt-based catalyst”, *Catalysis Today* , 2004, Vol.**89**, pp 75–81

155. K Hensel, “Microdischarges in ceramic foams and honeycombs”, Eur. Phys. J. D, 2009, Vol.**54**, pp 141–148

156. Z Xiong, E Robert, V Sarron, JM Pouvesle , “Atmospheric-pressure plasma transfer across dielectric channels and tubes”, *Journal of Physics D:Appl. Phys.,* 2013,

157. Z Xiong , M J Kuschner, “Atmospheric pressure ionization waves propagating through a flexible high aspect ratio capillary channel and impinging upon a target”, *Plasma Sources Science and Technology*, Vol.**21**, n° 3

158. Z Xiong, E Robert, V Sarron, J M Pouvesle, M J Kushner, “Dynamics of ionization wave splitting and merging of atmospheric-pressure plasmas in branched dielectric tubes and channels”, 2012, *Journal of Physics D: Applied Physics* , Vol.**45**, n°27

Chapitre2

1. A A Kulikovsky, “The role of photoionization in positive streamer dynamics”, *J. Phys. D: Appl. Phys*., 2000, Vol.**33**, pp 1514-1524

2. P Tardiveau, “Contribution à l'étude du déclenchement de la combustion par décharge électrique en milieu diphasique”, Thèse de doctorat en Génie électrique, 2002

3. http://www.stanfordcomputeroptics.com

4. G Hartmann, “Spectroscopie de la décharge couronne : Etudes des mécanismes de collisions dans le dard”, thèse, 1977

5. F. Pechereau, A. Bourdon , “Influence of preionization on the reignition of an atmospheric pressure air discharge behind a dielectric plane obstacle”, *31th ICPIG, 2013,* Topic number C10,

6. F Pechereau , «Numerical simulation of the interaction of atmospheric pressure plasma discharges with dielectric surfaces », 2013 , sous la direction de A Bourdon - Ecole centrale Paris

7. F Pechereau, P Le Delliou, J Jansky, P Tardiveau, S Pasquiers, A Bourdon, Large Conical Discharge Structure of an Air Discharge at Atmospheric Pressure in a Point-to-Plane Geometry, Plasma Science, IEEE Transactions on, Vol.PP, Issue:99

Chapitre 3

1. Tardiveau, P., N. Moreau, S. Bentaleb, C. Postel, and S. Pasquiers, "Diffuse mode and diffuse-to-filamentary transition in a high pressure nanosecond scale corona discharge under high voltage" , 2009, *J. Phys. D: Appl. Phys,* Vol.**42**, Issue 17, 175-202.

2. P Tardiveau, E Marode, A Agneray, "Tracking an individual streamer branch among others in a pulsed induced discharge", 2002, Journal of Physics D : Applied Physics, Vol.**35**, n°21

3. J Jansky, P Le Delliou, F Tholin, P Tardiveau, A Bourdon, S Pasquiers, "Experimental and numerical study of the propagation of a discharge in a capillary tube in air at atmospheric pressure", *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2011, Vol.**44**, Issue 33

4. L B Loeb, "Electrical coronas : their basic mechanisms", google book, 1965,

5. A Luque, V Ratushnaya, U Ebert, "Positive and negative streamers in ambient air: modelling evolution and velocities*", Journal of Physics D: Applied Physics*, 2008, Vol.**41**, n° 23

6. N.Yu. Babaeva, G.V. Naidis, « On streamer dynamics in dense media », Journal of Electrostatics , 2001, Vol.**53**, Issue 2, , Pages 123–133

7. P. Le Delliou, P. Tardiveau, P. Jeanney, G. Bauville, S. Pasquiers, "Nanosecond Pulsed Discharge Phenomenology in Micrometer-Sized Radially Confined gap", *IEEE Transactions on Plasma Science*, 2011, Vol.**39**, pp2686-2687

8. J. Jánský, P. Le Delliou, F. Tholin, Z. Bonaventura, P. Tardiveau, A. Bourdon and S. Pasquiers, "Propagation of an air discharge at atmospheric pressure in a capillary glass tube: influence of the tube radius on the discharge structure", *IEEE Transactions on Plasma Science*, 2011, Vol.**39**, pp2106– 2107,

9. Y Murooka, S Koyama, "A nanosecond surface discharge study in low pressures", 1979, Journal of Applied Physics, Vol.50, Issue 10

10. E Nasser, "Spark breakdown in air at a positive point", 1968, *Spectrum IEEE,* Vol.**5**, Issue 11, pp 127-134

11. Morrow, R., and J. J. Lowke, "Streamer propagation in air", 1997, *J. Phys. D: Appl. Phys*, Vol.**30**, pp614–627.

12. Liu, N. Y., and V. P. Pasko (2004), "Effects of photoionization on propagation and branching of positive and negative streamers in sprites*", J. Geophys. Res.*, Vol.**109**, A04301.

13. J Jansky, A. Bourdon, "Surface charge deposition inside a capillaryglass tube by an atmospheric pressure discharge in air", 2010,, *Eur. Phys. J. Appl. Phys.*,

14. J Jansky, F Tholin, Z Bonaventura, A Bourdon, "Simulation of the discharge propagation in a capillary tube in air at atmospheric pressure", 2010, *J. Phys. D:Appl. Phys.*, Vol.**43**, 395,201.

15. N Blin-Simiand, F Jorand, Z Belhadj-Miled, S Pasquiers, C.Postel , "Influence of Temperature on the Removal of Toluene by Dielectric Barrier Discharge", 2007, *International Journal of Plasma Environmental Science & Technology*, Vol.**1**, n°1,

16. N Blin-Simiand, S Pasquiers, F Jorand, C Postel, J-R Vacher "Removal of formaldehyde in nitrogen and in dry air by a DBD: importance of temperature and role

of nitrogen metastable states", *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2009, Vol.**42**, n°12

Chapitre 4

1. R S Nema, F Zahra, "STUDY OF CORONA PULSES IN AIR-SOLID INTERFACE", *Conference Record of the 1998 IEEE International Symposium on Electrical Insulation*, 1998,

2. F Pechereau, J Jánský, A Bourdon, Simulation of the reignition of a discharge behind a dielectric layer in air at atmospheric pressur,2012, *Plasma Sources Science and Technology,* Volume 21, Number 5

3. Z Xiong , M J Kuschner, "Atmospheric pressure ionization waves propagating through a flexible high aspect ratio capillary channel and impinging upon a target", *Plasma Sources Science and Technology*, Vol.**21**, n° 3

4. Sébastien Célestin, Z Bonaventura, O Guaitella, A Rousseau, A Bourdon, "Influence of surface charges on the structure of a dielectric barrier discharge in air at atmospheric pressure : experiment and modelling", 2009, *The European Physical Journal Applied Physics*, Vol.**47**, 2

5. E Marode, "The mechanism of spark breakdown in air at atmospheric pressure between a positive point and plane. II. Theoretical: Computer simulation of the streamer track", J. Appl. Phys. 46, 2016 (1975)

6. F Pechereau, "Numerical simulation of the interaction of atmospheric pressure plasma discharges with dielectric surfaces", thesis, 2013

7. M L Coulibaly, « Caractérisation des décharges électriques se propageant aux interfaces gaz/solide – Relation entre propriétés des matériaux et dimension fractale », thèse Ecole Cntrale de Lyon, 2009

8. A Kumada, S Okabe, K Hidaka, "Residual charge distribution of positive surface streamer", *Journal of Physics D: Applied Physics* , 2009, Volume 42, Number 9

9. F Pechereau, P Le Delliou, J Jansky, P Tardiveau, S Pasquiers, A Bourdon, Large Conical Discharge Structure of an Air Discharge at Atmospheric Pressure in a Point-to-Plane Geometry, Plasma Science, IEEE Transactions on, Vol.PP, Issue:99

10. Y Akishev G Aponin, A Balakirev, M Grushin, V Karalnik, A Petryakov, N Trushkin, "Spatial–temporal development of a plasma sheet in a surface dielectric barrier discharge powered by a step voltage of moderate duration", *Plasma Sources Science and Technology,* Vol.**22**, n°1

11. S Pancheshnyi, "Role of electronegative gas admixtures in streamer start, propagation and branching phenomena", *Plasma Sources Sci. Technol.*, 2005, Vol.**14**, pp645

12. Y.C. Zhu, T. Takada, Y. Inoue and D. Tu, "Dynamic Observation of Needle-Plane Surface Discharge using the Electro-optical Pockels Effect", *IEEE Trans. Dielectr. and Electr. Insul.,* 1996, Vol. **3**, N° 3, pp. 460-468,