

Ce chapitre se compose de trois parties.

Dans un premier temps, quelques généralités sur les plasmas sont exposées. La seconde partie est consacrée à la description détaillée de la torche plasma froid développé et basée sur l'établissement de décharges non thermiques évoluant à haute tension et faible courant. Son principe de fonctionnement est également décrit. Ensuite, la notion de « stabilité des points de fonctionnement » est abordée afin de présenter l'enjeu résidant dans l'alimentation de telles décharges. Puis, les deux sources électriques employées sont présentées suivie de la description des éléments composant le banc expérimental.

I. Généralités sur les plasmas

L'objectif de cette partie est de présenter les principales caractéristiques des plasmas, en traitant en particulier des plasmas amorcés par un arc électrique.

Dans la nature, les plasmas constituent le quatrième état de la matière après les états solide, liquide et gazeux. Ce concept de 4^{ème} état de la matière a été introduit par Langmuir et Tonks en 1929 qui, observant le mouvement et les pulsations de la matière dans un champ électromagnétique l'ont comparé à une cellule vivante, un « plasma cellulaire ».

Un plasma est un fluide partiellement ou totalement ionisé constitué de molécules, d'atomes, de radicaux, d'ions et d'électrons. La présence de particules chargées (ions et électrons) constitue la principale différence entre un plasma et un gaz. Une des méthodes les plus simples pour générer un plasma est d'appliquer une forte différence de potentiel entre deux électrodes à travers lesquelles circule un gaz afin que celui-ci soit ionisé. La différence de potentiel minimale nécessaire à l'amorçage de l'arc électrique est appelée différence de potentiel disruptive ou encore tension de claquage. Elle dépend de la pression et de la composition du gaz ainsi que de la distance entre les deux électrodes.

D'un point de vue macroscopique, les charges dans le plasma sont accélérées par le champ électrique, les électrons se dirigeant vers l'anode tandis que les charges positives se dirigent vers la cathode. La mobilité des espèces lourdes est nettement inférieure à celle des électrons en raison de leur masse plus élevée. De même, l'augmentation de l'énergie cinétique des électrons due au champ électrique est plus importante que celle des particules lourdes. L'énergie acquise par les électrons se transmet aux ions, aux particules neutres et autres électrons lors de collisions. Cette activité du milieu caractérise l'agitation des particules. Elle est représentée par la moyenne de l'énergie cinétique de l'ensemble des particules qui est liée à la température par la relation de Boltzmann :

$$\frac{1}{2} \cdot m \cdot \overline{v^2} = \frac{3}{2} \cdot k_b \cdot T$$

Equation II. 1

avec m : Masse de la particule,

$(\overline{v^2})^{1/2}$: Vitesse quadratique moyenne de la particule,

k_b : Constante de Boltzmann,

T : Température absolue (K)

L'équation II.1 suppose que les vitesses suivent une distribution de type Maxwell-Boltzmann.

L'agitation des électrons n'est pas toujours égale à celle des espèces neutres ou ionisées ; en effet, ces dernières sont plus lourdes et donc plus difficiles à accélérer. Ainsi, une température peut être associée à chaque particule en fonction de l'énergie cinétique de la particule considérée. Les électrons possèdent une température, T_e , appelée température électronique et les particules lourdes (ions et espèces neutres) une température T_L (température des espèces lourdes) (Equation II.2).

$$T_e = \frac{1}{3} \frac{m_e \cdot \overline{v_e^2}}{k_b} \qquad T_L = \frac{1}{3} \frac{m_L \cdot \overline{v_L^2}}{k_b} \qquad \text{Equation II. 2}$$

Ces températures représentent uniquement l'état d'agitation des particules et ne sont pas égales à la température physique. Dans le domaine des plasmas hors équilibre thermodynamique, la notion de température n'a pas de sens, on l'exprime comme une énergie, en électron volt.

Ces considérations conduisent aux notions de plasma hors-équilibre thermodynamique ou plasma froid et de plasma à l'équilibre ou plasma thermique.

Dans le domaine des plasmas à l'équilibre thermodynamique, on peut définir une seule température qui est aussi égale à la température physique du milieu :

$$T = T_e = T_L$$

Pour les plasmas hors-équilibre thermodynamiques, la température électronique et la températures des espèces lourdes diffèrent :

$$T_e \neq T_L$$

La figure II.1 représente l'évolution de la température des électrons et des particules lourdes dans une décharge d'arc à pression et à courant variables. Elle illustre le passage progressif d'un arc à l'équilibre thermodynamique lorsque le courant ou la pression augmente. Ce phénomène se comprend aisément. En effet, dans le domaine des faibles pressions ou de faibles intensités, les collisions entre les différentes particules et donc les échanges d'énergie sont très faiblement favorisés. La température des électrons et des particules lourdes est différente : c'est le domaine des plasmas froids. Lorsque la pression ou le courant (le nombre d'électrons) augmente, le nombre de collisions entre les différentes

espèces augmente ce qui conduit à l'homogénéisation de l'agitation des particules. Le domaine des plasmas thermiques est atteint, soit $T_e = T_L$.

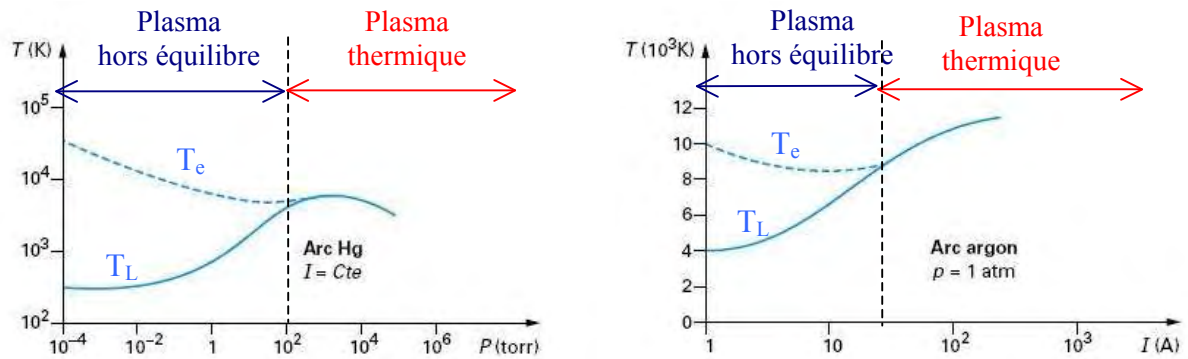


Figure II. 1 : Evolution de la température des électrons T_e et des espèces lourdes T_L à pression variable (à gauche) et à intensité variable (à droite) [1].

Les différents plasmas sont généralement classés en fonction de la densité des espèces chargées et de la température. La figure II.2 présente une classification des plasmas en termes de densité électronique et de degré d'ionisation pour différents types de décharge. L'importance du rapport n_e/N (n_e correspondant à la densité des électrons, N à la densité des particules neutres) traduit celle des collisions entre particules chargées par rapport aux collisions électrons-neutres ou ions-neutres. Pour les gaz faiblement ionisés, le rapport n_e/N est peu différent du degré d'ionisation. La physique sous-entendue par ce paramètre est donc très différente suivant sa valeur. Lorsque $n_e/N > 10^{-2}$, la distribution des vitesses électroniques y est sensiblement maxwellienne et le plasma est dominé par les processus radiatifs. Lorsque $n_e/N < 10^{-2}$, la distribution électronique est non maxwellienne et régie par des processus réactifs. Les plasmas fortement ionisés sont aussi appelées plasmas chauds par opposition aux plasmas faiblement ionisés dits plasmas froids [2].

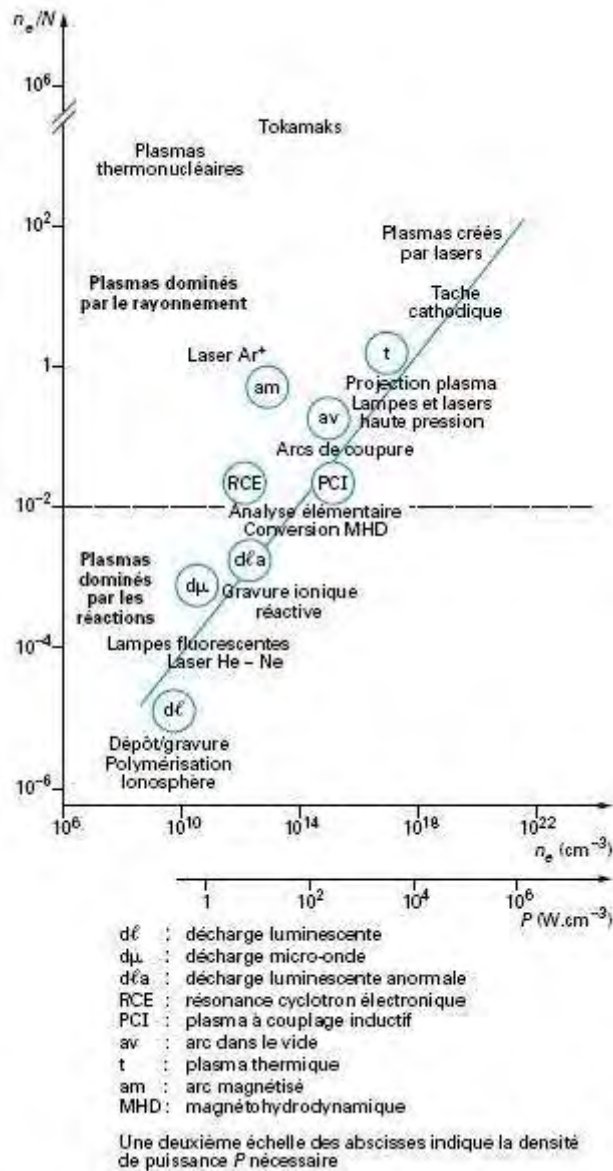


Figure II. 2 : Classification des plasmas en termes de densité électronique et de degré d'ionisation pour différents types de décharge [1].

Dans le domaine des plasmas froids, le plasma peut être considéré comme un système de conversion d'énergie dans lequel l'énergie électrique est transformée en énergie thermique, lumineuse, cinétique ou chimique comme le décrit également la figure II.3 qui montre les applications associées à ces propriétés de conversion d'énergie [3].

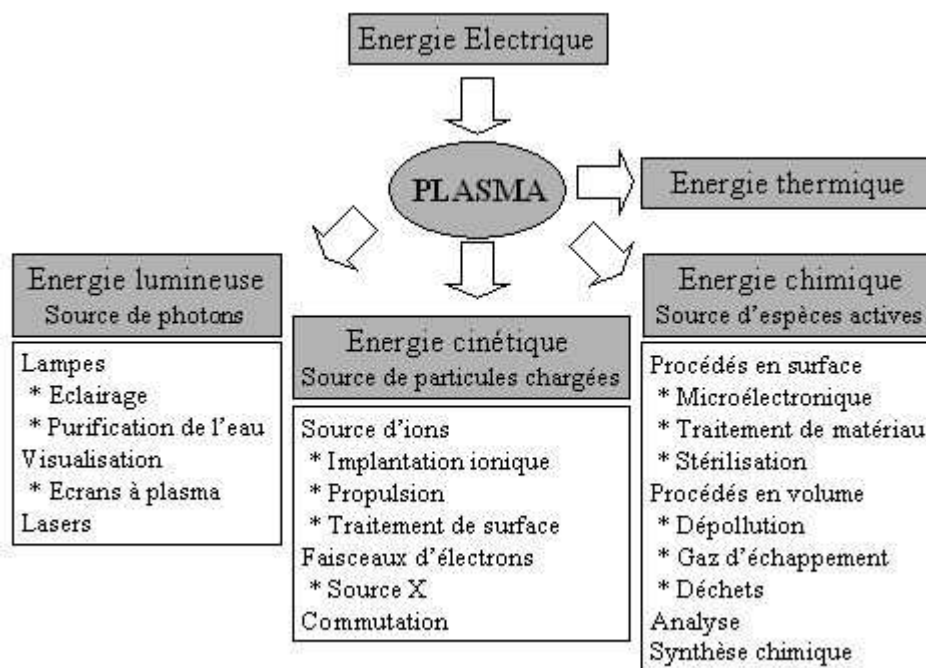


Figure II. 3 : Diagramme montrant le plasma froid comme système de conversion d'énergie, et les applications associées. Adapté de [3].

Dans le cadre de la thèse, le plasma étudié est un plasma de décharges non thermiques à courant continu fonctionnant à haute tension et faible courant et à pression atmosphérique. Les principales caractéristiques exploitées sont : d'une part son caractère moins énergivore par rapport aux plasmas thermiques et d'autre part, sa capacité à générer des espèces actives.

II. Développement d'une torche plasma fonctionnant à haute tension et faible courant couplée à son alimentation électrique

La technologie plasma utilisée est inspirée de celle développée par Rollier J. -D. dans le cadre de sa thèse au Centre Energétique et Procédés (CEP), Sophia-Antipolis [4], [5], [6]. Il s'agit d'une **torche plasma de décharge non thermique et fonctionnant à haute tension – faible courant**.

Dans un premier temps, le principe de fonctionnement de la torche plasma ainsi que les régimes de fonctionnement sont présentés. Puis, les deux sources électriques alimentant la torche et de technologie distincte sont décrites.

II.1. Principe de la torche plasma

II.1.1. Description de la torche plasma

La géométrie des électrodes de la torche plasma est de type pointe-cylindre (figure II.4). L'électrode centrale est composée d'un type de bougie d'allumage automobile particulière dont l'électrode de masse a été supprimée. La seconde électrode est une tuyère cylindrique en acier inoxydable. La stabilisation de l'arc est réalisée par :

- les parois : le diamètre de la tuyère étant faible (6 mm),
- l'injection tourbillonnaire : l'arc est confiné au centre de la tuyère où est maintenu un intense vortex de gaz. Ce mode d'injection permet de régénérer un gainage de la décharge favorable à la stabilisation du plasma.

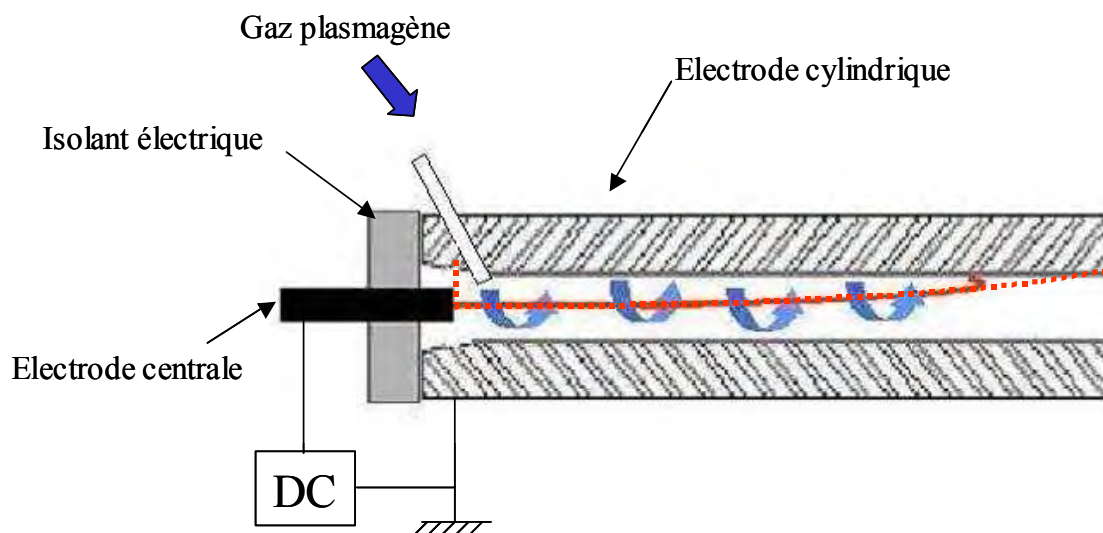


Figure II. 4 : Schéma de la torche plasma froid développée au CEP, Sophia-Antipolis.

La torche plasma, ou zone de décharge, se compose d'une tête d'injection et d'une tuyère cylindrique (figure II.5).

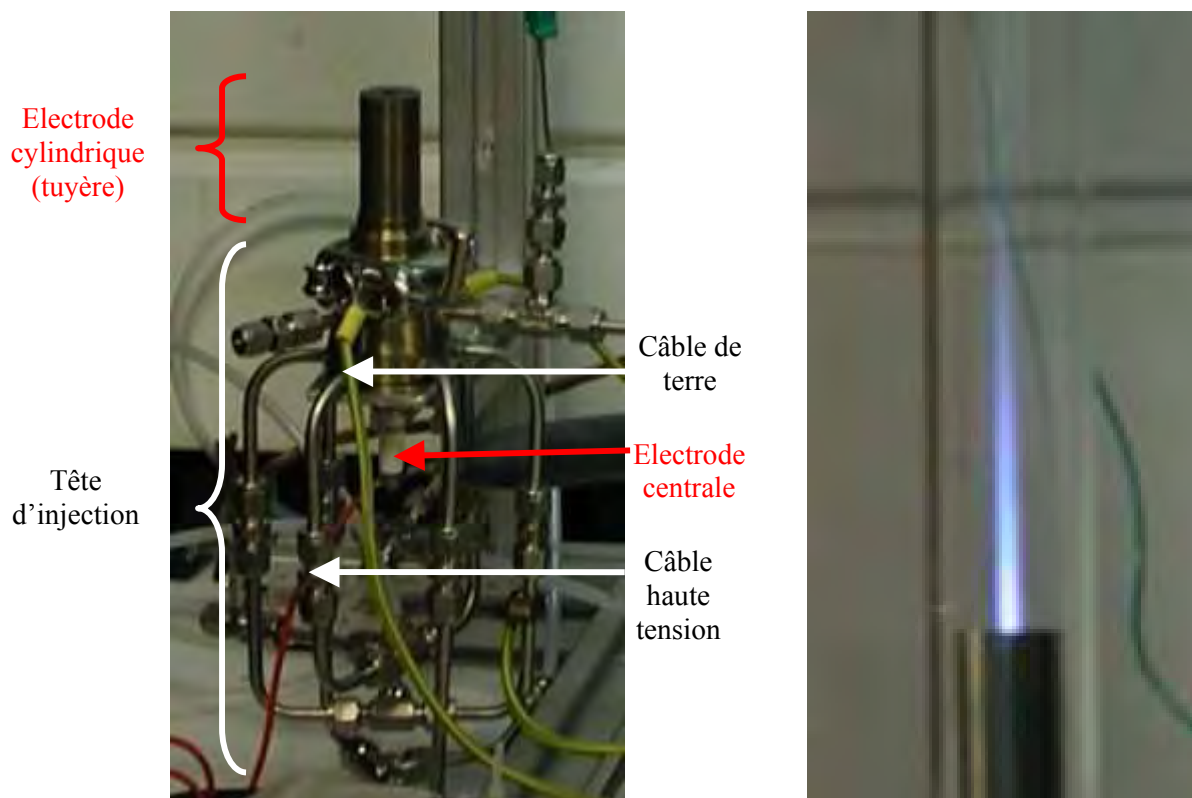


Figure II. 5 : Photographies de la torche plasma. A droite : Torche plasma fonctionnant en régime continu pour gaz plasmagène l'arcal 21 (mélange composé de 92 % d'argon et 8 % de CO₂).

• **La tête d'injection de la torche plasma**

La partie inférieure de la tête d'injection présente six entrées tangentielles, regroupées en trois entrées principales pour le gaz plasmagène tandis que la partie supérieure présente trois entrées radiales disposées à 120° pour l'injection des hydrocarbures et du précurseur catalytique (figure II.6). L'injection tangentielle du gaz plasmagène permet de créer dans la torche un écoulement de gaz de type vortex. Ainsi, l'arc électrique a un mouvement de rotation et la zone réactionnelle est élargie. L'électrode centrale vient se fixer à la base de la tête d'injection. La céramique de l'électrode joue le rôle d'isolant électrique, ainsi les deux électrodes ne sont pas en contact.

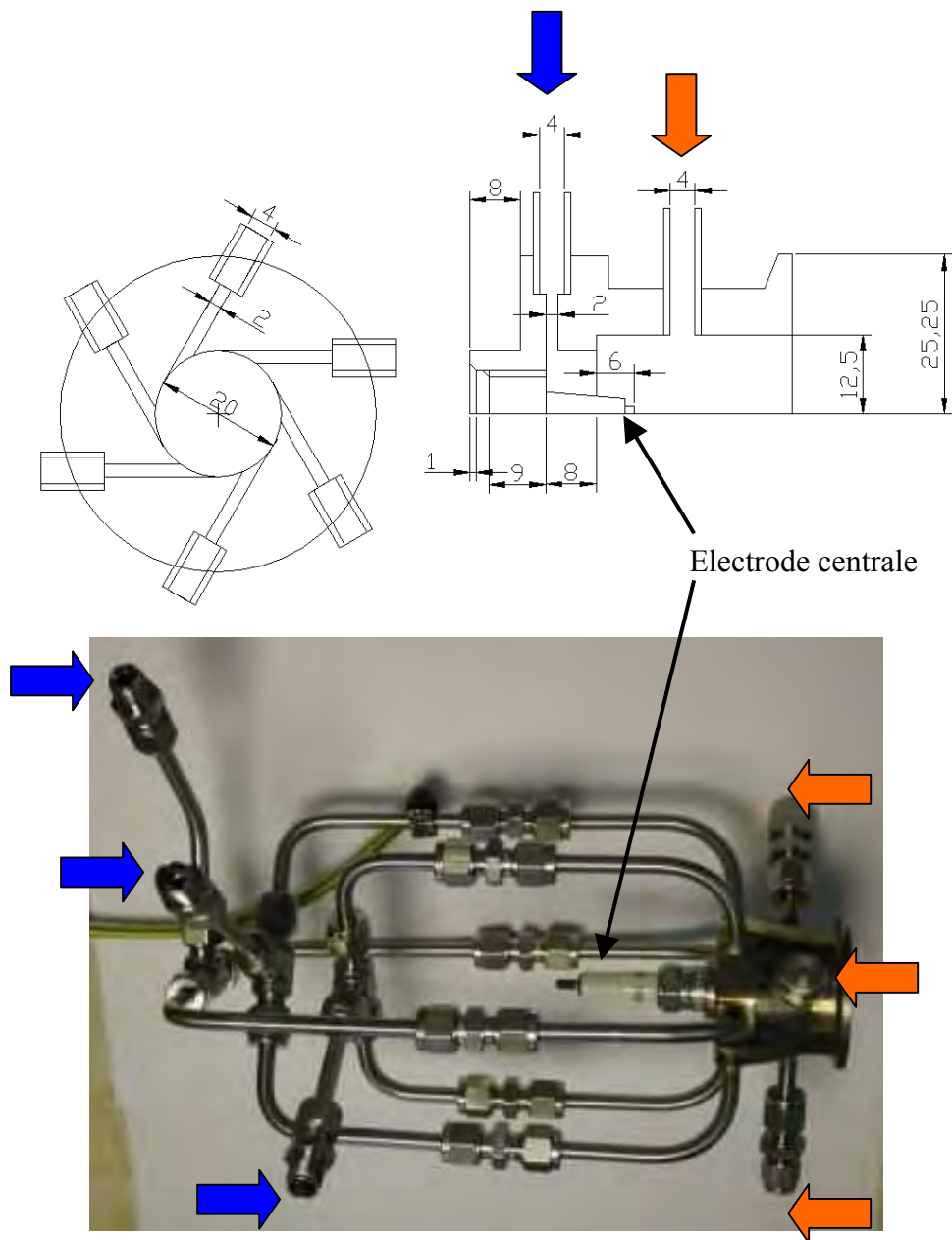


Figure II. 6 : Schéma et photographie de la tête d'injection de la torche plasma. Les flèches bleues correspondent aux injections tangentielles du gaz plasmagène. Les flèches oranges correspondent aux injections radiales de l'hydrocarbure gazeux et du précurseur catalytique sous forme de vapeurs.

- **Les électrodes cylindrique ou tuyères**

Une tuyère cylindrique en acier inoxydable constitue la seconde électrode de la torche. Celle-ci est très modulable puisque l'électrode cylindrique vient s'insérer aisément au niveau de la tête d'injection. Ainsi, plusieurs géométries de tuyères ont été testées lors de la caractérisation de la torche plasma. La figure II.7 présente la première géométrie de tuyère étudiée. On constate que la base présente un cône à 7° . En général, c'est à ce niveau, où la distance inter-électrode est la plus faible, que s'effectue l'amorçage de l'arc.

Afin de pouvoir injecter l'hydrocarbure et le précurseur catalytique tout en assurant un régime de fonctionnement de l'arc relativement stable, les géométries des tuyères ont rapidement évolué (figure II.8). La base de la tuyère sous la forme d'un cône à 7° a été conservée, seule la partie supérieure a été modifiée. Par exemple, avec la tuyère de la figure II.8.A, l'injection des précurseurs s'effectue radialement et le diamètre de sortie de 15 mm permet d'augmenter le volume de la zone plasma. Enfin, les tuyères des figures II.8.B et C présentent la particularité d'assurer l'injection des précurseurs au dessus de la zone d'arc à l'aide « d'un bras » et ceci à différentes positions de la zone plasma.

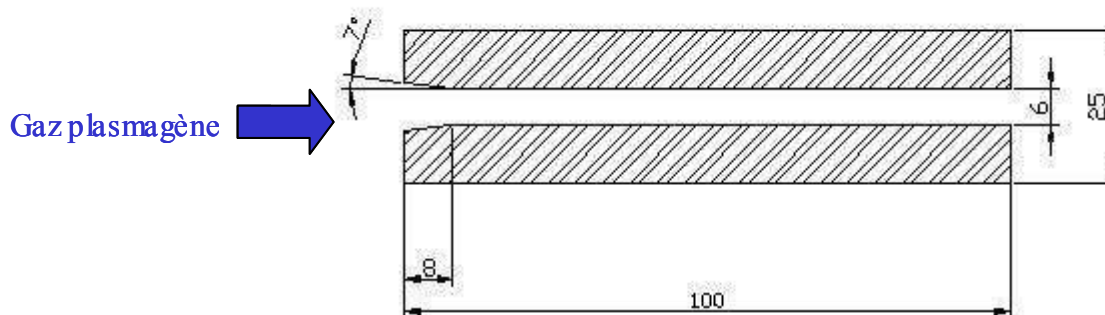


Figure II. 7 : Schéma de la première génération de tuyère étudiée. La circulation du gaz se fait de la gauche vers la droite.

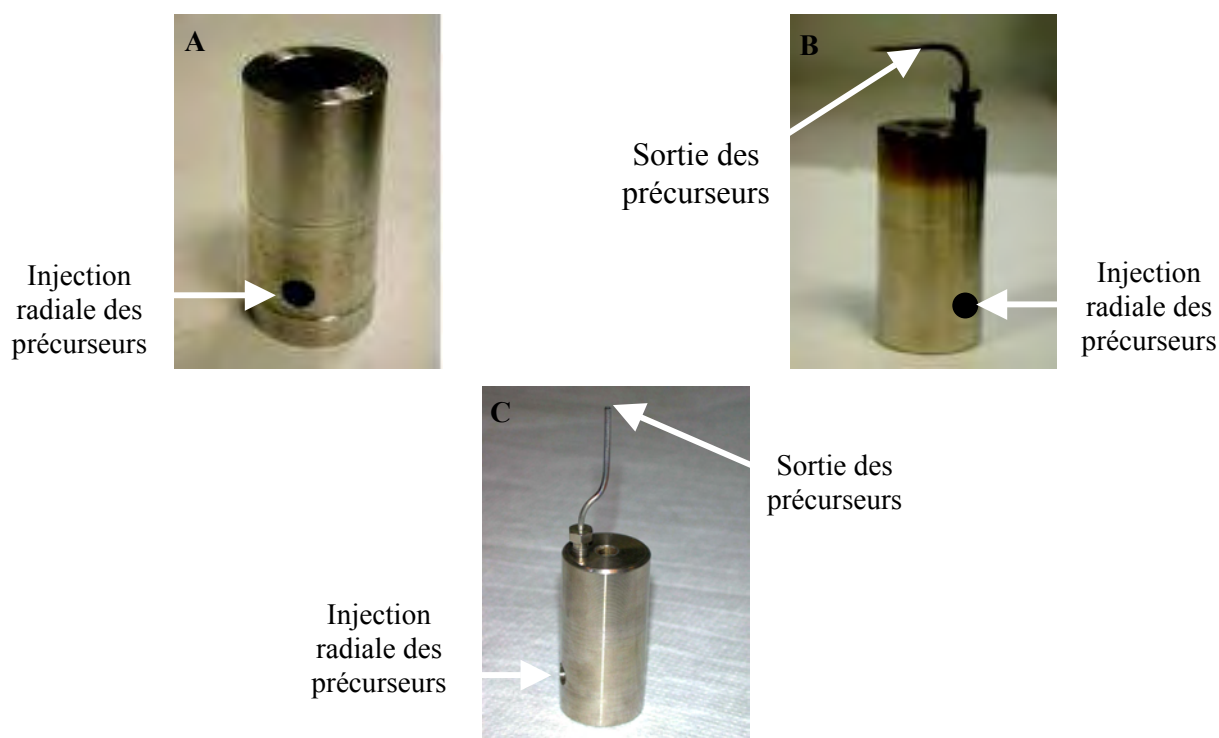


Figure II. 8 : Photographies de quelques électrodes cylindriques de longueur $L = 50$ mm.

II.1.2. Régimes de fonctionnement

Au cours des essais réalisés en faisant varier le débit de gaz et l'intensité délivrée par la source, différents régimes de fonctionnement de la décharge sont observés :

- **le régime filamentaire.** Il résulte de l'incapacité de la source à réguler le courant aux bornes de la décharge (pour des faibles courants et des hautes tensions) et n'est, par conséquent, jamais exploité.
- **le régime de l'arc glissant ou « glidarc ».** C'est un régime intermédiaire jusqu'à l'établissement du régime continu.
- **le régime continu.** Il correspond au régime de fonctionnement le plus stable.

Dans la suite, le régime de l'arc glissant et son évolution vers le régime continu sont décrits.

- **Le phénomène de l'arc glissant**

Au départ, un écoulement de gaz est mis en circulation entre les deux électrodes. Ensuite, une forte différence de potentiel est appliquée entre les électrodes. Le gaz, isolant électrique, ne permet pas au courant de passer d'une électrode à l'autre. Tant que le gaz est isolant, la tension aux bornes des électrodes augmente. Lorsque cette tension atteint la valeur de la tension de claquage, un arc se crée à

l'endroit où le champ électrique est minimal et égal à la tension de claquage, soit en général, au niveau de la distance inter électrode la plus faible. En s'ionisant, le gaz devient conducteur et la tension aux bornes des électrodes chute de sa valeur maximale (égale à la tension de claquage) à sa valeur minimale. Sous l'effet de l'écoulement du gaz, un des pieds de l'arc (celui rattaché à l'électrode centrale, figure II.4) reste fixe tandis que l'autre est mobile et se déplace le long de l'électrode cylindrique provoquant l'allongement de l'arc et l'augmentation de la tension aux bornes de la décharge. Lorsque cette tension est suffisante, un nouvel arc s'amorce à la base de la tuyère provoquant l'extinction de l'arc précédent.

- **Le passage du régime de l'arc glissant au régime continu**

Pour des courants élevés ou dans le cas d'un fonctionnement prolongé de la torche en régime « glidarc », le comportement de l'arc se modifie. En effet, l'arc choisit un point d'accroche préférentiel qui peut se situer à l'intérieur ou à l'extérieur de l'électrode cylindrique et s'y fixe. Le régime continu est alors atteint et présente une forte robustesse aux perturbations telle que l'augmentation du débit.

II.2. Alimentation électrique

L'objectif de cette partie est de décrire les principales caractéristiques des plasmas de décharge à courant continu et d'exposer la problématique du couplage existant entre le plasma et la source électrique.

II.2.1. Caractéristique d'une décharge

L'application d'une tension continue entre deux électrodes d'un tube à gaz reste une méthode classique pour réaliser une décharge. Une différence de potentiel continue V est appliquée aux bornes du tube à travers une résistance de charge R_c par un générateur de force électromotrice E . En agissant sur R_c et E , on peut faire varier le courant I traversant le gaz, depuis des valeurs très faibles de 10^{-18} A, jusqu'à quelque 10 A. A chaque valeur de I correspond une valeur de V , ce qui signifie une caractéristique courant-tension de la décharge, dont l'allure est visible à la figure II.9. Elle fait apparaître plusieurs domaines correspondant aux différents régimes de fonctionnement.

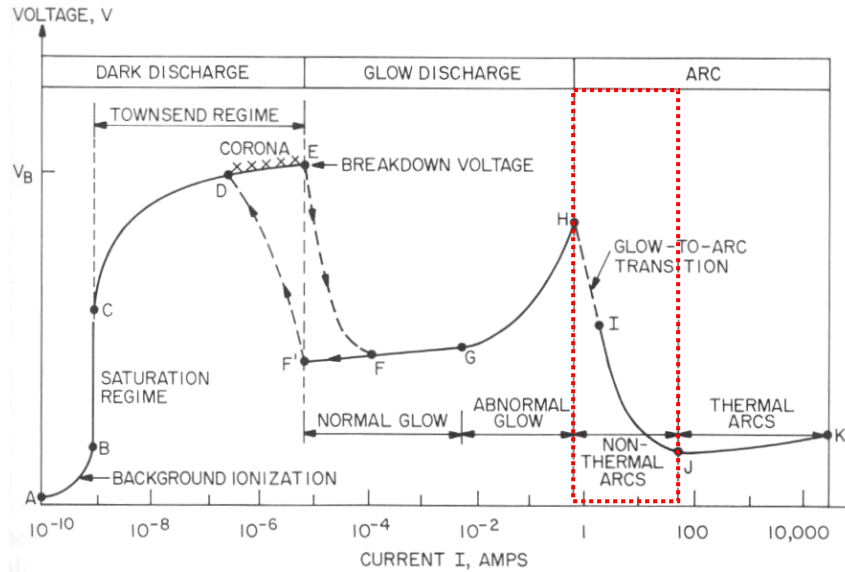


Figure II. 9 : Caractéristique tension-courant et différents régimes de décharges à courant continu [7].

Chaque dispositif de décharge a sa caractéristique propre qui résulte du couplage entre :

- la caractéristique du gaz à pression et composition données,
- la géométrie du dispositif.

Une caractéristique de décharge générale dans un plan tension-courant ne peut donc être présentée, néanmoins elle aura une forme analogue à celle présentée en figure II.10 [8]. L'évolution de cette courbe s'interprète de la façon suivante. Au départ, une forte tension, appelée tension de claquage U_{claquage} , doit être appliquée aux bornes des électrodes afin d'ioniser le gaz plasmagène et donc créer le plasma. Une fois le gaz ionisé, le milieu devient conducteur ce qui provoque une brusque diminution de la tension aux bornes des électrodes. Ensuite, il apparaît que l'arc se comporte comme un dipôle d'impédance non linéaire. **La zone en rouge correspond à notre domaine d'étude soit le domaine des décharges non thermiques avec une caractéristique de type haute tension – faible courant.**

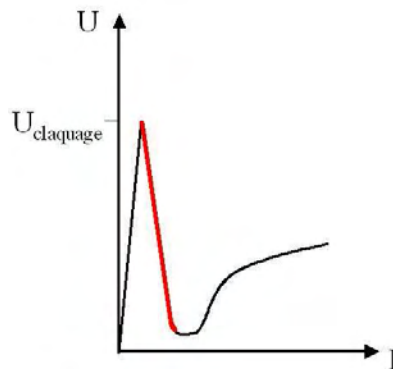


Figure II. 10 : Caractéristique tension – courant d'une décharge de type arc. Le domaine d'étude est signalé en rouge, il correspond au domaine des décharges à haute-tension et faible courant.

II.2.2. Points de fonctionnement et stabilité de la décharge

Pour connaître le point de fonctionnement obtenu par l'association d'une alimentation électrique et d'un dispositif de décharge, il suffit de tracer leurs caractéristiques sur un même graphique dans le plan tension - courant. Toutes les intersections entre les deux courbes sont des points de fonctionnement possibles bien que pas nécessairement stables.

Un point de fonctionnement est stable si le système tend à s'opposer à une perturbation qui aurait pour effet de déplacer ce point, pour revenir au point initial. **On montre que les points où la caractéristique a une pente positive sont toujours stables. En revanche, les points où la caractéristique a une pente négative ne sont stables que si la pente de la droite de charge (générateur, source) est supérieure, en valeur absolue, à celle de la caractéristique [1].** A titre d'exemple, la figure II.11 présente des points de fonctionnement de différentes stabilités.

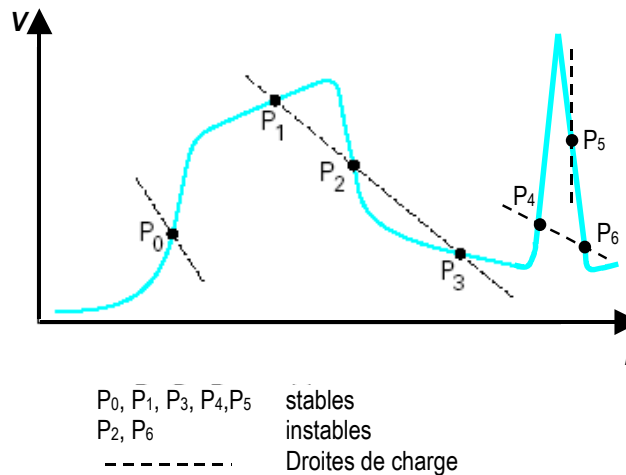


Figure II. 11 : Stabilité des régimes de décharge, adapté de [1].

II.2.2.1. Dispositif de décharge alimenté par une source de tension en série avec une résistance

Lorsque le dispositif de décharge est alimenté par une source de tension placée en série avec une résistance (figure II.12), il apparaît que les points de fonctionnement dépendent de la valeur de cette résistance (figure II.13). L'explication est la suivante. En l'absence de décharge, le courant dans le circuit est nul et la tension aux bornes de l'arc est égale à la tension à vide de la source, $U_{arc} = E$. Dès que la décharge est amorcée, le courant circule dans le circuit entraînant la diminution de la tension aux bornes de l'arc. L'augmentation de la valeur de la résistance placée en série dans le circuit permet de diminuer la tension aux bornes de l'arc (Equation II.3). Le courant obtenu en sortie est relativement stable.

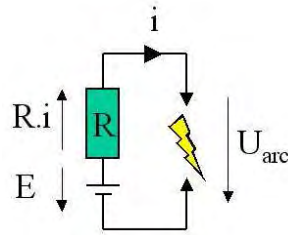


Figure II. 12 : Source de tension en série avec une résistance.

$$U_{arc} = E - R.i$$

Equation II. 3

Avec E : la tension à vide de la source électrique

U_{arc} : la tension aux bornes de l'arc

R : la résistance de la source électrique

i : le courant

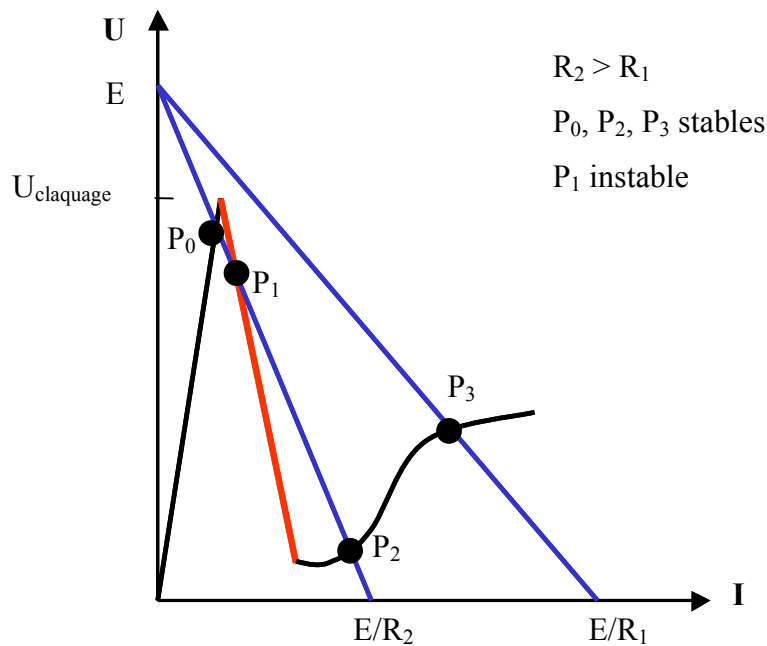


Figure II. 13 : Courbes caractéristiques tension – courant d'une décharge en trait noir et d'une source électrotechnique en trait bleu pour deux résistances, R_1 et R_2 , de valeurs différentes. Notre domaine d'étude, haute tension – faible courant, est représenté par le trait rouge.

La figure II.13 fait apparaître quatre points de fonctionnement, P_0 , P_1 , P_2 et P_3 . D'après les remarques précédentes sur les notions de stabilité des points de fonctionnement, il apparaît que seul le point P_1 , situé dans notre domaine d'étude, est instable. Ainsi, l'obtention d'un point de fonctionnement dans le domaine étudié implique l'utilisation d'une résistance élevée (figure II.14).

Les principaux inconvénients de ce type de source en série avec une résistance sont :

- un très mauvais rendement énergétique (figure II.14) puisque le maximum théorique est de 50 %. Un refroidissement important des résistances est nécessaire, ces dernières dissipant la majorité de l'énergie. Ce sont donc des alimentations électriques ayant un volume important et relativement bruyantes en raison des ventilateurs de refroidissement.
- la difficulté du réglage du courant en temps réel.

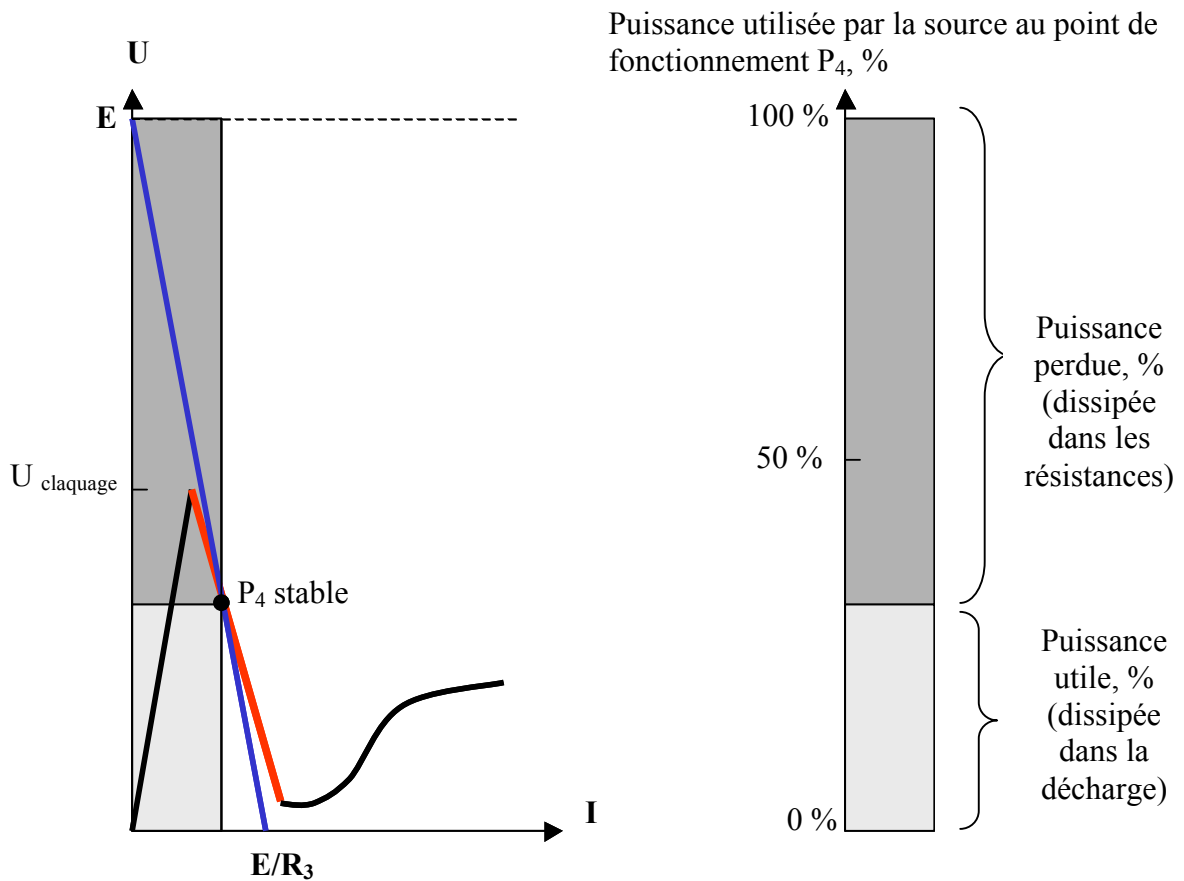


Figure II. 14 : Point de fonctionnement d'une décharge haute-tension faible courant alimentée par une source de tension en série avec une résistance [8].

- **Variation du point de fonctionnement**

Dans certains cas, le point de fonctionnement peut varier autour d'une valeur moyenne en raison de variations provenant de la caractéristique de la source électrique et/ou de la décharge. Par exemple, dans le cas d'une source de tension, E , en série avec une résistance, R , l'existence d'une ondulation, ΔE , autour de la valeur moyenne E , conduit à une ondulation, ΔI , sur le courant de sortie (figure II.15).

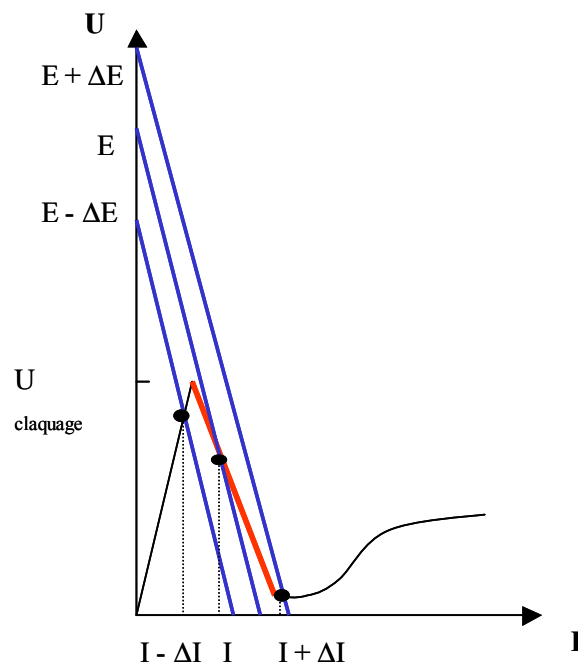


Figure II. 15 : Ondulation du courant due à l'ondulation de tension fournie par une source en série avec une résistance [8].

Enfin, les décharges de type arc glissant présentent des variations de leur caractéristique statique. En effet, lors du fonctionnement de la décharge, l'allongement de l'arc conduit à l'augmentation de la tension aux bornes du dispositif pour un même courant dans le circuit. Dans le plan tension - courant, cette fluctuation est traduite par une transformation homothétique de la caractéristique de la décharge selon l'axe de la tension (figure II.16).

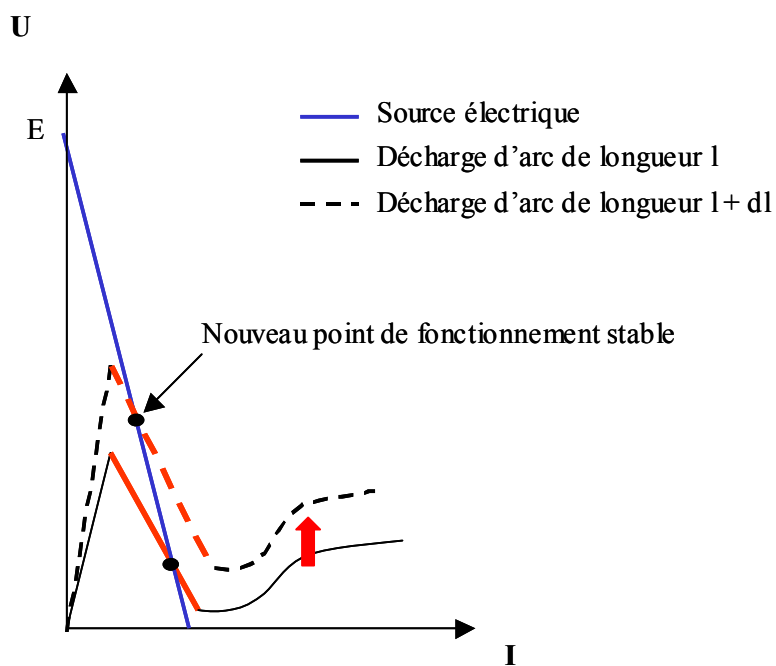


Figure II. 16 : Variation du point de fonctionnement due au dispositif de décharge. Les deux points de fonctionnement obtenus sont stables.

II.2.2.2. Dispositif de décharge alimenté par une source ayant une caractéristique de type source de courant idéal

Un point de fonctionnement stable dans notre domaine d'étude peut être obtenu lorsque le dispositif de décharge est alimenté par une source ayant une caractéristique de type « source de courant idéal » (figure II.17).

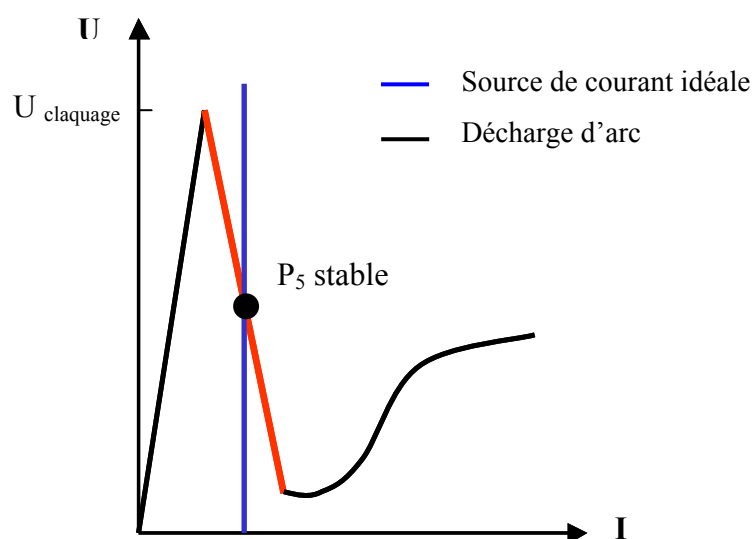


Figure II. 17 : Point de fonctionnement de la décharge alimentée par une source de courant parfaite (courbe en bleue).

II.2.2.3. Conclusion

En conclusion, on peut affirmer que :

1. La caractéristique électrique d'une décharge dépend de la caractéristique du gaz (composition chimique, pression) et des paramètres géométriques (taille et forme) et physiques (conducteurs ou non conducteurs) des électrodes.
2. Les points de fonctionnement électriques d'un système dépendent des caractéristiques de la source électrique et du dispositif de décharge.
3. **L'analyse statique dans le plan tension-courant permet de déterminer les conditions nécessaires pour obtenir des points de fonctionnement stables.** Toutefois, ces conditions nécessaires ne sont pas suffisantes. En effet, **la connaissance des conditions suffisantes résulte de l'étude des caractéristiques dynamiques de la source électrique et du dispositif de décharge.**

L'obtention de points de fonctionnement stables pour notre système, évoluant dans le domaine des hautes - tensions et faibles courants, implique l'utilisation d'une alimentation électrique ayant des

caractéristiques bien spécifiques. Nous avons identifié deux types de sources électriques pouvant répondre à nos exigences. Il s'agit d'une source électrotechnique et d'une source électronique avancée de courant continu.

II.2.3. Description des générateurs de décharges utilisés

Dans cette partie, les sources électriques utilisées dans le cadre des travaux de la thèse sont décrites en détails. Il s'agit de deux sources électriques de technologie différente :

- une source électrotechnique,
- une source électronique « hacheur – dévolteur ».

Ces deux sources assurent une alimentation de l'arc en courant continu. L'emploi de courant continu, retenu pratiquement pour tous les arcs monophasés, procure une stabilisation accrue de l'arc. En effet, contrairement à l'utilisation d'un courant alternatif, il n'y a pas d'extinction et de réamorçage de la décharge à chaque période. Les positions des anodes et cathodes sont fixes. Enfin, l'emploi d'une alimentation à courant contrôlé permet un fonctionnement stable sans perte dans la zone à pente négative de la caractéristique de l'arc [9].

II.2.3.1. Source électrotechnique

Dans le cadre de recherches menées au CEP, Sophia-Antipolis portant sur le reformage d'hydrocarbure par plasma froid, une source électrotechnique basée sur l'utilisation d'un transformateur haute-tension a été développée pour la génération de décharge de type haute-tension et faible courant [10].

Le tableau II.1 présente les caractéristiques de cette source électrique. Ainsi, il est possible de travailler dans la configuration de tension alternative AC, ± 2500 V ou ± 5000 V, ou de tension continue DC. La configuration DC est obtenue par le redressement de la tension AC, issue des transformateurs haute-tension et par la superposition d'un pont de diodes et de condensateurs haute-tension (figure II.18).

Données électriques d'entrée	220 V/ 50 Hz, 6 kW	
	Premier système haute-tension	Second système haute-tension
Haute-tension	± 2500 V	± 5000 V
Puissance électrique	2 kW	4 kW
Signaux électriques	AC (50 Hz) ou DC	AC (50 Hz) ou DC
Courant électrique maximal	400 mA	450 mA

Tableau II. 1 : Spécifications de la source électrique [10].

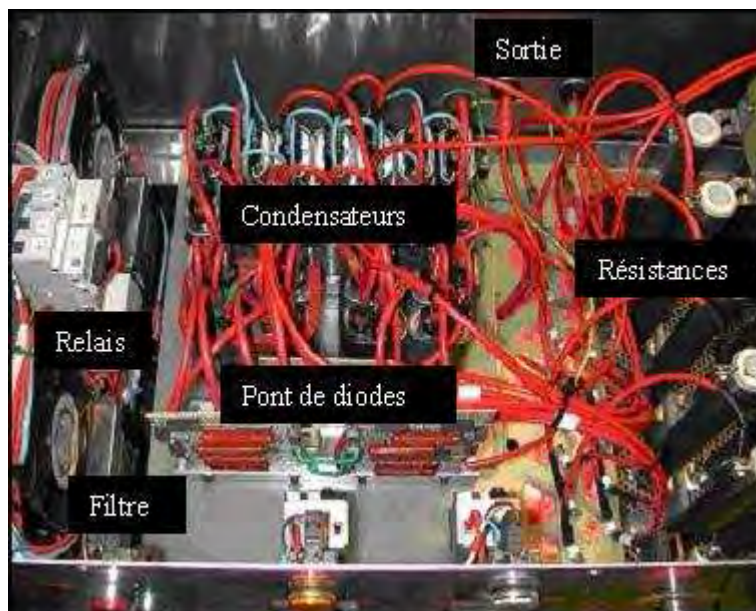
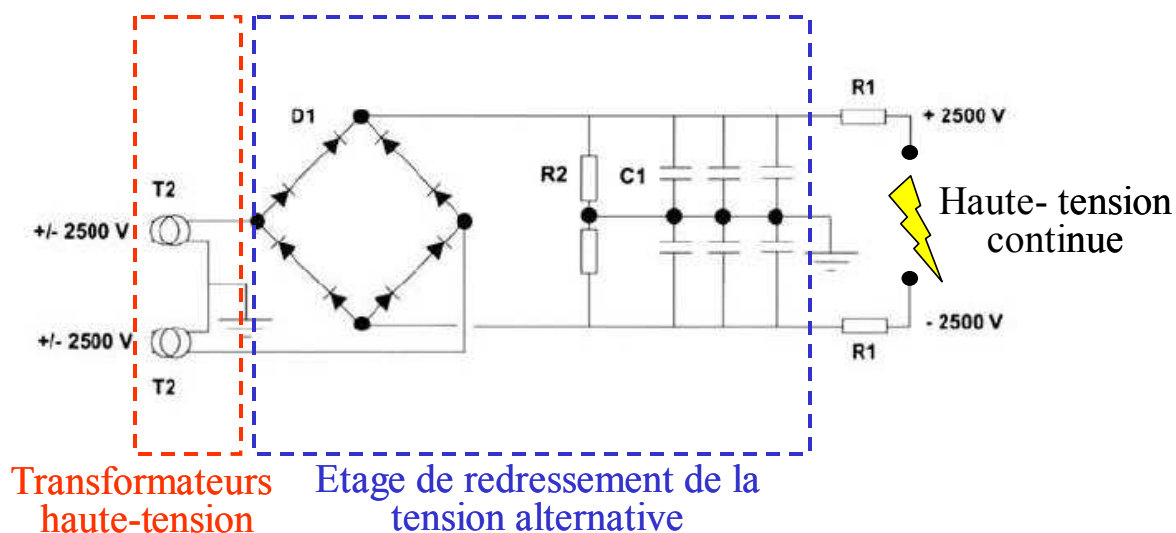


Figure II. 18 : En haut : schéma électrique de la source électrique dans la configuration : DC, ± 2500 V [10]. En bas, photographie de la vue interne de la source électrique.

Le schéma du circuit de base composé de la source électrique et du dispositif de décharge (figure II.12) conduit à l'écriture de l'équation II.4. Celle-ci peut également s'écrire sous la forme suivante :

$$i = \frac{E}{(R_{arc} + R)} \text{ avec } R_{arc} = \frac{l}{\sigma \cdot S} \text{ et } R = R_s + R_b \quad \text{Equation II. 4}$$

Avec R_{arc} : résistance de l'arc

l : longueur de l'arc,

σ : conductivité électrique,

S : section de l'arc,

R : résistance de la source électrique composée de la résistance du transformateur et de l'étage de redressement, R_s , et de celle du jeu de résistance de ballast¹, notée R_b .

L'équation II.4 met en évidence la complexité du contrôle de la tension aux bornes de l'arc. En effet, la résistance de l'arc dépend de sa longueur, de sa section et de la conductivité électrique du milieu. En d'autres termes, la résistance dépend de la géométrie du système de décharge, du débit de gaz utilisé, de la température et de la pression de fonctionnement. En revanche, la limitation du courant dans la décharge est possible grâce à l'utilisation du jeu de résistances de ballast. Il va permettre d'ajuster le courant maximal, soit le courant de court-circuit noté I_{cc} , aux bornes de la décharge (Equation II.5).

$$I_{cc} = \frac{E}{R} = \frac{E}{(R_s + R_b)} \quad \text{Equation II. 5}$$

La résistance, R_s , est une constante de la source électrique. Quant au jeu de résistances de ballast, R_b , il est composé de huit résistances de 4700 ohms chacune pouvant être placée en série ou en parallèle. Cette source électrique présente l'inconvénient d'avoir un mauvais rendement électrique. En effet, pour un courant de sortie fixé, noté i_s , la puissance fournie à la décharge est fixée par le montage et est donnée par l'équation II.6.

$$P = E \cdot i_s - R \cdot i_s^2 \quad \text{Equation II. 6}$$

De plus, l'opération de variation de la valeur de la résistance de ballast ne peut s'effectuer que lorsque la source est arrêtée. Aussi, la variation du courant ne peut pas s'effectuer de façon continue, d'où l'intérêt d'utiliser la source électronique « hacheur – dévolteur ».

¹ Le terme de **ballast** désigne n'importe quel composant électrique utilisé pour réduire le courant dans un circuit électrique.

II.2.3.2. Source électronique « hacheur-dévolteur »

Cette source électrique, présentée aux figures II.19 et II.20, est le fruit d'une collaboration tripartite entre le LEEI (Laboratoire d'Electrotechnique et d'Electronique Industrielle), la société CIRTEM (Centre d'Ingénierie et de Recherche des Technologies de l'Electronique Moderne) et l'EMP (Ecole des Mines de Paris). Salanne J.-P. a contribué au développement de cette source à travers ces travaux de thèse au LEEI, et dont l'objectif général était d'améliorer le contrôle du point de fonctionnement des décharges électriques par l'intermédiaire de leur alimentation [8]. La partie puissance de l'alimentation a été dimensionnée et réalisée par la société CIRTEM tandis que la partie commande a été réalisée au LEEI par Salanne J. -P. L'Ecole des Mines de Paris a participé au projet de par son savoir - faire dans le domaine de la génération de plasma hors-équilibre thermodynamique. Ainsi, la source électrique a été testée avec un dispositif de décharge réel développé au CEP, Sophia-Antipolis, pour le reformage d'hydrocarbure.

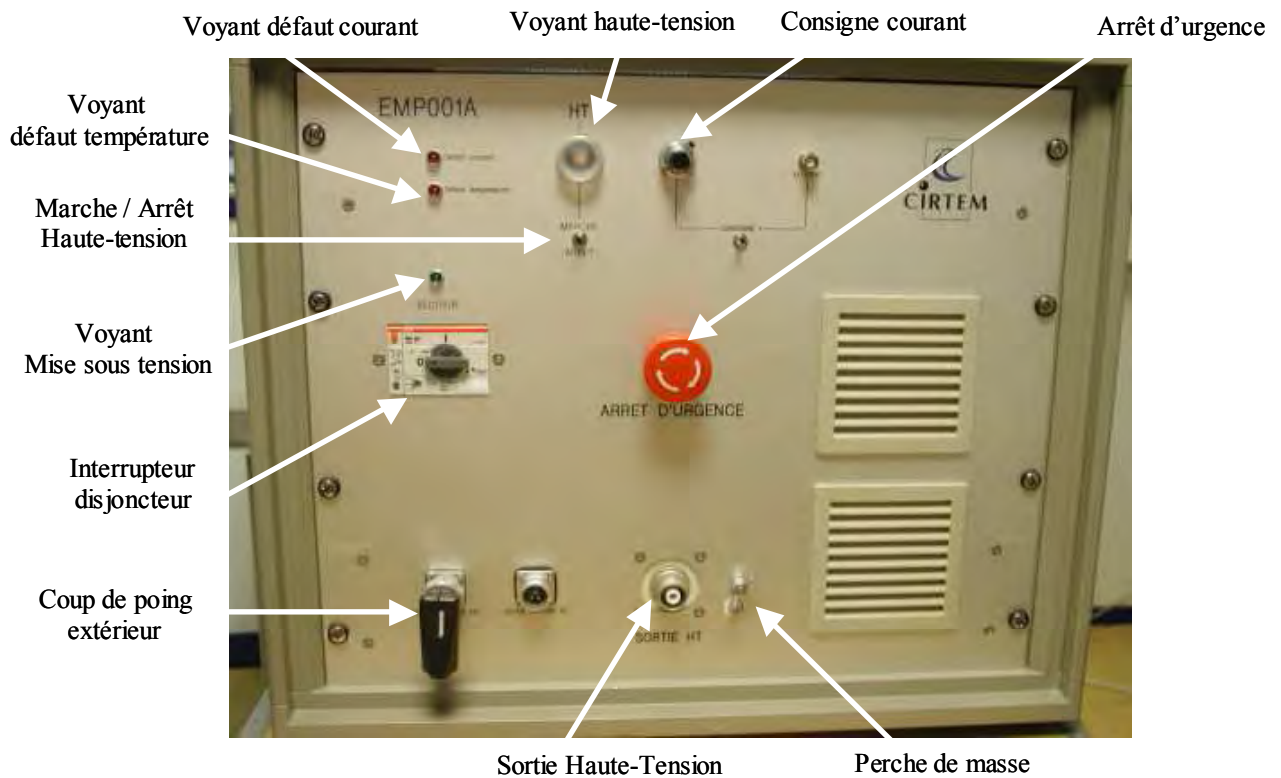


Figure II. 19 : Photographie de la face avant de la source hacheur-dévolteur.



Figure II. 20 : Photographie de la face arrière de la source hacheur-dévolteur correspondant au brassage de la polarité de la tension. La photographie présente le montage pour une polarité de sortie positive.

L'objectif de cette partie est de décrire les principales caractéristiques de cette source électrique conçue pour alimenter des décharges glissantes. Après la présentation du principe de fonctionnement d'un « hacheur-dévolteur » (dont la structure est visible à la figure II.21), nous verrons la structure de puissance de la source et le type de régulation du courant proposés par Salanne ainsi que les conditions expérimentales dans lesquelles la source a été développée et testée.

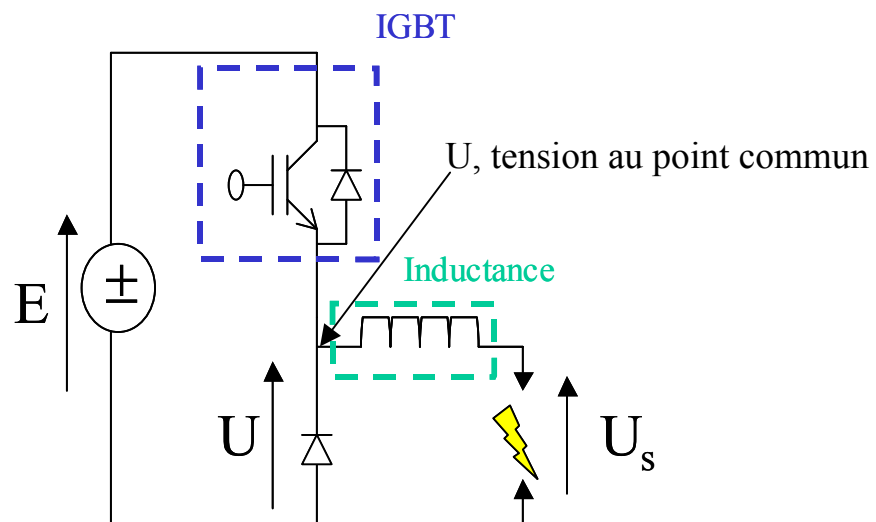


Figure II. 21 : Structure de la source hacheur-dévolteur classique [8].

Tout d'abord, le hacheur est un dispositif de l'électronique de puissance permettant de modifier la valeur de la tension d'une source de tension continue avec un rendement élevé². Le rapport de cycle, α (figure II.22 et Equation II.7), se fait à une fréquence très élevée ce qui a pour conséquence de créer une tension moyenne (figure II.23 et Equation II.8). Le hacheur est dit dévolteur car la tension délivrée en sortie est inférieure à la tension appliquée en entrée.

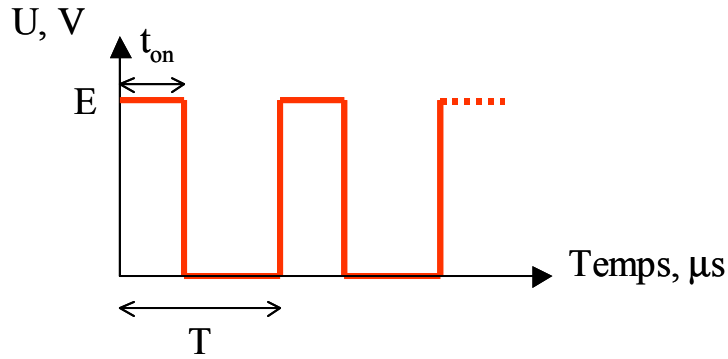


Figure II. 22 : Evolution de la tension, U, au point commun.

$$\alpha = \frac{t_{on}}{T} \text{ avec } \alpha, \text{ le rapport cyclique}$$

Equation II. 7

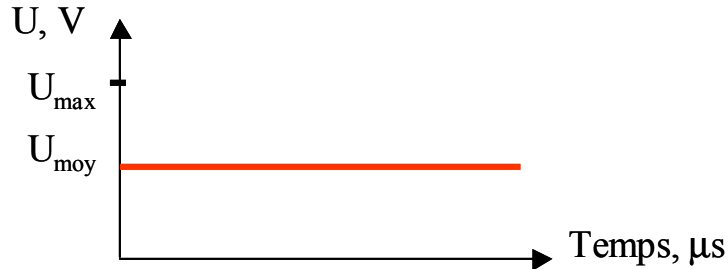


Figure II. 23 : Tension moyenne au point milieu du hacheur donnée par la formule de l'équation II.8.

$$U_{moy} = \alpha \cdot E$$

Equation II. 8

Ainsi, cette structure de source permet de contrôler la valeur moyenne du courant à l'aide du rapport cyclique et de maîtriser la valeur instantanée du courant grâce à l'inductance. Un schéma de la structure de puissance est présenté à la figure II.24. Cette structure permet de contrôler le courant moyen avec des composants de puissance de basse tension (inférieure aux milliers de volts). Au niveau de l'étage basse tension, l'onduleur permet de fournir une tension alternative au transformateur.

² En électronique, le rendement exprime le rapport entre la puissance consommée et la puissance fournie à un circuit.

Ce dernier a pour but d'amplifier la tension totale en sortie du convertisseur. Enfin, un redresseur à diodes placé entre le transformateur et l'inductance de sortie permet d'obtenir un courant continu à la sortie.

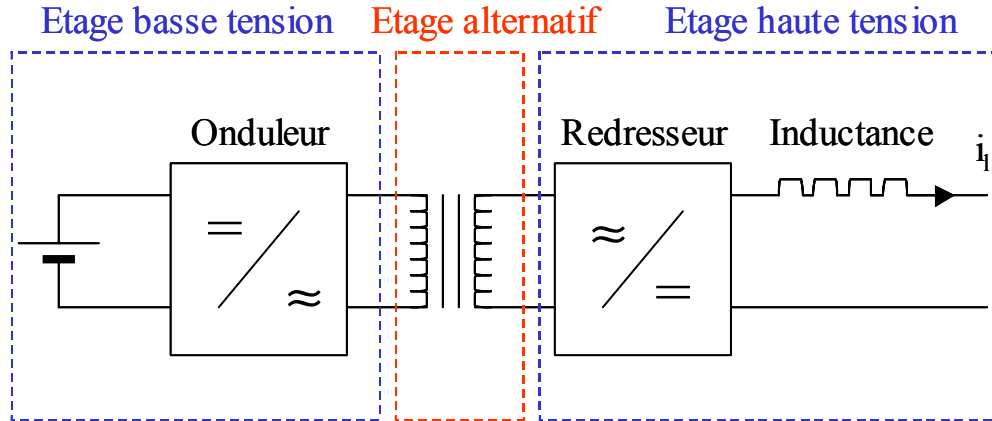


Figure II. 24 : Structure de puissance proposée par Salanne J. -P [8].

Une fois la structure de puissance définie, son dimensionnement est effectué de façon à respecter les caractéristiques finales du générateur, soient une tension à vide de 5000 V et un courant contrôlé et réglable entre 0 et 1 A. Pour la partie commande, Salanne propose **une régulation du courant par une hystérésis à fréquence fixe** (figure II.25). En effet, ce type de régulation assure des réponses dynamiques très rapides par rapport à d'autres régulations classiques existantes.

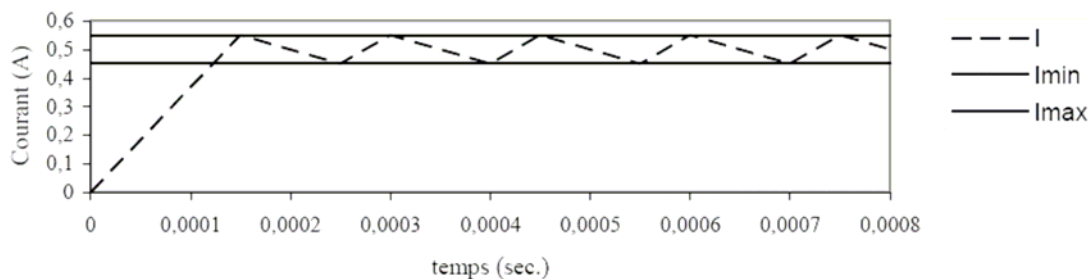


Figure II. 25 : Forme d'onde du courant avec une régulation par hystérésis [8].

Le dispositif de décharge étudié par Salanne est composé de deux électrodes de géométrie pointe - pointe avec une distance inter - électrode variable (figure II.26). Les décharges sont réalisées à l'air avec et sans flux de gaz ; les essais sous flux de gaz permettant de tester la robustesse de la commande face à une perturbation. La figure II.27 présente l'évolution temporelle du courant dans la décharge lors d'un essai expérimental à l'air.

L'obtention de points de fonctionnement stables nécessitant une caractérisation, statique et dynamique, de l'évolution du couple tension - courant, Salanne a également développé un modèle de

simulation de décharges glissantes. La confrontation de ces résultats numériques aux résultats expérimentaux a pour objectif l'optimisation de la source électrique.

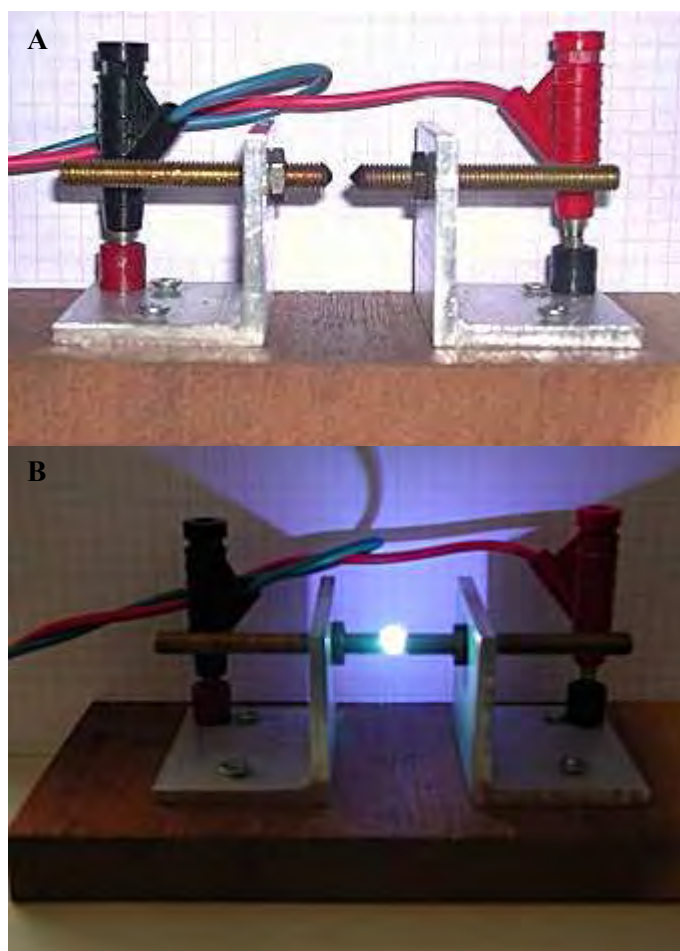


Figure II. 26 : Photographies du dispositif de décharge utilisé par Salanne lors des essais avec la source électronique « hacheur-dévolteur ». A. Dispositif de décharge non alimenté, B. Dispositif alimenté par la source électronique [11].

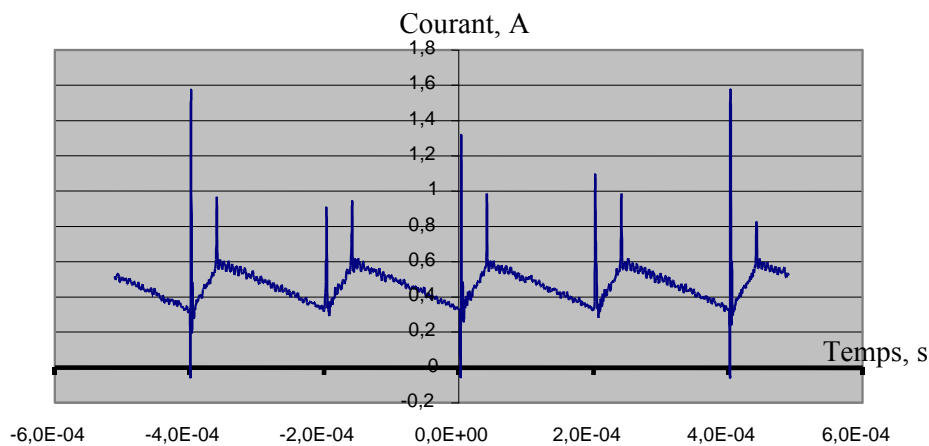


Figure II. 27 : Evolution temporelle du courant de décharge lors d'un essai préliminaire avec un premier prototype de la source hacheur-dévolteur . Conditions opératoires : écartement des électrodes de 4 mm, courant moyen de 640 mA avec une ondulation crête-crête de 250 mA [11].

Les caractéristiques de la source hacheur-dévolteur sont les suivantes :

- L'alimentation permet de contrôler de façon continue le courant en valeur moyenne et en valeur instantanée (afin d'éviter les points de fonctionnement à courant fort). La valeur du courant moyen de sortie est comprise entre deux valeurs de consignes : un courant maximal, et un courant minimal. La régulation du courant de décharge, gérée par hystérésis, a une bande passante proche de 10 kHz.
- L'alimentation permet de délivrer une tension de claquage inférieure ou égale à 5000 V et un courant réglable de 0 à 1 A,
- L'alimentation est capable de supporter la mise en court-circuit de sa sortie grâce à sa structure de type hacheur-dévolteur possédant une inductance en série en sortie.
- Enfin, elle présente une tension suffisante à courant nul pour pouvoir amorcer la décharge [8].

La figure II.28 présente les courbes caractéristiques tension – courant d'une décharge et d'une source de courant idéal tandis que la figure II.29 correspond à l'évolution dynamique du point de fonctionnement obtenu au cours d'un essai expérimental où la torche plasma développée au CEP est alimentée par la source hacheur-dévolteur. Les courbes des points de fonctionnement théorique et expérimental étant similaires, l'alimentation électrique peut être assimilée à une source de courant idéal.

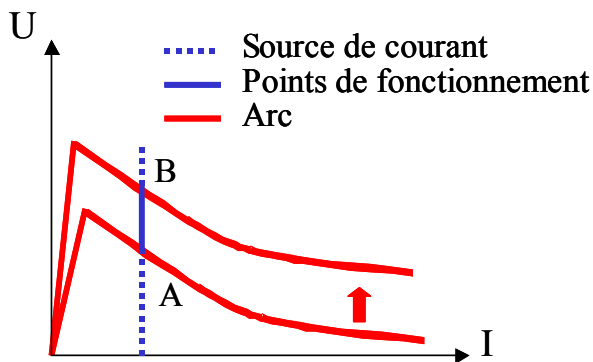


Figure II. 28 : Schéma de l'évolution du point de fonctionnement de la décharge alimentée par une source de courant idéal.

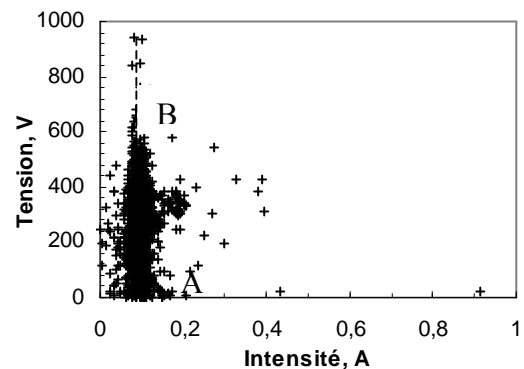


Figure II. 29 : Evolution dynamique du point de fonctionnement de la décharge. Conditions opératoires : $Q_{\text{arcal } 21} = 794 \text{ NI/h}$, tuyère cylindrique de longueur $L = 100 \text{ mm}$.

III. Banc expérimental

Dans une première partie, le schéma de principe et le conception du banc expérimental sont décrits. Puis, les quatre éléments principaux du banc expérimental composés du réacteur, des systèmes d'alimentation, du filtre et du diagnostic, sont présentés en détails.

III.1. Schémas de principe et conception du dispositif expérimental

III.1.1. Schémas de principe

Les figures II.30 et II.31 représentent les schémas de principe du dispositif expérimental. Une photographie du banc expérimental est présentée à la figure II.32.

Le dispositif est composé des éléments suivants :

- le réacteur plasma est « le cœur » du dispositif. Il est le siège de la réaction de craquage de l'hydrocarbure,
- la source électrique permet d'alimenter le réacteur plasma,
- les systèmes d'alimentation assurent l'injection de trois éléments : le gaz plasmagène, le précurseur carboné soit l'hydrocarbure et enfin, éventuellement, le précurseur catalytique. Le débit de chacun des éléments peut être contrôlé à l'aide de débitmètres à flotteur et massique pour les précurseurs gazeux et à l'aide d'un pousse-seringue programmable pour le précurseur catalytique liquide.
- Un filtre placé en sortie du dispositif assure la séparation entre les dépôts de carbone solides et les gaz. Les produits de la synthèse sont ainsi facilement récupérés.
- Trois types de diagnostics permettent de suivre l'évolution du procédé en cours de fonctionnement. Il s'agit d'un diagnostic électrique, thermique et d'une analyse des gaz de sortie par chromatographie en phase gazeuse. L'évolution de la pression dans le système est suivie à l'aide de trois manomètres.
- Un système d'acquisition permet l'enregistrement en continu des différentes mesures.

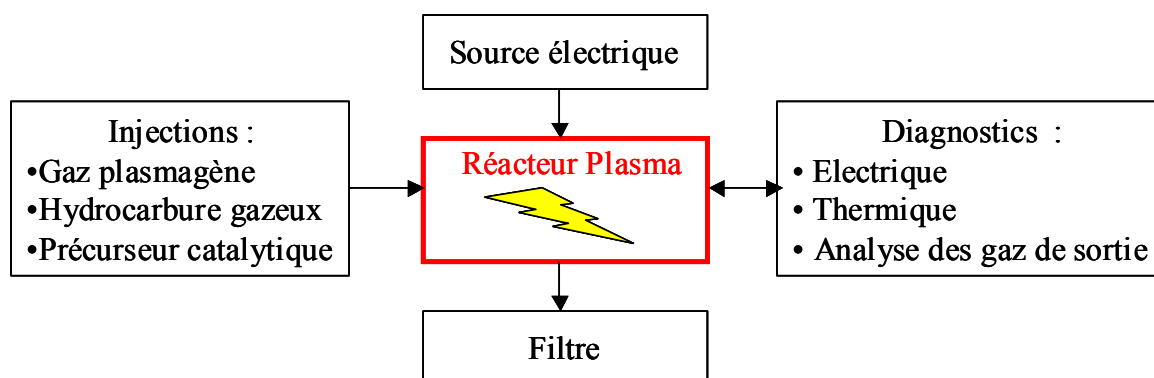


Figure II. 30 : Schéma de principe du procédé développé au CEP, Sophia-Antipolis.

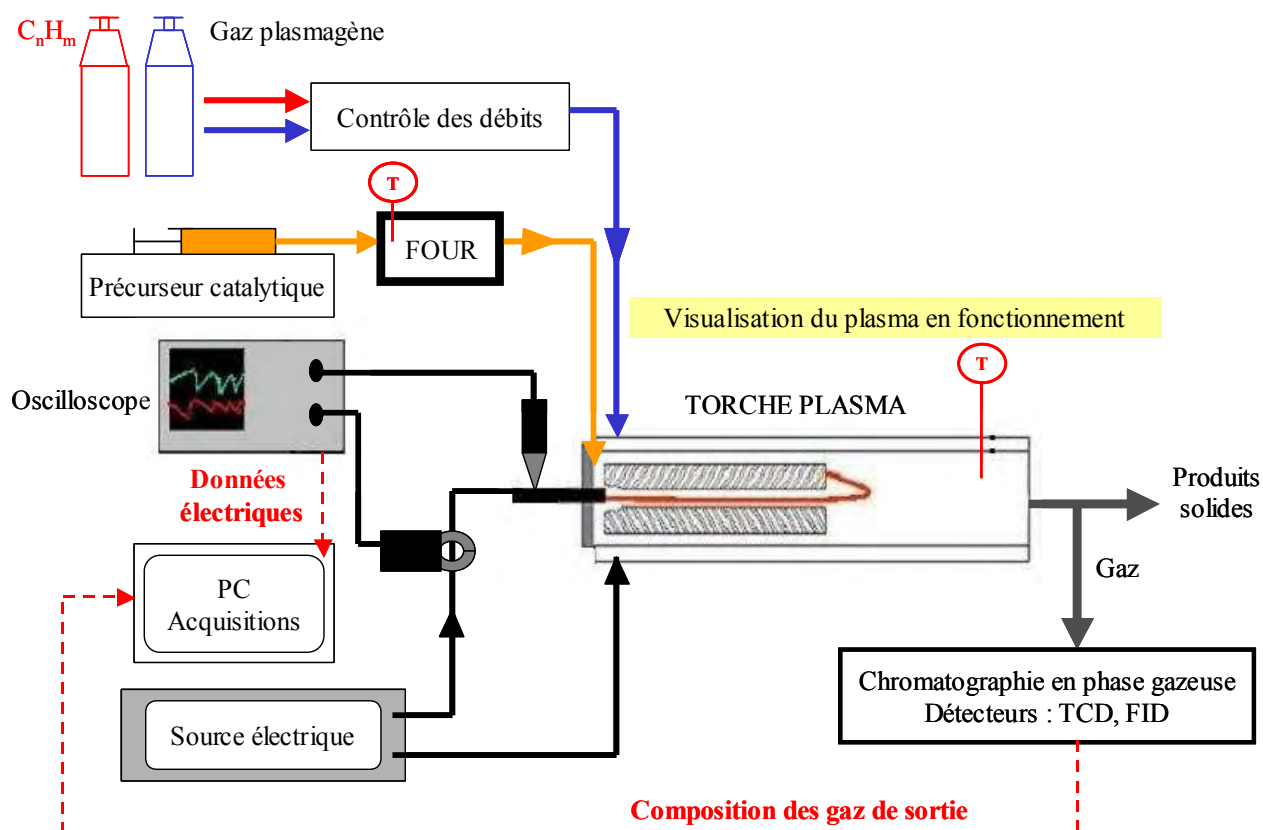


Figure II. 31 : Schéma de principe développé du banc expérimental.

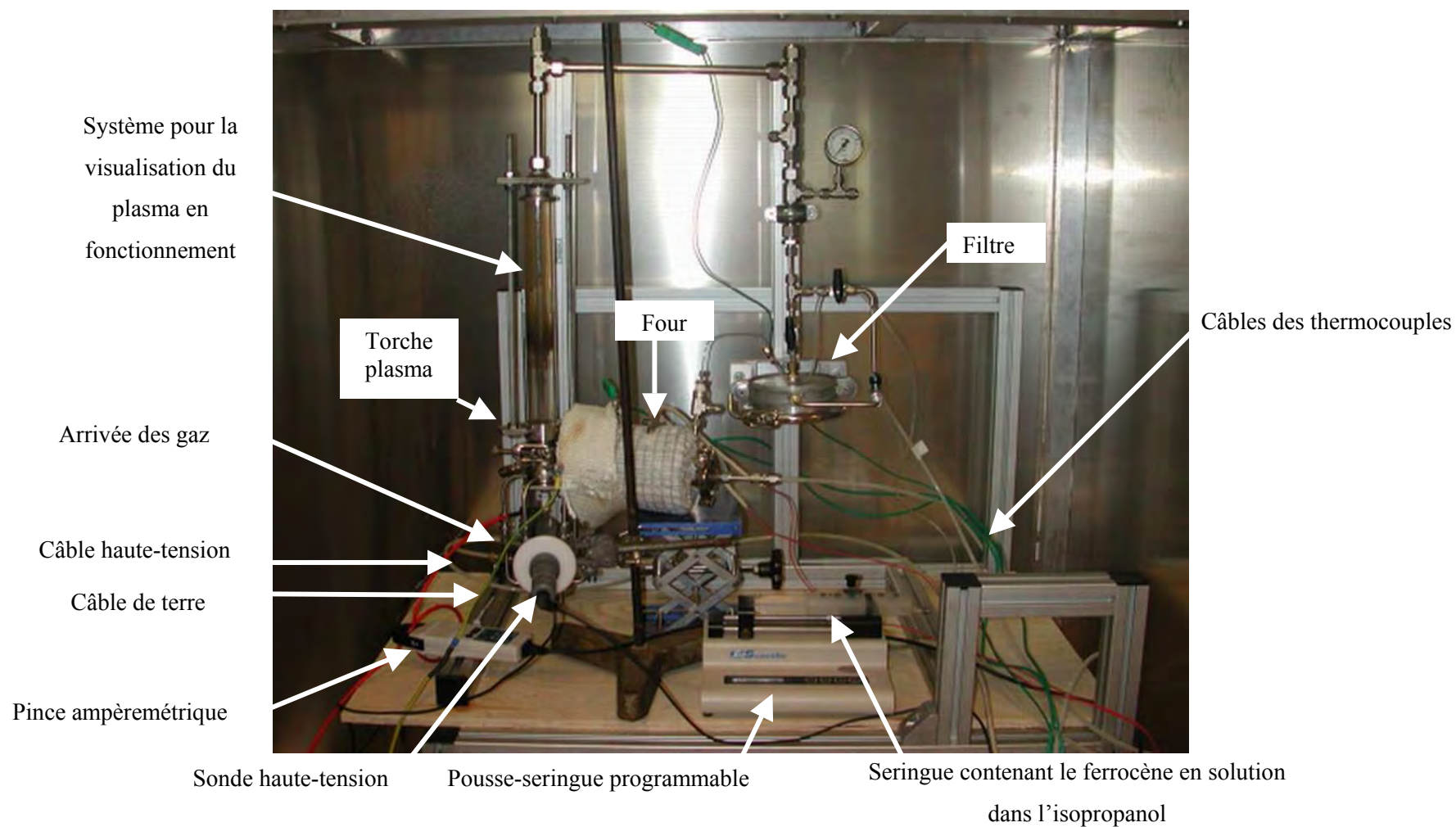


Figure II. 32 : Photographie du banc expérimental lors des essais avec injection d'hydrocarbure et de catalyseur.

III.1.2. Conception du dispositif expérimental

Le dimensionnement du dispositif expérimental s'effectue pour une production de carbone solide produit variant entre 1 et 3 g/h. En considérant que l'éthylène est l'hydrocarbure utilisé et que sa réaction de craquage est totale, les débits d'éthylène à employer pour atteindre ces valeurs de production sont d'environ 3,5 l/h. Un facteur de dilution variant entre 10 et 100 % est considéré afin d'estimer les débits en gaz porteur (gaz plasmagène). Cela conduit à des débits variant entre 10 et 350 l/h. Il s'est avéré que les débits d'éthylène utilisés sont supérieurs d'un facteur 10 à ceux initialement estimés ; en effet, **ce dimensionnement ne tient pas compte de l'évolution dynamique de la torche plasma**. Les essais expérimentaux à blanc (c'est-à-dire sans injection de réactifs) permettent d'identifier les conditions opératoires assurant un régime de fonctionnement stable et la formation d'un plasma homogène.

La torche plasma fonctionne à pression atmosphérique. Or, nous avons vu précédemment que les plasmas froids sont favorisés par les basses pressions. En fait, l'obtention de décharges d'arc non thermique à pression atmosphérique s'effectue en limitant le courant aux bornes de la décharge. Le choix de la source électrique est donc un paramètre déterminant pour le développement du dispositif expérimental (Partie II.2. Alimentation électrique).

La composition initiale du mélange à base d'éthylène, d'acétylène et d'argon apparaît comme un moyen de contrôler la température dans le réacteur, les réactions de craquage de l'éthylène³ et de l'acétylène⁴ étant exothermiques. Dans cet objectif, pour un milieu de composition variable en éthylène et en argon, la température adiabatique de la réaction est estimée. La figure II.33 donne une indication des isothermes de température adiabatique, obtenues en résolvant l'équation II.10, pour des mélanges composés d'argon et d'éthylène.



$$-n \cdot \Delta_f H_{(C_2H_4)}^\circ = 2n \cdot \int_{298}^{T_{adiabatique}} C_p(C_{graphite}) \cdot dT + \left(\frac{n}{2}\right) \int_{298}^{T_{adiabatique}} C_p(H_2) \cdot dT + m \cdot \int_{298}^{T_{adiabatique}} C_p(Ar) \cdot dT \quad \text{Equation II. 10}$$

³ $\Delta_f H^\circ(C_2H_4) = 52.4 \text{ kJ/mol}$.

⁴ $\Delta_f H^\circ(C_2H_2) = 227.4 \text{ kJ/mol}$, Données Handbook of Chemistry and Physics, Lide D. R. , 83rd edition, 2002-2003.

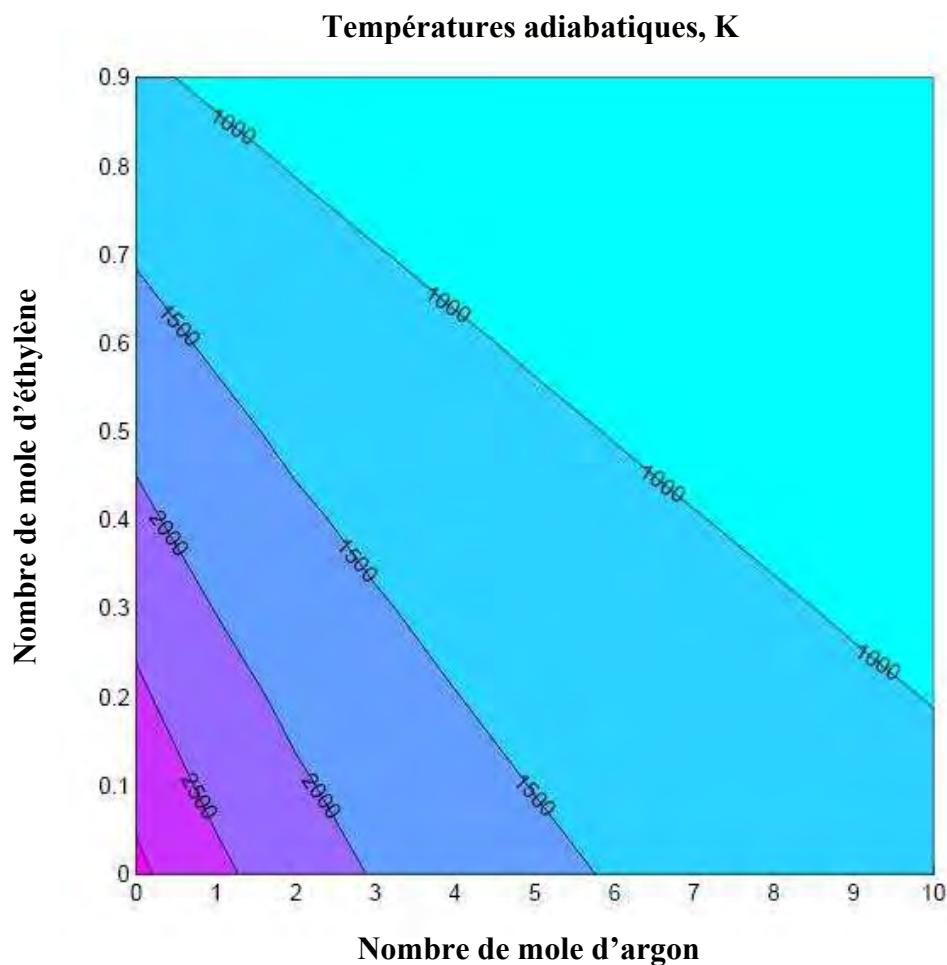


Figure II. 33 : Isothermes de températures adiabatiques, en K, en fonction du nombre de mole d'argon et d'éthylène présent dans le mélange initial.

Par la suite, les essais expérimentaux réalisés avec l'injection d'hydrocarbure ont démontré que la réaction de décomposition de l'éthylène par plasma est très limitée et que notre hypothèse s'avère non exploitable. Le lecteur peut se référer au chapitre III. Partie II « Caractérisation du procédé lors de l'injection d'hydrocarbure » pour une estimation du taux de conversion en fonction du débit d'éthylène injecté. En fait, **les résultats expérimentaux et numériques issus des modélisations (chapitre V) mettent en évidence que la température dans le réacteur est directement fonction de la puissance électrique injectée dans le milieu, soit des caractéristiques de la source électrique utilisée.**

Enfin, le diamètre et la longueur du réacteur sont fixés respectivement à 4 et 32 cm. Connaissant les débits de gaz employés et le volume du réacteur, le temps de séjour des particules dans le réacteur est estimé. Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que celles rencontrées dans la littérature pour la synthèse en phase gazeuse de nanotubes de carbone soit de l'ordre de la seconde (3 à 6 s) [12], [13].

III.2. Réacteur plasma

Le réacteur plasma est composé de la torche plasma, correspondant à la **zone de décharge** et présentée en détails dans la partie II.1, et d'une **zone post décharge**. Cette dernière est composée :

- soit d'un système équipé d'un tube en pyrex. Ce dispositif a permis de suivre visuellement l'évolution du plasma au cours des différents essais expérimentaux.
- soit d'une enceinte en acier inoxydable isolée thermiquement, de 32 cm de longueur et 3 cm de diamètre. Trois piquages placés à 15, 20 et 25 cm le long du corps du réacteur permettent l'introduction de thermocouples K.

III.3. Systèmes d'alimentation

III.3.1. Alimentation électrique

Les deux alimentations électriques employées ont été décrites précédemment. Pour l'ensemble des essais expérimentaux, **la polarité de la tension est positive** ; celle-ci conduisant à l'allongement de l'arc. Le câble de tension positive est relié à l'électrode centrale (Anode) tandis que l'électrode cylindrique (cathode) est reliée à la terre. **Ce type de branchement correspond à une polarité inversée par rapport aux torches thermiques (DC)** ⁵.

III.3.2. Alimentation des gaz

Le système d'alimentation des gaz est composé de :

- 1 débitmètre massique, Bronkhorst F-201C, 0 - 1 Nm³/h étalonné à l'argon, utilisé pour l'injection du gaz plasmagène,
- 3 débitmètres à flotteurs, Aalborg, étalonnés pour chaque gaz utilisé pour des pressions en sortie de détendeur égales à 1 et 2 bar.

⁵ Le branchement en polarité inversée s'est avéré conduire à un fonctionnement plus stable qu'un branchement en polarité dite « standard ». Jusqu'à aujourd'hui, nous n'avons pas encore totalement compris ce phénomène.

III.3.3. Alimentation en précurseur catalytique

La synthèse de nanotubes monoparois ou de nanofibres de carbone nécessite la présence dans le milieu d'un élément métallique (Fe, Ni ou Co). Notre choix s'est porté sur l'utilisation de ferrocène ($\text{Fe}(\text{C}_5\text{H}_5)_2$), solide de couleur orangée, car sa manipulation est plus aisée que celle du pentacarbonyl de fer ($\text{Fe}(\text{CO})_5$) dont la toxicité est connue. D'un point de vue technique, l'introduction d'un élément solide de façon continue et quantifiée dans un réacteur est une opération complexe à réaliser. C'est pourquoi, nous avons opté pour une **injection sous forme de vapeurs**. Pour cela, le précurseur catalytique est dissous dans un solvant organique, l'isopropanol. Une seringue de capacité 0-100 ml est remplie de la solution catalytique puis est placée sur un pousse-seringue programmable, KdScientific. Le débit de l'injection du catalyseur est ainsi contrôlé. La solution est préalablement injectée dans un four de température réglable d'où les vapeurs catalytiques sortent pour se diriger dans le réacteur plasma. Concernant le choix du solvant, l'isopropanol a été préféré au toluène ; en effet, si d'une part, l'emploi de toluène permet d'augmenter la quantité de ferrocène solubilisé, d'autre part, il entraîne des conditions de manipulations plus contraignantes (solvant nocif, incompatibilité avec le plastique d'où l'emploi de seringue en verre...). Enfin, ce choix se justifie par le fait que la solubilité à froid du ferrocène dans l'isopropanol mesurée expérimentalement ($\sim 4 \text{ g/l}$) a été jugée suffisante (le fer étant utilisé comme élément catalytique).

III.3.4. Système de filtration

Placé en sortie du réacteur plasma, il permet de séparer les particules carbonées solides des effluents gazeux de sortie (figure II.34). Les filtres utilisés sont en microfibrilles de verre (GF/C, Fisher Scientific Labosi).

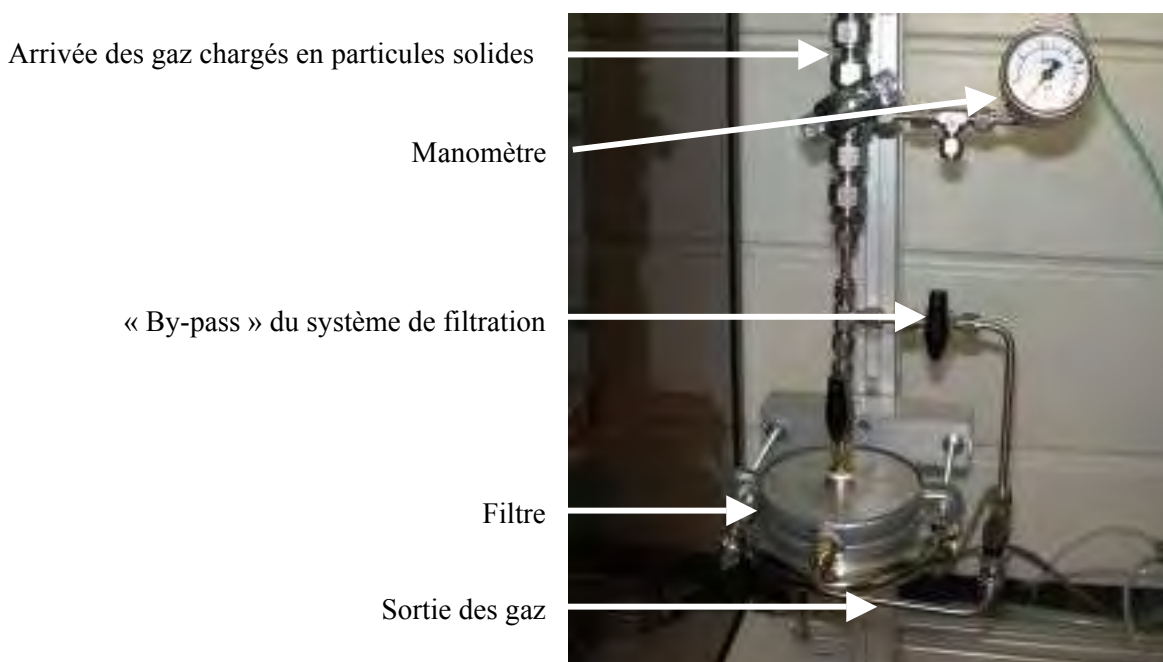


Figure II. 34 : Photographie du système de filtration.

III.4. Diagnostics

III.4.1. Diagnostic électrique

Afin de mesurer les caractéristiques du courant et de la tension de décharge, nous utilisons une pince ampèremétrique, Lem Heme PR 30, basée sur la technologie de l'effet hall pour des mesures de courant continu et alternatif jusqu'à des fréquences de 100 kHz et une sonde haute-tension, Elditest, GE380, possédant une bande passante comprise entre 0 et 5 MHz (figure II.35). En vue d'enregistrer les signaux électriques, ces deux appareils sont connectés à un oscilloscope digital, HP54615B, de fréquence maximale 500 MHz, lui-même relié à un ordinateur. Les acquisitions électriques sont enregistrées sur l'ordinateur à l'aide d'une interface graphique créée avec le logiciel d'acquisition HPVee.

Le traitement des données électriques permet de déterminer par exemple les régimes de fonctionnement de la décharge (régime filamentaire, arc glissant ou continu), la puissance et la caractéristique de la décharge.



Figure II. 35 : A gauche, la sonde haute tension possédant un facteur d'atténuation de 1/1000. A droite, la pince ampèremétrique de sensibilité 100 mV/A.

III.4.2. Diagnostic thermique

Les mesures thermiques s'effectuent à l'aide de thermocouples de type K (Thermocoax) connectés à une boîte d'acquisition, HP34970A. Les mesures sont ensuite enregistrées sur un ordinateur à l'aide d'une nouvelle interface graphique HPVee.

Les différents thermocouples dans le dispositif expérimental sont placés sur :

- le corps du réacteur en pyrex : Un thermocouple K est placé à une vingtaine de centimètres. Une distance de 23 cm en moyenne sépare alors le bout de la tuyère inox et la pointe du thermocouple.
- Le corps du réacteur en acier inoxydable : trois thermocouples K au maximum peuvent être placés.
- Le système d'injection du précurseur catalytique : deux thermocouples K sont utilisés. Un premier thermocouple mesure la température des colliers chauffants composant le four tandis que le second mesure la température à l'intérieur du four.

Aucune mesure de température n'a pu être réalisée à proximité de la zone proche de la décharge à cause des risques d'accrochage de l'arc et des phénomènes de perturbations électromagnétiques.

III.4.3. Analyse des gaz de sortie du procédé

Un chromatographe en phase gazeuse, HP5890 series II, permet d'effectuer une analyse qualitative et quantitative des gaz de sortie du procédé. Le traitement des données est réalisé avec le logiciel Borwin version 1,50. Un descriptif complet du chromatographe et des méthodes d'analyse utilisées sont présentées dans l'annexe A. On retiendra qu'une analyse en chromatographie en phase gazeuse, CPG) se déroule en trois étapes :

1. l'injection de l'échantillon à analyser. Dans le dispositif expérimental, une partie des gaz de sortie est acheminée à volume constant vers le chromatographe à l'aide d'une pompe péristaltique, KNF Flodos Stepdos 03 RC, dont le débit est fixé à 25 ml/min.
2. la séparation des éléments gazeux,
3. la détection. Le signal du détecteur permet l'identification des composants par leur temps de rétention t_R et leur quantification par la surface des signaux. L'analyse quantitative suppose que l'appareil soit au préalable rigoureusement étalonné.

IV. Conclusion

Dans le cadre de la thèse, un procédé plasma froid original basé sur l'établissement de décharges non thermiques évoluant à haute tension et faible courant a entièrement été développé au CEP, Sophia-Antipolis. Le principal enjeu de ce procédé réside dans l'alimentation de telles décharges électriques. En effet, dans notre domaine d'étude (haute tension et faible courant), la caractéristique de la décharge présente une pente extrêmement raide, par conséquent, l'obtention d'un point de fonctionnement stable implique l'utilisation d'une alimentation électrique possédant une caractéristique spécifique. Deux sources électriques ont été étudiées :

- une source électrotechnique caractérisée par une forte valeur d'impédance,
- une source électronique de type « hacheur-dévolteur », permettant la régulation en continu du courant dans la décharge. Développée en collaboration avec le LEEI et la société Cirtem, la conception de cette source s'est appuyée sur l'alimentation de décharge non thermique à l'air pour une configuration d'électrode de type pointe-pointe.

Les différents diagnostics associés au banc expérimental permettent de suivre :

- visuellement l'évolution du plasma au cours de son fonctionnement par le biais d'un corps de réacteur en pyrex,
- l'évolution des caractéristiques électriques de la décharge telles que le régime de fonctionnement et la puissance de la décharge.
- l'évolution de la composition des gaz de sortie du procédé via une analyse en chromatographie en phase gazeuse.