

# Caractérisation Electro-Thermique des Décharges à Barrières Diélectriques à Pression Atmosphérique pour les Procédés Aérosols

Nicolas Jidenko, J-P Borra

*Equipe Décharges Electriques et Aérosol du Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas  
(UMR 8578 CNRS – Univ Paris-Sud Orsay, F-91405)  
SUPELEC, Plateau Moulon, F-91192 Gif-Sur-Yvette, France  
mél: [nicolas.jidenko@u-psud.fr](mailto:nicolas.jidenko@u-psud.fr)*

## 1. Introduction

Les plasmas hors équilibre thermodynamique à pression atmosphérique sont utilisés dans de nombreuses applications industrielles. Leurs potentialités pour produire, conditionner ou mesurer des particules sub-micrométriques sont déjà établies [1]. Cependant l'étude des mécanismes physico-chimiques impliqués dans ces procédés requière une maîtrise de plus en plus fine du plasma.

La démarche développée est de type génie des procédés et s'appuie sur une caractérisation électro-thermique systématique des décharges électriques utilisées. L'intensité relative des différents processus est analysée en modifiant les paramètres de régulation qui contrôlent les variables physiques dont dépendent ces processus. Il est ainsi possible de définir les points de fonctionnement optimaux en termes de propriétés de la décharge selon l'application visée.

Cette présentation se focalise sur les Décharges à Barrières Diélectriques (DBD). Les DBD sont produites en appliquant une haute tension alternative (quelques kV) à deux électrodes métalliques séparées par du gaz et un matériau diélectrique. L'ionisation du gaz dans l'espace inter-diélectrique génère un plasma non thermique grâce à la polarisation des diélectriques qui réduit le champ électrique évitant le passage à l'arc. La polarisation des diélectriques impose donc une tension alternative permettant de déclencher la décharge dans chaque demi-période. La décharge se produit sous forme de filaments de quelques dizaines de micromètre de diamètre durant quelques dizaines de nanosecondes [2].

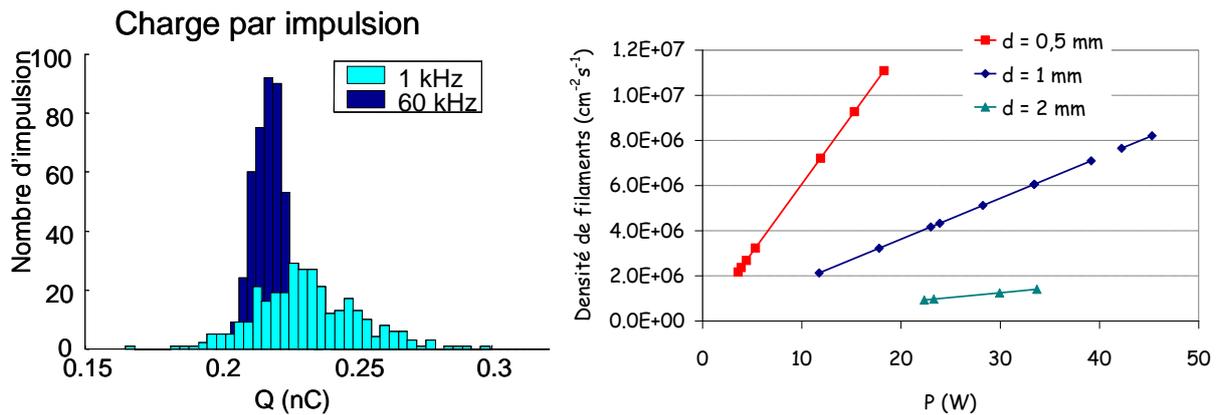
Afin de générer des décharges identiques dans le temps et dans l'espace, le système est symétrique (chaque électrode est recouverte d'une plaque d'alumine). Dans une première partie nous nous focaliserons sur l'analyse électrique des DBD dans l'air à pression atmosphérique qui a permis d'identifier les conditions de fonctionnement permettant de générer des filaments tous identiques (+/- 15%).

Afin d'identifier l'influence de la température sur différents processus ou d'étudier la dynamique d'injection et de relaxation d'énergie dans le plasma, les températures des neutres dans le filament (spectroscopie d'émission), des surfaces (pyrométrie IR et thermocouple) et des gaz en post-décharge (thermocouple) ont été mesurées dans différentes DBD plan-plan de quelques centimètres carrés. Ces études ont ainsi permis:

- d'identifier les paramètres contrôlant au premier ordre les températures de surface, de gaz et de plasma,
- de modifier les températures à paramètres électriques constants, notamment lors de la mise à l'équilibre thermique ou en modifiant les transferts thermiques,
- et de modifier les gradients thermiques autour du plasma par des durées de ré-allumage des filaments, au même endroit, inférieure à la constante de diffusion thermique (1 ms).

## 2. Caractérisation électrique

L'étude statistique des caractéristiques électriques des filaments (quantité de charge, durée courant maximal) a permis de mettre en évidence l'invariabilité du phénomène unitaire de filament entre 1 et 60 kHz (cf. figure 1 à gauche).



**Figure 1 :** a) Distributions de quantité de charge par impulsion à 1 et 60 kHz DBD alumine gap 1mm [3] b) Nombre de micro-décharges par unité de temps et de surface selon la puissance totale, pour des distances inter-diélectriques de 0,5 à 2 mm à 60 kHz

De plus, l'énergie par filament est quasi-indépendante de la tension du fait du rétrocontrôle du champ dans le gaz par le dépôt de charges sur les barrières diélectriques.

Pour réguler l'énergie par filament, il faut donc jouer sur la distance inter-électrodes et/ou la capacité spécifique du diélectrique. En outre, le courant, exclusivement impulsionnel est proportionnel au nombre de filament par unité de temps et de surface. Dans une géométrie donnée, la tension contrôle le nombre de filaments par demi-alternance et par cm<sup>2</sup>. La fréquence d'alimentation permet de contrôler la répétition de ce nombre de filaments par unité de temps. Ainsi la densité des filaments par unité de temps est proportionnelle à la puissance injectée dans le plasma (cf. figure 1 à droite).

*L'avantage des DBD plan-plan réside donc dans la similarité des filaments, qui permet de caractériser les processus physiques et réactionnels locaux (autour des filaments) à partir de mesures macroscopiques en post-décharge (intégrant l'effet de filaments identiques).*

### 3. Couplages électro-thermiques

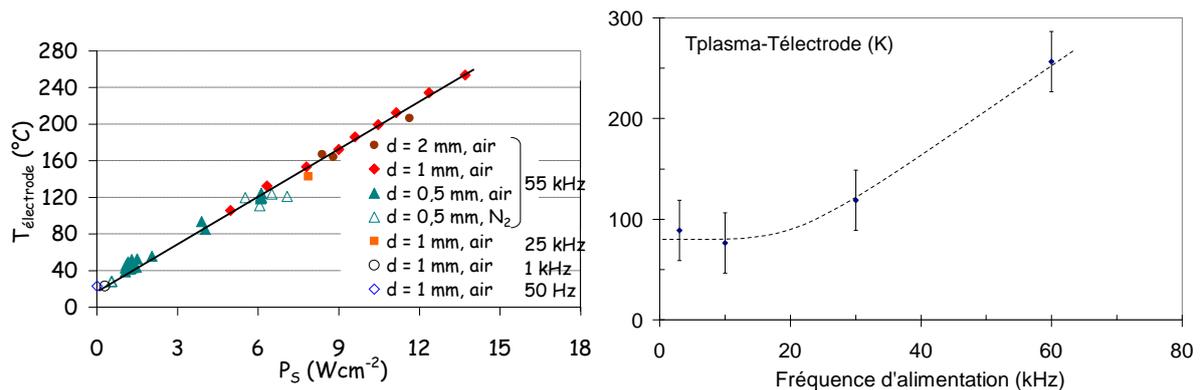
Les températures des neutres dans le filament (spectroscopie d'émission), des surfaces (pyrométrie IR et thermocouple) et des gaz en post-décharge (thermocouple) ont été mesurées dans différentes DBD plan-plan de quelques centimètres carrés, pour :

- corrélérer, dans une géométrie donnée, les températures (plasma, gaz et surface) aux paramètres électriques (énergie et nombre de filament par unité de temps et de surface) et au conditionnement thermique (débit de gaz et pertes aux parois).
- contrôler les températures de surface par le conditionnement thermique du réacteur.
- *contrôler, si le temps de transit dans la décharge dépasse la milliseconde, la température du gaz chauffé par les surfaces diélectriques selon la densité surfacique de puissance déposée par les filaments, indépendamment de la température des neutres dans le plasma.* Cela confirme la similarité des filaments (même fonction de distribution d'énergie des électrons FDEE), indépendamment de la puissance surfacique.
- contrôler les gradients thermiques autour des filaments ( $T_{\text{plasma}} - T_{\text{gaz}}$  avec  $T_{\text{gaz}}$  proportionnel à  $T_{\text{électrode}}$ ): (i) constant jusqu'à 10-20 kHz pour des délais de ré-allumage supérieurs à la constante de temps de diffusion thermique ( $\sim 0.1$  ms, avec  $T_{\text{plasma}} \sim T_{\text{surf.}} + 50$  à 70K, selon la distance), et (ii) croissant pour des délais inférieurs.

Ainsi, même si la désexcitation vibrationnelle contribue au chauffage, l'échauffement du gaz se ferait principalement par radiation et convection à partir des surfaces diélectriques chauffées par l'interaction avec les décharges filamenteuses (effet Joule, bombardement

ionique, réactions exothermiques, ...). Les conditions plasma (tension, fréquence) définissent donc les températures et les profils de température selon les transferts de chaleur (du plasma vers le gaz et les surfaces et des surfaces vers le gaz et le milieu extérieur).

Ce résultat est confirmé par l'égalité des températures de surfaces obtenues à puissance et débit massique de gaz fixés dans l'air et dans l'azote, puisqu'une même puissance dans ces deux gaz correspond dans l'azote à un nombre plus faible de filaments dont l'énergie unitaire est plus élevée que dans l'air. Par ailleurs, à puissances surfaciques égales, des températures de surface identiques sont obtenues pour des fréquences de 50 Hz à 55 kHz (cf. figure 2 à gauche).



**Figure 2:** a) Evolution de la température d'électrode (représentative de la température de surface des diélectriques) avec la puissance à débit fixé, selon la distance inter-diélectriques et la fréquence, dans l'air et dans N<sub>2</sub> à 1 lpm b) Influence de la fréquence sur l'écart entre la température des neutres dans le plasma et le gaz autour d'un filament [4].

A débit de gaz, surface d'électrode et conditionnement thermique fixés, la température de surface des diélectriques est donc contrôlée par la puissance surfacique. En faisant en sorte de maintenir constante la puissance surfacique, il est ainsi possible d'étudier l'influence de la répétition temporelle des filaments, de leur charge unitaire ou de la composition du gaz (paramètres influant notamment sur les gradients thermiques locaux) sur la production d'espèces réactives ou ionisées à températures moyennes des surfaces et du gaz en dehors des filaments identiques [5,6,7].

Ce découplage entre caractéristiques électriques et thermiques est possible car les températures de gaz et de surface dépendent des paramètres électriques d'une part (énergie par impulsion et nombre d'impulsion par unité de temps et de surface), et du conditionnement thermique du réacteur d'autre part (débit de gaz et flux sortant de chaleur). Nous avons ainsi prouvé que, pour des temps de transit dans la DBD plan-plan supérieurs à quelques ms, *le gaz est chauffé par les surfaces des diélectriques, indépendamment de la température des neutres dans le plasma* ( $\sim T_{\text{surf.}} + 50-70$  K, selon la distance à  $F < 10$  kHz), confirmant l'invariabilité de chaque DF et permettant de définir les processus dominants, à FDEE et gradient thermique contrôlés. En outre, cette maîtrise des gradients thermiques selon la fréquence et le conditionnement thermique du DBD plan-plan, permet d'orienter sélectivement le transport des espèces produites par les filaments.

Dans une condition hydrodynamique donnée, la température moyenne de surface et la température du gaz à la sortie du réacteur sont proportionnelles à la puissance électrique injectée dans le réacteur quelle que soit la manière dont l'énergie est injectée (i.e. quels que soient le nombre de filaments par seconde et par cm<sup>2</sup> et leur énergie unitaire).

Le conditionnement thermique du réacteur permet de modifier les transferts de chaleur et donc les profils de température au sein du réacteur cf. figure 1). Ce découplage entre les caractéristiques électriques et thermiques du réacteur a permis de mettre en évidence l'influence critique de la température de surface, à gradients thermiques constants sur les concentrations des espèces produites.

A une fréquence donnée, l'écart entre la température des neutres dans le plasma et la température moyenne du gaz est quasiment constante (ex :  $\Delta T_{\text{plasma}}=50\text{K} \pm 10\text{K}$  à  $F < 10\text{kHz}$ ). La constance de  $\Delta T_{\text{plasma}}$  est en bon accord avec l'invariabilité des caractéristiques unitaires des décharges filamenteuses. L'augmentation de la température des neutres dans le plasma avec le nombre de décharges filamenteuses est due à l'augmentation de la température moyenne du gaz et non à une modification de la fonction de distribution des électrons. Ainsi les gradients thermiques autour des filaments ne sont que peu affectés par le nombre de filament par unité de temps et de surface.

Pour des fréquences supérieures à 10 kHz, le  $\Delta T_{\text{plasma}}$  augmente avec la fréquence. La durée entre deux filaments se ré-allumant au même endroit étant inférieure à la constante de diffusion de la chaleur ( $\sim 1\text{ms}$ ), les filaments ne se propagent plus dans un gaz initialement à la température moyenne du gaz mais dans l'emprunte thermique laissée par le filament précédent. La fréquence d'alimentation, qui gère le ré-allumage des filaments, permet ainsi de contrôler les gradients thermiques autour des filaments de décharge (cf. figure 2 à droite).

### 3. Conclusions

La caractérisation préalable des réacteurs et des lignes de mesure présentée a permis de définir les paramètres de contrôle des caractéristiques unitaires, de la répartition spatiale et de la répétition temporelle des filaments de décharge constituant les sources d'espèces réactives et ionisées. Nous avons également étudié les couplages électro-hydro-thermiques, qui régissent les transferts de masse et de chaleur couplés et sont donc susceptibles d'agir sur tous les processus en jeu lors de la production des espèces réactives ou ionisées puis leur transit dans la décharge et en post-décharge.

### Références

- [1] J.-P. Borra, Nucleation and aerosol processing in discharges, *J Phys D: Appl Phys* **39-2**, 19-54 (2006)
- [2] B. Eliasson, U. Kogelschatz, Modelling and applications of silent discharge plasmas, *IEEE Transactions on Plasma Science* **19** 309–23 (1991)
- [3] N. Jidenko, J.-P. Borra, Electrical characterization of DBD at AP, *J Phys D: Appl Phys.* **39-2** (2006)
- [4] E Bourgeois, N. Jidenko, J.-P. Borra Temperature profiles in filamentary dielectric barrier discharges at atmospheric pressure *J Phys D: Appl Phys.* **43-29** (2010)
- [5] E Bourgeois, N. Jidenko, J.-P. Borra, DBD as a post-discharge bipolar ions source and selective ion induced nucleation versus ions polarity, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42** (2009)
- [6] N. Jidenko, J.-P. Borra, Kinematics of charged particles in DBD, *J Phys D: Appl Phys.* **38-4** (2005)
- [7] J.-P. Borra et al., AP plasmas for aerosols processes, *Eur. Phys. J Appl Phys* **47** 22804 (2009)