



Modélisation Plasma-liquide

A. Michau, C. Rond avec B. Dufour

K. Hassouni, J. Mougenot

LSPM, Laboratoire des Sciences des Procédés et des Matériaux
Université Paris 13, Sorbonne Paris Cité, CNRS (UPR 3407)
93430 Villetaneuse, France

ANF Plasma liquide – Nancy, France – Juillet 2021

Un modèle... Pourquoi?

- Difficulté des mesures
- Limitation des diagnostics
- Faible coût
- Faibles risques (sécurité)



Validation nécessaire!

Alves, L. L., et al., 2018 Foundations of modelling of nonequilibrium low-temperature plasmas, Plasma Sources Science and Technology 27(2):023002.

Un modèle... Pour Quoi?

- **Fondamental :**

Aide à la compréhension

Identification des mécanismes

- **Applicatif :**

Dimensionnement de réacteur

Prédiction des comportements des grandeurs d'intérêt

Optimisation des procédés

Scale up industriel

Alves, L. L., et al., 2018 Foundations of modelling of nonequilibrium low-temperature plasmas, Plasma Sources Science and Technology 27(2):023002.

Objectif de cette présentation

Ne pas décrire une nouvelle fois les processus physiques et chimiques

- Présenter les méthodologies utilisées

Quel modèle pour quel objectif?

(dépend de la question que l'on se pose)

- Identifier les outils de calcul disponibles

Pouvoir comprendre les modélisateurs voire pouvoir faire vous-même car ce n'est pas forcément si difficile !

Un problème complexe...

- Grands écarts sur :
 - Collision
 - Transport
- Échelle d'espace et de temps différentes entre les phases gaz et liquide
- Interface ???

Table 1 Typical time and length scales for various processes consider

Phenomena	Velocity (m/s)	Length scale	Time
Diffusion		10 μm	100 ms $D = 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$ (liquid) 10 μs $D = 10^{-1} \text{ cm}^2/\text{s}$ (gas)
Diffusion		1 mm	100 ms $D = 10^{-1} \text{ cm}^2/\text{s}$ (gas)
Reaction			10^{-7} s (liquid) 10^{-11} s (gas)

Locke, B. R. 2012 International Journal of Plasma Environmental Science & Technology 6(3):194-203.

Difficile de faire un modèle qui prend tout en charge de la même manière

Bruggeman, P. J., et al. 2016 Plasma-liquid interactions: a review and roadmap. Plasma Sources Science and Technology 25(5):053002.

... Mais pas insurmontable



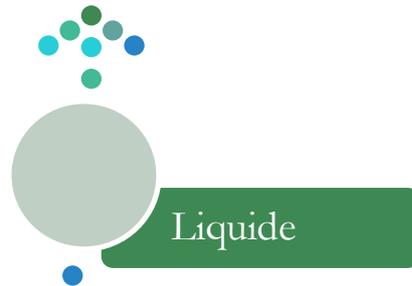
Approche « modulaire »

On couple (ou pas) les modules qui nous intéressent selon ce que l'on veut

Démarche

Objectif : Réactivité chimique

Procédé



Ex : H₂O

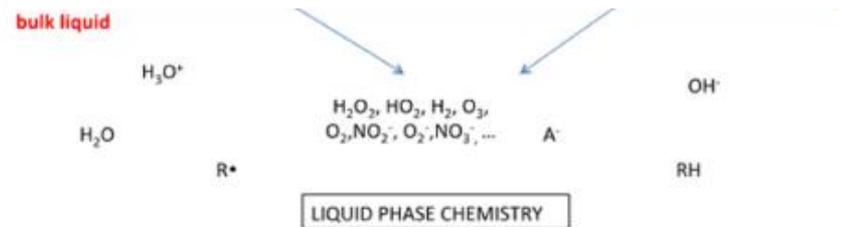
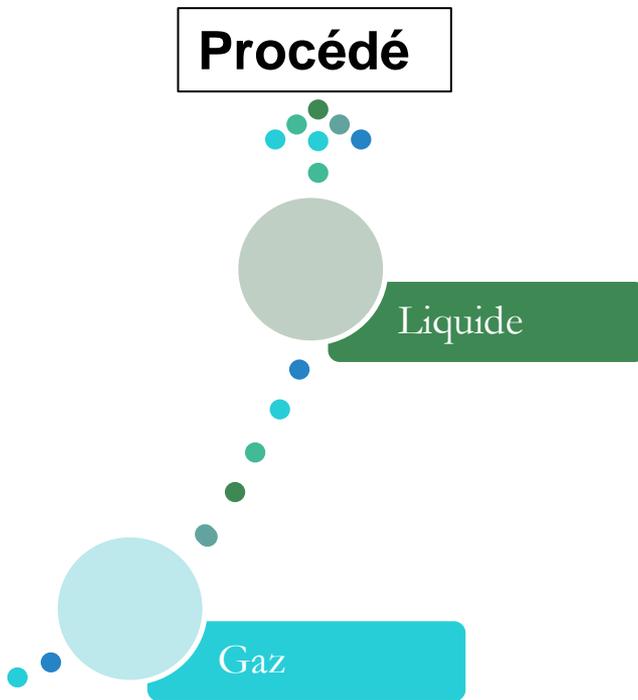


Figure 1. Schematic diagram of some of the most important species and mechanisms for an argon/humid air plasma in contact with water. Adapted with permission from [24], copyright 2014 IOP Publishing.

Samukawa et al, plasma roadmap 2012, J.Phys D

Démarche



Ex : H₂O

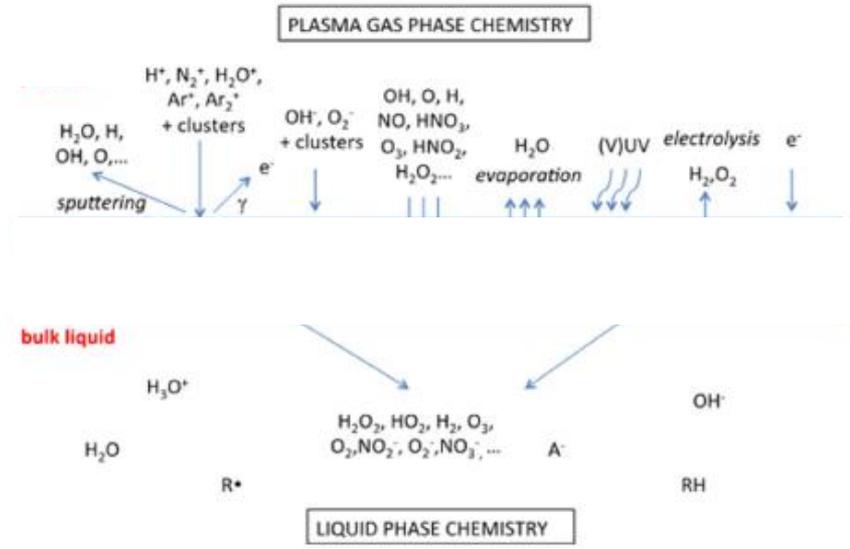


Figure 1. Schematic diagram of some of the most important species and mechanisms for an argon/humid air plasma in contact with water. Adapted with permission from [24], copyright 2014 IOP Publishing.

Samukawa et al, plasma roadmap 2012, J.Phys D

Démarche

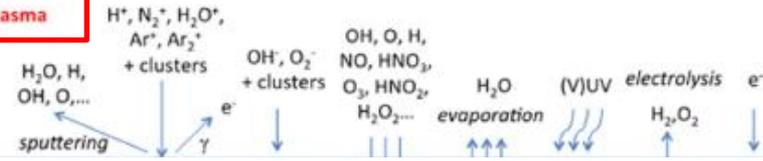
Procédé

Ex : H₂O

Liquide

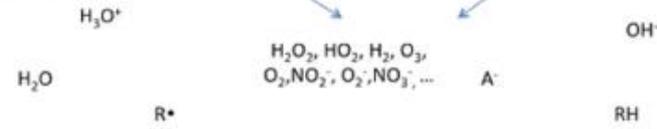
plasma

PLASMA GAS PHASE CHEMISTRY



Gaz

bulk liquid



LIQUID PHASE CHEMISTRY

Dépôt d'énergie

Figure 1. Schematic diagram of some of the most important species and mechanisms for an argon/humid air plasma in contact with water. Adapted with permission from [24], copyright 2014 IOP Publishing.

Samukawa et al, plasma roadmap 2012, J.Phys D

Démarche

Procédé

Ex : H₂O



Liquide

Interface

Gaz

Dépôt d'énergie

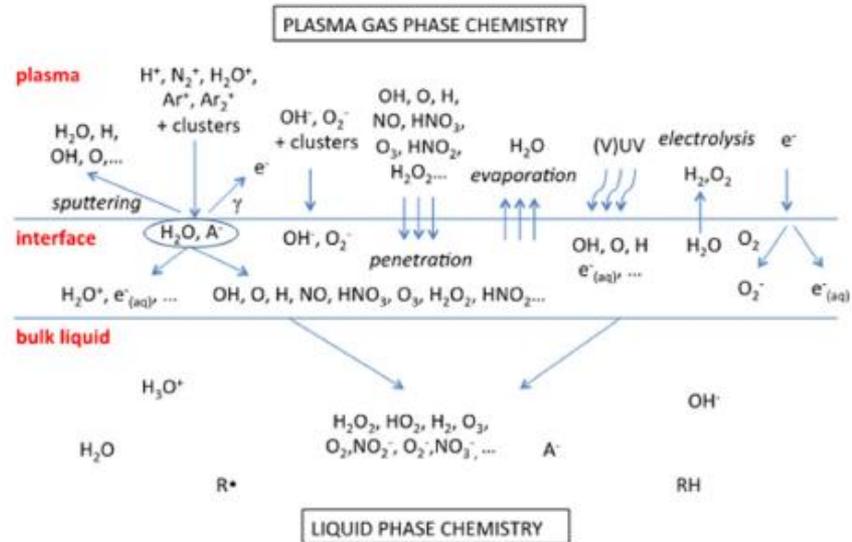


Figure 1. Schematic diagram of some of the most important species and mechanisms for an argon/humid air plasma in contact with water. Adapted with permission from [24], copyright 2014 IOP Publishing.

Samukawa et al, plasma roadmap 2012, J.Phys D

Module liquide

- On s'intéresse plus particulièrement ici à la réactivité dans la phase liquide



Hypothèses simplificatrices

- **Modèle du réacteur parfaitement mélangé**
 - Mélange **convectif rapide** => les espèces pénétrant dans le liquide sont directement mélangées
 - La concentration des espèces est **uniforme** dans la phase liquide
 - Les espèces gazeuses sont dissoutes dans le liquide, leur densité est calculée par la **loi de Henry** (à partir de l'équilibre des pressions partielles)
 - **Mais** : la saturation du liquide est **moyennée sur le volume** (pas de prise en compte de la saturation de la surface)
- **Liquide = réservoir infini de molécules (solvant)**
 - Car **densité des liquides** bien plus importante qu'en phase gazeuse
 - **Pas de conservation de la masse** car solvant disponible à l'infini

Equations à résoudre

- On résout le **bilan de masse** des espèces (équation de continuité)

$$\frac{\partial n_{i,l}}{\partial t} + \nabla \cdot (\vec{\Gamma}_{i,l}) = S_{i,l}$$

avec $S_{i,l}$ le taux de la réaction chimique et $\vec{\Gamma}_{i,l}$ le transport

- Transport purement **diffusif**
 - OK uniquement pour une couche de liquide fine (biofilms)
- Transport **diffusif + convectif**
 - Si couche de liquide épaisse
 - Possible d'étudier les déformations de la surface du liquide
- Les **modèles résolus spatialement** (1D) permettent de remonter à la profondeur de pénétration des espèces dans le liquide (**modèle interface**)

Equations à résoudre

- On résout le **bilan de masse** des espèces (équation de continuité)

$$\frac{\partial n_{i,l}}{\partial t} + \nabla \cdot (\vec{\Gamma}_{i,l}) = S_{i,l}$$

avec $S_{i,l}$ le taux de la réaction chimique et $\vec{\Gamma}_{i,l}$ le transport :

- $S_{i,l} = \sum_{j=1}^{N_R} \left\{ k_j \left(v_{\alpha j}^{(2)} - v_{\alpha j}^{(1)} \right) \times \prod_{k=1}^{N_S} (n_k)^{v_{kj}^{(1)}} \right\}$
- Pas d'approche unifiée pour l'obtention des constantes
- Plusieurs difficultés :
 - Réactions perturbées par la présence du solvant
 - Réactions dépendantes du pH (et donc de la concentration de H_3O^+)
 - Densité élevée : réactions multi-corps

Constantes de réaction

- Espèces neutres
- On emprunte les constantes à **d'autres domaines** :
 - Rayonnement Radiation chemistry-principles and applications,
Farhataziz and Michael A. J. Rodgers, Eds. VCH, New York
 - Sonochimie
 - Electrochimie Electrochemical Systems, 4th Edition
John Newman, Nitash P. Balsara
 - Catalyse Plasma Chemistry and Catalysis in Gases and
Liquids
- + **base de données** NIST Solution Kinetics

Mécanismes électroniques

- Pour les réactions par **impact électronique** dans le liquide :
à partir des **données déjà publiées** (expériences d'électrolyse) plutôt que par des formules qui dépendent de l'énergie électronique car :
 - Il y a **peu de données** concernant les taux de réaction impliquant des électrons de faible énergie
 - Les effets des électrons de moyenne énergie sont encore mal compris
 - La densité des liquides étant importante, les sections efficaces sont très élevées
- Plus de données sont nécessaires concernant les **électrons solvatés** (propagation, échange d'énergie sous l'influence du champ électrique)

Modèles disponibles

- GlobalKin => Quantemol-P (Kushner - payant)
- ZDPlasKin (Lxcat - gratuit)
- PLASIMO (Eindhoven - payant)
- COMSOL (payant)
- CHEMKIN (payant)

Ex : Chimie dans le liquide

Décharge DBD sur liquide

Globalkin (0D plasma)

Avec module liquide (0D) :

- 83 espèces en liquide
- 448 réactions en liquide

Résultat :

- Composition du liquide (RONS)
- Influence de la tension appliquée, de la fréquence, du débit de gaz,

IOP Publishing

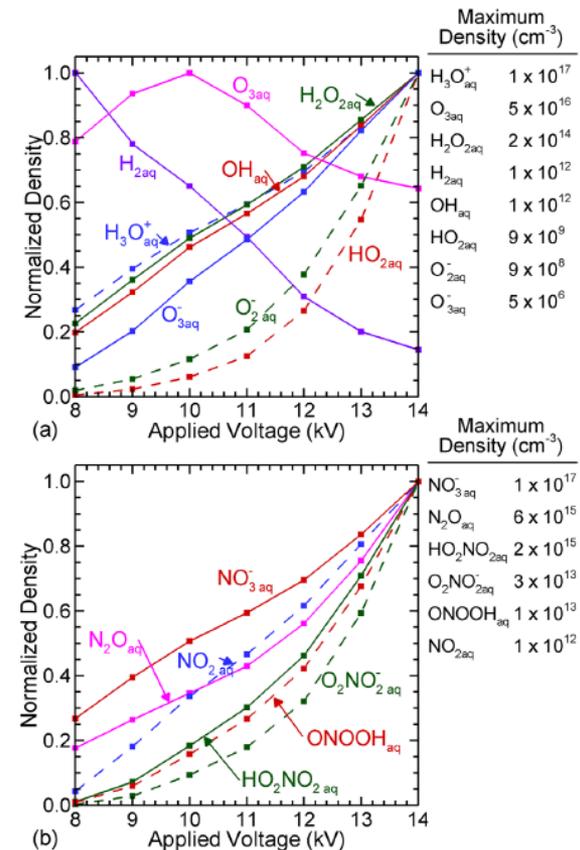
J. Phys. D: Appl. Phys. 49 (2016) 425204 (22pp)

Journal of Physics D: Applied Physics

doi:10.1088/0022-3727/49/42/425204

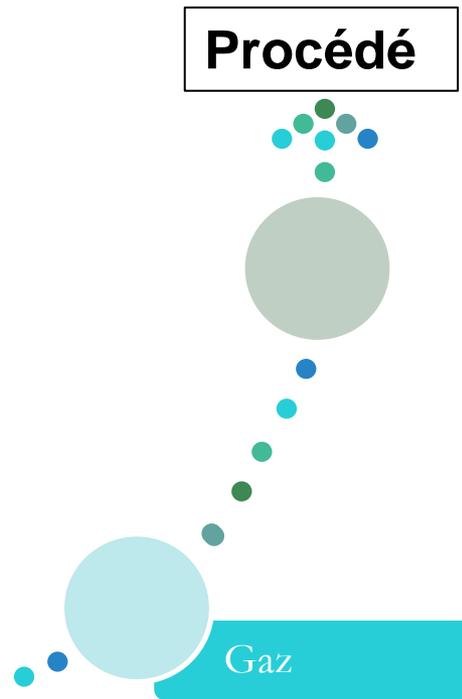
Air plasma treatment of liquid covered tissue: long timescale chemistry

Amanda M Lietz¹ and Mark J Kushner²



Module gaz

- On s'intéresse plus particulièrement ici à la réactivité dans la **phase gaz**

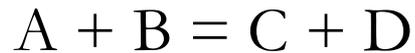


Chimie dans les gaz

Différents types de réaction :

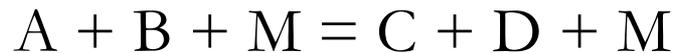
- Interactions induites par photons : chimie UV/VUV

- Réactions à 2 corps



- Réactions à 3 corps (termoléculaires)

si haute pression



Reaction	λ (nm)	Quantum yield	
$\text{H}_2\text{O}_{(\text{aq})} + h\nu \rightarrow \bullet\text{OH} + \text{H}\bullet$	124	0.93	(8)
	147	0.65	
	185	0.3	
$\text{H}_2\text{O}_{(\text{aq})} + h\nu (<200\text{nm}) \rightarrow [e^-, \text{H}_2\text{O}^+]$	124	0.10	(9)
	147	0.07	
$[e^-, \text{H}_2\text{O}^+] + \text{H}_2\text{O}_{(\text{aq})} \rightarrow e_{(\text{aq})}^- + \bullet\text{OH} + \text{H}_3\text{O}^+$	147	0.07	(9)
	185	0.03	
$\text{H}_2\text{O}_{(\text{g})} + h\nu \rightarrow \bullet\text{OH} + \text{H}\bullet$	105–145	0.89	(10a)
	145–185	1	
$\text{H}_2\text{O}_{(\text{g})} + h\nu \rightarrow \text{H}_2 + \text{O}({}^1\text{D})\bullet$	105–145	0.11	(10b)
	145–185	0.01	
$\text{O}_2 + h\nu \rightarrow 2\bullet\text{O}$	139–175	1	(11)

Chimie dans les gaz

Différents types de constante :

- Loi d'Arrhénius $k = A. \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right)$
- Loi Arrhénius modifiée $k = A. T^n. \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right)$
- Dépendante de la pression : Troe, Lindermann
- Impact électronique: section efficace (base de données LXCAT)

Chimie dans les gaz

Différents types de sources :

Température faible	Température élevée
Base de données du NIST	
Review de Herron (Non-thermal humid air plasma chemistry)	Review de Baulch (kinetic data for combustion modeling)
Base de donnée UMIST (astrochimie)	Review de Tsang & Hampson (combustion chemistry)
Review de Atkinson <i>et al.</i> (kinetic and photochemical data for atmospheric chemistry)	Base de donnée GRI_Mech de Berkley (combustion)

Attention aux gammes de validité

Codes : idem liquide

Ex : Modèle chimie dans le gaz

IOP Publishing

Journal of Physics D: Applied Physics

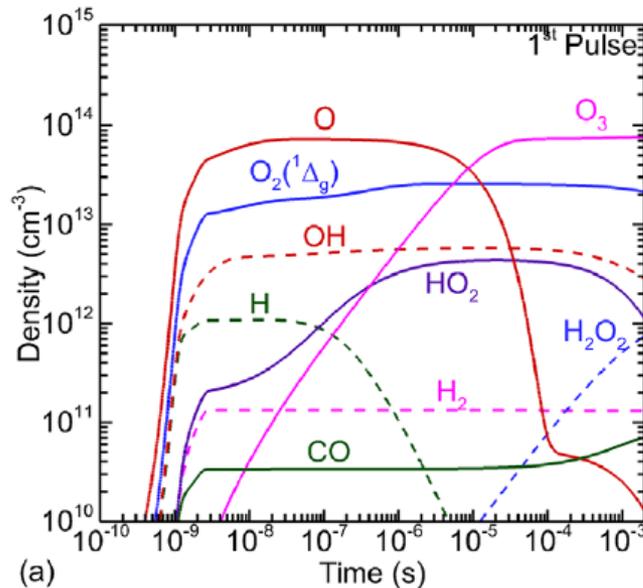
J. Phys. D: Appl. Phys. 49 (2016) 425204 (22pp)

doi:10.1088/0022-3727/49/42/425204

Air plasma treatment of liquid covered tissue: long timescale chemistry

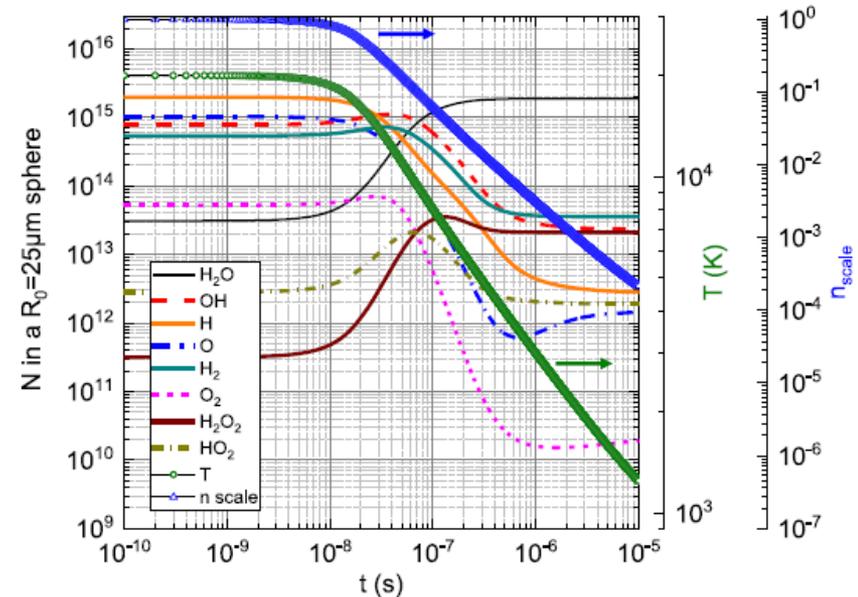
Amanda M Lietz¹ and Mark J Kushner²

Globalkin



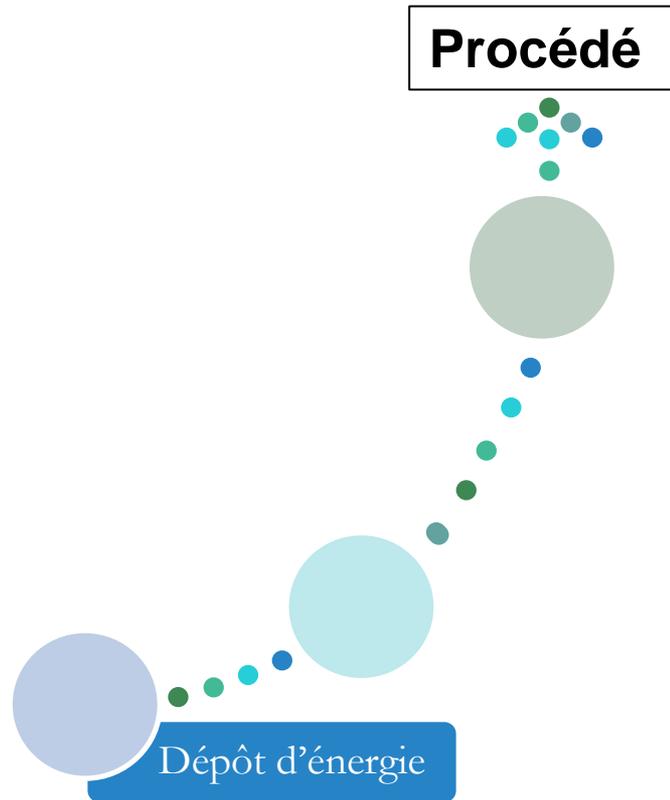
Chemistry in nanosecond plasmas in water

Laura Chauvet[Ⓢ] | Chaiyasit Nembangkao | Katharina Grosse[Ⓢ] | Achim von Keudell[Ⓢ]



Des questions ???

Dépôt d'énergie dans le gaz

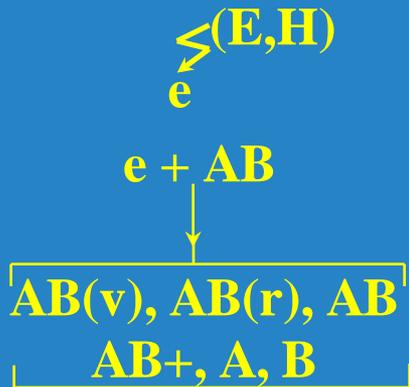


Objectifs

Décrire l'équilibre de la décharge

- Transfert de l'énergie sur les électrons
- Mécanismes d'ionisation pour maintenir la décharge
- Transfert de l'énergie des électrons vers les autres espèces : création des précurseurs réactifs

Description phénoménologique



Transfert d'énergie
et matière

Interaction « onde »-plasma
Chauffage des électrons

Collisions électron-lourd
Transfert d'énergie, ionisation,...

Collisions lourd-lourd
Redistribution d'énergie, chimie

Convection, Diffusion
Transport matière et énergie

Interaction plasma/surface
Transfert matière et énergie

FDEE, $\langle \epsilon_e \rangle$

FDV, T_v T_g

$n_i, i=1-n$

Substrat (T_s, c_s)

Complexité

- Chimie peut être très complexe
 - beaucoup d'espèces et de réactions à suivre
 - Couplage très fort de tous les phénomènes
- => il faut tout résoudre de façon cohérente

En général on fait des compromis !

- Sur l'espace pour pouvoir avoir une chimie détaillée
- Sur le modèle cinétique pour décrire les variations spatiales

Type de méthodes

Méthodes statistiques

- PIC - Monte Carlo
- Dynamique moléculaire

Principe: suivre un grand nombre de particules pour étudier le comportement de l'ensemble de la population

PIC = électrons ou ions du plasma

DM = atomes (on regarde les interactions et les mouvements de ces atomes entre eux)

Méthodes Fluides

Principe: décrire l'ensemble de la population d'une espèce par son comportement moyen

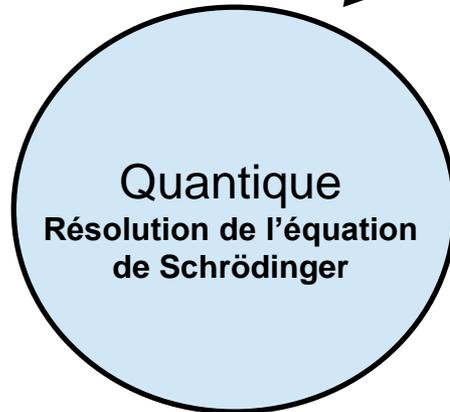
Modèles hybrides

Fluides pour les ions et
particulaires pour les électrons

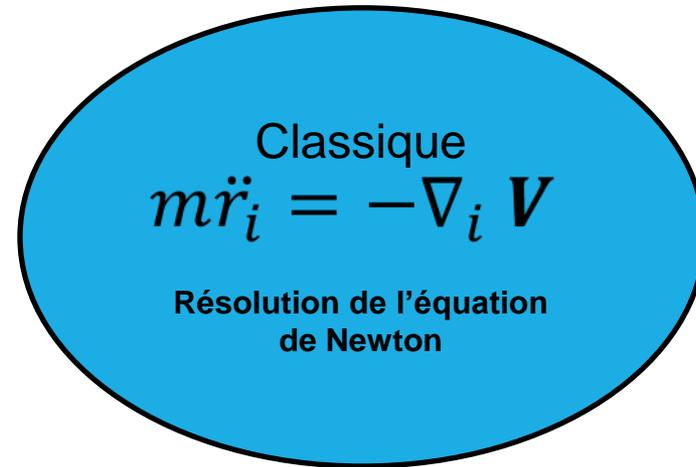
DM: principe de base

Résolutions spatiale (nm à μm) et temporelle (ns à μs)
de la population d'atomes (*jusqu'à plusieurs millions*)

Mécanique
Chimie organique
Physique
Biologie
...



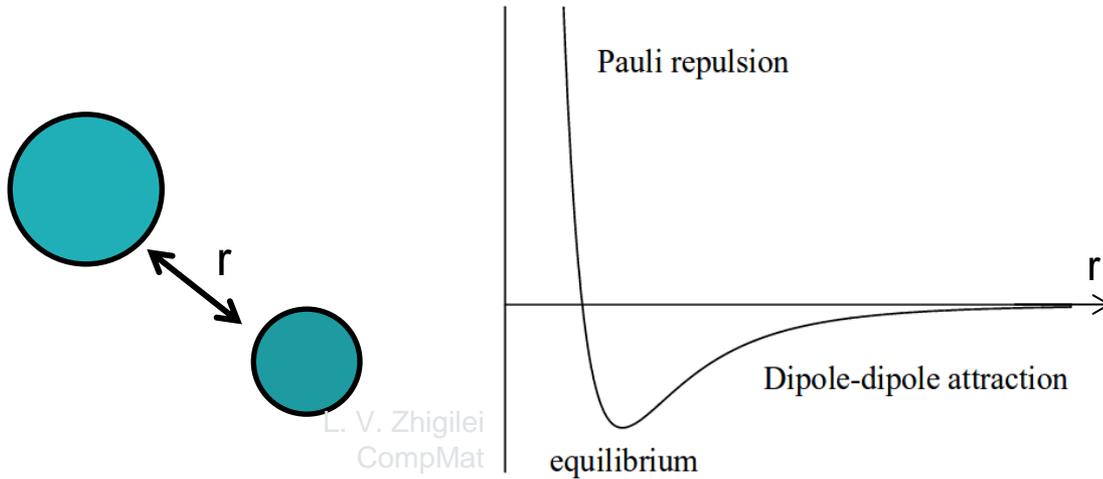
Prise en compte des électrons
et calculs précis
mais limités en taille de système
(~ 100 atomes)



Adaptée aux larges systèmes
Mais les phénomènes liés aux
électrons sont masqués dans les
potentiels « empiriques »

Les potentiels de paire

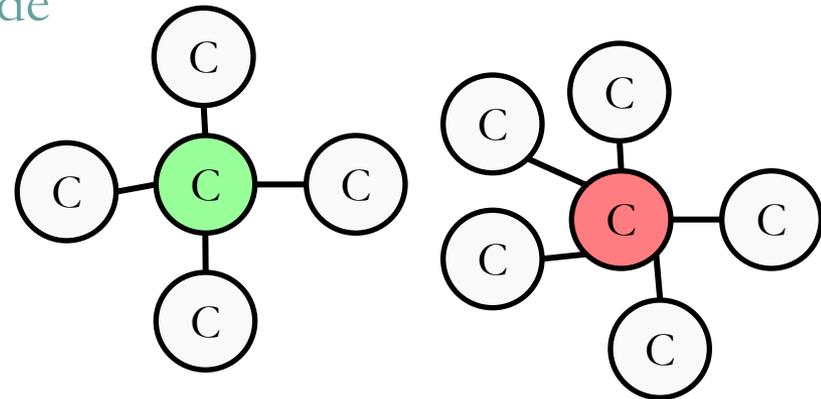
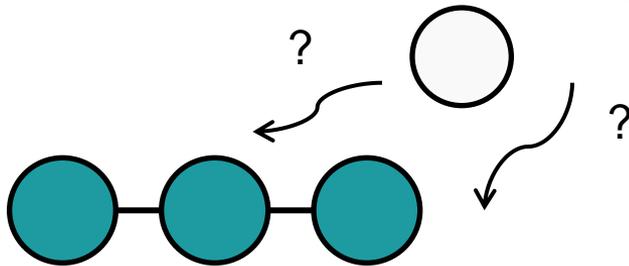
Comment décrire l'interaction et les liaisons entre les atomes ?



$$E_p(r) = 4 \epsilon \left[\left(\frac{d}{r} \right)^{12} - \left(\frac{d}{r} \right)^6 \right]$$

Potentiels de paires :
sphères dures (billard),
Lennard-Jones, Morse,
Buckingham, Molière

MAIS quid de l'orientation, de la valence et de la nature de la liaison (ordre, métallique) ?



DM classique : Résolution et outils

100%
GRATUIT



Données brutes

Positions
Energie
Température
etc.

Visualisation moléculaire
et post-traitement



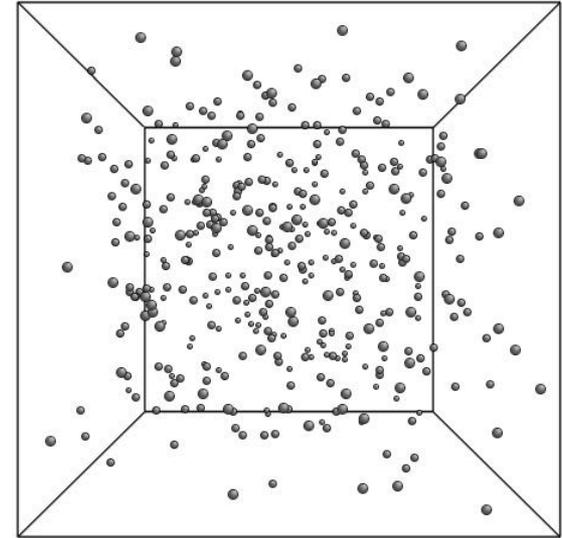
AtomEyes



Fichier de **paramètres**
de calcul (thermostat,
temps de simulation,
exports...)

DM classique

- Étude de petits systèmes
- Principalement utilisée pour l'étude de l'interface



400 C – 10x10x10 nm
ReaxFF (Chenoweth 2008) - $\Delta t = 12$ ps

Comment traiter la Fdee ?

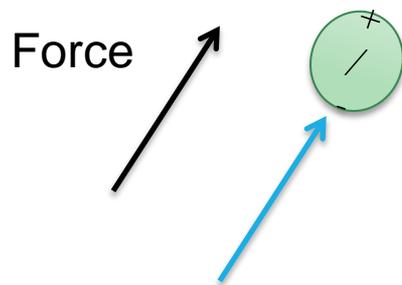
- Pour choisir la méthode PIC/ Fluide la question principale à se poser est le traitement des électrons (fdee)
- Plasma peu collisionnel : la distribution des électrons n'a pas de forme prédéfinie
- On cherche à obtenir cette fdee = PIC

PIC : Principe

Simuler les trajectoires de particules individuelles chargées, représentatives de la population totale, en interaction avec les champs E et B.

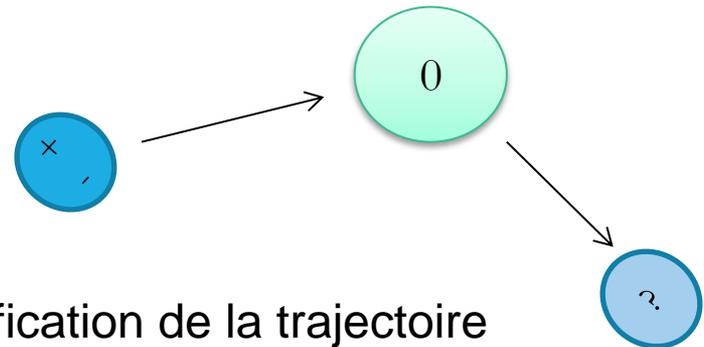
Que peut il arriver à une particule individuelle dans un plasma ?

Transport



Equation de Newton
Gagne de l'énergie

Collision



Modification de la trajectoire
perte d'énergie (en général)
Changement de nature possible

PIC : Principe (suite)

- On va suivre un nombre important de (pseudo)particules (10^4 par ex)
 - > représenter statistiquement toute la population
- Le mouvement de ces pseudo-particules va modifier la charge d'espace et donc E

PIC : Avantages

Données nécessaires :

sections efficaces de collision et c'est tout !!!

- Equation de newton simple
- Pas de coefficient de transport
- Pas d'hypothèses + ou – valides

Quelques chiffres ...

- Données fournies par G. Hagelaar (2015)
 - Example: plasma density of 10^{18} m^{-3} , $\Delta x \leq \lambda_{De} \sim 10 \mu\text{m}$ ($T_e \sim 1 \text{ eV}$), $\Delta t \leq 0.2/\omega_p \sim 0.3 \cdot 10^{-11} \text{ s}$
 - In 1D: 1000 grid points for 1 cm, a few 1000 points for a few cms
 - In 2D :1000x1000 grid points for 1 cm x 1cm
 - In 3D : 1000x1000x1000 grid points !!!! for 1 cm x 1 cm x 1 cm
 - About 100 super-particles per cell: i.e. total of several 10^5 in 1D, 10^8 in 2D, 10^{11} in 3D !!!
 - 2D is difficult but possible for dimensions of few cms– 3D is not possible for a plasma density of 10^{18} m^{-3}
 - For a plasma density of 10^{16} m^{-3} 1D and 2D are possible, 3D difficult but possible
 - PICC MCC is not appropriate for very collisional plasmas i.e. for $pd > \sim 10 \text{ torr cm}$

→ **Calculs peuvent être très longs !**

PIC / Fluide

- PIC = plasma peu collisionnel
- A l'opposé, quand le plasma est très collisionnel (en particulier collision électrons/chargés) la fdee correspond à une distribution de Maxwell!
=> on peut définir une température des électrons
=> Modèles fluides utilise la fdee Maxwellienne

Et entre les deux ?

- Souvent on est trop collisionnel pour PIC, pas assez pour hypothèse de Maxwell !!!
- => utilisation de l'équation de Boltzmann

Méthodes fluides

- Fonction de distribution $f(t, \mathbf{x}, \mathbf{v})$ = densité de particules dans l'espace des phases (positions \mathbf{x} , vitesses \mathbf{v})
- Evolution spatio-temporelle de f décrite par l'équation de Boltzmann

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla f + \frac{q}{m} (\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}) \cdot \nabla_{\mathbf{v}} f = \left(\frac{\delta f}{\delta t} \right)_{\text{collisions}}$$

- Equivalente au modèle statistique particulaire
- Solution nécessite approximations pour (\mathbf{x}) ou (\mathbf{v})
 - Approche locale/homogène
 - Approche non-locale: $\frac{1}{2}mv^2 + q\Phi(\mathbf{x}) = \text{const}$
 - ...
- Permet la construction d'équations macroscopique (fluides)

Méthodologie Fluide

- Grandeurs macroscopiques, moyennées sur les vitesses:

$$\text{Densité de particules: } n(\mathbf{x}, t) = \iiint f(\mathbf{x}, \mathbf{v}, t) d^3 \mathbf{v}$$

$$\text{Vitesse moyenne: } \mathbf{w} = \langle \mathbf{v} \rangle = \frac{1}{n} \iiint \mathbf{v} f d^3 \mathbf{v}$$

$$\text{Energie moyenne: } \bar{\varepsilon} = \frac{m}{2e} \langle v^2 \rangle = \frac{m}{2en} \iiint v^2 f d^3 \mathbf{v}$$

- Equations de transport macroscopiques = moments de l'équation de Boltzmann:

$$\iiint \left(\frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla f + \frac{q}{m} (\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}) \cdot \nabla_{\mathbf{v}} f \right) \mathbf{v}^m d^3 \mathbf{v} = \iiint \left(\frac{\delta f}{\delta t} \right)_{\text{col}} \mathbf{v}^m d^3 \mathbf{v}$$

$m = 0$: équation de continuité

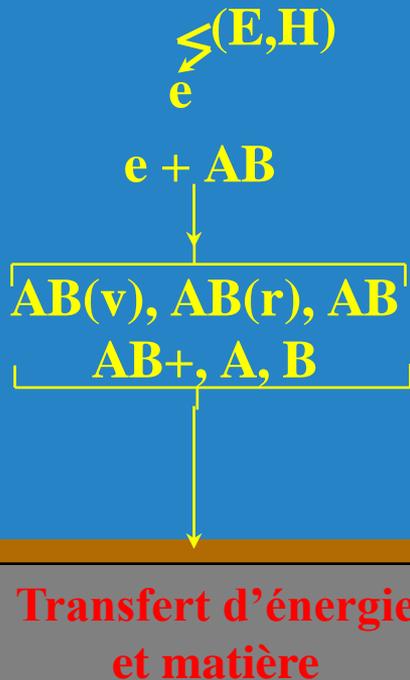
$m = 1$: équation de quantité de mouvement

$m = 2$: équation d'énergie

...

Modèle 0D (Global)

- Phénomènes à prendre en compte



Interaction « onde »-plasma
Chauffage des électrons

Collisions électron-lourd
Transfert d'énergie, ionisation,...

Collisions lourd-lourd
Redistribution d'énergie, chimie

Convection, Diffusion
Transport matière et énergie

Pourquoi choisir un 0D

Objectif : avoir une **idée assez ‘macro’** de ce qui se passe en terme de **transfert d'énergie et de chimie**

Même si on peut se tromper sur les **prédictions quantitatives**.

Ce qui n'est pas grave en soit car on sortira toujours une information sur les phénomènes collisionnels.

On profite du non-traitement des phénomènes de dynamique et transport pour bâtir des modèles collisionnels très fins.

Chauffage des électrons

- Détermination de la FDEE



$$\frac{\partial f(\varepsilon, t)}{\partial t} = -\frac{\partial J_E}{\partial \varepsilon} - \frac{\partial J_{el}}{\partial \varepsilon} - \frac{\partial J_{e-e}}{\partial \varepsilon} + Q_{in} = 0$$

Equation de Boltzmann
Modèles « collisionnels radiatifs »

OU

- Détermination de l'énergie moyenne



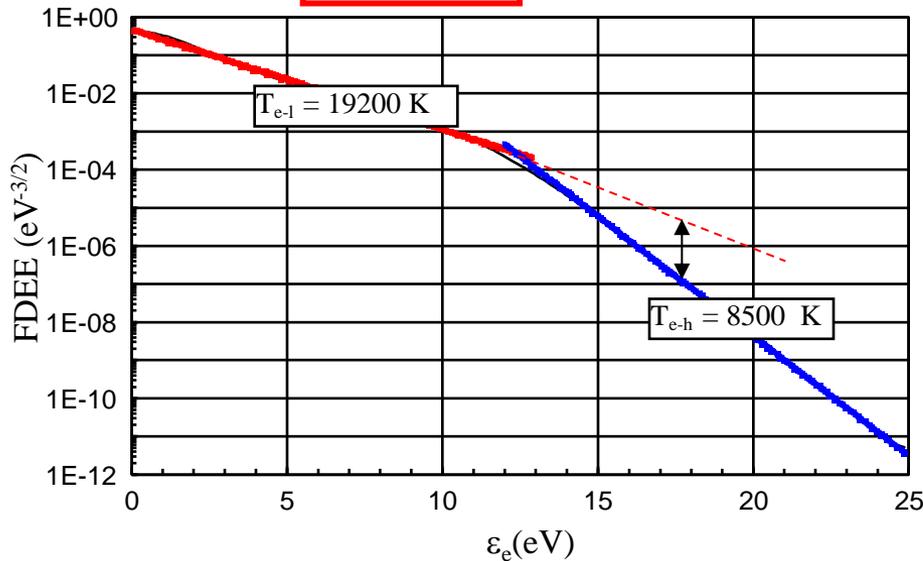
$$\frac{\partial \tilde{E}_e}{\partial t} = [PMW - Q_{e-v} - Q_{e-t} - Q_{e-x}] \frac{1}{\rho}$$

Modèles globaux

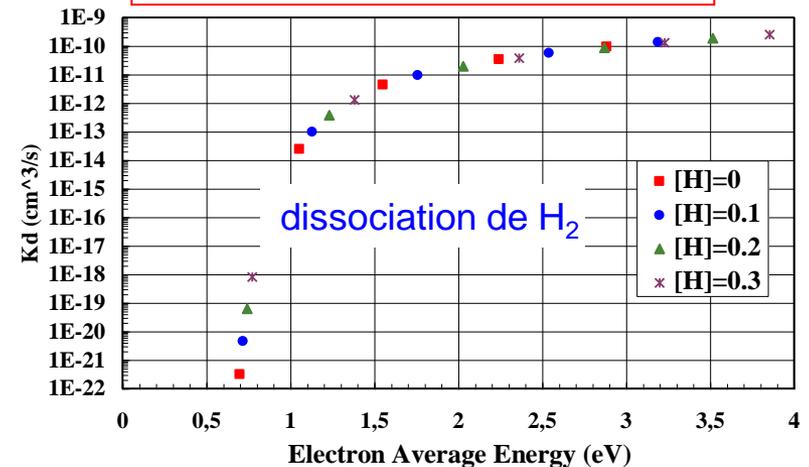
Découplage

Modèle globaux (ou de plus grande dimensions)

FDEE



Paramètre de contrôle des constantes e-lourds



$k_d=f(\varepsilon)$ Relation univoque

Boltzmann \Rightarrow Lissage $k_d=f(T_{e-l})$

Puis, on utilise les lissages dans l'équation de transport de e_e

Les collisions électroniques

- Élastiques : $A + e^- \rightarrow A + e^-$
- Inélastiques (seuil = perte d'énergie de l'électron)
 - Excitation : $A + e^- \rightarrow A^* + e^-$
 - Ionisation : $A + e^- \rightarrow A^+ + 2.e^-$
 - Attachement, ... : $A + e^- \rightarrow A^-$
- Superélastiques (gain) : $A^* + e^- \rightarrow A + e^- + \text{Energie}$

Composition

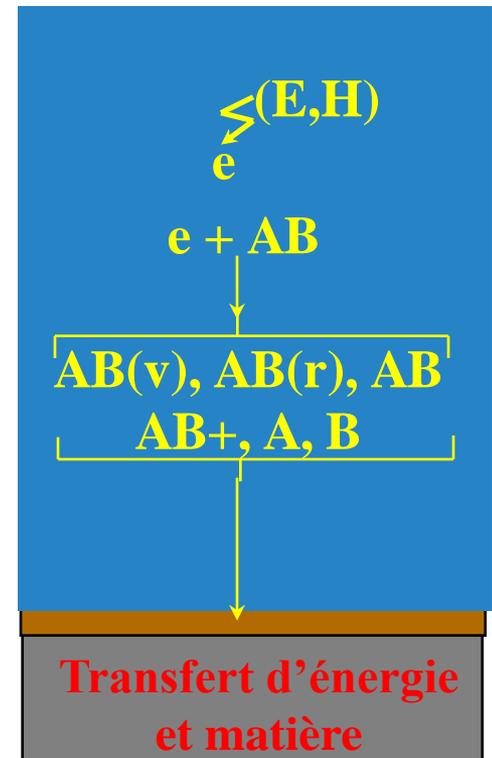
- Pour toutes les espèces
- W_s : terme de production nette sommé sur différents processus physico-chimiques

$$\frac{dY_s}{dt} = \frac{W_s}{\rho}$$

$$S = \sum_k N_k R_k \quad N = +1 \text{ (création), } +2 \text{ (création double), } -1 \text{ (perte), etc}$$

- Proportionnel aux densités des réactants avec coefficient K :
 - 2 corps $R = K n_1 n_2 \quad K = \langle \sigma v_{12} \rangle \quad [\text{m}^3/\text{s}]$
 - 3 corps $R = K_{3-c} n_1 n_2 n_3 \quad K_{3-c} \text{ en } [\text{m}^6/\text{s}]$
- Alternativement pour processus e-n : proportionnel à l'intensité du flux d'électrons avec coefficient α « de Townsend » $[1/\text{m}]$:

$$R = \alpha \max(-nw \cdot \mathbf{E} / E, 0)$$



Equation d'énergie

Température du gaz

$$\frac{\partial \tilde{E}}{\partial t} = [PMW - Q_{rad} - S_p] \frac{1}{\rho}$$

Bilan de puissance : gain/perde

Codes 0D disponibles

- GlobalKin => Quantemol-P (Kushner - payant)
- ZDPlasKin (Lxcat - gratuit)
- PLASIMO (Eindhoven - payant)
- COMSOL (payant)
- CHEMKIN (payant)

- Bolsig +
- LoKI-B

OD : RF

Global model of low-temperature atmospheric-pressure He + H₂O plasmas

To cite this article: D X Liu *et al* 2010 *Plasma Sources Sci. Technol.* **19** 025018

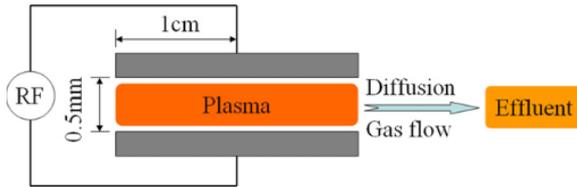


Figure 1. Schematic of the plasma set-up used in this study.

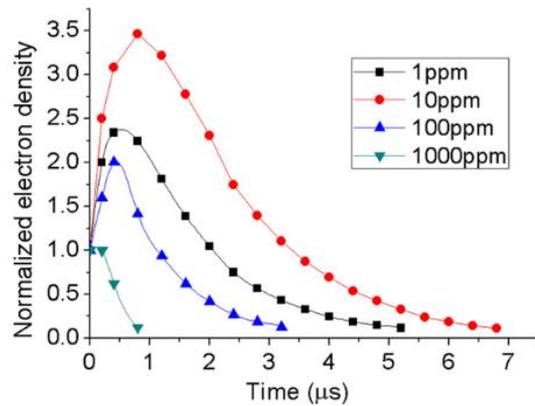


Figure 13. Normalized electron density in an He + H₂O plasma during an off phase.

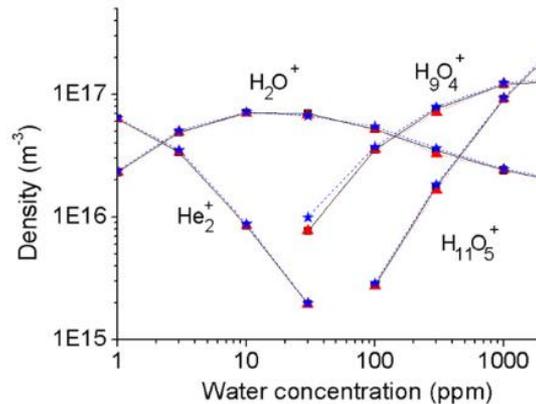


Figure 8. Densities of main ions as a function of water concentration. —■—: all reactions; -▲-: simplified model 1; -●-: simplified model 2.

Abstract

A detailed global model of atmospheric-pressure He + H₂O plasmas is presented in this paper. The model incorporates 46 species and 577 reactions. Based on simulation results obtained with this comprehensive model, the main species and reactions are identified, and simplified models capable of capturing the main physicochemical processes in He + H₂O discharges are suggested. The accuracy of the simplified models is quantified and assessed for changes in water concentration, input power and electrode configuration. Simplified models can reduce the number of reactions by a factor of ~10 while providing results that are within a factor of

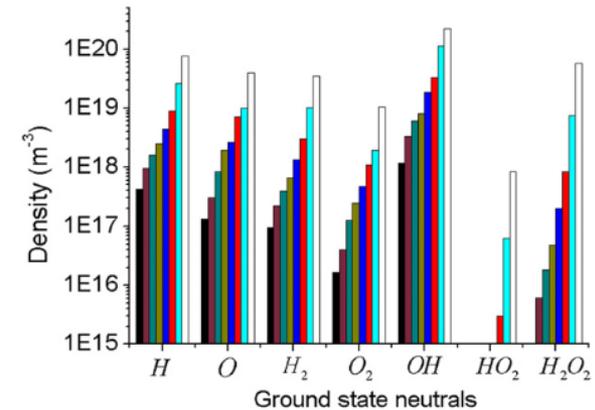


Figure 7. Density of ground-state neutral species: ■ 1 ppm; ■ 3 ppm; ■ 10 ppm; ■ 30 ppm; ■ 100 ppm; ■ 300 ppm; ■ 1000 ppm; ■ 3000 ppm.

0D décharge sur l'eau

IOP Publishing
 J. Phys. D: Appl. Phys. 52 (2019) 044003 (17pp)

Journal of Physics D: Applied Physics
<https://doi.org/10.1088/1361-6463/aaeb14>

Plasma kinetics in a nanosecond pulsed filamentary discharge sustained in Ar-H₂O and H₂O

Yuchen Luo¹, Amanda M Lietz², Shurik Yatom^{1,4}, Mark J Kushner³ and Peter J Bruggeman¹

1.34 slm (core) 2 slm (shielding)

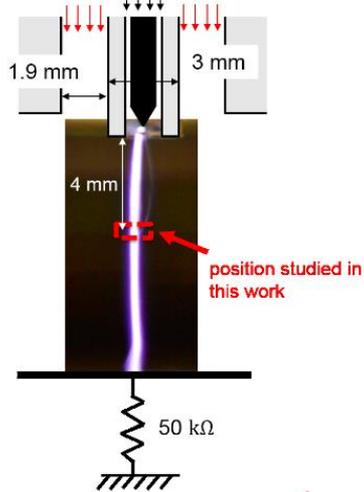
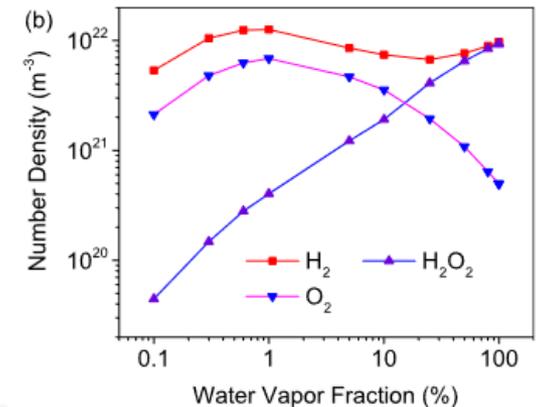
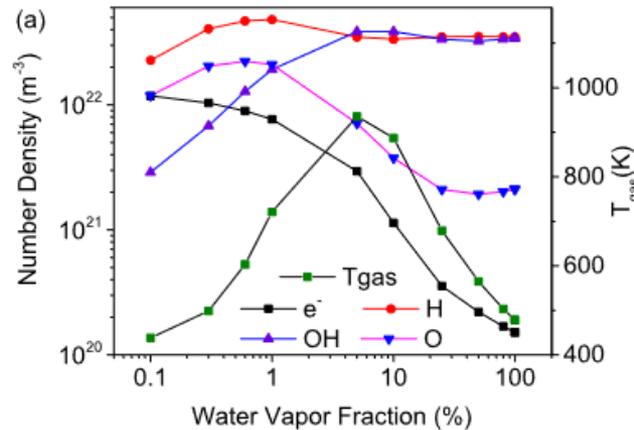


Figure 1. Schematic of the experimental setup.

What is the dominant kinetics and most abundant radicals in high density water containing discharges ?

Modèle cinétique ajout :

- $e^- + H_2O \rightarrow 2e^- + OH^+ + H$
- $e^- + H_2O(v)$
- $Ar^* + H_2O$ (quenching et Penning Ionization)



1D/2D

- Il faut prendre en compte le transport
- Equations idem mais on ajoute un flux de transport,
- Par exemple :

$$\frac{dn_i}{dx} + \nabla(F_i) = W_i$$

Transport (1D ou 2D)

La vitesse de chaque espèce est exprimée par l'équation de quantité de mouvement :

$$m \frac{\partial n \mathbf{w}}{\partial t} + m \nabla \cdot (n \mathbf{w} \otimes \mathbf{w}) + \nabla \cdot \mathbf{P} - qn(\mathbf{E} + \mathbf{w} \times \mathbf{B}) = \mathbf{R}$$

- Complicé à résoudre
- Heureusement plusieurs simplifications possibles

1 : diffusion ambipolaire

Souvent utilisé quand $\lambda_{\text{Debye}} \ll d_{\text{systeme}}$

Electroneutralité

$$\sum_i z_i n_i = 0$$

Courant

$$\sum_i z_i J_i = 0$$

Cas particulier d'1 ion + 1 électron $-\mu_e n_e E_{\text{amb}} - D_e \nabla n_e = \mu_i n_i E_{\text{amb}} - D_i \nabla n_i$

$$E_{\text{amb}} = \frac{D_i - D_e}{\mu_i + \mu_e} \frac{\nabla n_e}{n_e}$$

$$J_i = -\frac{\mu_e D_i + \mu_i D_e}{\mu_i + \mu_e} \nabla n_i = -D_{\text{amb}} \nabla n_i$$



$$\frac{dn_i}{dx} + \nabla(-D_a \nabla n_i) = W_i$$

Inconvénient : Limite de validité (plusieurs ions , ion négatif, ...)

2: dérive-diffusion

En pratique utilisée : $\lambda_{\text{Debye}} \approx d_{\text{syst}}$ et $\omega_i \gg \omega$

- Ions en équilibre thermique avec les neutres : $T_i = T_g$
- $E_{\text{dérive}} \gg E_{\text{thermique}}$

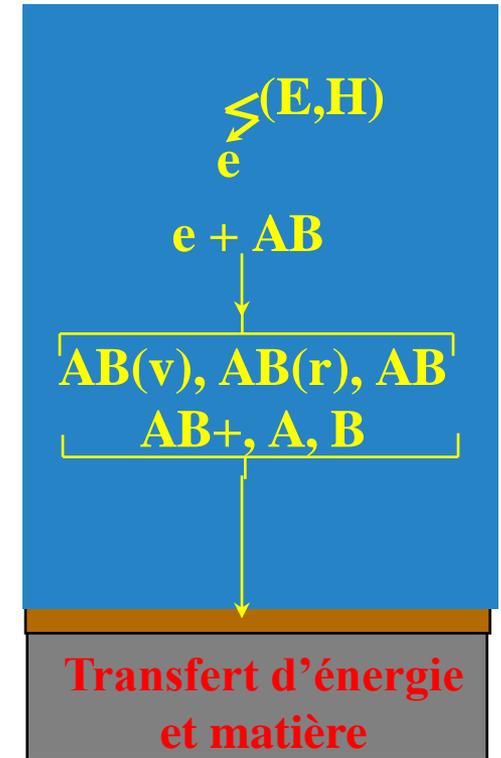
$$\frac{dw_i}{dt} = 0 \rightarrow \boxed{F_i = \nabla(z_i \mu_i E - D_i \nabla n_i)} \quad (\text{Pb : détermination } D_s \text{ et } m_s)$$

Application : Modèle fluide pour la RF ; propagation de streamer, ...

$$\boxed{\frac{dn_i}{dx} + \nabla(z_i \mu_i E - D_i \nabla n_i) = W_i}$$

Champ électro-magnétique

- Champ électrostatique
équation de Poisson $\left(\frac{\epsilon_0}{e}\right)\Delta V = n_e - \sum_{\text{ions}} z_i n_i$
- Champ électromagnétique
équation de maxwell
- Utilisé dans le flux de dérive diffusion (E,B)
- Dans la puissance transmise aux électrons (PMW)



Résolution

- Il n'existe pas de modèle unique, selon les hypothèses le jeu des équations à résoudre n'est pas le même.
- Couplage (interdépendance) très fort de toutes les équations
Selon les conditions, les couplages sont plus ou moins forts
=> codes adaptés
 - Code streamer (Transport)
 - Code MW = ambipolarité
 - RF dérive diffusion couplage des espèces par chimie

Quelques codes disponibles

- HPEM (Quantemol)
- Comsol
- PLASIMO

- Beaucoup de codes 'maison'

RF plasma jet

Generation of reactive species by an atmospheric pressure plasma jet

To cite this article: S Kelly and M M Turner 2014 *Plasma Sources Sci. Technol.* **23** 065013

Modèle de Plasma jet He/O₂

Plasma résolu en 1D (liquide = surface réactive)

Chimie des neutres en 2D

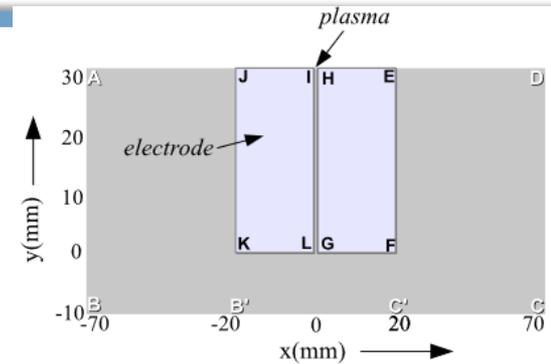


Figure 1. Model geometry.

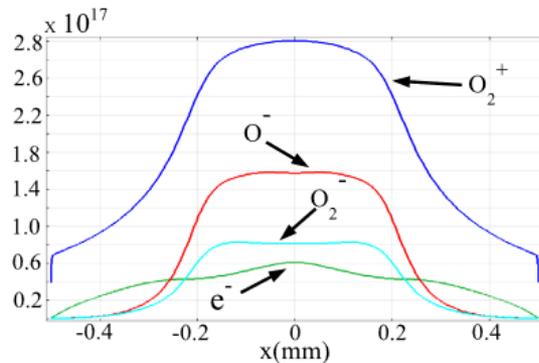


Figure 6. Phase-averaged charged species density m^{-3} across the discharge domain (1D cross section) for $V_{\text{applied}} = 325 \text{ V}$, 0.6% O₂ admixture.

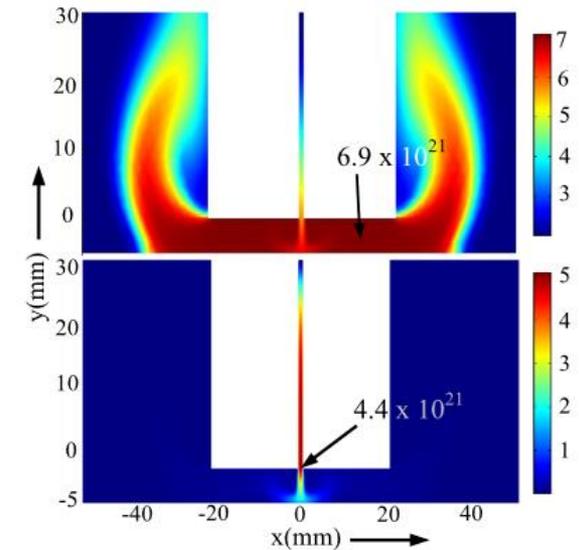


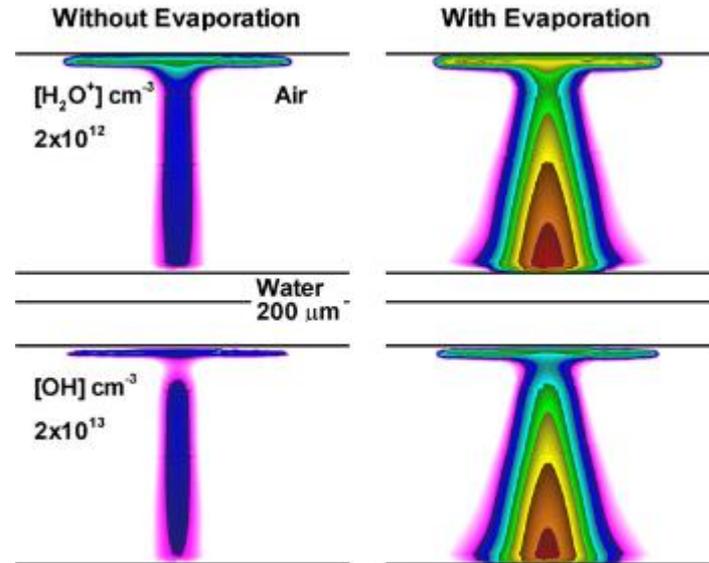
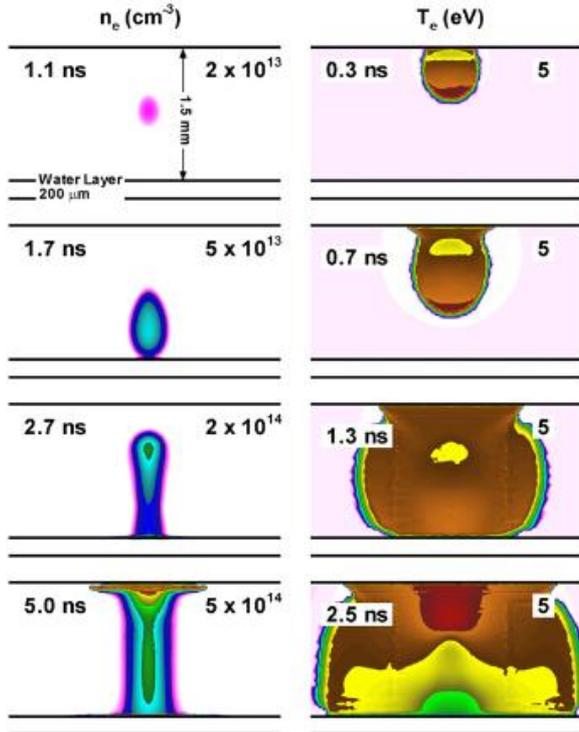
Figure 12. O₃ density (m^{-3}) (top) and O density (m^{-3}) (bottom) for 5 mm device to surface separation. $V_{\text{applied}} = 325 \text{ V}$ and 0.6% O₂ admixture.

Bon accord avec mesure expérimentale

DBD sur un liquide

Atmospheric pressure dielectric barrier discharges interacting with liquid covered tissue

Wei Tian¹ and Mark J Kushner^{2,3}



Des questions???

Dépôt d'énergie dans le liquide

- Les procédés fondamentaux étant mal connus :
⇒ Difficile de mettre au point un modèle

- **Sans bulle :**

Modèle de claquage => phénomènes d'initiation

- **Avec la présence bulles (pré-existantes ou cavitation) :**

Modèle de bulles pré-existantes

Modèle de bulles de cavitation

Modèle de claquage en liquide

*Mécanismes du claquage en milieu aqueux **homogène** pour des décharges (100 ns)*

JOURNAL OF APPLIED PHYSICS

VOLUME 96, NUMBER 9

1 NOVEMBER 2004

Are microbubbles necessary for the breakdown of liquid water subjected to a submicrosecond pulse?

R. P. Joshi,^{a)} J. Qian, G. Zhao, J. Kolb, and K. H. Schoenbach
Department of Electrical and Computer Engineering Old Dominion University, Norfolk, Virginia 23529-0246

E. Schamiloglu and J. Gaudet
Department of Electrical and Computer Engineering, University of New Mexico, Albuquerque, New Mexico 87131

- Simulations **Monte Carlo**
- Modèle **2D Dérive-Diffusion** (Ionisation de champ, échanges de charges aux électrodes, recombinaison en liquide,...)
- **Résultat** : le claquage n'est pas dû à :
 - L'ionisation par impact électronique par injection à la cathode
 - L'ionisation par effet de champ
- **Réponse** : OUI, distribution aléatoire de micro-bulles pré-existantes nécessaire pour expliquer le claquage

Modèle de claquage en liquide

JOURNAL OF APPLIED PHYSICS 97, 113304 (2005)

*Mécanismes du claquage en milieu aqueux
non-homogène pour des décharges
(100 ns)*

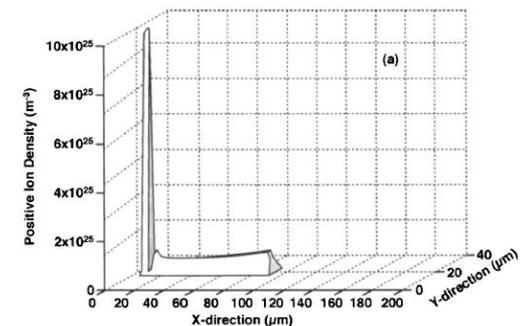
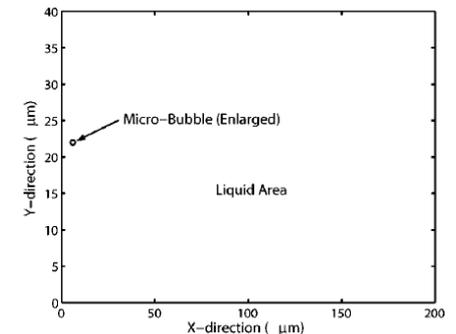
Microbubble-based model analysis of liquid breakdown initiation by a submicrosecond pulse

J. Qian, R. P. Joshi,^{a)} J. Kolb, and K. H. Schoenbach
Department of Electrical and Computer Engineering, Old Dominion University, Norfolk, Virginia 23529-0246

J. Dickens, A. Neuber, M. Butcher, M. Cevallos, and H. Krompholz
Department of Electrical and Computer Engineering, Texas Tech University, Lubbock, Texas 79409-3102

E. Schamiloglu and J. Gaudet
Department of Electrical and Computer Engineering, University of New Mexico, Albuquerque, New Mexico 87131

- Simulations **Monte Carlo**
- Modèle **2D Dérive-Diffusion**
- **Résultat** : si régions de faible densité
= possibilité d'émission d'e- par effet de champs
suivi par l'ionisation par impact électronique
- Analogie avec céramique et diélectrique solide



Modèle de claquage en liquide

Simulations de l'initiation plasma en liquide homogène en décharge pulsée ns ($\sim 3.0\text{--}5.0\text{ ns}$)

IOP Publishing

Plasma Sources Sci. Technol. 29 (2020) 025011 (16pp)

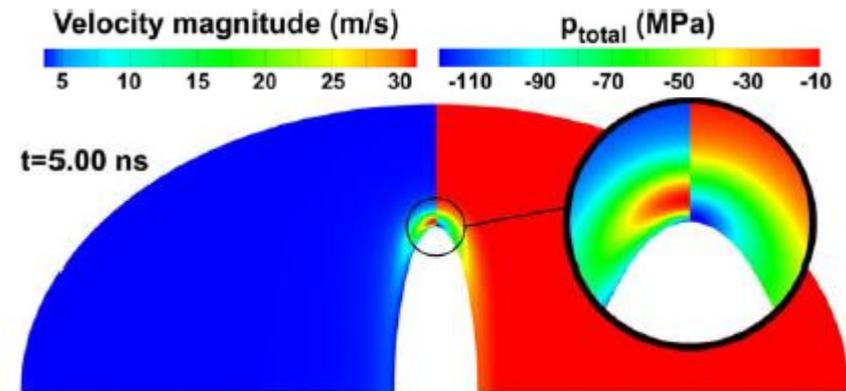
Plasma Sources Science and Technology

<https://doi.org/10.1088/1361-6595/ab51e3>

Multiphysics simulation of the initial stage of plasma discharge formation in liquids

Ali Charchi Aghdam and Tanvir Farouk¹

Department of Mechanical Engineering, University of South Carolina, Columbia, SC 29208, United States of America



- Fluide compressible
- Conservation de la masse + charge
- Equation de Poisson
- **Résultat :**

*Formation d'une région de pression négative proche de l'anode
($<$ pression de cavitation)

*Effet important des forces électrostrictives

Bulles dans un liquide

- **Ex : Babaeva & Kushner :**

Propagation d'un streamer dans une bulle immergée dans un liquide

2D axi-symétrie – décharge pointe-plan – bulle pré-existante ($d < 1\text{mm}$) – décharge **DC**

Equations

Bulle : transport (neutres+chargées) + Energie électrons

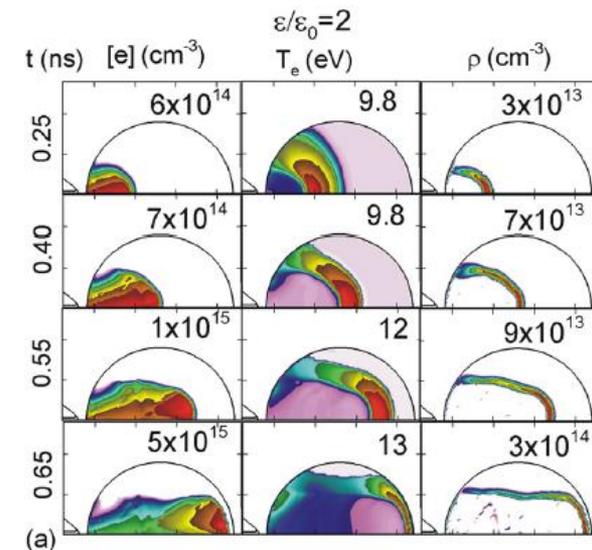
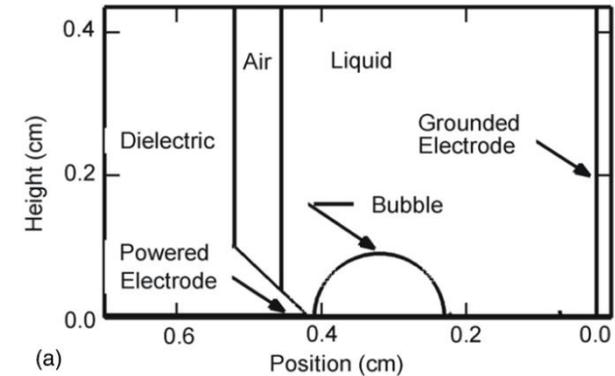
Liquide : Conservation de la charge

Bulle+Liquide : Poisson

Résultats

2 streamers (axial + surface)

Influence de la permittivité & conductivité du liquide, de la tension appliquée, de la taille de la bulle



Babaeva, & Kushner 2009, *Journal of Physics D: Applied Physics* 42(13).

Bulles dans un liquide

- **Ex : Levko & Sharma**

Plasma MW dans des bulles d'Ar + hydrocarbure
dans une bulle d'air + hydrocarbure

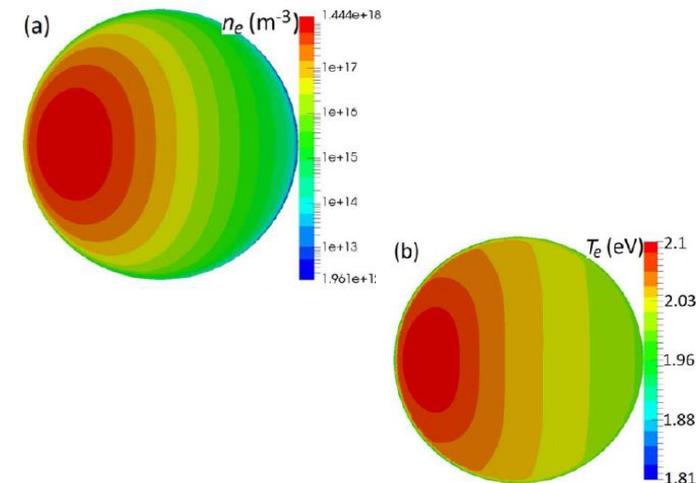
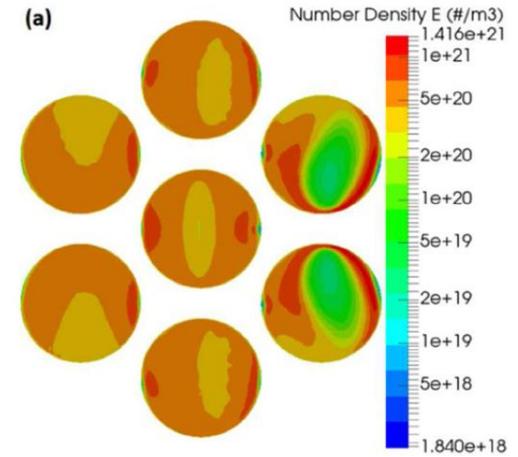
2D cartésien – décharge pointe-plan – bulle pré-existantes
($d=1-2\text{mm}$) – décharge **MW**

Equations

Bulle : conservation de la masse (neutres+chargées) +
Energie électrons + Poisson + Champ magnétique

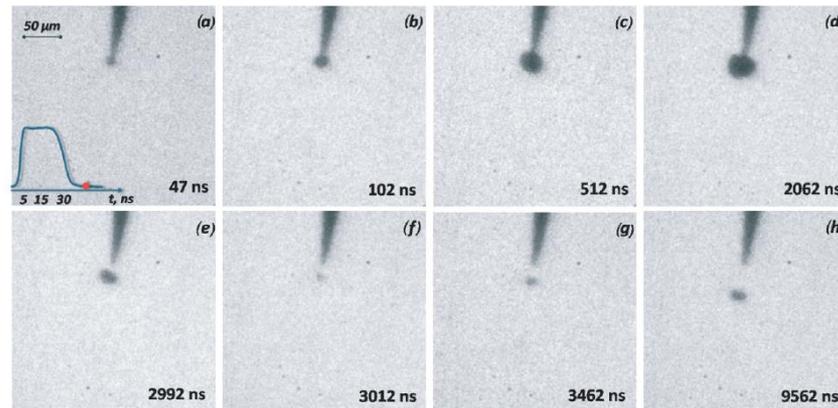
Résultats

Plasma très dense
Comparaison avec DC (Babaeva) : + dense,
uniforme, réactif



Bulle de cavitation

- Thermodynamique + Mécanique des fluides (Cavitation)
⇒ Formation et dynamique de la bulle créée par la décharge immergée



Marinov, I., et al. 2013 *Plasma Sources Science and Technology* 22(4)

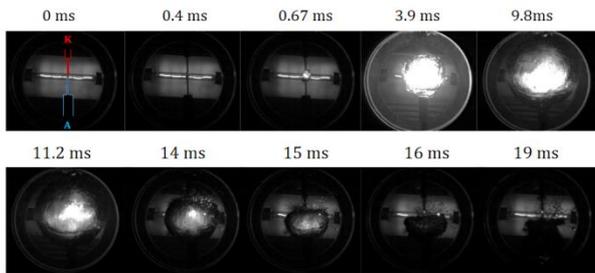
- Modèle Kattan Denat = dépôt d'énergie
- Modèle Rayleigh Plesset = dynamique

Bulle de cavitation

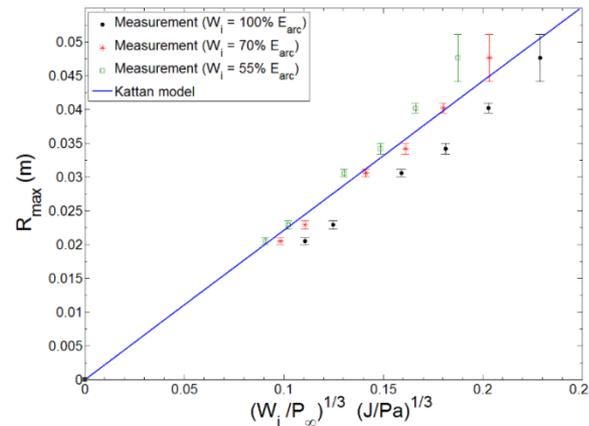
- Formation de la bulle
- Cas des décharges contrôlées par Effet Joule
- Modèle Kattan-Denat

Bilan d'énergie : $W_i = E_T + E_P = (E_{in} + E_{vap}) + (E_b + E_{sw})$

Relation entre énergie et taille de la bulle : $N = \frac{W_i}{\overline{E_T}} = \frac{P_\infty Vol}{\Re T_b}$



Laforest, et al 2019 IJRRAS 34, 02324105



Kattan, et al 1989 Journal of Applied Physics 66(9):4062-4066.

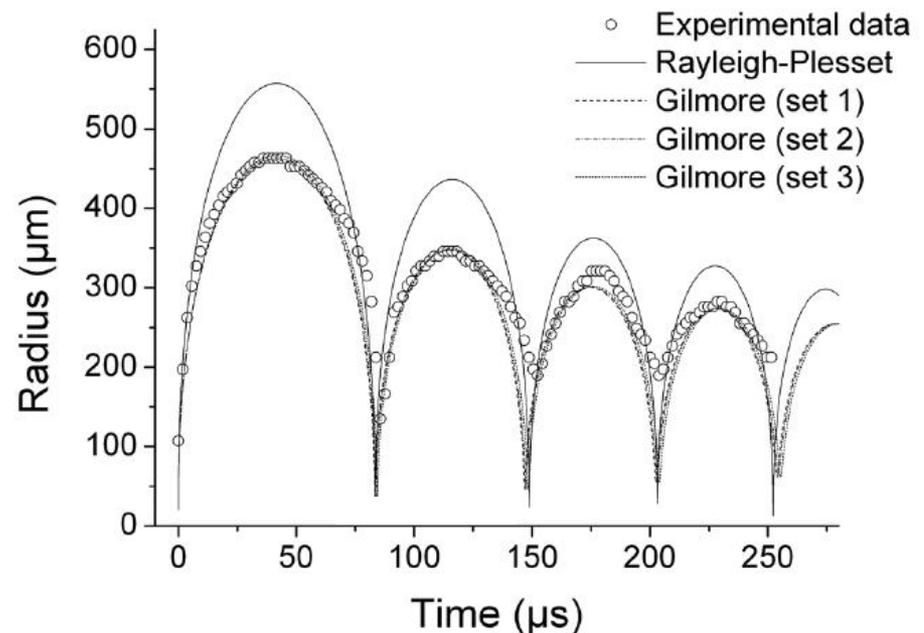
Aitken, F., 1996 Journal of Fluid Mechanics 327:373-392.

Bulle de cavitation

- Dynamique de la bulle
- Modèle Rayleigh (Plesset) $R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^2 = \frac{P_i}{\rho_0}$,
- Modèle de Gilmore

$$\left(1 - \frac{\dot{R}}{C}\right) \frac{R}{C} \frac{dH}{dt} + \left(1 + \frac{\dot{R}}{C}\right) H - R\ddot{R} \left(1 - \frac{\dot{R}}{C}\right) - \frac{3}{2} \left(1 - \frac{\dot{R}}{3C}\right) \dot{R}^2 = 0.$$

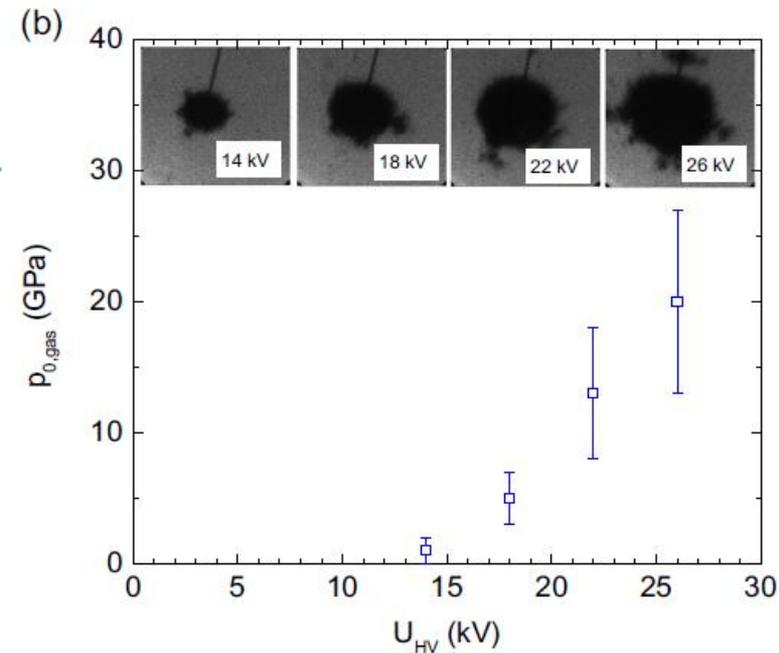
Hamdan, A., et al. 2013 *The Journal of the Acoustical Society of America* 134(2):991-1000.



Bulle de cavitation

- **Dynamique de la bulle** $\Rightarrow P_{0, \text{gaz}}$
- Estimation des conditions thermodynamique de la phase gazeuse (P,T)
- Loi des gaz parfaits : $p_{0, \text{gas}} V_0 = N_0 k_B T_0$.
- Expansion adiabatique : $T(t) = T_0 \left(\frac{R_0}{R(t)} \right)^{3(\gamma-1)}$.

\Rightarrow Utilisation dans un modèle 0D gaz



Chauvet, Laura, et al. 2020 *Plasma Processes and Polymers* 17(6):1900192.

Questions ?????

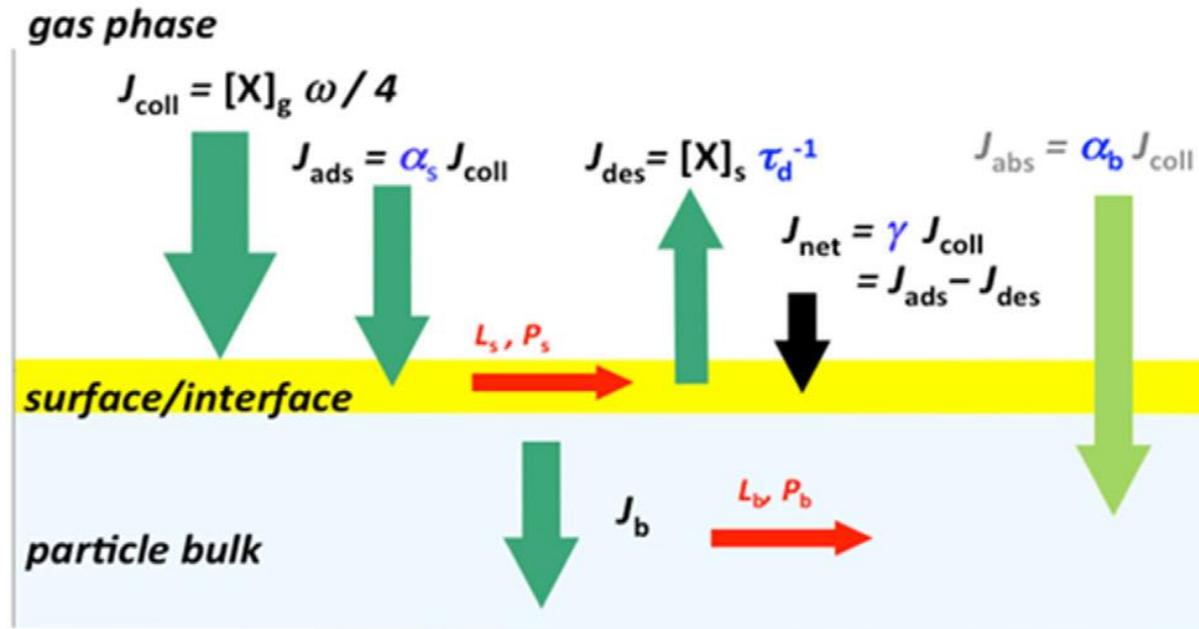
Interface

Procédé

Interface

Chimie/Transport à l'interface

- Approche similaire aux interactions plasma - surface



Coefficients d'accommodation, temps caractéristiques, constantes de réactions disponibles par expérience et/ou simulation (MD ou DFT)...
ou pas!

Propriétés physiques

Table IV. Physical properties in plasma and liquid water.

	In gas plasma at 1 atm.	In liquid water
Medium density	$2.45 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ at 300 K	$3.34 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$
Plasma density	$10^{11} - 10^{15} \text{ cm}^{-3}$	$6.02 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ in DW ^{a)} $6.02 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ at 1 M ^{b)}
Diffusion coefficient	Electron $\sim 10^3 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ Ion $\sim 1 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$	$\sim 10^{-5} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$
Mobility	Electron $\sim 10^3 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$	$\sim 10^{-3} \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$
Drift velocity	Electron $10^6 - 10^8 \text{ cm s}^{-1}$ Ion $10^3 - 10^5 \text{ cm s}^{-1}$	10^2 cm s^{-1} at 10 V cm^{-1}
Conductivity	0.01 S cm^{-1} at 10^{14} cm^{-3}	$5.48 \times 10^{-8} \text{ S cm}^{-1}$ in DW ^{a)} 0.1 S cm^{-1} at 1 M ^{b)}

a) DW: deionized water. b) 1 M: values estimated in a typical electrolyte at a concentration of 1 M.

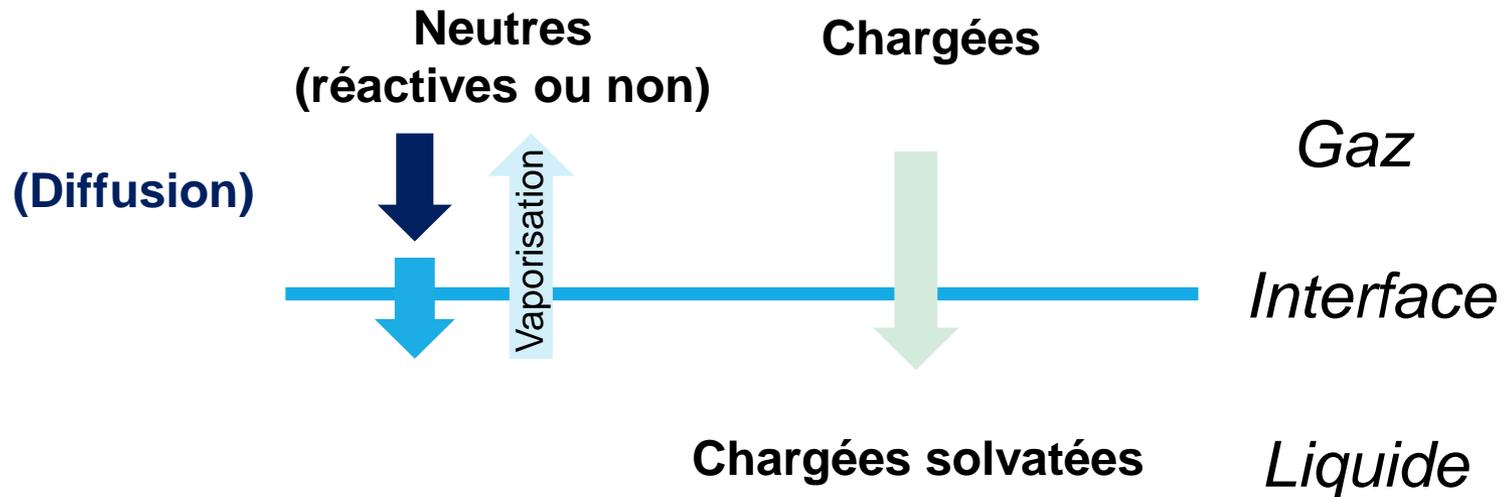
Tochikubo & Komuro, 2021, Japanese Journal of Applied Physics 60(4)

Les espèces chargées et les radicaux issus du plasma s'accumulent à la surface => Interface = zone très réactive

La solvatation est beaucoup plus rapide que la réactivité chimique (ex pour les e⁻ : 20 fs << 10μs)

Problématique

- Réactions en phase liquide induites par les espèces générées en phase gazeuse (plasma)
- Phénomènes à l'interface : transport des espèces neutres et chargées



Tochikubo & Komuro, 2021, *Japanese Journal of Applied Physics* 60(4):040501.

Modèle du film : Exemple

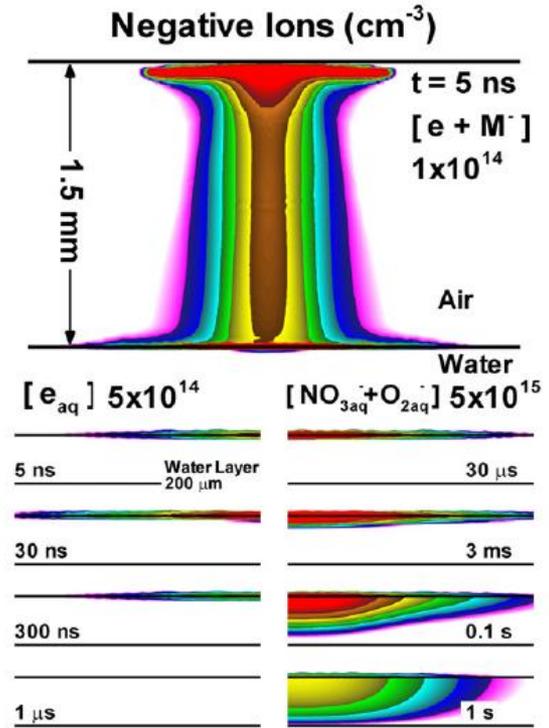
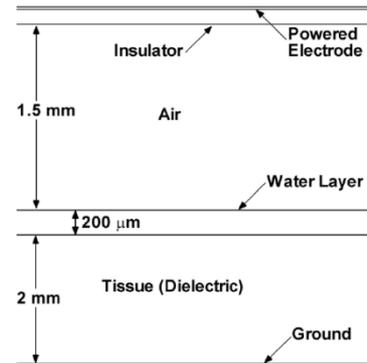
Approche simple : Modèle du film (double film)

INTERFACE :

Neutres :
$$D_{ij} = D_i \left(\frac{hn_i - n_j}{hn_i} \right),$$

Chargées + e- : Dissous immédiatement

Evaporation de l'eau : pression de vapeur saturante



Résultats

- *Influence de l'évaporation (OH & H₂O₂ gaz)
- *Influence de UV/VUV (OH & H liquide)
- *Identification des espèces réactives dominantes

T. Wei & M J. Kushner ,2014. Journal of Physics D: Applied Physics 47(16)

Modèle de pénétration : Exemple

Modèle de pénétration « réactive »

INTERFACE :

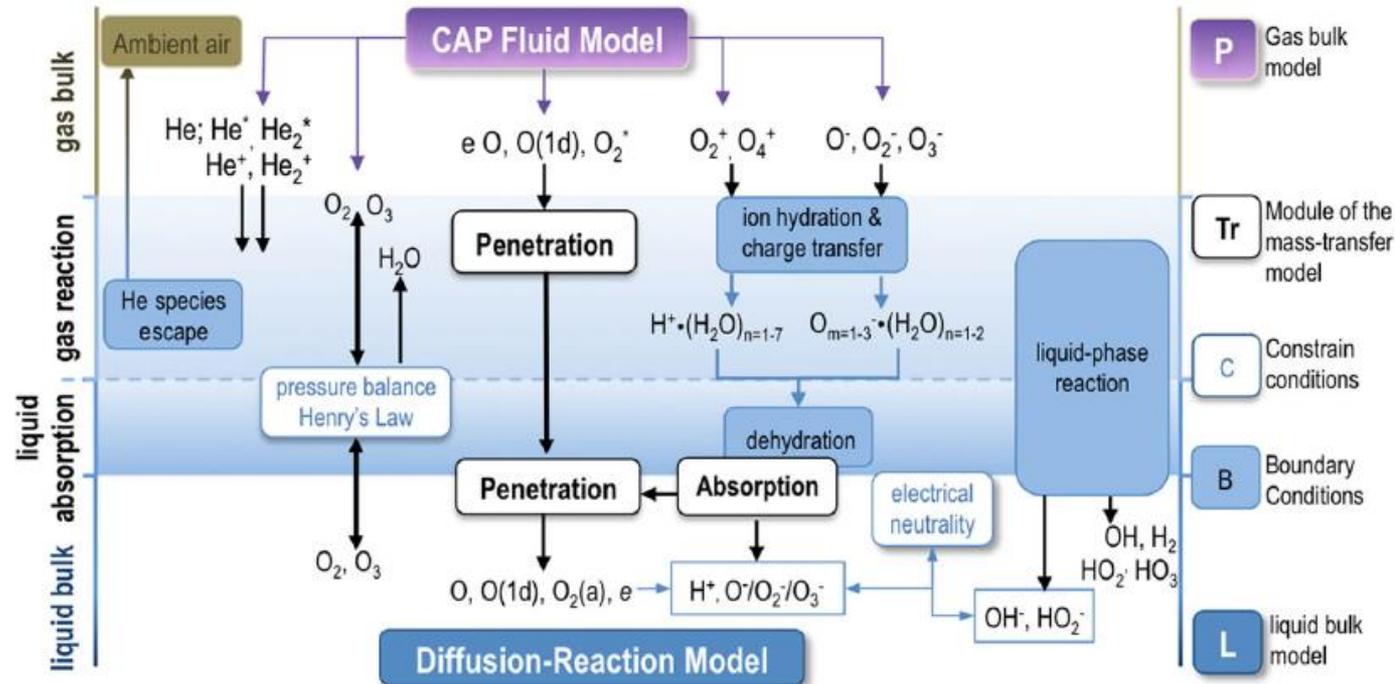
Modèle de pénétration
« réactive » - 0D
instantané

Couche =

film gazeux réactif
+ film liquide absorption
+ Loi de Henry

Conditions aux limites
différentes selon les
espèces :

Chargées,
Neutres réactives ,
Non réactives



Résultats

- *Estimation des longueurs de pénétration
- *Identification des espèces réactives par zone

Chen, C., et al. 2014 Plasma Chemistry and Plasma Processing 34(3):403-441

Double couche électrique

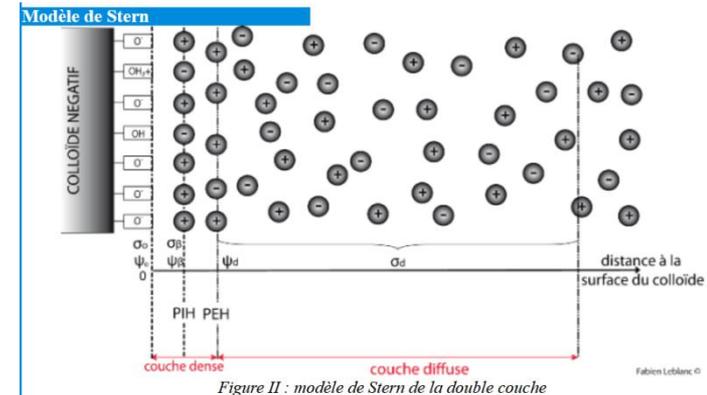
- **Double couche électrique (EDL-Electrical double layer)**

Modèle décrivant la variation du potentiel électrique près d'une surface.

L'eau a des propriétés diélectriques qui induisent le chargement de la surface

La gaine du plasma côté gaz de l'interface induit un fort potentiel et une région d'espace de charge vers l'interface.

La formation de l'EDL dépend de la polarité de E et de la différence de masse entre les ions + et -
=> **Nécessité de résoudre Poisson dans le liquide**



Transport à l'interface

- **Double couche électrique (EDL)**

Exemple

Simulation d'une EDL en contact avec un plasma DBD

Solveur = COMSOL

Modèle en phase liquide = EDL

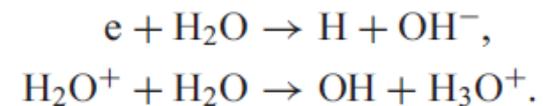
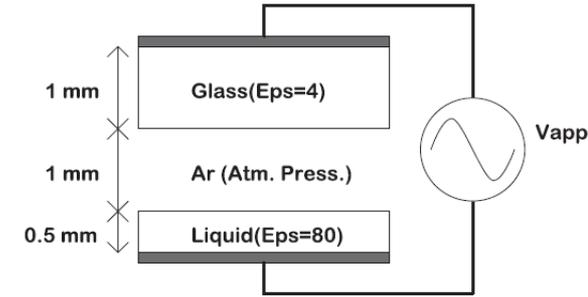
Equations de transport pour les ions (diffusion + mobilité des ions)

+ Poisson

Loi de conservation du courant : *Toutes les espèces chargées de la phase plasma sont consommées pour produire les ions de même polarité dans le liquide*

Résultats : Epaisseur de EDL = $1\mu\text{m}$

Réactions préférentielles à l'interface gaz-liquide pour les ions lents (mobilité)



Shirafuji T, et al 2014 Japan. J. Appl. Phys. 53 03DG4

Transport à l'interface – e-

- Transport des e- de la phase plasma jusqu'au liquide (e- solvatés)

Exemple

Décharge DC Argon (Exp Rumbach *et al*)

Gaz = 1D PIC/MC & Liquide = 1D fluide (espèces chargées couplé par Poisson) / COMSOL

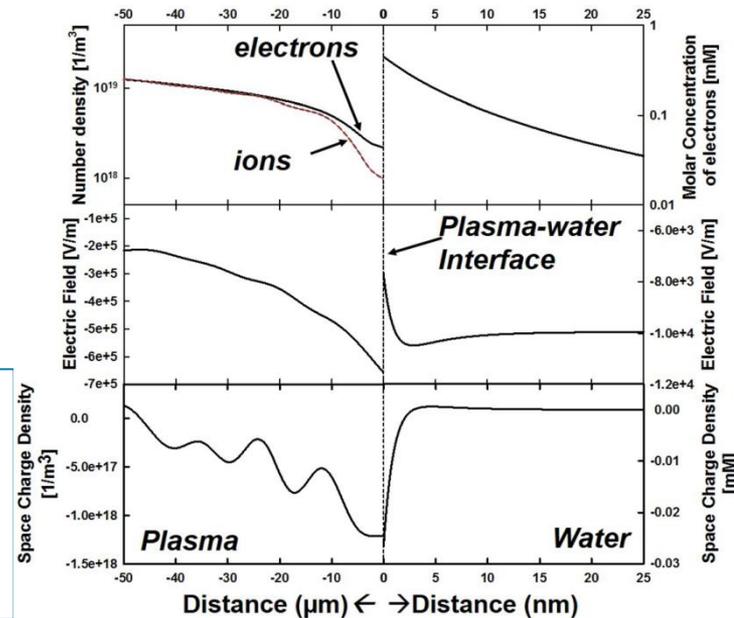
Résolution de la double couche à l'interface

Le flux d'électrons entrant dans l'eau est déterminé à partir du code PIC/MCs

Les électrons entrent dans l'eau avec un coefficient de proba unitaire pour chaque collision e+H₂O

Résultats

Les électrons issus du plasma sont solvatés dans le liquide et ensuite consommés par réaction en liquide sur 10-20 nm pour donner OH⁻ et H₂



Transport à l'interface

- **Description à l'échelle atomique : Dynamique Moléculaire**

2 approches possibles

*Potentiels réactifs : ReaxFF & REBO (Brenner) (développés pour CxHy)

*Potentiels non réactifs : OPLS & Gromos

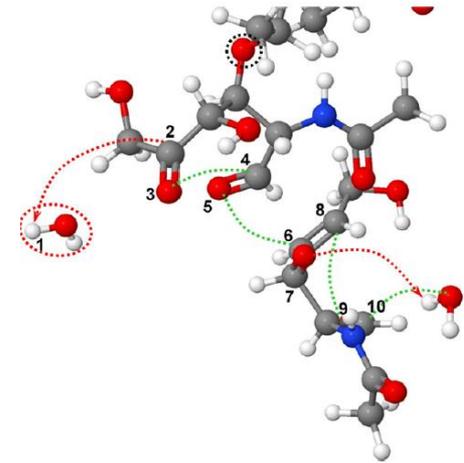
- **Applications :**

Plasma-médecine (Bogaerts)

Dépollution (Brault)

- **Objectif :**

Adsorption, distribution et diffusion des espèces à l'interface air/eau



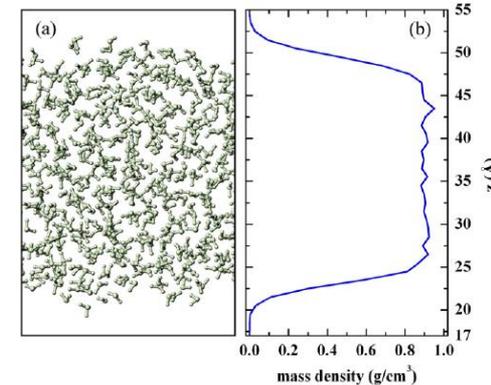
Bogaerts, A et al. 2014 Plasma Processes and Polymers 11(12):1156-1168.

Transport à l'interface

- Ex : Yusupov, M., *et al.* 2013, *Journal of Physics D: Applied Physics* 47(2)

Reactive molecular dynamics simulations of oxygen species in a liquid water layer of interest for plasma medicine.

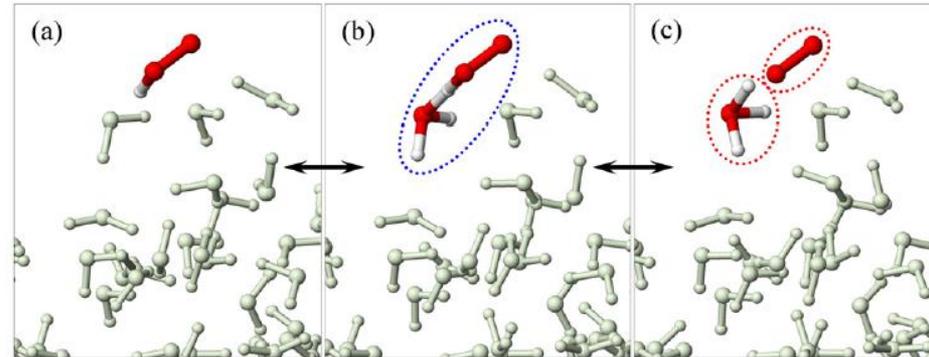
- Boîte = $25\text{\AA} \times 25\text{\AA} \times 23.93\text{\AA}$ remplie de 500 molécules d'eau (1g/cm^3)
- Potentiel réactif : ReaxFF
- Mécanismes d'interaction de ROS (O , OH , HO_2 and H_2O_2) avec l'eau



Résultats

- * O réagit immédiatement avec l'eau à la surface
⇒ 2OH
⇒ OH réagit ensuite avec l'eau ,
⇒ $\text{OH} \& \text{H}_2\text{O}$
- * HO_2 réagit avec l'eau
⇒ superoxide (O_2^-) & (H_3O^+) mais rapidement
⇒ $\text{HO}_2 \& \text{H}_2\text{O}_2$

Interaction de HO_2 avec l'eau



Transport à l'interface

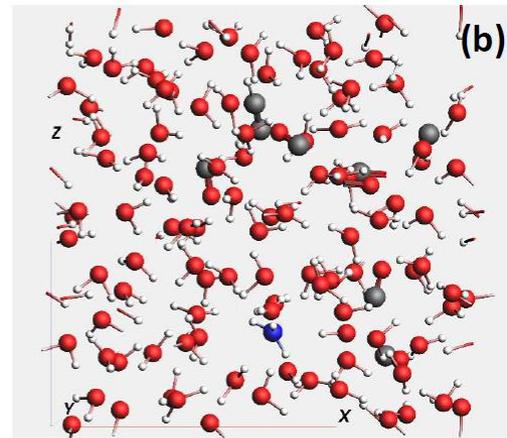
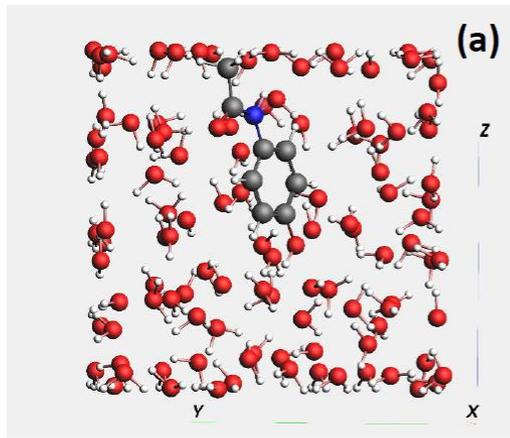
- Ex : Brault Pascal, *et al.* 2021. *Journal of Applied Physics* 129(18)

Insight into plasma degradation of paracetamol in water using a reactive molecular dynamics approach

- Boîte = $15\text{\AA} \times 15\text{\AA} \times 15\text{\AA}$ remplie de 100 H_2O + 10 OH + 1 paracétamol ($1\text{g}/\text{cm}^3$)
- Potentiel réactif : ReaxFF
- Mécanismes de décomposition du paracétamol en présence de OH :
⇒ produits finaux et intermédiaires

Réactifs initiaux:

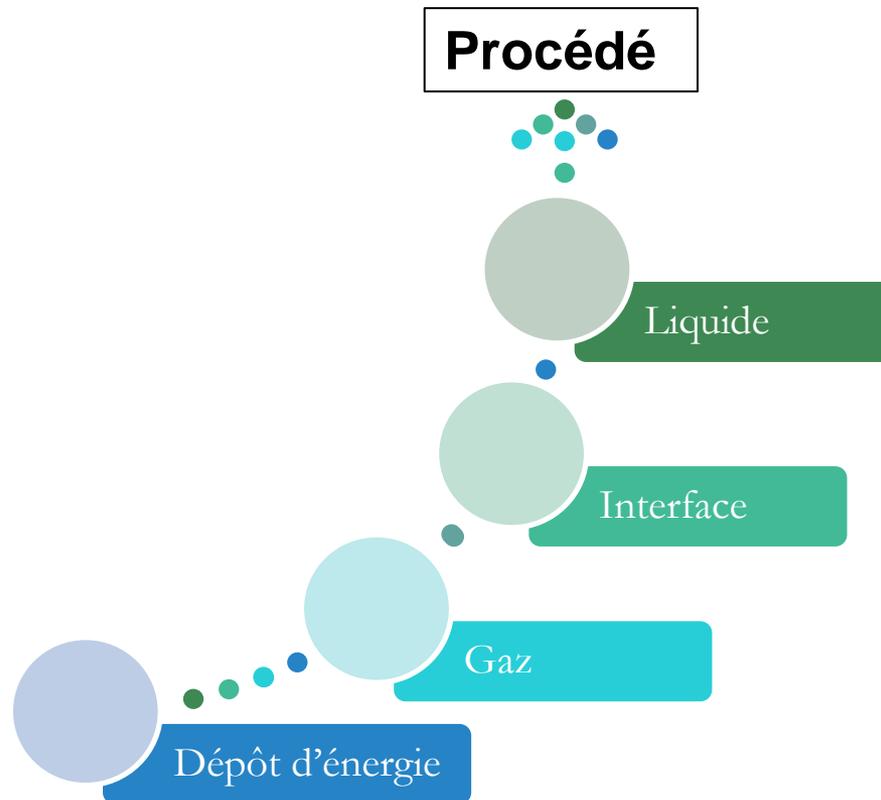
100 H_2O
10 OH
1 $\text{C}_8\text{H}_9\text{NO}_2$



Produits finaux :

6 CO
1 C_2H_2
1 NH_3
100 H_2O
1 H_3O
1 H_2

Approche globale



Exemple d'études

- Approches découplées!

Exemple de découpage

- Mededovic & Locke

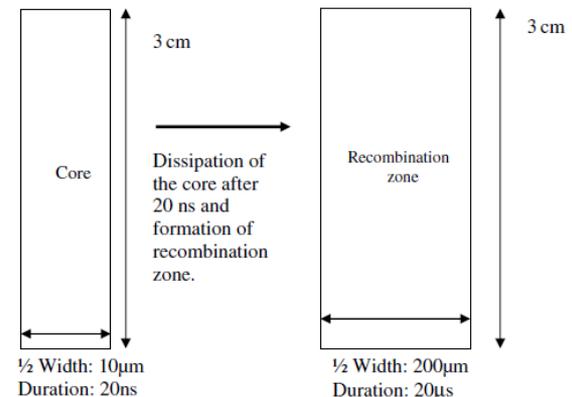
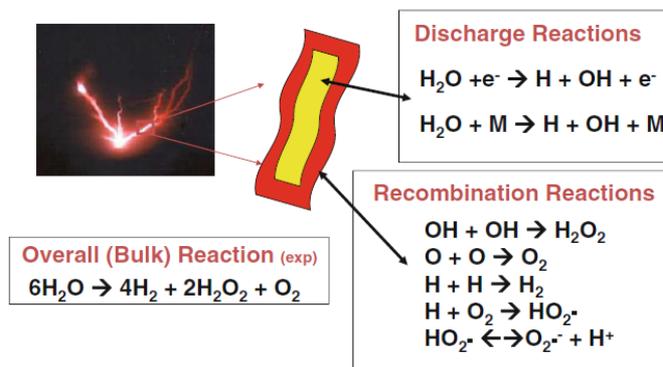
Décharge pointe-plan microseconde dans l'eau

Deux domaines temporels+spaciaux :

*Coeur du plasma = radicaux créés par impact électronique et procédés thermiques

*Zone de recombinaison = espèces moléculaires formées (H_2O_2 and H_2)

=> Etude en phase gazeuse!



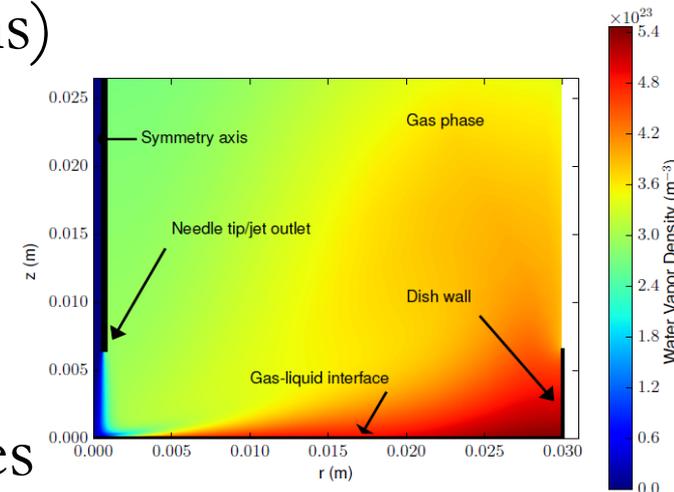
Medodovic, S., and B. R. Locke 2009 *Journal of Physics D: Applied Physics* 42(4):049801.

Locke, Bruce R., and Selma Mededovic Thagard 2012 *Plasma Chemistry and Plasma Processing* 32(5):875-917.

Exemple de découplage

- Lindsay *et al*
- Modèle de transfert de masse, qté de mvt et chaleur entre le gaz et le liquide d'une décharge pulsée pointe-plan dans l'air (COMSOL)
- Chimie en phase gazeuse = calcul DBD (Tian) / 10 !!!
- Chimie réduite en liquide (23 réactions)
- Interface = loi de Henry
- **Résultat :**

Influence de la convection sur la température et la distribution des espèces



Exemple de découpage

Plasma Chem Plasma Process (2014) 34:403–441
DOI 10.1007/s11090-014-9545-1

ORIGINAL PAPER

A Model of Plasma-Biofilm and Plasma-Tissue Interactions at Ambient Pressure

C. Chen · D. X. Liu · Z. C. Liu · A. J. Yang · H. L. Chen · G. Shama · M. G. Kong

RF atm plasma He-N2

GAZ :

1D Fluide – dérive diffusion - EEDF = Bolsig+

Chimie : réduction préliminaire du schéma cinétique par un modèle global (+couplage)

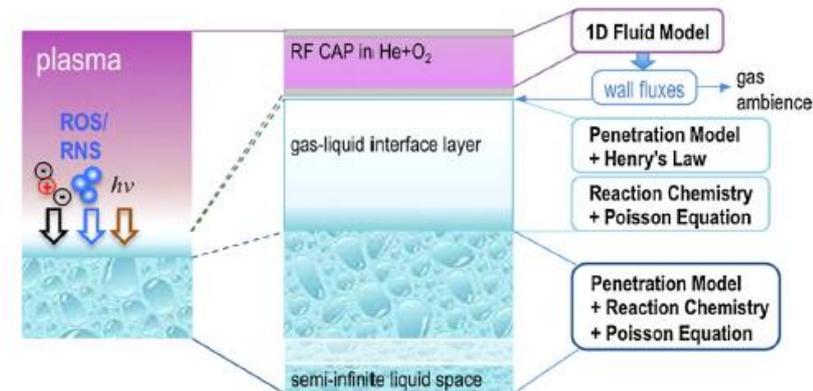
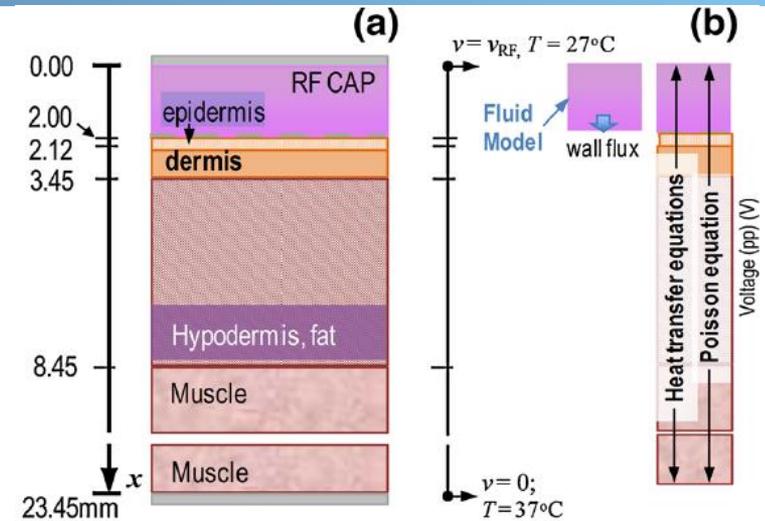
LIQUIDE :

Fluide 1D – modèle réaction dérive diffusion + Poisson
Coefficient de diffusion effectif (par rapport à l'eau)

INTERFACE :

Modèle de pénétration « réactive » - 0D instantané

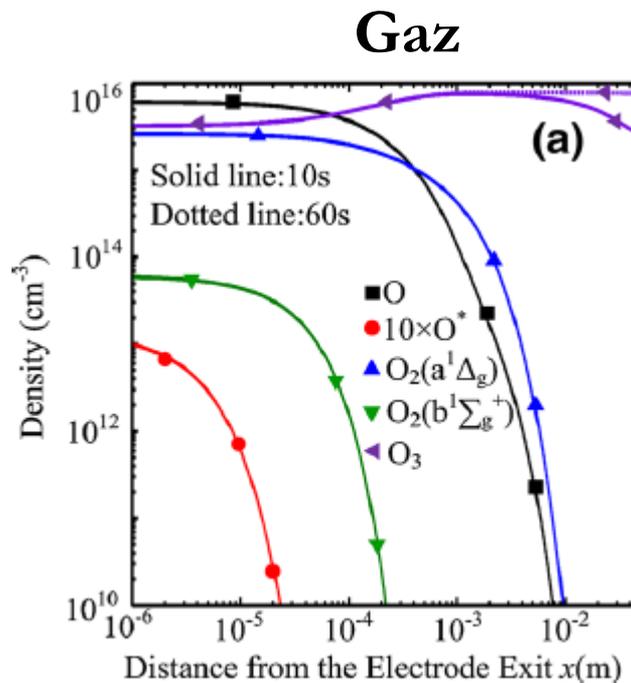
Couche = film gazeux réactif + film liquide absorption + Loi de Henry



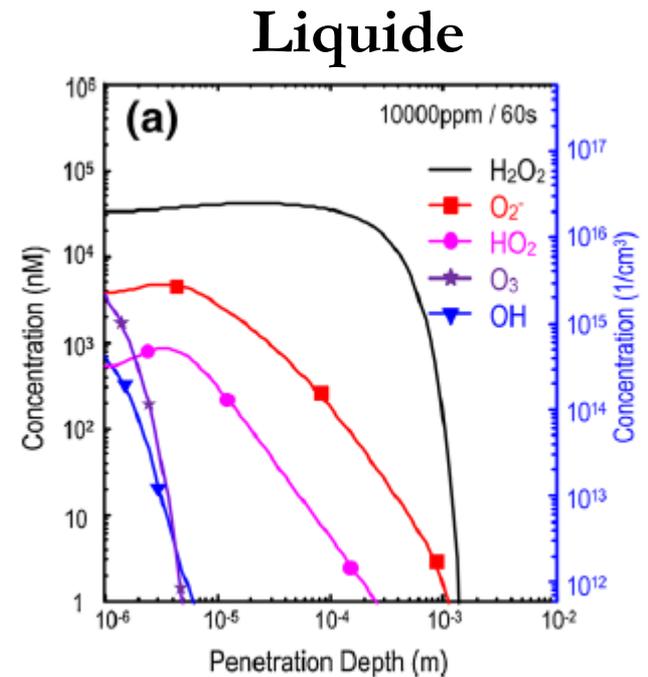
Exemple de découplage

Plasma Chem Plasma Process (2014) 34:403–441
DOI 10.1007/s11090-014-9545-1

Ex de résultat :



O et O₂(a) sont importants



O et O₂(a) sont convertis rapidement (< 1μm)

Exemple de découpage

PCCP

PAPER

View Article Online
View Journal | View Issue

Check for updates

Cite this: *Phys. Chem. Chem. Phys.*,
2019, 21, 12881

Reactivity and stability of plasma-generated oxygen and nitrogen species in buffered water solution: a computational study†

Pepijn Heirman, Wilma Van Boxem and Annemie Bogaerts*

Jet Plasma (KinPen) sur liquide

GAZ + LIQUIDE :

2D modèle fluide transport, chaleur, chimie (COMSOL)

0D Chimie + Energie : ZDPlaskin

INTERFACE :

Loi de Henry

STABILITE DU LIQUIDE

2D modèle fluide transport, chaleur, chimie (COMSOL)

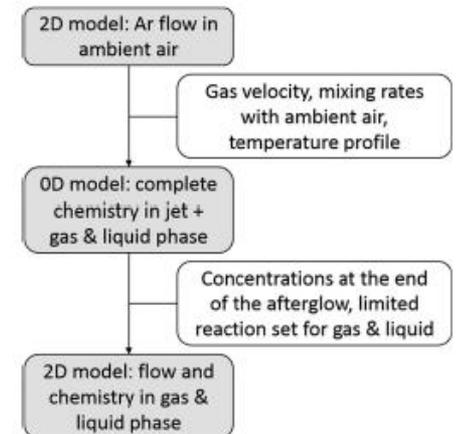
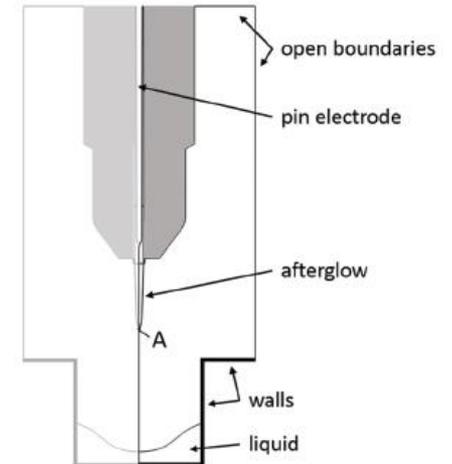


Fig. 2 Overview of the computational flowchart.

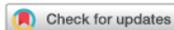
Exemple de découpage

PCCP



PAPER

[View Article Online](#)
[View Journal](#) | [View Issue](#)

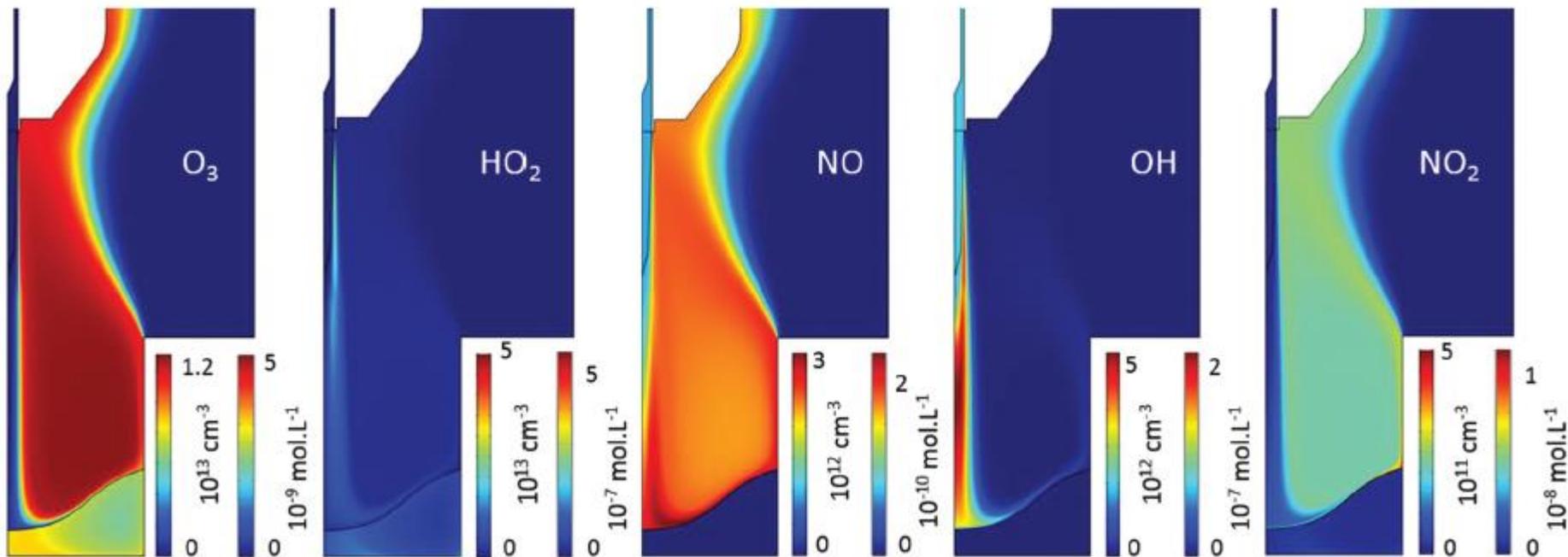


Reactivity and stability of plasma-generated oxygen and nitrogen species in buffered water solution: a computational study†

Cite this: *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2019, 21, 12881

Pepijn Heirman, Wilma Van Boxem and Annemie Bogaerts

Résultats



Validation

- Mesures de $[H_2O_2]$, $[HNO_2]$ et $[HNO_3]$ après traitement de 5 min par kINPens.

PCCP

PAPER

[View Article Online](#)
[View Journal](#) | [View Issue](#)

 Check for updates

Cite this: *Phys. Chem. Chem. Phys.*,
2019, 21, 12881

Reactivity and stability of plasma-generated oxygen and nitrogen species in buffered water solution: a computational study†

Pepijn Heirman, Wilma Van Boxem  and Annemie Bogaerts *

- **Extrapolation linéaire** du modèle 10s => 5 min
- **Sous-estimation** d'un facteur 11, 37 et 73 pour H_2O_2 , HNO_2 et HNO_3
- Limite du modèle d'interface

(μ M)	Exp	Mod
H_2O_2	186	17
HNO_2	57	1.6
HNO_3	11	0.77

Conclusion

DES MODELES

- Pourquoi → *aide aux diagnostics*
- Pour quoi → *aide à la compréhension*
- Comment → *selon les besoins*
- Précaution → *Limitations des modèles*
- Validation → *Indispensable*

- **Modèle ↔ Expérience**

Merci de votre attention!

LSPM - CNRS
Université Paris 13
99 Av J. B Clément
93430 Villetaneuse
France

www.lspm.cnrs.fr

Fax: +33 1 49 40 34 14



ANF Plasma Liquide – Nancy – Juillet 2021

PIC : Contraintes

- Comme toute méthode statistique il faut un grand nombre d'échantillonnage pour s'affranchir du bruit
 - 50 particules par cellules spatiales
 - Pour résoudre la séparation de charge il faut une résolution + fine que la longueur de Debye
 - $dx < \lambda_d$
 - Idem pour le temps
 - $dt < 0.2 \cdot \omega_p$
 - Critère CFL pour suivre les variations de champ
 - $dt < dx / v_{\max}$
 - Il faut respecter les fréquences de collision
 - $dt < 0.1 / \nu$
- > **Calculs peuvent être très longs !**