

RÉPUBLIQUE ALGÉRIENNE DÉMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA
RECHERCHE SCIENTIFIQUE



UNIVERSITÉ FRÈRES MENTOURI, CONSTANTINE
FACULTÉ DES SCIENCES DE LA TECHNOLOGIE
Département d'Électronique



N° d'ordre :

Série :

THÈSE

Présentée pour obtenir le diplôme de Doctorat 3^{ème} cycle
en **Électronique**

Option : **Systemes, procédés et dispositifs pour l'électronique médicale**

Par :

***Mohamed Tahar* BENABBAS**

THÈME :

**Etude et réalisation d'un jet de plasma pour
applications dans le domaine biomédical**

Soutenue le : 26 / 06 / 2018

Devant le jury :

Président :	Azzedine TELIA	Prof. Univ. Frère Mentouri – Constantine
Rapporteur :	Salah SAHLI	Prof. Univ. Frère Mentouri – Constantine
Examineurs :		
	Ammar BENTOUNSI	Prof. Ecole Nationale Polytechnique Constantine
	Noureddine KACEM CHAOUCHE	Prof. Univ. Frère Mentouri – Constantine
	Karim MANSOUR	Prof. Univ. Salah Boubnider – Constantine

*Ce travail de thèse a été réalisé au sein du Laboratoire Microsystèmes et Instrumentation (LMI) sous la direction de Monsieur **Salah SAHLI**, Professeur au département d'Electronique, Université des Frères Mentouri – Constantine. J'aimerais en premier lieu lui exprimer ma profonde gratitude pour la confiance et la liberté d'action qu'il m'a octroyée. Je tiens ensuite à le remercier chaleureusement pour son soutien et pour l'ensemble des conseils précieux qu'il n'a cessé de me prodiguer tout au long de la préparation de ma thèse et pendant les années de ma formation graduée et post-graduée.*

*Je souhaite remercier chaleureusement Monsieur **Azzedine TELIA**, Professeur au département d'Electronique à l'Université des Frères Mentouri – Constantine, de m'avoir fait l'honneur de présider le jury de ma thèse et d'avoir eu la gentillesse d'expertiser mon manuscrit, malgré ses multiples occupations.*

*Je remercie Monsieur **Amar BENTOUNSI**, Professeur à l'Ecole Nationale Polytechnique de Constantine, qui malgré ses lourdes responsabilités a bien voulu accepter de participer à ce jury. Son expérience dans le domaine de la haute tension ne me sera que d'un grand apport pour l'enrichissement de ma thèse.*

*Que Monsieur **Noureddine KACEM CHAOUCHE** Professeur au département de Microbiologie et directeur du Laboratoire de Mycologie, de Biotechnologie et de l'Activité Microbienne (LaMyBAM) à l'Université des Frères Mentouri – Constantine trouve ici l'expression de mes plus vifs remerciements pour son assistance dans la préparation des bactéries et pour les fructueuses et nombreuses discussions sur la thématique des microorganismes vivants que nous avons eu ensemble dans de multiples occasions. Sa présence dans ce jury de thèse m'honore à plus d'un titre et dénote de la multidisciplinarité du sujet traité dans ce travail.*

*Je ne saurais comment exprimer ma gratitude à Monsieur **Karim MANSOUR**, Professeur au département de Chirurgie dentaire de l'Université Salah – Constantine d'avoir bien voulu expertiser ce travail. Qu'il trouve ici l'expression de ma profonde considération pour les efforts qu'il a toujours développés pour plus d'épanouissement aux formations du biomédical. Sa présence dans ce jury haussera sans doute les discussions de nos résultats et leurs potentialités d'applications dans le domaine de la médecine.*

*Un grand merci au Dr. **Mounira KARA ALI** et l'ensemble de l'équipe du Laboratoire de Mycologie, de Biotechnologie et de l'Activité Microbienne (LaMyBAM), Université des Frères Mentouri – Constantine, sous la direction du Prof. **Noureddine KACEM CHAOUCHE**, pour l'accueil chaleureux, les conseils et les bons moments que j'ai vécu durant toute la période de collaboration.*

Mes plus vifs remerciements vont également au Dr. **Zdenko MACHALA**, au Dr. **Mario JANDA** et **Katarína KUČEROVÁ** de la Division of Environmental Physics, Department of Astronomy, Earth Physics and Meteorology, Faculty of Mathematics, Physics and Informatics, Comenius University, Bratislava, Slovakia, pour m'avoir accueilli au sein de leur laboratoire durant toute la période de mon stage et pour m'avoir assisté et mis à ma disposition tous les moyens nécessaires pour la réussite de mon stage.

Je ne saurais oublier Dr. **Constantinos LAZAROU** du Research Center for Sustainable Energy (FOSS), Photovoltaic Technology Laboratory, Department of Electrical and Computer Engineering, University of Cyprus, Nicosia, Cyprus pour sa contribution dans la modélisation sous Comsol des flux de gaz dans le réacteur que nous avons réalisé.

Les échanges que j'ai eu directement ou via internet avec le Prof. **Mounir LAROUSI** de Batten College of Engineering and Technology, Old Dominion University, Virginia, USA, avec le Dr. **Branislav PONGRÁC**, Czech Academy of Sciences, Institute of Plasma Physics, Department of Pulse Plasma Systems, Prague, Czech Republic et avec Dr. **Mohamed Mokhtar HEFNY**, Coupled Plasma-Solid State Systems, Faculty of Physics and Astronomy, Ruhr University Bochum, Bochum, Germany m'ont permis de comprendre beaucoup d'aspects sur les jets de plasmas. Qu'ils trouvent tous ici l'expression de ma reconnaissance et mes remerciements.

Que Monsieur **Smail MOUISSAT** maître assistant au département d'Electronique et Monsieur **Mohamed Taoufik BENHABILES** Professeur au même département, trouvent ici l'expression de mes remerciements pour leur soutien, leurs conseils et leur aide considérables ainsi que pour leurs bonne humeur et gentillesse tout le long des années de la préparation de cette thèse.

Je souhaite aussi exprimer mes remerciements les plus sincères à M^{lle} **Nisreen HAMADA** pour son aide précieuse et sa contribution à la finalisation de ce manuscrit.

Je tiens à saluer tous les membres de l'équipe avec qui j'ai passé d'agréables moments, de connaissances scientifiques avec mes enseignants le Prof. **Azzedine BELLEL**, Prof. **Saida REBIAI**, Prof. **Zehira ZIARI**, Dr. **Mouloud KIHHEL**, Dr. **Abdellah BENHAMOUDA**, de détente dans la bonne humeur avec Dr. **Lyes BENTERROUCHE**, Dr. **Boubakeur Essedik BELKERK**, M^r. **Youcef FERMI**, M^r. **Sofiane BENDILMI**, M^r. **Khalid DALLAH**, M^r. **Housseem Eddine BOUSBA**, et M^r. **Bachir SEDDARI**. Qu'ils sachent tous ici le plaisir que j'ai eu en travaillant à leurs côtés.

Un merci à tous ceux qui ont contribué de près ou de loin à la réalisation de ce travail.

À ma chère mère, pour les sacrifices que tu as pu faire depuis toutes ces années.

À mon cher père, pour les années du travail dure et acharné.

Que Dieu tout puissant vous garde et vous procure santé, bonheur et longue vie.

À mes chères sœurs.

À toute ma famille et mes amis ...

*Idéalement, nous sommes ce
que nous pensons. Dans la
réalité, nous sommes ce que nous
accomplissons.*

‘Ayrton Senna’

Liste des figures

Fig. I.1 Relations entre les différents états de la matière	4
Fig. I.2 Température électronique en fonction de la densité des électrons dans différents types de plasmas	5
Fig. I.3 L'appareil de génération de décharge électrostatique de <i>Francis Hauksbee</i>	6
Fig. I.4 Générateur d'ozone par <i>Ernst Werner von Siemens</i>	7
Fig. I.5 Générateur de rayons violets.	8
Fig. I.6 Caractéristique $I(V)$ pour une décharge à basse pression (<i>Townsend</i>) et à haute pression (<i>Streamer</i>)	10
Fig. I.7 Création et propagation d'un streamer positif	11
Fig. I.8 Création et propagation d'un streamer négatif.....	11
Fig. I.9 Différentes configurations de réacteurs pour génération de jets de plasmas	14
Fig. I.10 Image du dispositif kINPen MED.....	15
Fig. I.11 Image du dispositif PlasmaJet.....	16
Fig. I.12 Image du dispositif Plasmacure	16
Fig. II.1 Schéma synoptique du générateur haute tension alternative mis en place	22
Fig. II.2 Photo du générateur de fonctions MCP SG1641A.....	23
Fig. II.3 Photo de l'amplificateur de puissance PSS 500 seul (a) et connecté au générateur de fonction MCP SG1641A (b).....	23
Fig. II.4 Banc mis en place pour la génération de haute de tension alternative pour l'excitation électrique du plasma	24
Fig. II.5 Variation de la tension V_{pp} au secondaire en fonction de la fréquence dans le cas d'une amplification avec transformateur à noyau de fer (a) : Sans charge, (b) : Avec charge.....	24
Fig. II.6 Variation de la tension V_{pp} obtenue au secondaire en fonction de la tension au primaire pour différentes valeurs de la fréquence dans le cas d'une amplification avec transformateur à noyau de fer (a) : Sans charge, (b) : Avec charge	25

Fig. II.7 Variation de la tension V_{pp} au secondaire en fonction de la fréquence dans le cas d'une amplification avec transformateur à noyau de ferrite (a) : Sans charge, (b) : Avec charge.....	26
Fig. II. 8 Variation de la tension V_{pp} obtenue au secondaire en fonction de la tension au primaire pour différentes valeurs de la fréquence dans le cas d'une amplification avec transformateur à noyau de ferrite (a) : Sans charge, (b) : Avec charge.....	26
Fig. II.9 Photo du générateur impulsionnel Redline G2000.....	27
Fig. II.10 Photo de l'oscilloscope Tektronix TDS 2024C.....	28
Fig. II.11 Photo de la sonde de HT Tektronix P6015A	29
Fig. II.12 Spectre électromagnétique	30
Fig. II.13 Photo (a) et schéma de l'intérieur (b) du spectromètre d'émission optique Ocean Optics HR 2000+ES (1 : Connecteur SMA ; 2 : Fente ; 3 : Filtre ; 4 : Miroir de collimation ; 5 : Réseau de diffraction ; 6 : Miroir de focalisation ; 7 : Lentille collectrice ; 8 : Détecteur (CCD).....	31
Fig. II.14 Photos de la lentille de collimation 74 UV-VIS (a) et de la fibre optique de type QR-400-7-SR (b).....	32
Fig. II.15 Schéma du principe de fonctionnement d'un spectrophotomètre d'absorption moléculaire	32
Fig. II.16 Photo du spectrophotomètre UV-Visible Shimadzu UV-1800.....	34
Fig. II.17 Photo du pH mètre Hanna HI 991001 avec la sonde HI1296D.....	36
Fig. III.1 Géométrie du tube de verre borosilicate formant la barrière diélectrique et l'ossature du réacteur.....	40
Fig. III.2 Photos montrant l'enroulement de l'électrode externe du réacteur autour de la gorge du tube de verre borosilicate.....	41
Fig. III.3 Photo de l'ossature du réacteur faisant apparaître la résine enrobant l'électrode externe	41
Fig. III.4 Photo montrant deux enroulements de rubans en PTFE, utilisés pour centrer l'électrode interne (tube en acier inox) dans le tube de verre borosilicate	42
Fig. III. 5 Photos du réacteur du jet de plasma muni du tube de verre permettant sa manipulation d'une manière sécurisée	42
Fig. III.6 Banc mis en place pour la création du jet de plasma avec une excitation AC.....	43
Fig. III.7 Courbe théorique de <i>Lissajous</i> pour une décharge plasma	45

Fig. III.8 Schéma du circuit électrique équivalent d'un réacteur avec une barrière diélectrique	45
Fig. III.9.a Effet de la tension d'excitation du jet de plasma sur la forme des courbes de Lissajous : (a) : $f = 4$ kHz, (b) : $f = 27$ kHz.....	47
Fig. III.9.b Effet de la fréquence du signal d'excitation du jet de plasma sur la forme des courbes de Lissajous : (a) $V = 6$ kV, (b) : $V = 9$ kV	47
Fig. III.10 Variation de la puissance consommée en fonction de la tension appliquée pour différentes fréquences.....	47
Fig. III.11 Variation de la puissance consommée en fonction de la fréquence pour différentes les tensions appliquées	48
Fig. III.12 Evolution de la puissance en fonction du couple tension – fréquence	49
Fig. III.13 Variation de la tension de claquage en fonction de la tension appliquée	50
Fig. III.14 Allure du courant de décharge pour différentes valeurs de la fréquence du signal d'excitation. (a) : $f = 4$ kHz, (b) : $f = 8$ kHz, (c) : $f = 21$ kHz, (d) : $f = 27$ kHz	52
Fig. III.15 Influence de la tension appliquée sur le temps d'apparition des pics de courant pour des fréquences fixes. (a) : $f = 4$ kHz, (b) : $f = 8$ kHz, (c) : $f = 21$ kHz, (d) : $f = 27$ kHz	53
Fig. III.16 Influence de la fréquence sur le temps d'apparition des pics de courant pour des tensions fixes. (a) : $V = 6$ kV, (b) : $V = 7$ kV, (c) : $V = 8$ kV, (d) : $V = 9$ kV	54
Fig. III.17 Photos de la géométrie du jet de plasma pour une puissance de (a) 0,115 W (7kV, 4 kHz) et (b) 1,12 W (9 kV, 27 kHz), montrant l'apparition d'une zone de turbulence lorsque la puissance du plasma est suffisamment élevée	55
Fig. III.18 Variation de la longueur du jet de plasma en fonction de la variation de la tension AC appliquée.....	55
Fig. III.19 Variation de la longueur du jet de plasma en fonction de la variation de la fréquence du signal appliquée.....	56
Fig. III.20 Effet de la tension d'excitation AC du plasma sur l'évolution de la longueur du jet de plasma en fonction du flux d'hélium (a) ou d'argon (b) par Li <i>et al</i>	56
Fig. III.21 Aspect du jet de plasma généré à 6 kV (a) et 9 kV (b) à une fréquence de 5 kHz.....	58
Fig. III.22 Variation de la longueur du jet en fonction de la variation de la tension impulsionnelle appliquée.....	58

Fig. III.23 Géométrie du jet de plasma généré à : (a) 5 kHz, (b) 25 kHz, (c) 50 kHz pour une tension de 9 kV..... 59

Fig. III.24 Variation de la longueur du jet en fonction de la variation de la fréquence du signal appliquée..... 60

Fig. III.25 Effet d'une tension d'excitation impulsionnelle sur la variation de la longueur du jet de plasma d'hélium généré par Xiang *et al.*..... 60

Fig. III.26 Evolution de la longueur du jet en fonction de la variation du couple tension –fréquence 61

Fig. III.27 Simulation par le logiciel Comsol de l'intensité du champ électrique (a : alternance positive) et (b : alternance négative) et de la haute tension (c : alternance positive) (d : alternance négative) dans le cas où l'électrode interne est reliée à la haute tension, l'électrode externe à la masse 63

Fig. III.28 Simulation par le logiciel Comsol de l'intensité du champ électrique (a : alternance positive) et (b : alternance négative) et de la haute tension (c : alternance positive) (d : alternance négative) dans le cas où l'électrode interne est reliée à la masse et l'électrode externe à la haute tension 64

Fig. III.29 Banc mis en place pour la caractérisation optique du jet de plasma .. 65

Fig. III.30 Spectre d'émission optique enregistré du jet de plasma créé dans un flux d'argon de 3 l/min avec une tension de 9 kV à 8 kHz..... 66

Fig.III.31 Spectres d'émission du jet de plasma généré avec un signal AC d'une fréquence de 8 kHz et d'une amplitude de (a) : 6 kV et (b) : 9 kV 69

Fig. III.32 Variation de l'intensité des raies d'émission optique de l'hydroxyle, du deuxième système positif de l'azote et de l'oxygène en fonction de la tension AC appliquée pour $f = 8$ kHz..... 69

Fig. III.33 Evolution des raies d'émission optique de l'hydroxyle et du deuxième système positif de l'azote d'un jet de plasma créé dans l'hélium à pression atmosphérique avec une excitation AC trouvé par Cheng *et al.*..... 70

Fig. III.34 Spectres d'émission du jet de plasma généré avec un signal AC d'une fréquence de 27 kHz et d'une amplitude de (a) : 6 kV et (b) : 9 kV 70

Fig. III.35 Variation de l'intensité des raies d'émission optique de l'hydroxyle, du deuxième système de l'azote et de l'oxygène en fonction de la tension AC appliquée pour $f = 27$ kHz 71

Fig. III.36 Spectres d'émission du jet de plasma généré avec un signal AC d'une amplitude de 6 kV et d'une fréquence de (a) : 4 kHz et (b) : 27 kHz..... 72

Fig. III.37 Variation de l'intensité des raies d'émission optique de l'hydroxyle, du deuxième système positif de l'azote et de l'oxygène en fonction de la fréquence du signal d'excitation pour $V = 6$ kV 72

Fig. III.38 Spectres d'émission du jet de plasma généré avec un signal AC d'une amplitude de 9 kV et d'une fréquence de (a) : 4 kHz et (b) : 27 kHz.....	73
Fig. III.39 Variation de l'intensité des raies d'émission optique de l'hydroxyle, du deuxième système positif système de l'azote et de l'oxygène en fonction de la fréquence du signal d'excitation pour $V = 9$ kV.....	73
Fig. III.40 Photos du jet de plasma montrant son aspect très intense pour des fortes valeurs de tension AC (a) : 21 kHz / 8,5 kV (0,864 watt), (b) 24 kHz / 9 kV (1,07 watt)	75
Fig. III.41 Image de synthèse montrant la propagation d'un boulet de plasma dans notre jet créé dans un flux d'argon à pression atmosphérique	76
Fig. III.42 : Photos de la propagation d'un boulet de plasma dans un jet créé dans l'hélium par Liu <i>et al.</i>	77
Fig. III.43 : Spectres d'émission du jet de plasma d'argon généré par un signal impulsionnel d'une fréquence de 10 kHz et d'une amplitude de (a) : 6 kV et (b) : 9 kV.....	78
Fig. III.44 Variation de l'intensité des raies d'émission optique de l'hydroxyle, du deuxième système positif de l'azote et de l'oxygène en fonction de la tension impulsionnel appliquée pour (a) : $f = 10$ kHz, (b) : $f = 20$ kHz.....	78
Fig. III.45 Spectres d'émission du jet de plasma d'argon généré par un signal impulsionnel d'une amplitude de 6 kV et d'une fréquence de (a) : 5 kHz et (b) : 25 kHz.....	79
Fig. III.46 Variation de l'intensité des raies d'émission optique de l'hydroxyle, du deuxième système positif de l'azote et de l'oxygène en fonction de la fréquence du signal d'excitation impulsionnel pour (a) : $V = 6$ kV, (b) : $V = 9$ kV	80
Fig. IV.1 Structure de la paroi d'une bactérie à Gram positif.....	87
Fig. IV.2 Structure de la paroi d'une bactérie à Gram négatif.....	87
Fig. IV.3 Image de microscopie électronique à balayage d'une culture de bactéries <i>E. coli</i> NCTC 12900	88
Fig. IV.4 Photos de la culture de la bactérie <i>E. coli</i> avant (a) et après son exposition pendant 10 min (b) à un jet de plasma d'argon créé à pression atmosphérique et positionné à une distance $d = 20$ mm	90
Fig. IV.5 Effet d'un champ électrique sur la paroi d'un microorganisme.....	96
Fig. IV.6 Schéma représentant l'effet des UV sur l'ADN.....	97
Fig. IV.7 Schéma du processus de destruction de la bactérie lors de leur interaction avec les ROS.....	98

Fig. IV.8 Effet de la variation du temps d'exposition d'une culture de bactéries *E. coli* à un jet de plasma positionné à une distance $d = 20$ mm de la surface de la culture sur l'efficacité du traitement. (a : échantillon témoin, b : 2 min, c : 4 min, d : 6 min, e : 8 min, f : 10 min) 99

Fig. IV.9 Evolution de la surface de la zone d'inactivation en fonction de la durée de l'exposition au jet de plasma..... 99

Fig. IV.10 : Effet du temps d'exposition de cultures de bactéries de type *Bacillus subtilis* à un plasma microonde faible pression créé dans une pression d'argon seul ou en mélange avec de l'oxygène. (a) : Moisan *et al.*, (b) : Moreau *et al.*..... 100

Fig. IV.11 Photos montrant l'effet de la variation de la distance d séparant la source du jet de plasma de la surface de la culture de *E. coli* (durée d'exposition : 10 min). (a : échantillon témoin, b : 2 cm, c : 2.5 cm, d : 3 cm, e : 3.5 cm, f : 4 cm) 101

Fig. IV.12 Evolution de la surface de la zone d'inactivation en fonction de la distance d séparant la source du jet de plasma de la surface de la surface traitée (durée d'exposition : 10 min)..... 102

Fig. IV.13 Variation du pH de l'eau déminéralisée après son exposition à un flux d'argon sans plasma et à un jet de plasma créé dans le même flux 103

Fig. IV.14 Variation de la concentration de H₂O₂, dans l'eau traitée en fonction du temps de traitement par le jet de plasma..... 105

Fig. IV.15 Variation de la concentration de nitrite NO₂⁻ dans l'eau traitée en fonction du temps de traitement par le jet de plasma 105

Fig. IV.16 Effet du jet de plasma sur la variation de la concentration d'ozone dans l'eau traitée 106

Fig. IV.17 Variation du logarithme du taux de réduction de la charge bactérienne en fonction de temps de traitement 107

Liste des tableaux

Tab. II.1 Caractéristiques du générateur Redline G2000.....	28
Tab. II.2 Caractéristiques techniques du spectrophotomètre Ocean Optics HR 2000 + ES.....	31
Tab. III.3 Assignation des raies d'émission optique du spectre enregistré	66
Tab. IV.1 Dérivés réactifs de l'oxygène (ROS).....	91
Tab. IV.2 Dérivés réactifs de l'azote (<i>RNS</i>).....	92

Table des matières

Remerciements	I
Dédicaces	III
Liste des figures	V
Liste des tableaux	XI
Table des matières	XII
Introduction générale	1
Chapitre I : Généralités sur les décharges plasmas et leurs applications en biomédecine	
Introduction	4
I.1 Généralité sur les plasmas	4
I.2 Bref historique sur les plasmas	5
I.3 Les décharges plasmas à pression atmosphérique	9
I.3.1 Claquage de type Streamer	9
I.3.2 Mécanisme de création d'un filament.....	10
<i>I.3.2.1 L'avalanche électronique primaire</i>	10
<i>I.3.2.2 Formation de streamers</i>	10
<i>I.3.2.3 Formation du filament</i>	12
I.4 Les jets de plasma atmosphériques	12
I.4.1 Classification des jets de plasma	12
<i>I.4.1.1 Classification selon la température</i>	12
<i>I.4.1.2 Classification selon le mode d'excitation</i>	12
I.4.2 Jet de plasma froid à couplage capacitif.....	12
I.4.3 Différentes configurations de réacteurs	13
I.5 Exemples d'applications des plasmas dans le domaine biomédical.....	15
I.5.1 Quelques applications en médecine.....	15
I.5.2 Applications pour la sécurité alimentaire.....	17
Conclusion	17
Références chapitre I	18

Chapitre II : Techniques et dispositifs d'analyses utilisés

Introduction	22
II.1 Générateurs de haute tension utilisés pour l'excitation électrique du jet de plasma.....	22
II.1.1 Générateur de haute tension AC	22
II.1.1.1 Génération du signal AC	22
II.1.1.2 Amplification basse tension	23
II.1.1.3 Amplification haute tension	23
II.1.1.3.a Amplification de la tension par un transformateur à noyau de fer.....	24
II.1.1.3.b Amplification de la tension par un transformateur à noyau de ferrite	25
II.1.2 Générateur Redline G2000	27
II.2 Bancs de caractérisation électrique et optique du jet de plasma	28
II.2.1 Bancs de mesure de la tension, du courant et de la puissance électriques	28
II.2.2 Banc de spectroscopie d'émission optique.....	29
II.2.2.1 Principe de la spectroscopie d'émission optique.....	29
II.2.2.2 Equipements utilisés.....	30
II.3 Bancs de caractérisation chimique.....	32
II.3.1 Spectroscopie d'absorption moléculaire	32
II.3.1.1 Principe de fonctionnement	32
II.3.1.2 Loi de Beer-Lambert.....	33
II.3.1.3 Equipements utilisés.....	33
II.3.2 Mesure du potentiel hydrogène	34
II.3.2.1 Principe de fonctionnement d'un pH mètre	35
II.3.2.2 Appareil de pH utilisé.....	36
Conclusion	37
Références chapitre II	38

Chapter III : Caractérisation électrique et optique du jet de plasma créé dans l'argon

Introduction	39
III.1 Réalisation du réacteur pour la génération du jet de plasma à pression atmosphérique	39
III.1.1 Barrière diélectrique du réacteur	39
III.1.2 Electrodes du réacteur	40
III.1.3 Réalisation des isolations électriques pour la manipulation du réacteur.....	42
III.2 Caractérisation électrique du jet de plasma	42
III.2.1 Etude de la puissance consommée par le jet de plasma.....	43
<i>II.2.1.1 Puissance instantanée et puissance moyenne.....</i>	<i>43</i>
<i>II.2.1.2 Mesure de la puissance par la méthode Manely.....</i>	<i>44</i>
<i>II.2.1.3 Effet de la tension appliquée et de sa fréquence sur la variation de la puissance</i>	<i>46</i>
<i>II.2.1.4 Effet de la tension appliquée et de sa fréquence sur la tension de claquage.....</i>	<i>49</i>
III.2.2 Etude du courant de décharge.....	51
III.2.3 Effet des paramètres électriques sur la géométrie du jet.....	54
<i>II.2.3.1 Effet de la tension et de la fréquence</i>	<i>54</i>
<i>II.2.3.1.a Cas d'une excitation électrique de type AC.....</i>	<i>54</i>
<i>II.2.3.1.b Cas d'une excitation électrique de type impulsionnel... 57</i>	<i>57</i>
<i>II.2.3.2 Effet de la polarisation des électrodes.....</i>	<i>62</i>
III.3 Caractérisation optique du jet de plasma	65
III.3.1 Description du spectre typique de l'émission optique du jet de plasma d'argon	65
III.3.2 Effet de la variation de la tension et de la fréquence du signal d'excitation sur le spectre d'émission optique	68
<i>II.3.2.1 Cas d'un jet de plasma d'argon excité par un signal électrique de type AC.....</i>	<i>68</i>
<i>II.3.2.1.a Effet de la variation de l'amplitude de la tension d'excitation.....</i>	<i>68</i>
<i>II.3.2.1.b Effet de la variation de la fréquence du signal d'excitation</i>	<i>71</i>

<i>II.3.2.2 Cas d'un jet de plasma d'argon excité par un signal électrique de type impulsionnel</i>	77
<i>II.3.2.2.a Effet de la variation de l'amplitude de la tension d'excitation</i>	77
<i>II.3.2.2.b Effet de la variation de la fréquence du signal d'excitation</i>	79
Conclusion	81
Références chapitre III	82
Chapter IV: Application du jet de plasma d'argon pour l'inactivation de la bactérie <i>E. coli</i>	
Introduction	86
IV.1 Choix du microorganisme traité par le jet de plasma	86
IV.1.1 Classification selon la coloration de gram.....	86
IV.1.2 Choix du microorganisme.....	88
IV.2 Inactivation des bactéries sur une surface solide.....	89
IV.2.1 Préparation des échantillons.....	89
IV.2.2 Effet de l'exposition de la bactérie <i>E. coli</i> au jet de plasma.....	89
<i>IV.2.2.1 Les dérivés réactifs d'oxygène et d'azote</i>	91
<i>IV.2.2.2 Les espèces chargées</i>	94
<i>IV.2.2.3 Le champ électrique</i>	95
<i>IV.2.2.4 Les photons UV</i>	96
IV.2.3 Effet de la durée de l'exposition au jet de plasma sur l'inactivation de la bactérie <i>E. coli</i>	98
IV.2.4 Effet de la variation de la distance séparant la source du jet de plasma de la surface des échantillons sur l'inactivation de la bactérie	101
IV.3 Interaction jet de plasma – liquide	102
IV.3.1 Effet du jet de plasma sur une eau déminéralisée	103
<i>IV.3.1.1 Effet du jet de plasma sur le pH de l'eau déminéralisée</i>	103
<i>IV.3.1.2 Effet du jet de plasma sur la composition de l'eau déminéralisée</i>	104
IV.3.2 Effet du jet de plasma sur l'inactivation de la bactérie <i>E. coli</i> dans le milieu liquide (eau déminéralisée)	106
<i>IV.3.2.1 Préparation des échantillons de test</i>	106

<i>IV.3.2.2 L'effet du jet de plasma</i>	106
Conclusion	107
Références chapitre IV	108
Conclusion générale	111
Liste des travaux	113

Introduction générale

Depuis plusieurs décennies les plasmas froids sont appliqués dans la plupart des domaines technologiques, s'étendant de la métallurgie, l'industrie des polymères et du textile, aux industries de l'optique et de la microélectronique. Plus récemment et depuis près de trois décennies, des travaux ont été menés dans le but de développer leur utilisation dans le domaine biologique et notamment pour la stérilisation [1]. Les travaux qui avaient été menés dans ce contexte ont permis par la même occasion de révéler des potentialités intéressantes des plasmas froids pour des applications dans le domaine biomédical comme une alternative à certaines techniques conventionnelles [2 – 3]. Grâce à leur facilité d'utilisation et leur relative sécurité que ce soit vis-à-vis du manipulateur ou du sujet traité, un intérêt particulier pour l'application des plasmas dans le domaine du biomédical s'est alors développé, amenant à l'émergence d'une nouvelle discipline scientifique appelée "*Plasma Medicine*", faisant intervenir des spécialistes des plasmas et des spécialistes du domaine médical et/ou de la biologie.

Dans le domaine des applications médicales des plasmas, l'un des aspects les plus explorés est le développement des sources de plasma plus adaptées aux exigences liées à leurs applications sur les êtres vivants en général et à l'être humain en particulier. Parmi ces sources, les jets de plasma à pression atmosphérique (APPJ) sont les plus prometteurs et ce, grâce à leur manipulation relativement aisée dans des conditions ambiantes, sans risques significatifs pour l'opérateur ainsi que pour l'environnement et à leur potentiel d'utilisation pour un traitement localisé. En effet, la taille d'un jet de plasma peut être modulée et une petite section peut être facilement produite, permettant alors un traitement très localisé. Les jets de plasma sont créés à pression atmosphérique et sont capables de produire de multiples espèces à forts effets bactéricides, utiles pour le traitement des cellules biologiques. Ces espèces peuvent être des rayonnements UV [4], des particules chargées, des espèces réactives de l'oxygène (ROS) et des espèces réactives de l'azote (RNS) [5]. Elles peuvent endommager les cellules vivantes en affectant leur structure et / ou leur ADN conduisant ainsi à leur destruction [6 – 7].

L'objectif principal de cette thèse de doctorat est la conception et la réalisation d'un banc pour la création de jets de plasmas à pression atmosphérique dans un flux de gaz approprié, en vue de son utilisation dans le domaine biomédical telle que la stérilisation et/ou les traitements thérapeutiques. De ce fait, dans un premier temps nous avons mis en place un générateur de haute tension alternative (banc AC) capable de générer des signaux de plusieurs kilovolts à des fréquences variables dans le domaine audio et nous avons réalisé un réacteur de plasma à barrière diélectrique (DBD) de symétrie cylindrique à électrode concentrique. En utilisant de l'argon comme gaz précurseur, nous avons appliqué le banc AC que nous avons mis en place ainsi qu'un banc commercial permettant de délivrer un signal électrique impulsionnel pour générer un jet de plasma dans l'air à pression

Introduction générale

atmosphérique de plusieurs centimètres de longueur. Les propriétés électriques et géométriques du jet de plasma ainsi que la nature des espèces qu'il permet de générer ont été analysées et leur dépendance vis-à-vis des paramètres du signal électrique AC ou impulsionnels permettant l'excitation du plasma a été étudiée.

Dans un deuxième temps, avec la collaboration de collègues biologistes, nous avons appliqué notre jet de plasma créé dans un flux d'argon à la pression atmosphérique, au traitement d'une bactérie de type *Escherichia coli* (*E. coli*)ensemencée dans une culture étalée sur une boîte de pétri ou diluée dans un milieu liquide. L'effet de la variation des paramètres du signal électriques d'excitation du jet de plasma sur son efficacité dans la désactivation des bactéries a été étudié sur ces deux types de milieux (surfaces solides et milieu aqueux contaminé par la bactérie *E. coli*).

L'ensemble des résultats que nous avons obtenus dans le cadre de ce travail de recherche ont été rassemblés dans un manuscrit que nous avons structuré en quatre chapitres.

Le premier chapitre sera consacré à des rappels succincts sur les plasmas froids et plus particulièrement les plasmas atmosphériques, leurs modes de création ainsi que certaines de leurs caractéristiques. Nous insisterons sur les jets de plasmas créés dans l'air à pression atmosphérique et nous présenterons quelques dispositifs de plasmas développés pour des applications en médecine et mis sur le marché durant la dernière décennie.

Dans le deuxième chapitre nous présenterons les différents appareils et instruments que nous avons utilisés au cours de ce travail pour la génération du jet de plasma, la caractérisation électrique du signal d'excitation ainsi que la caractérisation de l'émission optique du jet de plasma.

Le troisième chapitre sera consacré à la présentation du banc de jet de plasma que nous avons réalisé et aux résultats de la caractérisation électrique et optique du jet de plasma qu'il permet de générer. Nous commencerons par donner quelques précisions sur la géométrie du réacteur, puis nous donnerons quelques-unes des caractéristiques géométriques, électriques et d'émission optique du jet de plasma créé. La dépendance de ces caractéristiques à la variation des paramètres électriques du signal d'excitation du plasma sera présentée et discutée en se référant aux récents résultats de la littérature.

Dans le quatrième chapitre nous présenterons les résultats de l'effet du traitement par notre jet de plasma sur la bactérie *E. coli* cultivée sur une surface solide et présente dans un milieu aqueux. Nous étudierons l'effet de la variation des paramètres électriques du signal

d'excitation du jet de plasma sur son efficacité vis-à-vis de l'inactivation du microorganisme traité.

Nous terminerons notre manuscrit par la conclusion générale que nous avons déduite de notre étude et nous donnerons quelques-unes des perspectives permettant d'entrevoir les résultats que nous avons obtenus dans le cadre de cette thèse.

Références

- [1] L. Benterrouche, S. Sahli, S. Rebiai, A. Benhamouda, “*Inactivation of E. Coli bacteria by atmospheric dielectric barrier discharge*”, International Journal of Nanotechnology, 10(5/6/7), (2013), pp.543–552.
- [2] X. Han, M. Klas, Y. Liu, M. Stack, S. Ptasińska, “*DNA damage in oral cancer cells induced by nitrogen atmospheric pressure plasma jets*”, Applied Physics Letters, 102(23), (2015), pp.233703.
- [3] J. Jiang *et al.*, “*Effect of cold plasma treatment on seed germination and growth of wheat*”, Plasma Science and Technology, 16(1), (2014), pp.54–58.
- [4] S. Schneider *et al.*, “*Separation of VUV/UV photons and reactive particles in the effluent of a He/O₂ atmospheric pressure plasma jet*”, Journal of Physics D: Applied Physics, 44(29), (2011), pp.295201.
- [5] X. Lu *et al.*, “*The roles of the various plasma agents in the inactivation of bacteria*”, Journal of Applied Physics. 104(5), (2008), pp.053309.
- [6] J. W. Lackmann, S. Schneider, F. Narberhaus, J. Benedikt, J. E. Bandow, “*Characterization of damage to bacteria and bio-macromolecules caused by (V) UV radiation and particles generated by a Microscale atmospheric pressure plasma jet*”. In: Z. Machala, K. Henkel, Y. Akishev (Eds) Plasma for Bio-Decontamination, Medicine and Food Security. NATO Science for Peace and Security Series A: Chemistry and Biology, (2011), pp.17–29.
- [7] J. S. Sousa, P. M. Girard, E. Sage, J. L. Ravanat, V. Puech, “*DNA oxidation by Reactive oxygen species produced by atmospheric pressure Microplasmas*”. In Z. Machala, K. Henkel, Y. Akishev (Eds) Plasma for Bio-Decontamination, Medicine and Food Security. NATO Science for Peace and Security Series A: Chemistry and Biology, (2011), pp.107–119.

Chapitre I

*Généralités sur les décharges plasmas et
leurs applications en biomédecine*

Introduction

Dans ce premier chapitre, nous allons introduire les différentes notions de base nécessaires pour la compréhension de la suite de notre travail en commençant par la description des plasmas, leurs caractéristiques, leurs différentes applications tout en se concentrant sur les jets de plasmas à pression atmosphérique.

I.1 – Généralité sur les plasmas

L'état plasma, connu comme le quatrième état de la matière, est l'état le plus présent dans l'univers. En effet, on estime que 99 % de ce dernier est constitué de plasma bien qu'à l'échelle humaine, cet état est rarement croisé dans la nature. On trouve de la matière sous forme de plasma au niveau de l'atmosphère (faible quantité), dans les aurores boréales, la foudre ou les flammes à haute température.

Le plasma est obtenu après l'ionisation de la matière sous sa forme gazeuse ; c'est le seul état qu'on ne peut obtenir qu'après le passage par la phase gazeuse contrairement aux trois autres états classiques de la matière dont il est possible de passer de la phase solide à la phase gazeuse et vice versa sans passer par l'état liquide (Fig. I.1).

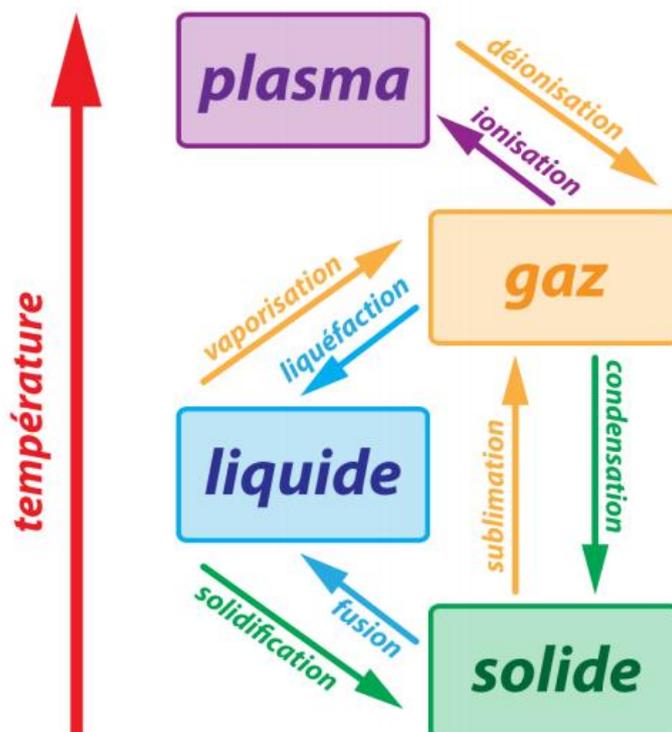


Fig. I.1 : Relations entre les différents états de la matière [1].

Composé d'électrons, d'ions et parfois des neutres, le plasma est obtenu en utilisant des sources d'énergie différentes telle que la chaleur (les flammes à haute température), la lumière (les lasers), le champ électrique ou le champ magnétique. On distingue deux types

de plasmas : les plasmas thermiques dits aussi chauds et les plasmas froids. La différence entre ces deux types de plasma est le taux d'ionisation représenté par le coefficient α s'écrivant :

$$\alpha = \frac{n_e}{n_e + n_n} \quad (\text{I. 1})$$

Les plasmas froids sont des plasmas partiellement ionisés avec un coefficient d'ionisation très faible ($\alpha \ll 1$), ce qui implique la présence de neutres avec une densité n_n très supérieure à celle des électrons n_e et une température électronique très supérieure à celle du gaz ($T_{\text{elec}} \gg T_{\text{gaz}}$). Dans ce cas on dit que le plasma est en hors équilibre thermodynamique. Contrairement aux plasmas froids, les plasmas chauds sont totalement ionisés ($\alpha \approx 1$) et la température du gaz est très proche de la température électronique ($T_{\text{elec}} \approx T_{\text{gaz}}$) [2]. Sur la figure I.2 nous avons représenté la variation de la température électronique de différentes classes de plasma en fonction de leur densité électronique.

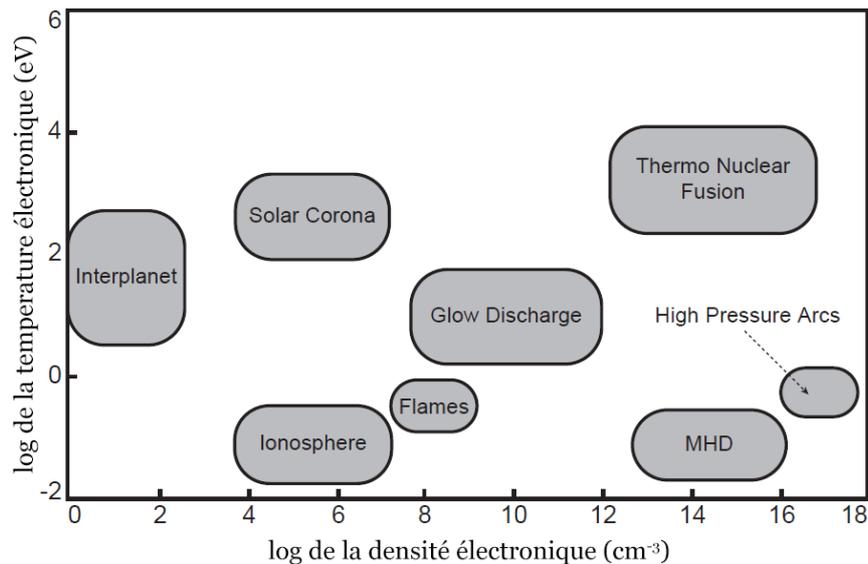


Fig. I.2 : Température électronique en fonction de la densité des électrons dans différents types de plasmas [3].

I.2 – Bref historique sur les plasmas

Les décharges électriques et leurs applications sont connues depuis des siècles. Un des premiers dispositifs capables de créer une décharge électrique est celui du physicien britannique *Francis Hauksbee, the Elder (1660–1713)* découvert en 1705 [4]. L'appareil (Fig. I.3) est constitué d'une sphère en verre qui peut être tournée par le biais d'une roue sur un axe creux connecté à la sphère. L'une des extrémités de cet axe est connectée à une vanne tandis que l'autre est connectée à une pompe à vide, une lueur apparut quand il tourna la sphère dans l'obscurité en la frottant avec sa main nue.

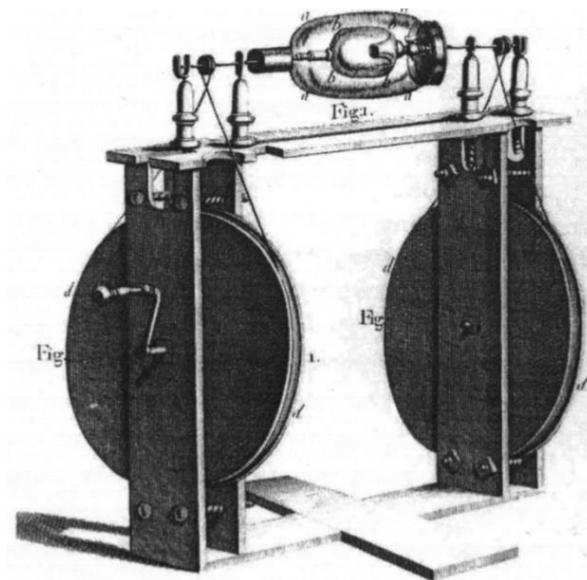


Fig. I.3 : L'appareil de génération de décharge électrostatique de *Francis Hauksbee* [4].

L'une des premières décharges électriques à pression atmosphérique est celle découverte en 1734 par le scientifique britannique *Stephen Gray* (1666 – 1736) ; il décrit un stylo de lumière électrique (*pencil of electric light*) [4] connu de nos jours sous le nom de décharge couronne (*Corona Discharge*). Aux alentours de 1745, la bouteille de Leyde (*Leyden Jar*) fut son apparition. Une configuration basée sur cette dernière a permis à *Joseph Priestley* (1733 – 1804) de découvrir en 1766 le phénomène de l'érosion créée par une décharge électrique [5] puis en 1775, *Alessandro Volta* (1745 – 1827) a utilisé la même technique pour graver une plaque qu'il a envoyé à *Joseph Priestley* [5]. Le grand intérêt donné à l'électricité et ses applications durant le 18^{ème} siècle poussa le scientifique néerlandais *Martin van Marum* (1750 – 1837) à embaucher l'anglais *John Cuthbertson* (1743 – 1821), fabricant d'instruments pour construire une machine gigantesque capable de produire de l'électricité électrostatique en utilisant 100 bouteilles de Leyde [6]. Durant ses expériences sur les décharges électriques en présence de l'Oxygène, il décrivit ainsi la présence d'une odeur qui appela l'odeur de l'électricité (*Odor of Electricity*) [6]. Cette odeur qui entourait les décharges électriques dans l'air était associée au nouveau composé chimique identifié en 1838 par l'allemand *Christian Friedrich Schönbein* (1799 – 1868) qui lui donna le nom de l'Ozone et dont la composition chimique a été déterminée plus tard par *Jacques-Louis Soret* (1827 – 1890) [7]. En 1857 le premier générateur d'ozone fut son apparition, mis au point par *Ernst Werner von Siemens* (1816 – 1892) (Fig. I.4) [8] en exploitant le transformateur de haute tension inventé par l'allemand *Heinrich Daniel Ruhmkorff* (1803 – 1877).

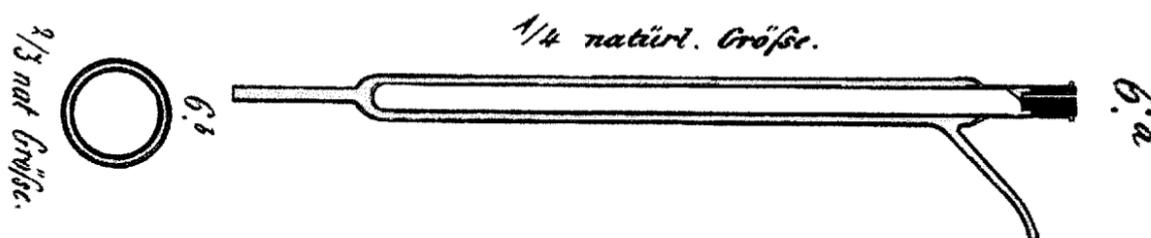


Fig. I.4 Générateur d’ozone par *Ernst Werner von Siemens* [8].

Le générateur d’ozone de Siemens était capable de créer une décharge à barrière diélectrique (*Dielectric Barrier Discharge*) appelée quelques années plus tard par *Thomas Andrews* et *Peter Guthrie Tait* “*Silent Discharg*” ou décharge silencieuse [9]. En réalité c’est le français *Théodose Du Moncel* (1821 – 1884) qui a été le premier à utiliser la bobine de *Ruhmkorff* pour créer une décharge silencieuse vers 1853 [10] ; il a utilisé deux feuilles d’étain dont chacune était recouverte par une plaque de verre avec un gap de 2 cm. il constata la création de ce qu’il appela “*flux lumineux bleuâtre*” ou “*pluie de feu de couleur bleue*”. C’est en 1928 que le lauréat du prix Nobel de chimie de 1932 *Irving Langmuir* (1881 – 1957) introduisait le terme *Plasma* (du Grec *πλάσμα*, “moulé ou formé”) [11] en constatant la ressemblance entre cet état de la matière et le plasma sanguin décrit par l’anatomiste et neurophysiologiste tchèque *Johann Evangelista Purkinje* (1787– 1869). La fabrication et l’utilisation répandue des générateurs d’ozone à base de décharges à barrière diélectrique a largement contribué dans la caractérisation de ce type de décharge. En 1932, *K. Buss* a trouvé que le claquage de l’air qui se trouve entre deux électrodes planaires et parallèles recouvertes d’un diélectrique se produit lorsque de minuscules filaments d’une durée de vie très courte apparaissent [12] ; lors de cette étude, il a obtenu les premières images (figures de *Lichtenberg*) de ces micro-décharges ainsi que l’enregistrement avec un oscilloscope de la forme de leur courant et tension électriques. En 1943, *T. C. Manley* [13] publia un article qui deviendra plus tard une référence, sur une méthode pour le calcul de l’énergie dissipée dans une décharge à barrière diélectrique d’un ozoniseur en utilisant les courbes de *Lissajous*. Il y décrivit une formule pour le calcul de cette énergie. Aujourd’hui, l’utilisation des plasmas ne se limite pas à la production de l’ozone, mais elle s’étend de l’industrie micro et nanoélectronique à l’aéronautique et l’aérospatial en passant par les industries automobiles, agroalimentaires, textiles et les applications biomédicales.

Dans le domaine biomédical, l’utilisation des décharges électriques remonte au 19^{ème} siècle. Les plasmas ont été utilisés dans une application biologique pour la première fois par Siemens qui utilisait une décharge à barrière diélectrique pour générer de l’ozone qu’il appliqua pour nettoyer l’eau des contaminants biologiques. Dans une des anciennes

publications datées de 1898 [14], *Sir William Crookes* indique que le docteur *H. Rieder* de Munich a trouvé que la décharge en provenance des “*Hard Tubes*” a un effet bactéricide.

Le vingtième siècle a vu l'émergence des appareils de haute fréquence pour des applications médicales. Durant l'exposition internationale de 1893 à Chicago, *Nikola Tesla* présenta le premier prototype d'un appareil appelé *Violet Ray Generator*.

En 1914, *Jacques Arsène d'Arsonval* publia un article sur l'utilisation des hautes fréquences et concentra son travail sur la génération des rayons violets, d'où l'appellation “*Darsonvalisation*” (Fig. I.5) qu'on a donné à l'utilisation des rayons violets dans la médecine [15].

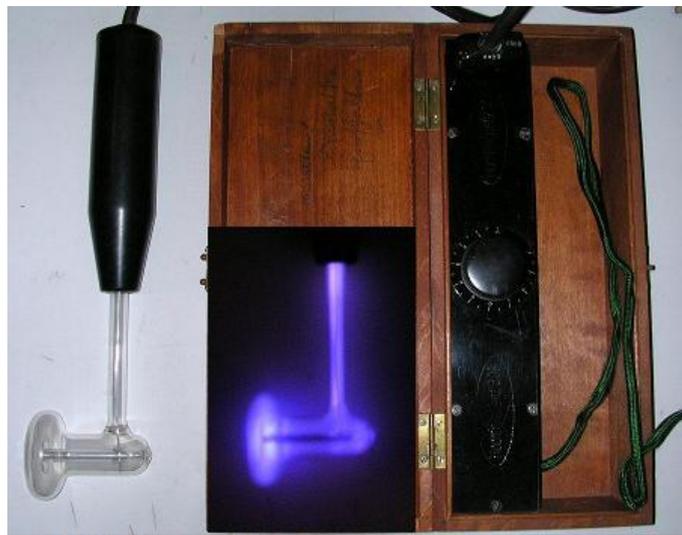


Fig. I.5 : Générateur de rayons violets.

Un scientifique allemand [15] (*Rumpf*) a développé un dispositif différent de celui d'Arsonval en utilisant une électrode couplée capacitivement qu'il a appliquée directement sur la peau du patient. Ce dispositif peut être considéré comme la première source de plasma en médecine à utiliser une électrode diélectrique et peut être défini comme directement lié au premier appareil à plasma en chimie, inventé par Siemens en 1888 pour produire de l'ozone. En 1923 un brevet a été déposé par l'allemand *Benno F. Jancke* pour un générateur de rayons violets [16].

En 1926, *William T. Bovie* [17] mis au point un dispositif d'électrochirurgie qu'il a d'abord utilisé dans des cas neurochirurgicaux avec Harvey Cushing, pour résoudre le problème de saignement. Ce dispositif est considéré comme l'ancêtre des coagulateurs argon.

Il existe plusieurs théories de l'évolution de la vie sur terre dont celle qui implique les décharges électriques. En 1953, la première expérience pour prouver cette théorie était mise

au point par *Miller* et *Urey* [18]. Ces derniers ont essayé de prouver la création de composés organiques à partir de composés inorganiques après la formation de la croûte terrestre. Durant les deux décennies suivantes, leurs travaux se concentrèrent sur l'utilisation des plasmas pour la stérilisation. Le premier brevet traitant de la stérilisation par plasma a été déposé en 1968 par *Menashi*, "Treatment of surfaces" [19], tandis que la première application pratique a été développée en 1972 par *Ascham & Menashi* [20]. Depuis, de nombreuses équipes ont travaillé sur ce sujet : *Fraser et al.* en 1974, *Tensmeyer* en 1976 – 1981, *Boucher* en 1980, *Bithell* en 1982, *Peebles* et *Anderson* en 1985, *Jacobs* et *Lin* en 1987 [21], *Mizuno* et *Hori* en 1988 [22].

A partir des années 1990, un grand intérêt a été accordé à l'utilisation des décharges plasmas dans le domaine biomédical ainsi qu'à la compréhension de l'interaction d'une décharge plasma avec les tissus vivants [23].

Durant ces dernières années, l'utilisation des plasmas dans la biologie et la médecine a été prise à un niveau supérieur.

I.3 – Les décharges plasmas à pression atmosphérique

Selon la loi de *Paschen* gouvernée par le produit Pression – Distance inter-électrode, on distingue trois types de claquage : Pseudospark, Townsend et Streamer. Dans le cas de décharge plasma à pression atmosphérique, la décharge est initiée par un claquage de type streamer [24].

I.3.1 – Claquage de type Streamer

Contrairement au claquage de type Pseudospark ou Townsend, le claquage de type Streamer se produit pour un produit " $p \times d$ " très élevé [24], ce qui en résulte une consommation d'énergie plus importante comparée à celle accompagnant un claquage Pseudospark ou Townsend. Un claquage Streamer est à l'origine de trois types de décharge : la décharge couronne, la décharge filamentaire et la décharge de type arc (arc électrique) (Fig. I.6).

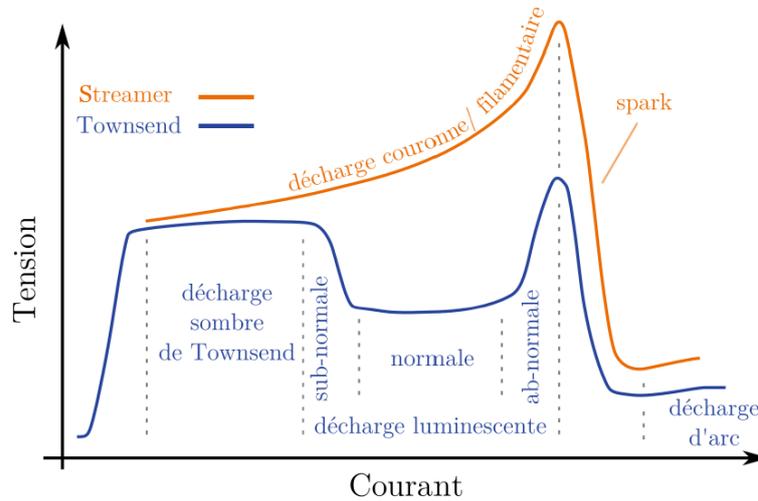


Fig. I.6 : Caractéristique $I(V)$ pour une décharge à basse pression (*Townsend*) et à haute pression (*Streamer*) [25].

I.3.2 – Mécanisme de création d'un filament

À l'instant t_0 avant l'apparition du champ électrique E_0 suite à l'application d'une différence de potentiel V , la zone de décharge est considérée comme déserte (aucune présence des ions et la concentration des électrons libres présents est très faible). A t_1 on applique une différence de potentiel V , il en résulte alors la création d'un champ électrique E_0 , ce dernier est à l'origine de l'avalanche électronique primaire initiant la création des filaments.

I.3.2.1 – L'avalanche électronique primaire

Les électrons libres accélérés par le champ électrique E_0 entrent en collision avec les neutres, ionisant ces derniers et générant plus d'électrons. À pression atmosphérique, la distance ou le libre parcours moyen entre les neutres est très faible ce qui rend l'avalanche électronique plus intense et extrêmement rapide. La propagation des électrons générés vers l'anode laisse les ions positifs derrière, ce qui provoque la polarisation de l'avalanche formant ainsi un dipôle. Ce dipôle donne naissance à un champ électrique E' ou champ de charges d'espace dont l'intensité est du même ordre de celle du champ E_0 lorsque le nombre d'électrons atteint et dépasse un seuil critique $N_{cr} = 10^8$ (*critère de Loeb-Meek*) [25].

I.3.2.2 – Formation de streamers

La formation du streamer aura lieu au moment t_{cr} où le champ électrique résultant E ($E = E_0 + E'$) disparaît, en d'autres termes $E_0 = E'$. On peut distinguer deux types de streamer, positif et négatif. Le streamer positif (Fig. I.7) dont la propagation est dans le même sens que le champ externe E_0 , est un streamer créé au niveau de l'anode où la concentration ou la densité ionique est maximale ; la tête de ce streamer est constituée des

ions positifs créés par l'avalanche électronique primaire. La propagation du streamer positive est assurée par le phénomène de la photo-ionisation. Ce dernier est à l'origine de la création de nouvelles avalanches électroniques appelées également avalanches électroniques secondaires. Les électrons des avalanches électroniques secondaires seront attirés par la tête du streamer vers le sentier ionique afin de créer un canal de plasma quasi-neutre. Les ions générés par les avalanches secondaires rejoignent ainsi le streamer pour former une nouvelle tête répétant le processus jusqu'à atteindre la cathode [25, 26].

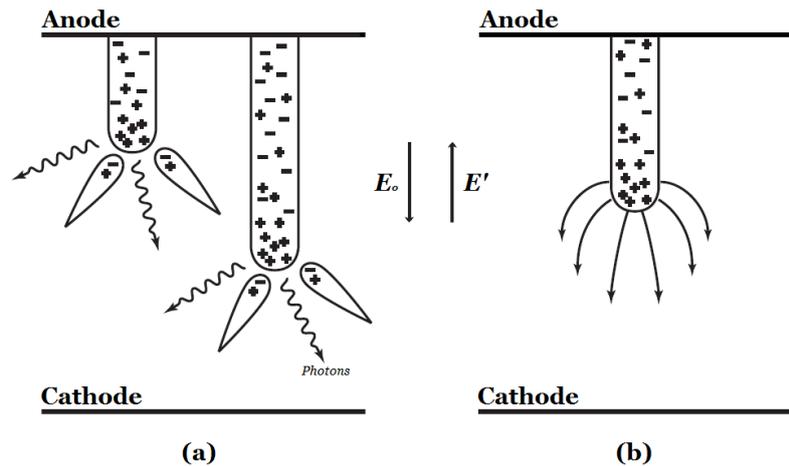


Fig. I.7 : Création et propagation d'un streamer positif [26].

Le streamer négatif (Fig. I.8) est un streamer dont la tête est constituée d'électrons de l'avalanche primaire générée au niveau de la cathode. La mode de propagation de ce streamer est similaire à celui du streamer positif, la différence réside dans le fait que les électrons qui se situent à l'arrière de la tête neutralisent le sentier ionique créé par les avalanches secondaires. Dans ce cas, les avalanches secondaires ne sont pas générées que par photo-ionisation mais par les électrons qui se trouvent au voisinage de la tête du streamer [25, 26].

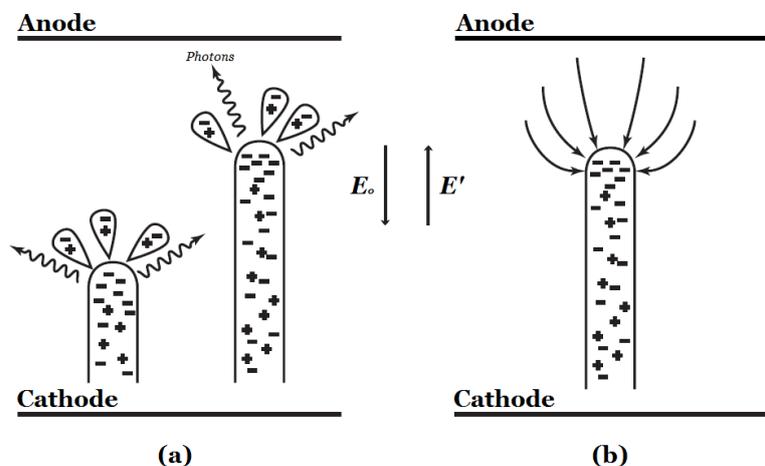


Fig. I.8 : Création et propagation d'un streamer négatif [26].

I.3.2.3 – Formation du filament

Au niveau de la zone de décharge, une multi-génération de streamers aura lieu, ces derniers forment des groupes qu'on appelle des filaments à cause de leur forme qui ressemble d'un point de vue macroscopique à un fil lumineux. Dans le cas d'une décharge à barrière diélectrique (DBD), ces filaments sont caractérisés par un effet de mémoire [26] due aux ions rémanents dans le canal conducteur et qui favorisent la création d'un nouveau filament au même endroit.

I.4 – Les jets de plasma atmosphériques

Un jet de plasma est un flux de gaz fortement ionisé généré à pression atmosphérique. L'origine de cette ionisation est le passage de ce gaz, qui est un gaz inerte dans la majorité des cas, par une zone de décharge. Le contact entre les filaments créés et le gaz traversant la zone de décharge conduit à l'ionisation de ce dernier et à la formation du jet de plasma.

I.4.1 – Classification des jets de plasma

I.4.1.1 – Classification selon la température

Les jets de plasma se divisent en deux catégories :

- Jet de plasma froids : dont la température du gaz est très proche de l'ambiante voir même égale.
- Jets de plasma chauds : dont la température est très élevée est de l'ordre de quelque centaine de degrés.

I.4.1.2 – Classification selon le mode d'excitation

Les jets de plasma sont répartis en deux catégories :

- Jets de plasma à couplage capacitif : Pour leur création on utilise des électrodes métalliques soumises à une différence de potentiel de l'ordre de quelques kilovolts.
- Jets de plasma à couplage inductif, appelés également troches, ils sont le produit d'un champ magnétique intense généré grâce à l'utilisation d'une bobine généralement de forme cylindrique.

I.4.2 – Jets de plasmas froids à couplage capacitif

Pour obtenir un jet de plasma froid à couplage capacitif dans la majorité des cas nous utilisons un réacteur à barrière diélectrique (DBD). Cette barrière, généralement en quartz, verre borosilicaté ou Polytetrafluoroéthylène (PTFE), a pour but d'homogénéiser la décharge et d'éviter la transition vers le régime d'arc.

Pour obtenir ce type de jet de plasma il existe deux modes d'excitation :

- Excitation avec un signal kilo-hertzien : Dans ce cas le signal utilisé est un signal alternatif ou bien impulsionnel. Ce type de jet de plasma est le plus simple à obtenir.
- Excitation avec un signal radio fréquence : Dans ce cas le signal utilisé est un signal impulsionnel avec une fréquence de 13,65 MHz avec l'application d'une faible tension par rapport au cas précédent.

I.4.3 – Différentes configurations de réacteurs

Pour obtenir un jet de plasma il existe une multitude de configurations, les plus connues et les plus utilisées sont représentées sur la figure I.9.

On peut regrouper les différents réacteurs selon leurs configurations en trois groupes :

- À simple barrière diélectrique : le diélectrique couvre une seule électrode.
- À double barrière diélectrique : un diélectrique couvre chacune des deux électrodes.
- Sans barrière diélectrique : dans ce cas une limitation de courant est essentielle.

Les réacteurs peuvent également être classifiés selon le nombre d'électrodes dans le réacteur à simple ou à double électrodes.

Ces différentes configurations dont les dimensions varient de quelques millimètres à quelques centimètres, nous donnent la possibilité d'obtenir des jets de plasma ou des micro jets de plasma en utilisant différents gaz précurseurs tel que l'air, l'argon, l'hélium et l'azote.

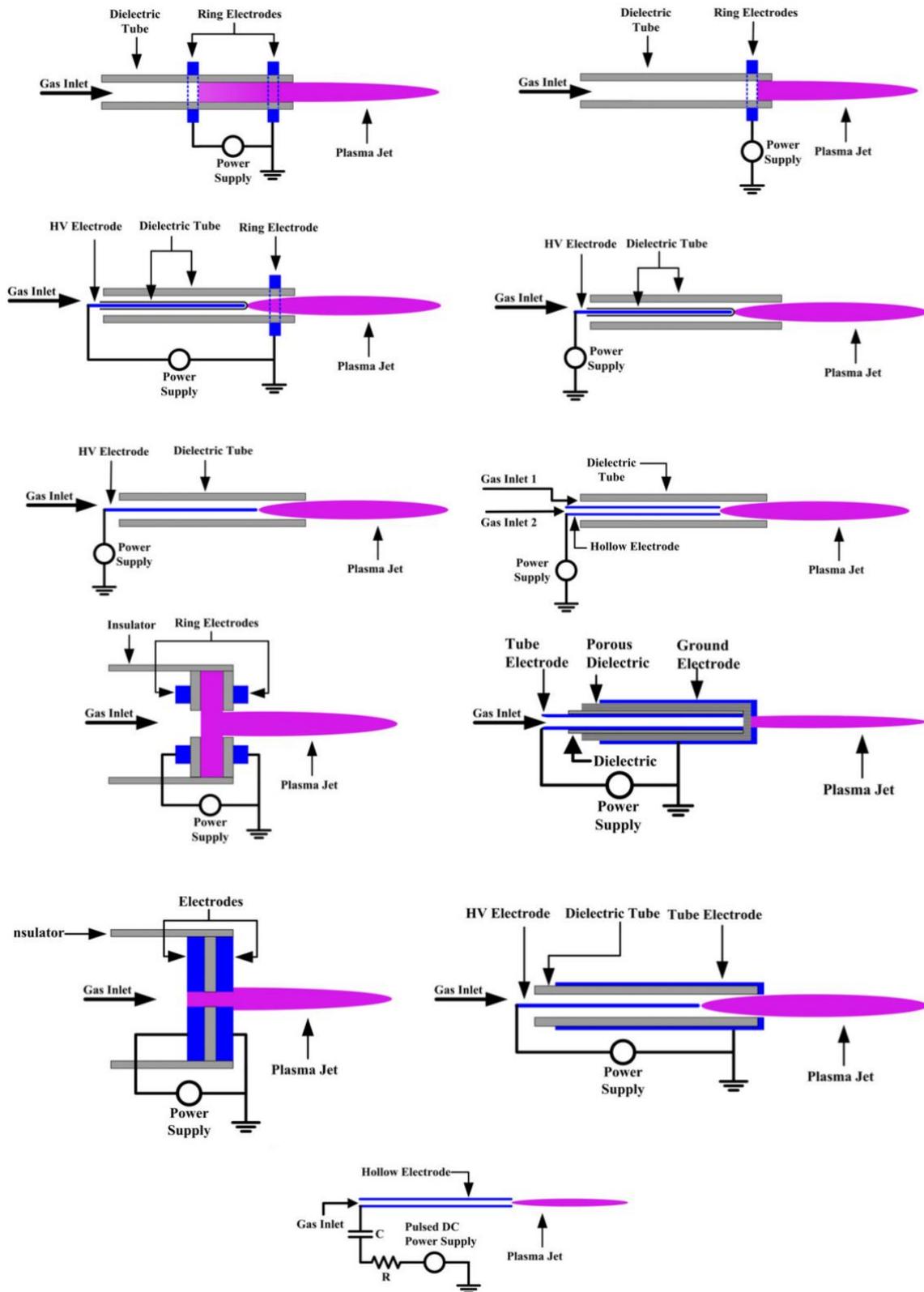


Fig. I.9 : Différentes configurations de réacteurs pour génération de jets de plasmas [27].

I.5 – Exemples d’applications des plasmas dans le domaine biomédical

Durant les dix à vingt dernières années, un grand intérêt a été porté à l'utilisation des plasmas à pression atmosphérique. De la biologie à la médecine, les plasmas froids présentent de nombreux avantages dont le traitement des tissus et matériaux thermosensibles. Un des premiers dispositifs certifiés et utilisés dans le domaine biomédical est le kINPen [28] (Fig. I.10).



Fig. I.10 : Image du dispositif kINPen MED [29].

I.5.1 – Quelques applications en médecine

La stérilisation était la première application des plasmas dans le domaine biomédical ; de nos jours il existe une multitude de dispositifs pour la stérilisation des instruments ainsi que des parties du corps humain telles que les mains.

Les plasmas atmosphériques sont très utilisés dans le domaine de la médecine. En chirurgie, les plasmas froids sont utilisés pour l'accélération de la coagulation et du processus de cicatrisation [30 – 32] ainsi que l'ablation de certains tissus [33]. Une multitude d'appareils certifiés pour l'utilisation dans le domaine de la chirurgie commencent à voir le jour ces dernières années comme le J-Plasma, PlasmaJet, Helica (Fig. I.11).



Fig. I.11 : Image du dispositif PlasmaJet [34].

Les plasmas sont également utilisés dans la médecine dentaire. Plusieurs travaux montrent l'efficacité des plasmas pour le blanchiment des dents [35 – 38], le traitement canalaire [42] ainsi que la désinfection de la cavité buccale [40, 41].

En dermatologie le processus de cicatrisation est un des problèmes majeurs pour les personnes atteint du diabète. Les résultats montrent que les plasmas froids ont le pouvoir d'accélérer le processus de cicatrisation [42]. Parmi les dispositifs certifiés, citons le Plasmacure dont la photo est représentée sur la figure I.12.

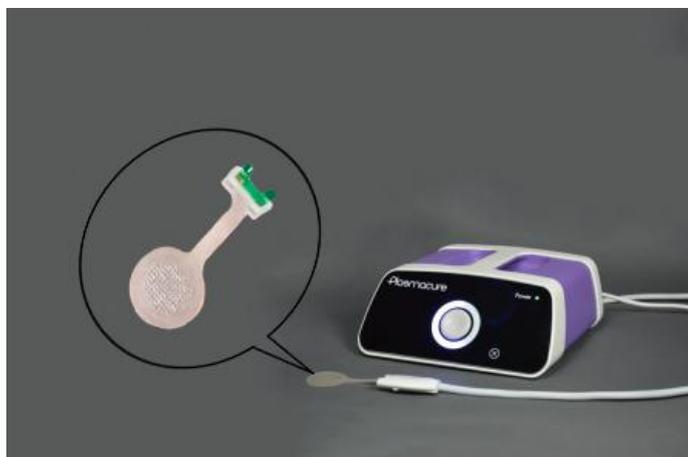


Fig. I.12 : Image du dispositif Plasmacure [43].

Durant les cinq dernières années, un grand intérêt est accordé à l'utilisation des plasmas pour l'oncologie [44, 45]. Les résultats du traitement par plasma des cellules cancéreuses in vitro, ex vivo et in vivo montrent des résultats extrêmement prometteurs, ce qui transformera peut-être et dans un futur très proche le cancer d'une maladie chronique en une maladie guérissable [46 – 49].

I.5.2 – Applications pour la sécurité alimentaire

Une des utilisations récentes des plasmas est la prévention de la désintégration et la désinfection alimentaire [50]. Cette opération peut être effectuée directement sur les aliments ou sur les aliments sous emballages.

Une des techniques les plus innovantes pour la décontamination des aliments est utilisée pour le conditionnement de la viande. La viande est coupée par le biais des lames rotatives à décharge, ce qui réduit significativement le taux de micro-organismes présent avant la phase de conditionnement. Le traitement par plasma peut se faire sous emballages augmentant encore la réussite de l'opération de conservation [51, 52].

Les plasmas atmosphériques sont également utilisés pour la pasteurisation à basse température. En addition à leur pouvoir d'inactivation, leur faible température permet la préservation des vitamines et d'autres composantes alimentaires thermosensibles [53, 54].

En biotechnologie les plasmas froids sont utilisés pour la modification des surfaces de certain matériaux biocompatibles, l'amélioration de la germination des graines de semences [55, 56] ainsi que la filtration de l'air des composés organiques volatiles (VOCs) [57].

Conclusion

Ce chapitre présente une étude bibliographique sur les plasmas et leur utilisation. Nous nous sommes particulièrement focalisés sur les jets de plasma à pression atmosphérique dans le domaine de la médecine, la biologie et la biotechnologie, ce qui donne un aperçu sur l'axe d'orientation choisi pour cette thèse. Dans un premier temps, nous avons évoqué quelques généralités sur les plasmas et les mécanismes conduisant à leur création. Dans un second temps nous avons présenté une classification des jets de plasma ainsi que les différentes structures de réacteurs utilisés pour leur création. Dans ce chapitre, nous avons introduit les concepts de base qui nous semblent importants à la compréhension de la suite de nos travaux.

Références

- [1] R. Jousset, “Étude, caractérisation et amélioration d’un actionneur plasma - Application au contrôle de la transition d’une couche limite de Blasius”, Thèse de doctorat, (2010), Université d’Orléans, France.
- [2] P. Chu, “*Low temperature plasma technology*”, Boca Raton, CRC Press, (2014), pp.5–6.
- [3] A. Fridman, “*Plasma chemistry*”, London: Cambridge University Press, (2012), pp.3.
- [4] A. Anders, “*Tracking down the origin of arc plasma science I. early pulsed and oscillating discharges*”, IEEE Transactions on Plasma Science, 31(5), (2003), pp.1052–1059.
- [5] A. Descoedres, “*Characterization of electrical discharge machining plasmas*”, Thèse de doctorat (2006), N° 3542 École polytechnique fédérale de Lausanne, Suisse.
- [6] <http://lateralscience.blogspot.com/2012/07/martinus-van-marum-1750-1837-discovers.html> (21 Jan. 2018).
- [7] M. B. Rubin, “*The history of ozone. The Schonbein period, 1839– 1868*”, Bulletin for The History of Chemistry, 26, (2001), pp.40–56.
- [8] U. Kogelschatz, “*Dielectric-barrier Discharges: Their History, Discharge Physics, and Industrial Applications*”, Plasma Chemistry and Plasma Processing, 23(1), (2003), pp.1–46.
- [9] T. Andrews, P.G. Tait, “*Second Note on Ozone*”, Proceedings of the Royal Society of London, 9, (1857 – 1859), pp.606-608.
- [10] R. Maurau, “*Etude de l’influence du régime d’une décharge à barrière diélectrique dans un mélange HMDSO/N₂, sur les propriétés d’un procédé de dépôt*”, Thèse de doctorat, (2010), École nationale supérieure de chimie de Paris, France.
- [11] A. M. Pointu, J. Perrin, J. Jolly, “*Plasmas froids de décharge*”, Les techniques de l’ingénieur, (1998), Dossier D 2830.
- [12] K. Buss, *Arch., Elektrotech.* (1932), 26 pp.261–265.
- [13] T. Manley, “*The Electric Characteristics of the Ozonator Discharge*”, Transactions of The Electrochemical Society, 84(1), (1943), p.83.
- [14] W. Crookes, “*Address of the president before the british association for the advancement of science*”, Bristol, Science, 8 (200), (1898), pp.561–575.
- [15] J. Napp, et al., “*On the history of plasma treatment and comparison of microbiostatic efficacy of a historical high-frequency plasma device with two modern devices*”, GMS Hygiene and Infection Control, (2015), 10: Doc 08.
- [16] B. F. Janke, (1923), U.S. Patent 1506344 A.
- [17] P. Carter, “*The life and legacy of William T. Bovie*”, The American Journal of Surgery, 205(5), (2013), pp.488–491.
- [18] S. Miller, “*A Production of Amino Acids Under Possible Primitive Earth Conditions*”, Science, 117(3046), (1953), pp.528–529.

- [19] W. P. Menashi, (1968), U.S. Patent 3383163 A.
- [20] H. Shintani, A. Sakudo, “*Gas plasma sterilization in microbiology: Theory, Applications, Pitfalls and New Perspectives*”, Norfolk, UK : Caister Academic Press, (2016), pp.5.
- [21] A. Russell, W. Hugo, G. Ayliffe, “*Principles and Practice of Disinfection, Preservation and Sterilization*” 4th edition, Malden, Massachusetts: Blackwell Publishing, (2008), pp.423.
- [22] A. Mizuno, Y. Hori, “*Destruction of living cells by pulsed high-voltage application*”, IEEE Transactions on Industry Applications, 24(3), (1988), pp.387–394.
- [23] M. Laroussi, “*Sterilization of Tools and Infectious Waste by Plasmas*”, Bulletin of the American Physical Society Division Plasma Physics, 40(11), (1995), pp.1685–1686.
- [24] U. Kogelschatz, “*Filamentary, patterned, and diffuse barrier discharges*”, IEEE Transactions on Plasma Science, 30(4), (2002), pp.1400–1408.
- [25] C. Douat, “*Étude d'un micro-jet de plasma à pression atmosphérique*”, Thèse de Doctorat, (2014), Université Paris-Sud, France.
- [26] A. Fridman, “*Plasma chemistry*” London: Cambridge University Press, (2012), p.161–162.
- [27] X. Lu, M. Laroussi, V. Puech, “*On atmospheric-pressure non-equilibrium plasma jets and plasma bullets*” Plasma Sources Science and Technology, 21(3), (2012), p.034005.
- [28] K. Weltmann *et al.*, “*Atmospheric Pressure Plasma Jet for Medical Therapy: Plasma Parameters and Risk Estimation*”, Contributions to Plasma Physics, 49(9), (2009), pp.631–640.
- [29] http://neoplas-tools.eu/files/neoplas_tools/public/bilder/slider/20170628-IMG_0043.jpg (21 Jan. 2018).
- [30] G. Fridman *et al.*, “*Applied Plasma Medicine*”, Plasma Processes and Polymers, 5(6), (2008), pp.503–533.
- [31] G. Fridman *et al.*, “*Blood Coagulation and Living Tissue Sterilization by Floating-Electrode Dielectric Barrier Discharge in Air*”, Plasma Chemistry and Plasma Processing, 26(4), (2006), pp.425–442.
- [32] J. Raiser, M. Zenker, “*Argon plasma coagulation for open surgical and endoscopic applications: state of the art*”, Journal of Physics D: Applied Physics, 39(16), (2006), p.3520.
- [33] G. Lloyd *et al.*, “*Gas Plasma: Medical Uses and Developments in Wound Care*”, Plasma Processes and Polymers, 7(3–4), (2010), pp.194–211.
- [34] <http://www.greavesbest.co.uk/wp-content/uploads/plasma1.jpg> (21 Jan. 2018).
- [35] H. Lee, S. Nam, A. Mohamed, G. Kim, J. Lee, “*Atmospheric Pressure Plasma Jet Composed of Three Electrodes: Application to Tooth Bleaching*”, Plasma Processes and Polymers, 7(3–4), (2009), pp.274–280.

- [36] J. Pan *et al.*, “A Novel Method of Tooth Whitening Using Cold Plasma Microjet Driven by Direct Current in Atmospheric-Pressure Air”, *IEEE Transactions on Plasma Science*, 38(11), (2010), pp.3143–3151.
- [37] H. Lee *et al.*, “Tooth Bleaching with Nonthermal Atmospheric Pressure Plasma”, *Journal of Endodontics*, 35(4), (2009), pp.587–591.
- [38] G. Kim *et al.*, “Dental Applications of Low Temperature Nonthermal Plasmas”, *Plasma Processes and Polymers*, 10(3), (2013), pp.199–206.
- [39] X. Lu *et al.*, “An RC Plasma Device for Sterilization of Root Canal of Teeth”, *IEEE Transactions on Plasma Science*, 37(5), (2009), pp.668–673.
- [40] C. Jiang *et al.*, “Nanosecond Pulsed Plasma Dental Probe”, *Plasma Processes and Polymers*, 6(8), (2009), pp.479–483.
- [41] R. Sladek, E. Stoffels, R. Walraven, P. Tielbeek, R. Koolhoven, “Plasma Treatment of Dental Cavities: A Feasibility Study”, *IEEE Transactions on Plasma Science*, 32(4), (2004), pp.1540–1543.
- [42] J. Heinlin *et al.*, “Plasma medicine: possible applications in dermatology”, *Journal der Deutschen Dermatologischen Gesellschaft*, 8(12), (2010), pp.968–976.
- [43] <http://www.relitech.nl/wp-content/uploads/20170424-Plasmacure-mockup-300x198.jpg> (21 Jan. 2018).
- [44] D. Yan, J. Sherman, M. Keidar, “Cold atmospheric plasma, a novel promising anti-cancer treatment modality”, *Oncotarget*, 8(9), (2017), pp.15977–15995.
- [45] M. Keidar, “Plasma for cancer treatment”, *Plasma Sources Science and Technology*, 24(3), (2015), p.033001.
- [46] J. Kim *et al.*, “Apoptosis of lung carcinoma cells induced by a flexible optical fiber-based cold microplasma”, *Biosensors and Bioelectronics*, 28(1), (2011), pp.333–338.
- [47] S. Ja Kim, H. Min Joh, T. Chung, “Production of intracellular reactive oxygen species and change of cell viability induced by atmospheric pressure plasma in normal and cancer cells”, *Applied Physics Letters*, 103(15), (2013), p.153705.
- [48] R. Walk *et al.*, “Cold atmospheric plasma for the ablative treatment of neuroblastoma”, *Journal of Pediatric Surgery*, 48(1), (2013), pp.67–73.
- [49] D. Graves, “Low temperature plasma biomedicine: A tutorial review”, *Physics of Plasmas*, 21(8), (2014), p.080901.
- [50] S. Pankaj, K. Keener, “Cold Plasma Processing of Fruit Juices”, *Fruit Juices*, Academic Press, (2018), pp.529–537.
- [51] F. Leipold, Y. Kusano, F. Hansen, T. Jacobsen, “Decontamination of a rotating cutting tool during operation by means of atmospheric pressure plasmas”, *Food Control*, 21(8), (2010), pp.1194–1198.
- [52] F. Leipold, N. Schultz-Jensen, Y. Kusano, H. Bindslev, T. Jacobsen, “Decontamination of objects in a sealed container by means of atmospheric pressure plasmas”, *Food Control*, 22(8), (2011), pp.1296–1301.

- [53] C. Gurol, F. Ekinici, N. Aslan, M. Korachi, “*Low Temperature Plasma for decontamination of E. coli in milk*”, International Journal of Food Microbiology, 157(1), (2012), pp.1–5.
- [54] B. Surowsky, A. Fröhling, N. Gottschalk, O. Schlüter, D. Knorr, “*Impact of cold plasma on Citrobacter freundii in apple juice: Inactivation kinetics and mechanisms*”, International Journal of Food Microbiology, 174, (2014), pp.63–71.
- [55] K. Matra, “*Non-thermal Plasma for Germination Enhancement of Radish Seeds*”, Procedia Computer Science, 86, (2016), pp.132–135.
- [56] L. Sivachandiran, A. Khacef, “*Enhanced seed germination and plant growth by atmospheric pressure cold air plasma: combined effect of seed and water treatment*”, RSC Advances, 7(4), (2017), pp.1822–1832.
- [57] Y. Li *et al.*, “*Removal of Volatile Organic Compounds (VOCs) at Room Temperature Using Dielectric Barrier Discharge and Plasma-Catalysis*”, Plasma Chemistry and Plasma Processing, 34(4), (2014), pp.801–810.

Chapitre II

Techniques et dispositifs d'analyses utilisés

Introduction

Beaucoup de travaux menés sur la création, la caractérisation et l'application des jets de plasmas à la pression atmosphérique ont montré que les paramètres qui amènent à leur création ont des effets sur leur aspect géométrique et leur composition chimique [1 – 3]. Diverses méthodes sont utilisées pour exciter les jets de plasmas, pour leurs caractérisations électriques et physico-chimiques. Dans ce chapitre, nous décrirons les équipements que nous avons utilisés pour la création de jets de plasmas dans un flux d'argon à la pression atmosphérique. Nous présenterons les techniques et les méthodes que nous avons utilisées pour la caractérisation électrique du jet, la caractérisation de son émission optique. Les équipements qui nous ont permis de mener l'étude de l'application du jet de plasma que nous avons créé sur des microorganismes vivants seront également décrits.

II.1 – Générateurs de haute tension utilisés pour l'excitation électrique du jet de plasma

Pour l'excitation du jet de plasma, nous avons utilisé une source de haute tension alternative (générateur haute tension AC) et une source de haute tension impulsionnelle. La source de haute tension alternative est constituée d'un banc que nous avons mis en place en utilisant plusieurs appareils que nous décrirons dans les paragraphes suivants. Nous avons caractérisé ses performances pour générer un signal alternatif de plusieurs kV.

II.1.1 – Générateur de haute tension AC

Le générateur AC que nous avons mis en place et que nous avons utilisé dans ce travail est constitué de trois compartiments : un compartiment pour la génération du signal alternatif, un compartiment pour l'amplification de la puissance de ce signal basse tension et un compartiment pour l'amplification de la valeur de sa tension. Le schéma synoptique de ce banc est reporté sur la figure II.1.



Fig. II.1 : Schéma synoptique du générateur haute tension alternative mis en place.

II.1.1.1 – Génération du signal AC

Le signal AC est généré à l'aide d'un générateur de fonction MCP SG1641A. Cet appareil permet de délivrer un signal de tension de forme sinusoïdale (en plus de signaux

de forme carrée ou triangle) avec une amplitude sans charge de 20 V crête à crête dans une plage fréquentielle 0,1 Hz – 3 MHz. Sa photo est représentée sur la figure II.2.



Fig. II.2 : Photo du générateur de fonctions MCP SG1641A.

Avec une impédance de sortie de 50 ohms, le facteur de distorsion du signal alternatif sinusoïdal qu'il permet de délivrer reste inférieur à 1%.

II.1.1.2 – Amplification basse tension

Le générateur de fonction MCP SG 1641A délivre un signal de faible tension et faible puissance. Pour l'amplifier en puissance nous avons utilisé un amplificateur audio PSS 500 de PSS - YGR MUSIC pouvant atteindre une puissance de 500 watts RMS avec une fréquence dans la plage 20 Hz – 45 kHz (Fig. II.3). Le gain en tension qu'il permet d'atteindre est $G_{tension} = 10$ avec une tension maximale de sortie $V_{out\ max} = 60\ V$.

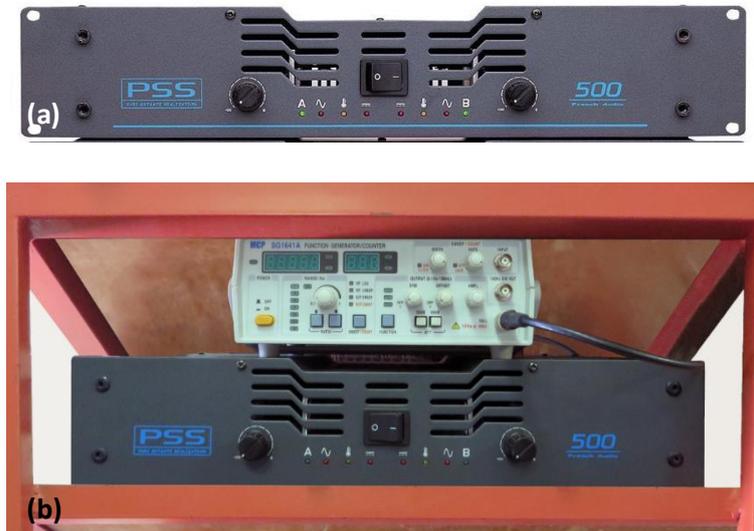


Fig. II.3 : Photo de l'amplificateur de puissance PSS 500 seul (a) et connecté au générateur de fonction MCP SG 1641A (b).

II.1.1.3 – Amplification haute tension

L'amplification du signal délivré par le GBF en une haute tension capable de créer une décharge plasma à pression atmosphérique (tension de quelques kV) est faite par le biais de deux transformateurs de haute tension ; le premier transformateur est à noyau de fer alors

que le second dispose d'un noyau en ferrite. Cette amplification permet d'atteindre une tension aux alentours de 12 kV crête à crête. Un réacteur plasma est considéré comme un circuit RC et en reliant ce dernier au transformateur nous obtenons un circuit RLC, ce qui aura une influence sur la fréquence de résonance du transformateur. Sur la figure II.4 nous avons représenté le banc composé du générateur de fonctions, de l'amplificateur PSS 500, du transformateur HT sous forme de bobine d'allumage de véhicule et de l'oscilloscope muni de sa sonde HT que nous décrirons dans un prochain paragraphe.

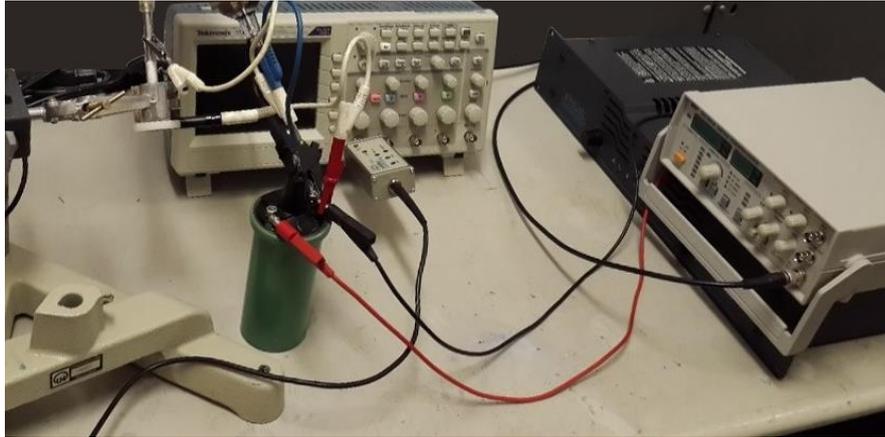


Fig. II.4 : Banc mis en place pour la génération de haute de tension alternative pour l'excitation électrique du plasma.

II.1.1.3.a – Amplification de la tension par un transformateur à noyau de fer

Afin de déterminer la fréquence de résonance de notre générateur HT, nous avons appliqués une tension alternative de 12 Vpp au niveau du primaire du transformateur avec et sans charge. En faisant varier la fréquence de 1 à 9 kHz, nous avons observés la réponse du secondaire ce qui nous a permis de tracer les deux courbes présentées sur la figure II.5.

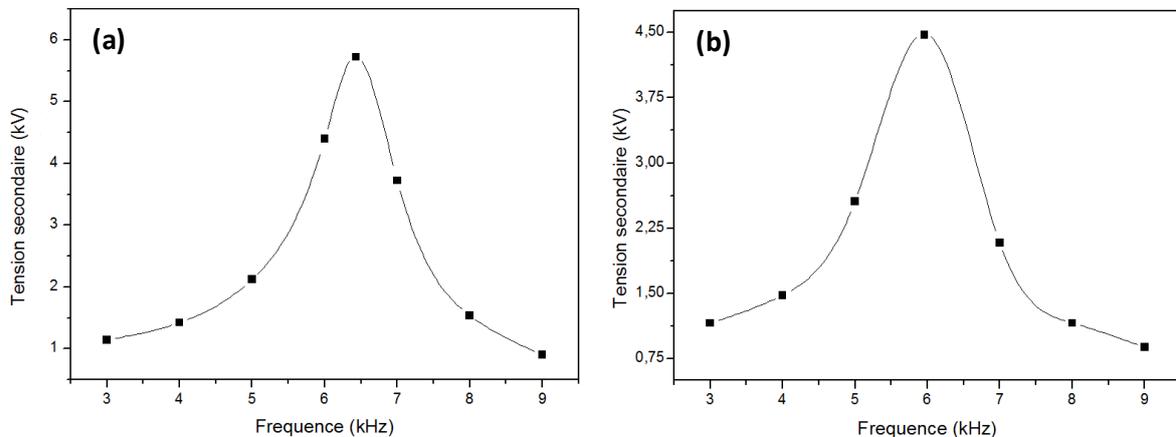


Fig. II.5 : Variation de la tension V_{pp} au secondaire en fonction de la fréquence dans le cas d'une amplification avec *transformateur à noyau de fer* (a) : Sans charge, (b) : Avec charge.

Sachant que l'amplification est maximale à la résonance, nous avons déduit que la fréquence de résonance f_{res} est de 6,4 kHz à vide et de 6 kHz avec une baisse de tension de l'ordre de 1.25 kV. De cet effet, la gamme de fréquence qui sera exploitée avec ce générateur muni d'un transformateur à noyau de fer sera dans la gamme 4 – 8 kHz.

Pour étudier la réponse au niveau du secondaire du transformateur, nous avons fixé la fréquence du signal tout en variant l'amplitude de la tension appliquée au primaire, la figure II.6 représente la réponse du secondaire. Nous constatons que la réponse du secondaire est quasi-linéaire, ce qui montre que le rapport de transformation est constant pour chaque fréquence. D'autre part nous observons une différence entre les pentes pour chaque fréquence, ce qui représente la variation du rapport de transformation pour chaque fréquence utilisée. Dans ce cas, le rapport de transformation le plus important est celui de la résonance. Afin d'atteindre les mêmes valeurs de tension que celles au niveau du secondaire obtenu à la résonance, une compensation par le biais de l'augmentation de la tension au primaire sera primordiale.

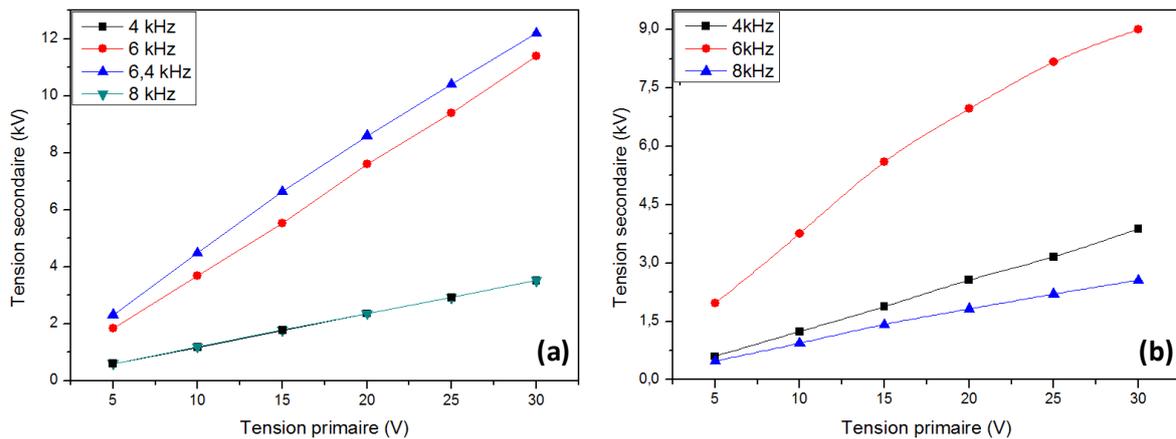


Fig. II.6 : Variation de la tension V_{pp} obtenue au secondaire en fonction de la tension au primaire pour différentes valeurs de la fréquence dans le cas d'une amplification avec transformateur à noyau de fer (a) : Sans charge, (b) : Avec charge.

Les courbes de la figure II.6 montre qu'en faisant varier la tension au niveau du primaire de quelques volts à 30 V, le signal délivré à la sortie de ce banc que nous avons mis en place peut être varié de quelques centaines de volts à près de 10 kV et ce, suivant la valeur de la fréquence du signal d'excitation.

II.1.1.3.b – Amplification de la tension par un transformateur à noyau de ferrite

Comme nous l'avons mentionné dans le paragraphe précédent, pour la détermination de la valeur de la fréquence de résonance, nous avons appliqués une tension alternative de 12 Vpp au niveau du primaire du transformateur. Nous avons ensuite fait varier la fréquence du signal délivrée par le GBF de 21 à 30 kHz à vide et de 20 à 28 avec charge et nous avons

mesuré la tension délivrée au niveau du secondaire. Sur la figure II.7 nous avons reporté la variation de la tension au secondaire en fonction de la fréquence du signal d'attaque du GBF et ce, sans charge et avec charge.

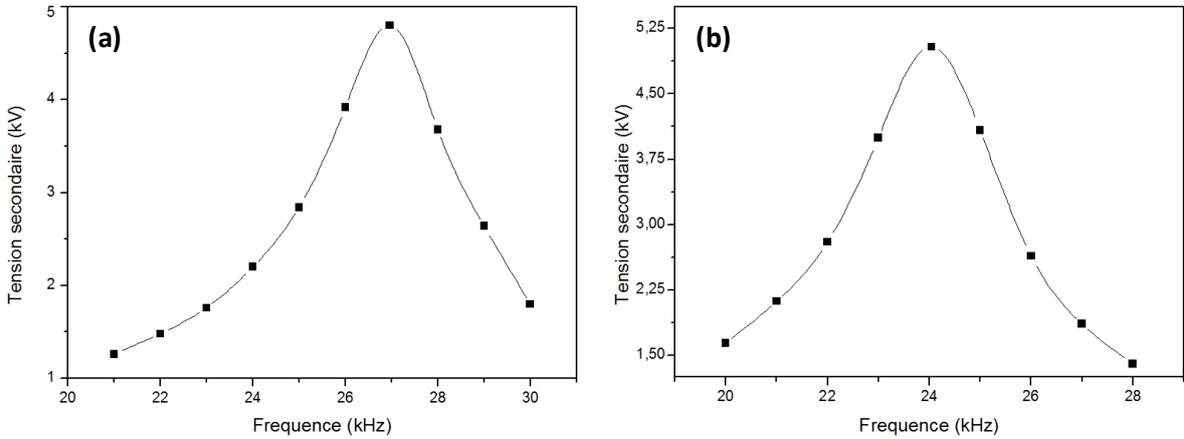


Fig. II.7 : Variation de la tension V_{pp} au secondaire en fonction de la fréquence dans le cas d'une amplification avec transformateur à noyau de ferrite (a) : Sans charge, (b) : Avec charge.

Ces deux courbes nous ont permis de déduire une valeur de fréquence de résonance du signal délivré avec un tel transformateur et qui est égale à 27 kHz à vide et à 24 kHz en présence de la charge. De cet effet, nous avons choisi la gamme de fréquences du signal haute tension délivré par ce montage dans la gamme 21 – 27 kHz.

Pour étudier la réponse au niveau du secondaire du transformateur, nous avons répété le même processus en fixant la fréquence du signal à 21, 24, 27 et 30 kHz à vide et à 21, 24 et 27 avec charge. La figure II.8 représente la réponse du secondaire à une variation de la tension au niveau du primaire.

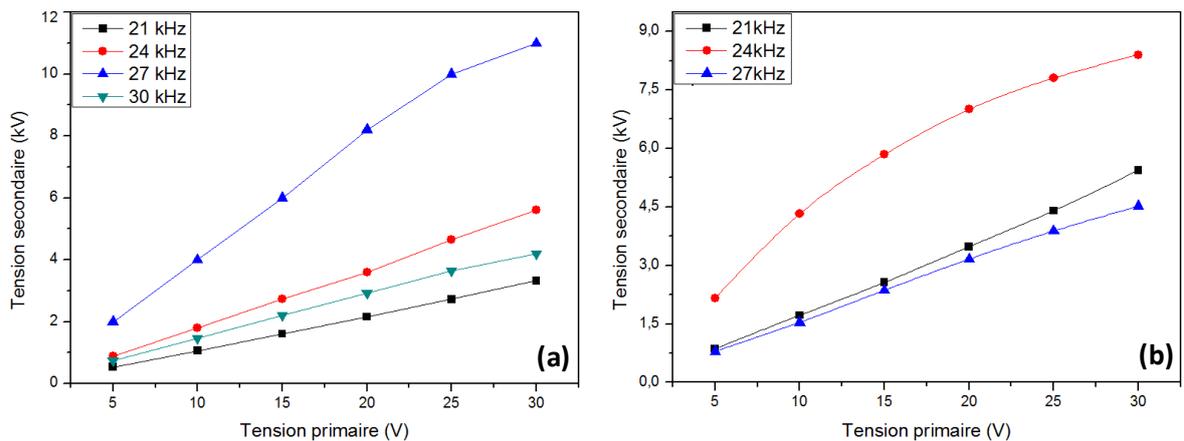


Fig. II.8 : Variation de la tension V_{pp} obtenue au secondaire en fonction de la tension au primaire pour différentes valeurs de la fréquence dans le cas d'une amplification avec transformateur à noyau de ferrite (a) : Sans charge, (b) : Avec charge.

On peut constater que ce transformateur à quasiment le même comportement que le précédent, ce qui justifie son utilisation pour atteindre des fréquences relativement élevées. En combinant les deux transformateurs (à noyau de fer et celui de ferrite), notre banc de haute tension permet de générer des signaux alternatifs (AC) pouvant atteindre des valeurs de tension de 10 kV dans une plage de fréquence s'étendant de quelques kHz à 27 kHz.

II.1.2 – Générateur Redline G2000

Le générateur Redline G2000 est un générateur de haute tension impulsionnelle destiné à la création de décharge plasma à pression atmosphérique (Fig. II.9). À partir d'un circuit DC intermédiaire, le G2000 génère des impulsions unipolaires carrées avec fréquence, largeur et amplitude programmable. Ces impulsions sont transformées en des valeurs de hautes tensions.



Fig. II.9 : Photo du générateur impulsionnel Redline G2000 [4].

Le système d'inductance du transformateur et la capacité du câble ainsi que celle de la charge créés un circuit résonnant. L'application d'impulsions de haute tension entraîne la création d'une tension (quasi-) sinusoïdale au niveau de la charge. Le train d'impulsions de sortie peut être bloqué périodiquement au moyen d'une modulation par paquets d'impulsions. Cela permet une opération de mode en rafale pour stabiliser la formation du plasma. Le G2000 est résistant aux courts-circuits et aux circuits ouverts. Plusieurs limiteurs de courant indépendants contrôlent le courant du secteur, le courant moyen et le courant maximal. Du côté du secteur, une correction active du facteur de puissance (PFC) et un filtre placé du côté du secteur d'alimentation réduisent les harmoniques et lissent le courant de fonctionnement.

Fonctionnement	Min	Type	Max	Unité
Tension de sortie	0		20	kVpp
Puissance de sortie			500	W
Fréquence	4		500	kHz
Tension circuit intermédiaire	0		300	V _{dc}
Courant circuit intermédiaire			4	A _{dc}
Inductance bobine secondaire		20		mH
Capacité bobine secondaire		100		pF
Courant max bobine secondaire		1.5		A

Tab. II.1 : Caractéristiques du générateur Redline G2000 [4].

II.2 – Bancs de caractérisation électrique et optique du jet de plasma

II.2.1 – Bancs de mesure de la tension, du courant et de la puissance électriques

Pour la mesure de la tension appliquée aux bornes des électrodes d'excitation du plasma et pour la caractérisation électrique du courant de la décharge plasma, nous avons utilisé un oscilloscope numérique Tektronix TDS2024C (Fig. II.10). Cet appareil est doté de 4 entrées permettant une mesure instantanée de 4 signaux avec une bande passante de 200 MHz, une fréquence d'échantillonnage 2 GS/s et 2500 points d'enregistrement pour chaque chaîne.

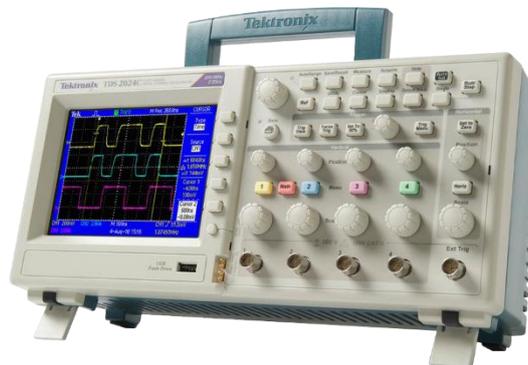


Fig. II.10 : Photo de l'oscilloscope Tektronix TDS 2024C

La mesure de la haute tension est assurée par le biais de la sonde de haute tension Tektronix P6015A (Fig. II.11) de bande passante de 75 MHz et d'impédance d'entrée de 100Mohms. Son facteur d'atténuation est de 1000 et elle peut mesurer jusqu'à 20 kV en

continue et 40 kV en impulsionnel. Nous branchons la sonde de haute tension directement aux bornes des électrodes du réacteur afin d'obtenir la valeur de la tension appliquée avec exactitude.



Fig. II.11 : Photo de la sonde de HT Tektronix P6015A.

Nous avons mesuré le courant de la décharge à travers une résistance de 50 ohms grâce à l'utilisation d'une sonde passive d'impédance égale à 50 ohms. En réalité nous mesurons la chute de tension provoquée par la présence de la résistance qui sera traduite par la suite en une mesure du courant en appliquant la loi d'Ohm. Le choix de l'utilisation d'une résistance de 50 Ohms réside dans le besoin d'adapter l'impédance de mesure à l'impédance d'entrée.

Pour mesurer la puissance consommée par la décharge par cycle, nous avons utilisé la méthode décrite par *T.C. Manley* [5] et que nous décrirons plus en détail dans le chapitre III (paragraphe III.3.1.2). La puissance du plasma ou la puissance consommée par le plasma est mesurée par le biais d'un condensateur de capacité C monté en série avec le réacteur au niveau de l'électrode de masse. En réalité nous mesurons la variation de la tension $U(t)$ aux bornes de ce condensateur, ce qui représente la quantité de charges $Q(t)$ à l'instant t au niveau de ce dernier. $Q(t)$ est donné par la relation :

$$Q(t) = U(t) * C$$

II.2.2 – Banc de spectroscopie d'émission optique

II.2.2.1 – Principe de la spectroscopie d'émission optique

Cette technique repose sur la détection de la lumière émise par les différentes espèces excitées présentes dans le plasma suite à une désexcitation radiative [6]. Chaque espèce radiative est caractérisée par une longueur d'onde λ se trouvant dans le spectre électromagnétique de la figure II.12 [7].

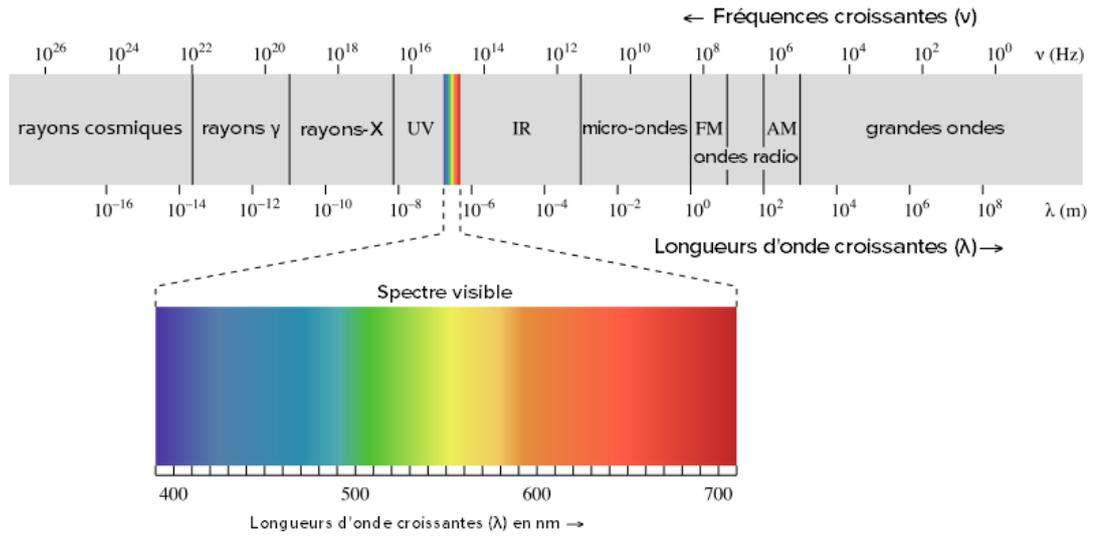


Fig. II.12 : Spectre électromagnétique [7].

L'émission optique du plasma est causée par les radiations émises lors de la désexcitation de certaines espèces du plasma. La détermination des longueurs d'ondes des radiations émises lors de ces désexcitations permet d'identifier différentes espèces radiatives à l'origine de la lumière émise par le plasma et ainsi donne une certaine idée sur ses constituants.

II.2.2.2 – Equipements utilisés

Pour la caractérisation de l'émission optique de notre jet de plasma créé dans un flux d'argon dans l'air à la pression atmosphérique, nous avons utilisé un spectromètre d'émission optique compact de marque Ocean Optics et de type HR2000 + ES. De dimensions très compactes ($148,6 \times 104,8 \times 45,1 \text{ mm}^3$) et un poids plume de 570 g (Fig. II.13.a), ce spectrophotomètre est de très petite taille le rendant facilement manipulable en gardant des caractéristiques très performantes (Tab. II.2 [8]). Cet appareil permet d'explorer une gamme spectrale s'étendant de 200 à 1100 nm avec une résolution optique de 1,33 nm. Sa longueur focale est de 100 mm avec un rapport f/D de $f/4$.

Le trajet de la lumière à caractériser dans ce spectrophotomètre est schématisé sur la figure II.13.b. Du connecteur SMA (1) du spectrophotomètre, la lumière est introduite dans le spectrophotomètre par une fente (2), elle passe ensuite par un filtre (3), elle tombe sur un miroir qui l'oriente vers un réseau de diffraction (5). La lumière diffractée est dirigée vers un miroir de focalisation qui la réfléchit sur une lentille collectrice du détecteur (7). Le détecteur CCD (8) converti cette lumière incidente en un signal électrique numérique.

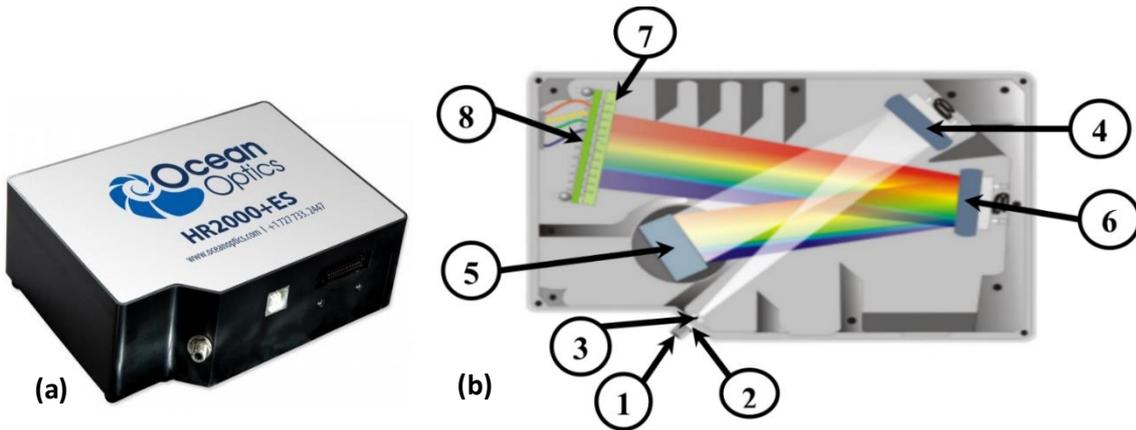


Fig. II.13 : Photo (a) et schéma de l'intérieur (b) du spectromètre d'émission optique Ocean Optics HR 2000+ES (1 : Connecteur SMA ; 2 : Fente ; 3 : Filtre ; 4 : Miroir de collimation ; 5 : Réseau de diffraction ; 6 : Miroir de focalisation ; 7 : Lentille collectrice ; 8 : Détecteur CCD) [9].

Spécifications	
Capteur CCD	Sony ILX-511B
Longueur d'onde	190 – 1100 nm
Temps d'intégration	1 ms – 65 sec
SNR	250 :1
Fente	10 μm
Résolution optique	1.33 nm
Lumière parasite	<0.05% à 600 nm ; <0.1% à 435 nm
Fibre optique	QP400-2-SR-BX
Connecteur fibre optique	SMA 905 à 0.22 NA
Température de travail	-10 à 50 °C
Humidité	0 à 90 % non-condensée

Tab. II.2 : Caractéristiques techniques du spectrophotomètre Ocean Optics HR 2000 + ES.

Ce signal est traité par le logiciel OOIBase32 fourni avec le spectrophotomètre (signalons qu'un deuxième logiciel appelé OceanView et qui a été fourni avec le spectromètre peut être utilisé pour l'enregistrement et l'analyse des spectres d'émission optique du jet de plasma). Nous obtenons ainsi un spectre d'émission optique représentant les raies d'émission des espèces radiatives du jet de plasma.

La lumière émise par le jet de plasma est collectée par la lentille de collimation 74 UV-VIS (Fig. II.14.a) permettant de travailler dans une gamme de longueur d'onde 200 – 2000 nm ; elle est ensuite véhiculée vers le spectromètre par le biais de la fibre optique de type QP400-2-SR-BX de Ocean Optics Inc. (Fig. II.14.b). Cette fibre d'une longueur de 200 cm se termine par deux extrémités munies chacune d'un connecteur de type SMA 900 qui permet de la relier au spectromètre. Elle a un diamètre de cœur de 400 μm et est munie

d'une gaine métallique lui conférant une bonne résistance à la solarisation. Elle couvre une gamme de longueur d'onde variant de 200 à 1100 nm.

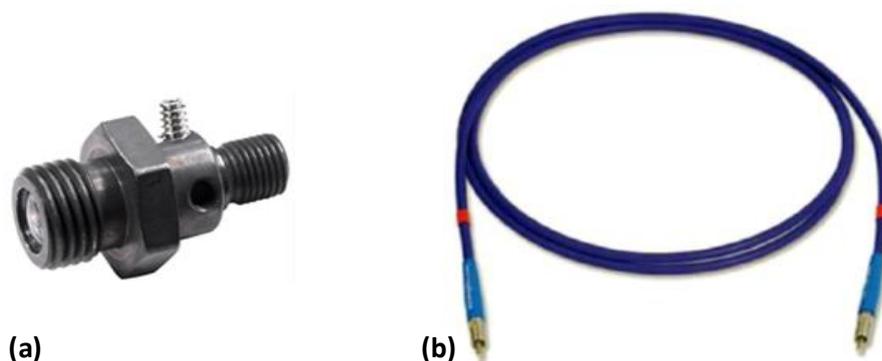


Fig. II.14 : Photos de la lentille de collimation 74 UV-VIS (a) et de la fibre optique de type QR-400-7-SR (b).

II.3 – Bancs de caractérisation chimique

II.3.1 – Spectroscopie d'absorption moléculaire

II.3.1.1 – Principe de fonctionnement

La spectroscopie d'absorption moléculaire comme son nom l'indique, repose sur la mesure de l'absorption des molécules d'une lumière émise par une source UV-Vis-NIR. Sachant que chaque molécule absorbe une longueur d'onde λ bien déterminée, le spectre d'absorption nous donne la composition du milieu analysé ainsi que les différentes concentrations des composées constituant ce milieu.

Avant d'atteindre le détecteur, la lumière polychromatique traverse un système dispersif (monochromateur) qui la décompose en une lumière monochromatique. Cette dernière traverse une fente fine pour ensuite traverser l'échantillon et arriver au photo-détecteur (Fig. II.15). Ce dernier, mesure l'intensité du rayonnement transmis après absorption par le milieu caractérisé.

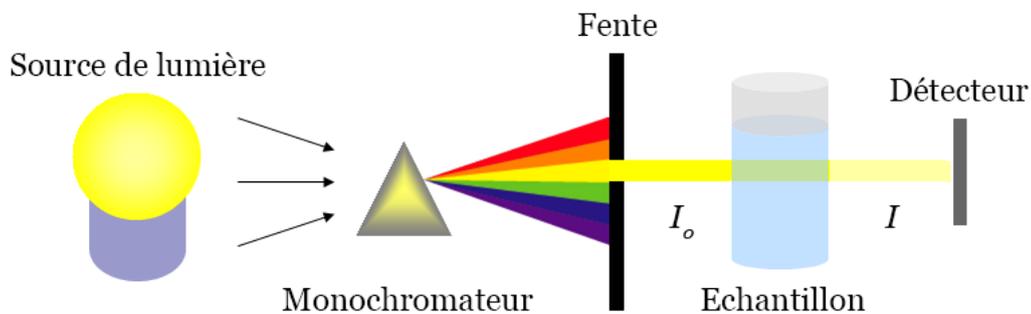


Fig. II.15 : Schéma du principe de fonctionnement d'un spectrophotomètre d'absorption moléculaire [10].

II.3.1.2 – Loi de Beer–Lambert [11]

Lorsqu'un faisceau de lumière traverse un milieu absorbant de petit volume, il transfère une certaine partie de son énergie aux molécules constituant ce milieu, amenant à une diminution de son irradiance (I). Cette diminution est proportionnelle à l'irradiance de la lumière traversant le milieu, la concentration (C) des molécules responsables de l'absorbance et de la distance (dx) parcourue par le faisceau de lumière dans le milieu et ce suivant la relation suivante :

$$\frac{dI}{dx} = -\varepsilon IC \quad (\text{II.1})$$

En intégrant l'équation (II.1), on obtient la relation :

$$I = I_0 \exp^{-\varepsilon l C} = I_0 10^{-\varepsilon l C} = I_0 10^{-A} \quad (\text{II.2})$$

Où A est la densité d'absorbance ($A = -\varepsilon l C$) et ε le coefficient de l'absorption molaire.

II.3.1.3 – Equipements utilisés

Pour la mesure de l'absorbance de solutions contaminées par des microorganismes vivants, nous avons utilisé un spectromètre d'absorption moléculaire de marque Shimadzu de type UV-1800 UV-VIS [12] (Fig. II.16). Son principe de fonctionnement repose sur la mesure de la lumière monochromatique émise par la source et ce, après sa traversée d'une micro multi-cellules en quartz composée de 16 microcellules. Le faisceau lumineux traverse une seule microcellule à la fois avant d'atteindre une photodiode en silicium qui sert de détecteur. La source de lumière, la microcellule et le détecteur sont en parfait alignement. L'utilité d'une multi-cellule réside dans la capacité d'effectuer plusieurs mesures successives dans un temps réduit. Le spectromètre d'absorption moléculaire Shimadzu UV-1800 est doté d'une porte cellule motorisée qui déplace cette dernière avec précision afin de préserver l'alignement avec la source de lumière et le détecteur.



Fig. II.16 : Photo du spectrophotomètre UV-Visible Shimadzu UV-1800.

Les données collectées seront ensuite traitées par le logiciel UVProbe associé au spectromètre afin d'obtenir un spectre d'absorption. La quantité de la lumière de longueur d'onde donnée qui a été absorbée correspond à la concentration de l'espèce dont l'énergie d'excitation correspond exactement à cette longueur d'onde. Pour le calcul de cette concentration, on utilise des équations obtenues après étalonnage.

II.3.2 – Mesure du potentiel hydrogène

En 1909 Søren Peder Lauritz Sørensen [13, 14] (1868 – 1939), un chimiste danois, donna la première définition du potentiel hydrogène ou pH comme étant la concentration des atomes d'hydrogène présente dans un milieu aqueux.

$$pH = -\log(c_H/c^0) \quad (\text{II. 3})$$

Avec :

c_H : Concentration d'hydrogène [mol/l]

c^0 : 1 mol/l est la concentration standard

En 1924 Sørensen corrigea sa formule après l'introduction du concept de l'activité chimique d'une espèce. La formule du pH sera alors donnée sous la forme [14] :

$$pH = -\log(a_H) = -\log(m_H\gamma/m^0) \quad (\text{II. 4})$$

Avec :

a_H : Activité des ions hydrogène

γ : Coefficient d'activité molaire des ions d'hydrogène à la molarité m_H

m_H : Molarité des ions d'hydrogène

m^0 : 1 mol/kg est la molalité standard

II.3.2.1 – Principe de fonctionnement d'un pH mètre

Selon l'application, il existe plusieurs types de *pH* mètres. Cependant, leur principe de fonctionnement reste le même. Un *pH* mètre est constitué soit d'une électrode combinée ou de deux électrodes indépendantes. La première électrode est appelée électrode de mesure, elle comporte un filament plaqué chlorure d'argent ou d'un filament d'argent avec une extrémité plaqué chlorure d'argent, immergé dans une solution de chlorure de potassium KCl tamponné à *pH* 7. L'ensemble est contenu dans un tube en verre fin sensible aux variations du *pH*, souvent appelé la membrane de verre. La deuxième électrode appelée électrode de référence ou l'électrode Ag\AgCl est constituée également d'un filament plaqué chlorure d'argent ou d'un filament d'argent avec une extrémité plaqué chlorure d'argent (dans certain cas on utilise un filament en chlorure de potassium avec une extrémité en chlorure de mercure) immergée dans un gel aqueux de KCl. L'ensemble est contenu dans un tube en verre ou de plastique comportant une jonction poreuse permettant la création d'un contact électrique entre l'électrode de référence et le milieu externe. Le potentiel de l'électrode de référence est toujours constant [15, 16].

En immergeant le *pH* mètre dans une solution, une différence de potentiel s'instaure entre l'intérieur et l'extérieur de l'électrode de mesure. On peut déduire le *pH* de la solution en utilisant l'équation de Nernst [17] décrivant le potentiel électrochimique d'une cellule et qui s'écrit :

$$E = E_0 - \frac{RT}{nF} \ln(Q) \quad (\text{II. 5})$$

Avec :

E : Potentiel de l'électrode de mesure

E_0 : Potentiel de référence

R : Constante universelle des gaz parfaits

T : Température en Kelvin

n : Nombre d'électrons transférés dans la demi-réaction

F : La constante de Faraday

Q : Quotient de réaction

En simplifiant l'équation (II.5) on obtient l'équation : $E = E_0 + \frac{0.059}{n} \log\left(\frac{[H_{int}^+]}{[H_{ext}^+]}\right)$

$$E = E_0 + \frac{0.059}{n} (\log [H_{int}^+] - \log [H_{ext}^+]) \quad (\text{II.6})$$

Le pH interne étant de valeur constante, l'équation (II.6) s'écrira sous la forme

$$E = E'_0 + \frac{0.059}{n} pH_{ext} \quad (\text{II.7})$$

Avec $E'_0 = E_0 - \frac{0.059}{n} pH_{int} = \text{Constante}$

II.3.2.2 – Appareil de pH utilisé

Le pH mètre utilisé est un pH mètre de marque Hanna de type HI 991001 (Fig. II.17) [18]. Il permet de faire des mesures dans une gamme de valeurs de pH allant de -2 à 16 avec une précision de $\pm 0,02$ et une résolution de 0.01. Il est également capable de mesurer la température dans l'intervalle -5 – 80 °C avec une précision de $\pm 0,5$ °C et une résolution de 0,1 °C. Ce pH-mètre est doté d'une sonde HI 1296D avec une gamme de mesure de pH allant de 0 à 13 [19] et qui contient une électrode de référence Ag/AgCl et un corps en titane, ce qui la rend résistante aux produits chimiques. Cet appareil est muni d'un amplificateur intégré qui permet une réduction du bruit électrique et ainsi ses retombées néfastes sur la mesure du pH à haute impédance.



Fig. II.17 : Photo du pH mètre Hanna HI 991001 avec la sonde HI 1296D.

Conclusion

Dans ce chapitre nous avons décrit l'ensemble des dispositifs que nous avons utilisés pour la réalisation des différentes études menées dans cette thèse. Ces dispositifs nous ont données la possibilité de mesurer le signal électrique permettant la création de la décharge électrique, de diagnostiquer la radiation émise par le jet de plasma et de vérifier la présence de certaines espèces chimique dans un milieu aqueux suite à un traitement par notre jet de plasma.

Références

- [1] H. Lee, J. Bang, C. Chung, “Effects of RF bias power on electron energy distribution function and plasma uniformity in inductively coupled argon plasma”, *Thin Solid Films*, 519(20), (2011), pp.7009–7013.
- [2] X. Li, P. Jia, C. Di, W. Bao, C. Zhang, “Effects of Gas Flow Rate on the Discharge Characteristics of a DC Excited Plasma Jet”, *Plasma Science and Technology*, 17(9), (2015), pp.738–742.
- [3] M. T. Benabbas, S. Sahli, A. Benhamouda, S. Rebiai, “Effects of the electrical excitation signal parameters on the geometry of an argon-based non-thermal atmospheric pressure plasma jet”, *Nanoscale Research Letters*, 9(1), (2014), p.697.
- [4] <http://redline-technologies.de/products/plasma-generator-g2000/> (01 Oct. 2017).
- [5] T. Manley, “The Electric Characteristics of the Ozonator Discharge”, *Transactions of The Electrochemical Society*, 84(1), (1943), p.83.
- [6] H. R. Griem, “Principles of Plasma Spectroscopy”, New York : Cambridge University Press, (1997), pp.99–101.
- [7] <https://fr.khanacademy.org/science/physics/light-waves/introduction-to-light-waves/a/light-and-the-electromagnetic-spectrum> (05 Jan. 2018).
- [8] <https://oceanoptics.com/product/hr2000es/> (05 Oct. 2017).
- [9] <http://oceanoptics.com/wp-content/uploads/hr2000-.pdf> (05 Oct. 2017).
- [10] https://chem.libretexts.org/core/physical_and_theoretical_chemistry/kinetics/reaction_rates/experimental_determination_of_kinetics/spectrophotometry (27 Mar. 2018).
- [11] W. Parson, “Modern Optical Spectroscopy”, Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, (2015), pp.3.
- [12] https://www.shimadzu.com/an/molecular_spectro/uv/uv1800/uv.html (05 Oct. 2017).
- [13] R. J. Myers, “One-Hundred Years of pH”, *Journal of Chemical Education*, 87(1), (2010), pp.30–32.
- [14] R. Buck *et al.*, “Measurement of pH. Definition, standards, and procedures (IUPAC Recommendations”, *Pure and Applied Chemistry*, 74(11), (2002), pp.2169–2200.
- [15] Emerson Process management, “Theory and Practice of pH Measurement”, PN 44–6033/rev. D. Rosemount. Analytical Inc., USA, 2010.
<https://www.emerson.com/documents/automation/manual-theory-practice-of-ph-measurement-en-70736.pdf> (23 Oct. 2017).
- [16] S. Karastogianni, S. Girousi, S. Sotiropoulos, “pH: Principles and Measurement”, *Encyclopedia of Food and Health*, (2016), pp.333–338.
- [17] <http://www.ph-meter.info/pH-Nernst-equation> (01 Jan. 2018).
- [18] <https://hannainst.com/waterproof-portable-ph-meter-hi991001.html> (01 Fev. 2018).
- [19] <https://hannainst.com/hi1296d-titanium-body-ph-electrode-with-din-connector.html> (01 Fev. 2018).

Chapitre III

*Caractérisation électrique et optique du jet
de plasma créé dans l'argon*

Introduction

La création d'un jet de plasma capacitif à pression atmosphérique nécessite l'application d'une tension de l'ordre de quelques kilovolts et ce, afin d'ioniser le gaz entre les électrodes du réacteur. Une configuration adaptée de la géométrie de ce dernier ainsi qu'une maîtrise des performances du générateur d'excitation du jet de plasma permettront de minimiser la consommation de l'énergie et du gaz dans lequel sera créé le jet de plasma. A cet effet, nous avons mené dans cette partie de notre travail, la caractérisation électrique et optique du jet de plasma dans le but de déterminer la dépendance de certaines propriétés de ce dernier avec les paramètres électriques du signal amenant à son excitation. Dans ce chapitre, après la description de la géométrie du réacteur du jet de plasma que nous avons réalisé, nous présenterons les résultats des caractérisations électrique et optique du plasma. Nous nous intéresserons dans un premier temps à la mesure de la puissance et du courant de la décharge et les effets de la variation de la fréquence sur ces deux grandeurs, puis nous présenterons les résultats issus de la caractérisation optique et qui nous ont permis de déterminer la composition de notre jet de plasma. L'influence des paramètres électriques sur la géométrie du jet de plasma ainsi que sur sa composition sera également abordée.

III.1 – Réalisation du réacteur pour la génération du jet de plasma à pression atmosphérique

III.1.1 – Barrière diélectrique du réacteur

Pour la création d'un jet de plasma à pression atmosphérique, il existe plusieurs configurations de réacteurs [1 – 3]. Le réacteur que nous avons réalisé est un réacteur à base d'une décharge à barrière diélectrique (DBD). Il est composé de deux parties : une partie constituée du corps principal permettant la création du jet de plasma et une partie permettant sa manipulation d'une manière sécurisée vis-à-vis des chocs électriques. Le corps principal du réacteur du jet de plasma est de géométrie cylindrique et est formé d'un tube en verre borosilicate comportant deux électrodes métalliques. La forme du diélectrique joue un rôle très important dans le positionnement des électrodes. Ce tube de verre sert comme barrière diélectrique du réacteur et supporte les deux électrodes. Il a une longueur de 63 mm et comporte trois zones de différents diamètres (Fig. III.1).

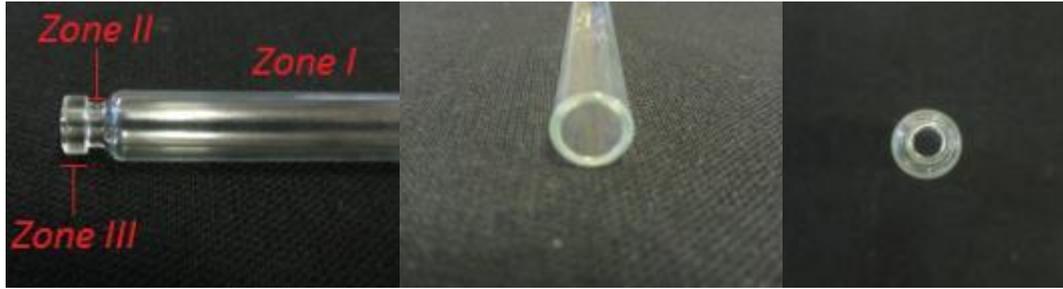


Fig. III.1 : Géométrie du tube de verre borosilicate formant la barrière diélectrique et l'ossature du réacteur.

La première zone a une longueur de 58 mm et un diamètre externe de 8,5 mm avec une épaisseur de 1 mm. La seconde zone de longueur 2 mm a un diamètre externe de 5,5 mm et une épaisseur de 1,25 mm. Elle représente une sorte d'épaulement ou de gorge entre la première zone et la troisième zone. Cette dernière (troisième zone) a une longueur de 3 mm, un diamètre externe de 7 mm et une épaisseur de 7 mm.

Cette géométrie du diélectrique expose l'électrode externe au flux du gaz traversant l'électrode interne, ce qui contribue au refroidissement de cette dernière. La troisième zone avec un diamètre largement supérieur à celui de la deuxième zone, sert à éviter la transition vers le régime d'arc que pourraient causer les turbulences au niveau de la sortie du réacteur.

III.1.2 – Electrodes du réacteur

Nous avons opté pour une configuration à symétrie cylindrique dans laquelle les électrodes seraient disposées l'une par rapport à l'autre d'une manière concentrique. Cette configuration présente un très grand avantage d'un point de vue énergétique. Rappelons que comme le plasma généré est un plasma atmosphérique, la valeur de la tension de claquage nécessaire pour son amorçage pourrait facilement dépasser le kilovolt. Elle pourrait néanmoins être réduite si on diminuait suffisamment la distance inter-électrode (*loi de Paschen* [4]) tout en prenant la précaution d'éviter de passer au régime d'arc et ce, par l'interposition entre les deux électrodes d'une barrière diélectrique convenablement choisie. Dans notre cas, nous avons fixé la distance inter-électrode D_e à 2 mm.

L'électrode externe est constituée d'un filament en tungstène de diamètre 0,5 mm que nous avons enroulé tout autour de la gorge du tube (seconde zone) du tube sur plusieurs spires (Fig. III.2). Le filament utilisé est nu sans aucune protection isolante dessus, ce qui permet un contact électrique permanent entre les différentes spires évitant ainsi la création d'un champ magnétique.



Fig. III.2 : Photos montrant l'enroulement de l'électrode externe du réacteur autour de la gorge du tube de verre borosilicate.

Pour une meilleure isolation électrique et pour une meilleure fixation mécanique, cet enroulement est enrobé d'une couche de résine de diamètre externe de 10 mm. Cette résine enrobe également la zone 3 du tube de verre (Fig. III.3).



Fig. III.3 : Photo de l'ossature du réacteur faisant apparaître la résine enrobant l'électrode externe.

L'électrode interne est constituée d'un tube en acier inoxydable de 6 mm de diamètre extérieur et de 1 mm d'épaisseur. Cette électrode creuse est insérée à l'intérieur du tube en verre borosilicate tout le long de son axe, sur une longueur légèrement inférieure à la longueur du tube de verre borosilicaté. Comme son diamètre extérieur est légèrement inférieur au diamètre intérieur du tube de verre borosilicate, pour la maintenir bien centrée à l'intérieur du tube, nous avons confectionné autour de cette électrode deux espaceurs en enroulant dessus un ruban de polytétrafluoroéthylène (PTFE). Ces espaceurs de diamètre extérieur égal au diamètre interne du tube de verre borosilicate sont positionnés dans la partie insérée du tube en inox de telle façon à compenser l'écart entre son diamètre externe et le diamètre interne du tube de verre borosilicate (Fig. III.4). Signalons que cette électrode sert également comme une amenée et passage du gaz rare (l'argon) que nous avons utilisé pour la création de notre jet de plasma.



Fig. III.4 : Photo montrant deux enroulements de rubans en PTFE, utilisés pour centrer l'électrode interne (tube en acier inox) dans le tube de verre borosilicate.

III.1.3 – Réalisation des isolations électriques pour la manipulation du réacteur

Nous avons inséré le corps principal du réacteur du jet de plasma décrit précédemment (tube de verre borosilicate avec ses deux électrodes) dans un tube en téflon de 60 mm de longueur et de 10 mm de diamètre interne avec 7 mm d'épaisseur, l'ensemble est ensuite inséré dans un autre tube en verre. Nous avons recouvert l'extrémité de ce tube en verre avec un disque doté d'un orifice de 5 mm de diamètre (Fig. III.5). Cette combinaison sert à protéger l'utilisateur et le patient (dans le cas où la distance entre la surface traitée et la source du jet est trop petite) respectivement de tout choc électrique pouvant être provoqué par la haute tension nécessaire à l'amorçage de notre jet de plasma ainsi qu'une éventuelle transition vers le régime d'arc.

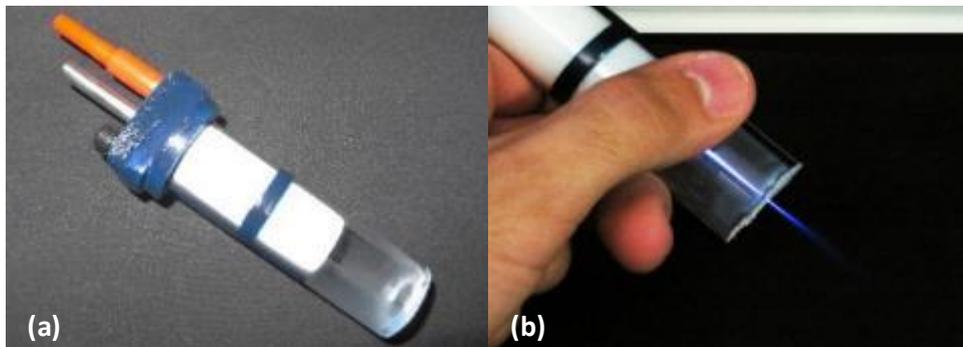


Fig. III. 5 : Photos du réacteur du jet de plasma muni du tube de verre permettant sa manipulation d'une manière sécurisée.

III.2 – Caractérisation électrique du jet de plasma

Nous entendons par caractérisation électrique de la décharge plasma toutes les mesures de courant, de tension et de puissance au niveau de cette dernière. A travers cette caractérisation, nous cherchons à déterminer l'influence des paramètres électriques sur les propriétés optique et géométrique du jet de plasma généré. Durant toutes les expériences que nous avons menées dans cette partie de notre étude, le débit du gaz utilisé (argon) a été

gardé constant et est égal à 3 litres/minute. La température ambiante se situe dans la plage 22 – 25 °C alors que l'humidité relative dans la salle de manipulation varie entre 50 et 60%. La valeur de la tension que nous avons appliquée pour la création du jet de plasma dans l'argon à la pression atmosphérique en utilisant le banc reporté sur la figure III.6, se situe entre 6 et 9 kV avec une fréquence variant entre 4 et 27 kHz.



Fig. III.6 : Banc mis en place pour la création du jet de plasma avec une excitation AC.

III.2.1 – Etude de la puissance consommée par le jet de plasma

La puissance du plasma est la quantité d'énergie transférée à la décharge ou uniquement consommée par cette dernière. Pour le même type de gaz et la même distance inter-électrode, cette énergie dépend de deux paramètres principaux : la tension appliquée et la fréquence du signal.

III.2.1.1 – Puissance instantanée et puissance moyenne

La puissance instantanée est la quantité de puissance $P(t)$ consommée à tout instant par une charge ; dans notre cas cette charge est constituée par la décharge plasma elle-même.

$$P = \frac{1}{\tau} \int_0^{\tau} P(t) dt \quad (\text{III. 1})$$

La grandeur la plus signifiante est la valeur moyenne qui, dans ce cas, représente la puissance consommée par cycle par la décharge plasma.

$$P = U_{max} * I_{max} \cos \theta \quad (\text{III. 2})$$

Avec U_{max} la valeur maximale de la tension appliquée, I_{max} la valeur maximale du courant parcourant le circuit et θ le déphasage entre le courant et la tension.

Sachant que la tension appliquée est un signal sinusoïdal parfait, le courant mesuré représente un aspect plus complexe. Composé d'une partie capacitive et d'une partie impulsionnelle, le résultat donné par l'expression (III.2) manque d'exactitude étant donné que cette expression n'est applicable qu'avec des signaux sinusoïdaux parfaits. Dans le cas d'une décharge, si nous considérons I_{max} comme la valeur maximale du courant dans la partie capacitive uniquement, la puissance des impulsions sera négligée. Dans le cas inverse, si nous considérons I_{max} comme la valeur maximale du courant de la partie impulsionnelle, il y'aura une surestimation de la puissance consommée par cycle car suivant la formule, notre courant sera considéré comme un signal sinusoïdal d'une amplitude I_{max} .

III.2.1.2 – Mesure de la puissance par la méthode Manely

La mesure de la puissance par la méthode Manely a été décrite par *T. C. Manley* [5] en 1943. Elle consiste à tracer la variation de la quantité de charges stockées par le condensateur monté en série avec le réacteur au niveau de l'électrode de masse, en fonction de la tension appliquée aux bornes du réacteur. Le tracé obtenu est une courbe de *Lissajous* sous forme d'un parallélogramme (Fig. III.7) dont la surface A correspond à l'énergie W consommée par le plasma du fait que la variation de la quantité de charges Q au niveau de ce condensateur, reflète la quantité de charges au niveau du réacteur.

$$P = U_{max} * I_{max} \cos \varphi \quad (\text{III. 3})$$

La géométrie de ce parallélogramme ne donne pas seulement une idée sur l'énergie mais également sur la capacité totale du réacteur C_r , du gaz C_g et du diélectrique C_d . On peut également connaître la tension minimale nécessaire pour claquer le gaz à partir de l'intersection de la courbe de *Lissajous* avec l'axe des abscisses. Sur la figure III.7, la tension de claquage du gaz est ainsi désignée par V_0 et la tension maximale par V_m .

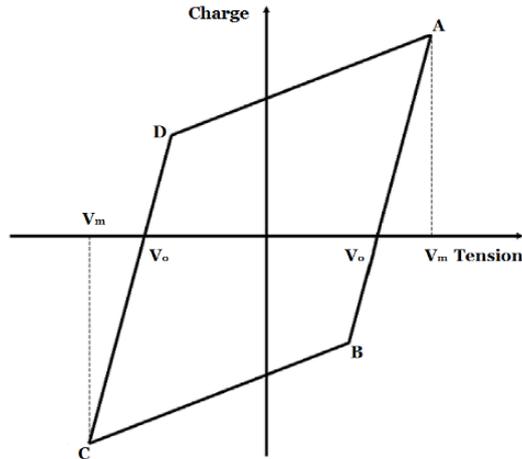


Fig. III.7 : Courbe théorique de *Lissajous* pour une décharge plasma.

Le schéma du circuit électrique équivalent d'un réacteur avec une barrière diélectrique est représenté sur la figure III.8 [6]. Ce dernier est constitué d'un premier condensateur représentant la capacité du diélectrique et d'un second en série avec le premier représentant la capacité du gaz. En présence d'une décharge, une résistance en parallèle s'ajoute au second condensateur.

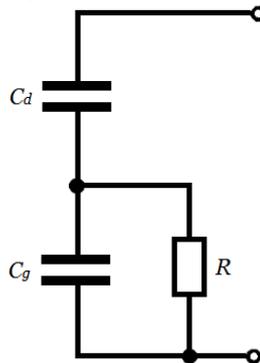


Fig. III.8 : Schéma du circuit électrique équivalent d'un réacteur avec une barrière diélectrique.

Pendant la période où nous avons une décharge, le plasma remplit la zone de décharge afin qu'il n'y ait pas de chute de tension au niveau de cette dernière. Par conséquent, les pentes AD et BC représentent la capacité du réacteur. La présence de la décharge diminue la résistivité du gaz et donc sa résistance passe d'une valeur infinie à une valeur R (d'où l'ajout d'une résistance en parallèle avec C_g). Durant la phase BC , il n'y a aucune décharge, l'espace entre les électrodes est rempli par le gaz (l'argon dans notre travail), dans ce cas les pentes BC et DA représentent la capacité du diélectrique. A cet effet, on peut considérer que la valeur de la résistance est très grande, simplifiant par conséquent le circuit équivalent qui

devient alors composé de deux condensateurs en série C_d et C_g . A partir du point C , les conditions de claquage commencent à se rétablir en reprenant le même cycle [7, 8].

La quantité de l'énergie dissipée par cycle est donc donnée par l'expression (III.4) qui représente géométriquement la surface du parallélogramme. W s'écrit sous la forme [5] :

$$W = 4C_d V_0 \left(V_m - \left(\frac{C_g}{C_r} \right) V_0 \right) \quad (\text{III. 4})$$

Avec : V_m la tension maximale, V_0 la tension de claquage et C_r la capacité du réacteur s'écrivant :

$$\frac{1}{C_r} = \frac{1}{C_d} + \frac{1}{C_g} \quad (\text{III. 5})$$

Sachant que l'énergie en régime permanent est le multiple de la puissance par la période, l'expression de la puissance P s'écrit sous la forme :

$$P = 4f C_d V_0 \left(V_m - \left(\frac{C_g}{C_r} \right) V_0 \right) \quad (\text{III. 6})$$

Où f représente la fréquence du signal d'excitation du plasma.

III.2.1.3– Effet de la tension appliquée et de sa fréquence sur la variation de la puissance

En appliquant une tension alternative entre 6 et 9 kV crête à crête dans deux gammes de fréquences différentes (la première entre 4 et 8 kHz et la seconde entre 21 et 27 kHz), nous avons généré un jet de plasma de 3,5 cm de longueur. Le choix de ces deux gammes de fréquences a été en réalité imposé par les caractéristiques des deux transformateurs que nous avons utilisés comme il a été mentionné dans le chapitre précédent.

Les résultats que nous avons obtenus sont représentés sur les figures III.9.a et III.9.b. Nous pouvons clairement constater graphiquement l'effet de l'augmentation de la tension appliquée (Fig. III.9.a) sur l'augmentation de la puissance. L'effet de la fréquence (Fig. III.9.b) est moins visible car la courbe de *Lissajous* ne dépend pas du temps (et donc de la fréquence).

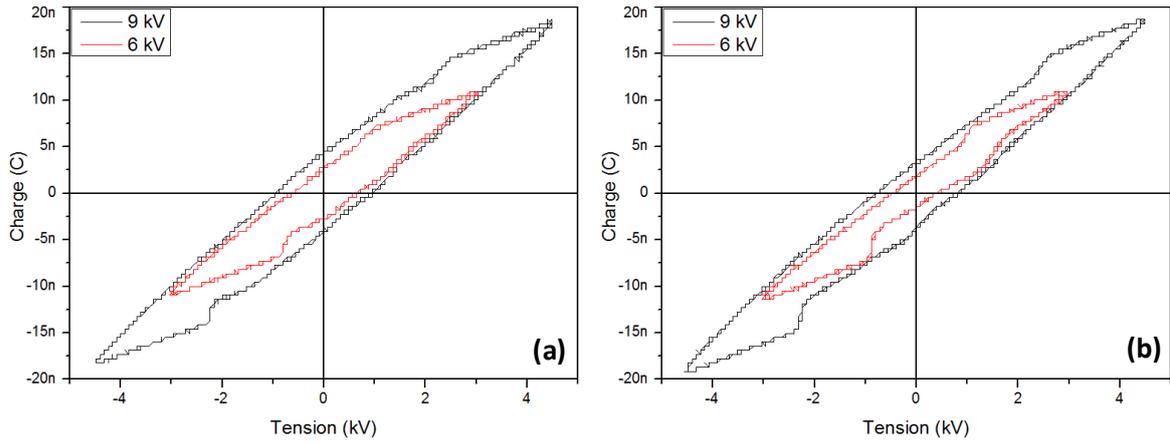


Fig. III.9.a : Effet de la tension d'excitation du jet de plasma sur la forme des courbes de Lissajous : (a) : $f = 4$ kHz, (b) : $f = 27$ kHz.

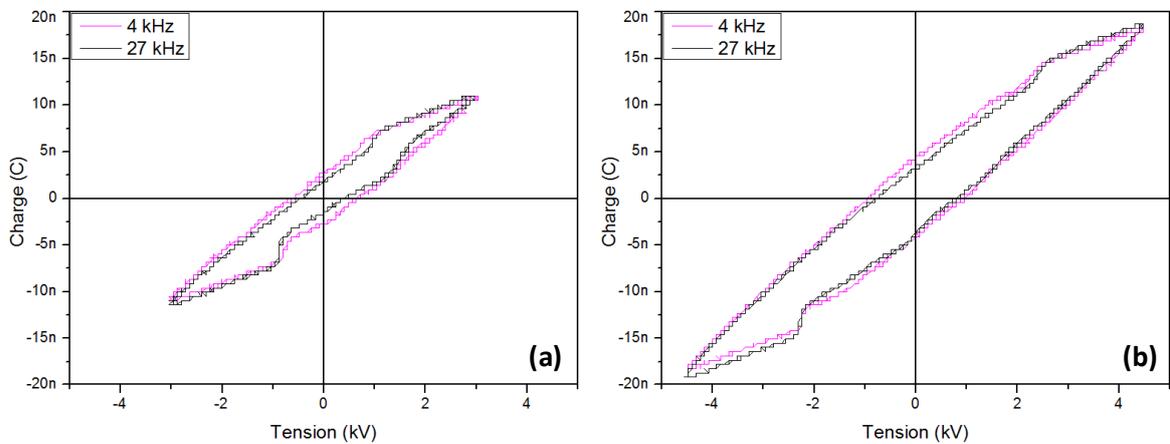


Fig. III.9.b : Effet de la fréquence du signal d'excitation du jet de plasma sur la forme des courbes de Lissajous : (a) $V = 6$ kV, (b) : $V = 9$ kV.

La variation de la puissance consommée en fonction de la tension appliquée et de la fréquence est représentée sur les figures III.10 et III.11 respectivement.

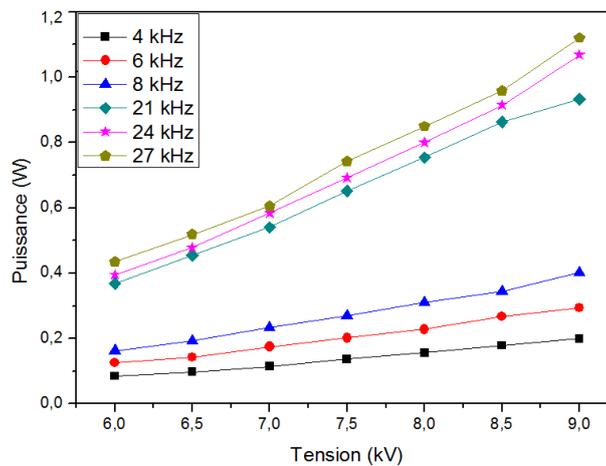


Fig. III.10 : Variation de la puissance consommée en fonction de la tension appliquée pour différentes fréquences.

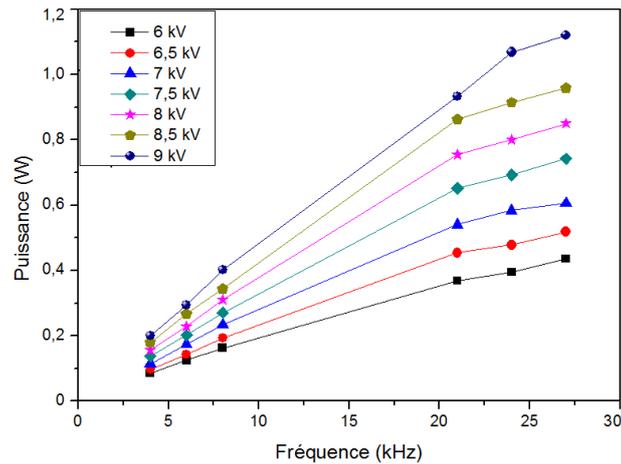


Fig. III.11 : Variation de la puissance consommée en fonction de la fréquence pour différentes les tensions appliquées.

La puissance du plasma augmente avec l'augmentation de la tension électrique appliquée. Pour une fréquence du signal d'excitation de 4 kHz, la puissance délivrée par le jet de plasma varie de la valeur d'environ 0,1 watt pour une tension d'excitation du plasma de 6 kV à près de 0,2 watt pour une tension de 9 kV, soit une augmentation de près de 100%. Cette augmentation est d'autant plus importante que la fréquence du signal d'excitation est plus élevée. Ainsi, lorsque cette dernière atteint 27 kHz, la puissance du jet de plasma varie de 0,42 watt à près de 1,11 watts dans le même domaine de la tension appliquée, soit une augmentation de près de 164%. Pour une tension d'excitation du plasma de 6 kV, elle passe d'environ 0,1 watt pour une fréquence de 4 kHz à environ 0,4 watt pour une fréquence de 27 kHz. Un comportement semblable a été observé par Khatun *et al.* dans une gamme de tension allant de 1,8 à 2,4 kV pour une fréquence du signal de 35 et 45 kHz [9] et par Kriegseis *et al.* dans une gamme de tension allant de 6,5 à 12,5 kV et de fréquence allant de 8 à 13 kHz [10]. Nous remarquons par ailleurs l'existence d'une différence dans l'évolution de la puissance consommée en fonction de la tension appliquée par rapport à celle en fonction de la fréquence d'excitation du signal électrique appliqué. La variation de la puissance consommée montre une augmentation quasi-linéaire [11] en fonction de la tension appliquée et ce, pour toutes les valeurs de fréquences explorées. Cependant, dans notre cas, cette variation de puissance présente deux pentes de variation en fonction de la fréquence du signal d'excitation électrique : une augmentation linéaire dans le domaine de fréquence 4 – 21 kHz, puis une augmentation moins prononcée dans le domaine 21 – 27 kHz. L'existence de ce deuxième domaine de variation moins rapide de la puissance du plasma en fonction de la fréquence du signal électrique d'excitation nous laisse suggérer qu'une augmentation de la fréquence au-delà de 27 kHz conduira probablement à une saturation au niveau de la puissance consommée pour une valeur de tension fixe. Selon la

tension appliquée, Deepak *et al.* ont observé un comportement similaire pour une tension de 4,5 kV, une variation linéaire pour une tension de 5,5 kV et une variation exponentielle pour une tension de 3,5 kV [12].

Sur la figure III.12, nous avons représenté l'effet de la variation la tension et de fréquence sur la variation de la puissance. Cette représentation nous donne un meilleur aperçu de la variation de la puissance pour une variation simultanée du couple tension – fréquence. Elle montre que pour atteindre la même valeur de puissance consommée, il existe plusieurs combinaisons du couple tension – fréquence.

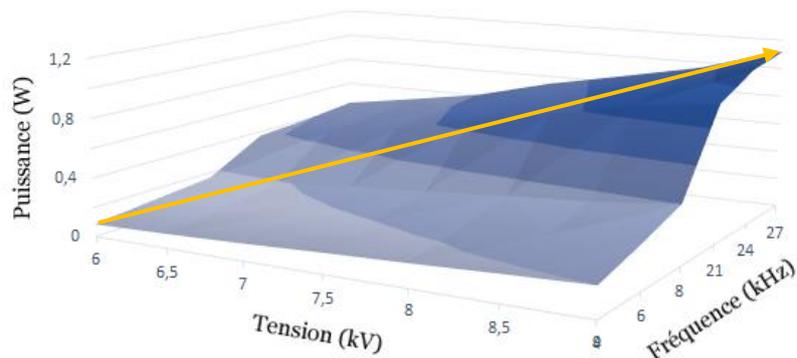


Fig. III.12 : Evolution de la puissance en fonction du couple tension – fréquence.

III.2.1.4 – Effet de la tension appliquée et de sa fréquence sur la tension de claquage

Sur la figure III.13 nous avons reporté la variation de la tension de claquage de la décharge déduite des courbes de Lissajous, en fonction de la valeur de la tension appliquée et ce, pour une distance inter électrode et un flux de gaz gardés constants. Mentionnons que nous désignons par le terme tension de claquage, la valeur de la tension électrique qui permet d'initier la décharge électrique entre les deux électrodes concentriques de notre réacteur. Cette valeur de tension indispensable pour générer le plasma reste cependant très faible pour pouvoir créer un jet de plasma (du moins un jet visible à l'œil nu). Nous remarquons une augmentation linéaire de la tension de claquage de la décharge passant d'environ 1,3 kV pour une tension appliquée de 6 kV à 1,9 kV pour une tension appliquée de 9 kV dans le domaine fréquentiel du signal d'excitation 4 – 8 kHz. Cette allure de variation de la tension de claquage de la décharge est conservée dans le domaine fréquentiel 21 - 27 kHz, avec cependant des valeurs plus faibles, atteignant 0,9 kV pour une valeur de la tension appliquée de 6 kV et 1,6 kV pour une tension appliquée de 9 kV. Ainsi, la tension de claquage augmente proportionnellement avec l'augmentation de la tension appliquée et diminue avec l'augmentation de la fréquence du signal d'excitation du jet de plasma (Fig. III.13). Un comportement similaire de la variation de la puissance en fonction de la tension

appliquée sous forme de courbe de Lissajous a été retrouvé par Mahammadunnisa *et al.* [13].

Sous les mêmes conditions de pression, de distance inter-électrode et pour le même type de gaz, la tension de claquage une fois atteinte, devrait être indépendante de la tension appliquée pour l'excitation et l'entretien du plasma (du moment que la valeur de cette dernière reste supérieure).

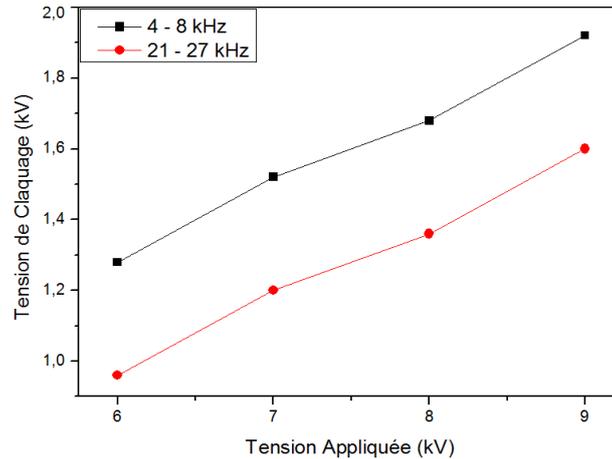


Fig. III.13 : Variation de la tension de claquage en fonction de la tension appliquée.

Cette évolution de la tension de claquage pourrait être due au fait qu'une augmentation de la tension appliquée engendre une augmentation du nombre de paires électrons – ions, ce qui se traduit par un gain d'intensité du champ électrique locale E' rappelé au chapitre I (sous paragraphes *I.3.2.1* et *I.3.2.2*). Si on considère la présence de ce champ local au moment de la création de la décharge, la tension nécessaire pour claquer le gaz sera supérieure à celle nécessaire dans le cas de l'absence de ce dernier. Nous avons également constaté une augmentation de la capacité du diélectrique C_d . Cette augmentation est due à l'augmentation de la quantité de charges accumulées sur la surface du diélectrique formant la barrière.

La dépendance de la tension de claquage avec la fréquence du signal d'excitation du jet de plasma peut s'expliquer par le fait que comme les ions sont plus lourds que les électrons, au fur et à mesure que la fréquence du signal appliqué augmente, ces derniers suivront plus difficilement les variations du signal et seront ainsi moins mobiles, jusqu'à s'immobiliser complètement pour les fréquences très élevées (quelques MHz). Ce phénomène couramment observé dans les décharges plasmas sous vide excitées à des fréquences radio (13,56 MHz) provoque une accumulation de charges ioniques pour ces hautes valeurs de fréquences, ce qui conduit à l'apparition d'une tension électrique appelée tension d'auto-polarisation [14].

Dans notre cas, lorsque la fréquence du signal d'excitation du plasma est importante, il y a la formation d'un champ électrique suite à cette accumulation de charges au niveau des électrodes, ce qui par conséquent induit une réduction de la tension de claquage. Notons que le flux du gaz dans lequel est créé le jet de plasma (dans notre cas l'argon) peut sous l'effet de sa vitesse, évacuer une proportion de ces porteurs de charges.

III.2.2 – Etude du courant de décharge

Le courant de décharge est le courant traversant la zone de décharge après le claquage du gaz et la création du jet de plasma. Il est mesuré au niveau de l'électrode de masse alors que le courant du jet est un courant local mesuré au niveau du jet lui-même. La mesure du courant de décharge peut donner une idée sur la distribution spatiale des électrons dans le jet ainsi que la densité de ces derniers. Sa mesure est faite à travers la mesure de la tension aux bornes d'une résistance placée en série avec l'électrode de masse et son évolution temporelle est représentée sur la figure III.14.

Nous remarquons que ce courant est constitué de deux composantes, une composante capacitive et une composante sous forme d'impulsions ou de pics. Ces pics correspondent aux filaments créés dans notre décharge DBD, qui rappelons-le, est de type filamentaire. Sa forme est similaire à celle rapportée dans de multiples travaux sur les jets de plasmas dans des gaz tels que l'hélium ou l'argon [15]. Le changement de la valeur de la puissance induit par la variation de la valeur de la tension appliquée et/ou de la fréquence, provoque un changement de l'amplitude et de la forme du courant de décharge.

L'augmentation de la tension de 6 à 9 kV engendre une augmentation considérable du courant capacitif. Ceci est accompagné par une augmentation individuelle modérée de l'intensité des pics pour la même fréquence ainsi que par l'apparition de nouveaux pics de courant. Si l'augmentation du courant capacitif est plus importante que celle des impulsions, ces dernières disparaissent. Lorsque nous varions la fréquence du signal électrique appliqué, des changements sont observés au niveau de l'amplitude et de la forme du courant de décharge.

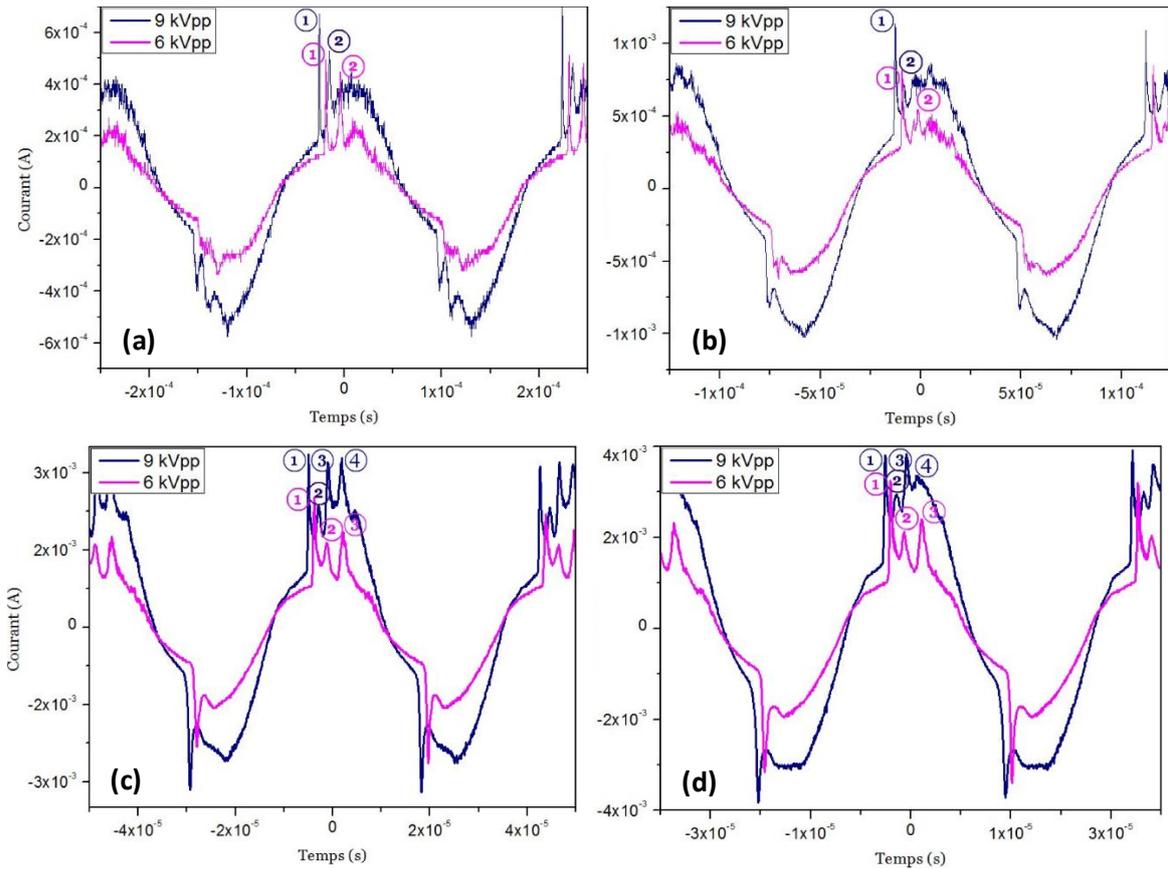


Fig. III.14 : Allure du courant de décharge pour différentes valeurs de la fréquence du signal d'excitation. (a) : $f = 4$ kHz, (b) : $f = 8$ kHz, (c) : $f = 21$ kHz, (d) : $f = 27$ kHz.

Par ailleurs, un changement des positions des différents pics des signaux mesurés est observé comme le montrent les figures III.15 et III.16 représentant les temps d'apparition des différents pics pour des tensions (Fig. III.15) et des fréquences (Fig. III.16) différentes par rapport à un pic de référence (1^{er} pic à 9 kV / 4 kHz). Pour une fréquence fixe et une valeur de tension appliquée variable (Fig. III.15), nous remarquons que la variation du temps de l'apparition des différents pics est inversement proportionnelle à la variation de la tension appliquée et cette variation représente le retard par rapport au pic de référence. Pour une fréquence de 4 kHz, le retard entre l'apparition du 1^{er} pic pour une tension de 9 kV et une tension de 6 kV est de l'ordre de 10^{-4} s. Cette variation reflète le changement de la vitesse des streamers traversant la zone de décharge. Une augmentation de la tension appliquée est accompagnée d'une augmentation du champ électrique, ce dernier est responsable de l'accélération des électrons traversant la zone de décharge.

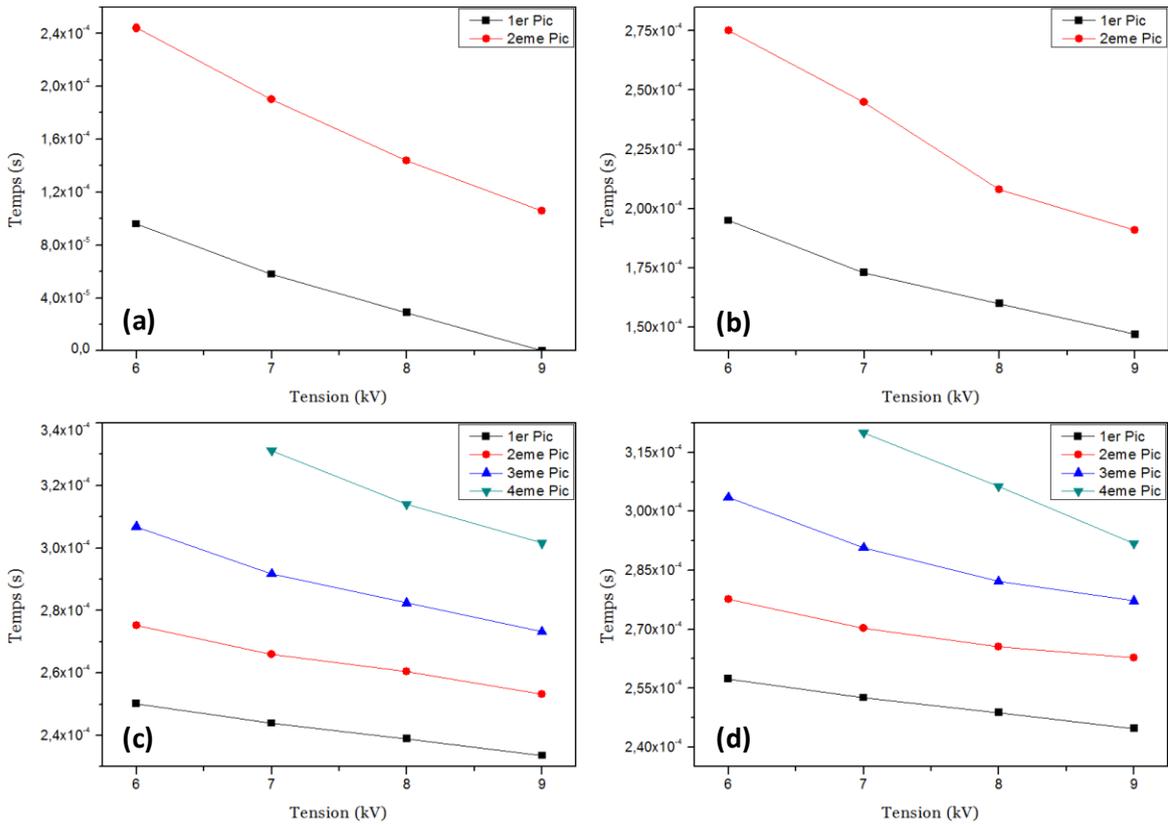


Fig. III.15 : Influence de la tension appliquée sur le temps d'apparition des pics de courant pour des fréquences fixes. (a) : $f = 4$ kHz, (b) : $f = 8$ kHz, (c) : $f = 21$ kHz, (d) : $f = 27$ kHz.

Une augmentation de la fréquence du signal électrique d'excitation de la décharge, provoque par contre un retard du moment de l'apparition des pics de courants (Fig. III.16). Ce retard peut être causé par les porteurs de charges positives. Une augmentation de la fréquence du signal d'excitation immobilise et accumule ces porteurs positifs, induisant la création d'un champ électrique qui s'oppose au mouvement des électrons, provoquant ainsi la diminution de leur vitesse et par conséquent un retard au niveau du temps d'apparition des différents pics de courant.

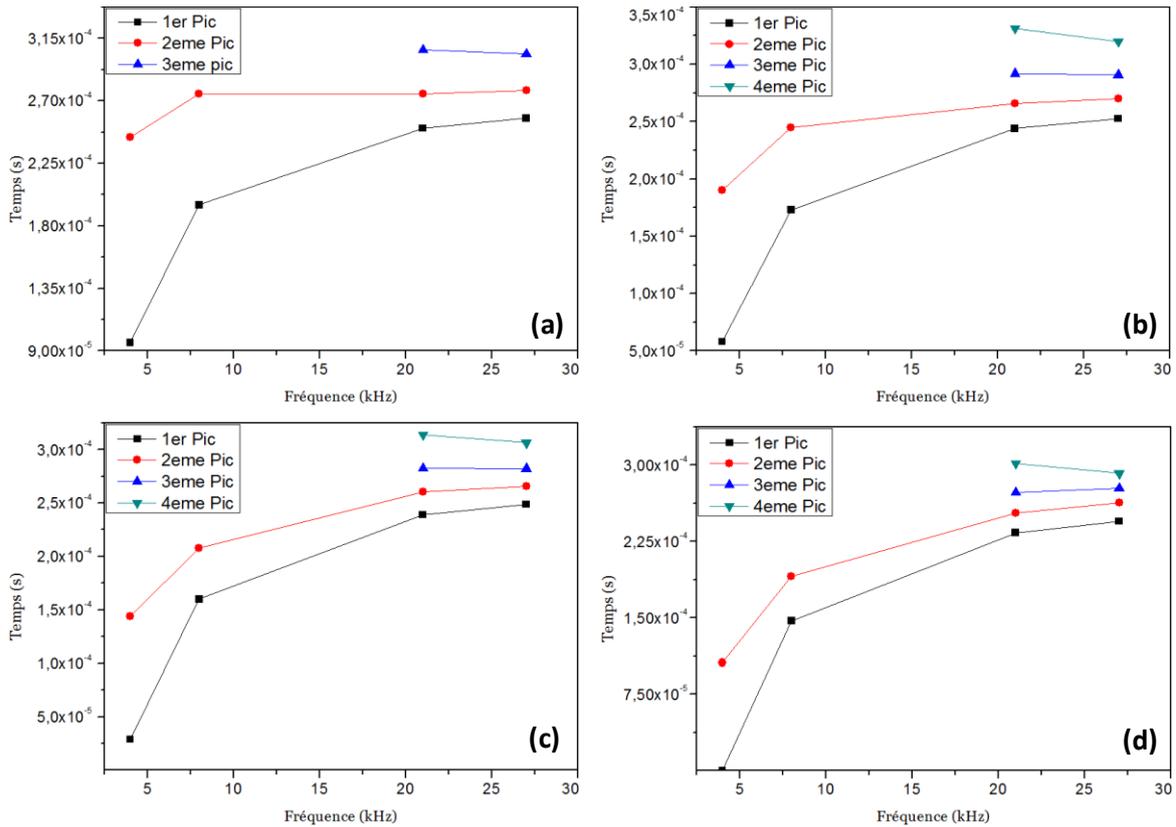


Fig. III.16 : Influence de la fréquence sur le temps d'apparition des pics de courant pour des tensions fixes. (a) : $V = 6$ kV, (b) : $V = 7$ kV, (c) : $V = 8$ kV, (d) : $V = 9$ kV.

III.2.3 – Effet des paramètres électriques sur la géométrie du jet

III.2.3.1 – Effet de la tension et de la fréquence

III.2.3.1.a – Cas d'une excitation électrique de type AC

Dans le cas d'une excitation du jet de plasma en utilisant un signal haute tension AC, nous avons constaté que notre jet de plasma a une forme conique qui se termine par une zone de turbulence si la valeur de la puissance électrique est élevée (Photos de la figure III.17). Cette turbulence est le résultat de l'augmentation de la température du plasma suite à l'augmentation de la puissance, elle influe directement sur la longueur du jet et induit une réduction significative de cette dernière. Li *et al.* [16] ont également montré la présence de cette zone en appliquant une tension alternative de 2,6 kV pour une fréquence de 40 kHz.

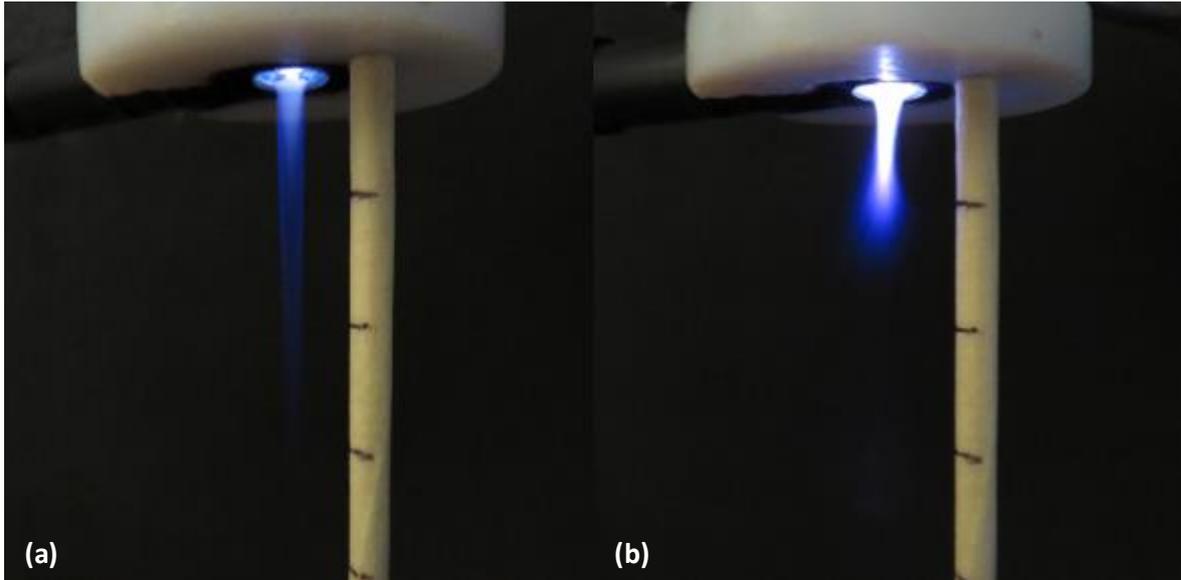


Fig. III.17 : Photos de la forme du jet de plasma pour une puissance de (a) 0,115 W (7 kV, 4 kHz) et (b) 1,12 W (9 kV, 27 kHz), montrant l'apparition d'une zone de turbulence lorsque la puissance du plasma est suffisamment élevée.

Nous avons reporté sur la figure III.18 l'effet de la variation de la tension AC appliquée sur la longueur du jet de plasma. Nous remarquons que dans le domaine de tension exploré (6 – 9 kV) la présence de deux types de variations et ce, en fonction de la fréquence du signal : une variation relativement faible dans la gamme de fréquence 4 – 8 kHz (la longueur du jet varie entre 2,85 et 3,1 cm) et une décroissance importante de la longueur du jet dans la gamme 21 – 27 kHz atteignant près de 50% pour une fréquence de 27 kHz.

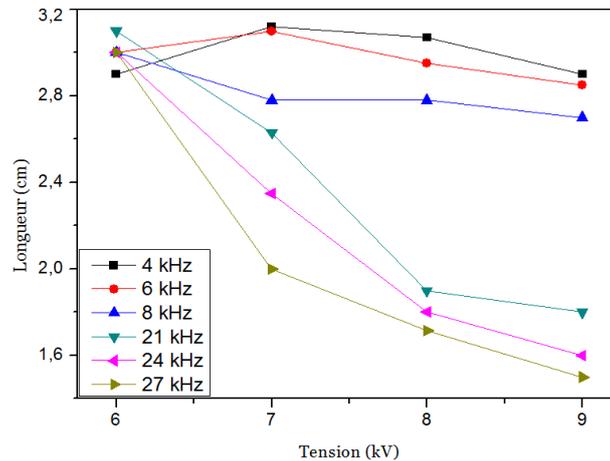


Fig. III.18 : Variation de la longueur du jet de plasma en fonction de la variation de la tension AC appliquée.

L'effet de la fréquence du signal d'excitation AC sur la longueur du jet apparaît d'une manière plus claire sur les courbes de la figure. III.19. Dans le domaine fréquentielle 4 – 27 kHz, nous constatons que pour une tension de 6 kV la variation de la fréquence n'a pas d'effet notable sur la longueur du jet change. Cette dernière reste pratiquement constante

(entre 2,9 et 3 cm). Cependant lorsque la valeur de tension augmente de 7 à 9 kV, la variation de la longueur du jet est inversement proportionnelle à la variation de la fréquence. Ainsi, pour une tension de 9 kV, la longueur du jet passe de 2,9 cm à 4 kHz à 1,5 cm à 27 kHz.

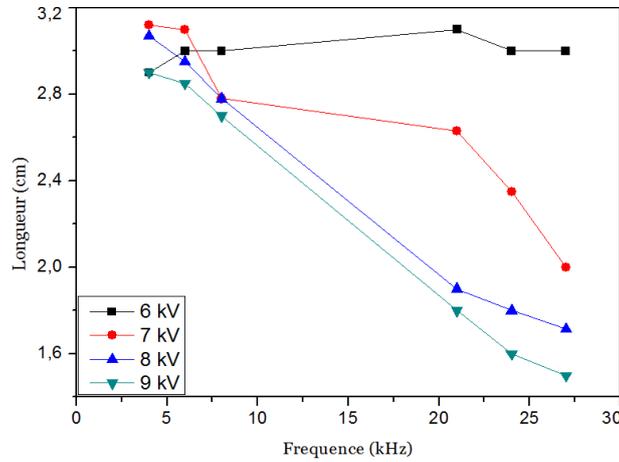


Fig. III.19 : Variation de la longueur du jet de plasma en fonction de la variation de la fréquence du signal appliquée.

Li *et al.* [17 – 18] ont également montré que la longueur d'un jet de plasma créé à une fréquence de 52 kHz dans un flux de différents gaz (argon, néon et hélium) variant d'environ 500 ml/min à 10 litres/min dépend de la tension appliquée. Ils ont révélé que la longueur du jet de plasma créé dans de l'hélium diminue lorsque la tension appliquée pour générer le plasma augmente de 5,7 à 9,9 kV et ce, sur toute la plage du débit d'hélium exploré [17] (Fig. III.20.a). Cependant dans le cas d'un jet de plasma créé dans de l'argon, la dépendance de la longueur du jet de plasma vis-à-vis de la tension appliquée dépend en fait du domaine du débit d'argon exploré [17 – 18].

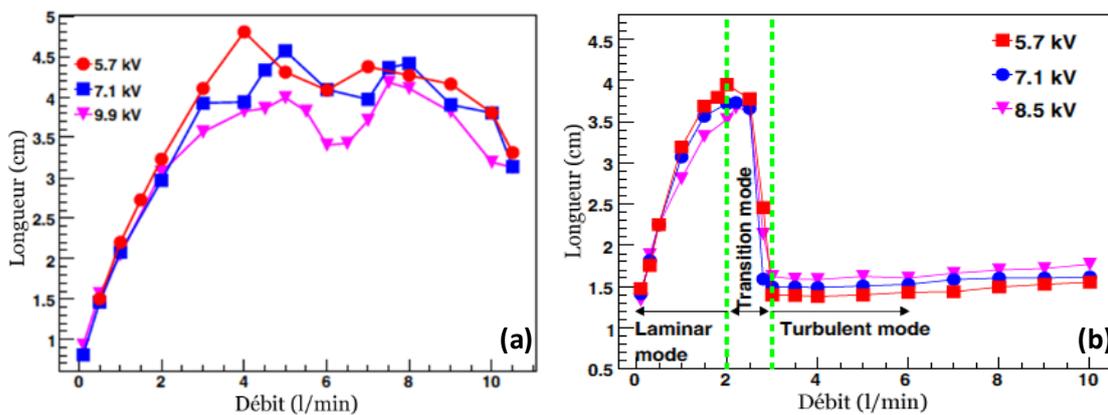


Fig. III.20 : Effet de la tension d'excitation AC du plasma sur l'évolution de la longueur du jet de plasma en fonction du flux d'hélium (a) ou d'argon (b) par Li *et al.* [17].

Si la valeur du débit du gaz dans lequel le plasma a été créé se trouve dans la région 0 – 3 l/min (qu'ils ont appelé mode laminaire lorsque le débit est dans la plage 0 – 2 l/min et mode transitoire lorsque ce débit est dans la plage 2 à 3 l/min), la longueur du jet de plasma diminue lorsque la tension appliquée augmente (Fig. III.20.b). Au-delà d'une valeur de débit d'argon supérieure à 3 l/min appelé mode turbulent, Li *et al.* ont trouvé que le sens de dépendance de la longueur de leur jet de plasma vis-à-vis de la tension appliquée est inversé (la longueur du jet de plasma augmente légèrement lorsque la valeur de la tension appliquée augmente), sans toutefois trouver une explication plausible à la cause de cette inversion. Seo *et al.* ont effectivement trouvé que pour un débit de d'hélium ou d'argon de 4 l/min (donc se trouvant dans la zone de turbulence si on se refait aux travaux de Li *et al.*) la longueur de leurs jets de plasma augmente avec l'augmentation de la tension appliquée [15]. Mentionnons que comme le montre les résultats de la figure III.20 [17], que la diminution de la longueur du jet en fonction de la tension AC appliquée est insignifiante pour les faibles valeurs du flux de gaz utilisé (débits inférieurs à 2 l/min pour les jets de plasma créés dans de l'hélium et inférieurs à 1 l/min pour les jets de plasma créés dans de l'argon).

Quoique les dimensions géométriques du réacteur utilisé par Li *et al.* ainsi que la valeur de la fréquence du signal d'excitation de leur jet de plasma ne soient pas identiques aux nôtres, il apparaît néanmoins que l'évolution de la longueur de nos jets de plasma créé dans l'argon en fonction de la tension AC appliquée pour l'excitation électrique du jet est similaire à celle trouvée par ces auteurs. Par ailleurs, nous pouvons déduire à travers la comparaison de nos résultats aux leurs, que la valeur du débit que nous avons choisi d'une manière aléatoire à 3 l/min, se trouve hors du régime turbulent du gaz.

III.2.3.1.b – Cas d'une excitation électrique de type impulsionnel

Sur la figure III.21 nous avons représenté les photos du jet de plasma que nous avons obtenu en utilisant un signal d'excitation impulsionnel pour deux valeurs différentes de tension d'excitation du plasma en gardant constante la fréquence de ce signal. Il apparaît clairement que l'augmentation de la tension d'excitation du plasma induit une augmentation de la longueur du jet.

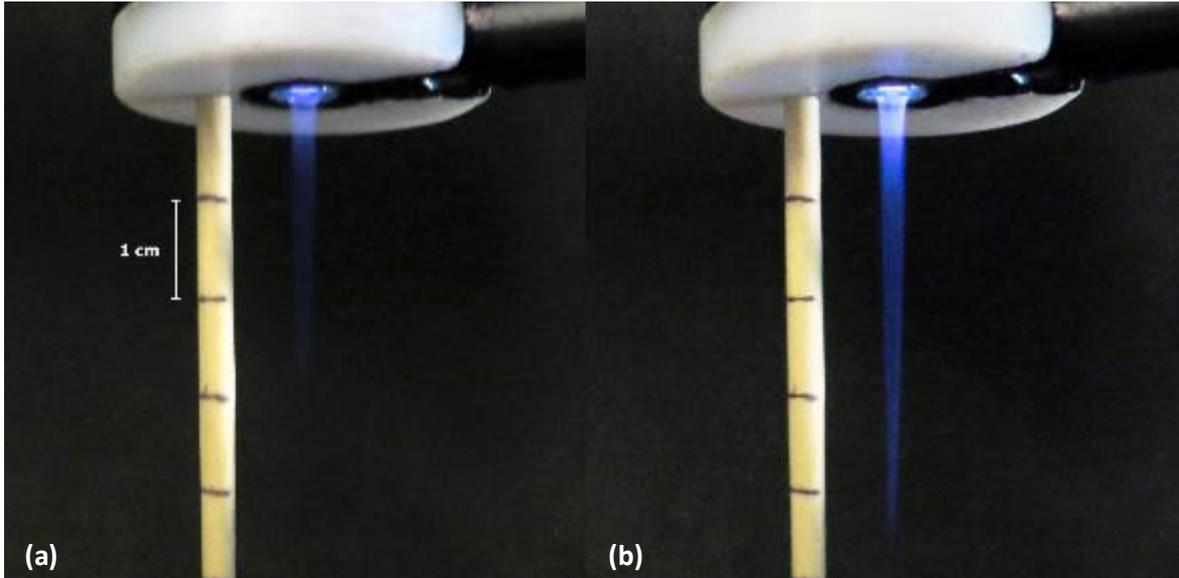


Fig. III.21 : Aspect du jet de plasma généré à 6 kV (a) et 9 kV (b) à une fréquence de 5 kHz.

La dépendance de la géométrie du jet de plasma avec la valeur de la tension appliquée est représentée sur la figure III.22. En comparaison avec les résultats obtenus en utilisant un générateur AC pour l'excitation du jet de plasma et présentés dans le paragraphe précédent, nous remarquons une différence de comportement de la variation de la longueur du jet de plasma vis-à-vis de la valeur de la tension appliquée. En effet, lorsque le jet de plasma est excité avec le générateur de tension impulsionnelle, sa longueur augmente d'une manière significative avec l'augmentation de la tension appliquée (dans le même domaine de tension exploré). Cette évolution de la longueur du jet présente deux pentes de variation, une variation rapide pour les faibles valeurs de la tension d'excitation du jet de plasma et une variation plus lente pour les fortes valeurs. Cette variation est plus visible pour les fréquences relativement élevées.

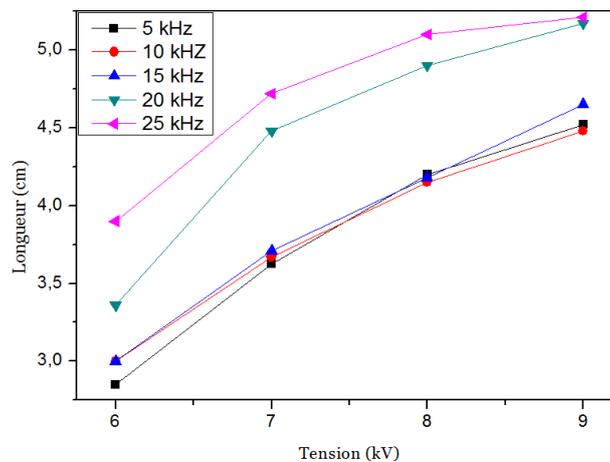


Fig. III.22 : Variation de la longueur du jet en fonction de la variation de la tension impulsionnelle appliquée.

Ainsi, pour une fréquence de 20 kHz, lorsque la tension d'excitation varie de 6 à 7 kV, la longueur du jet de plasma passe de 3,36 à 4,48 cm soit une augmentation de près de 33% correspondant à une pente égale à 0,9. Au-delà de 7 kV, l'augmentation de la longueur du jet de plasma devient moins rapide avec une pente de 0,31, passant de 4,48 cm pour une tension appliquée de 7 kV à près de 5.2 cm pour une tension de 9 kV. Cette longueur du jet de plasma plus importante lorsque la tension qui le génère est plus grande, est due à l'augmentation de la densité des espèces ainsi créées et de leur accélération (surtout si elles sont électriquement chargées). Ceci donne à notre jet de plasma un pouvoir de pénétration dans l'air ambiant plus important et ainsi une longueur plus importante bien que le flux de l'argon a été gardé constant. La dépendance de la longueur du jet du plasma en fonction de la fréquence du signal électrique d'excitation du plasma est illustrée par les photos de la figure III.23.

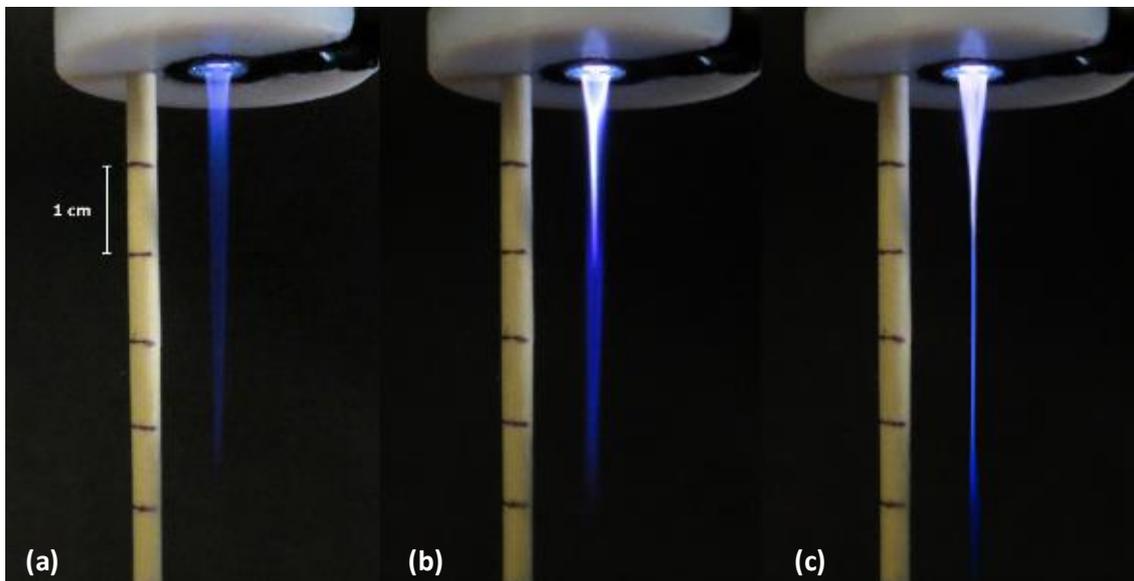


Fig. III.23 : Géométrie du jet de plasma généré à : (a) 5 kHz, (b) 25 kHz, (c) 50 kHz pour une tension de 9 kV.

Nous remarquons qu'un changement de la valeur de la fréquence d'excitation a un faible effet sur la longueur du jet de plasma généré. La figure III.24 représentant la courbe de la variation de la longueur du jet de plasma en fonction de la fréquence de son signal d'excitation, montre en réalité la présence de deux régimes de variation bien distincts : dans le domaine fréquentiel 5 – 15 kHz, la longueur du jet dépend faiblement, voire pas du tout, de la fréquence alors que pour des valeurs de fréquences du signal d'excitation supérieures, nous observons une augmentation sensible de la longueur du plasma. Il apparaît ainsi l'existence d'une sorte de seuil de fréquences au-dessous duquel la variation de la fréquence n'a pas d'effet significatif sur la géométrie du jet et au-dessus duquel il y'a une accélération significative des espèces chargées du plasma, leur permettant comme nous l'avons avancé

précédemment, une pénétration plus facile dans l'air ambiant amenant ainsi à un jet de plasma avec une longueur plus importante.

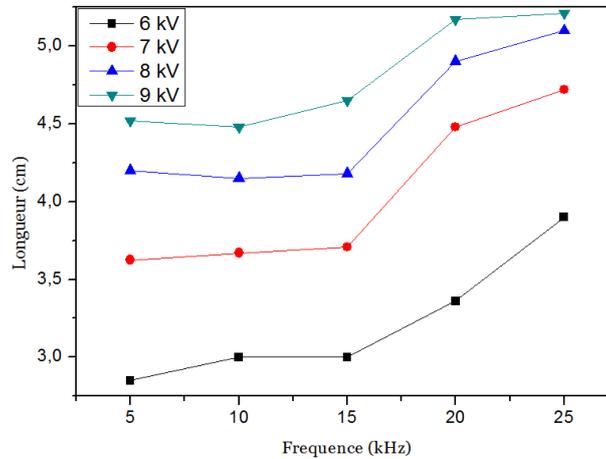


Fig. III.24 : Variation de la longueur du jet en fonction de la variation de la fréquence du signal appliquée.

Q. Xiong *et al.* [19] dans leurs travaux sur les jets de plasmas créés dans un flux d'hélium de quelques litres par minute excités en utilisant une tension impulsionnelle de fréquences variable dans le domaine 0,1 – 10 kHz, ont trouvé une évolution de la longueur de leur jet en fonction de la tension impulsionnelle appliquée semblable à celle que nous avons trouvée pour notre jet de plasma créé dans l'argon. Ainsi comme le montre la courbe de la figure III.25 [19], ils ont montré que la longueur du jet de plasma d'hélium augmente significativement lorsque la tension d'excitation impulsionnelle augmente jusqu'à 10 kV. Jusqu'à environ 8,5 kV, la variation de la longueur de leur jet est linéaire et semble tendre vers une saturation pour les grandes valeurs de tensions. Bien que le gaz utilisé et la géométrie du réacteur étudiés dans les travaux de Xiong *et al.* sont différentes des nôtres, mais leurs résultats et notamment leurs allures de variation sont en bon accord avec nos résultats.

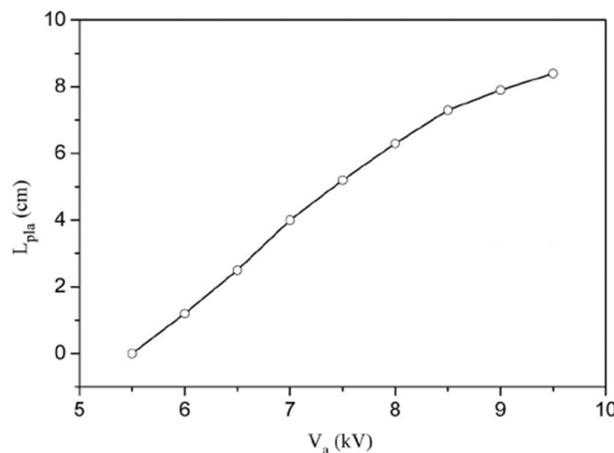


Fig. III.25 : Effet d'une tension d'excitation impulsionnelle sur la variation de la longueur du jet de plasma d'hélium généré par Xiang *et al.* [19].

Par ailleurs, ces auteurs n'ont trouvé aucun effet significatif de la fréquence du signal d'excitation sur la longueur de leur jet de plasma [19]. Ceci est également en parfait accord avec nos résultats si on tient compte du fait que la plage de fréquence qu'ils avaient explorée se trouve dans la gamme 0,1 – 10 kHz. En effet comme nous l'avons mentionné ci-haut, dans la gamme de fréquence 5 – 15 kHz, la variation de la longueur du jet de plasma que nous avons créé dans l'argon à la pression atmosphérique est insignifiante pour toutes les valeurs de tension impulsionnelle que nous avons utilisées pour générer notre jet de plasma.

Sur un autre volet, les photos de la figure III.23 montrent que la forme géométrique du jet varie en fonction de la fréquence du signal électrique qui l'a généré. Ainsi, la création d'un pincement visible à partir d'une fréquence de 25 kHz (Fig. III.23.b) est observée. Au-delà de 25 kHz, nous avons remarqué que ce pincement se transforme d'une zone quasi-punctuelle en une zone de quelques centimètres de longueur se terminant par une zone de turbulence (Fig. III.23.c). Selon la fréquence du signal haute tension, nous pouvons observer une enveloppe qui entoure la zone du pincement et dont le diamètre diminue avec l'augmentation de la fréquence. La présence de cette zone a été également trouvée par Xiong *et al.* [20] dans un jet de plasma à base d'hélium. Ils suspectent que son origine est due à la distribution de la fraction molaire de l'hélium lors de son contact avec l'air environnant.

Sur la figure III.26, nous avons reporté l'effet de la variation du couple tension – fréquence sur la longueur du jet. Nous constatons dans le cas d'un signal impulsionnel que la variation de la longueur de jet est proportionnelle à la variation du couple tension – fréquence et ainsi à la variation de la puissance.

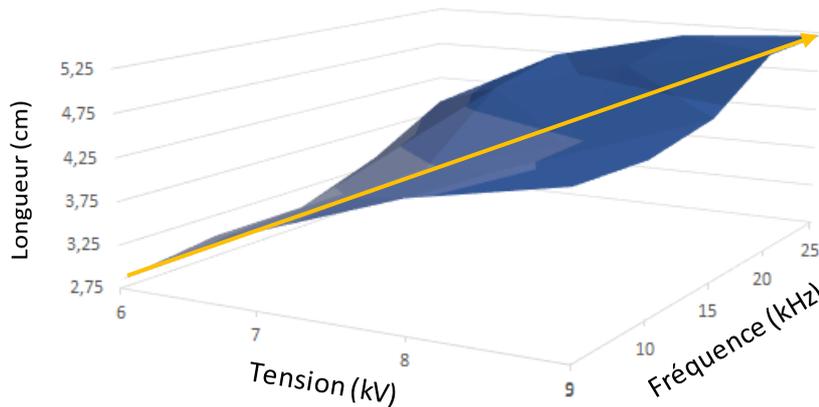


Fig. III.26 : Evolution de la longueur du jet en fonction de la variation du couple tension – fréquence.

Ainsi, nous pouvons obtenir trois formes du jet de plasma d'argon que nous avons généré :

- Un jet de plasma de forme conique
- Un jet de plasma sous forme du chiffre "8"
- Un jet de plasma sous forme d'une "bougie" comportant trois zones : le cône, le corps et la queue [21].

Nous remarquons également sur les photos de la figure III.23.b et III.23.c qu'une proportion du cône présente une luminosité moins intense, due probablement au changement de la distribution spatiale au niveau du cône. En effet, l'augmentation de la fréquence affecte le comportement des espèces déjà en mouvement, changeant leur distribution spatiale et conduisant à différentes géométries. Il apparaît ainsi que nous pouvons agir sur la forme du jet en variant le type du signal d'excitation, la valeur de la tension appliquée et sa fréquence pour ainsi adapter la forme du jet selon nos besoins. Cette variation est en réalité liée à la variation de la puissance électrique délivrée au plasma.

III.2.3.2 – Effet de la polarisation des électrodes

Durant nos expériences nous avons remarqué que le type de branchement des électrodes à la source haute tension a un rôle important sur la génération du jet et ses caractéristiques. En reliant l'électrode centrale à la haute tension et l'électrode interne à la masse, nous obtenons un jet de plasma dont la longueur peut atteindre plusieurs centimètres de longueur. Dans le cas opposé (électrode centrale à la masse et électrode interne à la haute tension), nous avons constaté que la longueur du jet ne dépasse pas 1 centimètre et que la décharge se propage dans le sens opposé du flux d'argon. De cet effet on peut conclure que le jet de plasma se propage après l'électrode de masse. Le même phénomène a été décrit par Shao *et al.* pour un jet de plasma à base d'hélium [22].

Comme l'efficacité d'ionisation du gaz est étroitement lié au champ électrique qui lui est appliqué, pour expliquer l'effet de la polarisation des électrodes sur la longueur et le sens du jet, nous avons étudié le comportement du champ électrique dans le réacteur et ce, suivant que l'électrode interne a été reliée à la masse ou à la haute tension. Cette étude a été faite en collaboration avec *Dr. Constantinos LAZAROU*, du laboratoire des Technologies Photovoltaïques du Research Center for Sustainable Energy (FOSS), de l'université de Nicosia (Chypre) Une simulation de la variation du potentiel appliqué ainsi que le champ électrique a été faite en utilisant le logiciel Comsol. Toutes les données utilisées pour la simulation (longueur du réacteur, son diamètre, sa géométrie, la position de électrodes, le branchement des électrodes, ...) sont relatives à notre réacteur et nos conditions

expérimentales. Les résultats préliminaires obtenus à travers cette étude nous ont montré qu'en reliant l'électrode interne à la haute tension et durant la première alternance (Fig. III.27.a représentant les lignes de champs et III.27.c représentant le potentiel). Nous constatons que le champ électrique est plus intense et unidirectionnel au niveau de la zone de décharge, ce qui favorise l'expansion du jet au-delà de l'électrode interne reliée à la masse. Durant l'alternance négative (Fig. III.27.b représentant les lignes de champs et III.27.d représentant le potentiel), le sens du champ électrique s'inverse, ce qui bloque et empêche les porteurs de charges positives de sortir du réacteur causant dans certains cas un rétrécissement du jet.

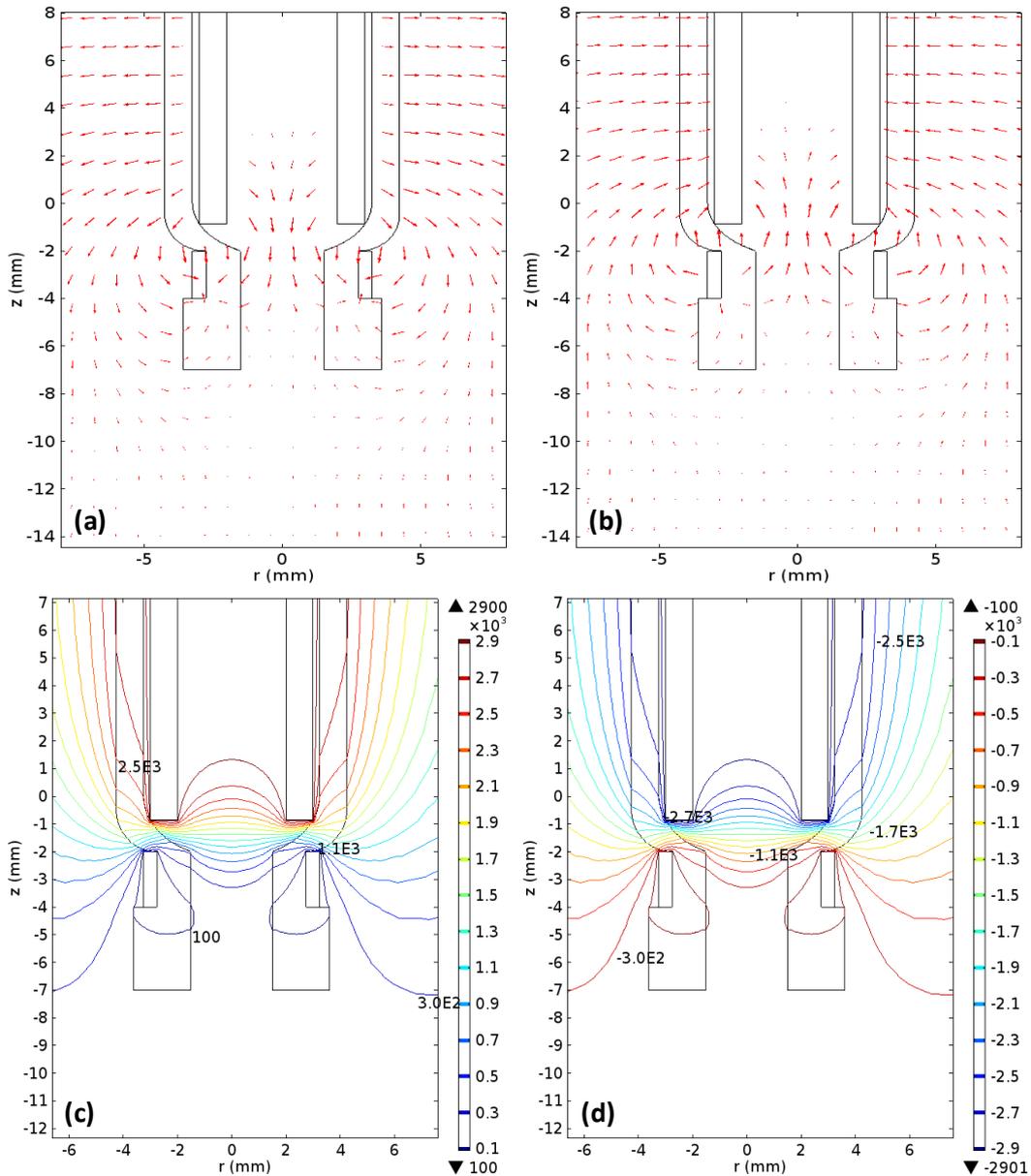


Fig. III.27 : Simulation par le logiciel Comsol de l'intensité du champ électrique (a : alternance positive) et (b : alternance négative) et de la haute tension (c : alternance positive) (d : alternance négative) dans le cas où l'électrode interne est reliée à la haute tension, l'électrode externe à la masse.

En fournissant suffisamment de puissance pour des fréquences relativement élevées, le jet de plasma produit durant l'alternance positive sera auto-entretenu durant l'alternance négative. Nous tenons également à mentionner que le champ électrique au-delà de la zone de décharge devient plus faible et donc son impact sur le jet de plasma est minime.

En reliant l'électrode interne à la masse et l'électrode externe à la haute tension, nous constatons qu'au niveau de l'électrode externe les lignes du champ s'orientent dans le sens opposé (Fig. III.28). Ce qui conduit à la création d'une zone qui bloque le passage de porteurs de charges durant les deux alternances causant ainsi un rétrécissement du diamètre du jet de plasma passant de quelques centimètres à quelques millimètres.

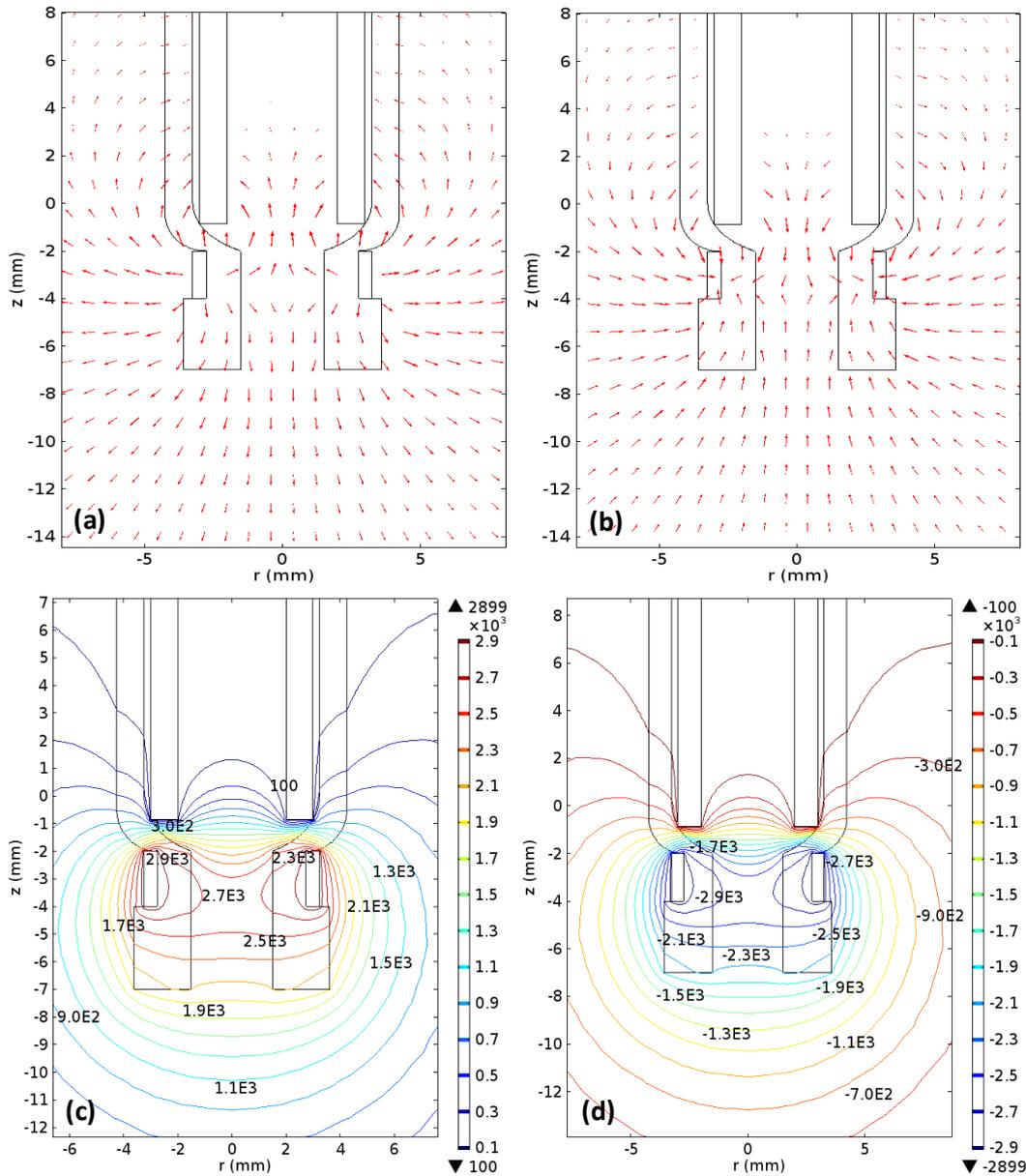


Fig. III.28 : Simulation par le logiciel Comsol de l'intensité du champ électrique (a : alternance positive) et (b : alternance négative) et de la haute tension (c : alternance positive) (d : alternance négative) dans le cas où l'électrode interne est reliée à la masse et l'électrode externe à la haute tension.

L'origine de ce jet provient probablement des porteurs de charges créées près de la zone de blocage. Dans cette zone critique et durant l'alternance positive (Fig. III.28.a et III.28.c), les ions déjà mobiles arrivent à franchir cette zone pour être ensuite accélérés par le champ électrique et forment un jet de plasma d'une certaine longueur.

III.3 – Caractérisation optique du jet de plasma

III.3.1 – Description du spectre typique de l'émission optique du jet de plasma d'argon

Afin de mieux comprendre l'effet de la variation de la tension appliquée et de la fréquence de cette dernière sur la géométrie et la composition du jet de plasma généré, nous avons caractérisé son émission optique grâce à l'utilisation d'un spectromètre d'émission optique. La spectroscopie d'émission optique est rappelons le, une technique puissante pour la détermination des espèces radiatives dans une décharge lumineuse ainsi que certaines de leurs caractéristiques (concentration, température, ...). C'est une méthode non invasive qui ne perturbe pas le plasma et dont la mise en place reste relativement simple.

Nous avons reporté sur la figure III.29 le banc expérimental que nous avons mis en place pour la caractérisation de l'émission optique de notre de jet de plasma.

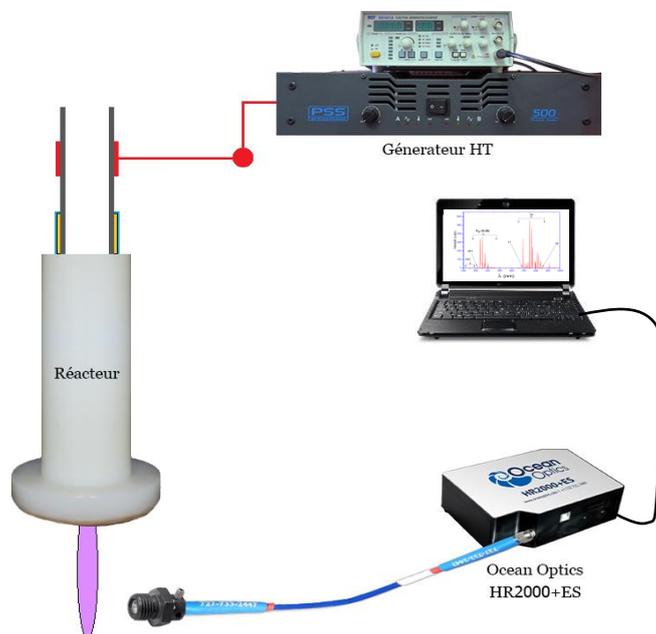


Fig. III. 29 : Banc mis en place pour la caractérisation optique du jet de plasma.

Sur la figure III.30 nous avons reporté un spectre typique de l'émission optique d'un jet de plasma que nous avons généré dans un débit d'argon de 3 l/min à pression atmosphérique.

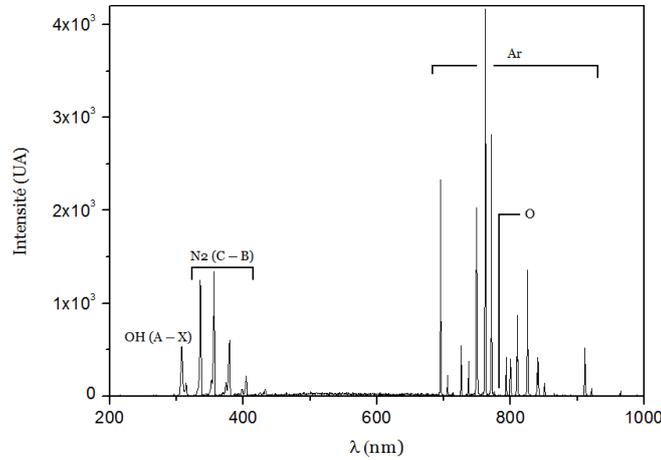


Fig. III.30 : Spectre d'émission optique enregistré du jet de plasma créé dans un flux d'argon de 3 l/min avec une tension de 9 kV à 8 kHz.

Nous remarquons la présence de plusieurs raies d'émission dans le domaine de longueurs d'ondes exploré. L'attribution des raies d'émission optique a été faite en se référant à plusieurs travaux de la littérature [23 – 33]. Quelques-unes des attributions de ces raies apparaissant sur le spectre d'émission optique sont reportées dans le tableau III.1.

Espèces	Transition vibrationnelle	Longueur d'onde (λ nm)
OH (A – X)	0 – 0	309
N ₂ (C – B)	1 – 0	315,8
	0 – 0	337,1
	0 – 1	357,6
	1 – 3	375,5
	0 – 2	380,4
	2 – 4	405,8
O		777

Tab. III.1 : Assignation des raies d'émission optique du spectre enregistré [23, 24].

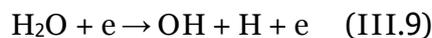
Dans le domaine de longueur d'onde s'étendant de 290 à 410 nm, apparaissent plusieurs raies bien distinctes, correspondant à des états radiatifs en relation avec la présence des atomes d'azote ou d'hydrogène. L'aspect de cette partie du spectre de l'émission optique de notre jet de plasma est similaire dans une grande mesure à celle

observée sur des spectres trouvés par plusieurs auteurs et relatifs à des jets de plasma créés à pression atmosphérique dans de l'argon ou l'hélium [25 – 27] et également sur des spectres relatifs à des décharges DBD créées directement dans l'air à pression atmosphérique [28, 29]. Les raies les plus intenses sont situées aux alentours de 337 et 356 nm. Ils sont attribués au deuxième système positif de la molécule N_2 ($C^3\Pi_u - B^3\Pi_g$) noté N_2 (C – B) ou N_2 (SPS) pour Second Positive System [29, 30]. La contribution de l'atome d'azote au spectre d'émission optique est également révélée à travers la présence de raies de plus faibles intensités situées aux environs de 315, 375, 380 et 405 nm, appartenant toutes au système N_2 (C – B) [30, 31]. Différents travaux relatifs à des décharges DBD dans l'air à pression atmosphérique ont rapporté la présence de raies de très faible intensité dans la gamme de longueurs d'ondes 210 – 290 nm attribuées à l'émission des bandes moléculaires de NO [31 – 33] qui se forment suite aux possibles réactions suivantes :



Des raies de très faibles intensités dans cette gamme de longueur d'onde ont été décelées sur nos spectres mais leur intensité dans notre cas plus faible que celle des raies relevées sur des spectres caractérisant des décharges DBD créées dans l'air atmosphérique [31 – 33] a rendu difficile, voire hasardeuse, leur attribution. Leur très faible intensité provient du fait que notre décharge plasma est créée dans un environnement très riche en argon (flux d'argon de 3 l/min), donc relativement pauvre en molécules d'azote et d'oxygène, alors que dans le cas des DBD créées dans l'air, la concentration d'azote et d'oxygène est beaucoup plus importante, ce qui facilite une formation plus aisée de ces espèces NO.

Les spectres d'émission optique enregistrés sur notre jet de plasma montrent également la présence dans la gamme de longueur d'onde 300 – 410 nm d'une raie assez distincte située aux alentours de la longueur d'onde 309 nm. Cette raie a été attribuée à l'émission du radical OH provenant de la dissociation de la molécule H_2O présente dans l'air ambiant (humidité de l'atmosphère où est créé le jet de plasma). Cette molécule a été dissociée par le jet de plasma pour produire le radical hydroxyle dont la transition vibrationnelle à 309 nm est notée ($A^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Pi$) ou plus simplement OH (A – X) [34]. Une réaction possible pouvant amener à cette dissociation et ainsi la création du radical OH s'écrit :



Bien que la durée de vie de ce radical soit relativement courte (de l'ordre de la milliseconde [35]), il est très réactif et a un effet fortement biocide vis-à-vis des microorganismes vivants [31]. Sa concentration reste relativement faible du fait qu'il a tendance à se recombinaison assez rapidement conduisant généralement à la formation du peroxyde d'hydrogène H_2O_2 [32] suivant la relation :



Signalons que Srivastava *et al.* [36] ainsi que Yonemori *et al.* [37] dans des travaux sur des jets de plasma créés dans l'hélium ont montré que l'intensité de la raie relative au radical OH est fonction de l'endroit du jet de plasma où a été faite la mesure.

Les raies d'émission optique les plus intenses apparaissant sur les spectres enregistrés sur notre jet de plasma se situent dans le domaine 650 – 850 nm. Dans ce domaine de longueur d'ondes apparaissent plusieurs raies d'émission : du premier système positif de l'azote [23, 24], la raie de l'oxygène atomique O ($^5P - ^5S$) à 777 nm (transition $3p \ ^5P \rightarrow 3s \ ^5P$) [38, 39] ainsi que plusieurs raies d'argon telles que celles relatives aux transitions électroniques $4p \rightarrow 4s$ à 750,4 nm et 826,4 nm [40] et dont les intensités sont les plus dominantes.

Aux vues de la grande réactivité des ROS et RNS dans la désactivation de microorganismes vivants, nous nous sommes uniquement intéressés à l'évolution de leurs raies d'émission situées dans la gamme de longueur d'onde 300 – 410 nm et à la longueur d'onde 777 nm (raie d'oxygène).

III.3.2 – Effet de la variation de la tension et de la fréquence du signal d'excitation sur le spectre d'émission optique

III.3.2.1 – Cas d'un jet de plasma d'argon excité par un signal électrique de type AC

Nous avons constaté que l'intensité des raies apparaissant sur le spectre d'émission optique du jet de plasma que nous avons créé dans de l'argon à pression atmosphérique présente des évolutions en fonction de la tension appliquée qui diffèrent suivant le domaine de fréquences du signal d'excitation AC exploré : un domaine dans la plage de fréquences 4 – 8 kHz et un domaine dans la plage 21 – 27 kHz.

III.3.2.1.a – Effet de la variation de l'amplitude de la tension d'excitation

Sur la figure III.31 nous avons reporté à titre d'illustration les spectres d'émission enregistrés sur des jets de plasmas excités avec un signal de fréquence 8 kHz et d'amplitude 6 et 9 kV. Nous remarquons que lorsque l'amplitude de la tension appliquée augmente, l'intensité des raies augmente significativement. Cette évolution est similaire pour tous les

jets de plasmas excités avec des signaux AC de fréquences se trouvant dans le domaine 4 – 8 kHz.

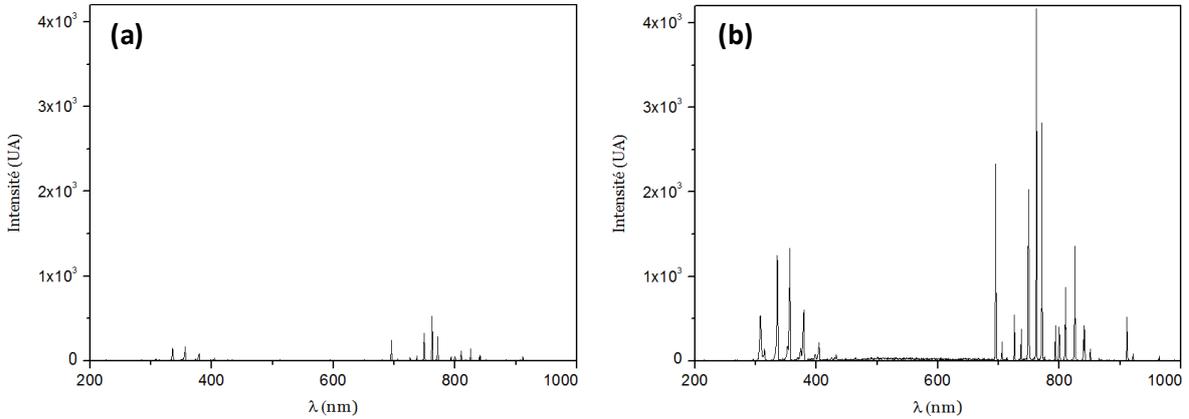


Fig. III.31 : Spectres d'émission du jet de plasma généré avec un signal AC d'une fréquence de 8 kHz et d'une amplitude de (a) : 6 kV et (b) : 9 kV.

Comme le montrent les courbes de la figure III.32, toutes les raies d'émission des ROS et RNS (raies du deuxième système positif de N₂, raie de l'hydroxyle, raie de l'oxygène, ...) créées augmentent d'intensité lorsque la tension d'excitation du plasma augmente de 6 à 9 kV. Les raies les plus intenses restent celles relatives au deuxième système positif de la molécule N₂ (C³Π_u – B³Π_g). La raie de l'oxygène (777 nm) ne commence à être convenablement détectable qu'à une valeur de tension de 7,5 kV pour une fréquence de 8 kHz (Fig. III.32) et à une tension plus importante (8,5 kV) pour une fréquence de 6 kHz.

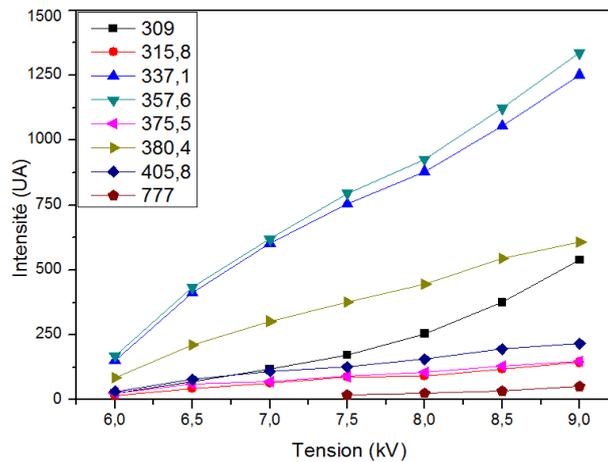


Fig. III.32 : Variation de l'intensité des raies d'émission optique de l'hydroxyle, du deuxième système positif de l'azote et de l'oxygène en fonction de la tension AC appliquée pour $f = 8$ kHz.

Nos résultats présentent des évolutions similaires de ceux publiés par Cheng *et al.* et relatifs aux ROS et RNS générées par un jet de plasma d'hélium (flux de 4,7 l/min) créé dans l'air atmosphérique par une excitation AC [41]. La figure III.33 reportant les résultats de l'étude menée par Cheng *et al.* sur l'émission optique de leur jet de plasma montre que

toutes les raies détectées augmentent d'intensité lorsque la tension d'excitation du plasma augmente de 2,56 à 3,8 kV [41].

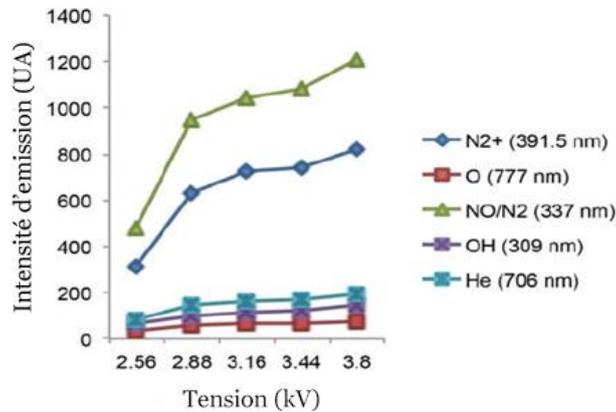


Fig. III.33 : Evolution des raies d'émission optique de l'hydroxyle et du deuxième système positif de l'azote d'un jet de plasma créé dans l'hélium à pression atmosphérique avec une excitation AC trouvé par Cheng *et al.* [41].

La raie d l'oxygène apparaissant à 777 nm reste la plus faible comme ceci a été également trouvé dans nos travaux. Mentionnons que la différence entre les plages de tensions explorées dans notre travail et celles dans celui de Cheng *et al.* n'a pas une influence significative sur les résultats trouvés au vu de la différence entre les dimensions des réacteurs des jets de plasma respectifs (celui de Cheng *et al.* étant beaucoup plus petit).

Lorsque la fréquence du signal électrique d'excitation du plasma se trouve dans le domaine 21 – 27 kHz, nous avons remarqué une évolution différentes de l'intensité des raies d'émission en fonction de l'augmentation de la tension appliquée. Les spectres d'émission d'un jet de plasma créé avec un signal AC de 27 kHz et d'amplitude de 6 et 9 kV respectivement montrent que lorsque l'amplitude de la tension appliquée augmente, toutes les raies relatives aux ROS et RNS diminuent d'intensité alors que celles relatives à l'émission de l'argon augmentent d'intensité (Fig. III.34).

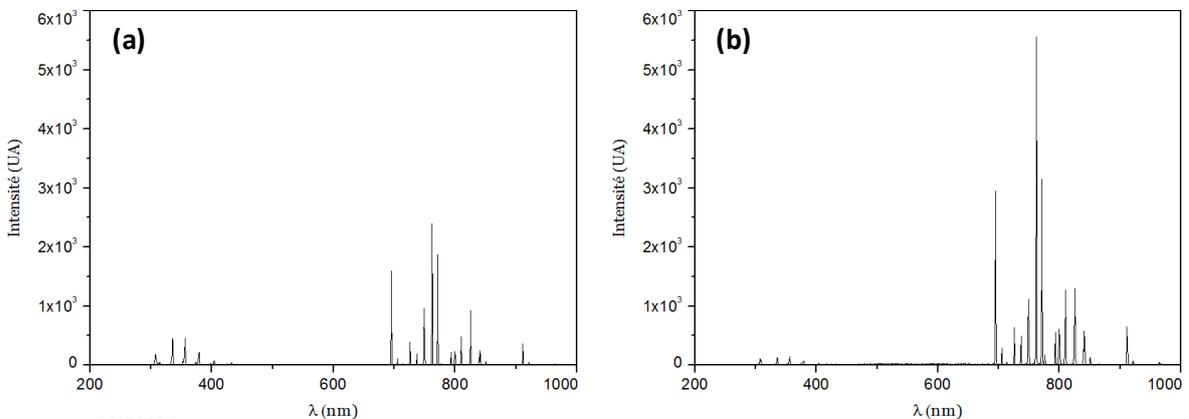


Fig. III.34 : Spectres d'émission du jet de plasma généré avec un signal AC d'une fréquence de 27 kHz et d'une amplitude de (a) : 6 kV et (b) : 9 kV.

L'évolution de l'intensité d'émission des ROS et RNS en fonction de l'amplitude du signal d'excitation électrique du plasma est représentée sur la figure III.35. Les courbes de cette figure sont relative à un signal de fréquence 27 kHz mais leur allure de variation reste similaire pour toutes les fréquences d'excitations se situant dans le domaine 21 – 27 kHz.

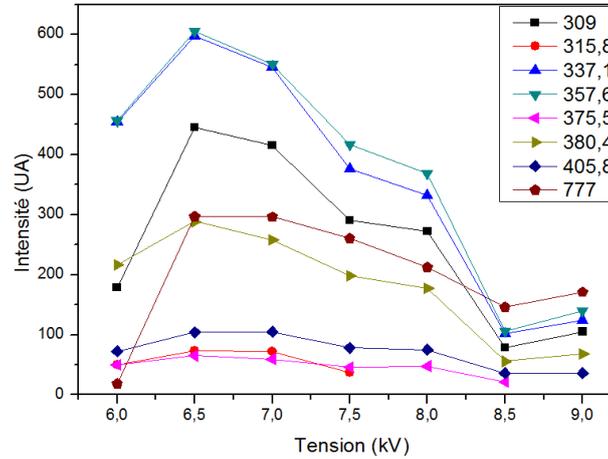


Fig. III.35 : Variation de l'intensité des raies d'émission optique de l'hydroxyle, du deuxième système de l'azote et de l'oxygène en fonction de la tension AC appliquée pour $f = 27$ kHz.

Nous remarquons que pour les faibles tensions d'excitation AC (jusqu'aux alentours de 6,5 kV) de fréquences situées dans la gamme 21 – 27 kHz, l'intensité des différentes raies augmente avec l'augmentation de la tension d'excitation puis diminue d'une manière prononcée au-delà de 6,5 kV pour tendre à se stabiliser aux alentours de 8,5 kV, alors que les raies d'émission de l'argon augmentent d'intensité.

III.3.2.1.b – Effet de la variation de la fréquence du signal d'excitation

L'étude de l'effet de la variation de la fréquence du signal d'excitation du jet de plasma sur l'intensité des raies d'émission des différentes espèces réactives d'oxygène ou d'azote créé a révélé également l'existence de deux plages de variation présentant des allures de variations différentes correspondant à deux plages de variation de la tension AC appliquée : de 6 à 6,5 kV et de 7 à 9 kV.

Sur la figure III.36 nous avons représenté deux spectres d'émission optique de jets de plasma excités avec un signal AC d'amplitude 6 kV et de fréquences différentes (4 kHz et 27 kHz). Nous remarquons que lorsque nous augmentons la valeur de la fréquence du signal d'excitation, toutes les raies d'émission détectées augmentent d'intensité d'une manière très prononcée.

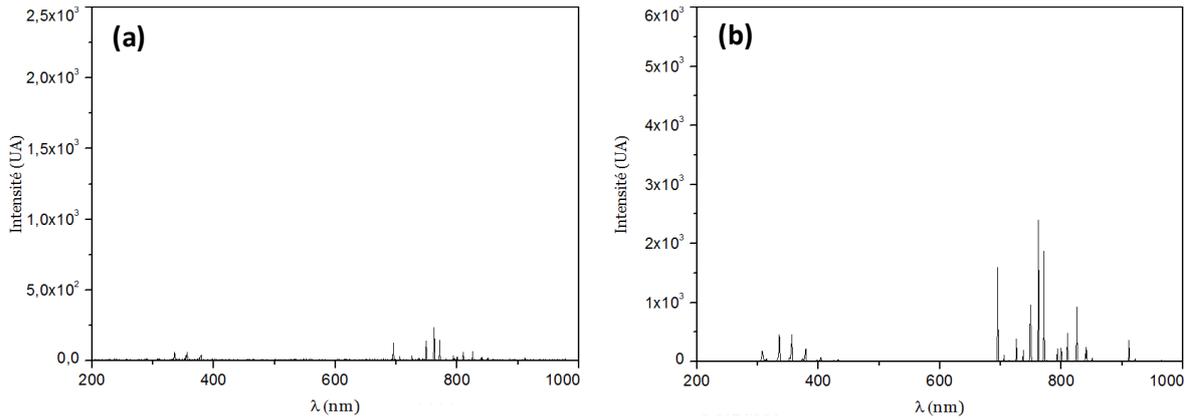


Fig. III.36 : Spectres d'émission du jet de plasma généré avec un signal AC d'une amplitude de 6 kV et d'une fréquence de (a) : 4 kHz et (b) : 27 kHz.

L'intensité des raies relatives au deuxième système positif de l'azote, au radical hydroxyle OH, à l'oxygène augmente lorsque la fréquence du signal d'excitation varie de 4 kHz à 27 kHz, l'oxygène ne devient détectable d'une manière convenable que pour une fréquence du signal d'excitation au-delà de 20 kHz (Fig. III.37).

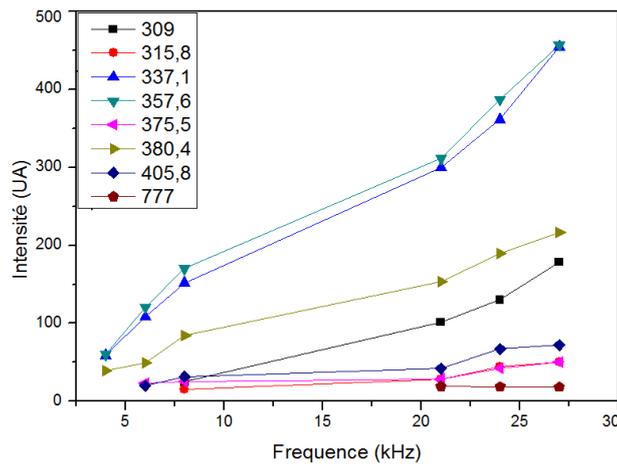


Fig. III.37 : Variation de l'intensité des raies d'émission optique de l'hydroxyle, du deuxième système positif de l'azote et de l'oxygène en fonction de la fréquence du signal d'excitation pour $V = 6$ kV.

Cependant lorsque l'amplitude de la tension du signal d'excitation du jet de plasma d'argon dépasse 6,5 kV, nous remarquons une inversion dans l'allure de variation des intensités des raies d'émission des ROS et RNS. Ceci est illustré par les spectres de la figure III.38 relatifs à deux jets de plasma excités avec un signal d'amplitude 9 kV et de fréquences 4 kHz (Fig. III.38.a) et 27 kHz (Fig. III.38.b) respectivement. Il apparaît que lorsque nous augmentons la fréquence du signal d'excitation de 4 à 27 kHz, les raies relatives aux ROS et RNS diminuent sensiblement d'intensité alors que l'intensité des raies relatives à l'argon augmente considérablement.

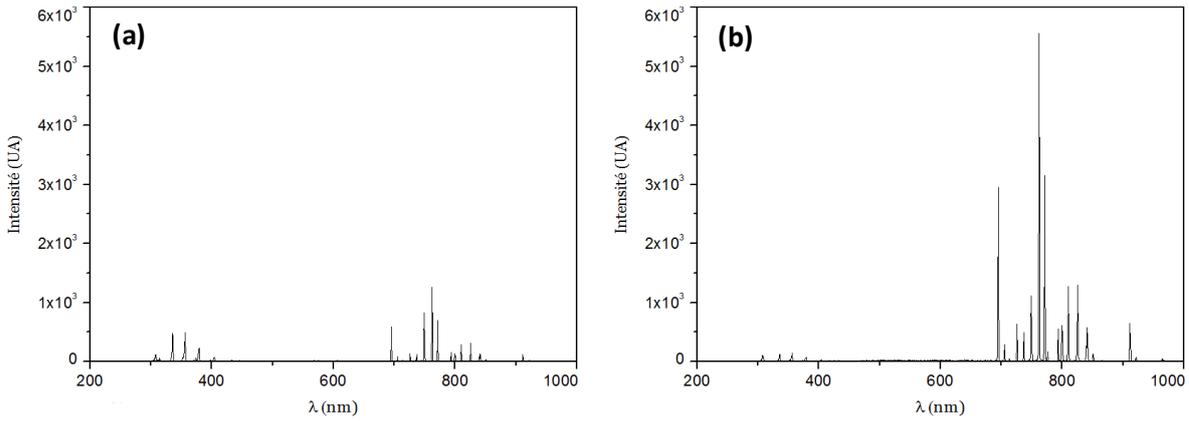


Fig. III.38 : Spectres d'émission du jet de plasma généré avec un signal AC d'une amplitude de 9 kV et d'une fréquence de (a) : 4 kHz et (b) : 27 kHz.

Nous avons reporté sur la figure III.39 l'évolution de l'intensité des raies d'émission des ROS et RNS en fonction de la fréquence du signal d'excitation d'amplitude 9 kV. Nous remarquons l'existence de trois domaines de variation de l'intensité des raies d'émission : une augmentation très rapide de l'intensité des raies relatives au deuxième système positif de l'azote et du radical hydroxyle OH pour des fréquences variant de 4 à 8 kHz, suivie d'une diminution entre 8 et 21 kHz ensuite une stabilisation au-delà de 21 kHz. Cependant, la raie relative à l'émission d'oxygène à 777 nm montre une évolution différente : elle commence à être détectable à une fréquence plus précoce comparativement à un signal d'excitation d'amplitude 6 kV (aux alentours de 6 kHz au lieu de 21 kHz pour le signal d'amplitude 6 kV) et son intensité augment avec l'augmentation de la fréquence du signal d'excitation.

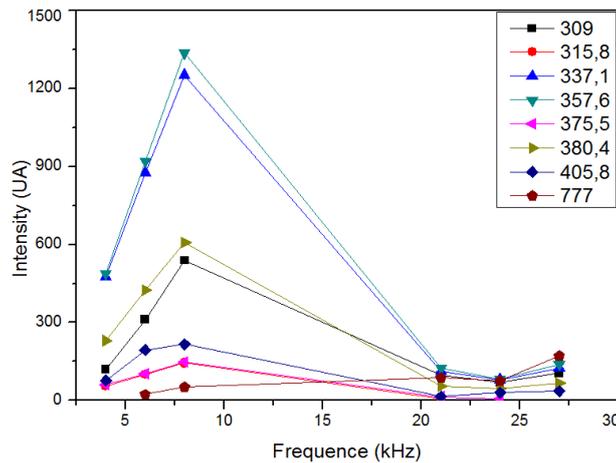


Figure III.39 : Variation de l'intensité des raies d'émission optique de l'hydroxyle, du deuxième système positif système de l'azote et de l'oxygène en fonction de la fréquence du signal d'excitation pour $V = 9$ kV.

Les résultats reportés sur les figures III.31 à III.39 montrent que les variations de l'amplitude et/ou de la fréquence du signal d'excitation du plasma généré dans le flux d'argon à l'air atmosphérique ont des effets importants sur la génération d'espèces

radiatives à l'origine de la luminescence et de la brillance du jet. En fait, deux effets peuvent être à l'origine de la variation de la lumière collectée par la fibre optique du banc d'émission optique :

- Le degré d'ionisation et de fragmentation des molécules se trouvant dans la zone plasma et par conséquent la concentration des espèces radiatives du plasma. La brillance du jet de plasma est d'autant plus intense que la fragmentation des molécules et leur degré d'ionisation sont plus poussés et surtout que la concentration des espèces radiatives est importante.
- La géométrie du jet de plasma. Le diamètre du jet de plasma étant relativement étroit, si sa longueur n'est pas suffisante, la quantité de lumière collectée par la fibre optique pourrait être faible et ainsi l'intensité des raies d'émission pourrait diminuer.

Si la géométrie du jet de plasma a un effet sur la quantité de lumière collectée par la fibre optique équipée de la lentille de collimation, son impact dans notre cas est sûrement non prépondérant. En effet, l'étude de la variation de la longueur du jet de plasma a montré que dans la plage fréquentielle 4 – 8 kHz, la tension d'excitation du jet de plasma a un effet relativement faible sur la variation de sa longueur (Fig. III.18). Il en est de même pour un jet de plasma excité avec un signal AC d'amplitude 6 kV dans tout le domaine fréquentielle 4 – 27 kHz (rappelons que pour ces deux cas, la valeur de la longueur du jet de plasma est appréciable et varie dans la gamme 2,8 – 3,1 cm). L'étude de l'émission optique de notre jet de plasma d'argon a révélé que pour ces deux cas (fréquence de 8 kHz dans une gamme de tensions 6 – 9 kV (Fig. III.32), gamme fréquentielle 4 – 27 kHz pour une tension de 6 kV et (Fig. III.37), l'intensité de toutes les raies d'émission détectées augmente d'une manière très significative, ce qui est loin d'être en conformité avec l'évolution de la longueur du jet.

Par contre, dans la gamme fréquentielle 21 – 27 kHz du signal d'excitation, nous remarquons une certaine similitude de l'allure de variation de la longueur du jet de plasma en fonction de l'amplitude de la tension appliquée et de la variation de l'intensité des raies des ROS et RNS détectées en fonction de la tension appliquée. En effet, lorsque l'amplitude de la tension d'excitation augmente de 6,5 à 9 kV, la diminution de la longueur du jet de plasma observée (Fig. III.18) est accompagnée par une diminution importante de l'intensité de toutes les raies d'émission des ROS et RNS détectées (Fig. III.35). Le même phénomène est observé pour une tension de 9 kV dans le domaine fréquentiel 8 – 21 kHz (Fig. III.39). De premier abord, on peut penser par conséquent que dans le domaine fréquentiel 21 – 27 kHz et pour des tensions de 6,5 à 9 kV (élargi à 8 – 21 kHz pour une valeur de tension de 9 kV), l'effet de la géométrie est responsable en grande partie de l'évolution de l'intensité des

différentes raies d'émission des ROS et RNS. Cette conclusion est relativement simpliste et reste loin de donner une explication rigoureuse à cette évolution des résultats de notre étude de l'émission optique du jet de plasma. En effet, comme le montrent les spectres des figures III.34 et III.38, si effectivement l'intensité des raies d'émission des ROS et RNS diminuent considérablement lorsque la tension d'excitation du jet de plasma et/ou sa fréquence augmente dans le domaine 21 – 27 kHz, il faut remarquer que cette diminution est toujours accompagnée par une augmentation prononcée des raies relatives à l'argon. Ceci montre qu'il y a une ionisation plus importante des atomes d'argon et que la diminution de l'intensité des raies d'émission des ROS et RNS est due en fait à une diminution de la concentration de ces dernières dans le jet de plasma. Les paramètres électriques que nous avons utilisés et qui ont amené à une réduction de la longueur du jet de plasma d'argon, ont en fait permis une plus grande ionisation des atomes du flux d'argon. Cette ionisation prononcée crée plus d'espèces énergétiques de l'argon et conduit à une augmentation de la température du gaz [42]. Cette augmentation de la température se manifeste à travers une luminosité plus intense du jet de plasma sur pratiquement toute sa longueur comme le montre les photos de la figure III. 40 relatives à des jets de plasma générés par des signaux d'excitation d'amplitude 8,5 et 9 kV et de fréquences respectives 21 et 24 kHz (correspondant à des puissances électriques de 0,86 et 1,07 watts respectivement).

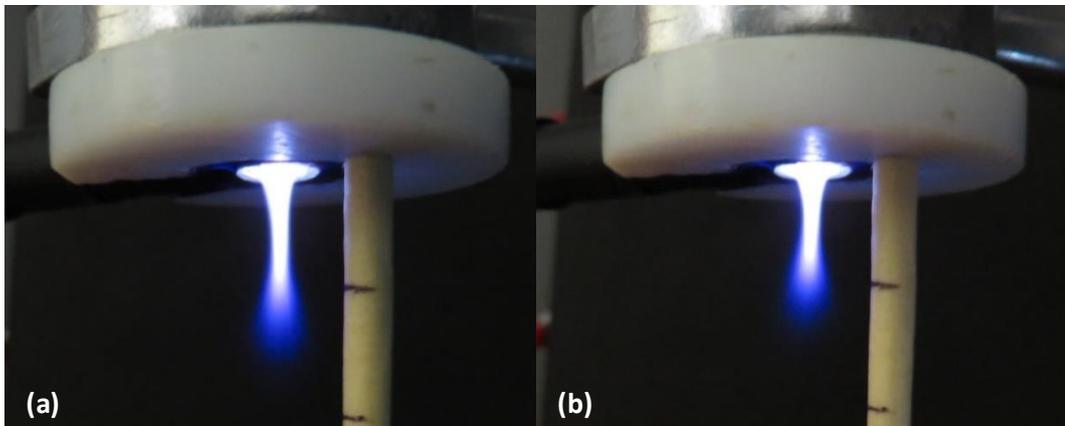


Fig. III.40 : Photos du jet de plasma montrant son aspect très intense pour des fortes valeurs de tension AC (a) : 21 kHz / 8,5 kV (0,864 watt), (b) 24 kHz / 9 kV (1,07 watt).

Ainsi, au lieu de favoriser la propagation du jet sur de longueur importante, certains paramètres électriques la limitent au contraire. Beaucoup de travaux ont été consacrés à la compréhension du phénomène et des processus mis en jeu pour la propagation des jets de plasmas [43 – 45]. Ces travaux ont montré qu'un jet de plasma est en fait formé de boulets de plasma successifs qui se propagent dans la direction du flux du gaz précurseur utilisé.

Pour visualiser ces boulets et suivre leur trajectoire, on utilise généralement des caméras numériques de très grande rapidité (temps d'exposition de quelque microseconde et moins). Sur la figure III.41 nous avons reporté une image de synthèse que nous avons obtenue sur un jet de plasma d'argon de 2,5 cm de longueur. L'image nous a été réalisée en utilisant un photomultiplicateur et un oscilloscope et en ayant recours à un traitement de données. Cette photo montre la trajectoire d'un boulet de plasma qui se propage sur une longueur de 2,5 cm et permet d'avoir un ordre d'idée sur sa vitesse de propagation. La vitesse du boulet décroît sensiblement lorsqu'il s'éloigne de la source du jet (la buse en quelque sorte) à cause de la perte d'une partie de son énergie lorsqu'il rentre en contact avec l'air environnant, pour disparaître à la fin, façonnant (dans l'absence de turbulences) la forme conique de l'extrémité du jet. Cette forme quasi conique du jet apparaît sur les différentes photos des jets de plasma créés dans le flux d'argon dans l'air atmosphérique (Fig. III.17, III.21, III.23 et III.40).

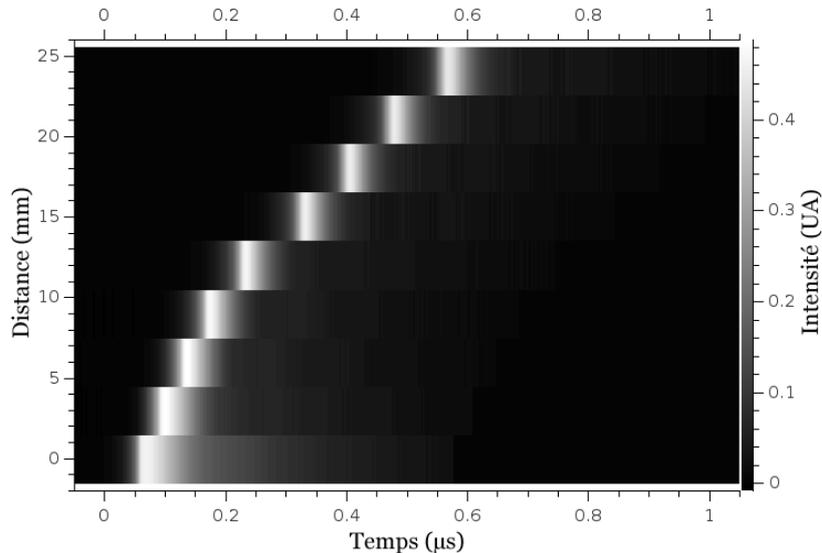


Fig. III.41 : Image de synthèse montrant la propagation d'un boulet de plasma dans notre jet créé dans un flux d'argon à pression atmosphérique.

Ce type de trajectoire a été trouvé dans beaucoup de travaux et nous avons reporté sur la figure III.42 la photo de la trajectoire d'un boulet de plasma enregistré par Liu *et al.* [45] grâce à l'utilisation d'une caméra CCD très rapide sur un jet de plasma créé dans un flux d'hélium excité par une tension AC de 7 kV d'amplitude et de fréquence 20 kHz, il apparaît clairement que la vitesse du boulet diminue au fur et à mesure qu'il s'éloigne de la source de création.

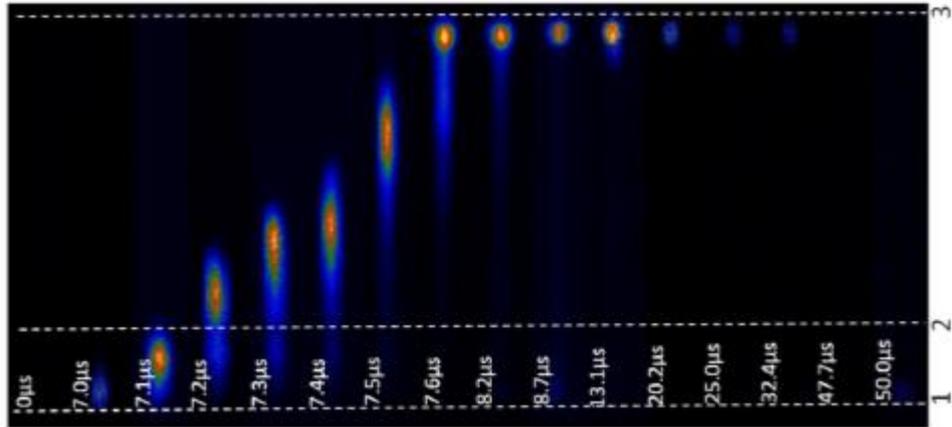


Fig. III.42 : Photos de la propagation d'un boulet de plasma dans un jet créé dans l'hélium par Liu *et al.* [45].

Lors de leur parcours, les boulets de plasma interagissent avec les atomes de l'air environnant amenant à la création des ROS et RNS. Si la puissance électrique fournie par le signal appliqué est complètement consommée par les atomes du flux du gaz (dans notre cas l'argon), ceci induit une augmentation de sa température suite à une accumulation de charges au niveau d'une région du jet (les zones du jet de plus grande luminescence) de plus en plus limitée. On crée alors une sorte de torche de plasma au vu de la température du jet du fait que la propagation des boulets de plasma est freinée, ce qui limite leur interaction avec les atomes de l'air qui refroidissaient les boulets et amène à une réduction de la création des ROS et RNS. Ceci est révélé par la forte augmentation de l'intensité des raies d'émission relatives à l'argon et par la diminution de celles relatives aux ROS et RNS (Fig. III.34 et III.38).

III.3.2.2 – Cas d'un jet de plasma d'argon excité par un signal électrique de type impulsif

III.3.2.2.a – Effet de la variation de l'amplitude de la tension d'excitation

Sur la figure III.43 nous avons reporté les spectres d'émission d'un jet de plasma créé dans un flux d'argon dans l'air atmosphérique par l'application d'une excitation électrique impulsionnelle de fréquence 10kHz et d'amplitude 6 et 9 kV.

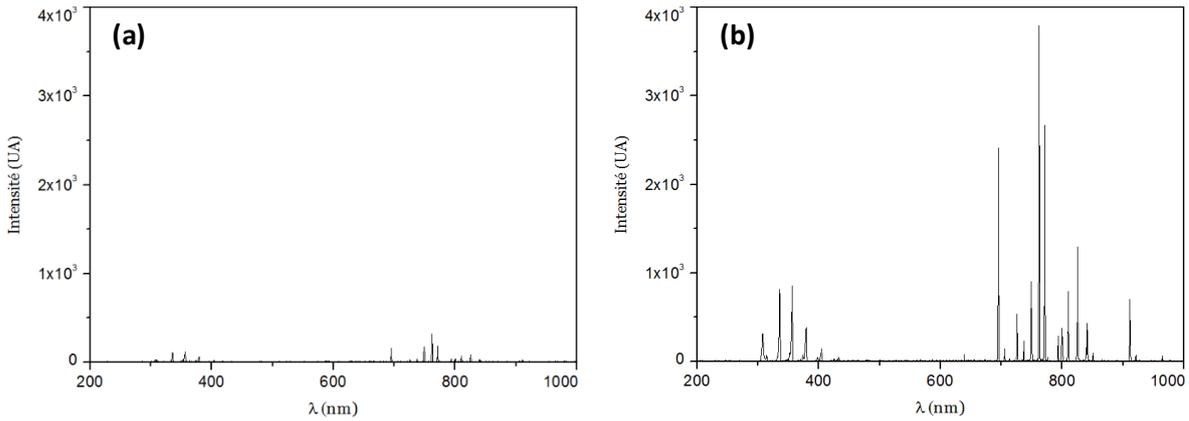


Fig. III.43 : Spectres d'émission du jet de plasma d'argon généré par un signal impulsionnel d'une fréquence de 10 kHz et d'une amplitude de (a) : 6 kV et (b) : 9 kV.

Lorsque l'amplitude de la tension impulsionnelle augmente de 6 à 9 kV, toutes les raies du spectre d'émission augmentent d'intensité, qu'elles soient relatives aux ROS et RNS ou aux espèces d'argon. Cette évolution de l'intensité des raies d'émission détectées en fonction de la variation de la tension appliquée est représentée sur les courbes de la figure III.44 pour une fréquence du signal d'excitation de 10 et 20 kHz. Il apparaît que comme dans le cas d'une excitation AC, les raies les plus intenses sont celle du deuxième système positif de l'azote apparaissant aux longueurs d'onde 337,1 et 375,6 nm, la raie relative à l'oxygène (777 nm) ne commence à être détectable que vers 9 kV pour un signal de fréquence 10 kHz et sur toute la plage de tension explorée (6 – 9 kV) pour une fréquence de 20 kHz. Par ailleurs, l'augmentation de l'intensité des raies en fonction de la tension appliquée présente deux pentes de variation : une croissance relativement lente dans le domaine de tension impulsionnelle 6 – 8 kV suivie d'une croissance plus rapide au-delà de 8 kV.

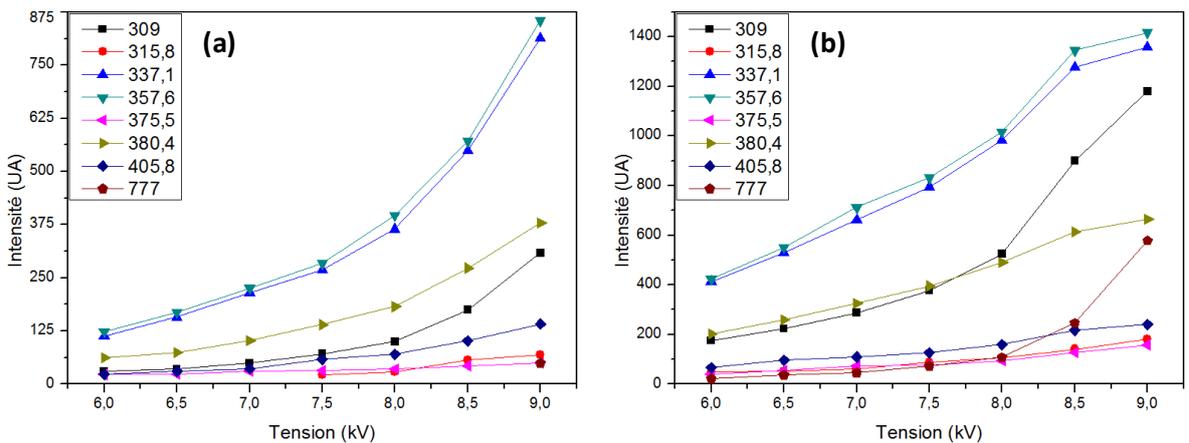


Fig. III.44 : Variation de l'intensité des raies d'émission optique de l'hydroxyle, du deuxième système positif de l'azote et de l'oxygène en fonction de la tension impulsionnelle appliquée pour (a) : $f = 10$ kHz, (b) : $f = 20$ kHz.

Si nous corrélons ces résultats de l'émission optique avec ceux de l'étude de la longueur du jet de plasma (Fig. III.22), nous remarquons un comportement contraire de la longueur du jet en fonction de la tension impulsionnelle appliquée. La longueur du jet de plasma augmente plus rapidement pour les faibles valeurs de tension que pour ses fortes valeurs, ce qui permet d'avancer que l'évolution de l'intensité des raies d'émission des espèces détectées ne peut être simplement due à un effet de géométrie du jet de plasma. Cette évolution s'explique plutôt par une interaction de plus en plus importante des boulets du jet de plasma avec l'air atmosphérique au fur et à mesure de leur propagation le long du jet. La valeur de tension 8 kV constitue en fait une sorte de seuil au-delà duquel la dissociation des molécules de l'air atmosphérique est plus importante. Nous constatons une augmentation de l'intensité de toutes les raies d'émission : celles relatives au deuxième système positif de la molécule N_2 ($C^3\Pi_u - B^3\Pi_g$), notamment les raies les plus intenses situées aux alentours de 337 et 356 nm ainsi que celles moins intenses situées aux environs de 315, 375, 380 et 405 nm) [29 – 31], de la raie située à 309 nm attribuée au radical hydroxyle (transition vibrationnelle $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi$) [34] et de la raie de l'oxygène atomique à 777 nm (transition $3p^5 P \rightarrow 3s^5 S$) [38-39]. Cette dernière qui était difficilement détectable pour les autres conditions de création du plasma (que ce soit en utilisant une excitation AC ou impulsionnelle), devient relativement prononcée pour une excitation impulsionnelle de fréquence 20 kHz et d'amplitude supérieure à 8,5 kV.

III.3.2.2.b – Effet de la variation de la fréquence du signal d'excitation

Sur la figure III.45 nous avons reporté les spectres d'émission enregistrés sur des jets de plasma générés par une excitation électrique impulsionnelle d'amplitude 6 kV et de fréquences 5 kHz et 25 kHz. Nous remarquons qu'une augmentation de la fréquence du signal impulsionnelle d'excitation du plasma induit une augmentation de toutes les raies d'émission détectées.

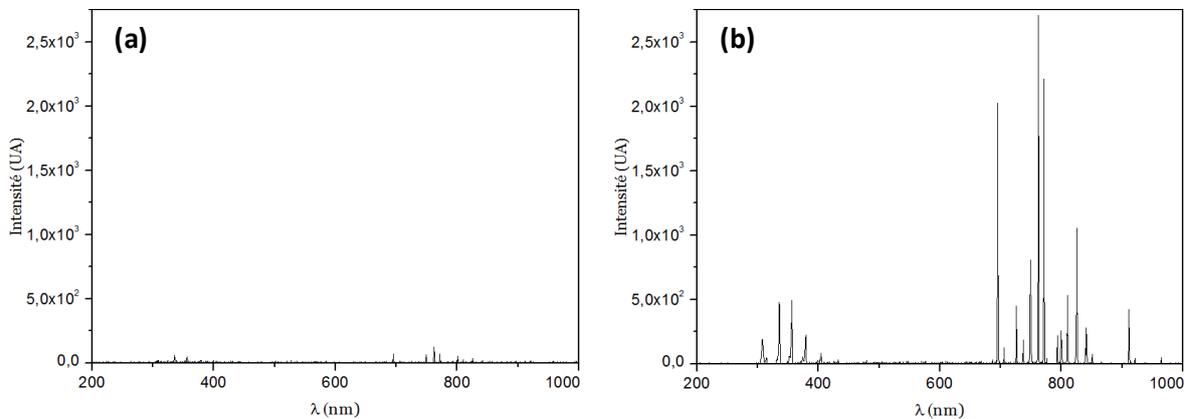


Fig. III.45 : Spectres d'émission du jet de plasma d'argon généré par un signal impulsionnel d'une amplitude de 6 kV et d'une fréquence de (a) : 5 kHz et (b) : 25 kHz.

Cependant, comme le montrent les courbes de la figure III.46, au-delà d'une certaine valeur de la fréquence d'excitation, l'augmentation des intensités des raies d'émission tend vers une saturation. Cette dernière apparaît à une fréquence de 20 kHz pour une tension d'amplitude 6 kV (Fig. III.46.a) et d'une manière plus précoce (15 kHz) pour une tension d'amplitude 9 kV (Fig. III.46.b). Nous remarquons que la dépendance des raies détectées par émission optique du jet de plasma d'argon en fonction de la variation de la fréquence de la tension d'excitation appliquée, est différente de celle de la variation de sa longueur. En effet, comme le montre la figure III.24, la longueur du jet est quasi indépendante de la variation de la fréquence du signal d'excitation dans la plage 5 – 15 kHz puis augmente sensiblement au-delà de 15 kHz. L'intensité des raies détectées des espèces ROS et RNS du jet de plasma d'argon augmente quant à elle sensiblement dans la gamme 5 – 15 kHz pour une tension appliquée de 20 kV (et dans la gamme 5 – 20 kHz pour une tension appliquée de 9 kV) puis tend à se saturer pour des fréquences au-delà de 15 kHz.

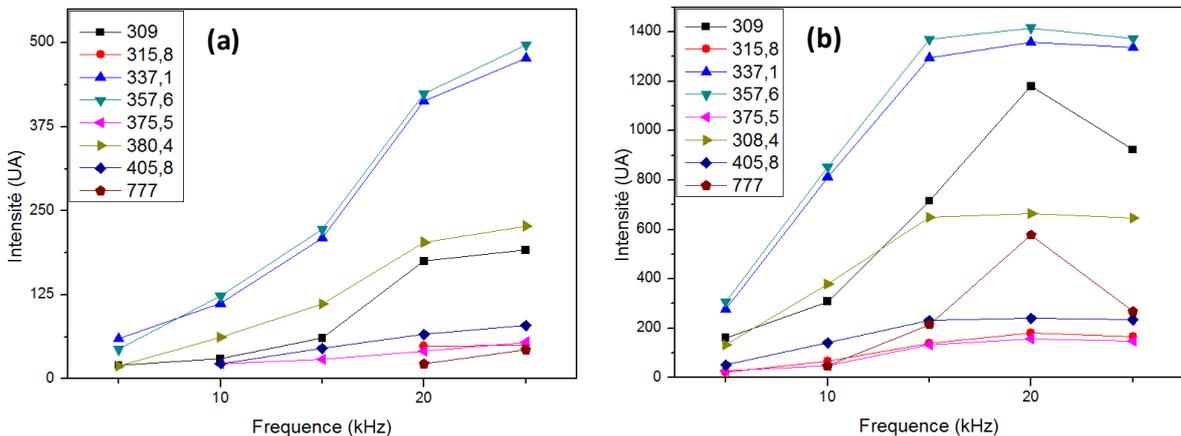


Fig. III.46 : Variation de l'intensité des raies d'émission optique de l'hydroxyle, du deuxième système positif de l'azote et de l'oxygène en fonction de la fréquence du signal d'excitation impulsif pour (a) : $V = 6$ kV, (b) : $V = 9$ kV.

Ceci montre que l'augmentation de l'intensité des raies d'émission des espèces du deuxième système positif de l'azote, du radical OH et de l'oxygène lorsque la fréquence du signal d'excitation du plasma augmente est due à une relative facilité de pénétration des boulets de plasma d'argon dans l'air atmosphérique, favorisant l'interaction des métastables d'argon avec les atomes et molécules de ce dernier. L'énergie de ces métastables est transférée aux atomes et/ou molécules de l'air amenant ainsi à la création de plus de ROS et RNS.

En comparant les résultats de cette section avec ceux obtenus en utilisant une excitation électrique du plasma de type AC, nous observons une différence de comportement des raies d'émission des espèces détectées en fonction des paramètres de la décharge plasma. Cette différence provient du fait qu'un signal pulsé délivre une grande

quantité d'énergie dans un temps très court avec un temps de repos relativement élevé, ce qui empêche l'augmentation de la température et permet une propagation plus aisée des boulets de plasma et ainsi la création de plus d'espèces ROS et RNS.

Conclusion

Un jet de plasma d'argon a été généré dans l'aire atmosphérique en utilisant un réacteur cylindrique à barrière diélectrique. Le jet de plasma a été excité en appliquant une tension alternative (ou impulsionnelle) d'amplitude entre 6 et 9 kV et de fréquences entre 4 et 27 kHz (ou entre 5 et 25 kHz) délivrée par le générateur que nous avons réalisé (ou par le générateur Redline G2000). Nous avons trouvé que la variation de la tension appliquée et de sa fréquence a une grande influence sur la géométrie du jet (longueur et forme) et sur sa composition.

Références

- [1] X.Lu, M. Laroussi, V.Puech, “*On atmospheric-pressure non-equilibrium plasma jets and plasma bullets*”, *Plasma Sources Science and Technology*, 21(3), (2012), p.034005.
- [2] V.Law, S.Anghel, “*Compact atmospheric pressure plasma self-resonant drive circuits*”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 45(7), (2012), p.075202.
- [3] G. Park *et al.*, “*Atmospheric-pressure plasma sources for biomedical applications*”, *Plasma Sources Science and Technology*, 21(4), (2012), p.043001.
- [4] A. Schutze *et al.*, “*The Atmospheric-Pressure Plasma Jet: A Review and Comparison to Other Plasma Sources*”, *IEEE Transactions on Plasma Science*. 26(6), (1998), pp. 1685–1694.
- [5] T. Manley, “*The Electric Characteristics of the Ozonator Discharge*”, *Transactions of The Electrochemical Society*, 84(1), (1943), p.83.
- [6] Q. Trinh, Y. Mok, “*Environmental plasma catalysis for the energy efficient treatment of volatile organic compounds*”. *Korean Journal of Chemical Engineering*, 33(3) (2016) pp.735–748.
- [7] G. H. Kim, S. Y. Jeong, H. C. Kwon, “*Capacitance between an atmospheric discharge plasma and the dielectric electrode in the parallel cell reactor*”, *Journal of the Korean Physical Society*, 49(3), (2006), pp.1307–1311.
- [8] K. P. Francke, R. Rudolph, H. Miessner, “*Design and operating characteristics of a simple and reliable DBD reactor for use with atmospheric air*”, *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, 23(1), (2003), pp.47–57.
- [9] H. Khatun *et al.* “*Study of filamentary behaviour in coaxial dielectric barrier discharge lamp*”. *Indian Journal of Pure and Applied Physics*, 46 (2008) pp.889–892.
- [10] J. Kriegseis, S. Grundmann, C. Tropea, “*Power consumption, discharge capacitance and light emission as measures for thrust production of dielectric barrier discharge plasma actuators*”, *Journal of Applied Physics*, 110(1), (2011), p.013305.
- [11] B. Dong, J. Bauchire, J. Pouvesle, P. Magnier, D. Hong, “*Experimental study of a DBD surface discharge for the active control of subsonic airflow*”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 41(15), (2008), p.155201.
- [12] G. D. Deepak, N. K. Joshi, U. Pal, R. Prakash, “*Electrical characterization of atmospheric pressure dielectric barrier discharge-based cold plasma jet using ring electrode configuration*”, *Laser and Particle Beams*, 34(4), (2016), pp.615–620.
- [13] S. Mahammadunnisa, P. Reddy, E. Reddy, C. Subrahmanyam, “*Catalytic DBD plasma reactor for CO oxidation by in situ N₂O decomposition*”, *Catalysis Today*, 211(2013), pp.53–57.
- [14] Y. Yin, M. Milena, M. Bilek, D. R. McKenzie, “*The origins of self-bias on dielectric substrates in RF plasma processing*”, *Surface and Coatings Technology* 200(12–13), (2006), pp.3670-3674.
- [15] Y. S. Seo, A. H. Mohamed, K. Chul Woo, H. Wook Lee, J. Koo Lee, “*Comparative studies of atmospheric pressure plasma characteristics between He and Ar working gases for sterilization*”, *IEEE Transactions on Plasma Science* 38(10), (2010), pp.2954–2962.

- [16] X. Li, P. Jia, N. Yuan, T. Fang, L. Wang, “One atmospheric pressure plasma jet with two modes at a frequency of several tens kHz”, *Physics of Plasmas*, 18(4), (2011), p.043505.
- [17] Q. Li, J. T. Li, W. C. Zhu, X. M. Zhu, Y. K. Pu, “Effects of gas flow rate on the length of atmospheric pressure nonequilibrium plasma jets”, *Applied Physics Letters*, 95, (2009), p.141502.
- [18] Q. Li, X. M. Zhu, J. T. Li, Y. K. Pu, “Role of metastable atoms in the propagation of atmospheric pressure dielectric barrier discharge jets”, *Journal of Applied Physics*, 107, (2010), pp.043304.
- [19] Q. Xiong *et al.*, “Length control of He atmospheric plasma jet plumes: Effects of discharge parameters and ambient air”, *Physics of Plasmas*, 16, (2009), p.043505.
- [20] R. Xiong, Q. Xiong, A. Y. Nikiforov, P. Vanraes, C. Leys, “Influence of helium mole fraction distribution on the properties of cold atmospheric pressure helium plasma jets”, *Journal of Applied Physics*, 112(3), (2012), p.033305.
- [21] M. T. Benabbas, S. Sahli, A. Benhamouda, S. Rebiai, “Effects of the electrical excitation signal parameters on the geometry of an argon-based non-thermal atmospheric pressure plasma jet”, *Nanoscale Research Letters*, 9(1), (2014), p.697.
- [22] X. J. Shao, N. Jiang, G. J. Zhang, Z. Cao, “Comparative study on the atmospheric pressure plasma jets of helium and argon”, *Applied Physics Letters*, 101(25), (2012), p.253509.
- [23] M. K. Sharma, B. K. Saikia, “Discharge conditions and emission spectroscopy of N_2 and N_2^+ active species in a variable power dc pulsed plasma used for steel nitriding”, *Indian Journal of Pure & Applied Physics*, 46, (7), (2008), pp.463–470.
- [24] “Optical emission spectroscopy of plasma”, www.fch.vut.cz/~krcma/vyuka/plazma/3-oes-en.pdf (08 Fev. 2018).
- [25] R. Shrestha *et al.*, “Experimental study of atmospheric pressure Argon plasma jet-induced strand breakage in large DNA molecules”. *Plasma Medicine*, 7(1), (2017), pp.65–76.
- [26] A. Lehmann, F. Pietag, Th. Arnold, “Human health risk evaluation of a microwave-driven atmospheric plasma jet as medical device”, *Clinical Plasma Medicine*, 7–8, (2017), pp.16–23.
- [27] H. M. Joh, S. J. Kim, T. H. Chung, S. H. Leem, “Comparison of the characteristics of atmospheric pressure plasma jets using different working gases and applications to plasma-cancer cell interactions”, *AIP Advances*, 3(9), (2013), p.092128.
- [28] L. Han *et al.*, “Mechanisms of inactivation by high-voltage atmospheric cold plasma differ for *Escherichia coli* and *Staphylococcus aureus*”, *Applied and Environmental Microbiology*, 82(2), (2016), pp.450–458.
- [29] N. Mastanaiah, J. A. Johnson, S. Roy, “Effect of dielectric and liquid on plasma sterilization using dielectric barrier discharge plasma”, *Plos One*, 8(8), (2013), p.e70840.

- [30] T. H. Van NGUYEN, “*Spectroscopie d’émission d’un plasma créée par des décharges couronne dans l’hélium*”, Thèse de doctorat, (2015), Université de Grenoble, France.
- [31] Z. Tucekova, Z. Kovalova, A. Zahoranova, Z. Machala, M. Cernak, “*Inactivation of Escherichia coli on PTFE surfaces by diffuse coplanar surface barrier discharge*”, *European Physical Journal Applied Physics*, 75(2), (2016), p.24711.
- [32] T. Vasquez, “*Étude de l’interaction d’un jet de plasma froid d’argon avec des surfaces solides*” Mémoire de Master, (2017), Université Orsay Sud, France.
- [33] P. J. Bruggeman *et al.*, “*Plasma–liquid interactions : a review and roadmap*”, *Plasma Sources Science and Technology*, 25(5), (2016), p.053002.
- [34] E. Langlois-Bertrand, “*Caractérisation d’un jet de plasma d’argon laminaire : détermination des champs de températures par spectroscopies atomique et moléculaire et mesures de vitesses d’écoulement*”, Thèse de doctorat, (2011), Université d’Orléans, France.
- [35] T. Darny *et al.*, “*Plasma action on helium flow in cold atmospheric pressure plasma jet experiments*”, *Plasma Sources Science and Technology*, 26(10), (2017), pp.105001–105012.
- [36] N. Srivastava, C. Wang, “*Determination of OH radicals in an atmospheric pressure Helium microwave plasma jet*”, *IEEE Transactions on Plasma Sciences* 39(3), (2011), pp.918–924.
- [37] S. Yonemori, R. Ono, T. Oda “*Measurement of OH radical in the effluent of an atmospheric-pressure helium plasma jet*”, *Proceeding of IEEE Industry Applications Society Annual Meeting (IAS)*, 7–11 Oct. 2012, Las Vegas, Nevada, USA.
- [38] M. Janda, V. Martišovits, K. Hensel, Z. Machala, “*Generation of antimicrobial NOx by atmospheric air transient spark discharge*”, *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, 36(3), (2016), pp.767–781.
- [39] S. Z. Li, W. T. Huang, J. Zhang, D. Wang, “*Optical diagnosis of an argon/oxygen needle plasma generated at atmospheric pressure*”, *Applied Physics Letters*, 94(11), (2009), p.111501.
- [40] G. D. Wei, C. S. Ren, M. Y. Qian, Q. Y. Nie, “*Optical and electrical diagnostics of cold Ar atmospheric pressure plasma jet generated with a simple DBD configuration*”, *IEEE Transactions on Plasma Science* 39(9), (2011), pp.1842–1848.
- [41] X. Cheng, J. Sherman, W. Murphy, E. Ratovitski, J. Canady, M. Keidar “*The effect of tuning cold plasma composition on glioblastoma cell viability*”, *Plos One*, 9(5), (2014), p.e98652.
- [42] M. Qian, C. Ren, D. Wang, J. Zhang, G. Wei, “*Stark broadening measurement of the electron density in an atmospheric pressure argon plasma jet with double-power electrodes*”, *Journal of Applied Physics*, 107(6), (2010), p.063303.
- [43] H. Kim, A. Brockhaus, J. Engemann, “*Atmospheric pressure argon plasma jet using a cylindrical piezoelectric transformer*”, *Applied Physics Letters*, 95(21), (2009), p.211501.

- [44] D. Park, G. Fridman, A. Fridman, D. Dobrynin, “*Plasma Bullets Propagation Inside of Agarose Tissue Model*”, IEEE Transactions on Plasma Science, 41(7), (2013), pp.1725–1730.
- [45] J. J. Liu, M. G. Kong “*Sub-60 °C Atmospheric Helium-Water Plasma Jets: Modes, Electron Heating and Downstream Reaction Chemistry*”, Journal of Physics D: Applied Physics, 44(34), (2011), pp.1–16.

Chapitre IV

*Application du jet de plasma d'argon pour
l'inactivation de la bactérie E. coli*

Introduction

Les plasmas froids atmosphériques sont les plasmas les plus utilisés dans le domaine biomédical. Facile à générer et à manipuler, les plasmas froids ne présentent pas de risque majeur sur le manipulateur et le patient ou les échantillons traités.

Chaque source de plasma est différente suite à des différences dans la géométrie du réacteur, du signal électrique appliqué ainsi que de la nature et du débit du gaz utilisé. Afin de tester l'efficacité du jet de plasma que nous avons créé en utilisant le réacteur que nous avons réalisé, nous l'avons appliqué pour le traitement de microorganismes vivants. Pour cela nous avons exposé à notre jet de plasma, des cultures de la bactérie *Escherichia coli* étalées sur des surfaces solides ou diluées dans un milieu aqueux. Les surfaces solides sont en réalité des cultures de *Escherichia coli*ensemencées sur des disques d'agar contenus dans des boîtes de Pétri. Ces cultures nous ont été préparées dans le *Laboratoire de Mycologie, de Biotechnologie et de l'Activité Microbienne (LaMyBAM) de l'Université Frères Mentouri – Constantine*) et qui a ainsi largement contribué à cette étude. Le milieu aqueux est constitué de bactéries *Escherichia coli* que nous avons cultivé dans de l'eau déminéralisée. Nous avons préparé et étudié ces échantillons dans le *Laboratoire de la Division of Environmental Physics, Department of Astronomy, Earth Physics and Meteorology, Faculty of Mathematics, Physics and Informatics, Comenius University, Bratislava- Slovakia*.

L'efficacité du traitement est évaluée quantitativement à travers la mesure de la surface de la zone désactivée des cultures de bactérie étalées sur une boîte de Pétri et en mesurant le taux de réduction de la charge bactérienne dans le cas des cultures diluées dans un milieu aqueux.

IV.1 – Choix du microorganisme traité par le jet de plasma

IV.1.1 – Classification selon la coloration de gram

Les procaryotes souvent nommées bactéries, sont des organismes unicellulaires dont la structure ne comporte pas de noyau. Selon les propriétés de leurs parois, la population bactérienne est divisée en deux catégories : bactéries à Gram positif et bactéries à Gram négatif.

Comme le montre le schéma de la figure IV.1, les bactéries à Gram positif sont dotées :

- D'une membrane externe épaisse constituée principalement de multicouche de peptidoglycane (1), acides lipotéichoïques (2), acides téichoïques (3) et des protéines (4).

- D'une membrane cytoplasmique (5) constituée d'une double couche de phospholipides et de protéines.

L'espace séparant les deux membranes est appelé la zone pariétale interne.

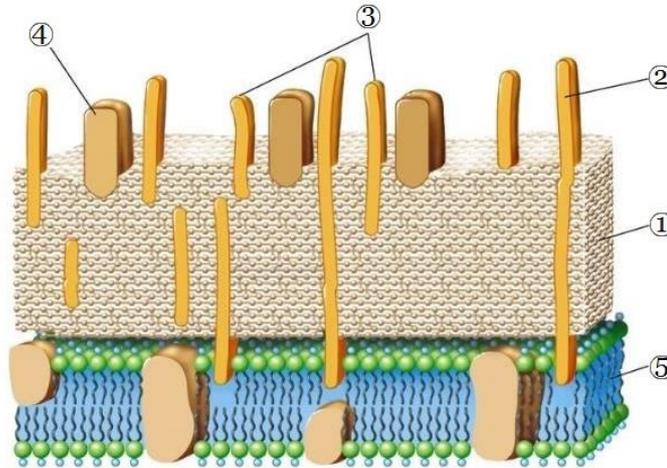


Fig. IV.1 : Structure de la paroi d'une bactérie à Gram positif [1].

Contrairement aux bactéries à Gram positif, les bactéries à Gram négatif ont une structure de paroi plus complexe. Elle est représentée sur le schéma de la figure IV.2. Leur paroi est constituée :

- D'une membrane externe composée de lipopolysaccharides (1), de porines (2), d'une double couche de phospholipides (3), protéines (4).
- D'un milieu appelé périplasma séparant la membrane externe décrite plus haut et la membrane interne. Le périplasma est composé de lipoprotéines (5) et de peptidoglycane (6) sous forme de multicouche d'épaisseur très inférieure à celle qu'on trouve au niveau de la paroi externe d'une bactérie à Gram positif.
- D'une membrane cytoplasmique formant la paroi interne et constituée d'une double couche de phospholipides et de protéines.

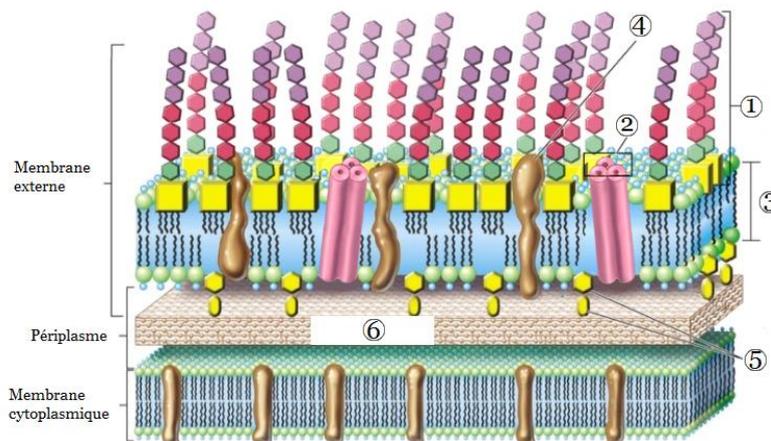


Fig. IV.2 : Structure de la paroi d'une bactérie à Gram négatif [1].

IV.1.2 – Choix du microorganisme

Pour le choix des microorganismes à traiter en utilisant la source de jet de plasma que nous avons conçu et réalisé, nous nous sommes basés sur les critères suivants :

- La présence du microorganisme dans notre vie quotidienne.
- Le risque que présente le microorganisme pour la santé du manipulateur. Ce risque doit être faible voire inexistant.
- La facilité de la culture du microorganisme.
- La facilité de sa manipulation lors des étapes de son traitement par notre jet de plasma et après le traitement.
- Un cycle de vie court.

Un des microorganismes répondant à ces critères est la bactérie *Escherichia coli*, connue le plus souvent sous l'abréviation *E. coli*. Découverte par *Theodor Escherich* en 1885, cette bactérie est très présente dans notre environnement et notamment dans notre système digestif. Elle ne présente généralement aucun danger, cependant certaines de ses souches peuvent être pathogènes et virulentes. Elles peuvent provoquer une intoxication ou une maladie grave d'origine alimentaire telle que la souche entérohémorragique (ECEH) qui provoque des diarrhées sanglantes (gastro-entérites) *E. coli* O157:H7 [2]. La bactérie *E. coli* est une bactérie à Gram négatif qui se présente sous forme de bâtonnets (Fig. IV.3) d'une longueur variant de quelques dixièmes de microns à quelques micromètres. Dans un milieu de culture adéquat et sous une température de 37 °C, elle se multiplie par division cellulaire toutes les 20 minutes, ce qui a contribué à sa large étude et son succès dans les travaux de recherches scientifiques.

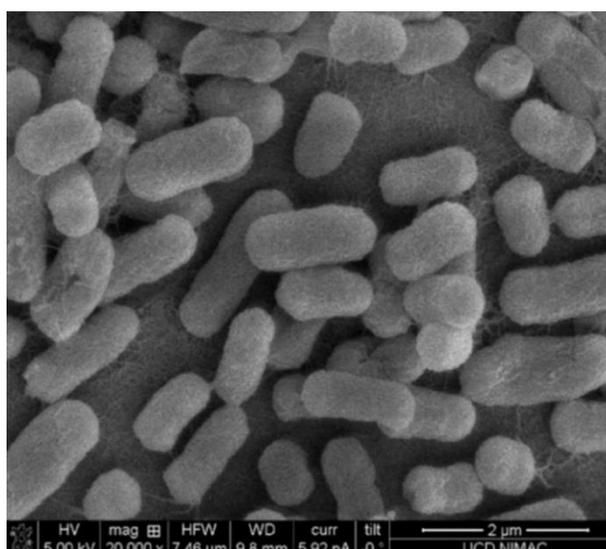


Fig. IV.3 : Image de microscopie électronique à balayage d'une culture de bactéries *E. coli* NCTC 12900 [3].

Dans le cadre de ce travail, pour l'étude de l'efficacité de notre jet de plasma sur l'inactivation de microorganismes vivants, nous avons utilisé la souche *E. coli* BW25113F– [4] qui ne représente pas de danger pour le manipulateur en cas de contamination durant les expériences.

IV.2 – Inactivation des bactéries sur une surface solide

Pour étudier l'effet de notre jet de plasma sur les bactéries présentes sur une surface solide, nous avons utilisé de l'agar contenu dans des boîtes de pétri comme support physique et sur lequel nous avons étalé les bactéries *E. coli* à traiter.

IV.2.1 – Préparation des échantillons

Le milieu de culture est constitué d'un bouillon lysogène (connu sous l'appellation LB) en poudre dilué à 25 g/l mélangé à de l'agar à 20 g/l pour solidifier le mélange. De l'eau déminéralisée est ajoutée à ce mélange. Ce dernier est ensuite chauffé dans un autoclave pendant 20 min à une température de 121 °C et ce, en vue de l'obtention d'un milieu de culture stérile.

Un volume de 16.6 ml du milieu de culture est versé dans des boîtes de pétri de 6,5 cm de diamètre. Ce volume permet l'obtention d'une épaisseur d'environ 0,5 cm de ce milieu de culture. La connaissance de la valeur de l'épaisseur du milieu de culture est primordiale pour la détermination de la distance séparant la surface traitée de la source du jet de plasma.

La souche bactérienne est conservée à une température de 4 °C et elle est réactivée lors de son utilisation. Pour sa réactivation, on mélange dans un tube à essai 25 µl de la suspension contenant la souche de la bactérie à un bouillon nutritive de 2 ml de volume. On place le tube dans un agitateur réglé sur une faible vitesse et à une température de 35 °C pendant une durée de 24 heures. Après agitation, dans chaque boîte de pétri contenant au préalable le milieu de culture, on étale dessus d'une manière uniforme, 50 µl de la nouvelle suspension contenant les bactéries *E. coli* réactivées. Après leur séchage, nous utilisons ces échantillons pour mener notre étude sur l'effet de l'exposition de ces cultures de *E. coli* au jet de plasma.

IV.2.2 – Effet de l'exposition de la bactérie E. coli au jet de plasma

Nous avons soumis la surface de la culture de la bactérie *E. coli* BW25113F étalée sur la boîte de pétri à l'effet de notre jet de plasma. Dans une première série d'expériences, nous avons fait varier la durée d'exposition au plasma tout en gardant la distance d représentant l'espace séparant la source du jet du plasma de la surface de la culture

constante alors que dans une secondes séries d'expériences nous avons fait varier d et nous avons fixé à une valeur constante la durée de l'exposition au jet de plasma. La variation du temps d'exposition de la bactérie au jet de plasma a été faite dans la plage temporelle 2 - 10 min alors que celle de la distance d a été faite dans le domaine spatial 20 à 40 mm.

Sur la figure IV.4 nous avons reporté les photos d'une culture de bactéries *E. coli* avant (Fig. IV.4.a) et après (Fig. IV.4.b) son exposition à un jet de plasma atmosphérique créé dans un flux d'argon de débit égal à 3 l/min avec une distance d séparant cette dernière de la source du jet de 20 mm.

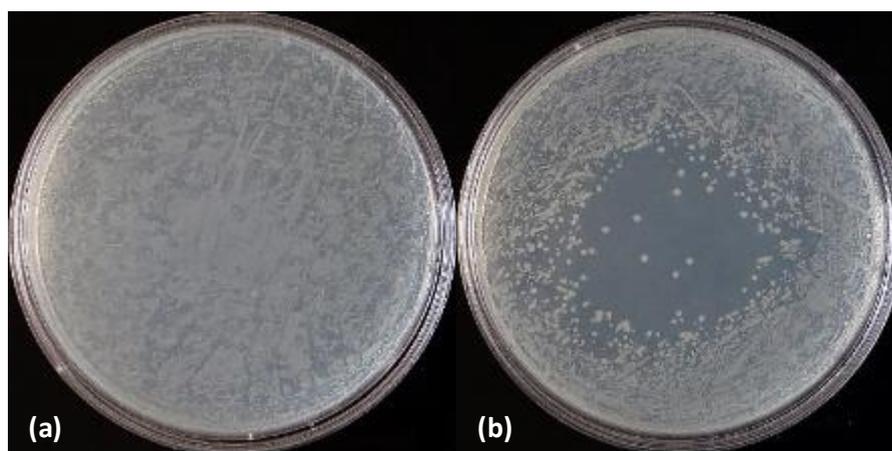


Fig. IV.4 : Photos de la culture de la bactérie *E. coli* avant (a) et après son exposition pendant 10 min (b) à un jet de plasma d'argon créé à pression atmosphérique et positionné à une distance $d = 20$ mm.

La photo relative à l'échantillon de contrôle montre une culture de bactéries très dense, notamment vers le centre de la boîte de pétri. Après l'exposition de cette culture au jet de plasma, nous remarquons l'apparition d'une zone de géométrie quasi-circulaire de diamètre d'environ 19,3 mm, quasi-complètement désertée des colonies de la bactérie initialementensemencée dans la culture. Seules les traces de quelques colonies sont encore visibles, parsemées d'une manière aléatoire sur la surface ayant été exposée au jet de plasma. Cette élimination des colonies des bactéries *E. coli* est causée par les espèces actives qui ont été créées par le jet de plasma généré dans le flux d'argon plongé dans l'air atmosphérique. En effet, une décharge plasma est responsable de la création d'une multitude d'espèces, tels que des atomes et radicaux plus ou moins réactifs, de photons UV, de particules chargées (électrons et ions) ainsi que d'un champ électrique. Pour mieux comprendre l'action de de ces espèces sur la culture de bactéries *E. coli*, nous donnerons dans le prochain paragraphe plus de détails sur la nature de ces espèces et leurs effets sur les microorganismes vivants [5].

IV.2.2.1 – Les dérivés réactifs de l'oxygène et de l'azote

En entrant en interaction avec l'air environnant, un jet de plasma est capable de créer une multitude d'espèces chimiques. Nous trouvons bien sûr les espèces d'argon sous différentes formes comme ceci a été révélé par les résultats de la spectroscopie d'émission optique présentés dans le chapitre III. Cependant les espèces d'argon sont faiblement réactives, voir pas réactives du tout vis-à-vis des constituants chimiques des microorganismes et seules leur énergie et leur charge électrique peuvent avoir un effet et permettent surtout l'ionisation des atomes et des molécules de l'air ambiant dans lequel le jet de plasma créé dans l'argon est plongé. Comme l'air est composé de près de 21% d'oxygène et de 78% d'azote, les espèces créées par le jet de plasma (autres que les espèces d'argon du gaz utilisé), sont en grande partie des dérivés réactifs de l'oxygène et des dérivés réactifs de l'azote connus sous la dénomination anglo-saxonne respectives de « *Reactive Oxygen Species* » ou *ROS* et « *Reactive Nitrogen Species* » ou *RNS*. L'analyse par émission optique que nous avons présentée dans le chapitre III (paragraphe III. 4) a effectivement révélé la présence de quelques-unes de ces espèces dans le jet de plasmas que nous avons créé dans un flux d'argon dans l'air atmosphérique. Ces espèces chimiques sont les principaux agents d'inactivation bactérienne par plasma atmosphérique, et chaque type est divisé en deux catégories : les radicaux et les non-radicaux [6, 7]. Nous avons reporté dans les tableaux 1 et 2 quelques-unes de ces espèces. Les molécules d'eau présentes dans l'humidité résiduelle de l'environnement dans lequel est créé le plasma, jouent également un rôle important et permettent la création de groupements OH (hydroxyle). Rappelons que la présence du groupement hydroxyle a été révélée dans notre cas à travers l'apparition sur le spectre d'émission optique du jet de plasma, d'une raie d'émission à 309 nm [8, 9].

Radicaux	Non-radicaux
Superoxyde, O_2^-	Peroxyde d'hydrogène, H_2O_2
Hydroxyle, $\bullet OH$	Ozone, O_3
Perhydroxyle, HO_2	Oxygène singulet, $^1O_2^1\Delta_g$
Oxygène singulet, $^1O_2^1\Sigma_g$	Peroxynitrite, $ONOO^-$
	Peroxynitrate, O_2NOO^-
	Acide Peroxynitreux, $ONOOH$
	Acide hypochloreux, $HOCl$

Tab. IV.1 : Dérivés réactifs de l'oxygène (*ROS*) [6, 7].

Radicaux	Non-radicaux
Monoxyde d'azote, •NO	Acide nitreux, HNO ₂
Dioxyde d'azote, •NO ₂	Acide nitrique, HNO ₃
Nitrite, NO ₂ ⁻	Anion nitroxyle, NO ⁻
•NO ₃	Nitrosonium, NO ⁺
Nitrate, NO ₃ ⁻	Anion peroxy nitrite, ONOO ⁻
	Peroxy nitrate, O ₂ NOO ⁻
	Acide Peroxy nitreux, ONOOH
	Chlorure de nitryle, NO ₂ Cl

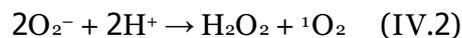
Tab. IV.2 : Dérivés réactifs de l'azote (RNS) [6, 7].

Il faut signaler que les espèces réactives d'oxygène ne sont pas des particules étrangères à la cellule, certaines sont même produites par cette dernière [10]. Par ailleurs, les cellules sont dotées d'un mécanisme de régulation dont le rôle est de maintenir les différents paramètres et éléments nécessaires à la survie autour d'une valeur bénéfique (homéostasie) [11]. De ce fait, une cellule est capable d'éliminer un excédent de ROS et de RNS. L'exposition d'une cellule à de faibles doses d'espèces réactives externes peut être sans conséquence, voir même bénéfique dans certains cas. Cependant, si la dose de cette exposition est suffisamment importante et produit suffisamment d'espèces ROS et d'espèces RNS à tel point que les cellules ne peuvent plus être en mesure d'éliminer leur excédent, ces dernières peuvent être sérieusement détériorées de l'extérieur en premier puis ensuite de leur intérieur. Cette détérioration amène irrémédiablement à leur désactivation. Dans ce qui suit nous présenterons quelques-unes des réactions chimiques possibles pouvant se produire avant et/ou lors de l'interaction des espèces du plasma (comme les ROS et les RNS) avec des éléments chimiques rentrant dans la constitution des différentes parties d'une cellule.

Le NADPH oxydase (nicotinamide adénine dinucléotide phosphate oxydase) est un complexe enzymatique qui est responsable de la conversion de l'oxygène (O₂) en superoxyde (O₂⁻) en libérant un proton H⁺ comme le montre la relation suivante :



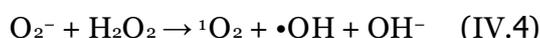
Cette opération effectuée à partir de l'intérieur et/ou de l'extérieur de la cellule est à l'origine de la création du peroxyde d'hydrogène (H₂O₂) relation IV.2).



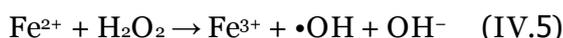
Le peroxyde d'hydrogène (H₂O₂) entre en interaction avec la protéine tyrosine kinase dans son état réduit et moins actif afin de l'activer en l'oxydant. Il entre en interaction avec la protéine tyrosine phosphatase dans son état réduit et actif afin de l'inactiver à travers son oxydation. Ces deux éléments sont les éléments essentiels pour la communication cellulaire [12].

Où Mⁿ⁺ représente un métal et SOD le superoxyde dismutase.

L'excédent en H₂O₂ est ensuite éliminé par la peroxiredoxine, une molécule réductrice clé qui tend à éliminer H₂O₂ du cytosol, elle-même éliminée (ou du moins sa concentration diminuée) par le H₂O₂ soit par hyperoxydation soit par phosphorylation. Le superoxyde et le peroxyde d'hydrogène sont aussi à l'origine de la création d'oxygène singulet, d'hydroxyle et d'hydroxyde. C'est la réaction Haber-Weiss qui s'écrit sous la forme :



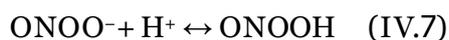
Signalons qu'en présence de métaux dans la cellule tel que le fer (Fe), le H₂O₂ entre en interaction avec ce dernier, produisant ainsi de l'hydroxyle et de l'hydroxyde. C'est la réaction de Fenton [13] s'écrivant sous la forme :



Le superoxyde entre également en interaction avec le monoxyde d'azote •NO présent dans l'air ou produit par certaines cellules, ce qui produit l'ion peroxynitrite (ONOO⁻) [13] :



L'ion peroxynitrite entre en interaction avec un proton (H⁺) pour produire l'acide peroxynitreux (ONOOH) [14] :

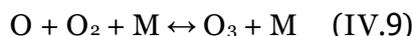


De même, le dioxyde d'azote •NO₂ entre en interaction avec l'hydroxyle (•OH) pour produire l'acide peroxynitreux ONOOH suivant la réaction suivante [15] :

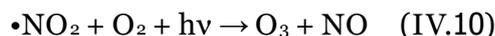


Ces deux groupements (l'ion peroxynitrite et l'acide peroxynitreux) ont la capacité de réagir avec une variété de cibles organiques causant la modification des protéines, l'oxydation des lipides et des dommages à l'ADN, directement ou indirectement. Ces deux composants chimiques sont considérés comme des espèces réactives d'oxygène et d'azote, elles s'introduisent à l'intérieur de la cellule par canal ionique (ONOO⁻) ou diffusion passive (ONOOH) dans le cas d'une production externe [16].

Une des espèces très réactive générée par le plasma est l'ozone. Ce dernier est obtenu suite à la recombinaison à trois corps [17] :



(Le troisième corps (M) peut être de l'oxygène), ou par l'interaction entre le dioxyde d'azote et l'oxygène [18] :



En entrant en interaction avec la paroi de la cellule, l'ozone oxyde cette dernière et selon sa concentration, cette oxydation peut être partielle ou totale.

L'oxydation de la membrane cellulaire peut conduire à son dysfonctionnement ou bien à sa rupture. Le dysfonctionnement peut être dû à une pénétration des ROS et/ou RNS à l'intérieur de la cellule puis leurs réactions chimiques avec les protéines, les lipides et l'ADN, causant des modifications et même des dommages au niveau de ce dernier. La rupture de la membrane peut se produire à travers la formation de produits volatils suite à des réactions chimiques de ses propres constituants chimiques avec les espèces réactives créées par le jet de plasma tels que les ROS et/ou les RNS, amenant à la libération du contenu de la cellule et à sa désactivation (mort).

Dans notre cas, les espèces réactives produites par notre jet de plasmas créé dans l'argon et les atomes de l'atmosphère qui l'entoure (air ambiant), entrent en interaction avec la cellule et notamment sa paroi externe. L'hydroxyle et le superoxyde créés réagissent avec les lipides de la membrane et les oxydent (peroxydation des lipides [19]) amenant à leur combustion et ainsi la disparition des colonies de la surface de la boîte de pétri. Un effet de la pulvérisation de la membrane par les espèces énergétiques du plasma peut coexister avec le processus de sa combustion par les espèces réactives créées dans le jet de plasma. Cependant, à cause de la pression atmosphérique où est créé le jet de plasma et ainsi du nombre important de collisions des espèces chargées avec les différentes particules de l'atmosphère, ce processus reste moins significatif que celui rencontré dans le cas de plasmas créés sous vide.

IV.2.2.2 – Les espèces chargées

Dans un jet de plasma nous trouvons une multitude d'espèces chargées électriquement que ce soit négativement (ions et électrons) ou positivement (ions). Les électrons lors de leur interaction avec les parois externes de la cellule exposée peuvent soit casser des liaisons chimiques de molécules rentrant dans la constitution de cette cellule soit seulement s'accumuler au niveau de sa surface si cette dernière a un caractère relativement isolant. L'accumulation d'électrons conduit à la formation d'une charge d'espace et d'un

champ électrique dont nous expliquerons l'effet dans le sous paragraphe qui suivra. La rupture de liaisons chimiques par les électrons du plasma active la surface de la cellule et ainsi favorise la formation d'autres liaisons chimiques entre ces liaisons chimiques activées et les espèces créées par le jet de plasma ou les atomes se trouvant dans l'environnement immédiat de la cellule. Les nouvelles liaisons chimiques formées peuvent causer des dommages au niveau de la paroi de la cellule provoquant ainsi sa désactivation. Par exemple, dans un milieu aqueux, un électron hydraté est capable de convertir l'oxygène dissous dans l'eau en superoxyde [20] avec la possibilité de la présence du radical hydroxyle (OH) [6]. Comme nous l'avons mentionné plus haut, ces dernières espèces oxydées sont très virulentes vis-à-vis des constituants chimiques de la cellule amenant à sa destruction.

Les ions étant de plus grandes tailles et plus lourds que les électrons, leurs collisions avec la paroi de la cellule peuvent provoquer la pulvérisation de certaines parties de cette dernière, conduisant ainsi à la destruction de sa paroi et par conséquent à sa mort. Ceci n'empêche pas qu'une certaine quantité des ions peut se déposer sur les parois de la cellule créant ainsi un champ électrostatique. Les forces électrostatiques exercées peuvent provoquer la rupture de la paroi si la condition suivante est vérifiée [21] :

$$|\phi| > 0,2\sqrt{r\Delta F_t} \quad (\text{IV.11})$$

Avec ϕ le potentiel flottant, r le rayon de la courbure de la cellule, Δ l'épaisseur de la membrane et F_t la résistance à la traction.

IV.2.2.3 – Le champ électrique

Dans le cas d'une décharge plasma de type streamer, il existe deux champs électriques. Le premier est le champ externe appliqué, le second et le champ généré par les streamers (l'effet de l'accumulation des charges électrostatiques rappelé plus haut en fait partie). Lorsque nous rapprochons la surface de la culture de la source du jet de plasma et donc de la zone de décharge où la concentration des streamers est très importante, le champ externe gagne en intensité et l'effet du champ électrique devient de plus en plus prononcé. Le champ électrique peut être si important qu'il provoque une pulvérisation de la région où il est appliqué et par conséquent conduit à la création de pores dans la membrane cellulaire (Fig. IV.5). C'est le phénomène d'électroporation appelé également électro-perméabilisation et qui constitue une des applications du champ électrique dans le domaine de la biologie. Comme son nom l'indique, cette application permet la création des pores au niveau de la paroi permettant ainsi le passage d'atomes ou de molécules de l'extérieur vers l'intérieur de la cellule et inversement. Cette création de pores contribue au passage des RONS et/ou des

RNS du milieu extra cellulaire vers le milieu intra cellulaire. L'interaction des constituants chimiques interne de la cellule avec les ROS et/ou les RNS amène à la destruction de son matériel génétique. Dans le cas où l'électroporation est irréversible (c'est-à-dire que les pores restent ouverts), un passage des constituants intracellulaires vers l'extérieur peut se produire et amener à terme à la mort de la cellule.

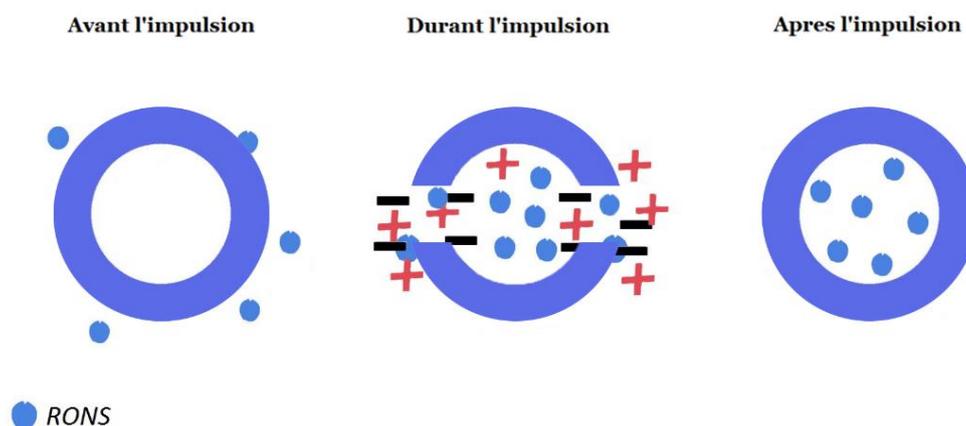


Fig. IV.5 : Effet d'un champ électrique sur la paroi d'un microorganisme [22].

IV.2.2.4 – Les photons UV

Les lampes UV sont largement utilisées pour la stérilisation dans beaucoup de domaines tels que l'industrie fromagère et les laboratoires de microbiologie. Les rayonnements UV se subdivisent en trois catégories : les UV-A, les UV-B et les UV-C et agissent sur l'ADN des microorganismes, ce qui induit leur désactivation.

Lors de leur interaction avec l'ADN d'une cellule, les UV-B et le UV-C provoquent un dimère de pyrimidine suite à l'interaction avec les résidus de thymine ou de cytosine adjacents. L'énergie absorbée au niveau de deux pyrimidines adjacentes fournit l'énergie nécessaire à la formation d'une liaison covalente entre ces deux bases, au détriment des liaisons hydrogène établies entre deux bases complémentaires et assurant la cohésion de la double hélice d'ADN (Fig. IV.6). La dimérisation inhibe la capacité des bactéries à se répliquer correctement [23].

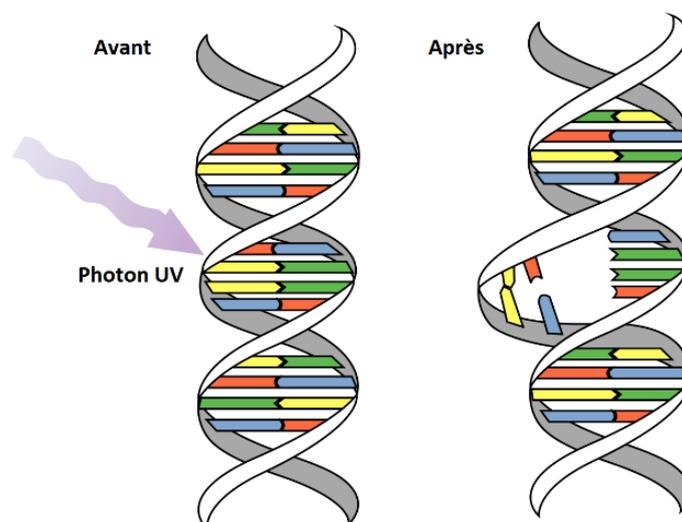


Fig. IV.6 : Schéma représentant l'effet des UV sur l'ADN [23].

D'après Laroussi *et al.* [5], Fridman *et al.* [24] et Machala *et al.* [25], les UV jouent un rôle minime dans l'inactivation des micro-organismes, cependant une exposition directe à la décharge plasma peut augmenter leur effet.

Toutes les espèces plasmas telles que les ROS et RNS, les UV, les espèces chargées et le champ électrique, peuvent être présentes dans le jet de plasma que nous avons créé dans un flux d'argon à la pression atmosphérique. Leur interaction avec la bactérie *E. coli* conduit dans un premier temps à l'ouverture de sa membrane externe suite à la combustion de ses constituants élémentaires après leurs réactions chimiques avec les espèces réactives créées dans le plasma et/ou suite à son bombardement par les espèces chargées (principalement les ions) fortement accélérées par le champ électrique appliqué et qui pulvériseraient les membranes cellulaires. Notons néanmoins que la pression atmosphérique sous laquelle est créé le jet de plasma augmente la probabilité de collisions des ions avec les espèces présentes dans l'environnement, ce qui peut réduire leur énergie et leur capacité à pulvériser les membranes des bactéries.

Dans un deuxième temps, les constituants intracellulaires de la bactérie interagissent avec les espèces créées dans le plasma, ce qui amène à leur destruction à travers des processus similaires que ceux qui ont amené à la destruction de la membrane externe de la cellule (consommation de tous ses constituants chimiques et/ou dans une faible mesure sa pulvérisation) [5, 26, 27]. Cette consommation et/ou pulvérisation des constituants de la cellule, explique par conséquent la présence de la zone désertée de colonies de la bactérie *E. coli*. Hans *et al* [3] ont proposé les étapes amenant à la destruction de la bactérie par les ROS comme reporté sur le schéma de la figure IV.7.

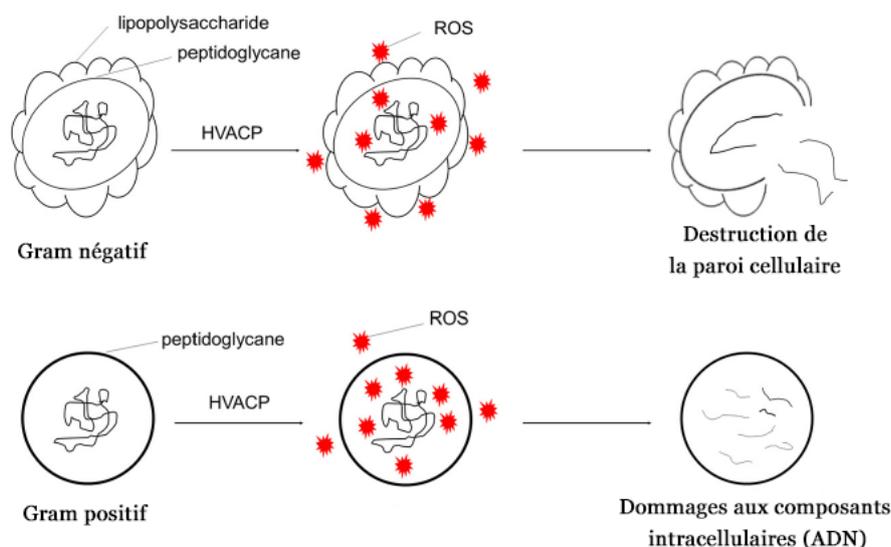


Fig. IV.7 : Schéma du processus de destruction de la bactérie lors de leur interaction avec les ROS [3].

IV.2.3 – Effet de la durée de l'exposition au jet de plasma sur l'inactivation de la bactérie *E. coli*

Les photos de la figure IV.8 montre l'effet du temps d'exposition des cultures de la bactérie *E. coli* à un jet de de plasma (débit 3 l/min) créé à la pression atmosphérique et avec une distance d séparant cette dernière de la source du jet de 20 mm. Nous remarquons que pour une durée de 2 min, une zone de forme quasi circulaire déserte de colonies de bactéries commence à se former sur la surface de la boîte de pétri (Fig. IV.8.b). Une augmentation du temps d'exposition à notre jet de plasma laisse quasi-invariante la forme de cette zone désertée de colonies de *E. coli*, quoique mieux définie pour un temps d'exposition de 2 min en comparaison avec celle observée pour une durée de d'exposition de 10 min. L'aire de cette zone s'agrandit au fur et à mesure que la durée d'exposition à notre jet de plasma atmosphérique augmente tout en restant dans la plage temporelle 2 – 10 min.

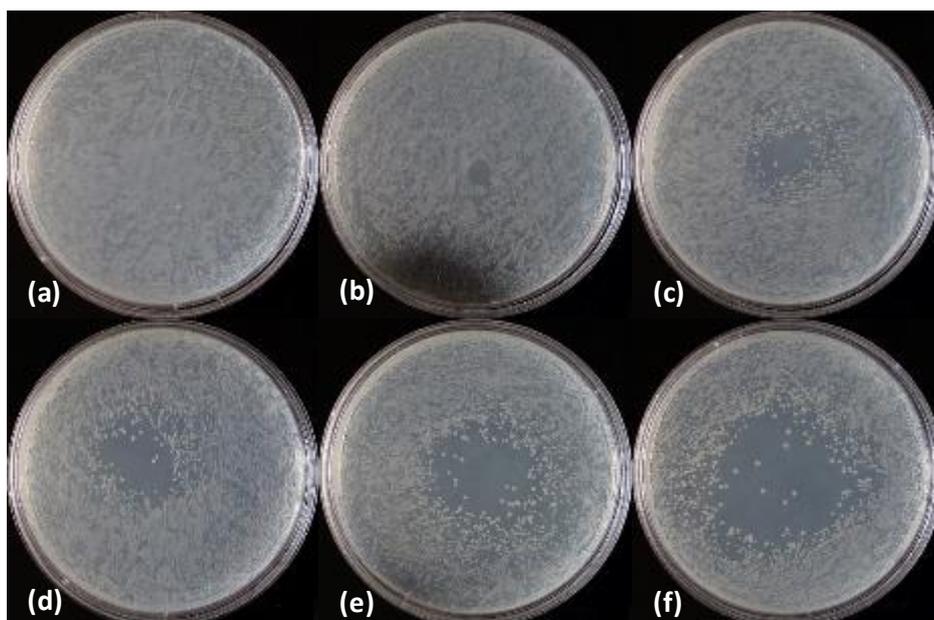


Fig. IV.8 : Effet de la variation du temps d'exposition d'une culture de bactéries *E. coli* à un jet de plasma positionné à une distance $d = 20$ mm de la surface de la culture sur l'efficacité du traitement.

(a : échantillon témoin, b : 2 min, c : 4 min, d : 6 min, e : 8 min, f : 10 min).

Sur la figure IV.9 nous avons reporté la variation de l'aire la zone d'inactivation en fonction de la durée de l'exposition de la surface des culturesensemencées sur la boîte de pétri, au jet de plasma créé dans le flux d'argon à la pression atmosphérique.

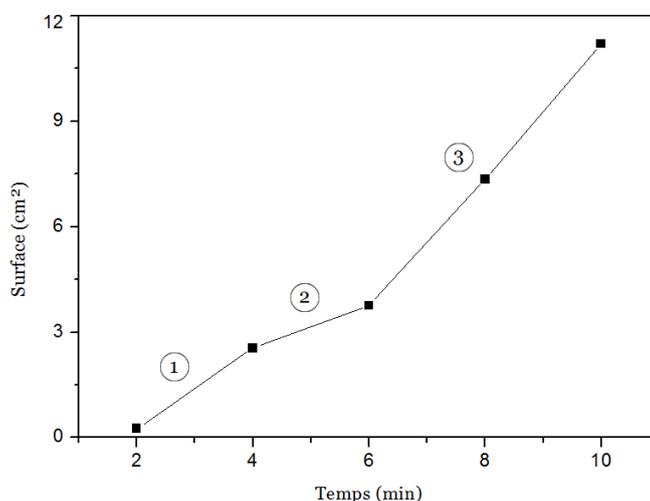


Fig. IV.9 : Evolution de la surface de la zone d'inactivation en fonction de la durée de l'exposition au jet de plasma.

L'augmentation de la surface de la zone d'inactivation présente trois régimes de variation : un premier régime dans la plage temporelle 2 – 4 min avec une pente de 1,15, un deuxième régime de variation moins rapide (pente de 0,75) dans la plage 4 – 6 min et un troisième régime avec une variation plus rapide de pente de près de 2 dans le domaine temporel 6 – 10 min. La présence de trois zones de variation de l'effet du jet de plasma sur

les colonies de la bactérie *E. coli* présente une certaine similitude avec les résultats obtenus dans de nombreux travaux sur la désactivation de microorganismes par plasma [28, 29]. Ainsi, Moisan, *et al.* et Moreau *et al.* [27, 28] dans leurs travaux sur la désactivation de microorganismes de type *Bacillus Subtilis* par plasma microonde sous vide, ont observé une réduction de la concentration des microorganismes encore actifs en fonction de la durée de leur exposition en post-décharge à un plasma de gaz neutre ou en mélange avec un gaz réactif. Lorsque le gaz dans lequel a été créé le plasma est de l'argon, la variation du nombre de microorganismes survivants en fonction du temps d'exposition présente deux zones : une première zone pour des courtes durées d'exposition au plasma d'argon où la décroissance de la concentration des microorganismes survivants est très rapide, suivie d'une deuxième zone pour des durées plus élevées et où cette décroissance est beaucoup plus lente (Fig. IV.10).

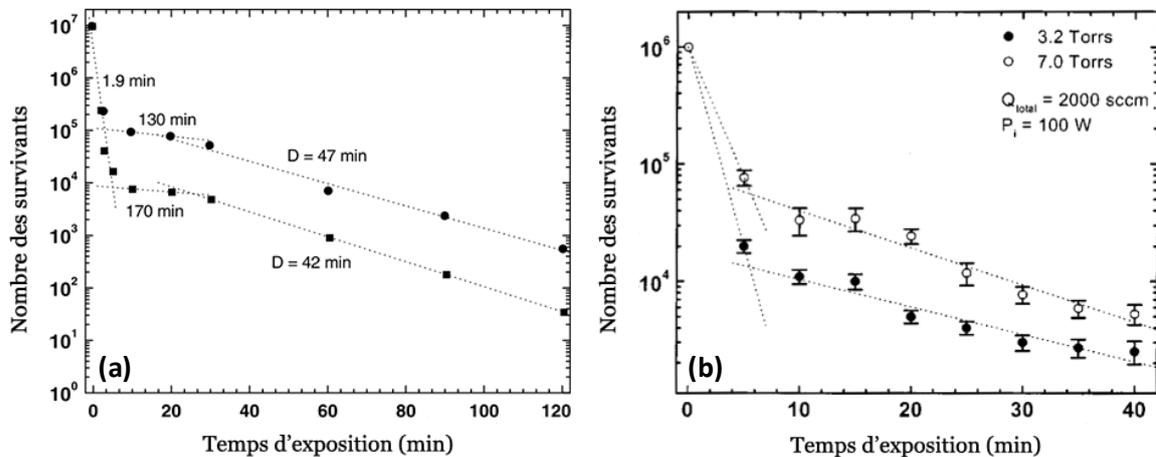


Fig. IV.10 : Effet du temps d'exposition de cultures de bactéries de type *Bacillus subtilis* à un plasma microonde faible pression créé dans une pression d'argon seul ou en mélange avec de l'oxygène. (a) : Moisan *et al.*, (b) : Moreau *et al.* [27, 28].

Cependant, lorsqu'une pression partielle d'oxygène est ajoutée à la pression partielle d'argon, la concentration des microorganismes *Bacillus Subtilis* qui restent actives après leur exposition au plasma créé dans ce mélange de gaz, présente trois régions de variation distincte en fonction de la durée de leur exposition au plasma sous vide. Nous observons d'abord les deux premières zones décrites précédemment puis une troisième zone de décroissance beaucoup plus rapide apparaît montrant un taux de désactivation des microorganismes plus important que celui observé dans les deux premières zones.

La décroissance très rapide des microorganismes survivants observée lorsqu'une pression partielle d'oxygène a été ajoutée à l'argon est due à l'effet important des ROS sur les constituants des membranes cellulaires et que nous avons rappelé dans le paragraphe précédent. Dans notre cas, l'augmentation du temps d'exposition au jet de plasma permet aux maximums d'espèces réactives créées dans le jet de plasma de réagir avec les différents

constituants du microorganisme et de créer ainsi des zones dans lesquelles les bactéries ont été désactivées et leurs cadavres complètement consommés. Notons par ailleurs que pour les grandes valeurs de durées d'exposition au jet de plasma, mêmes les espèces peu réactives mais ayant une durée de vie longue (tel que l'ozone et les rayonnements UV) ont suffisamment de temps pour interagir avec les membranes cellulaires. Il faut noter que la population bactérienne qui reste visible après l'exposition à notre jet de plasma et située aux alentours de la frontière des zones désertées, peut également avoir été désactivée par les UV et/ou certaines espèces du plasma et seuls leurs cadavres sont encore observés.

IV.2.4 – Effet de la variation de la distance séparant la source du jet de plasma de la surface des échantillons sur l'inactivation de la bactérie

Sur la figure IV.11 nous avons représenté les photos de cultures de *E. coli* avant (Fig. IV.11.a) et après leur exposition pendant 10 min à un jet de plasma créé dans l'argon pour des valeurs de la distance d allant de 20 (Fig. IV.11.b) à 40 mm (Fig. IV.11.f). Nous remarquons qu'au fur et à mesure que nous nous éloignons de la surface de la culture, plus l'aire de la zone d'inactivation de microorganismes diminue tout en gardant toutefois sa géométrie quasi-circulaire.

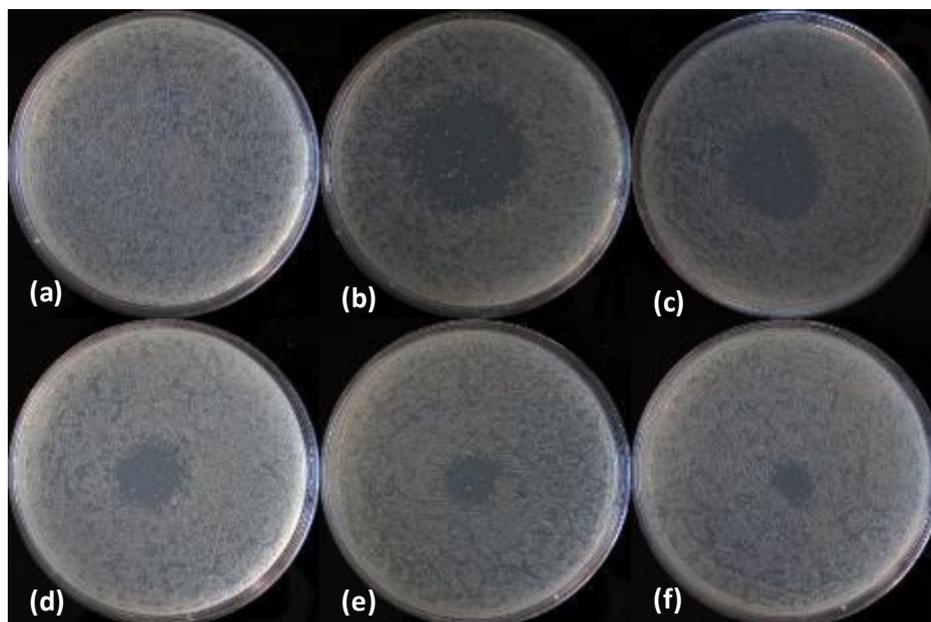


Fig. IV.11 : Photos montrant l'effet de la variation de la distance d séparant la source du jet de plasma de la surface de la culture de *E. coli* (durée d'exposition : 10 min).
(a : échantillon témoin, b : 2 cm, c : 2.5 cm, d : 3 cm, e : 3.5 cm, f : 4 cm).

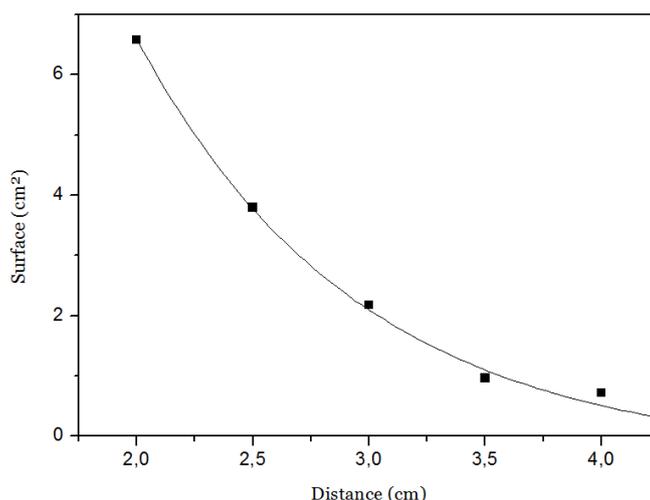


Fig. IV.12 : Evolution de la surface de la zone d'inactivation en fonction de la distance d séparant la source du jet de plasma de la surface de la surface traitée (durée d'exposition : 10 min).

L'efficacité du traitement par notre jet de plasma est représentée par l'aire désertée de microorganismes et sa dépendance avec la distance d est mieux quantifiée sur la figure IV.12 représentant la variation de l'aire de la zone d'inactivation en fonction de la variation de la distance d . Il apparaît ainsi qu'en s'éloignant de la source du jet, l'efficacité du traitement par le jet de plasma diminue. Cette évolution peut être liée à la répartition des espèces dans le jet de plasma et à sa proximité ainsi qu'à la diminution de l'intensité du champ électrique ainsi que celle des photons UV.

Par ailleurs, les lois de la physique classique s'appliquent sur l'interaction jet de plasma – surface traitée : son impact avec une surface solide est responsable de la création d'une zone de turbulence empêchant les espèces chimiques d'atteindre la cible. Le débit du gaz joue un rôle très important, Arjunan *et al.* [29] signale l'apparition de zone d'inactivation sous forme d'anneaux ce qui est en rapport directe avec le débit du gaz ainsi que de la distance séparant la surface traitée de la source du jet.

IV.3 – Interaction jet de plasma – liquide

Dans l'optique de l'utilisation de notre jet de plasma pour le traitement d'un tissu organique humidifié (tissu sanguin, muqueuse ou autre), nous l'avons appliqué pour le traitement d'un liquide. Notre étude a été menée dans un premier temps sur de l'eau déminéralisée pure puis dans un deuxième temps sur une eau contaminée au préalable par la bactérie *E. coli*. Nous cherchons à déterminer les modifications chimiques que peut induire notre jet de plasma sur ce liquide.

IV.3.1 – Effet du jet de plasma sur une eau déminéralisée

Dans cette partie de notre étude, nous avons versé 2 ml d'eau déminéralisée dans un conteneur de forme cylindrique de 1,5 cm de diamètre. Nous avons ensuite placé la source du jet de plasma créé dans un flux d'argon de 3 l/min à une distance d de 20 mm loin de la surface de l'eau à traiter. Nous avons exposé la surface de cette eau au jet de plasma pendant deux durées de traitement que nous avons fixées arbitrairement à 5 min et 10 min.

IV.3.1.1 – Effet du jet de plasma sur le pH de l'eau déminéralisée

En entrant en interaction avec les milieux aqueux, les plasmas sont susceptibles de modifier le pH de ces derniers. Sur la figure IV.13 nous avons reporté les mesures de pH effectuées sur une eau déminéralisée pure qui a été soumise pendant une durée de 5 et 10 min à un flux d'argon sortant de notre réacteur sans excitation électrique (absence du jet de plasma). Nous observons une légère augmentation de la valeur du pH après une exposition de 10 min, passant d'une valeur de 5,75 pour un échantillon de contrôle (eau n'ayant pas été soumise au flux d'argon) à une valeur de 5,85 après son exposition au flux d'argon pendant 10 min (soit une augmentation de 1,7%).

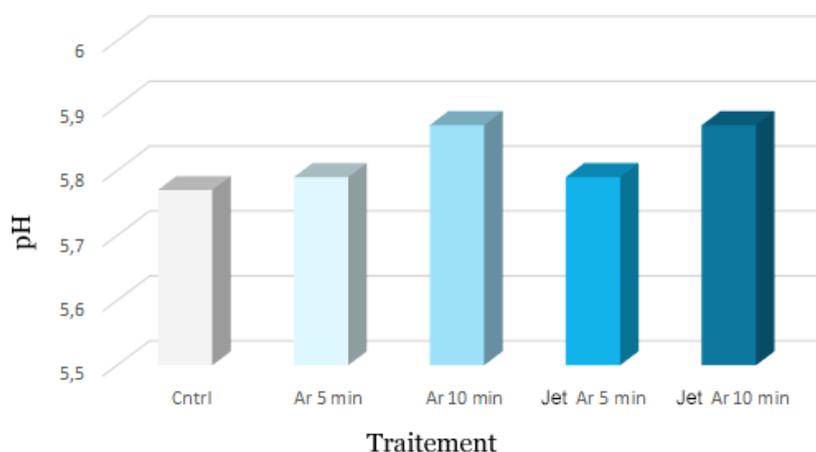


Fig. IV.13 : Variation du pH de l'eau déminéralisée après son exposition à un flux d'argon sans plasma et à un jet de plasma créé dans le même flux.

Lorsque nous exposons une quantité d'eau similaire à celle utilisée précédemment à un jet de plasma créé dans une même valeur du flux d'argon que celle qui a été utilisée pour le traitement sans plasma, aucun effet significatif sur son pH n'est observé. Comme le montre la figure IV.13, pour les deux durées de traitement par le jet de plasma (5 et 10 min), les valeurs du pH sont pratiquement égales à celles enregistrées pour une exposition au seul flux d'argon. Sohbatzadeh *et al.* [30] ont également trouvé qu'une exposition à une décharge plasma d'argon a un effet minime sur la variation du pH de l'eau déminéralisée traitée.

La légère différence entre la valeur du pH de l'échantillon témoin et de celle de l'échantillon traité avec le flux d'argon ou le jet de plasma (de près de 1,7%) est probablement due à une différence de température entre les deux échantillons (il est bien connu que la valeur du pH dépend de la température [31]). Dans notre cas, comme l'argon sort de la bouteille container sous haute pression à une température beaucoup plus basse que celle de la température de l'atmosphère, l'eau ayant été exposée à son flux ou au jet de plasma est forcément refroidie.

IV.3.1.2 – Effet du jet de plasma sur la composition de l'eau déminéralisée

D'après Lukes *et al.* [32], l'interaction d'un plasma avec de l'eau passe par deux phases. La première phase consiste en la création des espèces primaires constituées des radicaux $\bullet\text{OH}$, $\text{O}\bullet$, $\text{N}\bullet$, $\bullet\text{NO}$ et des espèces chargées suite à l'interaction des espèces du plasma avec les espèces mères de l'eau et éventuellement des gaz dissous dans l'eau ou l'air ambiant (molécules H_2O , O_2 et N_2). Durant la deuxième phase, les espèces primaires rentrent en interaction avec d'autres espèces primaires et/ou avec les molécules du milieu environnant (eau et air) pour produire des espèces secondaires à base d'oxygène et d'azote (H_2O_2 , NO_x , O_3 , HNO_2 , HNO_3 et ONOOH). Ces espèces peuvent réagir avec les molécules et/ou les microorganismes cibles. Dans le cas d'un traitement par le jet de plasma, nous avons cherché à détecter la présence de trois espèces, à savoir le peroxyde d'hydrogène (H_2O_2), le nitrite (NO_2^-) et l'ozone (O_3).

Sur la figure IV.14 nous avons reporté la variation de la concentration de H_2O_2 dans l'eau traitée par notre jet de plasma créé dans un flux d'argon, en fonction de la durée du traitement. Nous remarquons une grande augmentation de la concentration de peroxyde lorsque la durée du traitement augmente, passant de près de 10^{-3} mM pour un échantillon témoin à environ 31×10^{-3} mM pour une eau ayant été exposée pendant 5 min à notre jet de plasma, pour atteindre une valeur de près de 39×10^{-3} mM lorsque la durée du traitement atteint 10 min, soit une augmentation de près de 40 fois par rapport à une eau non traitée.

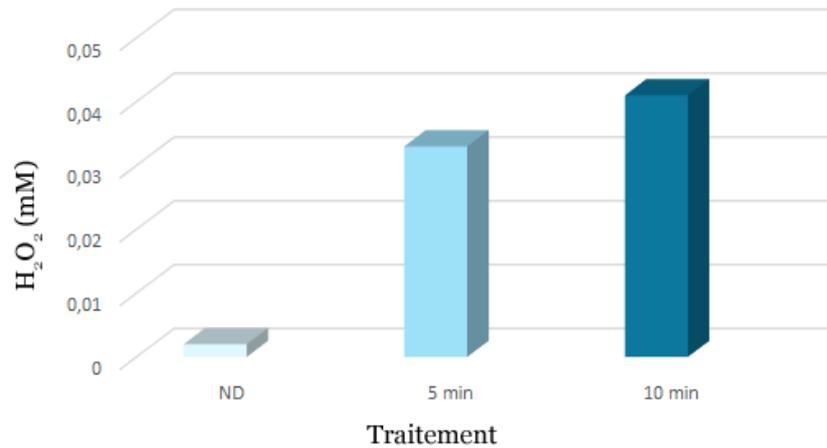


Fig. IV.14 : Variation de la concentration de H₂O₂, dans l'eau traitée en fonction du temps de traitement par le jet de plasma.

Ces résultats montrent que le plasma induit une oxygénation de l'eau amenant à son enrichissement avec des molécules de peroxyde d'hydrogène H₂O₂ hautement réactives vis-à-vis des membranes cellulaires.

La concentration de nitrite NO₂⁻ suit également une variation similaire comme le montre les histogrammes de la figure IV.15. D'une valeur inférieure à 0,1 mM pour un échantillon de contrôle (eau déminéralisée n'ayant subi aucun traitement), la concentration en nitrite passe à 1,7 mM après 5 min d'exposition de l'eau au jet de plasma et à près de 4 mM pour une durée de 10 minutes de traitement.

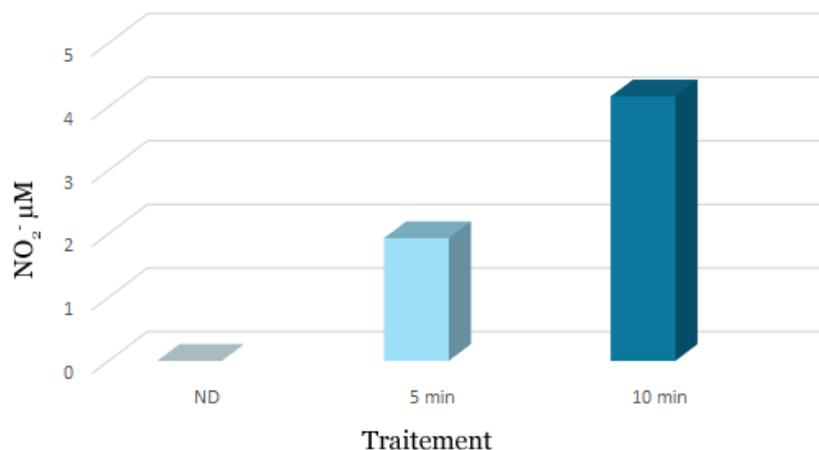


Fig. IV.15 : Variation de la concentration de nitrite NO₂⁻ dans l'eau traitée en fonction du temps de traitement par le jet de plasma.

Sur la figure IV.16 nous avons reporté l'effet de l'exposition de l'eau déminéralisée à notre jet de plasma sur la concentration d'ozone dans cette eau. Il apparaît que le plasma n'a aucun effet significatif sur la concentration d'ozone même si la durée d'exposition au plasma est assez importante.

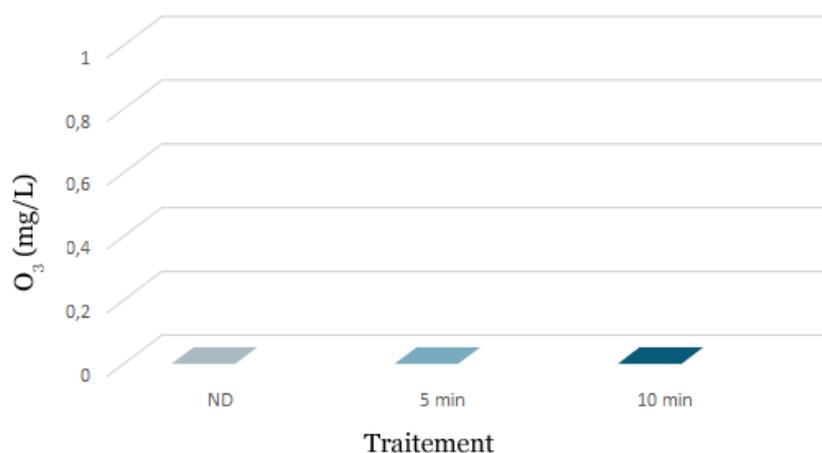


Fig. IV.16 : Effet du jet de plasma sur la variation de la concentration d'ozone dans l'eau traitée.

En réalité, le jet de plasma est capable de créer de l'ozone dans l'eau par deux méthodes : l'introduction des molécules d'ozone depuis l'extérieur et suite à l'interaction des espèces du plasma avec la surface de l'eau. Cependant, comme la durée de vie de l'ozone dans l'eau est très courte, il est difficile de mesurer sa concentration. Toujours est-il, nos résultats montrent que sa concentration dans le liquide lors de son utilisation reste très faible.

IV.3.2 – Effet du jet de plasma sur l'inactivation de la bactérie *E. coli* dans le milieu liquide (eau déminéralisée)

IV.3.2.1 – Préparation des échantillons de test

Afin de déterminer l'efficacité du traitement d'une eau contaminée en utilisant un jet de plasma, nous avons exposé pendant 5 et 10 minutes une quantité d'eau préalablement contaminée par la bactérie *E. coli* puis nous avons mesuré ensuite la charge bactérienne de cette solution liquide. Pour la préparation de nos échantillons de test, nous avons utilisé la bactérie *E. coli* sous forme de pilules dont la charge bactérienne est de 10^7 /pilules. Nous avons ensuite dissous une pilule dans 5 ml d'eau déminéralisée stérile, puis nous avons rajouté 45 ml de la même eau afin d'obtenir une dilution de 100 fois. Chaque échantillon est formé de 2 ml prélevé de la solution finale. Nous avons exposé les échantillons à notre jet de plasma pendant une durée de 5 ou 10 min.

IV.3.2.2 – L'effet du jet de plasma

Sur la figure IV.17 nous avons reporté la variation du logarithme du taux de réduction de la charge bactérienne en fonction du temps de traitement. Après 5 minutes d'exposition à notre jet de plasma pour une distance d de 20 mm, une réduction d'une valeur de près de

10^{-2} a été mesurée. On constate également que le taux de réduction ne dépasse pas 10^{-1} . Ces résultats montrent que les concentrations de peroxyde d'hydrogène H_2O_2 , de l'ozone et de NO_2^- créées par notre jet de plasma restent très insuffisantes pour arriver à une réduction de l'ordre d'une décade.

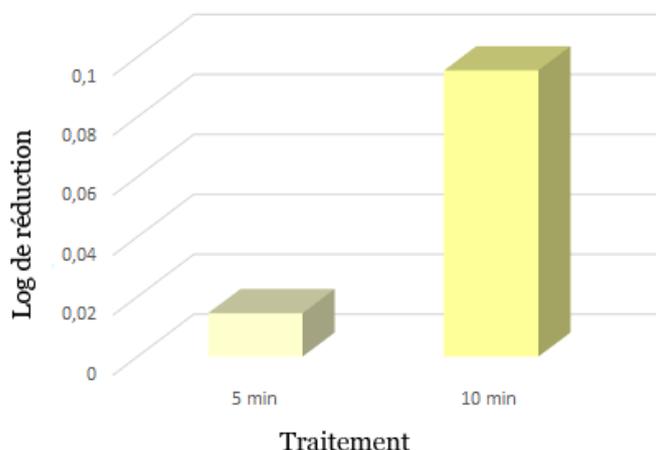


Fig. IV.17 : Variation du logarithme du taux de réduction de la charge bactérienne en fonction de temps de traitement.

Conclusion

Les résultats obtenus montrent que notre jet de plasma à faible consommation d'énergie a un effet inhibiteur sur les micro-organismes lorsqu'il s'agit d'un traitement en surface. Pour un traitement en volume notre jet de plasma manque d'efficacité suite à un pouvoir de pénétration limité. Pour augmenter l'efficacité du traitement, une des solutions consiste à créer un jet de plasma à l'intérieur même du liquide [33], ce qui augmenterait la concentration des ions et des électrons et conduirait ainsi à l'augmentation de la concentration des espèces secondaires créées.

Références

- [1] B. Engelen, “*Physiology and diversity of prokaryotes*”, <http://www.pmbio.icbm.de/lehre/ws0910/vlphys/vlphys-02.pdf> (10 Juin. 2018).
- [2] <http://www.who.int/mediacentre/factsheets/fs125/fr/> (15 Jan. 2018).
- [3] L. Hana *et al.*, “*Mechanisms of Inactivation by High-Voltage Atmospheric Cold Plasma Differ for Escherichia coli and Staphylococcus aureus* », *Applied and Environmental Microbiology*, 82(2), (2016), pp.450–458.
- [4] F. Grenier, D. Matteau, V. Baby, S. Rodrigue, “*Complete Genome Sequence of Escherichia coli BW25113*”, *Genome Announcements*, 2(5), (2014), p.e01038–14.
- [5] M. Laroussi, “*Nonthermal decontamination of biological media by atmospheric-pressure plasmas: review, analysis, and prospects*”, *IEEE Transactions on Plasma Science*, 30(4), (2002), pp.1409–1415.
- [6] D. Graves, “*The emerging role of reactive oxygen and nitrogen species in redox biology and some implications for plasma applications to medicine and biology*”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 45(26), (2012), p.263001.
- [7] B. Halliwell, “*Reactive Species and Antioxidants. Redox Biology Is a Fundamental Theme of Aerobic Life*”, *Plant Physiology*, 141(2), (2006), pp.312–322.
- [8] M. K. Sharma, B. K. Saikia, “*Discharge conditions and emission spectroscopy of N_2 and N_2^+ active species in a variable power dc pulsed plasma used for steel nitriding*”. *Indian Journal of Pure & Applied Physics*, 46(7), (2008), pp.463–470.
- [9] “*Optical emission spectroscopy of plasma*”, www.fch.vut.cz/~krcma/vyuka/plazma/3-oes-en.pdf (08 Fev. 2018).
- [10] S. Di Meo, T. Reed, P. Venditti, M. Victor, “*Role of ROS and RNS Sources in Physiological and Pathological Conditions*”, *Oxidative Medicine and Cellular Longevity*, (2016), p.1245049.
- [11] K. Gupta, A. Igamberdiev, L. A. Mur, “*NO and ROS homeostasis in mitochondria: a central role for alternative oxidase*”, *New Phytologist*, 195(1), (2012), pp.1–3.
- [12] P. Held, “*An Introduction to Reactive Oxygen Species: Measurement of ROS in Cells*”, BioTek Instruments, Inc. (2015). https://www.biotek.com/assets/tech_resources/ROS%20White%20Paper_2015.pdf
- [13] Fridman, A., “*Plasma chemistry*”, London: Cambridge University Press. (2012), pp.853.
- [14] A. Fridman, G. Friedman, “*Plasma medicine*”, Chichester, West Sussex, U.K.: John Wiley & Sons. (2013), pp.121.
- [15] P. Bruggeman, *et al.*, “*Plasma–liquid interactions: a review and roadmap*”. *Plasma Sources Science and Technology*, 25(5), (2016), p.053002.
- [16] S. McLean, L. Bowman, G. Sanguinetti, R. Read, R. Poole, “*Peroxynitrite Toxicity in Escherichia coli K12 Elicits Expression of Oxidative Stress Responses and Protein Nitration and Nitrosylation*”, *Journal of Biological Chemistry*, 285(27), (2010), pp.20724–20731.

- [17] A. Fridman, “*Plasma chemistry*”. London: Cambridge University Press. (2012), pp.386, 388.
- [18] M.Laroussi, F. Leipold, “*Evaluation of the roles of reactive species, heat, and UV radiation in the inactivation of bacterial cells by air plasmas at atmospheric pressure*”, International Journal of Mass Spectrometry, 233(1–3), (2004), pp.81–86.
- [19] B. Ezraty, A. Gennaris, F. Barras, J. Collet, “*Oxidative stress, protein damage and repair in bacteria*”, Nature Reviews Microbiology, 15(7), (2017), pp.385–396.
- [20] Fridman, A., “*Plasma chemistry*”, London: Cambridge University Press, (2012), pp.852.
- [21] Fridman, A., “*Plasma chemistry*”, London: Cambridge University Press, (2012), pp.854.
- [22] https://www.neoelegance.co.uk/wpcontent/uploads/2016/03/electroporation_edited-1-840x410.jpg (15 Jan. 2018).
- [23] <https://biologiedelapeau.fr/spip.php?article70> (25 Jan. 2018).
- [24] G. Fridman *et al.*, “*Comparison of Direct and Indirect Effects of Non-Thermal Atmospheric-Pressure Plasma on Bacteria*”, Plasma Processes and Polymers, 4(4), (2007), pp.370–375.
- [25] Z. Machala, L. Chládková, M. Pelach, “*Plasma agents in bio-decontamination by dc discharges in atmospheric air*”, Journal of Physics D: Applied Physics, 43(22), (2010), p.222001.
- [26] N. Philip *et al.*, “*The Respective Roles of UV Photons and Oxygen Atoms in Plasma Sterilization at Reduced Gas Pressure: The Case of N₂/O₂ Mixtures*», IEEE Transactions on plasma science, 30(4), (2002), pp.1429–1436.
- [27] M. Moisan *et al.*, “*Low-temperature sterilization using gas plasmas: a review of the experiments and an analysis of the inactivation mechanisms*”, International Journal of Pharmaceutics, 226(1–2), (2001), pp.1–21.
- [28] S. Moreau *et al.*, “*Using the flowing afterglow of a plasma to inactivate Bacillus subtilis spores: Influence of the operating conditions*”, Journal of Applied Physics, 88(2), (2000), pp.1166–1174.
- [29] K. Arjunan, A. Obrusník, B. Jones, L. Zajíčková, S. Ptasinska, “*Effect of Additive Oxygen on the Reactive Species Profile and Microbicidal Property of a Helium Atmospheric Pressure Plasma Jet*”, Plasma Processes and Polymers, 13(11), (2016), pp.1089–1105.
- [30] F. Sohbatzadeh, H. Bagheri, R. Safari, “*Effect of electrical discharge in water on concentration of nitrate solution*”, Chinese Physics B, 26(2), (2017), p.025101.
- [31] J. Barron, C. Ashton, L. Geary, “*The effects of temperature on pH measurement*”, 2005. https://reagecon.com/pdf/technicalpapers/Effects_of_Temperature_on_pH_v4-_TSP-01-2.pdf

- [32] P. Lukes, B. Locke, J. Brisset, “*Aqueous-Phase Chemistry of Electrical Discharge Plasma in Water and in Gas-Liquid Environments*”, *Plasma Chemistry and Catalysis in Gases and Liquids*, (2012), pp.243–308.
- [33] K. Kostov, M. Machida, V. Prysiashnyi, R. Honda, “*Transfer of a cold atmospheric pressure plasma jet through a long flexible plastic tube*”, *Plasma Sources Science and Technology*, 24(2), (2015), p.025038.

Conclusion générale

Conclusion générale

L'objectif visé par le travail qui a été mené dans cette thèse est la mise en place d'un banc de génération d'un jet de plasmas d'argon à pression atmosphérique et son application pour la désactivation de microorganismes vivants en vue de son utilisation dans le domaine biomédical. Ce banc est composé de deux parties essentielles :

- Un réacteur de plasma à barrière diélectrique en verre borosilicaté, de symétrie cylindrique et muni de deux électrodes concentriques. Nous avons conçu et réalisé ce banc dans le cadre de ce travail.
- Un générateur de haute tension délivrant un signal électrique alternative de fréquence variant de 4 à 30 kHz (générateur AC) que nous avons mis en place ou un générateur de haute tension commercial délivrant une excitation électrique de type impulsionnel.

L'étude de la dépendance de la forme du jet de plasma à la variation des paramètres du signal électrique d'excitation à savoir l'amplitude de la tension appliquée et sa fréquence ainsi que son type (AC ou impulsionnel) a montré que sa longueur peut atteindre une valeur de l'ordre de 3 cm dans le cas d'une excitation de type AC et de 6 cm dans le cas d'une excitation de type impulsionnel. Les dimensions géométriques de notre jet de plasma permettent d'envisager son utilisation pour des traitements relativement localisés et ciblés.

L'analyse des résultats de l'émission optique du jet de plasma créé par notre banc dans un flux d'argon plongé dans l'air atmosphérique a révélé que les espèces plasmas qu'il permet de créer sont de type ROS (*Reactive Oxygen Species*) et RNS (*Reactive Nitrogen Species*) en plus d'espèces radiatives du gaz utilisé (dans notre cas l'argon). La concentration de ces espèces au niveau du jet de plasma est dépendante des paramètres électriques de son signal d'excitation et indépendante dans une grande mesure de sa géométrie. Dans le cas de l'utilisation d'une tension de type AC pour l'excitation du jet de plasma, l'augmentation de la tension d'excitation et/ou de sa fréquence au-delà d'une certaine limite amène à la réduction, voir la quasi disparition des ROS et RNS au profit d'une plus grande production d'espèces d'argon. Dans le cas de l'utilisation d'une excitation électrique du jet de plasma de type impulsionnel, ce phénomène n'apparaît pas, du moins dans les plages de tension et de fréquence que nous avons explorées ; la présence des ROS et RNS est toujours observée mais atteint plutôt une saturation pour les hautes valeurs de tensions et ou de fréquence. Ces résultats nous ont permis de calibrer notre système pour l'obtention d'un jet de plasma de dimensions optimal.

L'application de notre jet de plasma pour le traitement de bactéries de type *E. coli* ensemencées dans une culture étalée sur une boîte de pétri a montré que l'aire traitée et ayant été nettoyée de microorganismes, est fonction de la durée du traitement, de la tension appliquée et de la distance entre l'extrémité du jet de plasma et la surface infectée par la

Conclusion générale

bactérie. En faisant varier la distance d entre la surface traitée et la source du jet nous avons constaté que la taille de la zone d'inactivation augmente avec la diminution de la distance d . Une augmentation de temps de traitement a aussi un effet sur la taille de la zone d'inactivation. Les espèces réactives créées par le plasma, tel que l'ozone, l'oxygène singulet et le radical hydroxyle réagissent avec les membranes des bactéries et consomment leurs constituants, amenant ainsi à leur destruction complète.

L'application de notre jet de plasma pour le traitement d'un milieu aqueux constitué d'une eau déminéralisée contaminée par la bactérie *E. coli*, a montré que seul un faible taux de ce microorganisme est désactivé. Ceci provient du fait que le jet rentre uniquement en interaction avec la surface du liquide contaminé et ne permet pas de traiter son volume. Quoique que les résultats obtenus dans ce volet de notre étude restent intéressants puisqu'ils montrent qu'il est possible d'inactiver des microorganismes dans une solution liquide en utilisant notre jet de plasma, il apparaît néanmoins que ce dernier est mieux adapté pour une utilisation pour le traitement de surfaces solides.

Les résultats obtenus dans le cadre de ce travail ont permis d'ouvrir des perspectives nouvelles à l'équipe de recherche dans le domaine de l'application des plasmas froids pour la désactivation de microorganismes vivants et pour les traitements thérapeutiques du corps humain. Des investigations doivent être menées pour d'une part optimiser la taille du réacteur et d'autre part pour le développement d'un autre mieux adapté pour le traitement de milieux aqueux.

Liste des travaux

Production scientifique

Publications Internationales

M. T. Benabbas, S. Sahli, A. Benhamouda and S. Rebiai, *Effects of the electrical excitation signal parameters on the geometry of an argon-based non-thermal atmospheric pressure plasma jet*, Nanoscale Research. Letters, 9, 697, 2014.

DOI: 10.1186/1556-276X-9-697.

Communications Nationales et Internationales présentées

M. T. Benabbas, K. Kučerová, S. Sahli, M. Janda, Z. Machala, *Low frequency atmospheric pressure plasma jets for bacteria inactivation on solid surfaces and in aqueous solutions*, 6th ICPM 4 – 9 September 2016, Bratislava – Slovakia.

M. T. Benabbas, S. Sahli, S. Mouissat, N. Kacem Chaouche, L. Benterrouche, M. Kara Ali *Interaction between an argon-based non-thermal atmospheric pressure plasma jet and Escherichia coli*, 32nd ICPIG 26 – 31 July 2015, Iasi – Romania,

L. Benterrouche, S. Sahli, N. Kacem Chaouch, **M. T. Benabbas**, S. Benhassine, M. Kara Ali, *Surface Sterilization of Medical Low-Density Poly(ethylene) films by Dielectric Barrier Discharges*, 32nd ICPIG 26 – 31 July 2015, Iasi – Romania,

L. Benterrouche, S. Sahli, A. Bellel, N. Kacem Chaouch, **M.T. Benabbas** and S. Benhassine, *Plasma sterilization of poly(tetrafluoroethylene) films*, 22nd ISPC 5 – 10 Juliet 2015, Antwerp – Belgium.

M. T. Benabbas, S. Sahli, N. Kacem Chaouche, L. Benterrouche, M. Kara Ali, *Investigating effects of an argon-based non-thermal atmospheric pressure plasma jet on inactivation of E. Coli*, Nanotech MEET Tunisia, 24 – 26 April 2014, Hammamet – Tunisia.

L. Benterrouche, N. Kacem Chaouche, S. Sahli, S. Benhassine, **M. T. Benabbas**, A. Benhamouda, *Sterilization of polymers surface contaminated by Bacillus bacteria using atmospheric dielectric barrier discharge plasma*, Nanotech MEET Tunisia, 24 – 26 April 2014, Hammamet – Tunisia.

M. T. Benabbas, S. Sahli, A. Benhamouda, S. Rebiai, *Effects of electrical parameters of the excitation signal on the geometry of an atmospheric pressure argon plasma jet for nanomedicine*, Nano M&T, 17 – 19 Novembre 2013, Annaba – Algeria.

M. T. Benabbas, S. Sahli, L. Benterrouche, F. Sahli, A. Benhamouda, *Effect of an atmospheric air microplasma jet on inactivation of E. Coli bacteria*, 1st ICREN 16 – 17 February 2013, Constantine – Algeria.

Etude et réalisation d'un jet de plasma pour application dans le domaine biomédical

Directeur de thèse : **Pr. Salah SAHLI**

Résumé :

Un système de génération de jet de plasma à pression atmosphérique pour des applications biomédicales constitué d'un générateur de haute tension alternative (AC) et d'un réacteur cylindrique à barrière diélectrique, a été réalisé dans le cadre de cette thèse.

Pour déterminer les paramètres optimaux pour la génération du jet de plasma par une excitation AC ou impulsionnelle et assurer une exploitation maximale de ce dernier, nous avons effectué une série de mesures électriques et optiques. Les effets de la variation de la nature du signal d'excitation, de la tension appliquée et de sa fréquence sur la géométrie du jet et la nature des espèces réactives créées dans l'air par ce jet de plasma ont été étudiés.

Dans un premier temps nous avons utilisé notre jet de plasma créé dans un flux d'argon à pression atmosphérique pour l'inactivation de la bactérie *Escherichia coli* étalée sur une surface solide. Nous avons montré que le pouvoir d'inactivation des microorganismes par ce jet de plasma est directement lié à la distance source du jet – surface traitée ainsi qu'à la durée du traitement. Le taux d'inactivation est d'autant plus significatif tant que la distance source du jet – échantillon est minimale et que la durée de traitement est élevée.

Dans un deuxième temps, nous avons traité par notre jet plasma de l'eau déminéralisée contaminée par la bactérie E-coli. Nous avons montré que ce traitement permet la création de l'ozone, du peroxyde d'hydrogène et du nitrate. Cependant, les concentrations de ces espèces créées par le jet de plasma restent relativement faibles pour pouvoir obtenir une inactivation efficace de la bactérie *Escherichia coli* présente dans la même quantité d'eau déminéralisée.

Ces investigations ont montré que la composition et les dimensions du jet de plasma créé sont contrôlables par le biais de la variation de la nature du signal d'excitation, de son amplitude et/ou de sa fréquence. Ils ont également montré que notre jet de plasma est plus efficace pour le traitement de surfaces solides que pour le traitement de milieux aqueux.

Mots clés : Jet de plasma, excitation AC, excitation impulsionnelle, espèces réactives, inactivation, *Escherichia coli*, eau déminéralisée.

Study and realization of a plasma jet for application in the biomedical field

Dissertation director: **Pr. Salah SAHLI**

Abstract:

An atmospheric pressure plasma jet generation system for biomedical applications consisting of an alternating high voltage generator and a dielectric barrier discharge (DBD) based cylindrical reactor has been realized in the framework of this thesis.

In order to determine the optimal parameters for the plasma jet generation by an AC or pulsed excitation and to ensure maximum exploitation of this latter, we carried out a series of electrical and optical measurements. The effects of the variation of the nature of the excitation signal, the applied voltage amplitude and frequency on the geometry of the jet and the reactive species created in air by this plasma jet were studied.

First, we used our plasma jet created in using argon at atmospheric pressure for the inactivation of *Escherichia coli* bacterium spread on a solid surface. We have shown that the inactivation capacity of microorganisms by this plasma jet is directly related to the distance jet source – treated surface as well as to the duration of the treatment. The inactivation rate is more significant as the jet source – sample distance is minimal and the treatment duration is high.

Secondly, we treated deionized water contaminated with E-coli bacteria using our plasma jet. We have shown that this treatment allows the creation of ozone, hydrogen peroxide and nitrite. However, the concentrations of these species generated by the plasma jet remain relatively low in order to obtain an effective inactivation of *Escherichia coli* present in the same amount of deionized water.

These investigations have shown that the composition and the dimensions of the created plasma jet can be controlled by means the nature of the excitation signal, its amplitude and / or its frequency. They have also shown that our plasma jet is more effective for the treatment of solid surfaces than for the treatment of aqueous media.

Key words: Plasma jet, AC excitation, pulsed excitation, reactive species, inactivation, *Escherichia coli*, deionized water.

دراسة وإنجاز منفث بلازما للاستعمال في مجال الطب الحيوي

المشرف : أستاذ التعليم العالي صالح ساحلي

ملخص:

في إطار هذا البحث قمنا بإنجاز نظام توليد منفث بلازما تحت ظروف الضغط الجوي والذي يتكون من مولد لجهد كهربائي متناوب عالي الشدة ومفاعل أسطواناني الشكل ذو حاجز عازل.

من أجل تعيين الاعدادات المثالية لتوليد وضمان استخدام مثالي لنظام توليد منفث بلازما باستعمال جهد كهربائي متناوب او على شكل نبضات، قمنا بإجراء مجموعة من القياسات الكهربائية والبصرية كما تمت دراسة تأثيرات كل من نوعية شدة وتواتر الجهد الكهربائي المستعمل على ابعاد منفث البلازما وكذا على العناصر الكيميائية التفاعلية المنتجة في الهواء من قبل منفث البلازما.

في البداية، قمنا باستعمال منفث البلازما المولد باستعمال غاز الارجون تحت ظروف الضغط الجوي في تثبيط نشاط البكتيرية من نوع الإشريكية القولونية الموجودة على سطح صلب. وجدنا ان القدرة على التثبيط الخاصة بمنفث البلازما ترتبط بالمسافة الفاصلة بين منبع البلازما والسطح المعالج وكذا بزمن المعالجة. القدرة على التثبيط تكون اعظميه عندما تكون المسافة الفاصلة بين المنبع والعينة صغيرة وزمن المعالجة كبير.

ثانيا، قمنا بمعالجة مياه منزوعة المعادن ملوثة بالإشريكية القولونية بواسطة منفث البلازما. اظهرنا بأن هذه المعالجة تسمح بإنتاج مركبات كيميائية تفاعلية مثل الأوزون، ثنائي أكسيد الهيدروجين والنترت لكن تركيز هذه المركبات يبقى ضعيفا من أجل الحصول على تثبيط فعال للبكتيريا الإشريكية القولونية الموجودة في نفس كمية المياه المعالجة.

لقد أظهرت هذه الأبحاث ان تركيبة وابعاد منفث البلازما المولد يمكن التحكم بها بواسطة تغير نوعية الجهد الكهربائي شدته او/ وقيمة تواتره. كما أظهرت أيضا هذه الأبحاث فاعلية منفث البلازما في معالجة الاسطح الصلبة على عكس الأوساط المائية.

كلمات مفتاحية: منفث البلازما، العناصر الكيميائية التفاعلية، جهد كهربائي متناوب، جهد كهربائي شكل نبضات، مركبات كيميائية، تفاعلية تثبيط، الإشريكية القولونية، مياه منزوعة المعادن.