
PREMIER MINISTRE, MINISTRE DE L'ÉDUCATION NATIONALE

INSTITUT NATIONAL DES SCIENCES ET TECHNIQUES NUCLEAIRES

8.3

SUR UN NOUVEL EFFET DE TEMPÉRATURE
DANS DES MILIEUX IONISÉS
EN PRÉSENCE DE CHARGES ÉLECTRIQUES
NÉGATIVES LOURDES

par

Siegfried KLEIN

Centre d'Études Nucléaires de Saclay

Rapport CEA - R 3437

1968

Ha

SERVICE CENTRAL DE DOCUMENTATION DU C.E.A

C.E.N. - SACLAY B.P. n°2, 91 - GIF-sur-YVETTE - France

CEA-R-3437 - KLEIN Siegfried

SUR UN NOUVEL EFFET DE TEMPERATURE DANS DES MILIEUX IONISES EN PRESENCE DE CHARGES ELECTRIQUES NEGATIVES LOURDES

Sommaire. - Une force électro-motrice relativement importante apparaît dans des vapeurs ionisées entre deux électrodes maintenues à des températures différentes.

L'interprétation théorique de ce phénomène est essentiellement basée, d'une part sur la formation massive de charges électriques négatives lourdes près de l'électrode "froide" et, d'autre part, dans le cas des flammes sur l'existence d'une température électronique beaucoup plus élevée que celle prévue par la théorie classique.

Cet effet de température permet de convertir directement l'énergie ionisante en électricité.

1968 - Commissariat à l'Energie Atomique - France 87 pages

CEA-R-3437 - KLEIN Siegfried

A NEW TEMPERATURE EFFECT IN IONIZED MEDIA IN THE PRESENCE OF HEAVY NEGATIVE ELECTRICAL CHARGES

Summary. - A relatively large electromotive force appears between two electrodes having different temperatures in an atmosphere of ionized vapours.

The theoretical interpretation of this phenomenon is based essentially on the one hand on the massive formation of heavy negative electrical charges near the "cold" electrode and on the other hand, in the case of flames, on the existence of an electronic temperature much higher than that predicted by conventional theory.

This temperature effect makes it possible to convert the ionizing energy directly into electricity.

1968 - Commissariat à l'Energie Atomique

87 pages

A partir de 1968, les rapports CEA sont classés selon les catégories qui figurent dans le plan de classification ci-dessous et peuvent être obtenus soit en collections complètes, soit en collections partielles d'après ces catégories.

Ceux de nos correspondants qui reçoivent systématiquement nos rapports à titre d'échange, et qui sont intéressés par cette diffusion sélective, sont priés de se reporter à la lettre circulaire CENS/DOC/67/4690 du 20 décembre 1967 que nous leur avons adressée, et qui précise les conditions de diffusion.

A cette occasion nous rappelons que les rapports CEA sont également vendus au numéro par la Direction de la Documentation Française, 31, quai Voltaire, Paris 7^e.

PLAN DE CLASSIFICATION

- | | |
|---|--|
| 1. APPLICATIONS INDUSTRIELLES DES ISOTOPES ET DES RAYONNEMENTS | 8. PHYSIQUE |
| 2. BIOLOGIE ET MEDECINE | 8. 1 Accélérateurs |
| 2. 1 Biologie générale | 8. 2 Electricité, électronique, détection des rayonnements |
| 2. 2 Indicateurs nucléaires en biologie | 8. 3 Physique des plasmas |
| 2. 3 Médecine du travail | 8. 4 Physique des états condensés de la matière |
| 2. 4 Radiobiologie et Radioagronomie | 8. 5 Physique corpusculaire à haute énergie |
| 2. 5 Utilisation des techniques nucléaires en médecine | 8. 6 Physique nucléaire |
| 3. CHIMIE | 8. 7 Electronique quantique, lasers |
| 3. 1 Chimie générale | 9. PHYSIQUE THEORIQUE ET MATHEMATIQUES |
| 3. 2 Chimie analytique | 10. PROTECTION ET CONTROLE DES RAYONNEMENTS. TRAITEMENT DES EFFLUENTS |
| 3. 3 Procédés de séparation | 10. 1 Protection sanitaire |
| 3. 4 Radiochimie | 10. 2 Contrôle des rayonnements |
| 4. ETUDES DU DOMAINE DE L'ESPACE | 10. 3 Traitement des effluents |
| 5. GEOPHYSIQUE, GEOLOGIE, MINERALOGIE ET METEOROLOGIE | 11. SEPARATION DES ISOTOPES |
| 6. METAUX, CERAMIQUES ET AUTRES MATERIAUX | 12. TECHNIQUES |
| 6. 1 Fabrication, propriétés et structure des matériaux | 12. 1 Mécanique des fluides - Techniques du vide |
| 6. 2 Effets des rayonnements sur les matériaux | 12. 2 Techniques des températures extrêmes |
| 6. 3 Corrosion | 12. 3 Mécanique et outillage |
| 7. NEUTRONIQUE, PHYSIQUE ET TECHNOLOGIE DES REACTEURS | 13. UTILISATION ET DEVELOPPEMENT DE L'ENERGIE ATOMIQUE |
| 7. 1 Neutronique et physique des réacteurs | 13. 1 Centres d'études nucléaires, laboratoires et usines |
| 7. 2 Refroidissement, protection, contrôle et sécurité | 13. 2 Etudes économiques, programmes |
| 7. 3 Matériaux de structure et éléments classiques des réacteurs | 13. 3 Divers (documentation, administration, législation, etc...) |

Les rapports du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE sont, à partir du n° 2200, en vente à la Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VII^e.

The C.E.A. reports starting with n° 2200 are available at the Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VII^e.

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS-SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Siegfried KLEIN

PREMIÈRE THÈSE

Sur un nouvel effet de température dans des milieux ionisés
en présence de charges électriques négatives lourdes

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Quelques modes de conversion de l'énergie

Soutenues le 8 Décembre 1967 devant la Commission d'Examen

MM. R. LUCAS

Président

J. L. DELCROIX

Examinateurs

P. RICATEAU

Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires

SUR UN NOUVEL EFFET DE TEMPÉRATURE
DANS DES MILIEUX IONISÉS
EN PRÉSENCE DE CHARGES ÉLECTRIQUES
NÉGATIVES LOURDES

par

Siegfried KLEIN

Mai 1968

REMERCIEMENTS

Je tiens, tout d'abord, à exprimer ma profonde reconnaissance à Monsieur le Professeur Francis PERRIN, membre de l'Institut et Haut-Commissaire à l'Energie Atomique, pour tout le soutien qu'il m'a accordé.

Il m'est très agréable de remercier Monsieur le Professeur René LUCAS, membre de l'Institut, qui me fait l'honneur de présider le jury. Qu'il trouve ici, l'expression de mon respectueux dévouement.

Monsieur le Professeur Jean-Loup DELCROIX a bien voulu être le directeur de cette thèse. Qu'il accepte ici mes très vifs et sincères remerciements.

J'ai eu le grand privilège de pouvoir bénéficier de l'intérêt constant et du soutien de Monsieur Jean DEBESSE, Directeur du Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay. Je le remercie ici, vivement pour les nombreux fructueux entretiens que j'ai eus avec lui.

C'est un grand plaisir pour moi de pouvoir exprimer ici, ma gratitude à l'égard de Monsieur Pierre RUCATEAU qui, depuis de nombreuses années, a bien voulu suivre mes travaux. J'ai pu profiter largement de ses conseils et de sa grande expérience. Je le remercie également d'avoir bien voulu faire partie du jury.

Pour pouvoir mener à bien ce travail, une expérimentation importante était nécessaire. C'est pour cela que je tiens à remercier tous mes collaborateurs, en particulier Monsieur Pierre KRAUS et Monsieur René BENATTAR, avec qui, d'autre part, j'ai eu de bénéfiques discussions.

TABLE DES MATIÈRES

| | Pages |
|---|-------|
| AVANT PROPOS | 7 |
| INTRODUCTION | 9 |
| CHAPITRE I - QUELQUES GENERALITES ET PROBLEMES RELATIFS AUX FLAMMES ... | 13 |
| I.1 - Concentration de charges électriques | 13 |
| I.2 - Température de la flamme | 13 |
| I.3 - Formation de radicaux | 13 |
| I.4 - Processus et degré d'ionisation | 14 |
| I.5 - Potentiels d'ionisation | 14 |
| I.6 - Causes de l'excès de charges électriques | 15 |
| I.7 - Température électronique élevée et processus d'échauffement | 16 |
| I.8 - Ions négatifs | 18 |
| CHAPITRE II - DESCRIPTION DES DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX | 19 |
| II.1 - Premier dispositif à vapeur de mercure | 19 |
| II.2 - Influence de la température des électrodes | 20 |
| II.3 - Deuxième dispositif à vapeur de mercure | 20 |
| II.4 - Dispositif à flamme | 20 |
| II.5 - Dispositif à fission | 21 |
| II.6 - Pourcentage de charges électriques collectées | 22 |
| II.7 - Influence du mode d'ionisation | 24 |
| II.8 - Premières hypothèses | 24 |
| CHAPITRE III - PREMIERES TENTATIVES D'INTERPRETATION THEORIQUE DU PHENOMENE | 27 |
| III.1 - Transport de charges | 27 |
| III.2 - Action d'une différence de concentration | 27 |
| III.3 - Action d'une formation d'ions négatifs | 30 |

CHAPITRE IV - MESURE DE LA TEMPERATURE ELECTRONIQUE DANS UNE FLAMME.

| | |
|--|----|
| IV.1 - Tracé des caractéristiques de sondes à l'oscilloscope | 31 |
| IV.2 - Méthode de la sonde simple | 31 |
| IV.3 - Méthode de la sonde double | 32 |
| IV.4 - Température des sondes | 32 |
| IV.5 - Caractéristiques à forte et à faible pression | 34 |
| IV.6 - Distribution de la température électronique dans une flamme de méthane : mesures effectuées à la pression atmosphérique | 34 |
| IV.7 - Distribution de la température électronique dans une flamme de méthane : mesures effectuées à pression réduite | 34 |
| IV.8 - Distribution dans une flamme d'hydrogène | 60 |
| IV.9 - Action de la présence d'hydrocarbure sur la température électronique | 60 |
| IV.10 - Abaissement de la température électronique par ensemencement ou par injection massive d'électrons | 60 |

CHAPITRE V - FORMATION D'IONS NEGATIFS

| | |
|--|----|
| V.1 - Première méthode : injection localisée de gaz électronégatif dans une flamme | 61 |
| V.2 - Action sur la force électromotrice | 62 |
| V.3 - Rôle de la température des électrodes | 63 |
| V.4 - Deuxième méthode : injection d'un gaz électronégatif et radioactif | 64 |
| V.5 - Calcul de la concentration d'ions négatifs | 65 |
| V.6 - Troisième méthode : Annulation d'un effet de redressement | 66 |
| V.7 - Annulation d'un effet de redressement à deux alternances | 68 |
| V.8 - Quatrième méthode : Tendance à la symétrie de caractéristiques de sondes | 69 |

CHAPITRE VI - LE POTENTIEL FLOTTANT

| | |
|---|----|
| VI.1 - Généralités | 71 |
| VI.2 - Calcul du potentiel flottant en absence de collisions dans la gaine | 71 |
| VI.3 - Calcul du potentiel flottant en régime collisionnel | 72 |
| VI.4 - Calcul du potentiel flottant en tenant compte du gradient de densité | 73 |
| VI.5 - Calcul du potentiel flottant en fonction du pourcentage d'ions négatifs présents | 74 |

CHAPITRE VII - INTERPRETATION FINALE DU PHENOMENE

| | |
|--|----|
| VII.1 - Existence de différences de potentiel au sein de la flamme | 77 |
| VII.2 - Distribution de la concentration en ions négatifs | 78 |
| VII.3 - Calcul de la chute de potentiel dans la zone d'injection | 79 |
| VII.4 - Synthèse des résultats : distribution du potentiel | 81 |

| | |
|------------------|----|
| CONCLUSION | 83 |
|------------------|----|

| | |
|---------------------|----|
| BIBLIOGRAPHIE | 87 |
|---------------------|----|

AVANT-PROPOS

Les phénomènes d'ionisation ou de décharges électriques dans les gaz et vapeurs sont d'une très grande complexité. Ils ont été observés pour la première fois au cours du XVIIIème Siècle, leur étude scientifique a commencé vers la même époque et a été poursuivie sans interruption.

A l'heure actuelle, malgré de nombreux travaux, ces phénomènes sont loin d'être élucidés et représentent encore un vaste domaine d'investigations possibles. Il est intéressant de rappeler que c'est CROOKES en 1879 dans "Philosophical Transactions" qui, le premier, a envisagé les gaz ionisés comme "le quatrième état de la matière".

Lorsque nous avons entrepris, il y a quelques années, une étude sur la diffusion électronique dans un jet de vapeur de mercure ionisée par un champ haute fréquence, nous avons eu la chance de pouvoir y observer un effet nouveau. Celui-ci se manifestait par l'apparition d'une force électromotrice relativement importante, prenant naissance entre deux électrodes à température différente plongées dans ce jet gazeux. A l'époque, aucune interprétation valable de ce phénomène ne pouvait être donnée sans faire intervenir des hypothèses nouvelles.

Nous pensons que c'est justement la complexité des phénomènes d'ionisation qui a permis d'observer si tardivement un effet tout à fait imprévu dans des conditions d'expériences aussi banales que celles mentionnées. Cet effet de température a pu être retrouvé dans toutes sortes de vapeurs ionisées, par exemple dans de la vapeur de césium, de sodium et d'eau. Le mode d'ionisation peut être aussi varié qu'un champ haute fréquence, des rayons X ou des produits de fission. La force électromotrice se manifeste également dans différentes flammes où la chimie-ionisation intervient alors. Dans le travail qui suit, nous essayons d'interpréter et d'approfondir, qualitativement et quantitativement, le mécanisme physique qui régit ce phénomène ; l'étude de la température électronique d'une part, et celle de la formation de porteurs de charges négatives lourds d'autre part, y jouent un rôle prépondérant.

INTRODUCTION

Deux électrodes métalliques en contact avec une vapeur saturante, ionisée par un moyen quelconque - champ haute fréquence, rayons X, chimie-ionisation ou produit de fission - permettent de déceler une force électromotrice relativement importante. Ceci se produit pourvu qu'une des électrodes soit maintenue à une température relativement basse, de l'ordre de 50°C et l'autre à quelques centaines de degrés C, mais toutefois en-dessous d'une température qui pourrait entraîner une émission électronique. Les différences de potentiel obtenues par un même dispositif dépendent essentiellement du mode d'ionisation employé, mais elles sont dans tous les cas beaucoup trop élevées pour être justifiées par un simple effet de refroidissement du gaz.

Dans certaines expériences, les tensions obtenues sont d'un facteur au moins cent fois plus important que ne le laisserait prévoir la théorie classique. Dans notre cas, comme nous le montrerons ultérieurement, il est également exclu que l'effet soit dû à un transport de charges ou à une diffusion entre des régions de densités différentes.

Dans de récents travaux, il a été montré que la présence de gaz électronégatif en quantité suffisante dans le milieu considéré, flamme par exemple, a une influence essentielle sur la valeur de la force électromotrice observée.

Il a été également signalé - fait très important - que, lorsque la vapeur saturante est remplacée par un gaz non condensable, dans les conditions de l'expérience ou lorsque le gaz ou le mélange gazeux ne contient pas de corps électro-négatif, l'effet disparaît. La valeur de la force électromotrice devient alors normale, c'est-à-dire très faible, et elle correspond à celle prévue par la théorie classique (en absence d'ions négatifs).

Nous savons aujourd'hui que le phénomène ne se manifeste que lorsqu'il se forme près d'une des électrodes un important excès de charges lourdes négatives : ce sont, soit des gouttelettes négatives, ou l'électron sert de noyau de condensation, soit des ions négatifs formés par l'attachement d'électrons sur des constituants de gaz électronégatifs. Nous savons également que les fortes valeurs de la force électromotrice sont dues à la différence des potentiels flottants des deux électrodes.

Si l'interprétation de ce phénomène se révèle déjà très compliquée dans des dispositifs utilisant des vapeurs saturantes, ionisées par un champ électrique haute fréquence par exemple, elle se complique encore singulièrement dans le cas des flammes.

Pourtant, l'absence d'un champ électrique d'origine extérieure facilite beaucoup l'observation de ce phénomène, c'est pourquoi, dans ce travail, nous nous attachons surtout à l'étude de l'effet dans le cas des flammes.

Les dispositifs expérimentaux de base à l'aide desquels cet effet de température a pu être observé puis ensuite étudié sont schématisés sur les figures 1 et 1a. Le premier est constitué par un ballon en verre muni d'électrodes et contenant une petite quantité de mercure. Le mercure et les électrodes sont portés à une température de 300°C environ et les vapeurs de mercure ainsi formées sont ionisées par un champ haute-fréquence. Lorsque la température d'une électrode est abaissée à 100°C, une différence de potentiel de l'ordre de 10 volts apparaît.

Le deuxième dispositif utilise une flamme comme milieu ionisé. Il comporte également deux électrodes, dont les températures, comme dans le cas précédent, sont maintenues à des valeurs différentes, 20°C pour l'une et 150°C pour l'autre. Dans ces conditions, il s'établit une force électromotrice de 2,2 volts.

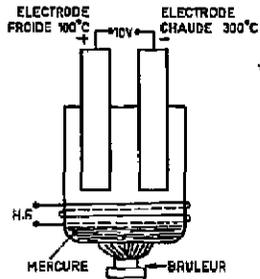


Figure 1

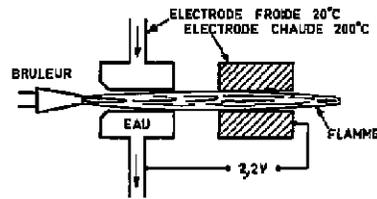


Figure 1a

Les deux genres d'expériences font appel à deux conditions expérimentales fondamentales à savoir : un attachement massif des électrons près de l'électrode froide et une température électronique élevée. Cependant, si, dans le cas de la vapeur de mercure, une température électronique importante peut s'expliquer par le mode d'ionisation employé (haute-fréquence), dans le cas des flammes, ce point, que nous avons maintes fois vérifié, n'est peut-être pas encore totalement expliqué.

Un effet de redressement et sa disparition nous ont permis de mettre en évidence un attachement quasi complet des électrons sur certains corps du milieu ionisé. Le dispositif expérimental relatif à cet effet de redressement dans une flamme est représenté sur la figure 2. Il est muni de deux électrodes identiques, en platine et de grande surface (1 cm²), refroidies et disposées de façon dissymétrique par rapport à la flamme.

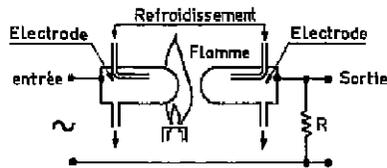
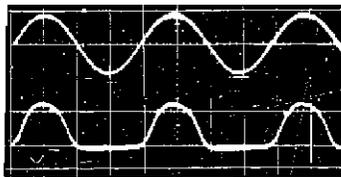


Figure 2

OSCILLOGRAMME



L'une des électrodes est profondément introduite dans la flamme et l'autre disposée à la périphérie de celle-ci, à plusieurs millimètres de sa partie lumineuse. La densité électronique étant plus importante au sein de la flamme que sur la périphérie immédiate, il en résulte que, si l'on applique une tension alternative entre ces deux électrodes, on recueillera plus d'électrons dans le sens flamme périphérie pendant l'alternance où l'électrode disposée à la périphérie devient positive, que dans le sens opposé au cours de l'alternance suivante pendant laquelle l'électrode extérieure collecte les ions positifs. On observe ainsi un effet de redressement. Cet effet est évidemment lié à la grande différence de mobilité des ions et des électrons. La figure 2 schématise le dispositif expérimental et l'oscillogramme [1] montre le redressement obtenu à partir d'une tension alternative de quelques volts et de fréquence 50 périodes/s.

Dans la première partie de ce travail, nous consacrons un chapitre à quelques généralités et problèmes relatifs aux flammes, pour donner ensuite une description de plusieurs dispositifs expérimentaux ayant permis d'observer le phénomène. Ensuite, en faisant appel à certains mécanismes physiques existant dans les gaz ionisés qui peuvent, dans certaines conditions engendrer une force électromotrice, nous montrons dans quelle mesure ce phénomène ne peut être interprété en premier lieu par un transport de charges, en second lieu par une diffusion électrons-ions entre deux régions de densités différentes et enfin par un seul effet de refroidissement du gaz.

Dans la deuxième partie de ce travail nous décrivons en particulier un dispositif nouveau à l'aide duquel il est possible de déterminer la température des électrons dans une flamme. Ce dispositif permet l'aspiration des charges électriques contenues dans la flamme à travers un orifice de très faibles dimensions dans une enceinte sous vide et de ce fait rend possible la mesure de la température des électrons dans des conditions telles que les expressions classiques puissent être appliquées sans réserve dans les calculs.

Une interprétation théorique de cet effet de température conclut ce travail. Celle-ci est basée essentiellement sur l'existence dans la flamme d'électrons d'énergie relativement élevée, et sur la formation massive de porteurs de charges provenant de la fixation d'électrons sur des corps électro-négatifs.

Nous pensons que les recherches et les publications qui ont suivi un peu partout l'observation de cet effet, montrent bien l'intérêt que les spécialistes portent à ces problèmes. Nous pensons également que les résultats de ces travaux permettent à l'heure actuelle de mieux comprendre la répartition des potentiels électriques et les phénomènes d'ionisation dans les flammes.

CHAPITRE I

QUELQUES GÉNÉRALITÉS ET PROBLÈMES RELATIFS AUX FLAMMES

Certaines propriétés électriques se manifestant lors de la combustion des flammes ont fait l'objet d'un grand nombre d'études scientifiques et ceci depuis près de cent ans.

1.1 - CONCENTRATION DE CHARGES ELECTRIQUES

Comme dans le présent travail, la flamme, sous forme de gaz partiellement ionisé, joue un rôle prépondérant, nous pensons qu'il est utile de rappeler ici quelques caractéristiques et problèmes relatifs à la physique des flammes. Tout d'abord, la flamme se comporte comme un conducteur d'électricité, grâce à la présence d'ions et d'électrons libres. La conductivité d'un tel milieu dépend considérablement de la nature du gaz, des potentiels d'ionisation de ses différents constituants, de sa température et du mode de combustion. Une flamme stoechiométrique hydrogène-oxygène à la pression atmosphérique, par exemple, contient environ 10^5 charges électriques par cm^3 . Par contre, une flamme de gaz de ville, riche en hydrocarbures, en contient environ 10^9 par cm^3 , mais cette valeur peut atteindre dans la zone de réaction 10^{12} charges par cm^3 .

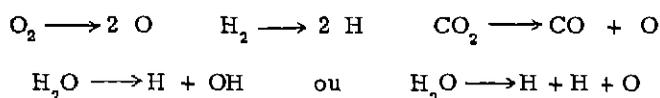
Lorsqu'on introduit, dans de telles flammes, des sels de métaux à faibles potentiels d'ionisation, comme les sels alcalins, la concentration peut facilement être multipliée par un facteur mille sinon plus.

1.2 - TEMPERATURE DE LA FLAMME

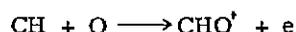
La température maximale d'une flamme dépend de l'énergie libérée lors de la combustion. Parmi les pertes qui interviennent pour limiter la température de la flamme la plus notable intervient par le jeu des dissociations. En effet, les produits de dissociation, atomes et radicaux, diffusent vers la périphérie en emportant cette énergie de dissociation sous forme d'énergie potentielle et cinétique. L'énergie potentielle est environ 10 fois supérieure à l'énergie de translation d'une molécule à la température de la flamme.

1.3 - FORMATION DE RADICAUX

Lors de la combustion, il se forme une quantité considérable de produits de dissociation. On peut citer comme exemple les processus de dissociation et d'association suivants :



et



où le radical CH peut être formé par exemple par $\text{C}_2 + \text{OH} \longrightarrow \text{CO} + \text{CH}$.

Le tableau 1 montre la composition chimique en pour cent, calculée pour différentes flammes stoechiométriques et le tableau 2, la composition typique d'une flamme de gaz de ville.

Tableau 1
Composition chimique en %

| | |
|---|--|
| H ₂ /air | 65 N ₂ , 32 H ₂ O, 2 H ₂ , 16 H |
| H ₂ /O ₂ | 55 H ₂ O, 15 H ₂ , 13 OH, 8 H, 5 O ₂ , 3 O |
| C ₂ H ₂ /air | 73 N ₂ , 12 CO ₂ , 7 H ₂ O, 4 CO, 2 O ₂ , 1 NO |
| C ₂ H ₂ /O ₂ | 32 CO, 14 CO ₂ , 13 H ₂ O, 11 O ₂ , 11 OH, 10 O, 3 H ₂ |
| CN/O ₂ | 66 CO, 32 N ₂ , 1 O |

Tableau 2
Composition typique d'une flamme gaz de ville
% en volume

| | | | |
|-----------------|------|-------------------------------|-----|
| H ₂ | 45,1 | N ₂ | 8,8 |
| CH ₄ | 14,1 | CO ₂ | 7,4 |
| CO | 15,1 | C ₂ H ₆ | 5,8 |
| | | O ₂ | 0,8 |

I.4 - PROCESSUS ET DEGRE D'IONISATION

Il y a lieu de distinguer entre trois modes d'ionisation lors du processus de combustion dans une flamme :

- 1/ ionisation thermique,
- 2/ chimie-ionisation,
- 3/ ionisation par choc électronique.

On peut calculer le degré d'ionisation d'un gaz en équilibre thermodynamique ; ce sont LINDEMANN [1] et SAHA [2] qui, pour la première fois, ont indiqué une telle méthode. Pour faire ce calcul, il faut connaître les potentiels d'ionisation des éléments contenus dans le gaz et la température de ce dernier. Le degré d'ionisation x , donné par

$$x = \frac{n_e}{N_0}$$

où N_0 est la concentration en molécules initialement présentes

et n_e la concentration en électrons, peut être déterminé par la relation :

$$\frac{x^2}{1-x^2} p = 2,4 \times 10^{-4} T^{5/2} \exp\left(\frac{-eV_i}{kT}\right)$$

où p est la pression partielle du gaz en mm de mercure,

T la température absolue en degrés Kelvin,

V_i le potentiel d'ionisation en volts,

e la charge de l'électron.

I.5 - POTENTIELS D'IONISATION

Les potentiels d'ionisation pour les molécules et radicaux qui se trouvent dans les flammes d'hydrogène, d'hydrocarbures et d'oxyde de carbone sont indiqués dans le tableau 3.

Il semble très peu probable, étant données ces valeurs élevées, que le potentiel d'ionisation dans ce genre de flamme soit inférieur à une dizaine de volts et c'est pourquoi le traitement thermodynamique seul par l'équation de LINDEMANN-SAHA est insuffisant pour expliquer la concentration

en charges électriques élevée mesurée dans les flammes d'hydrocarbures. Or, l'expérience a montré que cette concentration est généralement bien supérieure à 10^8 cm^{-3} et peut atteindre dans la zone de réaction, comme nous l'avons déjà dit, 10^{12} cm^{-3} . Il est d'ailleurs très difficile de délimiter avec précision cette zone dans un chalumeau. On peut toutefois affirmer que le nombre de réactions par unité de volume est maximal dans la région du cône lumineux.

Tableau 3
Potentiel d'ionisation en volts

| | | | |
|------------------|------|-------------------------------|------|
| CO | 14,1 | N | 14,5 |
| CO ₂ | 13,8 | N ₂ | 15,5 |
| NO | 9,25 | H ₂ O | 12,6 |
| NO ₂ | 12,3 | C ₂ H ₂ | 11,2 |
| N ₂ O | 12,9 | OH | 12,7 |
| NH ₃ | 10,2 | HO ₂ | 11,5 |
| O | 13,6 | CH | 11,1 |
| O ₂ | 12,2 | CH ₂ | 11,9 |
| O ₃ | 12,8 | CH ₃ | 9,9 |
| H | 13,6 | C | 11,3 |
| H ₂ | 15,5 | C ₂ | 12,0 |
| | | C ₂ H | 11,3 |

I.6 - CAUSES DE L'EXCES DE CHARGES ELECTRIQUES

Toutes sortes d'hypothèses ont été émises pour expliquer cet "excès" de charges, comme par exemple la présence d'impuretés et surtout de radicaux à faible potentiel d'ionisation. Pourtant, l'expérience a montré que la concentration en charges électriques chute rapidement hors de la zone de réaction, où, on le sait, la température du gaz décroît très lentement. Il faut donc écarter l'hypothèse d'ionisation thermique seule et introduire l'ionisation hors d'équilibre, pour pouvoir justifier cette concentration élevée dans les flammes.

En effet, lors du phénomène de la combustion, le gaz partiellement ionisé et excité ne représente certainement pas un système en équilibre thermodynamique, même localement, et ceci surtout dans la zone de réaction.

Au moment de la combustion, il se forme un grand nombre de corps, dont la composition, mal connue, varie le long de l'axe et également vers la périphérie de la flamme. Il en résulte qu'il est extrêmement difficile dans ces conditions de connaître avec une certaine précision, le potentiel d'ionisation de ce milieu gazeux. N'oublions pas que, dans ce cas, les sections efficaces de collision sont également mal connues, de plus, les états excités des différents produits ont une répartition toute différente de celle correspondant à l'équilibre thermodynamique.

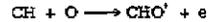
Différentes interprétations ont été proposées pour rendre compte de la forte concentration de charges électriques dans ce genre de milieu ionisé hors d'équilibre. On pourrait par exemple envisager le processus suivant : dans une flamme, il y a beaucoup de spécimens de "faible" énergie qui peuvent exciter des atomes se trouvant à l'état fondamental, mais non pas les ioniser. Si, cependant, les atomes excités sont très nombreux, ils peuvent s'ioniser par collision mutuelle ou par collision avec des électrons de faible énergie. Donc les processus accumulatifs, faisant intervenir des molécules ou des radicaux excités doivent être particulièrement importants, toutes les fois que l'énergie moyenne des particules entrant en collision est faible en comparaison de celle nécessaire à l'ionisation. Une réaction mettant en œuvre ce genre de processus collisionnel entre deux molécules excitées A^{*} et B^{*} se schématise ainsi [3] :



Mais une telle réaction ne peut avoir lieu que si la somme des énergies d'excitation de A et B augmentées de l'énergie de dissociation, est supérieure au potentiel d'ionisation de AB.

Néanmoins il semble difficile de préciser quel genre de molécules ou quels radicaux peuvent être à l'origine d'une telle réaction dans une flamme. De toute façon, de telles réactions doivent être relativement rares puisqu'elles dépendent du produit des concentrations de A' et E' dont aucune ne peut être élevée.

Une autre hypothèse [4], pour rendre compte de cette concentration élevée en charges électriques, fait intervenir ce que l'on appelle la "chimie-ionisation" c'est-à-dire la formation directe d'une paire ion-électron par une réaction chimique telle que :

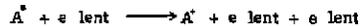


Une telle réaction semble être athermique c'est-à-dire que l'échange d'énergie peut être nul.

Comme les flammes à base d'hydrocarbures sont riches en radicaux CH, il ne semble pas exclu que ce genre de réaction puisse notablement contribuer à l'ionisation. Mais à l'heure actuelle, il n'est tout de même pas possible de savoir si le nombre de ces réactions est suffisant.

L'ensemble de ces phénomènes entraîne une distribution très complexe de température dans la flamme, et il n'est certainement pas exagéré de prétendre qu'il est pratiquement impossible de trouver des volumes voisins, même petite, qui soient à la même température. Mais si l'écart de température entre deux volumes de gaz voisins est généralement faible, il peut y avoir par rapport à cette température des écarts importants en ce qui concerne "le gaz électronique".

Ce fait qui, nous le croyons, est confirmé à l'heure actuelle, comme nous le montrerons dans le chapitre IV, sert de base à une autre hypothèse [5]. Celle-ci fait intervenir alors des électrons ayant plusieurs fois la température du gaz, et ceux-ci seraient à l'origine de l'excès d'ionisation. En effet, des collisions entre électrons et molécules A pourraient contribuer à l'ionisation par les deux processus principaux suivants :



Le gaz de la flamme, comme déjà mentionné, se trouve dans un état d'excitation élevé et c'est pour cela que le deuxième processus doit être particulièrement important. Mais, on comprend aisément que la vitesse de telles réactions dépend beaucoup de la température électronique. Si les électrons sont à la même température que le gaz, il y a peu à attendre du premier processus et il est peu probable que la concentration électronique puisse dépasser les valeurs prévues par l'équation de LINDEMANN et SARA puisque cette équation tient déjà compte de ce genre de collisions. Mais comme le gaz de la flamme ne constitue pas un milieu en équilibre thermodynamique (c'est-à-dire que les différents constituants du système se trouvent à des températures différentes) il n'est pas exclu que les électrons à cause de leur faible masse et du fait du faible échange d'énergie à chaque collision puissent acquérir une température plus élevée que le gaz même.

1.7 - TEMPERATURE D'ELECTRONIQUE ELEVEE ET PROCESSUS D'EAUFFEMENT

Dans une flamme à pression atmosphérique le nombre de collisions que subissent les électrons est évidemment très élevé. Par conséquent, on s'attendrait à ce que dans la zone de réaction d'une flamme, la température électronique ne soit guère plus élevée que celle du gaz. Mais un rapport relativement faible de l'ordre de deux ou trois, comme nous l'avons mesuré, aurait cependant déjà une influence considérable sur la concentration des charges électriques. Pour expliquer le mécanisme qui pourrait alors "surchauffer" les électrons, von ENGEL et COZENS [6] ont suggéré que celui-ci serait dû essentiellement à des collisions de seconde espèce entre électrons et molécules ou radicaux, se trouvant dans des états d'excitation électronique ou vibrationnel. Des calculs effectués par ces auteurs pour justifier l'élévation de la température électronique, aboutissent à des valeurs comprises entre 2500 et 12000°K.

Grâce à des recherches exécutées dans différents laboratoires, on peut affirmer aujourd'hui que, dans des flammes riches en hydrocarbures, il existe une quantité massive d'électrons ayant plusieurs fois la température de la flamme. En 1962, nous avons nous-mêmes pu mettre en évidence, dans une flamme de gaz de ville et d'oxygène à pression atmosphérique une température électronique élevée [7]. H. E. CALCOTE a aussi effectué des mesures dans une flamme brûlant sous une pression réduite et il a trouvé des températures électroniques comprises entre 3000 et 8000°K [8]. Le groupe KINDBARA a également fait ce genre de mesures dans une flamme propane-air sous

50 mm Hg. Là encore la température électronique se révèle être deux fois celle du gaz [9]. Nous citons encore A. von ENGEL et J. R. COZENS qui dans une flamme acétylène-oxygène ont trouvé des températures électroniques comprises entre 6000 et 8000°K. L'existence d'électrons "chauds" dans certaines flammes semble donc être très possible. Mais il faudrait encore à notre avis entreprendre des études supplémentaires beaucoup plus approfondies pour comprendre le mécanisme physique qui est à l'origine de la formation de ces électrons.

Nous pensons qu'il est possible de faire un choix entre le mécanisme physique proposé par CALCOTE, la chimie-ionisation, et celui de von ENGEL, chauffage électronique par désexcitation de molécules excitées.

En effet, le mécanisme de CALCOTE ne cadre pas avec les observations pour les raisons suivantes :

On observe une température électronique de 5000°K très supérieure à celle du gaz. Si les électrons étaient produits chauds par chimie-ionisation, les collisions sur les neutres les ramèneraient à la température du gaz en un temps de l'ordre de

$$t \approx \frac{1}{n_0 Q_{eo} c_e} \frac{M_e}{2 M_g}$$

où n_0 = densité de neutres,

Q_{eo} = section efficace d'échange d'énergie électrons neutres

c_e = vitesse moyenne des électrons,

M_e, M_g = masse des électrons, des neutres

Le délai des recombinaisons serait :

$$t' = \frac{1}{n_i Q_r c_e}$$

n_i étant la densité des ions égale à n_0

Q_r étant la section efficace de recombinaison

$$\text{Le rapport } R = \frac{\text{temps de recombinaison}}{\text{temps de refroidissement}} = \frac{n_0 Q_{eo} c_e 2 M_g}{n_i Q_r c_e M_e}$$

Compte tenu des valeurs connues

$$n_0 \approx 3.10^{18}$$

$$n_i \approx 3.10^9$$

$$\frac{2 M_g}{M_e} \approx \frac{1}{20000}$$

Donc

$$R \approx \frac{3.10^{18}}{3.10^9} \frac{1}{2.10^4} \frac{Q_{eo}}{Q_r} = 3.10^4 \frac{Q_{eo}}{Q_r}$$

Comme $\frac{Q_{eo}}{Q_r}$ ne peut en aucun cas atteindre 10^4 , les électrons seraient refroidis avant de se recombiner ce qui est contraire aux observations.

Nous avons déjà mentionné que ces électrons "chauds" constituent un élément de base très important pour l'interprétation de notre "effet" de température et c'est pour cela que nous allons consacrer à leur étude un chapitre entier.

Une flamme représente un milieu gazeux ionisé et de ce fait la présence d'ions positifs a priori, pratiquement en nombre égal à celui des électrons est la conséquence même du phénomène d'ionisation. Dans les flammes d'hydrocarbures, quantitativement l'ion H_3O^+ est prédominant, vient ensuite l'ion (NH_4^+, H_2O) et l'ion $(H_3O^+, 2H_2O)$.

1.8 - IONS NEGATIFS

Quant aux ions négatifs formés par attachement électronique sur des éléments et composés électronégatifs, leur présence a été également observée, mais il ressort par ailleurs de nos propres travaux que, dans certaines conditions d'expériences, leur concentration peut atteindre des valeurs très élevées, supérieures à 95 pour cent, fait qui, à l'heure actuelle, n'est peut être pas encore admis. Nous allons montrer que dans ce genre de flamme un effet de redressement peut être annulé, chose qui s'explique uniquement par un attachement quasi complet des électrons contenus dans la flamme et de ce fait par une mobilité pratiquement identique des porteurs de charges des deux signes. D'autres expériences mettant en évidence une très forte diminution du potentiel d'une électrode "flottante" insérée dans une flamme ne s'expliquent également que par la présence massive d'ions négatifs. La façon dont le taux d'attachement électronique intervient dans l'interprétation de ces expériences fait partie de ce travail.

Pour conclure ce chapitre, faisons encore allusion au fait qu'une flamme peut être considérée comme une sorte de semi-conducteur. Par exemple, sa conductivité électrique est fonction croissante de la température et du "dopage" effectué (ensemencement) ; l'effet Hall s'y manifeste également.

CHAPITRE II

DESCRIPTION DES DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX

II.1 - PREMIER DISPOSITIF A VAPEUR DE MERCURE

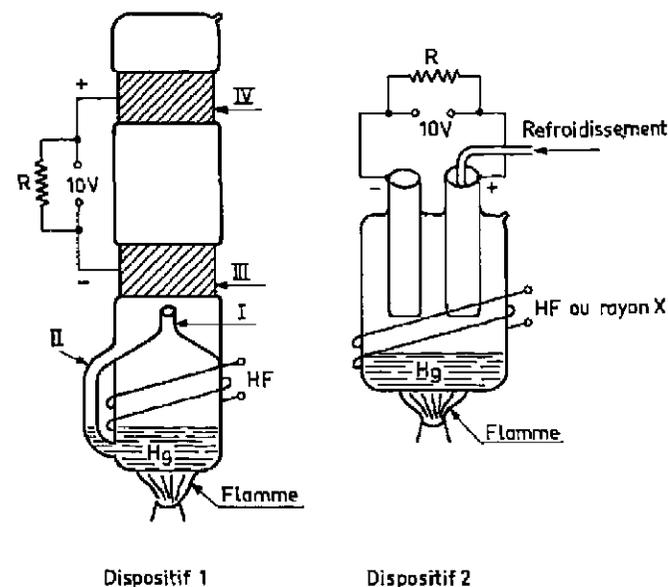


Figure 3

Le premier dispositif expérimental [10], avec lequel nous avons pu observer l'effet de température est schématisé sur la figure 3, dispositif 1. Il est constitué par un appareil en verre dont la base forme un réservoir contenant une dizaine de cm³ de mercure. Ce réservoir comporte à sa partie supérieure une buse (I) et un conduit (II) reliant la partie supérieure du réservoir à sa base. Il se prolonge vers le haut par un cylindre également en verre, mais entrecoupé par deux tubes métalliques (III et IV). Ces deux tubes jouent le rôle d'électrodes. La partie inférieure de ce réservoir est entourée d'une bobine alimentée par un courant haute fréquence destiné à ioniser les vapeurs de mercure. Un vide partiel de l'ordre de 10⁻³ mm Hg est réalisé dans l'appareil, vide correspondant à la pression de vapeur de mercure à 20°C. Le dispositif contient ainsi de la vapeur saturante.

Pour faire fonctionner l'appareil on chauffe d'abord le mercure à l'aide d'une petite flamme jusqu'à ce que la pression des vapeurs de mercure monte dans la partie inférieure du réservoir

à plusieurs cm Hg. Il s'établit alors un jet puissant et partiellement ionisé de ces vapeurs traversant la buse et les électrodes. Les vapeurs se condensent dans la partie haute de l'appareil et le mercure redescend à travers le conduit dans le réservoir.

L'expérience montre qu'il se crée entre les deux électrodes une force électromotrice voisine de 10 volts et que sa valeur, pour une pression de vapeur de mercure donnée, est très peu modifiée par la puissance haute fréquence absorbée lors du processus d'ionisation. En agissant sur le degré d'ionisation de la vapeur de mercure, cette puissance haute fréquence modifie par contre notablement l'intensité du courant continu collecté entre les électrodes.

II.2 - INFLUENCE DE LA TEMPERATURE DES ELECTRODES

Mais cette tension de 10 volts par exemple (sous une centaine de mA) est seulement atteinte après un fonctionnement de plusieurs minutes. Ce point est très important car il indique, comme nous le savons aujourd'hui, qu'il faut attendre, après la mise en marche du dispositif, l'établissement d'une différence de température entre les deux électrodes (III et IV). Cette différence de température est obtenue involontairement et automatiquement par l'éloignement plus grand de l'électrode (IV) par rapport à l'électrode (III) de la source chaude employée pour chauffer le mercure. La valeur maximale de 10 volts dans cette expérience est atteinte lorsque l'une des électrodes est maintenue en dessous de 100°C et l'autre à 250°C environ.

A partir du moment où nous avons pu noter l'influence capitale de la température sur la force électromotrice observée, il était facile de montrer que l'électrode la plus froide accusait toujours une polarité positive par rapport à l'autre et que par conséquent, il suffisait, dans le dispositif décrit, de porter l'électrode (IV), par un moyen de chauffage auxiliaire, à une température supérieure par rapport à l'électrode (III), pour inverser la polarité de la tension observée. Ce fait indiquait, par ailleurs, que la force électromotrice n'était pas due à un entraînement sélectif des charges électriques. Nous avons alors conçu un certain nombre de dispositifs expérimentaux permettant de vérifier toutes sortes d'hypothèses classiques qui auraient pu expliquer ce phénomène. Il fallait aussi vérifier si la valeur importante de la force électromotrice était spécifique ou non du premier dispositif expérimental.

Nous voudrions faire ici une petite remarque concernant le rôle important joué par le hasard. En effet, si nous avions conçu un appareil dans lequel les électrodes avaient été disposées d'une façon symétrique par rapport à la source chaude, nous n'aurions très probablement rien pu observer "d'anormal".

II.3 - DEUXIEME DISPOSITIF A VAPEUR DE MERCURE

Le deuxième dispositif expérimental (II) schématisé par la figure 3 (dispositif 2) est constitué par un ballon en verre contenant deux électrodes cylindriques creuses et dont l'emplacement est symétrique par rapport à l'axe du récipient au fond duquel se trouve le mercure. Lors du fonctionnement de cet appareil le jet de vapeur de mercure n'existe plus. L'ionisation de la vapeur de mercure est encore obtenue par un champ haute fréquence. Le mercure est chauffé grâce à une source de chaleur auxiliaire placée sous le ballon. L'ensemble prend ainsi une température de quelques centaines de degrés centigrades. On agit alors de nouveau sur la température des électrodes, et lorsque l'une d'elles est progressivement refroidie, l'autre restant chaude, il apparaît une force électromotrice du même ordre de grandeur que dans le premier dispositif. L'électrode la plus froide étant toujours positive par rapport à l'autre, ce qui indique que la présence du jet n'intervient pas dans le phénomène. Nous nous sommes alors demandés si la force électromotrice observée ne provenait pas d'une séparation des charges électriques par la présence du champ haute-fréquence.

C'est pourquoi dans ce même dispositif nous avons ionisé la vapeur par des rayons X mous, à la place du champ haute fréquence ; des tensions de l'ordre de 25 volts ont alors été relevées [12].

II.4 - DISPOSITIF A FLAMME

Ensuite des expériences ont été réalisées dans des flammes [13], où l'ionisation est obtenue en absence de champ électrique. L'effet de température (avec des différences de températures du même ordre de grandeur que dans les expériences précédentes) était de nouveau indispensable pour

provoquer l'apparition d'une tension. Des densités de courant de plusieurs dizaines de mA/cm² sous 1 volt, dans une flamme dont la conductivité a été augmentée par un ensemencement en sels de potassium ont été mesurés. Dans cette même flamme non ensemencée la tension à vide est de 2,2 volts.

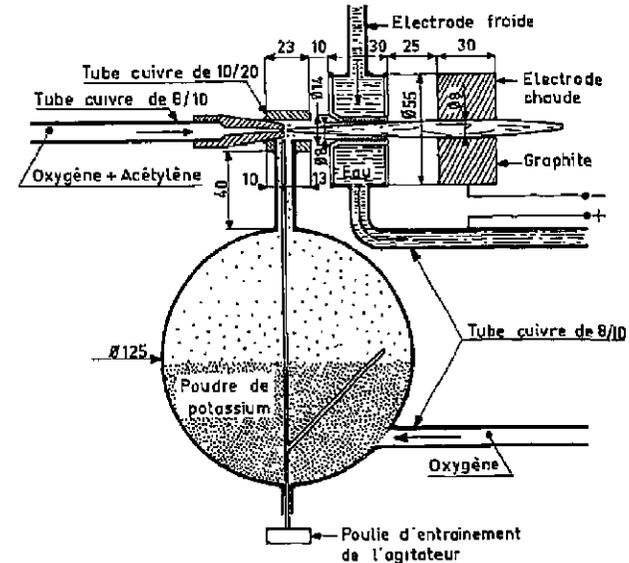


Figure 4 : Convertisseur à flamme.

Le dispositif ayant servi pour cette expérience est indiqué sur la figure 4. Il comporte un chalumeau alimenté en gaz de ville et en oxygène. Un ballon contenant de la poudre de potassium est relié par un tube au bec du chalumeau permettant ainsi l'ensemencement de la flamme. La flamme passe d'abord à travers une électrode circulaire. Une circulation d'eau permet de tenir cette électrode à une température inférieure à 100°C. Ensuite la flamme traverse une deuxième électrode en graphite non refroidie.

II.5 - DISPOSITIF A FISSION

Le dispositif suivant (figure 5) fait appel cette fois-ci, pour obtenir l'ionisation du milieu gazeux, aux produits de fission [14], engendrés par un flux de neutrons issu d'un réacteur nucléaire et frappant une couche d'oxyde d'uranium. Dans cet appareil la vapeur de mercure est remplacée par de la vapeur d'eau.

Un barreau en zircalloy de 20 mm de diamètre et de 30 cm de longueur est maintenu à l'aide d'isolateurs en céramique au centre d'un tube en acier inoxydable de 50 mm de diamètre. Le barreau central est recouvert extérieurement d'une très mince couche d'oxyde d'uranium UO₂ (enrichi environ à 98 pour cent). Un petit récipient, également en acier inoxydable, est fixé à la base du tube. Il est thermiquement isolé par de la poudre d'alumine et il est partiellement rempli d'eau lourde. L'autre extrémité du tube est fermée par un bouchon en acier muni d'un passage étanche en alumine. Deux thermocouples permettant la mesure de la température du barreau et de celle de l'eau sont prévus. Le thermocouple fixé sur le barreau sert également à la mesure de la force électromo-

trice. L'appareil est vidé de son contenu d'air. Lorsque ce dispositif est introduit dans le réacteur, il baigne dans l'eau lourde de ce dernier. De ce fait, le tube extérieur est refroidi lors du fonctionnement du réacteur, la température de l'eau lourde ne dépassant pas 40°C. Par contre le barreau central s'échauffe principalement à cause du rayonnement gamma auquel il est soumis. Ainsi, on obtient une électrode chaude et une électrode froide comme dans toutes les expériences antérieures. L'eau dans le récipient s'échauffe aussi et l'enceinte se remplit de vapeur d'eau qui se condense sur la paroi froide. Ces vapeurs d'eau sont essentiellement ionisées par les produits de fission émis par la couche d'oxyde d'uranium. La variation de la force électromotrice recueillie aux bornes du barreau et du tube extérieur en fonction de la température de l'électrode chaude est donnée sur la figure 6. De nouveau, l'électrode froide est positive par rapport à la chaude, et, à vide c'est-à-dire sans faire débiter ce générateur d'électricité, une différence de potentiel de 2,2 volts est obtenue lorsque l'électrode chaude est à 250°C environ. La figure 7 donne le courant électrique débité sur une résistance de 100 Ω en fonction de la puissance du réacteur. Des mesures jusqu'à une puissance de 10 MW du réacteur ont été effectuées, et dans ce domaine de puissance le courant électrique recueilli croît linéairement. A 10 MW la puissance maximale est obtenue lorsque le générateur débite sur une résistance de 370 Ω. Le courant est alors 3 mA sous 1 volt.

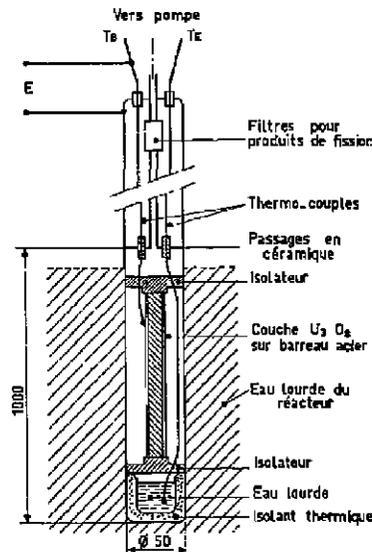


Figure 5 : Schéma du dispositif utilisé pour la conversion de l'énergie ionisante d'un réacteur en électricité.

II.6 - POURCENTAGE DE CHARGES ELECTRIQUES COLLECTEES

Dans une première estimation, qui reste malgré tout très approximative du fait de l'incertitude sur la valeur de la densité de la vapeur d'eau circulant dans ce dispositif, le courant théorique maximal qu'il serait possible de recueillir dans les conditions de l'expérience pourrait être calculé de la façon suivante : quand la puissance du réacteur est de 10 MW la couche d'oxyde d'uranium est soumise à un flux de 10^{12} neutrons par cm^2 et par seconde. La température de l'eau dans cet appareil est 55°C et comme la paroi interne du tube extérieur a sensiblement cette même température, la pression de la vapeur d'eau se fixe à environ 100 mm Hg. Le flux de neutrons engendre $3 \cdot 10^{10}$ produits de fission par cm^2 et par seconde. Chaque atome de fission crée à la pression atmosphérique en moyenne 10^9 paires d'ions, soit à la pression de 100 mm de mercure 10^8 paires d'ions. La

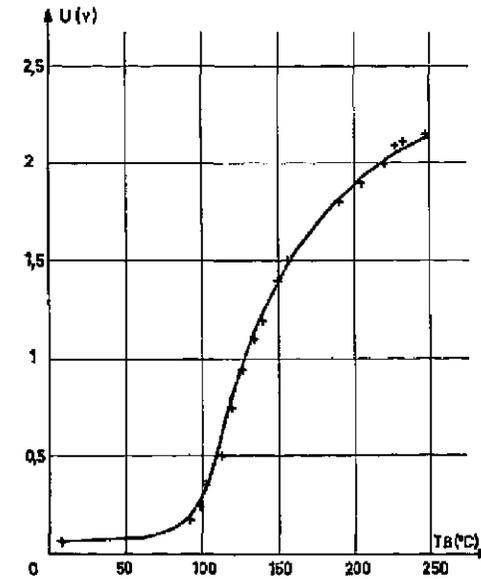


Figure 6

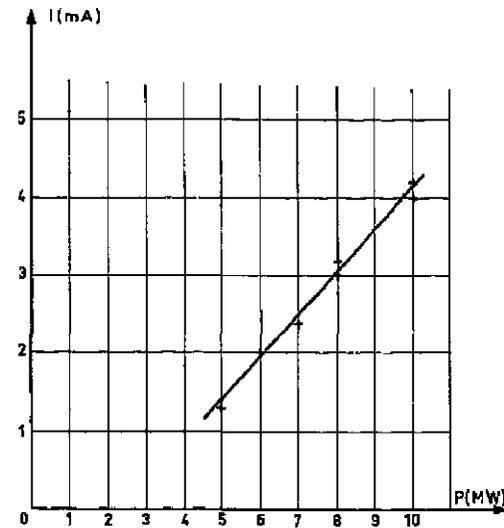


Figure 7

surface de la couche est de 450 cm². Par conséquent, le nombre total de paires d'ions formé par seconde est $1,3 \cdot 10^{10}$ ce qui correspond à un courant d'environ 200 mA. En fait, le nombre de produits de fission pouvant effectivement quitter la surface émettrice n'est que le tiers du nombre total créé, ramenant ainsi la valeur du courant théorique maximal à 65 mA. Il semblerait donc que le courant mesuré soit donné par seulement 10 pour cent des charges électriques disponibles.

II.7 - INFLUENCE DU MODE D'IONISATION

En analysant les différentes valeurs des tensions électriques obtenues avec ces quatre dispositifs, on s'aperçoit alors que le mode d'ionisation semble jouer un rôle important. Nous avons agi sur d'autres paramètres par exemple, sur la pression des vapeurs ionisées (abstraction faite du dispositif à flamme) et sur leur taux d'ionisation. Les forces électromotrices obtenues n'en étaient que faiblement influencées. Le tableau 4 indique les valeurs maximales, en volts, mesurés dans ces quatre types d'expérience.

Tableau 4

| Mode d'ionisation | Dispositif | Tension à vide | Nature du gaz ou de la vapeur | Pression en mm Hg (environ) |
|--------------------------------------|------------|----------------|-------------------------------|-----------------------------|
| Haute Fréquence | 1 | 10 Volts | Mercure | 10^{-2} |
| Haute Fréquence | 2 | 8 Volts | Mercure | 10^{-1} |
| Rayons X | 2 | 25 Volts | Mercure | 10^{-1} |
| Chimie-Ionisation Flamme | 3 | 2,2 Volts | Méthane | 760 |
| Ionisation thermique Flamme ensencée | 3 | 1,5 Volts | Méthane | 760 |
| Produits de fission | 4 | 2,2 Volts | Vapeur d'eau | 100 |

II.8 - PREMIERES HYPOTHESES

C'est à partir de ces résultats que nous avons envisagé pour la première fois l'action de la température électronique sur les tensions observées. Nous avons également émis l'hypothèse que ces tensions "élevées" seraient principalement dues à la différence des potentiels flottants de chacune des deux électrodes en contact avec la vapeur ionisée. En effet, tout se passe comme si l'énergie cinétique des porteurs de charges négatives au voisinage de l'électrode froide chute rapidement, fait qui pourrait s'expliquer par deux processus bien distincts : à savoir par une décroissance importante de la température des électrons près de cette électrode ou encore par un attachement des électrons c'est-à-dire par la formation de charges électriques lourdes, soit sous forme d'ions, soit sous forme de gouttelettes négatives. Comme nous le montrons par la suite c'est le deuxième processus, qui s'est révélé être exact. Ainsi, supposons un moment que les flux des ions positifs et négatifs sur l'électrode froide soient identiques, cette électrode n'acquerra aucun potentiel par rapport au gaz ionisé et la valeur de la différence de potentiel mesurée entre les électrodes froides et chaudes serait due alors à la valeur du potentiel flottant de l'électrode chaude. Vu sous cet angle, on pourrait alors comprendre pourquoi le mode d'ionisation influe d'une façon déterminante sur les valeurs des tensions électriques obtenues, car, il est compréhensible que le champ haute fréquence issu d'un petit générateur produise des électrons moins "chauds" que le rayonnement d'un générateur à rayons X alimenté sous quelques dizaines de kV, et il est "normal" que la présence d'électrons plus ou moins "chauds" soit à l'origine de potentiel flottant plus ou moins élevés. Il faut aussi s'attendre à ce que les électrons qui prennent naissance par ionisation thermique et au cours des réactions chimiques, soient moins "chauds" que dans les deux cas précédents. Quant à l'expérience effectuée dans le réacteur nucléaire où l'ionisation de la vapeur d'eau a essentiellement lieu grâce aux produits de fissions, il est connu que l'énergie cinétique des électrons, ou leur température,

reste faible pour une pression de gaz d'une certaine de mm de mercure telle qu'elle existe dans ce dispositif lors du fonctionnement.

Nous allons maintenant rapidement examiner quelques mécanismes physiques existant dans les gaz ionisés qui peuvent dans certaines conditions donner naissance à une force électromotrice, mais qui, dans nos conditions d'expérience, se sont révélés être insuffisants pour permettre l'interprétation théorique du phénomène. Ensuite certains calculs vont être effectués pour montrer quelle serait la valeur de la différence de potentiel entre les deux électrodes, introduites dans une flamme par exemple, et justifiables par ces théories classiques sans faire intervenir aucune hypothèse particulière.

CHAPITRE III

PREMIÈRES TENTATIVES D'INTERPRÉTATION THÉORIQUE DU PHÉNOMÈNE

Tout d'abord nous allons montrer par des considérations théoriques simples pourquoi cet effet de température n'a pu être interprété, ni par un transport de charges électriques, ni par une diffusion électrons-ions, entre deux régions de densités différentes et enfin ni par la différence de deux potentiels flottants (en absence d'ions négatifs).

III.1 - TRANSPORT DE CHARGES

Lorsqu'un gaz ionisé à forte pression, de l'ordre de l'atmosphère, est soumis à une vitesse de quelques m/s, les charges électriques ions et électrons sont entraînées et des électrodes placées le long de ce jet n'acquièrent aucun potentiel dû au déplacement de ces charges électriques (abstraction faite des potentiels flottants). Pour qu'il y ait une séparation entre électrons et ions, il faudrait l'action d'un mécanisme qui "piège" par exemple les électrons, effet qui pourrait être obtenu par une électrode sous forme de grille placée dans ce jet gazeux et chargée électriquement.

Dans le cas d'une flamme, nous sommes effectivement en présence d'un jet gazeux ionisé communiquant une certaine vitesse dirigée aux particules chargées mais, comme dans notre expérience aucun artifice n'a été mis en oeuvre pour "piéger" les électrons, il est a priori peu probable qu'une différence de potentiel importante se crée entre nos deux électrodes.

Toutefois nous avons envisagé un tel mécanisme. En effet, supposons une électrode cylindrique et creuse traversée par la flamme et une seconde heurtée par elle (conditions réelles de l'expérience). Dans ces conditions, il ne semblait pas exclu que les ions aient davantage de difficulté d'être captés par l'électrode creuse que les électrons. Ceci serait dû au fait que ces ions, qui forment une gaine électrique positive à proximité immédiate de la surface de cette électrode, pourraient être partiellement entraînés par le jet gazeux constitué essentiellement de particules neutres. Pourtant l'expérience a montré que si cet effet existe, les tensions électriques qui en résultent doivent être très faibles et ainsi être masquées par les fluctuations inévitables engendrées par la turbulence de la flamme.

De toute façon, un phénomène de ce genre devrait être indépendant de la température des électrodes. Ce n'est pas le cas puisque la tension dans toutes nos expériences s'annule si les deux électrodes sont à la même température ; d'autre part, la force électromotrice devrait forcément dépendre de la vitesse et du sens du jet gazeux. Or, l'expérience montre que, ni la vitesse, ni le sens de déplacement des particules n'influent sur la valeur et la polarité de la tension mesurée. Il est donc exclu de vouloir interpréter notre phénomène par une séparation des charges électriques due à leur entraînement sélectif.

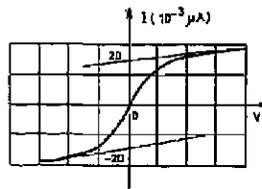
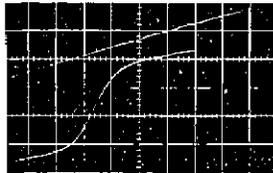
III.2 - ACTION D'UNE DIFFÉRENCE DE CONCENTRATION

La différence de potentiel entre électrodes résulte de deux effets à savoir un effet de concentration dû à la différence de densité entre les plasmas voisins de chacune des parois et un effet dû à l'inégalité des chutes de tension dans les gaines électriques.

Les tracés tension courant (figure 8) obtenus dans une flamme à l'aide de sondes maintenues d'abord à 500°K (sondes "chaudes") puis 300°K (sondes "froides") permettent de déterminer les courants de saturations ioniques i_{500} et i_{300} correspondant à ces deux valeurs de la température. On relève ainsi sur la figure 8 :

ELECTRODES CHAUDES

500°K



ELECTRODES FROIDES

300°K

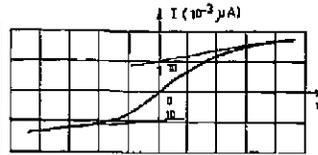
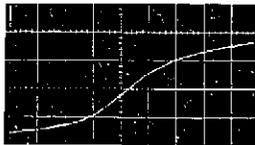


Figure 8

$$i_{500} = 2.10^{-8} \text{ ampère}$$

$$i_{300} = 1.2.10^{-8} \text{ ampère}$$

Ces courants permettent de déterminer la densité de charge par la relation

$$i_s = \frac{1}{4} r_s c_s eS$$

avec

$$c_s = \left(\frac{8 k T_s}{\pi M_s} \right)^{1/2}$$

et

$$S = \pi \frac{d^2}{4}$$

donc

$$n_s = \frac{i_s}{V T_s} \frac{8}{ed^2} \sqrt{\frac{M_s}{2k\pi}}$$

avec

n_s densité ionique,

c_s vitesse moyenne d'agitation thermique des ions positifs,

e charge de l'électron : $1,6.10^{-19}$ coulomb

S surface des sondes

k constante de Boltzmann : $1,38.10^{-23}$ J/°K

T_s température des ions positifs,

M_s masse des ions positifs,

d diamètre de la sonde.

Dans nos conditions expérimentales, nous avons $d = 3,5$ mm et les ions positifs ont pour nombre de masse : 20

d'où la relation

$$n_s = 8.10^8 \frac{i_s}{\sqrt{T_s}}$$

ce qui donne, près d'une sonde à 500°K et d'une sonde à 300°K :

$$n_{500} = 7,15.10^7 \text{ ions/cm}^3$$

$$n_{300} = 5,55.10^7 \text{ ions/cm}^3$$

En supposant la température électronique T_e uniforme, la densité électronique n_e en chaque point de la flamme est reliée au potentiel V de ce point par la relation

$$n_e = n_0 \exp. \left(\frac{eV}{kT_e} \right)$$

n_0 étant la densité d'un point quelconque pris comme origine des potentiels.

L'effet de concentration se calcule en formant le rapport des densités.

$$\frac{n_{500}}{n_{300}} = \exp. \left[\frac{e}{kT_e} (V_{500} - V_{300}) \right]$$

$$V_{500} - V_{300} = \frac{kT_e}{e} \text{ Log } \frac{n_{500}}{n_{300}}$$

soit numériquement

$$V_{500} - V_{300} = \frac{2000}{11500} \times 2,3 \log \frac{7,15.10^7}{5,55.10^7} = 0,063 \text{ volt.}$$

Pour calculer la différence de potentiel totale entre parois, somme des deux effets mentionnés plus haut, il suffit d'écrire l'égalité des courants ioniques et électroniques sur chacune des parois.

Pour une sonde isolée, donc au potentiel flottant, nous pouvons écrire, puisque les courants ioniques varient peu en fonction du potentiel, l'égalité des courants ioniques et électroniques par les relations

$$i_{300} = \frac{n_0 c_0}{4} e S \exp. \left(\frac{eV_{300}}{kT_e} \right)$$

$$i_{500} = \frac{n_s c_s}{4} e S \exp. \left(\frac{eV_{500}}{kT_e} \right)$$

où c_s représente la vitesse moyenne d'agitation thermique des électrons.

D'où la différence de potentiel entre deux parois maintenues respectivement à 300°K et 500°K

$$V_{500} - V_{300} = \frac{kT_e}{e} \text{ Log } \frac{i_{500}}{i_{300}}$$

En choisissant une valeur de la température électronique T_e égale à la température de la flamme, soit 2000°K, il vient

$$V_{500} - V_{300} = \frac{2000}{11500} 2,3 \log \frac{2.10^{-8}}{1,2.10^{-8}}$$

donc

$$V_{500} - V_{300} = 0,068 \text{ V soit } 68 \text{ mV.}$$

Comme il ressort alors de ces calculs, la valeur de 88 mV ainsi trouvée est au moins d'un facteur 30 fois plus faible que les tensions électriques effectivement mesurées, et même de polarité opposée (dispositif chapitre II page 31). Par conséquent ce modèle est incapable de justifier les résultats expérimentaux et il est alors nécessaire de faire intervenir d'autres phénomènes.

Si l'on effectue ces mêmes calculs, en se basant sur une température électronique de 1500°K (mesurée) correspondant aux expériences réalisées dans de la vapeur de mercure ionisé par un champ haute fréquence, la différence de potentiel entre les deux électrodes reste beaucoup trop faible, alors que les potentiels flottants sont de l'ordre de 10 volts.

III.3 - ACTION D'UNE FORMATION D'IONS NEGATIFS

Dans l'introduction, nous avons mentionné que l'effet de température ne se manifeste que lorsque le gaz ionisé contient des corps électronégatifs ou lorsqu'il se forme près de l'électrode la plus froide des gouttelettes par condensation. Cette observation nous a permis d'avancer une hypothèse de travail qui, par la suite, s'est révélée exacte à savoir la formation d'ions ou de gouttelettes négatifs.

Supposons, en effet, que près de l'électrode froide, tous les électrons s'attachent pour former des charges négatives lourdes de masse équivalente à celle des ions positifs. Il ne se forme alors aucune gaine électrique et cette électrode acquiert le potentiel du gaz. Par conséquent, la différence de potentiel entre les deux électrodes devient égale à celle du potentiel flottant de l'électrode chaude. On pourrait alors justifier 10 volts, dans le cas de la vapeur de mercure ionisé et 1 volt, dans le cas de la flamme.

Toutefois, comme dans la flamme des différences de potentiel de plus de 2 volts se mesurent, une température électronique plus élevée semble s'imposer. Ce point sera l'objet du chapitre suivant.

Ceci dit, nous voyons que l'hypothèse de la formation massive d'ions négatifs près d'une des électrodes, ouvre une voie de recherche intéressante car elle montre effectivement de quelle façon au cours de ces expériences, il pourrait se créer des différences de potentiel aussi "importantes" entre les deux électrodes. Nous avons alors entrepris une étude systématique sur la formation des charges négatives lourdes et imaginé pour cela plusieurs méthodes tenant compte des mobilités respectives des charges négatives et positives. Les résultats de cette étude figurent dans le chapitre V.

CHAPITRE IV

MESURE DE LA TEMPERATURE ÉLECTRONIQUE DANS UNE FLAMME

Comme nous venons de l'indiquer, l'existence d'électrons "surchauffés" dans une flamme constitue l'un des points capitaux intervenant dans l'interprétation du phénomène et c'est pour cela que nous avons attaché une très grande importance aux mesures de la température électronique dans différentes flammes.

IV.1 - TRACE DES CARACTERISTIQUES DE SONDES A L'OSCILLOGRAPHIE

Chacune des flammes a été l'objet de minutieuses investigations. De très nombreuses mesures ont été effectuées à l'aide de sondes électrostatiques suivant les méthodes des sondes simple et double. L'expérimentation s'est révélée être très délicate, surtout à cause des fluctuations inhérentes à la flamme. Dans ces conditions, le tracé "point par point" des caractéristiques tension-courant est insuffisant si une bonne précision est exigée. C'est pour cela que nous avons été amenés à mettre au point un montage électronique très soigné permettant l'obtention de ces caractéristiques tension-courant dans un temps de l'ordre de la milliseconde.

Pour le calcul de la température électronique, nous avons fait appel aux expressions classiques suivantes [15] :

IV.2 - METHODE DE LA SONDE SIMPLE

L'expression du courant électronique i_e atteignant la sonde portée à un potentiel négatif par rapport au plasma, dans le cas d'une distribution maxwellienne est :

$$i_e = \frac{n_e e S c_e}{4} \exp\left(\frac{eV}{kT_e}\right)$$

où n_e est la densité électronique, c_e la vitesse moyenne d'agitation thermique des électrons, S la surface des sondes, k la constante de Boltzmann, e la charge de l'électron, T_e la température électronique et V la différence de potentiel entre la sonde et le plasma. Le courant électronique peut être relevé directement sur les caractéristiques tension-courant, en comptant les courants à partir de la partie rectiligne de la caractéristique correspondant au courant de saturation ionique (V négatif). Le tracé de cette expression en coordonnées semi-logarithmiques donne une droite de pente

$$P = \frac{e}{kT_e} = \frac{d \log i_e}{dV}$$

puisque

$$\log i_e = \log \frac{n_e e S c_e}{4} + \frac{eV}{kT_e}$$

En prenant les logarithmes décimaux et en posant

$$p = \frac{d \log_{10} i_e}{dV} \text{ il vient } T_e = \frac{e}{2,3 kp}$$

soit :

$$T_e = \frac{5040}{p} \text{ en degrés Kelvin}$$

Si 5V est l'intervalle de tension correspondant à $d \log_{10} i_1 = 1$ nous obtenons

$$T_0 = 5040 \text{ } \delta V$$

L'exemple de la planche 1 donne ainsi :

$$T_0 = 5040 \times 1,1 = 5540^\circ K$$

IV.3 - METHODE DE LA SONDE DOUBLE

JOHNSON et MALIER [16] ont montré que l'on pouvait écrire :

$$\text{Log} \left[\frac{\sum i_p}{i_{s2}} - 1 \right] = - \Phi V_d + \text{Log } \sigma$$

avec $\Phi = \frac{e}{kT_0}$ et σ une constante caractérisant les dissymétries, i_{s1} et i_{s2} sont respectivement la somme des courants de saturation des deux sondes et le courant électronique recueilli par l'une d'elles. Ces grandeurs sont représentées sur la caractéristique de la figure 9 donnant le courant total i_d circulant entre les deux sondes en fonction de la différence de potentiel V_d appliquée entre elles.

Comme précédemment on obtient :

$$T_0 = \frac{5040}{p}$$

avec dans ce cas :

$$p = \left| \frac{d \log_{10} \left(\frac{\sum i_p}{i_{s2}} - 1 \right)}{d V_d} \right|$$

Ces mêmes auteurs ont donné une relation permettant d'éviter un tracé en coordonnées semi-logarithmiques, nécessitant uniquement la connaissance de i_p et de la pente de la caractéristique pour $V_d = 0$. On a directement T_0 par

$$T_0 = \frac{e}{k} \left[\sum i_p \frac{dV_d}{di_d} \right]_{V_d=0} \frac{\sigma}{(1-\sigma)^2} \quad \text{avec} \quad \sigma = \left(\frac{\sum i_p}{i_{s2}} - 1 \right)_{V_d=0}$$

Il convient enfin, de donner les expressions dues à A. VON ENGEL [17] permettant un calcul très rapide de T_0 dans le cas d'une caractéristique symétrique par rapport à l'origine.

On a en effet $\sigma = 1$ et en posant :

$$\left(\frac{dV_d}{di_d} \right)_{V_d=0} = \frac{\Delta V}{\sum i_p}$$

il vient

$$T_0 = \frac{e}{k} \frac{\Delta V}{4} \quad \text{soit} \quad T_0 = 11600 \frac{\Delta V}{4}$$

La figure 9 montre comment faire apparaître ΔV directement sur la caractéristique.

IV.4 - TEMPERATURE DES SONDAS

Le schéma du circuit pour la mesure à pression atmosphérique est donné par la figure 10. Pour ne pas "fausser" ces caractéristiques [18], il est indispensable que les sondes soient maintenues à des températures rigoureusement identiques. Il faut également que leur température soit suffisamment basse pour éviter toute émission électronique, mais toutefois pas trop basse pour éviter la condensation. C'est pour cette raison qu'un refroidissement par air de celles-ci est prévu. Une tension en dents de scie de quelques volts est appliquée d'une part, aux premières plaques de

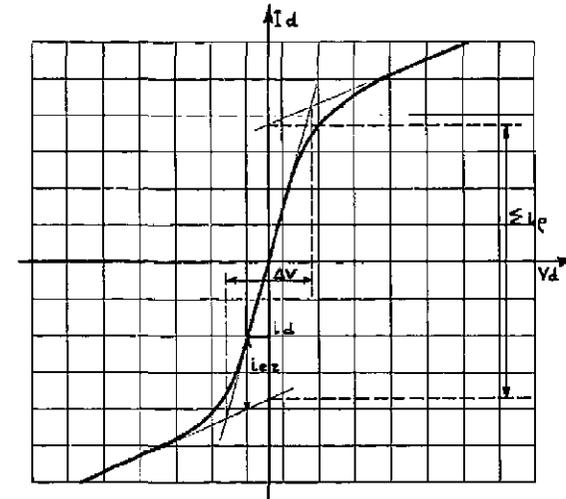


Figure 9

déviations verticales de l'oscilloscope et, d'autre part, aux sondes de mesures à travers la résistance d'entrée de l'autre canal shuntée par une résistance variable. De cette façon, le circuit se ferme à travers la flamme et l'on obtient ainsi la caractéristique désirée d'une façon automatique, précise et rapide.

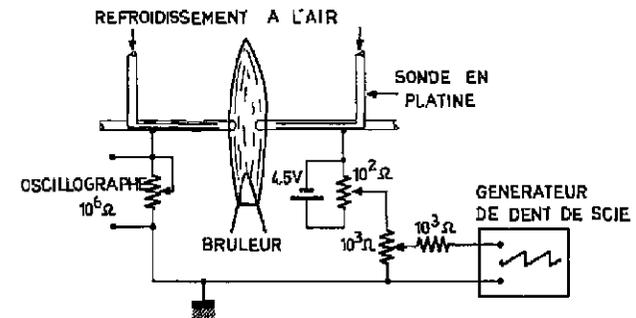


Figure 10 : Dispositif pour relever des caractéristiques de sondes doubles.

IV.5 - CARACTERISTIQUES A FORTE ET A FAIBLE PRESSION

Il faut préciser maintenant que nous avons déterminé la température électronique dans deux conditions expérimentales bien différentes, à savoir, une fois à la pression atmosphérique et une fois à 10 mm de mercure. Les mesures à pression atmosphérique semblent être criticables parce que, dans ces conditions le libre parcours moyen des particules chargées étant très faible, la présence même des sondes pourrait "perturber" notablement le milieu gazeux. Pourtant nous nous sommes posés la question à savoir en quoi pourrait bien consister cette perturbation et de quelle façon elle intervient pour pouvoir mettre en cause la validité des mesures de la température électronique dans une flamme. Que la présence des sondes refroidies crée une gaine thermique autour d'elles est certain. Que ce refroidissement du gaz abaisse légèrement la température des électrons est également certain. Il est encore sûr que la température électronique déduite de ces mesures correspondes aux électrons contenus dans cette gaine et que ces mesures ne nous renseignent pas sur leur température "loin" des sondes. Mais pour que les résultats obtenus soient vraiment "faussés" il faudrait que la distribution des énergies des électrons ne soit pas maxwellienne. A priori, rien ne nous permet de prévoir l'allure de cette distribution dans la flamme où de complexes phénomènes physico-chimiques sont à la base de l'ionisation. Il existe pourtant un indice très précieux nous permettant d'affirmer que la fonction de distribution des électrons autour des sondes est bien maxwellienne. En effet, les tracés semi-logarithmiques obtenus à partir des caractéristiques tension-courant sont des droites.

Ceci étant bien établi, c'est sur la détermination des courbes de saturation ionique qu'il faut prendre les plus grandes précautions. C'est là en effet qu'il pourrait se glisser une légère indétermination. Mais toutefois, il faut remarquer que ce coude de saturation ionique est autant prononcé sur les courbes relevées à forte pression que sur celles relevées à basse pression, comme on peut l'observer sur les planches suivantes.

IV.6 - DISTRIBUTION DE LA TEMPERATURE ELECTRONIQUE DANS UNE FLAMME DE METHANE: MESURES EFFECTUEES A LA PRESSION ATMOSPHERIQUE

Les résultats d'une première série de mesures de la température électronique pour une flamme de gaz de Lacq, composée en majeure partie de méthane et d'oxygène, à pression atmosphérique, sont indiqués sur les planches A, A', B, C, D. La figure 1 sur chaque planche indique l'oscillogramme proprement dit, la figure 2 une reproduction de celui-ci avec indication des constructions graphiques à partir desquelles le tracé semi-logarithmique de la figure 3 a été réalisé. La planche E résume ces résultats et montre les différentes valeurs obtenues en fonction de la position des sondes dans la flamme. Il ressort de ces mesures que, juste à la limite supérieure du cône de réaction de la flamme, la température électronique est la plus élevée et qu'elle diminue ensuite progressivement au fur et à mesure que l'on s'éloigne de cette région. Ce résultat est logique et parfaitement justifiable en admettant un "échauffement" des électrons par le processus déjà indiqué dans le chapitre 1. Celui-ci serait dû, nous le répétons, à des collisions de seconde espèce entre électrons, molécules et radicaux en état d'excitation électronique ou vibrationnel. Il est évident que l'importance de ce processus doit être maximale, juste à la limite du cône de réactions. Par contre, "loin" du cône, le nombre de réactions chimiques est très faible et les électrons tendent à se thermaliser : ils prennent ainsi la température du gaz.

IV.7 - DISTRIBUTION DE LA TEMPERATURE ELECTRONIQUE DANS UNE FLAMME DE METHANE: MESURES EFFECTUEES A PRESSION REDUITE

Pour parer à toute objection, il nous a alors semblé indispensable d'exécuter une autre série de mesures de la température électronique en utilisant exactement la même flamme, mais cette fois-ci, à pression réduite. Dans ces conditions, les expressions classiques sont valables, sans restriction, au moins à notre connaissance et cette nouvelle série de résultats peut être comparée à la précédente. Si les températures électroniques se révèlent être toujours supérieures à celles du gaz même, on ne pourra plus, à notre avis, douter de la validité des mesures effectuées à forte pression et ces valeurs représenteront une réalité physique. Le dispositif expérimental qui a servi à ces vérifications est représenté par la figure 11. Il se compose d'un banc de pompage à gros débit (vide primaire et secondaire) et d'une chambre de mesure cylindrique de 10 cm de long et 4 cm de diamètre. Cette enceinte est arrondie à une extrémité et elle y est munie d'un tout petit orifice, d'un dixième de millimètre de diamètre. Une sonde sous forme d'un fil métallique de 0,5 mm de diamètre est située suivant l'axe de cette enceinte. Autour de cette chambre, deux

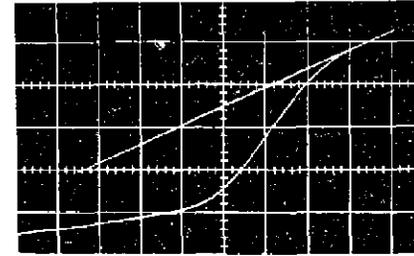


Fig - 1

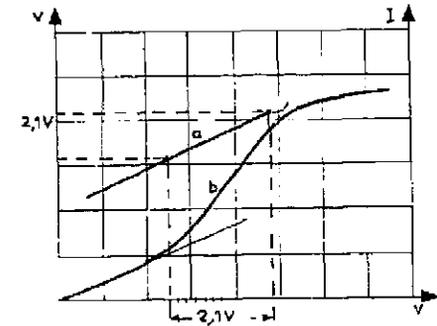


Fig - 2

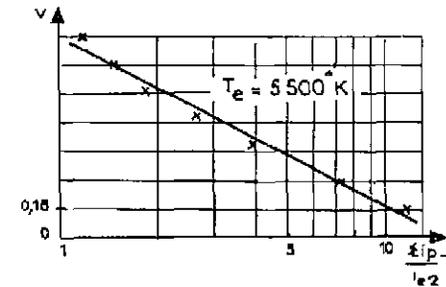


Fig - 3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche A : Flamme au gaz de Lacq et oxygène.

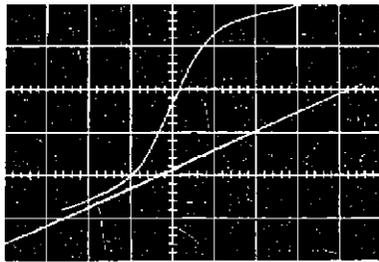


Fig - 1

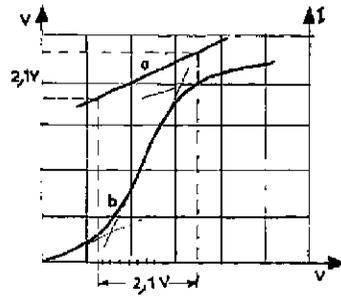


Fig - 2

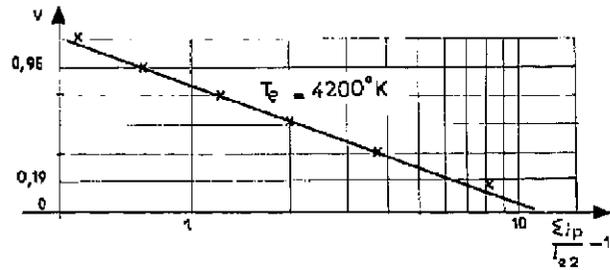


Fig - 3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche A' : Flamme au gaz de Lacq et oxygène.

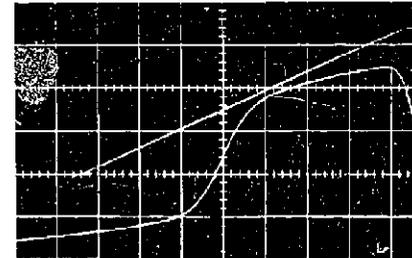


Fig - 1

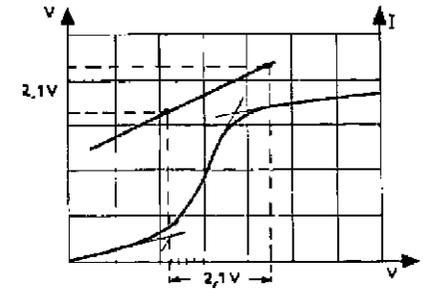


Fig - 2

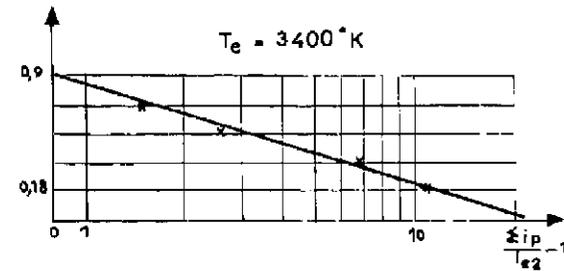


Fig - 3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche B : Flamme au gaz de Lacq et oxygène.

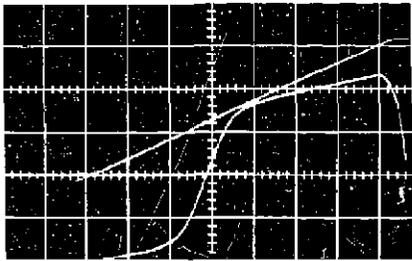


Fig - 1

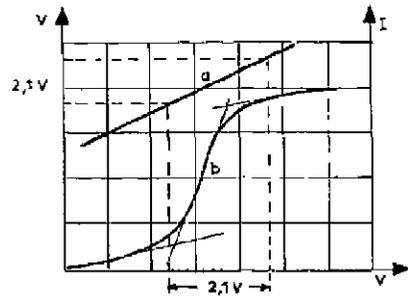


Fig - 2

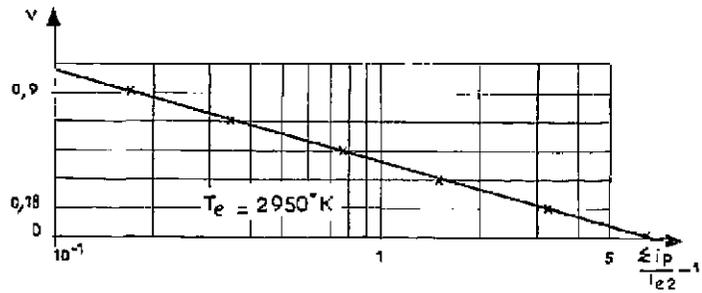


Fig - 3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche C : Flamme au gaz de Lacq et oxygène.

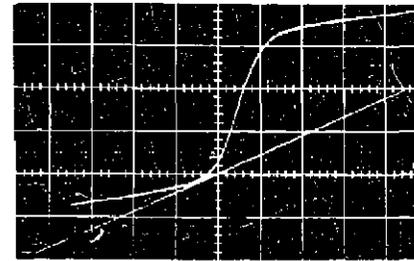


Fig - 1

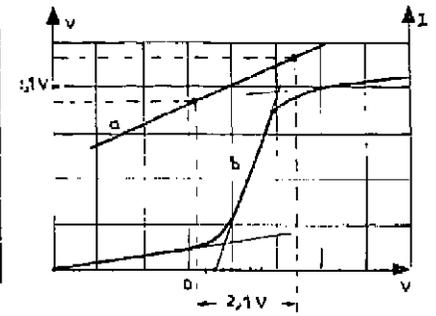


Fig - 2

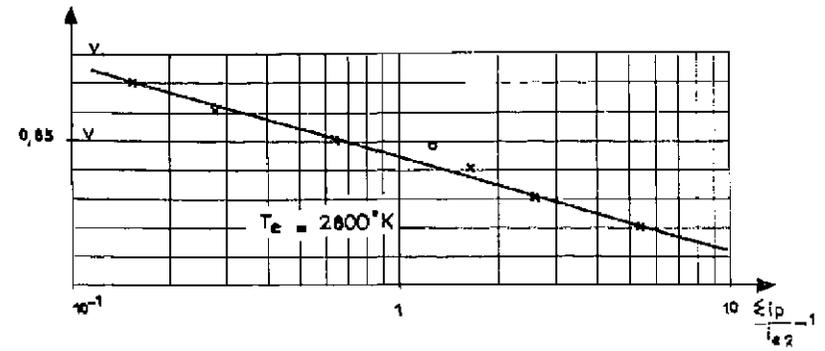
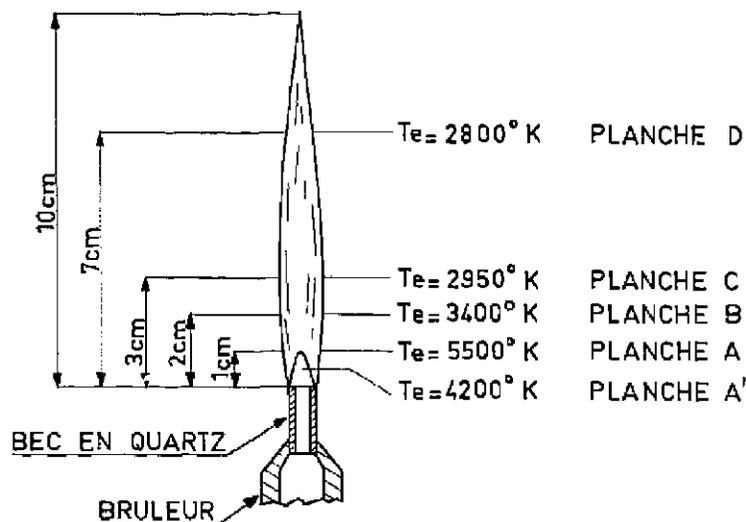


Fig - 3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche D : Flamme au gaz de Lacq et oxygène.



| Position des sondes dans la flamme | Te °K | |
|------------------------------------|---------------------------------|-----------------------|
| | Te = 11600 $\frac{\Delta V}{4}$ | Te = $\frac{5040}{P}$ |
| D | 3000 | 2800 |
| C | 3150 | 2950 |
| B | 3550 | 3400 |
| A | 5700 | 5500 |
| A' | 4500 | 4200 |

Planche B : Distribution de la température électronique dans une flamme au gaz de Lacq et oxygène.

chemises métalliques peuvent être placées alternativement, l'une permettant le refroidissement par circulation d'eau ou d'air, l'autre l'échauffement de la surface de cette chambre par un conducteur parcouru par un courant électrique. Un thermocouple fixé à proximité immédiate de l'orifice permet également un contrôle de la température de cette surface.

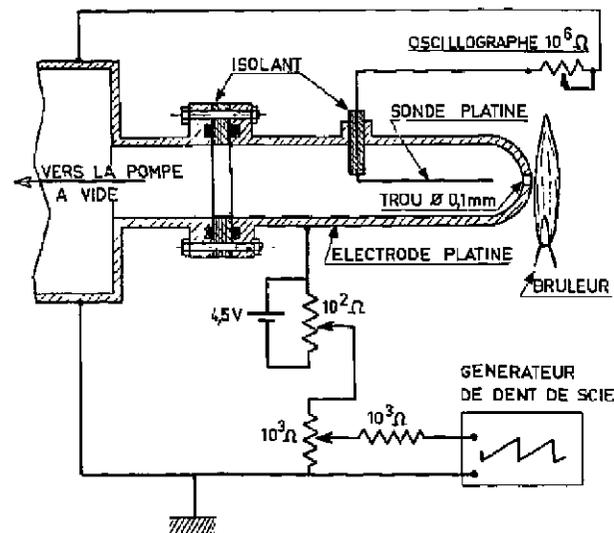


Figure 11 : Dispositif pour relever des caractéristiques de sondes simples à faible pression.

Lorsqu'une flamme est placée devant cet orifice, ses constituants, c'est-à-dire les molécules neutres, les ions et les électrons, sont aspirés à travers cet orifice et on obtient à l'intérieur de l'enceinte un gaz ionisé à faible pression. L'expérience a montré qu'il était possible d'utiliser ce milieu ionisé dilué, en provenance d'une flamme, pour tracer des caractéristiques tension-courant (sonde simple) permettant de calculer la température électronique de ce gaz aspiré ou encore d'avoir des renseignements sur la présence éventuelle d'ions négatifs. A priori, nous nous sommes posés la question de savoir si les électrons pouvaient effectivement pénétrer dans la chambre à travers un orifice aussi petit. Lors du passage du gaz ionisé, la formation d'une gaine négative autour des bords de cet orifice est inévitable, mais, le calcul montre que l'épaisseur de cette gaine semble être du même ordre de grandeur que cet orifice. Nous pensons toutefois que, lors de l'entraînement des particules neutres et des ions positifs, les électrons sont véhiculés par ces derniers, ce qui explique leur pénétration. Néanmoins, il n'est pas exclu que les électrons, lors de leur passage à travers cette gaine, perdent une partie de leur énergie cinétique. Si ceci est exact, une mesure de leur température, après pénétration dans la chambre, devrait donner des valeurs plus faibles que celles existant réellement dans la flamme. Nous pensons pourtant qu'il n'en est pas ainsi car cette gaine existe des deux côtés de l'orifice et donc, s'il y a freinage des électrons avant leur passage, il y a ensuite accélération.

Les résultats de ces nouvelles séries de mesures figurent sur les planches 1, 2, 3, 4, 5. La planche 6 résume ces résultats. Nous insistons alors sur le fait que, malgré l'utilisation d'un dispositif totalement différent, et malgré le changement de méthode de mesures, à savoir utilisation de sonde simple à la place de sonde double, les valeurs de la température électronique obtenues à faible pression, sont identiques dans le cône de réaction et plus élevées dans le panache de la flamme.

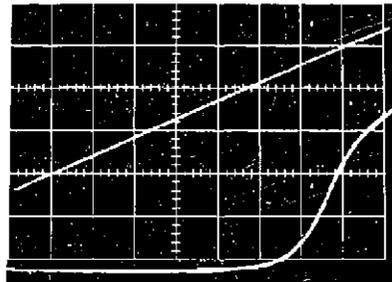


Fig - 1

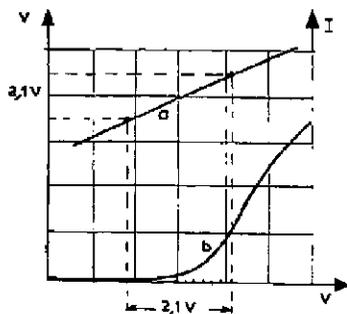


Fig - 2

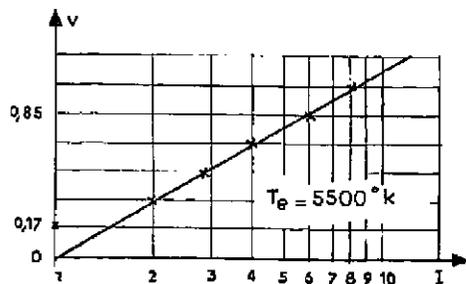


Fig - 3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche 1 : Flamme au gaz de Lacq et oxygène à faible pression.

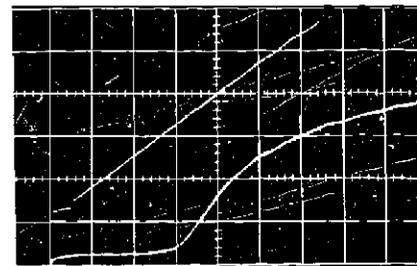


Fig - 1

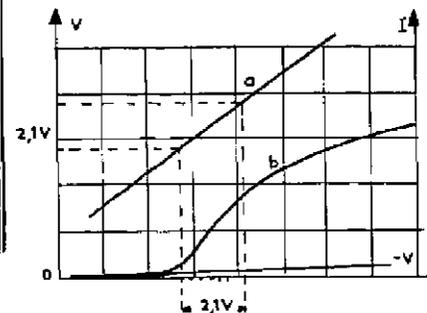


Fig - 2

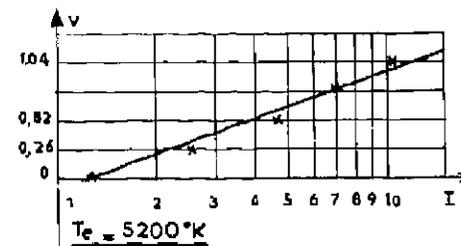


Fig - 3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche 2 : Flamme au gaz de Lacq et oxygène à faible pression.

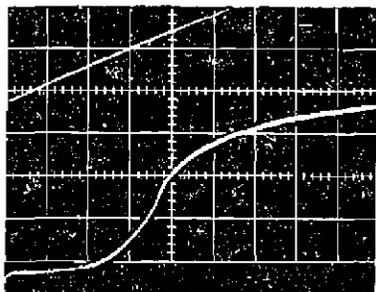


Fig - 1

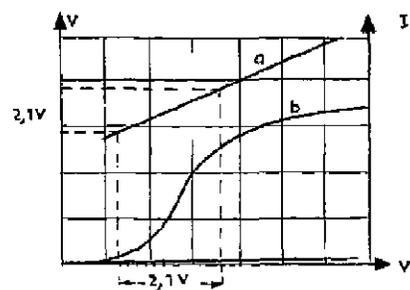


Fig - 2

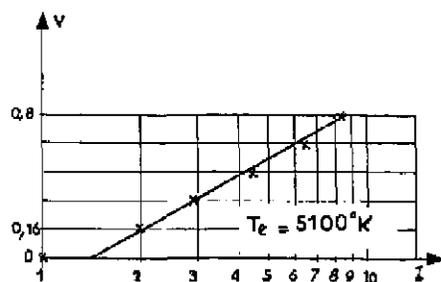


Fig - 3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche 3 : Flamme au gaz de Lacq et oxygène à faible pression.

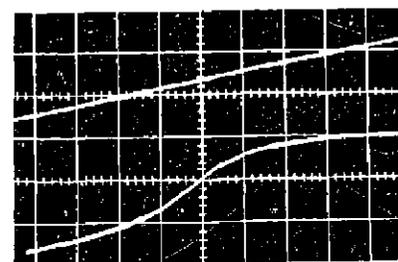


Fig - 1

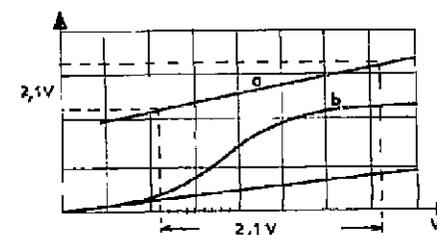


Fig - 2

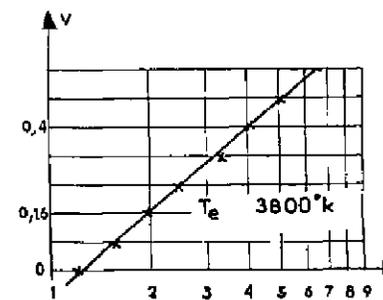


Fig - 3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche 4 : Flamme au gaz de Lacq et oxygène à faible pression.

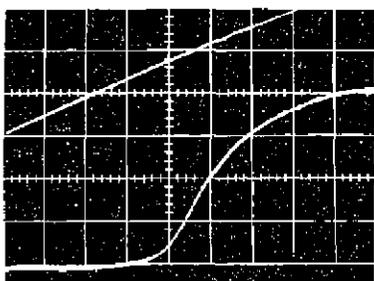


Fig-1

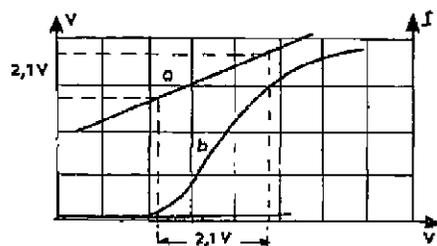


Fig-2

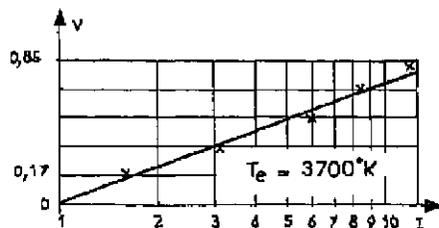


Fig-3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche 5 : Flamme au gaz de Lacq et oxygène à faible pression.

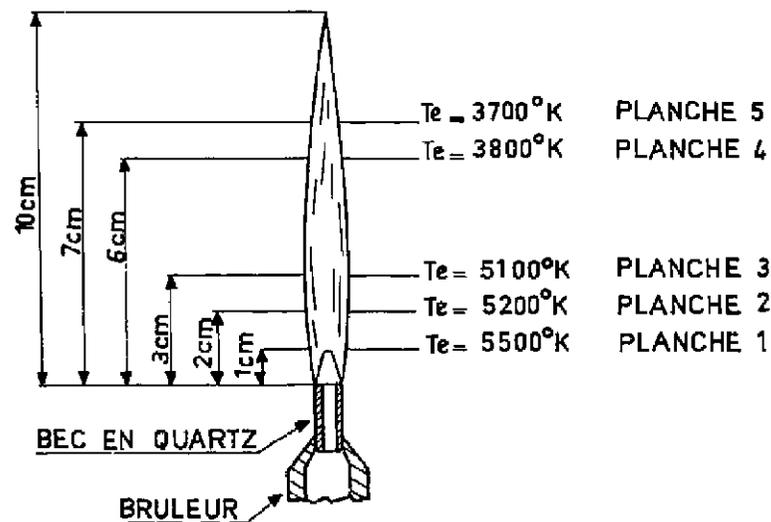


Planche 6 : Distribution de la température électronique dans une flamme au gaz de Lacq et oxygène à faible pression.

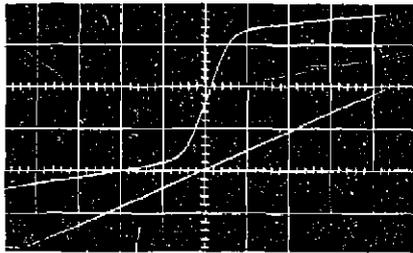


Fig - 1

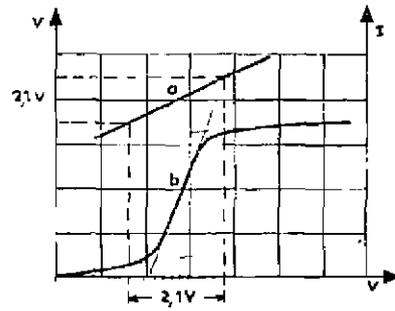


Fig - 2

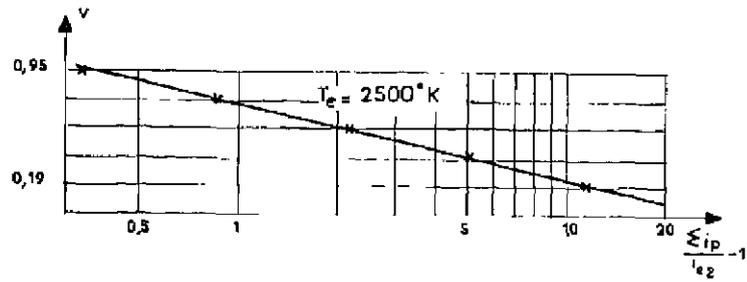


Fig - 3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planché 7 : Flamme d'hydrogène et d'oxygène.

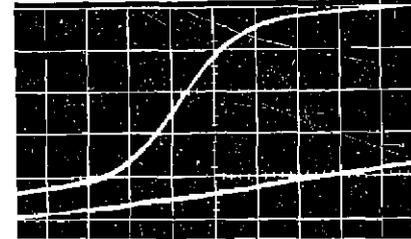


Fig - 1

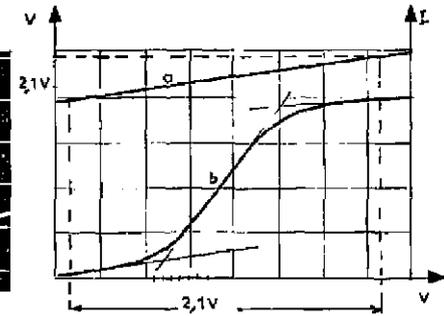


Fig - 2

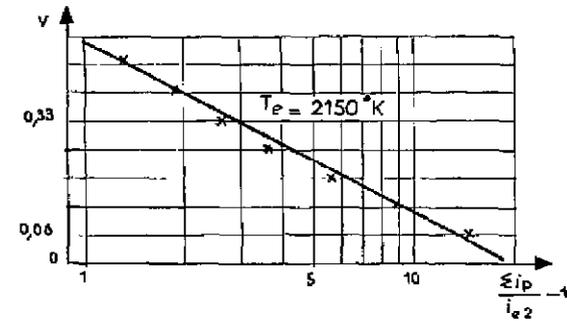


Fig - 3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planché 8 : Flamme d'hydrogène et d'oxygène.

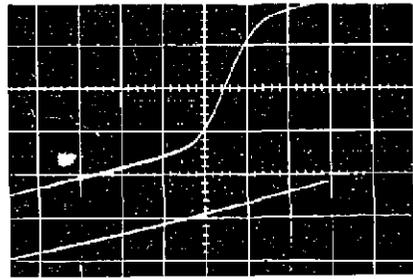


Fig - 1

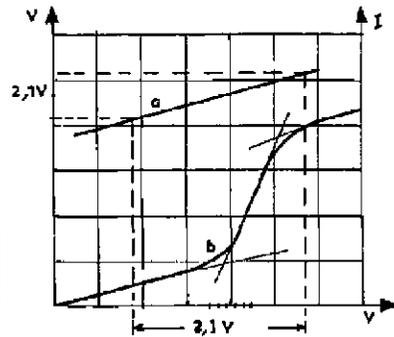


Fig - 2

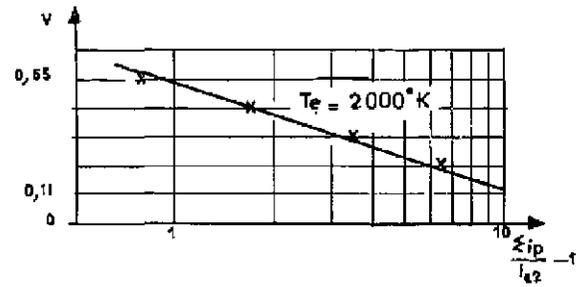


Fig - 3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche 9 : Flamme d'hydrogène et d'oxygène.

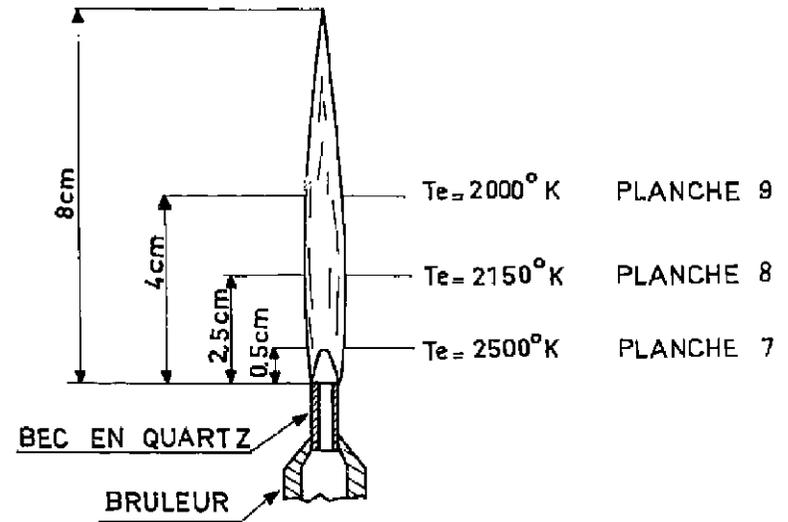


Planche 10 : Distribution de la température électronique dans une flamme d'hydrogène et d'oxygène.

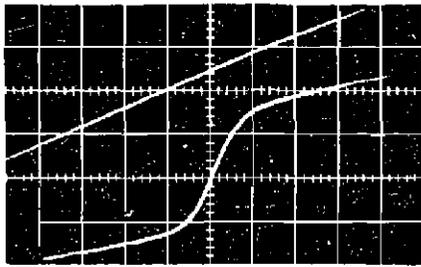


Fig - 1

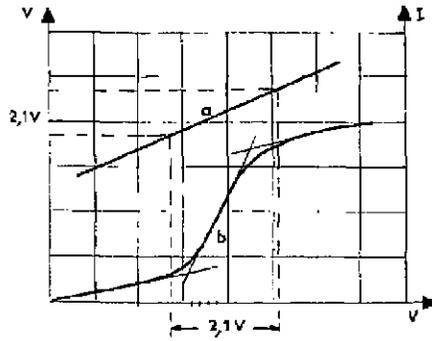


Fig - 2

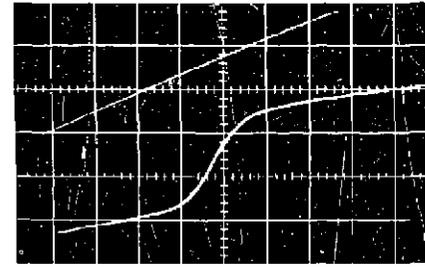


Fig - 1

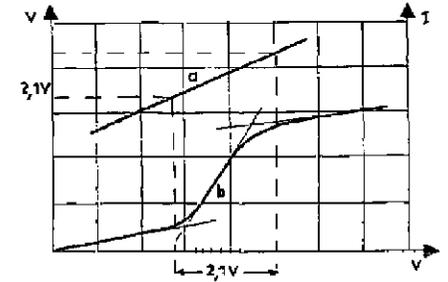


Fig - 2

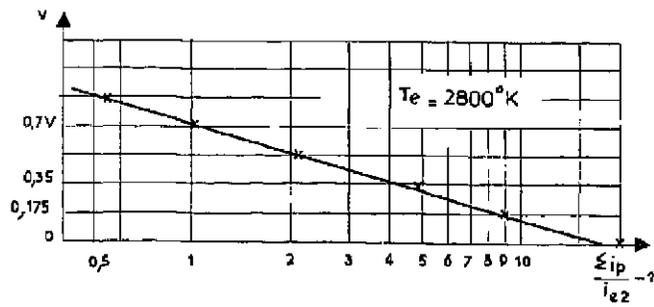


Fig - 3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche 11 : Flamme : hydrogène et gaz de Lacq 100 % de H₂.

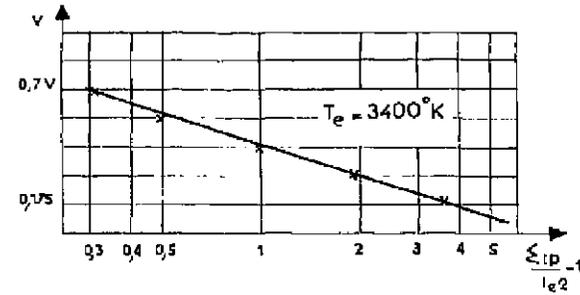


Fig - 3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche 12 : Flamme : hydrogène et gaz de Lacq mélange à 75 % de H₂ et à 25 % de CH₄.

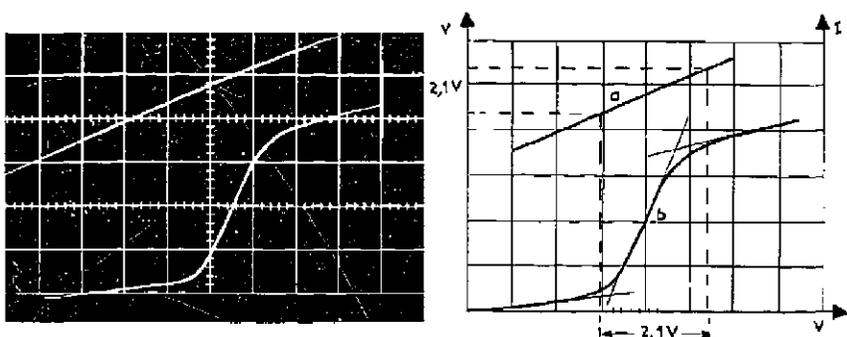


Fig - 1

Fig - 2

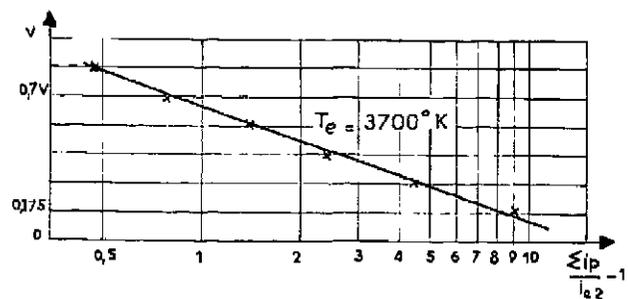


Fig - 3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche 13 : Flamme : hydrogène et gaz de Lacq mélange à 50 % de H₂ et à 50 % de CH₄.

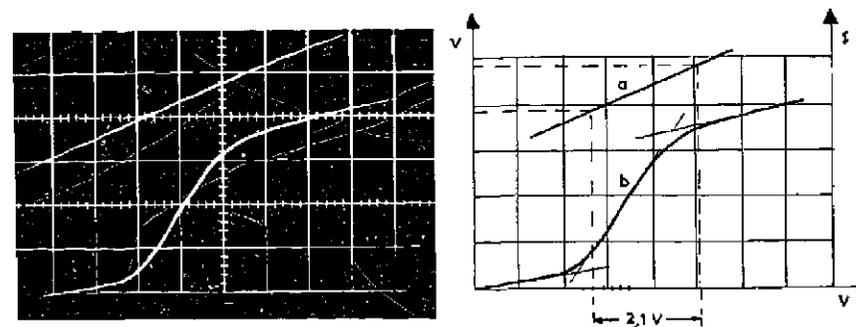


Fig - 1

Fig - 2

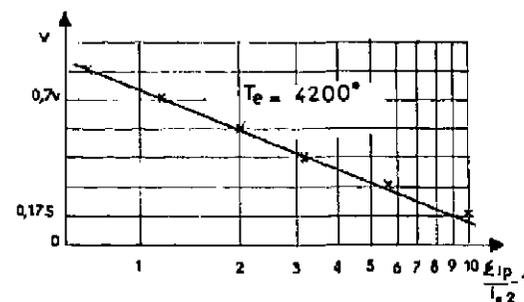


Fig - 3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche 14 : Flamme : hydrogène et gaz de Lacq mélange à 25 % de H₂ et à 75 % de CH₄.

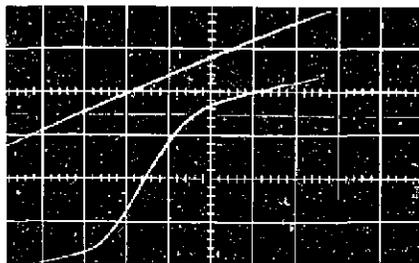


Fig-1

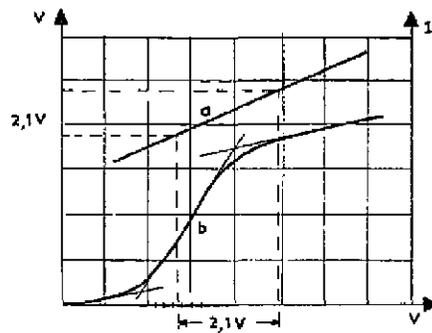


Fig-2

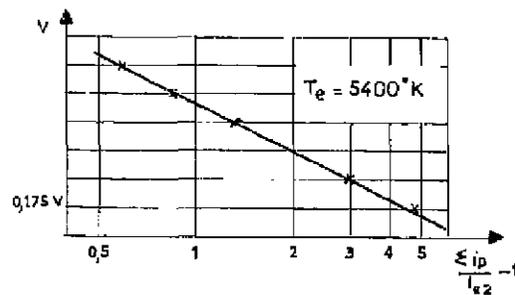


Fig-3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche 15 : Flamme : hydrogène et gaz de Lacq 100 % de CH₄.

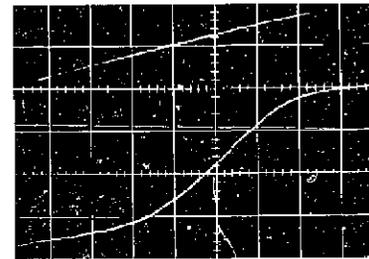


Fig-1

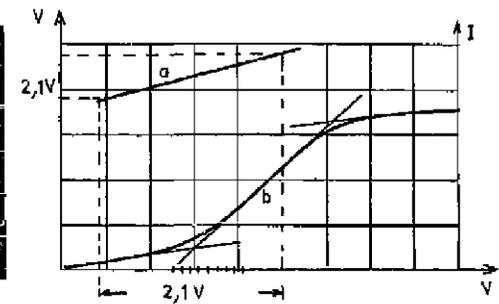


Fig-2

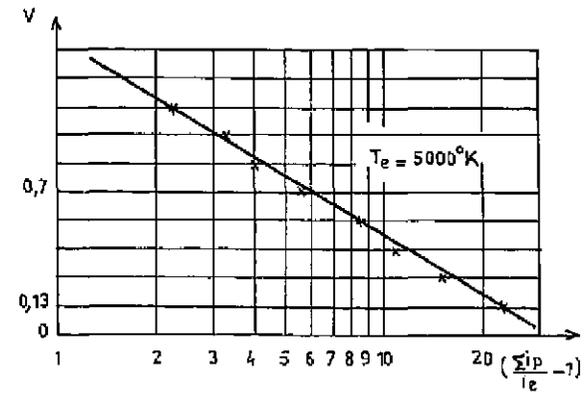


Fig-3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche 16 : Température électronique dans une flamme de référence.

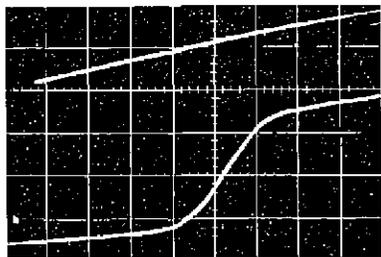


Fig-1

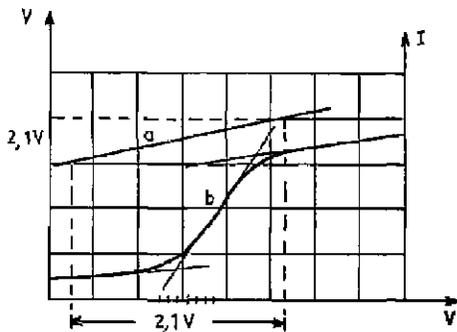


Fig-2

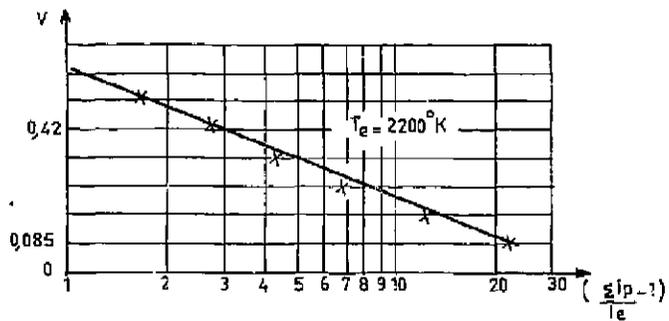


Fig-3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche 17 : Abaissement de la température électronique d'une flamme par injection d'électrons thermiques.

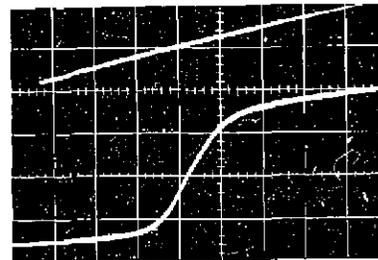


Fig-1

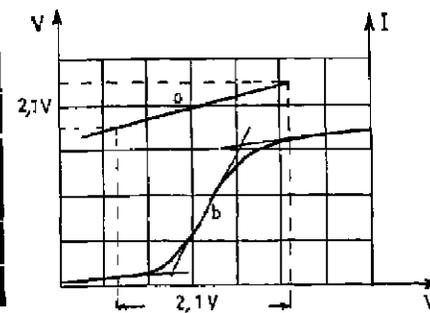


Fig-2

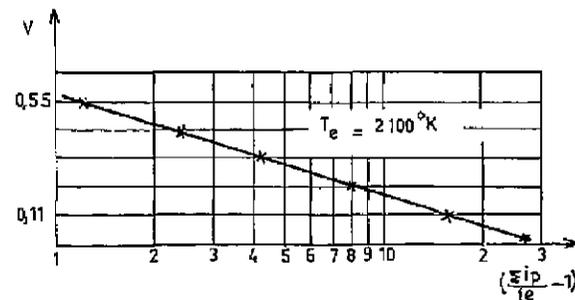


Fig-3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

Planche 18 : Abaissement de la température électronique dans une flamme ensemencée.

IV.8 - DISTRIBUTION DANS UNE FLAMME D'HYDROGENE

Les radicaux organiques, formés au premier stade de la réaction chimique, dus à la présence d'hydrocarbures dans nos flammes, sont à la base de la chimie-ionisation et, de ce fait, peut-être, à l'origine de l'échauffement des électrons. Nous avons donc, pour vérifier ce point, entrepris une troisième série de mesures, mais cette fois-ci avec une flamme d'hydrogène et d'oxygène. Dans cette flamme les radicaux organiques n'existent pas, et, seule une ionisation thermique devrait se produire. Il en découle que, dans ce cas, la température électronique ne doit pas dépasser celle de la flamme. L'analyse des planches 7, 8, 9, montre que c'est effectivement ce qui se produit car l'on constate que la température électronique reste voisine de celle de la flamme, soit 2800°K. Ces résultats sont résumés sur la planche 10.

IV.9 - ACTION DE LA PRESENCE D'HYDROCARBURE SUR LA TEMPERATURE ELECTRONIQUE

Dans une autre série de mesures, nous avons étudié de quelle façon la température électronique, dans cette même flamme d'hydrogène et d'oxygène, est influencée par le remplacement progressif de l'hydrogène par un hydrocarbure (méthane). Comme il ressort des planches 11, 12, 13, 14, 15, la température électronique monte progressivement avec la quantité de méthane et la température maximale est seulement atteinte lorsque tout l'hydrogène y est remplacé. Donc, résultat significatif, il ne suffit pas de traces d'hydrocarbures pour "chauffer" sensiblement les électrons.

IV.10 - ABAISSEMENT DE LA TEMPERATURE ELECTRONIQUE PAR ENSEMENCEMENT OU PAR INJECTION MASSIVE D'ELECTRONS

Comme dans ce travail, nous voulons vraiment fournir la preuve de l'existence massive de ces électrons chauds, nous avons encore imaginé une autre méthode dans laquelle l'action des électrons normalement produits dans une flamme riche en hydrocarbures est complètement masquée par une production intense d'électrons thermiques émis par un petit filament en platine chauffé par la flamme même. De cette façon, la température électronique mesurée est essentiellement celle des électrons en provenance du filament, donc des électrons thermiques. Le fait que le résultat donne effectivement une température électronique très voisine de la température du gaz même, représente, à notre avis, un point très important, étant donné qu'il prouve que, lorsque dans la flamme les électrons sont des électrons thermiques, les mesures à l'aide des sondes l'indiquent bien. Le dispositif expérimental est constitué d'un brûleur dont le bec est en platine et, au-dessus duquel, à quelques millimètres de distance, est fixé un fil de platine enroulé en spirale. Lors du réglage de la flamme le filament se trouve bien en-dessous de la pointe du cône de réaction et coaxial à celui-ci. Les planches 16 et 17 indiquent les résultats obtenus. Elles montrent que la température électronique décroît de 5500°K à 2300°K. Des résultats en tous points analogues sont obtenus lorsqu'on produit dans la flamme, par ensemençement, une ionisation thermique intense. La planche 18 consigne les valeurs trouvées.

CHAPITRE V FORMATION D'IONS NÉGATIFS

Dans ce chapitre, une description détaillée des différentes méthodes utilisées pour mettre en évidence la présence massive d'ions négatifs est donnée.

V.1 - PREMIERE METHODE : INJECTION LOCALISEE DE GAZ ELECTRONEGATIF DANS UNE FLAMME

Le dispositif expérimental est représenté par la figure 12. La flamme de gaz de ville est électriquement isolée du brûleur par des becs en quartz ; elle est en contact avec deux électrodes de mesures, l'une maintenue à 300°K, l'autre à 500°K. Dans une flamme de diffusion (sans injection d'oxygène), la différence de potentiel mesurée est de 0,5 V. Avec cette flamme stable, on procède alors à des injections d'oxygène de plus en plus importantes, successivement au voisinage des deux électrodes [19]-[20]. Dans chaque cas on diminue la différence de potentiel existant entre la flamme et l'électrode traitée, ou, en d'autres termes, son potentiel flottant, ce qui se traduit par une variation importante de la différence de potentiel mesurée entre les deux électrodes. Les résultats pour différents gaz électro-négatifs sont résumés dans le tableau 5.

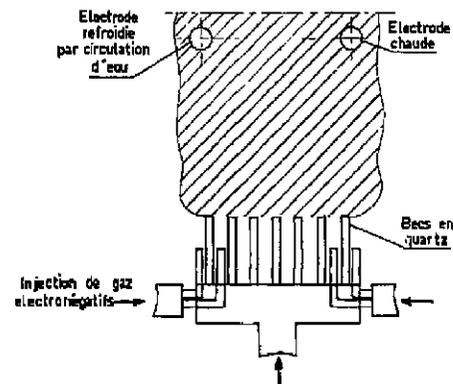


Figure 12

Tableau 5

Potentiel de l'électrode froide par rapport à l'électrode chaude

| Gaz nature | Injections | |
|--------------|--|--|
| | sur l'électrode froide | sur l'électrode chaude |
| Oxygène | Flamme + gaz valeurs en volts + 2,8 | Flamme + gaz valeurs en volts - 0,8 |
| Chlore | + 2,5 | - 1,4 |
| Chlore + oxy | + 2,6 | |
| Iode | + 1,9 | - 1,2 |
| Iode + oxy | + 2,9 | |
| Argon | pas de variation | pas de variation |
| Azote | pas de variation | pas de variation |

Les valeurs des potentiels indiquées dans ce tableau sont relativement élevées et ne peuvent être justifiées, même pour une annulation totale du potentiel flottant près de l'électrode froide, sans faire intervenir une température électronique relativement élevée. Comme dans cette expérience les valeurs des tensions relevées, par rapport aux expériences antérieures où le refroidissement seul intervient, sont passées de 2,2 à 2,3 volts, l'existence d'une température électronique élevée dans ces flammes s'impose encore davantage.

V.2 - ACTION SUR LA FORCE ELECTROMOTRICE

Il résulte de ces expériences que la présence des gaz électro-négatifs agit d'une façon décisive sur l'apparition de la force électromotrice. Il en résulte également, fait capital, que, pour la première fois, nous avons pu constater une inversion de la polarité en injectant du gaz électro-négatif près de l'électrode chaude. Celle-ci devient alors positive par rapport à l'électrode froide. Il faut encore insister sur le fait que, lorsque les gaz électro-négatifs sont remplacés par des gaz tels que l'azote ou l'argon, il n'y a aucune action sur les tensions. La variation des tensions relevées lors de l'injection progressive d'oxygène, tantôt sur l'une, tantôt sur l'autre électrode, est représentée sur la figure 13. Cette figure met également en évidence le fait qu'après une certaine quantité de gaz électro-négatifs injectée dans la flamme les potentiels ne varient plus.

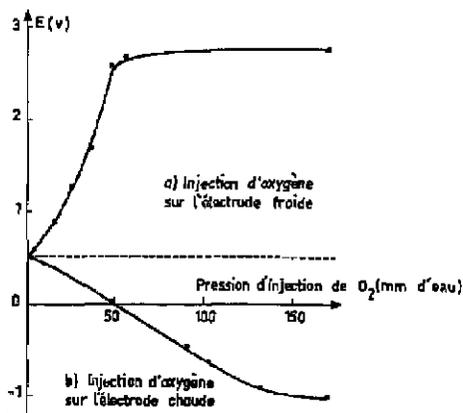


Figure 13

V.3 - ROLE DE LA TEMPERATURE DES ELECTRODES

Il découle également de ces mesures que les différences de potentiel maximales sont obtenues lorsque l'injection s'opère autour de l'électrode froide (300°K). Ce point est très important parce qu'il indique que le refroidissement agit dans le même sens, sur les différences de potentiel observées, que l'injection d'un gaz électro-négatif. Ce fait pourrait alors s'expliquer de la façon suivante : l'électrode froide qui se trouve en dessous de la température de condensation provoque en son voisinage la formation de macromolécules d'eau capable d'attacher les électrons.

Pour bien mettre en évidence, lors de ces expériences, l'action de la température des électrodes sur les tensions observées, nous avons effectué une série de mesures dans laquelle leur température, maintenue égale, était graduellement modifiée, ceci pour une injection d'oxygène constante près de l'une d'elles. La figure 14 représente les résultats obtenus. On voit que les différences de potentiel mesurées augmentent en même temps que la température des électrodes pour atteindre un palier lorsque les deux électrodes sont à environ 100°C. La différence de potentiel est donc minimale pour une température des électrodes de 20°C, ce qui s'explique par le fait qu'à cette température il y a déjà formation massive d'ions négatifs près d'elles. Les potentiels flottants sont donc fortement réduits, et l'injection d'oxygène près de l'une d'elles, tout en accroissant la formation d'ions négatifs, n'agit que faiblement sur le potentiel flottant.

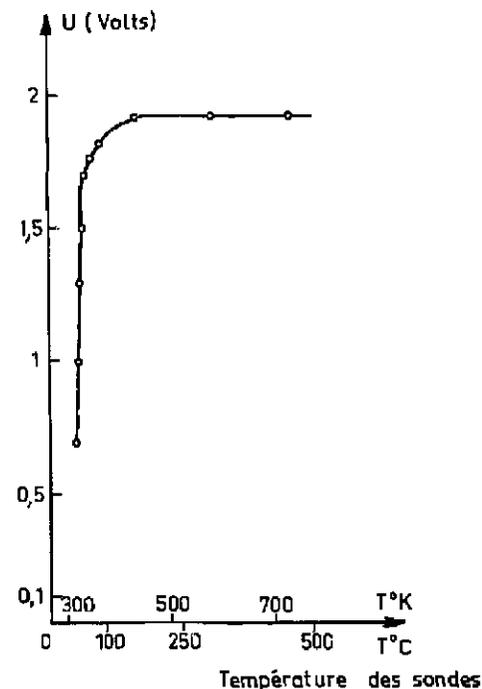


Figure 14

Si cette expérience met bien en évidence l'action importante des gaz électro-négatifs sur les valeurs des tensions obtenues, elle ne renseigne pas sur la quantité d'ions négatifs formés.

Dans la deuxième méthode par contre, nous allons essayer de déterminer la quantité d'ions négatifs présente (par cm^3) dans une flamme en nous basant sur l'énergie de liaison (affinité électronique) mise en jeu au cours d'une réaction d'attachement d'un électron sur un corps électro-négatif, tel que le brome, rendu préalablement radioactif.

V.4 - DEUXIEME METHODE : INJECTION D'UN GAZ ELECTRO-NEGATIF ET RADIO-ACTIF

Cette méthode consiste à utiliser une électrode en cuivre se déplaçant à vitesse constante en léchant la flamme, chaque fraction de sa surface ne restant en contact que pendant une courte durée (de l'ordre de quelques secondes). Nous avons ensuite mesuré avec un compteur Geiger en dehors de la flamme le dépôt radioactif obtenu. Le rapport entre la quantité de radioélément et la quantité de brome déposé a été déterminé par une méthode semblable à celle utilisée pour vérifier la loi de Faraday sur l'électrolyse : ayant réalisé un dépôt du même brome liquide radioactif sur une plaque de cuivre, nous avons déterminé la masse de bromure formée avec une balance ultra sensible, tout en relevant le taux de comptage. Ainsi, la masse totale du brome fixé pouvait se rapporter au taux de comptage et s'exprimer en nombre de coups par seconde. Dans cette expérience, les atomes de brome 82 et 80 sont dans le rapport de 1 à 10¹³ dans le brome liquide balayé par un jet d'argon, lui-même injecté dans le gaz de ville. Les proportions en volume du brome, de l'argon et du gaz de ville utilisés sont, dans la flamme, respectivement 1,5 et 16 [21].

Le dispositif expérimental, dont nous nous sommes servis dans cette série d'expériences, comporte donc une électrode en cuivre pouvant se déplacer au contact de la flamme et une deuxième électrode également en cuivre, lui faisant face. En dessous et entre les deux électrodes, se trouve un brûleur à deux compartiments, permettant l'injection de doses de brome autour d'une des électrodes. A l'aide de ce dispositif, nous avons d'abord relevé les tensions qui se créent entre les électrodes en fonction du débit de brome injecté. Ensuite, exactement dans les mêmes conditions de variation de débit du brome, le courant de court-circuit a été déterminé. Ces deux caractéristiques sont présentées à gauche sur la figure 15. Il en résulte que pour un débit de gaz de ville constant, en faisant croître progressivement le débit argon-brome au voisinage d'une électrode, la différence de potentiel entre les électrodes augmente et tend vers une limite S. Pour le courant I, la courbe a la même allure que la précédente. Nous présumons que cette saturation en tension et en courant est atteinte lorsque tous les électrons près de l'électrode ou l'injection de brome a lieu ont été fixés en formant des ions négatifs de brome. Le courant de court-circuit nous permet en outre de connaître le nombre approximatif d'ions collectés par cette électrode. Il est engendré par la force électromotrice, elle-même fonction de la température électronique près d'une des électrodes et de la concentration en ions négatifs formés près de l'autre électrode, ces derniers ayant comme effet d'annuler son potentiel flottant.

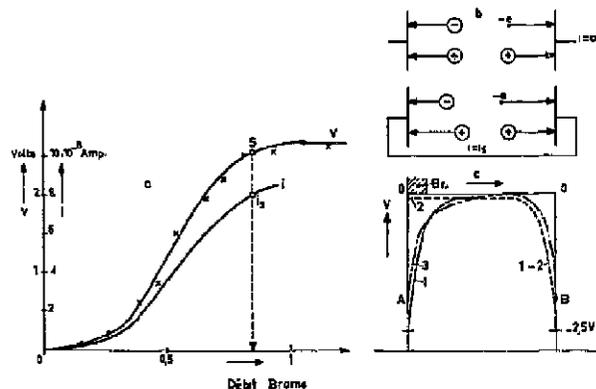


Figure 15

A droite et en haut sur cette même figure 15, sont représentés les flux d'ions et d'électrons lorsque la différence de potentiel maximale est atteinte. Les flux d'ions positifs (F₊) et d'ions négatifs (F₋) collectés par l'électrode immergée dans le brome sont égaux en circuit ouvert. Lorsqu'un courant traverse la flamme, le flux des ions positifs F₊ va croissant, tandis que celui des ions négatifs F₋ décroît. Le nombre de charges transportées chaque seconde (i/e) est égal à F₊ - F₋.

Au-dessous, les courbes montrent l'allure du potentiel entre les deux électrodes, dans les trois cas suivants :

- 1/ en circuit ouvert, sans brome, les potentiels flottants sont égaux (soit - 2,5 volts),
- 2/ en circuit ouvert avec du brome, le potentiel flottant s'annule du côté où a lieu l'injection du brome,
- 3/ en court-circuit avec du brome, le potentiel passe de 0 V à A du côté gauche, où a lieu l'injection de brome, et de - 2,5 V à B du côté droit.

V.5 - CALCUL DE LA CONCENTRATION D'IONS NEGATIFS

Pour pouvoir calculer le nombre d'ions négatifs présents par cm³, nous nous basons d'une part, sur la concentration de brome 80 qui est, nous le répétons, 10¹⁶ cm⁻³ et, d'autre part, sur une mesure de la température électronique. Celle-ci, relevée à l'emplacement des plaquettes en cuivre, a pour valeur 2800°K (figure 15a). Nous remarquons que la température électronique est plus basse que celle relevée dans une flamme normale. Cela est dû à la dilution du milieu par l'argon.

Nous utilisons alors l'expression :

$$\frac{n_e}{n_{br^-}} = \frac{1}{n_{br}} \cdot \frac{g_e g_{br^-}}{g_{br}} \cdot \left(\frac{2 \pi M_e k T_e}{h^2} \right)^{3/2} T_e^{3/2} \exp \left(- \frac{W}{kT_e} \right)$$

où

- n_e est la densité électronique,
- n_{br⁻} la concentration en ions négatifs de brome,
- n_{br} la concentration en atome de brome,
- g_e le poids statistique de l'électron,
- g_{br⁻} le poids statistique de l'ion négatif de brome,
- g_{br} le poids statistique de l'atome de brome,
- M_e la masse de l'électron,
- k la constante de Boltzmann,
- h la constante de Planck,
- T_e la température électronique,

et W l'énergie de liaison du bromé soit 3,5 eV,

ce qui donne

$$\frac{n_e}{n_{br^-}} = \frac{1}{10^{16}} \cdot \frac{2 \times 6}{4} \times 2,4125 \cdot 10^{15} T_e^{3/2} \exp \left(- \frac{40600}{T_e} \right)$$

soit :

$$\frac{n_e}{n_{br^-}} = 0,482 T_e^{3/2} \exp \left(- \frac{40600}{T_e} \right)$$

On obtient ainsi, pour T_e = 2800°K

$$\frac{n_e}{n_{br^-}} = 0,035$$

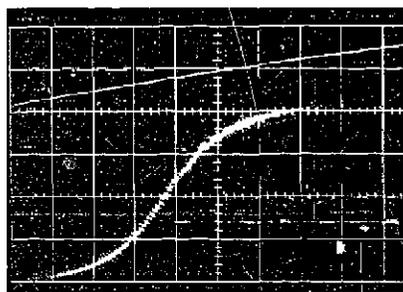


Fig - 1

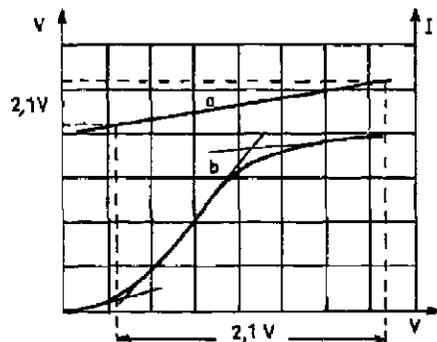


Fig - 2

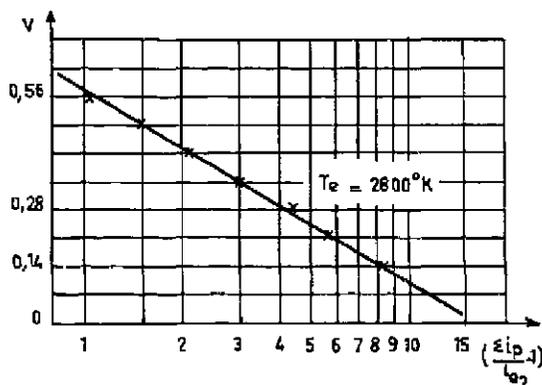


Fig - 3

- 1 - Oscillogramme
- 2_a - Dent de Scie
- 2_b - Caractéristique de Sondes
- 3 - Tracé Semi-Logarithmique

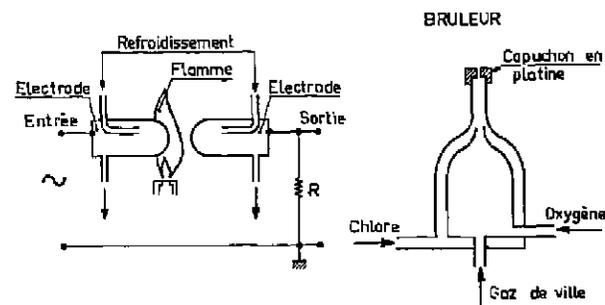
Figure 15 a : Flamme de gaz de Lacq et d'oxygène avec 30 % d'argon.

Ce résultat montre que, approximativement, 3,5 % des électrons restent libres. Nous pensons qu'étant données les erreurs inhérentes aux mesures, cette valeur est satisfaisante.

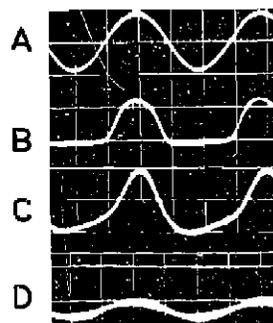
V.6 - TROISIEME METHODE : ANNULATION D'UN EFFET DE REDRESSEMENT

Comme nous l'avons montré dans le chapitre "Quelques généralités et problèmes relatifs aux flammes", il est facile d'obtenir un effet de redressement entre deux électrodes identiques et disposées de façon dissymétrique par rapport à une flamme alimentée en gaz de ville par exemple,

Cet effet étant intimement lié à la grande différence de mobilité entre les ions et les électrons, on peut donc prévoir que, lorsque les mobilités des charges électriques positives et négatives seront du même ordre de grandeur, cet effet disparaîtra [22] - [23]. Grâce au dispositif expérimental représenté sur la figure 16, la suppression de l'effet de redressement est mise en évidence.



OSCILLOGRAMME I



OSCILLOGRAMME II

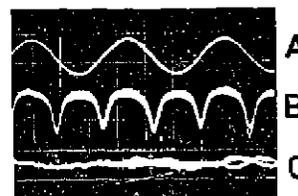


Figure 16

Deux électrodes en platine, de forme cylindrique et de 10 mm de diamètre, sont introduites, de façon dissymétrique, dans une flamme de gaz de ville, faiblement alimentée en oxygène, comme mentionné précédemment. Une tension alternative de quelques volts est alors appliquée aux électrodes et les mesures sont faites à l'aide d'un oscilloscope à deux faisceaux. Sur le premier faisceau, on envoie le signal de référence provenant directement du générateur B.F. et sur le deuxième, on observe la tension prélevée aux bornes de la résistance R.

Le brûleur conçu pour cette manipulation permet d'envoyer un gaz électro-négatif, le chlore dans le cas présent, dans la flamme sans modifier sa teneur en oxygène - gaz de ville. Les oscillogrammes I (A et B) montrent la tension de référence et le redressement obtenu à partir de cette tension ; les oscillogrammes C et D sont obtenus pour différents débits de chlore, l'oscillogramme D montrant que la présence d'une quantité suffisante de chlore fait disparaître l'effet de redressement. Ce résultat, de nouveau, ne peut être expliqué que par la formation massive d'ions négatifs Cl⁻ provenant de l'attachement des électrons de la flamme sur les atomes de chlore. Cet attachement a évidemment pour effet de diminuer fortement la mobilité des charges négatives et de la rendre pratiquement équivalente à celle des charges positives.

V.7 - ANNULATION D'UN EFFET DE REDRESSEMENT A DEUX ALTERNANCES

L'annulation de l'effet de redressement à deux alternances à l'aide de trois électrodes dont deux sont situées à la périphérie peut être également obtenue. L'oscillogramme II montre en A le signal de référence, en B le redressement obtenu et en C son annulation.

La détermination du nombre d'ions formés nécessite la connaissance de la densité électronique dans la flamme. En se référant à la même hypothèse que celle dont nous nous sommes servis dans la deuxième méthode relative à l'injection d'un gaz électro-négatif et radioactif, nous pouvons conclure que lorsque l'effet de redressement a disparu, la presque totalité des électrons a été attaché.

Ces trois méthodes ont donc montré qu'à partir d'une certaine quantité de gaz électro-négatif injecté dans la flamme, on obtient soit un palier en ce qui concerne les tensions mesurées, soit une disparition du redressement d'une tension alternative. Nous avons vérifié, fait important, que dans une même flamme, ces deux phénomènes se manifestent pour des injections quantitativement identiques de gaz électro-négatif.

A titre d'exemple, nous donnons encore sur la figure 17, la courbe a et les oscillogrammes ABCD dont il ressort nettement que, pour un débit de chlore de $4,5 \text{ cm}^3/\text{s}$, la tension atteint sa valeur maximale et le redressement disparaît. Il est également intéressant de constater que pour un débit de $3,5 \text{ cm}^3/\text{s}$ correspondant au coude inférieur de la courbe le redressement commence à disparaître (oscillogramme C).

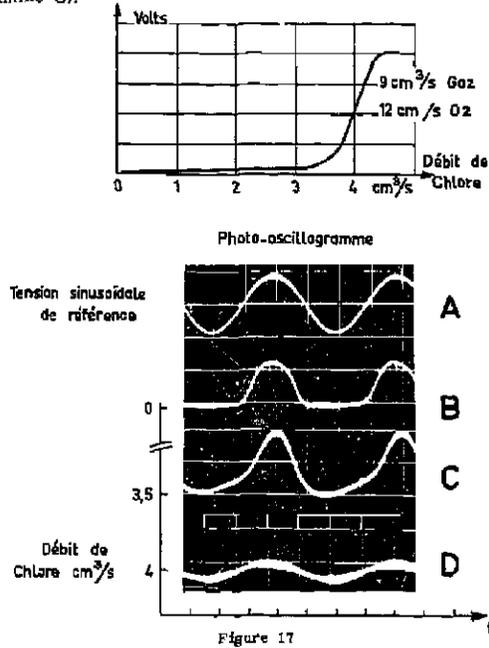


Figure 17

Comme la mise en évidence d'ions négatifs dans la flamme a eu lieu dans cette série d'expérience à pression atmosphérique, donc en présence d'une gaine thermique autour des électrodes de mesure, nous avons voulu contrôler si l'on retrouve encore ces ions négatifs lorsqu'ils sont aspirés dans une chambre où règne une faible pression. Dans ce cas la mesure s'effectue alors en absence de gaine thermique. Pour qu'il y ait concordance entre les mesures à faible et forte pression il faut que la concentration en ions négatifs que l'on retrouve dans la chambre dépende de nouveau, d'une part de la température de la surface en contact avec la flamme avant l'aspiration des charges électriques, et d'autre part de la quantité de gaz électro-négatif présent dans la flamme.

V.8 - QUATRIEME METHODE : TENDANCE A LA SYMETRIE DE CARACTERISTIQUES DE SONDÉS

Le dispositif expérimental, figure 18, est pratiquement le même que celui ayant servi à la mesure de la température électronique à faible pression. Il est muni d'un système de refroidissement de la chambre et surtout de la surface délimitant le petit orifice par lequel le gaz de la flamme est aspiré. La sonde même, précédemment constituée par un fil mince en platine, est remplacée par une électrode de surface relativement grande (1 cm^2). De cette façon lorsqu'une caractéristique tension-courant est relevée, on obtient encore un courant ionique relativement important, donc facilement mesurable dans nos conditions de travail. Il ne faut pas, en effet, oublier que le nombre de charges électriques aspirées est faible. Un tracé tension-courant, lorsque la surface autour de l'orifice en contact avec la flamme est maintenue à 500°K , est représenté sur la figure 19 (courbe a). Le courant électronique est alors de beaucoup supérieur au courant ionique.

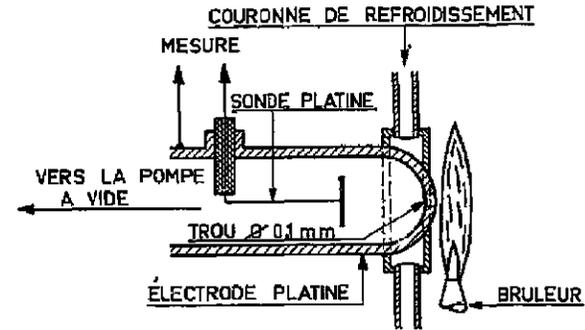
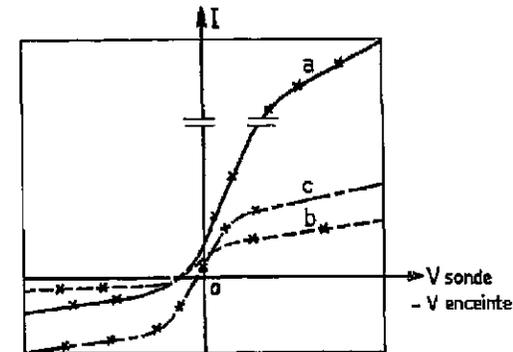


Figure 18 : Dispositif pour relever des caractéristiques tensions courants à faible pression.



Courbe a : surface à 500°K
 Courbe b : surface à 300°K
 Courbe c : surface à 500°K (avec injection de Chlore).

Figure 19 : Caractéristiques tensions courants.

Lorsqu'on effectue maintenant un refroidissement plus efficace (300°K) de la surface, on constate que le courant ionique a légèrement diminué, ce qui est dû à une combustion moins intense et par conséquent à une concentration de charges plus faible. Par contre le courant électronique est pratiquement tombé à la même valeur que le courant ionique, au lieu de varier dans les mêmes proportions (courbe b). Ce même résultat est obtenu mais d'une façon plus prononcée lorsque, exactement dans les mêmes conditions, on opère une injection de gaz électro-négatif (le chlore par exemple) dans la flamme à la place d'un refroidissement. On constate de plus que le courant ionique a augmenté d'un facteur 3 ce qui s'explique par une ionisation plus intense due à la présence du chlore (courbe c). Il découle de cette tendance à la symétrie des caractéristiques tensions-courants que les mobilités moyennes des charges positives et négatives sont du même ordre. Ces observations confirment à nouveau l'hypothèse de la formation massive d'ions négatifs.

Pour conclure ce chapitre, nous pensons avoir montré (ce qui constitue une des données principales pour l'interprétation de cet effet de température) que lorsqu'une surface, maintenue à une température inférieure à 100°C, se trouve en contact avec une flamme de gaz de ville, il se forme déjà autour d'elle, sans injection de gaz électro-négatif, une gaine dans laquelle il n'y a pratiquement plus d'électrons libres.

Toutes ces méthodes forment, nous le pensons, un nouvel outil d'investigation des gaz ionisés, et il n'est pas exclu que les mesures décrites dans ce chapitre mènent, à partir de la connaissance du taux d'attachement, à la détermination des mobilités et des concentrations de charges électriques.

Il est maintenant nécessaire d'étudier en détail d'une part, l'établissement et la valeur du potentiel flottant en tenant compte, d'une façon aussi précise que possible, des conditions expérimentales et d'autre part, de quelle façon ce potentiel dépend du pourcentage d'ions négatifs formés. Nous allons montrer que cette variation est une fonction logarithmique du pourcentage d'ions négatifs présents.

CHAPITRE VI

LE POTENTIEL FLOTTANT

VI.1 - GENERALITES

Nous considérerons, dans ce chapitre, un gaz ionisé globalement neutre ($n_+ = n_-$) dont chaque type de particules possède une distribution maxwellienne. Lorsqu'une surface S est introduite dans un tel milieu, elle acquiert un potentiel négatif par rapport au gaz ionisé.

Comme le rapport de masses entre les électrons et les ions est considérable, les premiers diffusent plus vite et, par conséquent, leur nombre atteignant la surface S avant l'équilibre est considérablement plus élevé que celui des ions. Nous savons, en effet, que la vitesse d'une particule d'une énergie donnée varie comme l'inverse de la racine carrée de sa masse.

Nous pensons que l'on peut décrire l'établissement du potentiel flottant autour d'une électrode en contact avec un tel milieu ionisé, et en l'absence d'un champ électrique extérieur, à partir du temps $t = 0$, de la façon suivante :

Dès l'établissement de l'ionisation, lorsqu'on allume une flamme par exemple, et grâce à leur agitation thermique désordonnée, les électrons et les ions, diffusent dans tous les sens, y compris vers l'électrode. Mais le flux d'électrons vers cette électrode est plus important que le flux d'ions. C'est pour cette raison que celle-ci commence à se charger négativement par rapport au gaz en s'entourant d'une gaine électrique. Le champ électrique ainsi créé agit de deux façons : tout d'abord, il va freiner et repousser les électrons de faible énergie. Ce sont surtout les électrons de la queue de distribution maxwellienne qui assureront la charge de l'électrode. Ensuite, il va accélérer les ions positifs présents dans la gaine ; le flux de ces charges limitant la valeur du champ électrique, l'équilibre sera atteint lorsque les deux flux seront égaux.

VI.2 - CALCUL DU POTENTIEL FLOTTANT EN ABSENCE DE COLLISION DANS LA GAINE

Pour calculer le potentiel flottant au cours d'un phénomène d'ionisation à faible pression, on admet généralement que les charges, avant leur collection par une électrode, n'ont pratiquement pas subi de collision dans la gaine électrique, ou, en d'autres termes, que leur libre parcours moyen est plus grand que cette gaine. Dans ce cas, le potentiel flottant, se calcule à partir de la vitesse d'agitation thermique des charges électriques selon l'expression :

$$V_f = -\frac{kT_e}{2e} \log \frac{T_0 M_+}{T_+ M_e} = -9,9 \cdot 10^3 T_e \log \frac{T_0 M_+}{T_+ M_e}$$

où e est la charge de l'électron, k la constante de Boltzmann, M_+ masse de l'ion, M_e la masse moyenne des ions positifs, T_0 la température des électrons en degrés Kelvin et T_+ la température des ions positifs en degrés Kelvin.

Par contre, lorsque les particules chargées subissent un grand nombre de collisions en traversant la gaine électrique, la vitesse dirigée des ions positifs vers la surface collectrice est fortement perturbée et leur flux s'en trouve diminué. Ce fait doit, en principe, entraîner une variation de la valeur du potentiel flottant. En effet, pour fixer les idées, examinons d'abord de quelle façon le potentiel flottant d'une électrode introduite dans une flamme sera influencé par les collisions des ions positifs dans la gaine électrique. On prendra une température électronique de 5500°K (mesurée), une température ionique de 500°K (température de la surface collectrice) et pour tous

les ions positifs un nombre de masse de 20 et une mobilité de 2 cm²/V.cm. En ne tenant pas compte des collisions dans la gaine, on trouverait :

$$V_i = - \frac{5500}{2 \cdot 11600} \cdot 2,3 \log \frac{5500 \cdot 20 \cdot 1840}{500} = - 3 \text{ volts}$$

VI.3 - CALCUL DU POTENTIEL FLOTTANT EN REGIME COLLISIONNEL

Avant de calculer le potentiel flottant en tenant compte cette fois-ci des collisions dans la gaine électrique, faisons d'abord l'hypothèse que lors de la combustion il n'y a pas de création de charges électriques près de l'électrode à 500°K dans l'épaisseur égale à cette gaine. Les charges doivent alors traverser une couche de gaz en subissant de nombreuses collisions avec des molécules neutres. Dans ce cas, il est évident que n'intervient plus, dans les calculs, la vitesse d'agitation thermique pour les ions positifs mais la vitesse dirigée. Précédemment, une chute de potentiel de 3 volts dans une gaine électrique d'épaisseur de l'ordre de 0,2 mm a été calculée. Cette valeur correspond à la longueur de Debye pour une température électronique de 5500°K et une densité de 3.10²³ cm⁻³, densité qui sera justifiée par la suite. Elle a permis de fixer les idées sur l'ordre de grandeur de cette chute, et, en se basant sur cette valeur dans le calcul qui suit, on peut déterminer la vitesse dirigée moyenne des ions dans la gaine électrique à l'aide de la relation :

$$v_i = \mu_i \frac{|V|}{d}$$

où μ_i est la mobilité des ions positifs, V la chute de potentiel dans la gaine et d son épaisseur, ce qui donne

$$v_i = \frac{2 \times 3}{0,02} = 300 \text{ cm/s}$$

Calculons maintenant le potentiel flottant en posant l'égalité des flux à l'équilibre :

$$F_i = F_e$$

soit :

$$n_i v_i = \frac{1}{4} n_e c_e \exp(eV/kT_e)$$

La densité ionique dans la gaine peut être considérée en première approximation comme celle du plasma, d'où, pour $n_i = n_e$,

$$V = \frac{kT_e}{e} \log \frac{4v_i}{c_e}$$

avec

$$c_e = \sqrt{\frac{6 kT_e}{\pi M_e}} = \sqrt{\frac{8 \times 1,38 \times 10^{-23} \times 5500}{\pi \times 9,1 \times 10^{-31}}} = 4,81 \cdot 10^5 \text{ m/s}$$

d'où

$$V = \frac{5500}{11600} \times 2,3 \times \log \frac{4 \times 3}{4,81 \times 10^5} = - 5 \text{ volts}$$

Cette dernière valeur, plus proche de la réalité, montre que dans le modèle collisionnel la chute de potentiel dans la gaine est passée de 3 volts à 5 volts.

La vitesse dirigée des ions de 300 cm/s a été calculée pour 3 volts et, de ce fait, est trop faible, mais comme la vitesse des ions n'intervient que par son logarithme dans le calcul du potentiel, ce dernier est très peu influencé par de légères variations de cette vitesse. Par itération, on obtient en fait - 4,78 volts.

VI.4 - CALCUL DU POTENTIEL FLOTTANT EN TENANT COMPTE DU GRADIENT DE DENSITE

Ce qui distingue souvent nos modèles à faible pression, où l'ionisation est obtenue par exemple par un champ électrique, de notre modèle à forte pression (flamme dans laquelle on introduit une paroi froide) est, abstraction faite des collisions dans la gaine électrique, le fait qu'il n'y ait pratiquement pas de gaine thermique entre les surfaces collectrices et le gaz même. L'absence d'une gaine thermique évite d'office l'établissement des différences de potentiel supplémentaire qui, autrement, peuvent prendre naissance grâce à la présence d'un gradient de densité de charges électriques (dû aux recombinaisons, ou à une combustion réduite dans la gaine thermique dont l'épaisseur est très supérieure à celle de la gaine électrique).

Il est intéressant maintenant de déterminer, dans le cas d'une flamme, la chute totale de potentiel, en considérant le gradient de densité électronique à partir du sein de la flamme jusqu'à une électrode maintenue à 500°K. Pour faire ainsi, tout d'abord, la densité électronique au sein de la flamme a été obtenue au niveau de deux sondes grâce à une mesure de la conductivité électronique σ suivant la relation :

$$\sigma = \frac{J}{E} = (n_e)_0 e \mu_e$$

où J désigne la densité de courant traversant la flamme et E le champ électrique mesuré à l'aide de deux sondes flottantes. A partir des valeurs suivantes :

$$\mu_e = 3000 \text{ cm}^2/\text{V.s} \quad E = 1,5 \text{ V/cm} \quad \text{et} \quad J = 2 \times 10^{-8} \text{ A/cm}^2$$

on trouve, pour la densité électronique, loin des parois :

$$(n_e)_0 = 2,77 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$$

Nous choisissons la valeur moyenne de 3.10²¹ cm⁻³.

Ensuite, toujours à l'aide de ces deux sondes, maintenues à 500°K, une caractéristique tension courant a été tracée permettant la mesure du courant de saturation ionique qui, de son côté, permet de connaître les concentrations ioniques et électroniques à proximité immédiate des sondes. Il a été effectivement relevé dans ces conditions un courant de saturation de 4.10⁻⁸ A/cm². Compte tenu du fait que le libre parcours moyen des ions est très faible devant l'épaisseur de la gaine électrique, il est possible de négliger la chute de potentiel dans le dernier libre parcours moyen λ .

On a alors :

$$j_i = \frac{1}{4} (n_i)_\lambda (c_i)_\lambda e = \frac{1}{4} (n_e)_\lambda (c_e)_\lambda e$$

avec

$$(c_i)_\lambda = \sqrt{\frac{8k(T_i)_\lambda}{\pi M_i}} \quad \text{et} \quad (c_e)_\lambda = \sqrt{\frac{8k(T_e)_\lambda}{\pi M_e}}$$

où j_i est la densité de courant de saturation ionique, $(n_e)_\lambda$ et $(n_i)_\lambda$ respectivement la densité électronique et ionique à la distance λ de la paroi, $(c_e)_\lambda$ et $(c_i)_\lambda$ les vitesses moyennes d'agitation thermique des électrons et des ions à cette même distance.

On obtient ainsi pour des ions de masse atomique 20 et de température 500°K :

$$(c_e)_\lambda = \sqrt{\frac{8 \times 1,38 \times 10^{-23} \times 500}{\pi \times 20 \times 1840 \times 9,1 \times 10^{-31}}} = 7,24 \times 10^5 \text{ m/s}$$

ce qui donne :

$$(n_i)_\lambda = \frac{4 \times 4 \cdot 10^{-8}}{1,6 \times 10^{-19} \times 7,2 \times 10^5} = 1,38 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$$

et pour les électrons de température 5500°K

$$(c_e)_\lambda = \sqrt{\frac{8 \times 1,38 \times 10^{-23} \times 5500}{\pi \times 9,1 \times 10^{-31}}} = 4,81 \times 10^5 \text{ m/s}$$

et

$$(n_e)_h = \frac{4 \times 4 \times 10^4}{1,6 \times 10^{19} \times 4,61 \times 10^7} = 2,17 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$$

Pour calculer la chute totale de potentiel au sein de la flamme à la paroi, nous appliquons la loi de Boltzmann aux électrons, en utilisant la valeur mesurée, pour $(n_e)_h$, de $3 \cdot 10^4$ électrons par cm^3 au centre de la flamme et celle calculée, pour $(n_e)_h$, de $2,17 \cdot 10^4$ électrons par cm^3 à la paroi.

$$(n_e)_h = (n_e)_0 \exp(eV/kT_e)$$

$$V = \frac{kT_e}{e} \text{Log} \frac{(n_e)_h}{(n_e)_0}$$

$$V = \frac{5500}{11600} \times 2,3 \times \text{log} \frac{2,17 \times 10^4}{3 \times 10^4}$$

$$V = -5,6 \text{ volts}$$

Pour conclure, il semble que cette dernière valeur de 5,6 volts se rapproche le plus de la réalité étant donné que, dans ce calcul, nous avons utilisé le résultat de deux mesures physiques, celle de la conductivité au centre du plasma et celle du courant de saturation ionique.

VI.5 - CALCUL DU POTENTIEL FLOTTANT EN FONCTION DU POURCENTAGE D'IONS NEGATIFS PRESENTS

Si l'on tient compte de la présence dans le gaz ionisé d'ions négatifs de densité n_- et de température T_- , la neutralité du gaz ionisé s'écrit, "loin des parois" :

$$n = n_+ = n_+ + n_- \quad (1)$$

L'égalité des flux positifs et négatifs sur les parois

$$F_+ = F_- + F_e \quad (2)$$

soit en posant $n_- = \alpha n_+$ et $n_+ = (1 - \alpha) n_+$, α étant le pourcentage d'ions négatifs présents

$$\frac{nc_+}{4} = (1 - \alpha) \frac{nc_+}{4} \exp(eV/kT_+) + \alpha \frac{nc_-}{4} \exp(eV/kT_-) \quad (3)$$

ou

$$c_+ = (1 - \alpha) c_+ \exp(eV/kT_+) + \alpha c_- \exp(eV/kT_-) \quad (4)$$

Pour $\alpha = 0$, (4) donne $c_+ = c_+ \exp(eV/kT_+)$

et l'on retrouve la valeur de V_f donnée au début de ce chapitre.

Pour $\alpha = 1$, (4) donne $c_+ = c_- \exp(eV/kT_-)$ soit

$$V = \frac{kT_-}{e} \text{Log} \frac{c_+}{c_-}$$

et comme c_+ est peu différent de c_- , nous obtenons V voisin de zéro.

Nous allons montrer que l'on peut négliger le flux d'ions négatifs F_- devant celui d'électrons tant que α ne prend pas des valeurs trop voisines de 1.

Posons à cet effet :

$$F_-/F_e = Y \gg 1 \quad (5)$$

En remplaçant F_+ et F_- par leurs expressions respectives, il vient

$$(1 - \alpha) \frac{nc_+}{4} \exp(eV/kT_+) = \gamma \alpha \frac{nc_-}{4} \exp(eV/kT_-) \quad (6)$$

soit

$$\frac{1 - \alpha}{\alpha} = \gamma \frac{c_-}{c_+} \exp(eV/kT_-)$$

Preons le logarithme de chaque membre. Nous obtenons :

$$\text{Log} \frac{1 - \alpha}{\alpha} = \text{Log} \gamma \frac{c_-}{c_+} + \frac{eV}{kT_-} - \frac{eV}{kT_+}$$

$$\text{Log} \frac{1 - \alpha}{\alpha} = \text{Log} \gamma \frac{c_-}{c_+} + \frac{eV}{k} \frac{T_+ - T_-}{T_+ T_-} \quad (7)$$

Nous avons vu que $1 \leq \alpha \leq 0$ entraîne $V \leq V \leq 0$, V est donc toujours négatif ou voisin de zéro. On peut alors majorer le second membre de l'égalité (7) en faisant $V = 0$. Il vient ainsi :

$$\text{Log} \frac{1 - \alpha}{\alpha} \geq \text{Log} \gamma \frac{c_-}{c_+}$$

$$\frac{1 - \alpha}{\alpha} \geq \gamma \frac{c_-}{c_+}$$

$$\alpha \leq \frac{1}{\gamma \frac{c_-}{c_+} + 1} = \frac{c_+}{\gamma c_- + c_+}$$

$$1 - \alpha \geq 1 - \frac{c_+}{\gamma c_- + c_+} = \frac{\gamma c_-}{\gamma c_- + c_+} \approx \gamma \frac{c_-}{c_+} = \gamma \left(\frac{T_- M_+}{T_+ M_-} \right)^{1/2} \quad (8)$$

Ainsi, tant que la relation (8) est vérifiée, c'est-à-dire tant que α n'est pas trop voisin de l'unité, la relation (4) se simplifie et devient :

$$c_+ = (1 - \alpha) c_+ \exp(eV/kT_+)$$

ou

$$\frac{eV}{kT_+} = \text{Log} \left(\frac{1}{1 - \alpha} \cdot \frac{c_+}{c_+} \right) = \text{Log} \frac{c_+}{c_+} - \text{Log} (1 - \alpha)$$

ce qui donne enfin :

$$V = V_f - \frac{kT_+}{e} \text{Log} (1 - \alpha) \quad (9)$$

Du fait de cette variation logarithmique du potentiel de la paroi, l'action d'un attachement des électrons sur des particules lourdes ne se fait vraiment sentir que pour des valeurs de α très proches de 1.

Calculons par exemple la valeur de α pour laquelle le potentiel flottant de la paroi est égal à $V_f/2$, V_f étant la valeur du potentiel flottant pour $\alpha = 0$. L'équation (9) nous donne :

$$V = V_f/2 = V_f - \frac{kT_+}{e} \text{Log} (1 - \alpha)$$

ou

$$\frac{kT_+}{e} \text{Log} (1 - \alpha) = \frac{V_f}{2}$$

En remplaçant V_f par son expression, il vient :

$$\frac{kT_+}{e} \text{Log} (1 - \alpha) = \frac{1}{2} \frac{kT_+}{e} \text{Log} \frac{c_+}{c_-}$$

ou

$$\text{Log}(1 - \alpha) = \frac{1}{2} \text{Log} \frac{c_1}{c_2}$$

soit

$$1 - \alpha = \left(\frac{c_1}{c_2}\right)^{1/2} = \left(\frac{T_2 M_2}{T_1 M_1}\right)^{1/4} \quad (10)$$

En choisissant un nombre de masse moyen de 20 pour les ions positifs et une température électronique de 5500°K, (avec $k = 1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J}^\circ/\text{K}$ et $e = 1,6 \cdot 10^{-19} \text{ C}$) on obtient, au voisinage d'une paroi à 500°K :

$$V_f = - 3 \text{ volts}$$

Les ions négatifs étant des ions Cl^- , ($M_1/M_2 = 35,5 \times 1840$) en choisissant $\gamma = 10$, nous pourrions négliger F_1 devant F_2 tant que :

$$1 - \alpha \geq 0,0118 \quad \text{ou} \quad \alpha \leq 0,988$$

Le domaine de validité de cette approximation est donc très large. La figure 20 représente la variation du potentiel de la paroi en fonction du pourcentage d'ions négatifs présent α . On y voit clairement la lente variation de V pour des valeurs de α peu voisines de 1. En particulier, la relation (10) nous permet de calculer la valeur de α pour laquelle $V = V_f/2$. Nous obtenons ici :

$$1 - \alpha = 0,04 \quad \text{ou} \quad \alpha = 0,96$$

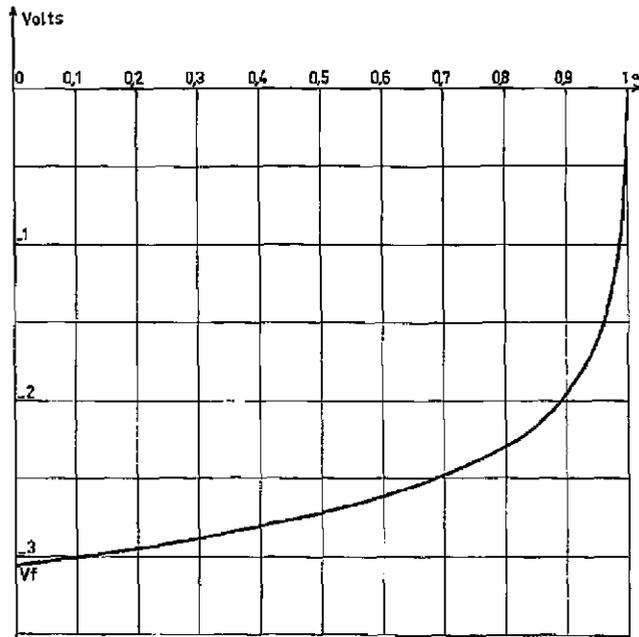


Figure 20

CHAPITRE VII

INTERPRÉTATION FINALE DU PHÉNOMÈNE

VII.1 - EXISTENCE DE DIFFÉRENCES DE POTENTIEL AU SEIN DE LA FLAMME

Au cours du cinquième chapitre, il a été établi qu'il doit se produire un attachement important des électrons sur les composants électro-négatifs contenus dans la flamme lorsque celle-ci est en contact avec une surface "froide". L'action de la température sur cet attachement est renforcée par une injection de gaz électro-négatif dans la flamme. Des considérations théoriques nous ont montré que pratiquement tous les électrons doivent former des ions négatifs avant que ce changement de masse des charges négatives ainsi obtenu n'influe sur la valeur du potentiel flottant. L'existence d'électrons "chauds" dans certaines flammes a été également démontrée.

En nous basant alors sur ces données, nous allons étudier, dans ce prochain chapitre, la distribution de potentiel électrique au sein même d'une flamme de méthane et d'oxygène contenue entre deux électrodes maintenues à des températures différentes, dans le cas où près de l'une d'elles l'injection d'un gaz électro-négatif est opérée [25] - [26].

Cette étude s'est révélée être nécessaire pour la raison suivante : le calcul du potentiel flottant donne, comme valeur la plus probable, - 5,6 V dans le cas d'une électrode maintenue à 500°K, et comme nous savons maintenant que l'électrode "froide" est au potentiel du gaz même, grâce à l'attachement complet des électrons sur les composants électro-négatifs, on devrait observer des tensions maximales de 5,6 V à la place des 2,8 V mesurés.

Par conséquent, il doit se produire dans le volume de gaz contenu entre les deux électrodes, des différences de potentiel qui, tout compte fait, se retranchent des 5,6 V calculés.

On pourrait alors envisager la distribution du potentiel électrique entre les deux électrodes, en tenant compte des dernières remarques, de la façon suivante (figure 21).

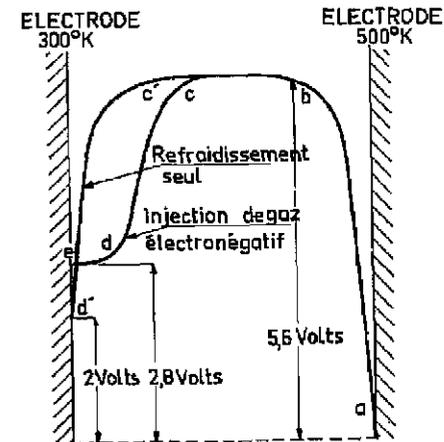


Figure 21

D'abord l'électrode à 500°K accuse un potentiel négatif par rapport au gaz ionisé de 5,6 volts (région à fort champ électrique, tronçon a - b de la courbe) ; ensuite, il y a une région équipotentielle du fait qu'aucun des paramètres, tels que la température de la flamme, la température des électrons et celle des ions, ne varie (tronçon b - c). Finalement, tout près de l'électrode à 300°K il y a une couche de gaz (tronçon d - e) ne comportant plus d'électrons libres, à cause de l'injection d'un gaz électro-négatif. La "jonction" entre cette couche de gaz (e - d) et la zone (c-b) s'opère par diffusion. Dans cette région (tronçon c - d) la concentration en ions négatifs diminue progressivement. L'électrode est au potentiel électrique de la couche (d - e) et comme on ne mesure, nous le répétons, que 2,8 volts entre ces électrodes, la chute de potentiel dans cette zone de transition doit être de : 5,6 volts - 2,8 volts = 2,8 volts. Dans le cas d'un refroidissement, seule la région (c - d - e) devient (c' - d') et l'on ne mesure plus que 2,2 volts.

VII.2 - DISTRIBUTION DE LA CONCENTRATION EN IONS NEGATIFS

La concentration probable en ions négatifs entre les deux électrodes est schématisée sur la figure 22 mais nous insistons sur le fait qu'elle n'est connue avec une certaine précision qu'à proximité immédiate de l'électrode à 300°K. Toutefois, au sein de la flamme, étant donné que la température est beaucoup plus élevée, la concentration en ions négatifs est sensiblement plus faible mais non négligeable. Il est raisonnable d'admettre qu'elle croît de nouveau à proximité de l'électrode à 500°K.

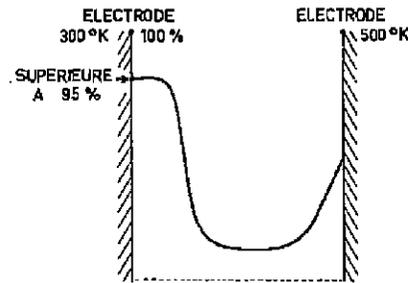


Figure 22 : Allure de la distribution de la concentration en ions négatifs.

La vraie difficulté de la détermination de la concentration en ions négatifs, dans de telles conditions, est due d'une part, à la présence d'une gaine thermique importante et d'autre part au fait que, lors des mesures des courants de saturation d'ion positifs à l'aide de sonde double, les sondes doivent être obligatoirement maintenues à une température telle qu'une émission électronique soit exclue. Il faut donc les refroidir, ce qui, par voie de conséquence, refroidit aussi la partie de la flamme dans laquelle la mesure est effectuée. Une telle mesure ne nous renseigne avec suffisamment de précision sur la concentration en ions positifs que dans le voisinage immédiat des sondes mais non plus "loin". Autrement la connaissance de cette concentration n_+ et de celle des électrons n_e permettrait de déduire, en considérant le milieu comme électriquement neutre, la concentration en ions négatifs n_- de la façon suivante :

$$n_+ = n_+ + n_- \quad \text{ou} \quad n_- = n_+ - n_+$$

Comme il est actuellement relativement facile d'obtenir la concentration électronique dans la flamme à partir d'une mesure de la conductivité électrique σ à l'aide de l'expression :

$$\sigma = \frac{J}{E} = n_e \cdot \mu_e \cdot e$$

la vraie difficulté réside donc, nous le répétons, dans la détermination de la concentration en ions positifs.

VII.3 - CALCUL DE LA CHUTE DE POTENTIEL DANS LA ZONE D'INJECTION

Nous nous proposons, maintenant, de compléter l'analyse de la distribution du potentiel électrique et de calculer la chute de potentiel dans la zone d'injection du gaz électro-négatif. Pour ce faire, nous considérons un gaz contenant des électrons, des ions positifs et des ions négatifs à une seule charge (indices respectifs e_+ , $+$ et $-$). Dans un régime collisionnel, l'expression des flux de particules pour chacune des espèces i (de densité n_i et de coefficient de diffusion D_i), s'écrit

$$F_e = - n_e D_e [-\nabla\phi + \nabla \text{Log } n_e]$$

$$F_+ = - n_+ D_+ [-\tau \nabla\phi + \nabla \text{Log } n_+]$$

$$F_- = - n_- D_- [+ \tau \nabla\phi + \nabla \text{Log } n_-]$$

où ϕ est le potentiel électrique rendu sans dimension par rapport à l'énergie d'agitation thermique des électrons,

soit

$$\phi = \frac{eV}{kT_e}$$

Nous avons posé

$$\tau = \frac{T_+}{T_e} = \frac{T_-}{T_e} > 1$$

et les relations $\frac{D_i}{\mu_i} = \frac{kT_i}{e}$ nous ont permis d'éliminer les mobilités μ_i .

L'égalité $F_+ = F_e + F_-$ conduit, après substitution, à :

$$\nabla\phi = \frac{\nabla n_e + \epsilon_+ \nabla n_+ - \epsilon_- \nabla n_-}{n_e + \tau \epsilon_+ n_+ + \tau \epsilon_- n_-}$$

avec

$$\epsilon_{\pm} = \frac{D_{\pm}}{D_e} \ll 1$$

Si la zone d'injection est suffisamment loin des parois et si les gradients de densité ne sont pas trop grands, la neutralité est maintenue en tout point, ce qui donne, en éliminant $n_+ = n_e - n_-$,

$$\nabla\phi = \frac{(1 - \epsilon_+) \nabla n_e + (\epsilon_+ - \epsilon_-) \nabla n_-}{(1 - \epsilon_+ \tau) n_e + (\epsilon_+ + \epsilon_-) \tau n_-}$$

Etant donné que $\epsilon_{\pm} \ll 1$ et comme ϵ_+ et ϵ_- sont très voisins, on peut simplifier cette formule et obtenir

$$\nabla\phi = \frac{\nabla n_e}{n_e + \frac{\mu_+ + \mu_-}{\mu_e} n_-}$$

Tant que la densité électronique n'est pas trop faible, la loi de Boltzmann est vérifiée. Dans tous les cas, la chute de tension dans cette zone de transition s'obtient par intégration. Si l'attachement est complet, la densité électronique varie de $(n_e)_0$ à 0. La relation précédente est facilement intégrable si l'on suppose la densité d'ions positifs constante et égale à $(n_+)_0$, mais également si l'on admet une variation de densité d'ions positifs qui aurait lieu dans une région où la densité électronique est encore élevée, la densité d'ions positifs restant constante par la suite et égale à $(n_+)_0$, où l'indice l réfère à l'électrode froide. On a alors, tous calculs faits, pour la zone de transition,

$$\Delta\phi = \phi_{n_e=0} - \phi_{n_e=(n_e)_0} = \text{Log} \frac{(n_e)_0}{(n_e)_0} + \text{Log} \left[\frac{\mu_+ + \mu_-}{\mu_e} \right]$$

Au voisinage immédiat d'une paroi plongée dans la région où $n_0 = 0$, l'égalité des flux des particules négatives et positives, de masses peu différentes, est facilement assurée par une très faible chute de potentiel que l'on peut négliger.

Calculons $\Delta\varphi$ en supposant que la densité d'ions positifs n_+ reste constante.

$$(\Delta\varphi)_{a, -ctc} = \text{Log} \left[\frac{\mu_+ + \mu_-}{\mu_+} \right]$$

avec

$$\mu_+ = \mu_- = \mu$$

$$(\Delta V)_{a, -ctc} = \frac{kT_0}{e} \text{Log} \frac{2\mu}{\mu_+}$$

$$(\Delta V)_{a, -ctc} = \frac{5500}{11800} \cdot 2,3 \text{ log} \frac{2 \times 2}{3000}$$

$$(\Delta V)_{a, -ctc} = - 3,14 \text{ volts}$$

Des mesures au voisinage de la zone d'injection ont mis en évidence une augmentation de la densité d'ions positifs dans un rapport de 1 à 3 (zone d - d', figure 23). Ceci conduit à une différence de potentiel de :

$$\frac{kT_0}{e} \left| \text{Log} \frac{1}{3} \right| = \frac{5500}{11800} \cdot 2,3 \cdot \text{log} 3 = 0,52 \text{ volts}$$

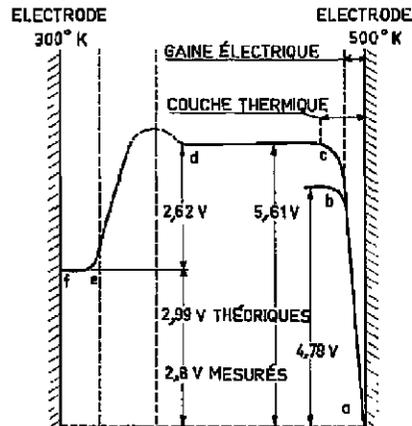


Figure 23

La chute totale de tension dans la zone électro-négative est alors :

$$3,14 - 0,52 = 2,62 \text{ volts.}$$

VII. 4 - SYNTHÈSE DES RESULTATS : DISTRIBUTION DU POTENTIEL

Cette même figure montre la distribution de potentiel qui en résulte, entre les deux électrodes a - b : gaine électrique, a - b - c : couche thermique, c - d : zone équipotentielle, d - e : zone de transition, e - f : zone d'ions positifs et négatifs,

Au voisinage de la paroi froide, où l'injection est réalisée, il est difficile de préciser l'allure de la distribution du potentiel électrique (qui dépend de la loi de variation de la densité électronique) bien que la chute totale, qui ne dépend que des conditions aux limites, soit connue. Nos calculs conduisent à une tension entre électrodes de : $5,6 - 2,8 = 2,8$ volts, la valeur effective mesurée étant 2,8 volts.

CONCLUSION

L'effet de température traité dans ce travail a servi de base à un certain nombre d'investigations aussi bien sur le plan expérimental que théorique ; il en ressort tout d'abord que l'on peut observer des différences de potentiel importantes entre deux électrodes maintenues à des températures différentes et en contact avec des milieux ionisés tels que des vapeurs de mercure, de la vapeur d'eau, des flammes. Ces valeurs sont bien trop fortes pour pouvoir être justifiées par un simple effet de refroidissement du gaz.

Nous avons ensuite montré que, dans le cas de la flamme, la température électronique peut dépasser de beaucoup celle du milieu même. De nombreuses mesures effectuées dans différentes flammes et dans des conditions expérimentales bien distinctes ne laissent à notre avis plus aucun doute sur l'existence de ces électrons "chauds". Nous pensons pouvoir affirmer que les valeurs des températures électroniques déduites des caractéristiques tension courant correspondent à une réalité physique. En effet, on retrouve dans la partie de la flamme où une thermalisation des électrons a certainement eu lieu (loin du cône de réaction) une température électronique égale à celle de la flamme. De plus, les mesures de température électronique obtenues à partir de charges électriques en provenance de la flamme et aspirées dans une chambre sous vide partiel, c'est-à-dire effectuées dans des conditions telles que l'application des expressions classiques est valable, se recourent presque parfaitement avec les valeurs relevées à forte pression. Il faut encore mentionner que cet échauffement des électrons a seulement lieu dans certaines flammes, fait qui nous a permis de reconnaître le rôle important que jouent les hydrocarbures. Nous estimons toutefois, qu'il serait nécessaire d'entreprendre des études beaucoup plus approfondies que celles mentionnées au début de ce travail, pour connaître de façon sûre les processus physico-chimiques et électriques qui interviennent.

Il ressort également de ce travail que la formation massive d'ions ou de gouttelettes négatives a lieu lorsqu'une surface "froide" est en contact avec les milieux ionisés considérés. Nous aimerions insister sur le fait que si l'existence d'ions négatifs dans les flammes est connue, l'accroissement considérable de leur densité par simple contact avec une surface refroidie a été mis en évidence au cours de nos travaux. Une étude théorique nous a permis de montrer de quelle façon la formation massive d'ions négatifs agit sur la valeur du potentiel flottant d'une électrode. Il découle du calcul que la variation du potentiel d'une telle électrode est une fonction logarithmique du pourcentage d'électrons attachés sur les particules neutres. La vérification de la présence de charges négatives lourdes a été obtenue à l'aide de méthodes et dispositifs expérimentaux nouveaux dans lesquels leur mobilité a pu être comparée à celle des ions positifs. Ces expériences ont permis d'obtenir :

- l'annulation du potentiel flottant,
- la quasi symétrie des caractéristiques tension courant tracées à l'aide de sondes électrostatiques à faible pression et à la pression atmosphérique,
- l'annulation d'un effet de redressement,
- la concentration d'ions négatifs dans une flamme en présence d'un gaz électro-négatif servant en même temps de traceur radioactif.

En ce qui concerne les applications pratique de cet "effet de température", il n'est pas exclu qu'il pourrait être utilisé dans le domaine de la conversion d'énergie ionisante en électricité, surtout le jour où l'on saura obtenir des milieux fortement ou totalement ionisés, peut-être grâce à la fusion thermonucléaire. Mais déjà à l'heure actuelle, ce mode de conversion est parfaitement valable pour permettre le contrôle de la combustion des gaz.

Des expériences entreprises dans ce but ont montré que de faibles variations du mélange gazeux entraînent des variations notables du courant électrique obtenu.

Nous aimerions encore mentionner qu'à l'aide d'un dispositif expérimental faisant appel à l'ionisation de vapeurs de mercure par haute fréquence, des courants de l'ordre de 1 A sous une tension de 35 V ont été obtenus avec un rendement de conversion voisin de 10 %.

Le dispositif expérimental ayant servi à mettre en évidence cet effet dans un réacteur permet par exemple de suivre l'évolution de combustibles nucléaires au cours du fonctionnement. On pourrait alors étalonner l'appareil pour déterminer le flux de neutrons dans le réacteur. Par ailleurs, un certain nombre de ces éléments disposés en des points déterminés permettrait de connaître à tout moment la puissance du réacteur.

Pour terminer, nous pensons avoir interprété cet "effet de température" grâce, d'une part, aux expériences imaginées et, d'autre part, à des considérations théoriques.

RÉFÉRENCES

- [1] F.A. LINDEMANN - Phil. Mag., 6, 38, 659 (1919).
- [2] M.N. SAHA - Phil. Mag., 6, 40, 473 et 809 (1920).
- [3] H. BEHRENS - Naturwiss. 38, 187 (1951).
- [4] H.E. CALCOTE - Proc. 3ème Symp. Combustion, Madison 1948, p. 245.
- [5] A.G. GAYDON et H.G. WOLFHARD - Proc. Roy. Soc. A 205, 118 (1951).
- [6] A. VON ENGEL et J.R. COZENS - Proc. Phys. Soc. (London) 82, 85, (1963).
- [7] S. KLEIN - C.R. Acad. Sc. Paris, 254 (1962) p 1946.
- [8] H.E. CALCOTE - Proc. 8ème Symp. Combustion, Pasadena 1960, p. 184.
- [9] J.T. KINBARA, J. NAKAMURA et H. IKEGAMI - Proc. 7ème Symp. Combustion, Oxford (1958) p. 263.
- [10] S. KLEIN - C.R. Acad. Sc. Paris, 251 (1960), p. 657.
- [11] S. KLEIN - Ionization Phenomena in Gases, Munich (1961), p. 810.
- [12] S. KLEIN et J. PREVE - Journal de Physique, Paris 1962, n° 8-9, p. 588.
- [13] S. KLEIN - Conf. Central Electricity Research Laboratories, Angleterre (1962).
- [14] S. KLEIN - C.R. Acad. Sc. Paris, 256 (1962), p. 2767.
- [15] I. LANGMUIR et H.M. MOTT-SMITH - Physical Review, 28 (1926), p. 727.
- [16] E.O. JOHNSON et L. MALTER - Physical Review 80 (1950), p. 58.
- [17] A. VON ENGEL - Ionized Gases, Oxford (1965), p. 299.
- [18] R. AHRABI et S. KLEIN - C.R. Acad. Sc. Paris 256 (1964), p. 3228.
- [19] J. DEBIESSE et S. KLEIN - C.R. Acad. Sc. 259 (1964), p. 3470.
- [20] J. DEBIESSE, S. KLEIN et P. KRAUS - C.R. Acad. Sc. 260, (1965), p. 465.
- [21] J. DEBIESSE, A. VON ENGEL et S. KLEIN - C.R. Acad. Sc. 263 (1965), p. 1121.
- [22] S. KLEIN et A. ELBAZ - C.R. Acad. Sc. 263 (1966), p. 316.
- [23] J. DEBIESSE et S. KLEIN - Nature, Angleterre, Vol. 212, 5069 (1966) p. 1405.
- [24] S. KLEIN et P. KRAUS - C.R. Acad. Sc. 263 (1966), p. 1104.
- [25] S. KLEIN - C.R. Acad. Sc. 263 (1966), p. 1211.
- [26] S. KLEIN et A. SOLBES - C.R. Acad. Sc. 264 (1967), p. 927.

BIBLIOGRAPHIE

- J.L. DELCROIX - Physique des Plasmas, Tome 1-2, 1963-1966.
A. VON ENGEL - Ionized Gases, 1965.
L.B. LOEB - Basic Processes of Gaseous Electronics, 1961.
R. JANCEL et KAHAN Th - Electrodynamique des Plasmas, 1963.
A.G. GAYDON et H.G. WOLFHARD - Flames, 1960.
R. MAVRODINEANU et H. BOITEUX - Flame Spectroscopy, 1965.

FIN