

(19)



(11)

EP 3 560 299 B1

(12)

FASCICULE DE BREVET EUROPEEN

(45) Date de publication et mention
de la délivrance du brevet:

17.08.2022 Bulletin 2022/33

(21) Numéro de dépôt: **17832277.2**

(22) Date de dépôt: **21.12.2017**

(51) Classification Internationale des Brevets (IPC):
H05H 1/24 (2006.01)

(52) Classification Coopérative des Brevets (CPC):
H05H 1/246

(86) Numéro de dépôt international:
PCT/FR2017/053791

(87) Numéro de publication internationale:
WO 2018/115774 (28.06.2018 Gazette 2018/26)

(54) **RÉACTEUR PLASMA DE DBD**

DBE-PLASMAREAKTOR

DBD PLASMA REACTOR

(84) Etats contractants désignés:

**AL AT BE BG CH CY CZ DE DK EE ES FI FR GB
GR HR HU IE IS IT LI LT LU LV MC MK MT NL NO
PL PT RO RS SE SI SK SM TR**

(30) Priorité: **22.12.2016 FR 1663220**

(43) Date de publication de la demande:
30.10.2019 Bulletin 2019/44

(73) Titulaires:

- **Université de Pau et des Pays de l'Adour
64000 Pau (FR)**
- **Centre National de la Recherche Scientifique -
CNRS
75016 Paris (FR)**

(72) Inventeurs:

- **CLEMENT, Franck, Jean, Louis
64100 Bayonne (FR)**

- **MARLIN, Laurent, Christian, Noël
65690 Barbazan-Debat (FR)**
- **MANGIN, Michel, Patrick, Sylvestre
64160 Cosledaa (FR)**
- **HELD, Bernard
17000 La Rochelle (FR)**
- **GIRARD-SAHUN, Fanny
64000 Pau (FR)**

(74) Mandataire: **Marks & Clerk France
Immeuble "Visium"
22, avenue Aristide Briand
94117 Arcueil Cedex (FR)**

(56) Documents cités:
**WO-A1-2007/105428 WO-A2-2005/125286
CN-A- 105 491 774 US-A1- 2002 187 066
US-A1- 2012 063 966 US-A1- 2014 162 338**

EP 3 560 299 B1

Il est rappelé que: Dans un délai de neuf mois à compter de la publication de la mention de la délivrance du brevet européen au Bulletin européen des brevets, toute personne peut faire opposition à ce brevet auprès de l'Office européen des brevets, conformément au règlement d'exécution. L'opposition n'est réputée formée qu'après le paiement de la taxe d'opposition. (Art. 99(1) Convention sur le brevet européen).

Description

Domaine technique

[0001] La présente invention concerne un réacteur plasma de décharge à barrière diélectrique pour la production de plasma froid à pression atmosphérique.

[0002] L'invention trouve notamment application dans les domaines suivants : le biomédical, la stérilisation, la médecine, la dermatologie, la cosmétique, le traitement de matériaux, la fonctionnalisation de surface ou de dépôt, la dépollution, l'agro-alimentaire, la germination, l'éclairage, la commutation rapide, la modification d'écoulement, la détection ou encore la métrologie de nanoparticules.

Technique antérieure

[0003] Les décharges à barrière diélectrique (DBD) sont connues depuis longtemps, notamment pour leur capacité à générer des plasmas froids hors équilibre à des pressions élevées en évitant la transition vers un régime d'arc.

[0004] Des exemples de réacteurs pour la génération de décharges à barrière diélectrique sont divulgués dans les documents CN105491774 A, WO2005/125286 A2, WO2007/105428 A1, US2014/0162338 A1 et US2002/0187066 A1.

[0005] Les DBD sont souvent caractérisées par des structures de plasma non homogènes de type filamentaire. Cependant, la nature non homogène et filamentaire du plasma peut être inadéquate pour certaines applications, par exemple dans le cas de certains traitements de surface où il est important que la surface soit traitée de manière uniforme.

[0006] De nombreux travaux ont été consacrés à la recherche de conditions de DBD dans lesquelles le plasma pouvait rester homogène à pression atmosphérique. Toutefois, ces conditions sont assez drastiques, car elles nécessitent l'utilisation de gaz rares comme l'hélium en plus du respect de certaines restrictions au niveau de la distance inter-électrodes, de la pression, de la tension appliquée ainsi que de la fréquence à utiliser. Par exemple, on peut obtenir une DBD homogène dans l'hélium à pression atmosphérique pour une distance entre deux diélectriques de 5 mm et une tension d'amplitude 1 kV et de fréquence 10 kHz. Toutefois, si la fréquence est diminuée à 1 kHz, la décharge devient inhomogène et on observe la présence de filaments.

[0007] Cette situation n'est pas satisfaisante, car les conditions requises sont si délicates à respecter qu'elles constituent un frein sérieux au développement de projets dans le domaine des plasmas homogènes.

Résumé de l'invention

[0008] L'invention vise à résoudre ces problèmes en proposant un réacteur plasma de décharge à barrière

diélectrique capable de générer un plasma froid à pression atmosphérique sans nécessiter de conditions draconiennes entourant la génération de la décharge.

[0009] L'invention propose donc un réacteur plasma de décharge à barrière diélectrique selon la revendication 1.

[0010] Des modes de réalisation préférés de l'invention sont définis dans les revendications dépendantes.

[0011] À cet effet, il est proposé un réacteur plasma de décharge à barrière diélectrique comprenant une enceinte soumise à la pression atmosphérique et ayant au moins un orifice d'entrée de gaz plasmagène et au moins un orifice de sortie de plasma froid à pression atmosphérique. L'enceinte comprend en outre un tube interne et un tube externe. Le tube interne et le tube externe sont du type diélectrique, chacun comprenant une extrémité supérieure, une extrémité inférieure et une paroi avec une surface intérieure et une surface extérieure, l'extrémité supérieure du tube interne étant couplée à l'orifice d'entrée de gaz plasmagène, l'extrémité supérieure du tube externe étant fermée hermétiquement et étant traversée par le tube interne, l'extrémité inférieure du tube interne étant ouverte et l'extrémité inférieure du tube externe étant couplée à l'orifice de sortie de plasma froid à pression atmosphérique. En outre, le tube interne et le tube externe sont agencés de sorte qu'au moins une portion du tube interne s'étend à l'intérieur du tube externe de manière parallèle à l'axe longitudinal du tube externe et de façon à définir un espace de diffusion et un espace annulaire. L'espace de diffusion est formé à l'intérieur du tube externe entre l'extrémité inférieure du tube interne et l'extrémité inférieure du tube externe, et l'espace annulaire est formé entre la surface externe de la paroi du tube interne et la surface interne de la paroi du tube externe. l'enceinte comprend en outre,

- une première électrode haute tension et une électrode de masse, espacées par un espace inter-électrodes dans lequel au moins un premier matériau diélectrique est disposé,
- un orifice d'entrée d'alimentation électrique haute tension couplé à l'électrode haute tension, et apte à être couplé à une première alimentation haute tension de façon à permettre la génération d'une décharge électrique dans l'espace inter-électrodes, et dans laquelle,
- au moins une portion du tube interne est disposée au plus près de l'électrode haute tension, et s'étend à travers le premier matériau diélectrique et l'électrode de masse, et
- au moins une portion du tube externe s'étend à travers l'électrode de masse.

[0012] Selon une première caractéristique possible, l'extrémité inférieure du tube interne et l'extrémité inférieure du tube externe s'étendent en dehors de l'enceinte via l'orifice de sortie de plasma froid à pression atmosphérique.

[0013] Selon une deuxième caractéristique possible, l'enceinte comprend en outre au moins un orifice d'entrée de fluide environnant couplé à au moins un passage s'étendant à travers la paroi du tube externe. Dans un exemple, le passage s'étend de manière sensiblement perpendiculaire à l'axe longitudinal du tube externe. Dans un autre exemple, le passage s'étend de manière sensiblement oblique à l'axe longitudinal du tube externe. De préférence, le passage est disposé à un niveau situé entre le premier matériau diélectrique et l'électrode de masse.

[0014] Dans un exemple de la deuxième caractéristique possible, l'extrémité supérieure du tube externe est située entre le premier matériau diélectrique et l'électrode de masse.

[0015] Selon une troisième caractéristique possible, l'électrode haute tension, le premier matériau diélectrique et l'électrode de masse se présentent chacun sous la forme d'une plaque circulaire, ovale ou polygonale. Dans un exemple, la longueur de la plaque du premier matériau diélectrique est plus longue que celle des plaques des électrodes haute tension et de masse.

[0016] De préférence, l'enceinte comprend en outre un corps d'enceinte moulé dans un deuxième matériau diélectrique. Dans un premier exemple, le corps d'enceinte est constitué d'une seule pièce. Dans un deuxième exemple, le corps d'enceinte est constitué de trois pièces,

- la première pièce comprenant l'orifice d'entrée de gaz plasmagène, l'électrode haute tension et le premier matériau diélectrique,
- la deuxième pièce comprenant l'orifice d'entrée de fluide environnant et le passage s'étendant à travers la paroi du tube externe, et
- la troisième pièce comprenant l'électrode de masse et l'orifice de sortie de plasma froid à pression atmosphérique.

[0017] De préférence, le premier matériau diélectrique, le tube interne et le tube externe sont en verre de quartz et le deuxième matériau diélectrique est en matière plastique, du type PTFE, PFA ou FEP.

[0018] De préférence, l'électrode haute tension et l'électrode de masse sont en laiton.

[0019] Selon une quatrième caractéristique possible, le réacteur comprend une deuxième électrode haute tension fixée autour de tout ou partie de la surface externe de la paroi du tube externe. La deuxième électrode haute tension est apte à être couplée à une deuxième alimentation haute tension et à une masse différente de l'électrode de masse de façon à permettre la génération d'une décharge électrique dans le tube externe, selon une direction perpendiculaire à l'axe longitudinal médian du tube externe.

Brève description des dessins

[0020] Les caractéristiques et avantages de l'invention seront mieux compris à la lecture de la description qui va suivre et en référence aux dessins annexés, donnés à titre illustratif et nullement limitatif.

La figure 1 représente un réacteur selon une première mise en œuvre de l'invention.

La figure 2 représente le réacteur de la figure 1 selon une autre mise en œuvre de l'invention.

Les figures 3A et 3B représentent une vue en coupe transversale détaillant l'alimentation haute tension et la mise à la masse.

La figure 4 représente une deuxième mise en œuvre de l'invention.

La figure 5 représente une troisième mise en œuvre de l'invention.

Les figures 6A et 6B représentent des agencements particuliers des tubes internes et externes de l'invention.

[0021] Dans ces figures, des références identiques ou analogues d'une figure à une autre désignent des éléments identiques ou analogues. Pour des raisons de clarté, les éléments représentés ne sont pas à l'échelle les uns par rapport aux autres, sauf mention contraire.

Description des modes de réalisation

[0022] L'exemple de la figure 1 illustre un réacteur plasma de décharge à barrière diélectrique 100 permettant de traiter une cible. Par exemple, la cible peut comprendre une matière physique tel un matériau solide, un tissu vivant ou un volume de fluide.

[0023] Le réacteur 100 comprend une enceinte hermétique 110 soumise à la pression atmosphérique. L'enceinte hermétique 110 comprend un orifice d'entrée de gaz plasmagène 111 et un orifice de sortie de plasma froid à pression atmosphérique 112.

[0024] L'orifice d'entrée de gaz plasmagène 111 est destiné à être couplé à une source de gaz plasmagène 120. Dans l'exemple de la figure 1, le couplage est réalisé grâce à un piquage droit. Toutefois, d'autres types courants de piquage et de raccordement peuvent être utilisés. La source de gaz plasmagène 120 peut comprendre un gaz rare, un mélange de gaz rares (typiquement de l'hélium He, de l'argon Ar, etc.) ou un mélange d'un ou plusieurs gaz rares avec un ou plusieurs gaz moléculaires (typiquement de l'oxygène O₂, de l'hydrogène H₂, du tétrafluorure de carbone CF₄, de l'hexafluorure de soufre SF₆, de l'azote N₂ et/ou de la vapeur d'eau H₂O, etc.) minoritaires, c'est-à-dire présents en faible concentration par rapport à la concentration de gaz rare(s).

[0025] Ainsi, lorsque le réacteur 100 est en opération, un gaz vecteur provenant de la source de gaz plasmagène 120 est injecté dans l'orifice d'entrée de gaz plasmagène 111. De préférence, le débit entrant du gaz vec-

teur est de l'ordre d'un litre par minute.

[0026] L'orifice de sortie de plasma froid à pression atmosphérique 112 est prévu pour mener un plasma froid à pression atmosphérique produit par le réacteur 100 vers l'extérieur de l'enceinte hermétique 110.

[0027] Dans la figure 1, l'enceinte hermétique 110 comprend en outre, un tube interne 113 et un tube externe 114. Le tube interne 113 et le tube externe 114 sont constitués d'un matériau isolant électrique d'une résistivité supérieure à $10^{15} \Omega.m$, comme, par exemple, une céramique, du quartz, de l'alumine, de la silice (SiC) ou du nitrure de bore. Chacun des tubes interne 113 et externe 114 présente une longueur et une épaisseur de paroi. La longueur des tubes interne 113 et externe 114 est déterminée entre une extrémité supérieure de tube et une extrémité inférieure de tube, tandis que l'épaisseur de paroi est déterminée entre une surface intérieure de paroi et une surface extérieure de paroi.

[0028] Selon l'invention, le tube interne 113 présente un rapport longueur sur épaisseur ne dépassant pas 30, de préférence compris entre 20 et 27 et avantageusement compris entre 24 et 26 tandis que le tube externe 114 présente un rapport longueur sur épaisseur ne dépassant pas 30, de préférence compris entre 20 et 27 et avantageusement compris entre 24 et 26. En outre, de préférence, la longueur du tube externe 114 est plus grande que celle du tube interne 113.

[0029] Comme on peut le voir dans la figure 1 :

- l'extrémité supérieure du tube interne 113 est couplée à l'orifice d'entrée de gaz plasmagène 111,
- l'extrémité supérieure du tube externe 114 est fermée hermétiquement,
- les extrémités inférieures des tubes internes 113 et externes 114 sont ouvertes, et
- l'extrémité inférieure du tube externe 114 est couplée à l'orifice de sortie de plasma froid à pression atmosphérique 112.

[0030] En outre, les tubes interne 113 et externe 114 sont agencés de sorte qu'au moins une portion du tube interne 113 s'étend à l'intérieur du tube externe 114 de manière coaxiale à l'axe longitudinal du tube externe 114 et de façon à définir un espace de diffusion ED et un espace annulaire EA. L'espace de diffusion ED est formé à l'intérieur du tube externe 114 entre l'extrémité inférieure du tube interne 113 et l'extrémité inférieure du tube externe 114 tandis que l'espace annulaire EA est formé entre la surface externe de la paroi du tube interne 113 et la surface interne de la paroi du tube externe 114. En d'autres termes, le diamètre du tube externe 114 est suffisamment grand pour pouvoir y loger le tube interne 113 à l'intérieur. Selon l'invention, le rapport de diamètre entre le diamètre extérieur du tube interne 113 et le diamètre interne du tube externe 114 dépassant 30%, de préférence compris entre 35 et 65 %.

[0031] Avec cet agencement particulier, il a été trouvé qu'un plasma froid à pression atmosphérique généré

dans le tube interne 113 devient diffus dans l'espace de diffusion ED. En pratique, un tel plasma prend la forme d'une plume à l'intérieur du tube externe 114 et également à l'extérieur du réacteur 100, dans l'air ambiant.

Cet agencement a donc pour effet de transformer le caractère filamentaire d'un plasma froid à pression atmosphérique en un plasma froid à pression atmosphérique présentant un caractère plus diffus.

[0032] Dans l'exemple de la figure 1, on note que les tubes interne 113 et externe 114 sont disposés entièrement dans l'enceinte hermétique 110. Toutefois, d'autres variantes de mise en œuvre peuvent être envisagées. Par exemple, comme l'illustre la figure 2, il peut être envisagé une mise en œuvre du réacteur 100 de la figure 1 dans lequel l'extrémité inférieure du tube interne 113 et l'extrémité inférieure du tube externe 114 s'étendent en dehors de l'enceinte hermétique 110 via l'orifice de sortie de plasma froid à pression atmosphérique 112. Ceci a pour effet de permettre de rapprocher le plus possible le plasma froid à pression atmosphérique généré par le réacteur 100, de la cible à traiter. Dans une mise en œuvre particulière permettant d'exposer le plasma encore plus près de la cible à traiter, il est possible d'adjoindre à l'extrémité inférieure du tube externe 114, un bouchon recouvrant la cible (non représenté). Par exemple, le bouchon peut être totalement hermétique ou partiellement hermétique afin d'éviter un trop grand confinement. Cet agencement peut être avantageusement utilisée lorsque la cible à traiter est de petite taille et peu volumineuse.

[0033] De retour à la figure 1, le réacteur 100 est agencé de manière à générer une décharge électrique nécessaire à la production d'un plasma froid à pression atmosphérique dans le tube interne 113. Pour cela, le réacteur 100 est agencé selon une configuration plan-plan comprenant une électrode haute tension 115 et une électrode de masse 116, espacées par un espace inter-électrodes dans lequel au moins un premier matériau diélectrique 117 est disposé.

[0034] Les électrodes 115 et 116 sont constituées d'un matériau conducteur électrique ayant une résistivité de l'ordre $10^{-8} \Omega.m$ à $10^{-9} \Omega.m$, par exemple, constitué d'un métal ou d'un alliage de métaux. Par exemple, les électrodes 115 et 116 sont constituées de tungstène, d'acier inoxydable 316L, de cuivre, d'aluminium, de laiton ou d'un matériau catalytique conducteur.

[0035] Le premier matériau diélectrique 117 est constitué d'un matériau isolant électrique similaire à celui utilisé, ci-dessus, pour les tubes interne 113 et externe 114.

[0036] En outre, dans la figure 1, au moins une portion du tube interne 113 est disposée au plus près de l'électrode haute tension 115. Le tube interne 113 s'étend à travers le premier matériau diélectrique 117 et l'électrode de masse 116. En outre, au moins une portion du tube externe 114 s'étend à travers l'électrode de masse 116. En d'autres termes, un trou est ménagé dans l'électrode haute tension 115, le premier matériau diélectrique 117 et l'électrode de masse 116, afin d'y loger l'agencement

particulier des tubes interne 113 et externe 114.

[0037] Dans l'exemple de la figure 1, le passage menant au tube externe 114 est disposé à un niveau situé entre le premier matériau diélectrique 117 et l'électrode de masse 116. Néanmoins, le passage menant au tube externe 114 peut être disposé à tout autre niveau du tube externe 114, de préférence à un niveau qui se situe au-dessus de l'extrémité inférieure du tube interne 113.

[0038] Enfin, en liaison avec la figure 3, le réacteur 100 comprend également un orifice d'entrée d'alimentation électrique haute tension 1111 couplé à l'électrode haute tension 115 (figure 3a) et un orifice de mise à la masse 1112 couplé à l'électrode de masse 116 (figure 3b). Dans l'exemple de la figure 3, le couplage avec l'électrode haute tension 115 et avec l'électrode de masse 116 est réalisé par soudure, en particulier par soudure à l'étain.

[0039] Avec cet agencement, lorsque le réacteur 100 est en opération, l'électrode haute tension 115 est apte à être couplée à une alimentation haute tension HT de façon à permettre la génération d'une décharge électrique dans l'espace inter-électrodes afin de produire un plasma froid à pression atmosphérique en ionisant le gaz vecteur qui circule dans le tube interne 113. De préférence, l'alimentation haute tension HT délivre une tension de plusieurs kV, par exemple entre 1 kV et 20 kV à partir d'un signal du type sinusoïdal, pulsé ou haché.

[0040] Dans une mise en œuvre particulière, l'électrode haute tension 115, le premier matériau diélectrique 117 et l'électrode de masse 116 se présentent chacun sous la forme d'une plaque circulaire, ovale ou polygonale. Dans un exemple de cette mise en œuvre, comme illustré dans la figure 1, la longueur de la plaque du premier matériau diélectrique 117 est plus longue que celle des plaques des électrodes haute tension et de masse 116. Ceci a pour effet d'éviter la formation d'un arc électrique entre les électrodes 115 et 116 en limitant les effets de pointe.

[0041] Il a été remarqué que l'environnement gazeux de l'air ambiant, dans lequel se propage un plasma froid à pression atmosphérique tel que celui généré par le réacteur 100, peut avoir un impact important sur la variabilité des effets obtenus sur une cible à traiter. Il se pose alors le problème de la reproductibilité des plasmas froids à pression atmosphérique. À ce titre, il est important de pouvoir contrôler l'environnement gazeux régissant autour d'un tel plasma afin de réguler la réactivité chimique en phase gazeuse.

[0042] Pour cela, dans une mise en œuvre particulière de l'invention, l'enceinte hermétique 110 comprend un orifice d'entrée de fluide environnant 118 couplé à un passage 119 s'étendant à travers la paroi du tube externe 114.

[0043] L'orifice d'entrée de fluide environnant 118 est destiné à être couplé à une source de fluide environnant 130. Dans l'exemple de la figure 1, le couplage est réalisé grâce à un piquage droit. Toutefois, d'autres types courants de piquage et de raccordement peuvent être utilisés. La source de fluide environnant 118 peut être cons-

tituée d'un gaz pur, d'un mélange de gaz purs (typiquement de l'azote N, de l'oxygène O, du méthane CH₄, des gaz carbonés, de l'hydrogène H₂, des gaz fluorés, des gaz de monomères etc.), d'un liquide pulvérisé (par exemple chargé en particules de traitement de la cible) ou d'un mélange d'un ou plusieurs gaz purs avec un ou plusieurs liquides pulvérisés.

[0044] Ainsi, lorsque le réacteur 100 est en opération, un fluide environnant provenant de la source de fluide environnant 130 est injecté dans l'orifice d'entrée de fluide environnant 118. De préférence, le débit entrant du fluide environnant est de l'ordre de quelques dizaines de centimètres cubes par minute.

[0045] De cette manière, vu l'agencement particulier des tubes interne 113 et externe 114, le fluide environnant injecté dans l'orifice d'entrée de fluide environnant 118, circule dans l'espace annulaire EA pour ensuite déboucher dans l'espace de diffusion ED afin de se mélanger avec le plasma froid à pression atmosphérique généré dans le tube interne 113. Ceci a pour effet de permettre le contrôle de l'environnement de génération du plasma froid à pression atmosphérique et donc de sa réactivité chimique vis-à-vis d'une cible donnée.

[0046] Dans la figure 1, on note que l'extrémité supérieure du tube externe 114 est située entre le premier matériau diélectrique 117 et l'électrode de masse 116. Toutefois, l'extrémité supérieure du tube externe 114 peut également être située en dehors de l'espace inter-électrodes.

[0047] Dans ce même exemple, le passage s'étend de manière sensiblement perpendiculaire à l'axe longitudinal du tube externe 114. Dans un autre exemple, le passage s'étend de manière sensiblement oblique à l'axe longitudinal du tube externe 114.

[0048] De retour à la figure 1 en liaison avec la figure 4, l'enceinte hermétique 110 comprend en outre un corps d'enceinte C moulé dans un deuxième matériau diélectrique. Le corps d'enceinte permet de maintenir les différents éléments constituant le réacteur 100 dans l'enceinte hermétique 110. De préférence, le deuxième matériau diélectrique est en matière plastique, du type de fluoropolymères (PTFE, PFA ou FEP).

[0049] Dans un exemple, le corps d'enceinte C est constitué d'une seule pièce. Dans un autre exemple, le corps d'enceinte C est constitué de trois pièces. Dans ce cas,

- la première pièce comprend l'orifice d'entrée de gaz plasmagène 111, l'électrode haute tension 115 et le premier matériau diélectrique 117,
- la deuxième pièce comprend l'orifice d'entrée de fluide environnant 118 et le passage 119 s'étendant à travers la paroi du tube externe 114, et
- la troisième pièce comprend l'électrode de masse 116 et l'orifice de sortie de plasma froid à pression atmosphérique.

[0050] Ceci a pour effet de faciliter la fabrication du

réacteur 100, car les trois pièces peuvent être usinées séparément avant d'être assemblées. Par exemple, les trois pièces peuvent être assemblées pour former le corps d'enceinte C, grâce à des moyens de fixation tels des vis.

[0051] Dans la description, le réacteur 100 a été décrit comme comprenant un orifice d'entrée de gaz plasma-gène 111 et un orifice d'entrée de fluide environnant 118. Toutefois, d'autres configurations sont envisageables.

[0052] Par exemple, comme illustré dans la figure 4, l'enceinte hermétique 110 peut comprendre une pluralité de réacteurs 100. En effet, dans la figure 4, l'enceinte hermétique 110 comprend un corps d'enceinte C constitué de trois pièces P1, P2 et P3 dans lequel sont disposés deux réacteurs 100. Dans un autre exemple, tel qu'illustré dans la figure 5, le réacteur 100 comprend un corps d'enceinte C constitué de trois pièces P1, P2 et P3 dans lequel sont disposés six réacteurs 100. L'agencement d'une pluralité de réacteurs 100 selon l'invention est particulièrement avantageux car une seule alimentation haute tension HT permet d'alimenter l'ensemble des réacteurs 100. Il n'est donc pas nécessaire d'utiliser autant d'alimentations haute tension que de réacteurs 100. Entre outre, l'utilisation de la deuxième matière isolante dans la constitution du corps d'enceinte C permet de garantir la génération indépendante de plusieurs plasmas froids à pression atmosphérique.

[0053] Par ailleurs, lorsque plusieurs réacteurs 100 sont compris dans l'enceinte hermétique 110, il peut également être envisagé de positionner une pluralité de passages menant au tube externe 114. Par exemple, la figure 6a montre une vue du dessus d'une telle configuration dans laquelle quatre passages pouvant être couplés à un ou plusieurs orifices d'entrée de fluide environnant 118. Dans une variante illustrée dans la figure 6b, la pluralité de passages menant au tube externe 114 est disposée à des niveaux différents du tube externe 114.

[0054] La présente invention a été décrite et illustrée dans la présente description détaillée et dans des dessins annexés. La présente invention ne se limite pas, toutefois, aux formes de réalisation ainsi présentées. D'autres variantes et modes de réalisation peuvent être déduits et mis en œuvre par la personne du métier à la lecture de la présente description et des dessins annexés.

[0055] Dans une mise en œuvre particulière de l'invention, il est envisagé de moduler l'énergie transmise dans le plasma froid à pression atmosphérique. L'objectif d'une telle mise en œuvre consiste à agir sur la réactivité de la cible à traiter en permettant le contrôle de la production des espèces réactives produites en phase gazeuse.

[0056] Pour cela, il est proposé de moduler l'énergie transmise dans le plasma froid à pression atmosphérique généré par le réacteur 100 en polarisant une électrode métallique haute tension (non représentée) qui induit une différence de potentiel électrique sensiblement perpendiculaire à un axe central de propagation du plasma froid

à pression atmosphérique. En pratique, la différence de potentiel électrique est due au potentiel élevé de l'axe central de propagation du plasma froid à pression atmosphérique et le potentiel imposé à la surface interne du tube externe 114. Dans une mise en œuvre particulière, l'axe central de propagation du plasma froid à pression atmosphérique correspond à l'axe longitudinal médian du tube externe 114 passant sensiblement au milieu du tube externe 114.

[0057] Dit autrement, il s'agit de former une décharge à barrière diélectrique radiale, c'est-à-dire perpendiculaire à l'axe longitudinal médian du tube externe 114, en même temps que le réacteur 100 forme le plasma froid à pression atmosphérique.

[0058] Dans cette mise en œuvre particulière, on fixe l'électrode métallique haute tension sur au moins une portion de la surface externe de la paroi du tube externe 114. Dans un exemple, l'électrode métallique haute tension est formée dans une bague métallique qui couvre tout ou partie de la surface externe de la paroi du tube externe 114. Dans un autre exemple, l'électrode métallique haute tension est formée dans un scotch métallique qui couvre tout ou partie de la surface externe de la paroi du tube externe 114. Ensuite, lorsque le réacteur 100 est en opération, on polarise électriquement l'électrode métallique haute tension avec une alimentation haute tension (non représentée) qui est découplée de l'alimentation haute tension HT du réacteur 100. En outre, des masses différentes sont utilisées pour la mise à la masse de l'électrode métallique haute tension et pour la mise à la masse de l'électrode de masse 116.

[0059] Dans un exemple, on polarise l'électrode métallique haute tension avec une alimentation haute tension de tension positive ou négative. Selon les besoins, l'alimentation haute tension délivre une tension continue ou alternative. De préférence, l'alimentation haute tension délivre une tension à partir d'un signal du type sinusoïdal, pulsé ou haché. Par exemple, dans le cadre d'essais de laboratoire, on a utilisé une source de haute tension délivrant une tension continue de 100V à 500V continu.

[0060] Dans ces essais, avec une tension continue positive, il a été remarqué une réduction de la différence de potentiel électrique entre l'axe longitudinal médian du tube externe 114 et la surface interne du tube externe 114. Ceci a pour effet que le plasma froid à pression atmosphérique diffus généré par le réacteur 100 est moins énergétique. Cet effet se traduit visuellement par une luminosité moins importante du plasma froid à pression atmosphérique diffus généré par le réacteur 100 par rapport aux mises en œuvre dans lesquelles la polarisation du plasma froid à pression atmosphérique diffus n'est pas appliquée.

[0061] Au contraire, avec une tension continue négative, il a été remarqué une augmentation de la différence de potentiel électrique entre l'axe longitudinal médian du tube externe 114 et la surface interne du tube externe 114. Ceci a pour effet que le plasma froid à pression

atmosphérique diffus généré par le réacteur 100 est plus énergétique. Cet effet se traduit visuellement par une luminosité plus importante du plasma froid à pression atmosphérique diffus généré par le réacteur 100 par rapport aux mises en œuvre dans lesquelles la polarisation du plasma froid à pression atmosphérique diffus n'est pas appliquée.

[0062] Dans les revendications, le terme "comporter" n'exclut pas d'autres éléments ou d'autres étapes. Les différentes caractéristiques présentées et/ou revendiquées peuvent être avantageusement combinées sans sortir du cadre des revendications.

[0063] L'étendue de l'invention est déterminée par les revendications.

Revendications

1. Réacteur plasma de décharge à barrière diélectrique (100) comprenant :

- une enceinte (110) soumise à la pression atmosphérique et ayant au moins un orifice d'entrée de gaz plasmagène (111) et au moins un orifice de sortie de plasma froid à pression atmosphérique (112), où l'enceinte (110) comprend en outre,

- un tube interne (113) et un tube externe (114), le tube interne (113) et le tube externe (114) étant en matériau diélectrique, chacun comprenant une extrémité supérieure, une extrémité inférieure et une paroi avec une surface intérieure et une surface extérieure, l'extrémité supérieure du tube interne (113) étant couplée à l'orifice d'entrée de gaz plasmagène, l'extrémité supérieure du tube externe (114) étant fermée hermétiquement et étant traversée par le tube interne (113), l'extrémité inférieure du tube interne (113) étant ouverte et l'extrémité inférieure du tube externe (114) étant couplée à l'orifice de sortie de plasma froid à pression atmosphérique, et où le tube interne (113) et le tube externe (114) sont agencés de sorte qu'au moins une portion du tube interne (113) s'étend à l'intérieur du tube externe (114) de manière parallèle à l'axe longitudinal du tube externe (114) et de façon à définir,

- un espace de diffusion (ED), formé à l'intérieur du tube externe (114) entre l'extrémité inférieure du tube interne (113) et l'extrémité inférieure du tube externe (114), et

- un espace annulaire (EA), formé entre la surface externe de la paroi du tube interne (113) et la surface interne de la paroi du tube externe (114), dans lequel l'enceinte (110) comprend en outre,

- une première électrode haute tension (115) et une électrode de masse (116), espacées par un

espace inter-électrodes dans lequel au moins un premier matériau diélectrique (117) est disposé,

- un orifice d'entrée d'alimentation électrique haute tension (1111) couplé à l'électrode haute tension, et apte à être couplé à une première alimentation haute tension (HT) de façon à permettre la génération d'une décharge électrique dans l'espace inter-électrodes, et dans laquelle,
- au moins une portion du tube interne (113) est disposée au plus près de l'électrode haute tension et s'étend à travers le premier matériau diélectrique et l'électrode de masse, et
- au moins une portion du tube externe (114) s'étend à travers l'électrode de masse.

2. Réacteur selon la revendication 1, dans lequel l'extrémité inférieure du tube interne (113) et l'extrémité inférieure du tube externe (114) s'étendent en dehors de l'enceinte (110) via l'orifice de sortie de plasma froid à pression atmosphérique.

3. Réacteur selon l'une quelconque des revendications 1 ou 2, dans lequel l'enceinte (110) comprend en outre au moins un orifice d'entrée de fluide environnant (118) couplé à un au moins un passage (119) s'étendant à travers la paroi du tube externe (114).

4. Réacteur selon la revendication 3 dans lequel le passage (119) s'étend de manière sensiblement perpendiculaire à l'axe longitudinal du tube externe (114).

5. Réacteur selon la revendication 3 dans lequel le passage (119) s'étend de manière sensiblement oblique à l'axe longitudinal du tube externe (114).

6. Réacteur selon l'une quelconque des revendications 3, 4 ou 5 dans lequel le passage (119) est disposé à un niveau situé entre le premier matériau diélectrique (117) et l'électrode de masse

7. Réacteur selon l'une quelconque des revendications 1, 2, 3, 4, 5 ou 6, dans lequel l'extrémité supérieure du tube externe (114) est située entre le premier matériau diélectrique (117) et l'électrode de masse (116).

8. Réacteur selon l'une quelconque des revendications 1, 2, 3, 4, 5, 6 ou 7, dans lequel l'électrode haute tension (115), le premier matériau diélectrique (117) et l'électrode de masse (116) se présentent chacun sous la forme d'une plaque circulaire, ovale ou polygonale.

9. Réacteur selon la revendication 8 dans lequel la longueur de la plaque du premier matériau diélectrique (117) est plus longue que celle des plaques des élec-

trodes haute tension et de masse (115, 116).

10. Réacteur selon l'une quelconque des revendications précédentes, dans lequel l'enceinte (110) comprend en outre un corps d'enceinte (C) moulé dans un deuxième matériau diélectrique. 5
11. Réacteur selon la revendication 10 dans lequel le corps d'enceinte (C) est constitué d'une seule pièce. 10
12. Réacteur selon la revendication 10 dans lequel le corps d'enceinte (C) est constitué de trois pièces,
 - la première pièce (P1) comprenant l'orifice d'entrée de gaz plasmagène, l'électrode haute tension (115) et le premier matériau diélectrique (117), 15
 - la deuxième pièce (P2) comprenant l'orifice d'entrée de fluide environnant et le passage (119) s'étendant à travers la paroi du tube externe (114), et 20
 - la troisième pièce (P3) comprenant l'électrode de masse (116) et l'orifice de sortie de plasma froid à pression atmosphérique. 25
13. Réacteur selon la revendication 9, dans lequel le premier matériau diélectrique (117), le tube interne (113) et le tube externe (114) sont en verre de quartz et le deuxième matériau diélectrique est en matière plastique, du type PTFE, PFA ou FEP. 30
14. Réacteur selon l'une quelconque des revendications précédentes dans lequel l'électrode haute tension et l'électrode de masse (115, 116) sont en laiton. 35
15. Réacteur selon l'une quelconque des revendications précédentes, comprenant en outre une deuxième électrode haute tension fixée autour de tout ou partie de la surface externe de la paroi du tube externe (114), la deuxième électrode haute tension étant apte à être couplée à une deuxième alimentation haute tension et à une masse différente de l'électrode de masse de façon à permettre la génération d'une décharge électrique dans le tube externe (114), selon une direction perpendiculaire à un axe longitudinal médian du tube externe (114). 40 45

Patentansprüche

1. Plasmaentladungsreaktor mit dielektrischer Barriere (100), der Folgendes umfasst: 50
 - ein Gehäuse (110), das unter atmosphärischem Druck steht und mindestens eine Eintrittsöffnung (111) für Plasmagas und mindestens eine Austrittsöffnung (112) für kaltes Plasma unter Atmosphärendruck aufweist, 55

wobei die Kammer (110) ferner Folgendes umfasst:

- ein Innenrohr (113) und ein Außenrohr (114), wobei das Innenrohr (113) und das Außenrohr (114) aus dielektrischem Material bestehen und jeweils ein oberes Ende, ein unteres Ende und eine Wand mit einer Innenfläche und einer Außenfläche aufweisen, wobei das obere Ende des Innenrohrs (113) mit der Eintrittsöffnung für Plasmagas gekoppelt ist, wobei das obere Ende des Außenrohrs (114) hermetisch verschlossen ist und von dem Innenrohr (113) durchquert wird, wobei das untere Ende des Innenrohrs (113) offen ist und wobei das untere Ende des Außenrohrs (114) mit der Austrittsöffnung für kaltes Plasma unter Atmosphärendruck verbunden ist, und wobei das Innenrohr (113) und das Außenrohr (114) so angeordnet sind, dass sich mindestens ein Teil des Innenrohrs (113) in das Innere des Außenrohrs (114) erstreckt, parallel zur Längsachse des Außenrohrs (114) und in einer Weise Folgendes zu definieren:,
 - einen Diffusionsraum (ED), der im Inneren des Außenrohrs (114) zwischen dem unteren Ende des Innenrohrs (113) und dem unteren Ende des Außenrohrs (114) gebildet wird, und
 - einen Ringraum (EA), der zwischen der Außenfläche der Wand des Innenrohrs (113) und der Innenfläche der Wand des Außenrohrs (114) gebildet wird,

wobei das Gehäuse (110) ferner Folgendes umfasst:

- eine erste Hochspannungselektrode (115) und eine Masseelektrode (116), die durch einen Zwischenelektrodenraum beabstandet sind, in dem mindestens ein erstes dielektrisches Material (117) angeordnet ist,
- eine Hochspannungsversorgungseinlassöffnung (1111), die mit der Hochspannungselektrode verbunden ist und mit einer ersten Hochspannungsversorgung (HT) verbunden werden kann, um die Erzeugung einer elektrischen Entladung in dem Zwischenelektrodenraum zu ermöglichen, und wobei
 - mindestens ein Teil des Innenrohrs (113) so nah wie möglich an der Hochspannungselektrode angeordnet ist und sich durch das erste dielektrische Material und die Masseelektrode erstreckt, und
 - mindestens ein Teil des Außenrohrs (114) sich durch die Masseelektrode erstreckt.

2. Reaktor nach Anspruch 1, wobei das untere Ende des Innenrohrs (113) und das untere Ende des Außenrohrs (114) sich über die Austrittsöffnung für kal-

tes Plasma unter Atmosphärendruck aus dem Gehäuse (110) heraus erstrecken.

3. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 oder 2, wobei das Gehäuse (110) ferner mindestens eine Umgebungsfluideintrittsöffnung (118) umfasst, die mit mindestens einem Durchgang (119) gekoppelt ist, der sich durch die Wand des Außenrohrs (114) erstreckt. 5
4. Reaktor nach Anspruch 3, wobei sich der Durchgang (119) im Wesentlichen lotrecht zur Längsachse des Außenrohrs (114) erstreckt. 10
5. Reaktor nach Anspruch 3, wobei sich der Durchgang (119) im Wesentlichen schräg zur Längsachse des Außenrohrs (114) erstreckt. 15
6. Reaktor nach einem der Ansprüche 3, 4 oder 5, wobei der Durchgang (119) in einer Höhe zwischen dem ersten dielektrischen Material (117) und der Masseelektrode angeordnet ist. 20
7. Reaktor nach einem der Ansprüche 1, 2, 3, 4, 5 oder 6, wobei das obere Ende des Außenrohrs (114) zwischen dem ersten dielektrischen Material (117) und der Masseelektrode (116) angeordnet ist. 25
8. Reaktor nach einem der Ansprüche 1, 2, 3, 4, 5, 6 oder 7, wobei die Hochspannungselektrode (115), das erste dielektrische Material (117) und die Masseelektrode (116) jeweils in Form einer kreisförmigen, ovalen oder polygonalen Platte vorliegen. 30
9. Reaktor nach Anspruch 8, wobei die Länge der Platte des ersten dielektrischen Materials (117) länger ist als diejenige der Platte der Hochspannungs- und der Masseelektrode (115, 116). 35
10. Reaktor nach einem der vorherigen Ansprüche, wobei das Gehäuse (110) ferner einen Gehäusekörper (C) umfasst, der aus einem zweiten dielektrischen Material geformt ist. 40
11. Reaktor nach Anspruch 10, wobei der Gehäusekörper (C) aus einem Stück geformt ist. 45
12. Reaktor nach Anspruch 10, wobei der Gehäusekörper (C) aus drei Teilen besteht, 50
 - wobei der erste Teil (P1) die Eintrittsöffnung für Plasmagas, die Hochspannungselektrode (115) und das erste dielektrische Material (117) umfasst,
 - wobei der zweite Teil (P2) die Eintrittsöffnung für Umgebungsfluid und den sich durch die Wand des Außenrohrs (114) erstreckenden Durchgang (119) umfasst, und 55
 - wobei der dritte Teil (P3) die Masseelektrode

(116) und die Austrittsöffnung für kaltes Plasma unter Atmosphärendruck umfasst.

13. Reaktor nach Anspruch 9, wobei das erste dielektrische Material (117), das Innenrohr (113) und das Außenrohr (114) aus Quarzglas bestehen und das zweite dielektrische Material aus Kunststoff vom Typ PTFE, PFA oder FEP besteht.
14. Reaktor nach einem der vorherigen Ansprüche, wobei die Hochspannungselektrode und die Masseelektrode (115, 116) aus Messing bestehen.
15. Reaktor nach einem der vorherigen Ansprüche, der ferner eine zweite Hochspannungselektrode umfasst, die um die gesamte Außenfläche der Wand des Außenrohrs (114) oder einen Teil davon befestigt ist, wobei die zweite Hochspannungselektrode mit einer zweiten Hochspannungsversorgung und einer anderen Masse als die Masseelektrode gekoppelt werden kann, um die Erzeugung einer elektrischen Entladung in dem Außenrohr (114) in einer Richtung lotrecht zu einer Längsmittelachse des Außenrohrs (114) zu gestatten.

Claims

1. A dielectric barrier discharge plasma reactor (100) comprising:

- a chamber (110) subjected to atmospheric pressure and having at least one plasma gas inlet port (111) and at least one outlet port (112) for cold plasma at atmospheric pressure,

wherein the chamber (110) further comprises:

- an inner tube (113) and an outer tube (114), with the inner tube (113) and the outer tube (114) being made of dielectric material, each comprising an upper end, a lower end and a wall with an inner surface and an outer surface, the upper end of the inner tube (113) being coupled to the plasma gas inlet port, the upper end of the outer tube (114) being hermetically sealed and being traversed by the inner tube (113), the lower end of the inner tube (113) being open and the lower end of the outer tube (114) being coupled to the outlet port for cold plasma at atmospheric pressure,

and wherein the inner tube (113) and the outer tube (114) are arranged so that at least a portion of the inner tube (113) extends inside the outer tube (114) parallel to the longitudinal axis of the outer tube (114) and so as to define:

- a diffusion space (ED), formed inside the outer tube (114) between the lower end of the inner tube (113) and the lower end of the outer tube (114); and
- an annular space (EA), formed between the outer surface of the wall of the inner tube (113) and the inner surface of the wall of the outer tube (114);

wherein the chamber (110) further comprises:

- a first high-voltage electrode (115) and a ground electrode (116), spaced apart by an inter-electrode gap, in which at least a first dielectric material (117) is disposed;
- a high-voltage electric power supply input port (1111) coupled to the high-voltage electrode, and adapted to be coupled to a first high-voltage power supply (HT) so as to allow an electric discharge to be generated in the inter-electrode space;

and wherein:

- at least a portion of the inner tube (113) is disposed as close as possible to the high-voltage electrode and extends through the first dielectric material and the ground electrode; and
- at least a portion of the outer tube (114) extends through the ground electrode.

2. The reactor according to claim 1, wherein the lower end of the inner tube (113) and the lower end of the outer tube (114) extend outside the chamber (110) via the outlet port for cold plasma at atmospheric pressure.
3. The reactor according to any one of claims 1 or 2, wherein the chamber (110) further comprises at least one inlet port (118) for surrounding fluid coupled to at least one passage (119) extending through the wall of the outer tube (114).
4. The reactor according to claim 3, wherein the passage (119) extends substantially perpendicular to the longitudinal axis of the outer tube (114).
5. The reactor according to claim 3, wherein the passage (119) extends substantially obliquely to the longitudinal axis of the outer tube (114).
6. The reactor according to any one of claims 3, 4 or 5, wherein the passage (119) is disposed at a level located between the first dielectric material (117) and the ground electrode.
7. The reactor according to any one of claims 1, 2, 3, 4, 5 or 6, wherein the upper end of the outer tube

(114) is located between the first dielectric material (117) and the ground electrode (116).

8. The reactor according to any one of claims 1, 2, 3, 4, 5, 6 or 7, wherein the high-voltage electrode (115), the first dielectric material (117) and the ground electrode (116) are each in the form of a circular, oval or polygonal plate.
9. The reactor according to claim 8, wherein the length of the plate of the first dielectric material (117) is longer than that of the plates of the high-voltage and ground electrodes (115, 116).
10. The reactor according to any one of the preceding claims, wherein the chamber (110) further comprises a chamber body (C) moulded in a second dielectric material.
11. The reactor according to claim 10, wherein the chamber body (C) is formed by a single part.
12. The reactor according to claim 10, wherein the chamber body (C) is formed by three parts:
 - the first part (P1) comprising the plasma gas inlet orifice, the high-voltage electrode (115) and the first dielectric material (117);
 - the second part (P2) comprising the inlet port for surrounding fluid and the passage (119) extending through the wall of the outer tube (114); and
 - the third part (P3) comprising the ground electrode (116) and the outlet port for cold plasma at atmospheric pressure.
13. The reactor according to claim 9, wherein the first dielectric material (117), the inner tube (113) and the outer tube (114) are made of quartz glass and the second dielectric material is made of plastic material, of the PTFE, PFA or FEP type.
14. The reactor according to any one of the preceding claims, wherein the high-voltage electrode and the ground electrode (115, 116) are made of brass.
15. The reactor according to any one of the preceding claims, further comprising a second high-voltage electrode fixed around all or part of the outer surface of the wall of the outer tube (114), the second high-voltage electrode being able to be coupled to a second high-voltage power supply and to a different ground from the ground electrode so as to allow an electric discharge to be generated in the outer tube (114) in a direction perpendicular to a median longitudinal axis of the outer tube (114).

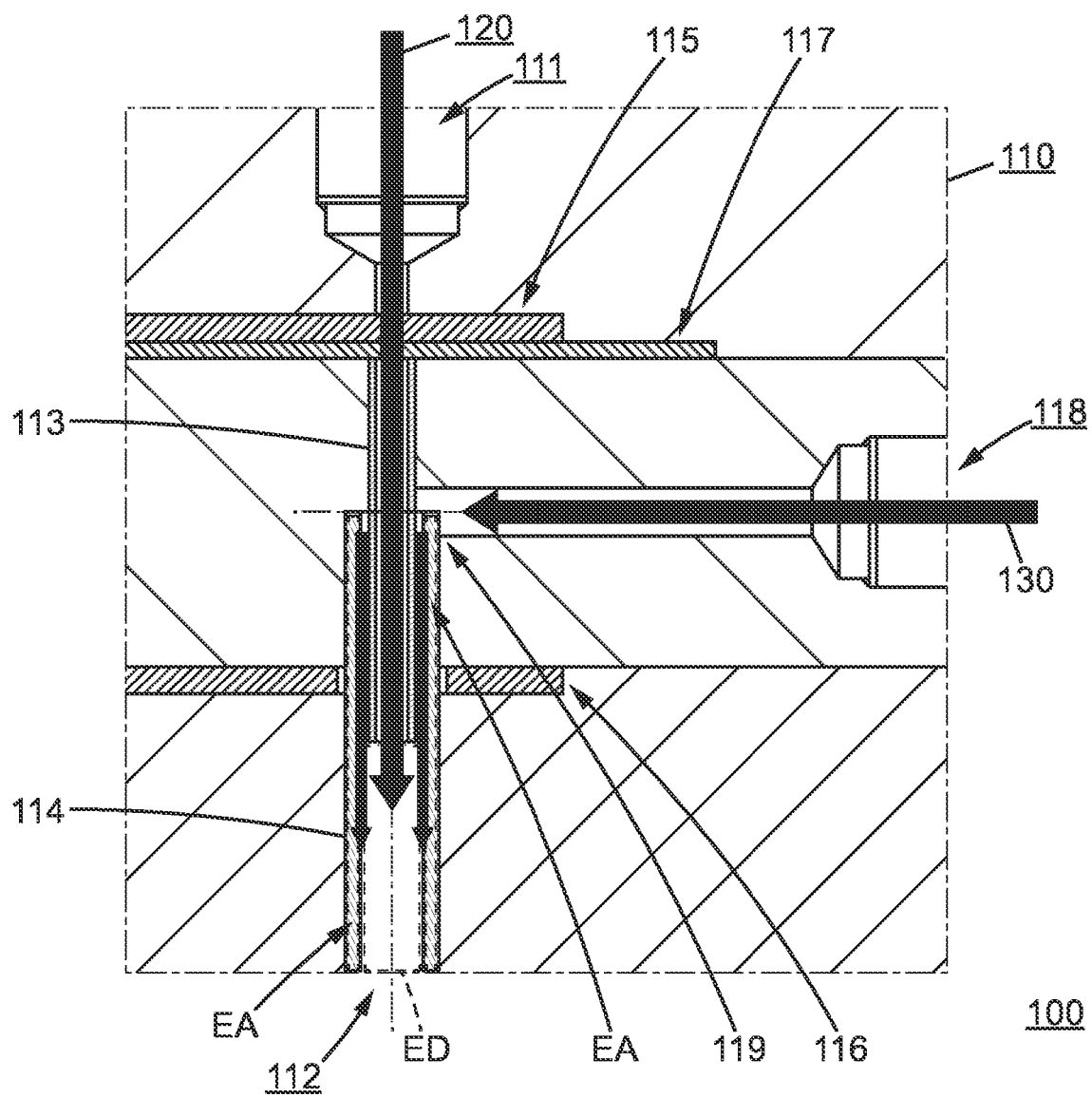


FIG. 1

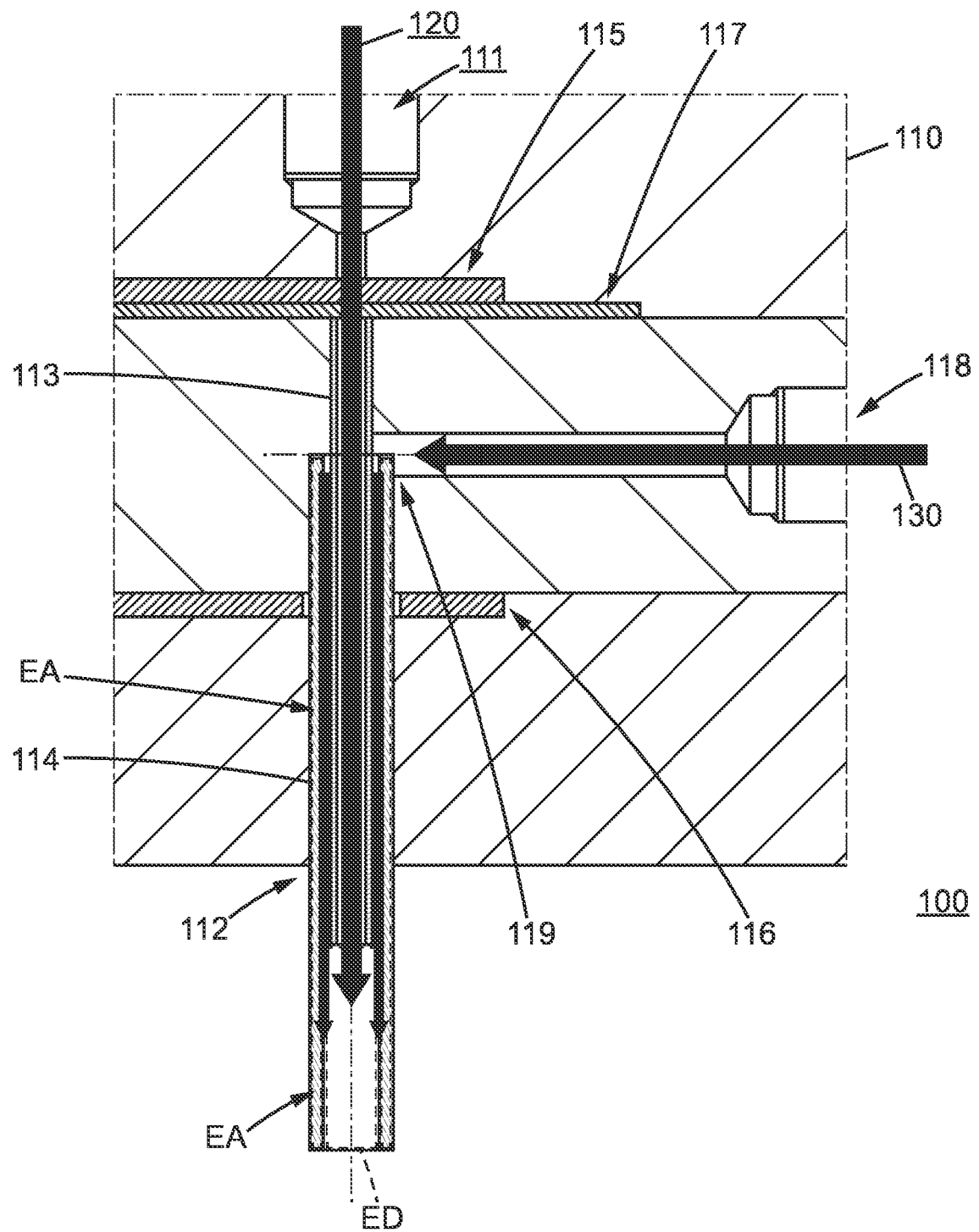


FIG. 2

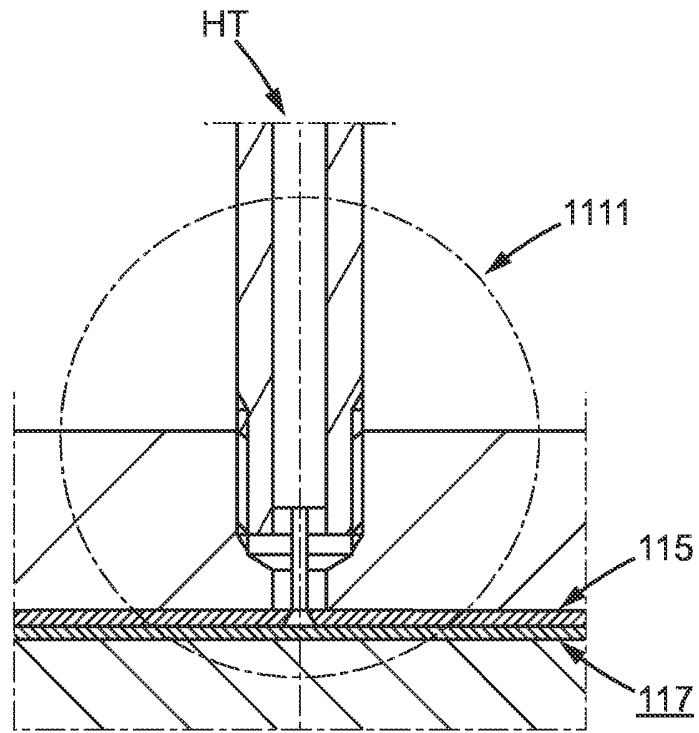


FIG. 3A

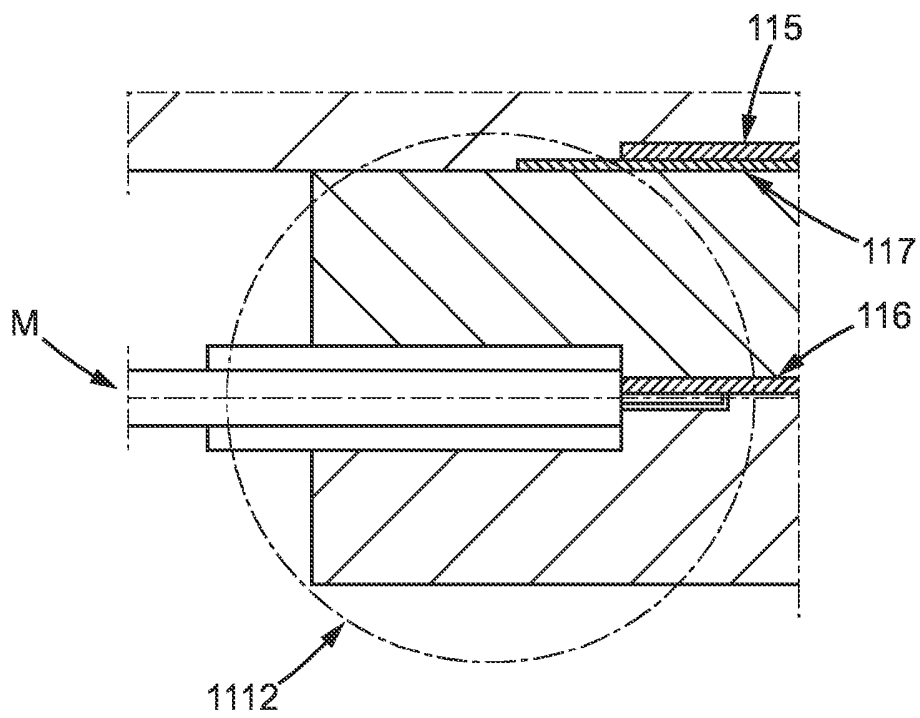


FIG. 3B

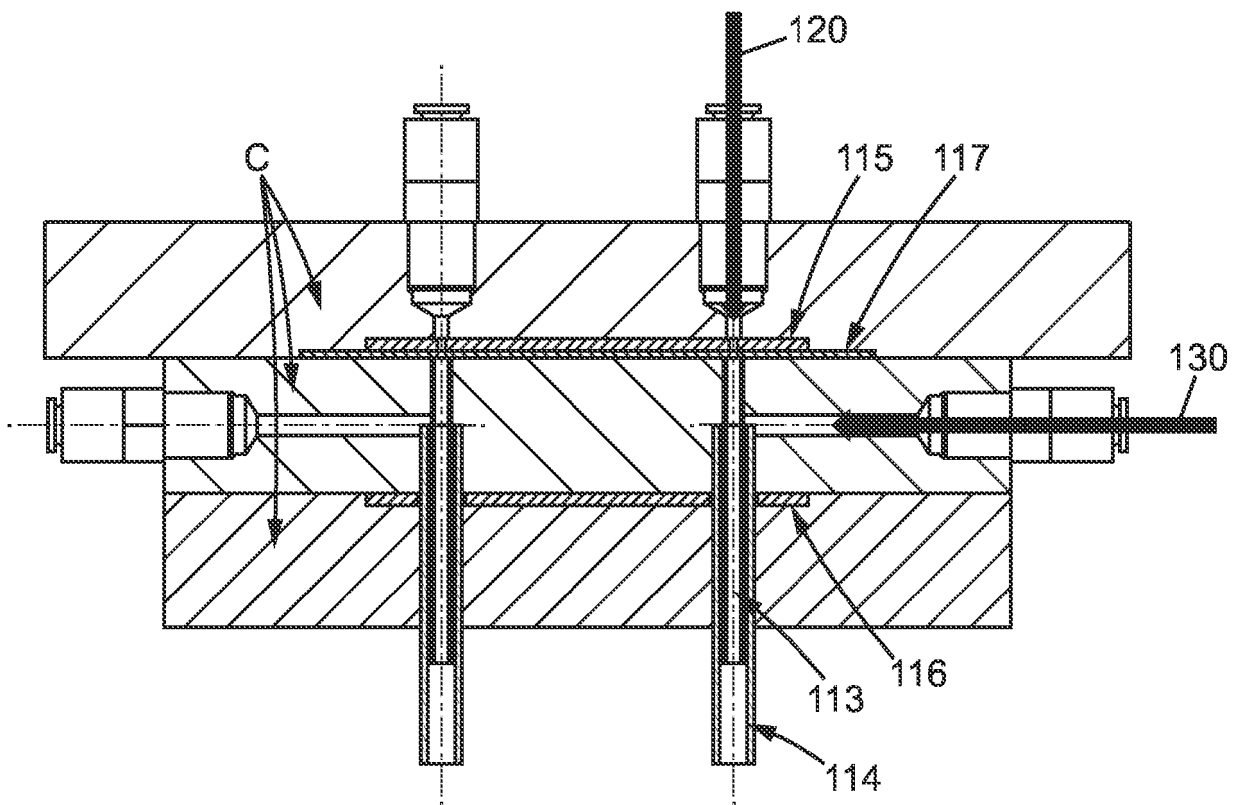


FIG. 4

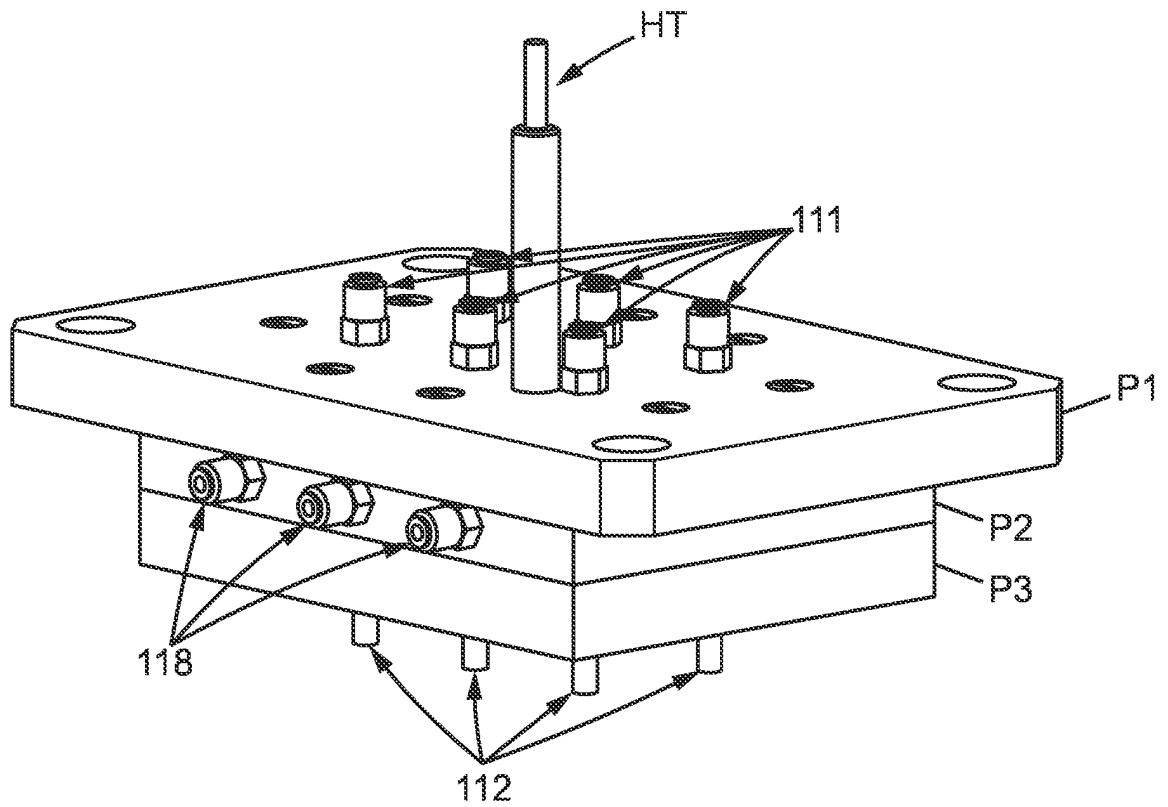


FIG. 5

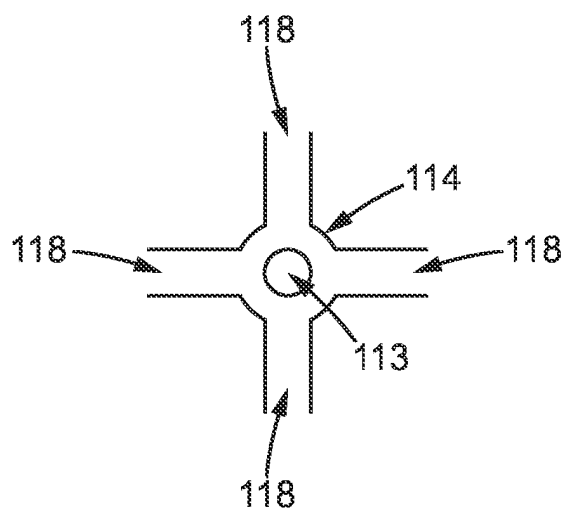


FIG. 6A

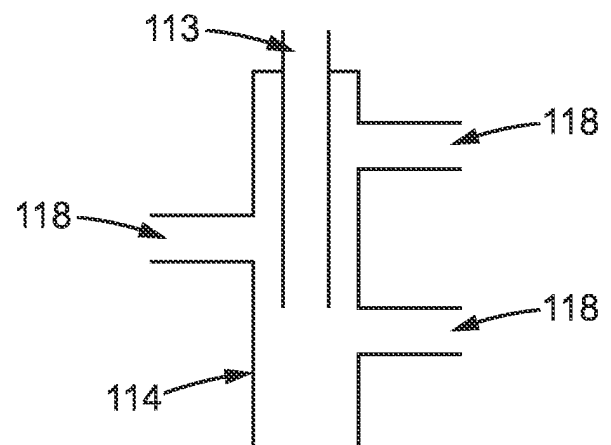


FIG. 6B

RÉFÉRENCES CITÉES DANS LA DESCRIPTION

Cette liste de références citées par le demandeur vise uniquement à aider le lecteur et ne fait pas partie du document de brevet européen. Même si le plus grand soin a été accordé à sa conception, des erreurs ou des omissions ne peuvent être exclues et l'OEB décline toute responsabilité à cet égard.

Documents brevets cités dans la description

- CN 105491774 A [0004]
- WO 2005125286 A2 [0004]
- WO 2007105428 A1 [0004]
- US 20140162338 A1 [0004]
- US 20020187066 A1 [0004]