



HAL
open science

Étude d'une pompe active EHD basée sur la mise en œuvre de décharges de surface pour le traitement des effluents gazeux d'origine industrielle

Massiel Zadeh

► To cite this version:

Massiel Zadeh. Étude d'une pompe active EHD basée sur la mise en œuvre de décharges de surface pour le traitement des effluents gazeux d'origine industrielle. Génie des procédés. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2014. Français. NNT : 2014ENMP0059 . tel-01144437

HAL Id: tel-01144437

<https://pastel.hal.science/tel-01144437>

Submitted on 21 Apr 2015

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

École doctorale n° 432 : SMI (Sciences des Métiers de l'Ingénieur)

Doctorat ParisTech

THÈSE

Pour obtenir le grade de docteur délivré par

L'École nationale supérieure des mines de Paris
Spécialité "Énergétique et Procédés"

Présentée et soutenue publiquement par

Massiel ZADEH

Le 08 12 2014

Etude d'une pompe active EHD basée sur la mise en œuvre de décharges de surface pour le traitement d'effluents gazeux d'origine industrielle

Directeurs de thèse : **Laurent FULCHERI, François CAUNEAU**

Maître de thèse : **Vandad ROHANI**

Jury

M. Stéphane PASQUIERS, Directeur de recherche au CNRS, LPGP, Université Paris Sud

M. Dupin HONG, Professeur, GREMI, Université d'Orléans

Mme Farzaneh AREFI, Professeur, LGPPTS, UPMC

Mme Nicole BLIN-SIMIAND, Chargée de recherche au CNRS, LPGP, Université Paris Sud

M. Salim DERROUCHE, Docteur, Veolia Recherche et Innovation

M. Laurent FULCHERI, Directeur de recherche, PERSEE, MINES ParisTech

M. François CAUNEAU, Maître de recherche, PERSEE, MINES ParisTech

M. Vandad ROHANI, Docteur, PERSEE, MINES Paris Tech

Rapporteur

Rapporteur

Examinateur - Présidente du jury

Examinateur

Examinateur

Examinateur

Examinateur

Invité

MINES ParisTech

PERSEE

Sophia Antipolis

*Ô Marie conçue sans péché,
priez pour nous qui avons recours à vous*

Remerciements

Ce travail de recherche a été effectué au centre Procédés, Energies Renouvelables et Systèmes Energétiques (PERSEE) à Mines Paris Tech Sophia Antipolis.

Tout d'abord, je tiens à remercier vivement mes directeurs de thèse Laurent Fulcheri et François Cauneau pour leurs confiances et leurs remarques toujours judicieuses. Je vous remercie pour les nombreux échanges et discussions scientifiques menés ensemble qui ont abouti à de fructueuses réflexions.

J'adresse ma reconnaissance particulière à mon maître de thèse Vandad Rohani pour m'avoir soutenue, guidée et encouragée au cours de ces trois ans, pour tout l'apport de compétences dans les domaines des plasmas froid et du traitement des COV et pour le temps qu'il m'a consacré.

Mes remerciements vont également à Frédéric Fabry pour tout son apport de compétences dans la réalisation de la maquette expérimentale de la pompe EHD et des mesures de caractérisation chimique.

De même, je remercie Patrick Leroux pour la conception mécanique de la pompe EHD et pour le temps consacré pour sa réalisation.

Je remercie également Messieurs Jean Cantet, Christophe Renner, Salim Derrouiche et Madame Marie-Pierre Denieul de la société Veolia Recherche et Innovation pour l'intérêt porté à cette thèse et le suivi des avancements de mes recherches. Ce travail étant une collaboration entre PERSEE et VERI.

Mes remerciements s'adressent à Monsieur Stéphane Pasquiers et Monsieur Dumping Hong d'avoir accepté de rapporter ce travail de thèse ; et Mesdames Farzaneh Arefi et Nicole Blin-Simiand et Monsieur Salim Derrouiche d'avoir accepté d'examiner ce manuscrit de thèse.

Je remercie également l'ensemble du personnel du centre PERSEE pour l'ambiance agréable qui y règne. Au cours des trois ans vous étiez comme une famille pour moi.

Le partage de bons moments avec mes compagnons de bureau et mes collègues ne peut s'oublier. Merci à Arthur, Benjamin, Fiona, Yassine, Christophe, Rebecca, Fadi, Ghina, Ali, Paul, Gabriel pour tous les moments qu'on avaient passés ensemble. Merci également à Sabri pour son amitié, son soutien et sa bonne humeur au fil des deux dernières années.

Je tiens à remercier Hasna, Christelle, Layal, Aurore, Antoinette, Eve, Milad, Rania et tous ceux qui sont loin mais très proches de mon cœur et de mes pensées. Merci pour votre appui et vos messages de soutien tout au long de la thèse.

Ma plus profonde reconnaissance s'adresse à mes parents, mes sœurs et mon frère et ma belle-famille qui m'ont toujours soutenue et encouragée. Mes dernières pensées vont à Hicham, mon amour de tous les temps, qui a su m'accompagner et comprendre mon investissement au cours de ces trois ans de thèse. Cette thèse vous est dédiée.

SOMMAIRE

INTRODUCTION	20
Chapitre 1	24
Position du problème de traitement des COV et conception d'un dispositif original de dépollution par plasma non-thermique	24
1.1. Introduction	24
1.2. Définition, effets et réglementations des COV.....	25
1.2.1. Définition des COV	25
1.2.2. Sources de COV.....	25
1.2.3. Effets.....	26
1.2.4. Règlementations sur les COV.....	27
1.3. Procédés classiques de traitement des COV.....	28
1.3.1. Procédés récupératifs	28
1.3.1.1. Absorption	28
1.3.1.2. Adsorption	29
1.3.1.3. Condensation	30
1.3.1.4. Séparation par technique membranaire.....	31
1.3.2. Procédés destructifs	31
1.3.2.1. Oxydation thermique	31
1.3.2.2. Oxydation catalytique.....	33
1.3.2.3. Destruction par voie biologique	33
1.3.2.4. Plasma non-thermique	34
1.4. Bilan comparatif des procédés de traitement de COV	34
1.5. Généralités sur les plasmas.....	37
1.6. Création d'un plasma froid à pression atmosphérique	38
1.6.1. Streamer positif.....	40
1.6.2. Streamer négatif.....	41
1.7. Les Décharges à Barrière Diélectrique (DBD).....	41
1.7.1. Les différentes configurations de DBD.....	42
1.7.2. Caractéristiques des DBDS et force électrohydrodynamique (EHD)	44
1.7.3. Les paramètres influençant la conversion électromécanique d'une DBDS	48
1.7.3.1. Paramètres électriques.....	48
1.7.3.1. A. Tension et courant d'alimentation	48
1.7.3.1. B. Fréquence appliquée	49
1.7.3.2. Paramètres géométriques	51
1.7.3.2. A. Largeur des électrodes HT.....	51

1.7.3.2. B. Epaisseur du diélectrique	52
1.7.3.2. C. Décalage horizontal inter-électrodes (en configuration symétrique).....	53
1.7.3.3. Paramètres matériaux.....	54
1.7.3.3. A. Nature du diélectrique.....	54
1.8. Décomposition des COV par DBD.....	54
1.9. Conclusion.....	59
Chapitre 2	62
Conception et étude de la conversion électromécanique de la surface active et du canal actif.....	62
2.1. Introduction.....	62
2.2. Description du banc expérimental et du protocole expérimental	63
2.3. Modélisation électrique du circuit secondaire.....	66
2.4. Analyse de l'intensité lumineuse du plasma.....	71
2.5. Etude électromécanique de la surface active en fonction des différents paramètres.....	73
2.5.1. Résine époxy.....	73
2.5.1.1. Détermination théorique de la fonction de transfert : S.A. en résine époxy	74
2.5.1.2. Courbe expérimentale de réponse fréquentielle : S.A. en résine époxy.....	75
2.5.1.3. Caractérisation mécanique : S.A. en résine époxy	78
2.5.1.3. A. Calcul de la puissance mécanique.....	79
2.5.2. Verre Borosilicate (Pyrex ©)	80
2.5.2.1. Réponse fréquentielle : S.A. en Pyrex ©	81
2.5.2.2. Caractérisation mécanique : S.A. en Pyrex ©	83
2.5.2.2. A. Surface active à une DBDS	83
2.5.2.2. B. Surface active à deux DBDS	84
2.5.2.3. Calcul de la puissance mécanique produite par la surface active à 2 DBDS.....	87
2.6. Conception et étude électromécanique du canal actif.....	88
2.6.1. Dispositif expérimental	88
2.6.2. Modélisation électrique du canal actif.....	89
2.6.3. Influence de la hauteur du canal actif	91
2.6.3.1. $H = 25 \text{ mm}$	91
2.6.3.2. $H = 10 \text{ mm}$	93
2.6.3.3. $H = 6 \text{ mm}$	95
2.6.3.4. Calcul du rendement.....	97
2.6.4. Choix de la hauteur du canal optimale.....	97
2.7. Conclusion.....	99

Chapitre 3	100
Conception d'une pompe active EHD et étude de la conversion des COV	101
3.1. Introduction	101
3.2. Choix de polluants et cahier de charges.....	101
3.3. Plan d'expérience.....	103
3.4. Conception et réalisation d'un démonstrateur composé d'une pompe active EHD, de son banc d'expérimentation et de ses appareils de caractérisation.....	103
3.4.1. Pompe active EHD	103
3.4.1.1. Conception de la pompe EHD	103
3.4.1.2. Disposition du rack de la pompe EHD	105
3.4.1.3. Simulation des performances de la pompe EHD sous Solidworks	108
3.4.2. Banc expérimental	111
3.4.3. Appareils de caractérisation	113
3.5. Protocole expérimental	113
3.6. Résultats et discussions	114
3.6.1. En mode d'injection : polluant par polluant.....	114
3.6.1.1. Etude du taux d'abattement des COV en fonction du débit d'air D (Nm ³ /h).....	114
3.6.1.2. Exemples de chromatogrammes en entrée et sortie de la pompe EHD	115
3.6.1.3. Résultats	117
3.6.1.4. Débit de COV converti	120
3.6.2. En mode d'injection : polluants mélangés	121
3.6.3. Identification des sous-produits de dégradation des deux cétones : 2-butanone et acétone – proposition d'un schéma réactionnel.....	122
3.6.4. Mesure de l'ozone produite par la pompe EHD	127
3.6.5. Mesure de la consommation électrique totale du rack.....	128
 Conclusion générale et perspectives	 130
ANNEXES - LES OUTILS DE DIAGNOSTICS PHYSICO-CHIMIQUES	133
ANNEXE I	133
Chromatographie en phase gazeuse (CPG)	133
ANNEXE II	135
Chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse (CG-MS).....	135
ANNEXE III	136
Analyseur d'ozone.....	136
Références bibliographiques	138

LISTE DES FIGURES

Figure 1. Distribution des sous-secteurs des émissions de COV en 2012 selon des estimations préliminaires en France Métropolitaine. Source : CITEPA / Format SECTEN – Avril 2014.....	26
Figure 2. Évolution du degré d'ionisation et du taux d'attachement dans l'air sec en fonction du champ réduit (Y. Raizer, 1991).....	39
Figure 3. L'avalanche électronique et multiplication des électrons.....	40
Figure 4. Création du dipôle.....	41
Figure 5. Configurations de DBD de volume existantes : A. Electrodes ; B. Espace gazeux où le plasma se crée ; C. Barrière diélectrique. (U. Kogelschatz, 2003)	43
Figure 6. Configurations symétriques (A) et asymétriques (B) de DBD de surface existantes. (U. Kogelschatz, 2003).....	43
Figure 7. Dispositif de la Décharge à Barrière Diélectrique de Surface reconnu par l'actionneur plasma (G. I. Font, 2006).....	45
Figure 8. Présentation de la gaine d'expansion pour une décharge filamentaire (J.P. Boeuf, 2005).	46
Figure 9. Variation de la tension et du courant en fonction du temps en configuration asymétrique (F = 2 kHz, U = 6 kV), N. Takeuchi, 2007).	49
Figure 10. Variation de la tension et du courant en fonction du temps en configuration symétrique (F = 2 kHz, U = 33 kV), N. Takeuchi, 2007).....	49
Figure 11. Variation de la fréquence de résonance (kHz) en fonction de la tension (kV) (J. Kreigseis, 2011).....	50
Figure 12. Comparaison de la loi $P_{él.} (W) = f (U_{HT} - U_0 (kV))$ pour plusieurs auteurs (J. Kreigseis, 2011) : (T. Abe, 2008), (B. Dong, 2008), (C.L. Enloe, 2004), (M. Forte J. J., 2007), (J. Pons, 2005), (J. Kreigseis, 2010), (Grundmann, 2008), (N. Bernard, 2009).	51
Figure 13. Variation de V_{max} (m/s) en fonction de la longueur d'extension du plasma (mm) pour trois largeurs d'électrodes HT différentes (Epaisseur du verre = 1 mm, U = 4-8 kV, F = 10 kHz) (N. Takeuchi, 2009).....	52
Figure 14. Variation de la puissance électrique et de la vitesse d'écoulement du vent électrique en fonction de l'épaisseur du diélectrique (Epaisseur du verre = 4 mm, $U_{max} = 20$ kV, $f = 300$ Hz) (J. Pons, 2005).	52
Figure 15. Variation de la vitesse d'écoulement du vent électrique (m/s) en fonction de la distance inter-électrode (mm) (Epaisseur du PMMA = 3 mm, $f = 700$ Hz, U = 20 kV) (M. Forte, 2007).....	53
Figure 16. Variation de la vitesse d'écoulement du vent électrique (m/s) et de la puissance électrique $P_{él.}$ (W) en fonction de la distance inter-électrode (mm) (Epaisseur du verre = 4 mm, $U_{max} = 20$ kV, $f = 300$ Hz.) (J. Pons, 2005).....	53
Figure 17. Evolution de la vitesse d'écoulement du vent électrique (m/s) en fonction de la tension (kV) pour deux types différents de diélectriques ($f = 700$ Hz, 8 kV < V < 26 kV) (M. Forte, 2007)...	54
Figure 18. Position de la sonde de Pitot par rapport à la dernière bande de la surface active suivant les axes x, y et z : (exemple de deux bandes d'électrodes à la surface du diélectrique) a: électrode passive; b: électrode HT; c: barrière diélectrique; d: Sonde de Pitot; s: shunt.....	64
Figure 19. Dispositif expérimental de la surface active à MINES ParisTech – Sophia Antipolis.	65
Figure 20. Oscillogrammes tension (kV) - courant (mA) en fonction du temps (μ s) à F = 4 kHz.	66

Figure 21. Représentation schématique du circuit électrique équivalent du système.....	67
Figure 22. Différence entre la largeur entre les électrodes (l_1) et la partie de création du plasma (l_2).	68
Figure 23. Image obtenue par soustraction de photographies de la surface active [Plasma ON - Plasma OFF]. Caractéristiques de la DBDS : nature de la barrière résine époxy, $N = 14$, distance inter-DBDS (d) = 10 mm, largeur de l'électrode non-exposée ($L_{\text{électrode}}$) = 5 mm.....	71
Figure 24. Profil de l'intensité lumineuse suivant l'axe Ox passant par le milieu des bandes.	72
Figure 25. Mapping de l'intensité lumineuse de la décharge de surface.....	72
Figure 26. Photos du circuit imprimé en absence (gauche) et en présence du plasma (droite) (Barrière en résine époxy, $N = 14$, épaisseur = 2 mm, distance inter-DBDS (d) = 10 mm, largeur de l'électrode non-exposée = 5 mm, largeur de la contre-électrode exposée = 2 mm).....	74
Figure 27. Evolution du module de la fonction de transfert du système électrique équivalent en fonction de la fréquence appliquée pour la surface active en résine époxy ($L_{\text{contre-électrode}} = 2$ mm, $L_{\text{électrode}} = 5$ mm, $d = 1$ cm, $N = 14$).....	75
Figure 28. Intersection entre la droite de gain 1 et la courbe théorique de la surface active en résine époxy.....	75
Figure 29. Variation de la puissance électrique injectée en fonction de la fréquence appliquée pour la surface active en résine époxy ($L_{\text{contre-électrode}} = 2$ mm, $L_{\text{électrode}} = 5$ mm, $d = 1$ cm).....	77
Figure 30. Profils de vitesse du vent électrique mesurée ($L_{\text{contre-électrode}} = 2$ mm, $L_{\text{électrode}} = 5$ mm, $d = 1$ cm à $3 \text{ kHz} < F < 5 \text{ kHz}$ pour la résine époxy).	79
Figure 31. $P_m = f(F)$ pour la résine époxy ($L_{\text{contre-électrode}} = 2$ mm, $L_{\text{électrode}} = 5$ mm, $d = 1$ cm).	80
Figure 32. Exemple de verre borosilicate (à deux DBDS) en absence du plasma (à gauche) et en présence du plasma (à droite).	81
Figure 33. Densité linéique de puissance obtenue par le calcul théorique et la mesure expérimentale en fonction de la fréquence à $N = 1$ et $N = 2$	82
Figure 34. Z (mm) = $f(V \text{ (m/s)})$ à une DBDS pour une position de la Sonde de Pitot à 16mm en aval de l'électrode ($L_{\text{contre-électrode}} = 2$ mm, $L_{\text{électrode}} = 5$ mm, $P_e = 60$ W à $f_0 = 6$ kHz pour le verre borosilicate).....	84
Figure 35. Amplitude de la vitesse maximum mesurée en fonction de la fréquence à une et deux DBDS ($L_{\text{contre-électrode}} = 2$ mm, $L_{\text{électrode}} = 5$ mm, $P_e = 60$ W, $d = 2$ cm pour le verre borosilicate).....	85
Figure 36. Double circulation dans la zone du jet.....	86
Figure 37. Profils de vitesse en fonction de la distance inter-DBDS (Mesures effectuées jusqu'à 16 mm en dessus de la 2 ^{ème} DBDS et à $f_0 = 5,4$ kHz pour le verre borosilicate).....	86
Figure 38. Puissance mécanique en fonction de la distance inter-DBDS d'une surface à deux DBDS ($f_0 = 5,4$ kHz).	87
Figure 39. Configuration des électrodes des surfaces du canal actif.....	88
Figure 40. Effet miroir du canal actif.....	89
Figure 41. Photos du canal actif en absence du plasma (gauche), en présence du plasma (milieu) ainsi que son emplacement dans la cage de Faraday (droite).	89
Figure 42. Evolution de la fonction de transfert du système équivalent électrique en fonction de la fréquence appliquée au canal actif.....	90
Figure 43. Evolution de la puissance électrique injectée en fonction de la fréquence appliquée (canal actif, 8 DBDS, distance inter-DBDS = 4 cm, $P_e = 60$ W, $H = 25$ mm).....	91

Figure 44. Profil de vitesse du canal actif à H = 25 mm. Les coordonnées du point de mesure sont : x à 16 mm derrière la dernière bande, y au milieu du canal, z variable.	92
Figure 45. $V_{moyenne} = f(F)$ pour H = 25 mm.....	93
Figure 46. Profils de vitesse du canal actif à H = 10 mm. Les coordonnées des points de mesure sont : x à 16 mm derrière la dernière bande, y au milieu du canal, z variable.....	94
Figure 47. $V_{moyenne} = f(F)$ pour H = 10 mm.....	95
Figure 48. Profil de vitesse du canal actif à H = 6 mm. Les coordonnées du point de mesure sont : x à 16 mm derrière la dernière bande, y au milieu du canal, z variable.....	96
Figure 49. Les profils de vitesse pour les trois hauteurs H = 25 mm, H = 10 mm et H = 6 mm.....	98
Figure 50. Q et rendement = f(H).	98
Figure 51. Composition interne de la pompe EHD.....	104
Figure 52. Format externe de la pompe EHD.	105
Figure 53. Assemblage de la pompe EHD avec vue sur la partie interne.....	105
Figure 54. Photo du rack : (a) Transformateur ; (b) Amplificateur à basse fréquence ; (c) Générateur basse fréquence ; (d) boîtier EHD ; (e) Boîtier de mesure de la vitesse du vent électrique ; (f) Oscilloscope ;.....	107
Figure 55. Vue globale des connexions de la pompe EHD.....	107
Figure 56. Piquage en sortie de la pompe EHD.....	108
Figure 57. Emplacement de la Sonde de Pitot.....	108
Figure 58. Pertes de charge au niveau du coude de la conduite d'entrée de la pompe EHD.....	109
Figure 59. Maillage de la pompe EHD pour les conditions suivantes: température des polluants = 60°C ; Débit volumique d'air de refroidissement = 2 m ³ /h ; Pression = 1,013 bar ; débit volumique d'entrée des polluants = 10 m ³ /h.....	110
Figure 60. Premier test électromécanique de la pompe EHD.....	110
Figure 61. PID rassemblant les trois parties principales de la maquette expérimentale: I. Bâti VERI, II. Pompe EHD, III. Métrologie et méthodes de caractérisation.	112
Figure 62. Bâti VERI + rack contenant la pompe EHD et son alimentation électrique.....	113
Figure 63. Chromatogrammes d'entrée et de sortie du Butyraldéhyde à D = 0,48 Nm ³ /h.	116
Figure 64. Chromatogrammes d'entrée et de sortie du Butyraldéhyde à D = 1,23 Nm ³ /h.....	117
Figure 65. Taux d'abattement des COV en fonction du débit d'air imposé en entrée de la pompe EHD.....	118
Figure 66. Etude du débit de COV converti en fonction du débit d'air (Nm ³ /h).....	120
Figure 67. Taux d'abattement du mélange de COV en fonction du débit d'air.	122
Figure 68. Variation de la concentration d'ozone en sortie du réacteur EHD en fonction du débit d'air 4 Nm ³ /h et 10,74 Nm ³ /h respectivement.....	128
Figure 69. Schéma de principe de la GC-MS.....	135

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1. Bilan comparatif des procédés classiques de traitement des COV : Procédés de récupération de 1 à 4 et les procédés de destruction de 5 à 8 (N. Soltys, 1998).	37
Tableau 2. Permittivité relative de différents types de barrière diélectrique.....	42
Tableau 3. Différence des propriétés entre DBD de volume et DBD de surface.	43
Tableau 4. Différentes énergies de liaison (K. Urashima, 2000).	55
Tableau 5. Présentation de la conversion de plusieurs types de COV traités par DBD.	58
Tableau 6. Taux d'abattement des COV en fonction du débit imposé en entrée de la pompe EHD en mode d'injection <i>polluant par polluant</i>	118
Tableau 7. Sous-produits de décomposition du 2-butanone.....	123
Tableau 8. Sous-produits de décomposition de l'acétone.....	127

ABRÉVIATIONS

ABS : Acrylonitrile Butadiène Styrène

CITEPA : Centre Interprofessionnel Technique d'Etudes de la Pollution Atmosphérique

COV : Composés Organiques Volatils

COVNM : Composés Organiques Volatils Non Méthaniques

CPG : Chromatographie en Phase Gazeuse

DS : Décharge de surface

DBDS : Décharge à Barrière Diélectrique de Surface

EHD : Electrohydrodynamique

FID : Détecteur à Ionisation de Flamme

GBF : Générateur Basses Fréquences

GC-MS : Chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse

HT : Haute Tension

I : Intensité de courant en milliampère

MM : Masse molaire en g/mol

MS : Spectrométrie de masse

N : Nombre de couples d'électrodes

PEG : Polyéthylène Glycol

PID : Process and Instrumentation Diagram ou schéma tuyauterie et instrumentation

PMMA : Polyméthacrylate de méthyle

Q : Débit d'air en Nm³/h

RLC : Résistance (R), Inductance (L) et Capacité (C)

S.A. : Surface active

SIE : Specific Input Energy en J/L

TCD : Détecteur à Conductivité Thermique

U : Tension en kV

VLE : Valeur Limite d'Exposition (ppm)

VVE : Vitesse du Vent Electrique en m/s

η : Rendement électromécanique (%)

INTRODUCTION

Depuis 1990, les problèmes menaçant l'atmosphère terrestre sont devenus des préoccupations majeures pour les sociétés. La pollution de l'atmosphère résultante des activités humaines principalement par les rejets des transports et les industries, contribue à divers impacts sur l'environnement et la santé humaine.

Les Composés Organiques Volatils (COV), émis dans l'atmosphère sous différentes formes par les activités industrielles, sont considérés comme des polluants atmosphériques principaux. De ce fait, de nombreuses stratégies de traitement des émissions des COV ont été élaborées. Elles se répartissent en deux familles de méthodes : les méthodes récupératrices et les méthodes destructives. Pour le traitement des forts débits de gaz faiblement concentrés en COV, caractéristiques des principales sources de COV industriels, il n'existe que très peu de procédés adaptés et efficaces. Les procédés de biofiltration et de catalyse hétérogène, sont pour l'heure les plus utilisés mais ils présentent deux contraintes majeures: leur sélectivité peu modulable et leur emprise au sol.

Dans ce contexte, une nouvelle méthode de dépollution a fait l'objet de diverses études scientifiques, il s'agit du traitement par plasma non-thermique. Le plasma non-thermique est un gaz froid partiellement ionisé et hautement réactif ayant pour principe la conversion de l'énergie introduite en des réactions chimiques par la génération d'électrons assez énergétiques pour exciter, dissocier, ioniser provoquant l'énergie en partie perdue dans le chauffage global du gaz. Autour de ce principe et du fait de leurs propriétés physico-chimiques particulières, les plasmas non thermiques sont aujourd'hui utilisés pour de nombreuses applications telles que le traitement de surface, la synthèse de matériaux, la décontamination biologique et le de-NOx. Différentes méthodes se sont étendues au fil des années et qui sont toujours en cours d'évolution, elles se distinguent par plusieurs paramètres comme le type d'alimentation électrique, la géométrie du réacteur ou la nature de la décharge générant le plasma.

L'étude présentée dans ce manuscrit fait l'objet d'une coopération entre le centre Procédés, Energies Renouvelables et Systèmes Energétiques (PERSEE) Mines Paris Tech et l'équipe Veolia Recherche et Innovation (VERI). L'objectif de cette thèse est d'étudier le traitement des effluents gazeux industriels, principalement les COV, par un type de plasmas non thermiques original: les plasmas de surface. Ces plasmas ont une double capacité avantageusement exploitable pour la conception de nouveaux systèmes de traitement: (i) une capacité de traitement chimique avec une sélectivité contrôlable, (ii) une capacité de pompage aéraulique par effet électrohydrodynamique (EHD). Le but est ici d'atteindre une grande efficacité d'abattement des COV à un faible coût énergétique d'où la conception d'un réacteur plasma chimiquement actif nommé pompe EHD, capable d'aspirer et de traiter simultanément de l'air pollué en COV.

Dans notre étude, le procédé mis en œuvre fait partie des décharges à barrière diélectrique de surface (DBDS). La pompe EHD est constituée d'un système d'électrodes actives et passives. Ces dernières sont séparées par une plaque en Quartz jouant le rôle de barrière diélectrique. Les électrodes actives sont alimentées par une haute tension alternative à une fréquence allant de 1 à 10 kHz. Les électrodes passives sont placées au-dessus de la barrière diélectrique.

La première partie de la thèse concerne, outre la compréhension des plasmas de surface et leurs modalités de fonctionnement, principalement la recherche des paramètres électriques, géométriques et matériaux optimaux de la décharge à barrière diélectrique de surface. Il s'agit de i) définir théoriquement la réponse fréquentielle du système en étudiant le signal d'excitation électrique, ii) déterminer expérimentalement la géométrie optimale en se basant sur différents paramètres (nature du matériau diélectrique et distance inter-DBDS d'électrodes) d'une surface active menant ainsi à la conception du réacteur plasma nommé canal actif et ultérieurement de la pompe EHD.

La seconde partie expérimentale est consacrée à l'étude de la conversion de cinq molécules modèles de COV choisies par VERI réparties en trois familles de composés: cétone, aldéhyde et les esters; à savoir l'acétone, le 2-butanone, le butyraldéhyde, le méthyl

butyrate et le méthyl valérate en fonction du paramètre physique de la pompe EHD qui est le débit d'air. Un banc expérimental est mis en œuvre pour effectuer le mélange air + COV puis l'acheminer dans la pompe EHD. Une identification d'un débit optimal pour la meilleure conversion des COV nous permet de comprendre les performances de la pompe EHD. Par ailleurs, les sous-produits de dégradation des COV en sortie de la pompe sont analysés qualitativement à l'aide de la chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse pour avoir une meilleure compréhension des mécanismes chimiques liés à la dégradation des COV.

Chapitre 1

Position du problème de traitement des COV et conception d'un dispositif original de dépollution par plasma non-thermique

1.1. Introduction

La pollution atmosphérique est, aujourd'hui, au centre des préoccupations de notre société. L'industrie émet chaque jour dans l'environnement de grandes quantités de matières polluantes à l'origine de nuisances sanitaires et écologiques. Les composés organiques volatils (COV) constituent une famille de polluants atmosphériques problématiques car, à la fois, abondamment produits par les activités humaines (industrie, transport...) et particulièrement dangereux pour l'environnement. Suivant les émissions des effluents gazeux dans l'environnement, plusieurs méthodes de traitement ont fait l'objet de recherches scientifiques au fil des années pour améliorer les performances de traitement principalement en coûts énergétique et d'investissement. Chacune des méthodes de traitement possède ses propres caractéristiques en termes de gamme de débit et concentration des effluents à traiter. Ce chapitre consiste d'une part, à définir les COV, à identifier les effets pour la santé humaine et pour l'environnement, les réglementations existantes et le principe des méthodes de traitement principales existantes dans la littérature. D'autre part, il s'agira de définir le plasma non thermique et sa création à pression atmosphérique, les caractéristiques de la décharge à barrière diélectrique de surface (DBDS) et la force électrohydrodynamique (EHD), l'exposition des paramètres électriques, géométriques et matériaux influençant la conversion électromécanique de la DBDS et les différents mécanismes menant à la décomposition des COV par ce type de décharge. A l'issue de cet état de l'art, une démonstration de notre choix de procédé vis-à-vis du traitement des COV sera mise en œuvre.

1.2. Définition, effets et réglementations des COV

1.2.1. Définition des COV

Les COV sont définis selon chaque organisme international différemment suivant la composition chimique et la réactivité photochimique. En France, la définition prise en compte correspond à la directive 1999/13/CE du conseil Européen du 11 Mars 1999 où un composé organique volatil est : « tout composé contenant au moins un élément carbone et un ou plusieurs des éléments suivants : hydrogène, halogènes, oxygène, soufre, phosphore, silicium ou azote, à l'exception des oxydes de carbone et des carbonates et bicarbonates inorganiques ». Pour mettre en valeur la notion de la volatilité, cette dernière est définie comme suit dans la directive: « Tout composé organique ayant une pression de vapeur de 0,01 kPa ou plus à une température de 293,15 K ou ayant une volatilité correspondante dans les conditions d'utilisation particulières ». Le méthane, gaz à effet de serre, naturellement présent dans l'air, est exclu des autres COV d'où l'existence de l'appellation du groupe de COV non méthaniques ou COVNM. Les COV appartiennent aux différentes familles de composés organiques comme les aldéhydes, cétones, esters, acides, etc.

1.2.2. Sources de COV

D'après le CITEPA, les émissions de COV en France Métropolitaine en 2012 représentent 711 kT, voire une baisse de 73% depuis 1988. Elles se répartissent dans six secteurs d'activité : transformation de l'énergie, industrie manufacturière, résidentiel/tertiaire, agriculture et sylviculture, transport routier ou autres transports. Ces six secteurs sont décomposés en différents sous-secteurs principaux sont :

- Le résidentiel tertiaire répartit lui-même en quatre catégories qui sont les émissions des chaudières < 50 MW, l'utilisation domestique de solvants, les engins mobiles non routiers et les feux ouverts.
- L'industrie manufacturière reconnue par les rejets d'industrie, les transports routiers, l'agro-alimentaire, la construction, etc.

On remarque que le résidentiel représente la source d'émission la plus élevée des COV avec 40% émis principalement d'après Citepa par la consommation de solvants à usage domestique ou dans le bâtiment et la combustion du bois. L'industrie manufacturière est

en faible décroissance par rapport à l'année 2010, émettant 36% des émissions globales et résultant de l'utilisation de peinture. Le secteur du transport routier représente 10% des émissions des COV, émissions émises par ce secteur largement diminués depuis 1990 en vue des développements des pots catalytiques pour les voitures. Les autres secteurs qui contribuent à l'émission des COV en faibles pourcentages sont la transformation d'énergie avec 6%, les autres transports que le transport routier avec 5% et l'agriculture/sylviculture avec 2% des émissions globales de COV. Toutes ces émissions rendent nécessaire la création de différentes méthodes de traitement des COV.

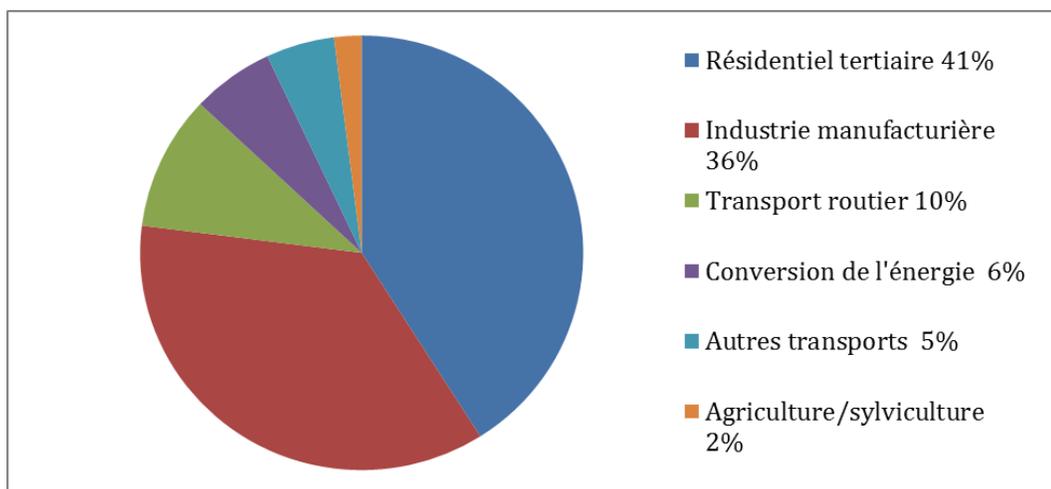


Figure 1. Distribution des sous-secteurs des émissions de COV en 2012 selon des estimations préliminaires en France Métropolitaine. Source : CITEPA / Format SECTEN – Avril 2014.

1.2.3. Effets

Les effets des COV sont multiples pour la santé humaine et pour l'environnement :

- Pour la santé humaine, les effets sont soit directs ou indirects selon le type de COV. Certains d'entre eux possèdent une toxicité aiguë et/ou chronique dépendant de la durée et la dose d'exposition tandis que d'autres sont cancérigènes comme le benzène. Cependant, ils peuvent causer des irritations de la muqueuse et de la peau comme pour les aldéhydes par exemple.
- Pour l'environnement, les COV sont considérés comme des gaz à effet de serre. En présence du rayonnement solaire et des irradiations UV, ils réagissent avec les oxydes d'azote pour créer l'ozone troposphérique à partir de l'oxygène de l'air formant ainsi la pollution photochimique. L'ozone, considéré comme polluant, est

nocif pour la santé pour une certaine valeur limite d'exposition (VLE) de 0,2 ppm (ou 0,4 mg/m³) (INRS, Juillet 2012).

L'importance de traitement des COV réside dans l'élimination de tous ces effets suivant des procédés classiques déjà bien décrits dans la littérature ou des procédés innovants alliant les travaux de recherche et la demande des industriels au sujet de leur traitement.

1.2.4. Règlements sur les COV

Les émissions des COV dans l'environnement par les différents secteurs d'application suscitent la présence de réglementations en fonction de la quantité et la nature de COV d'où la création de la directive européenne 2001/81/CE. Dans le cadre de cette dernière directive et du protocole de Göteborg, la France s'est engagée à diminuer la quantité des émissions de COV de 2300 kT en 1998 jusqu'à 1050 kT en 2010 (CCI Paris Ile de France , 2010).

De même, la France a mis en place une réglementation basée sur quatre priorités d'actions qui sont :

- La composition des produits visant la diminution principalement de la quantité de solvants organiques dans les peintures.
- Les sources mobiles sont considérées comme les responsables primordiaux des émissions des COV. Plusieurs solutions ont été trouvées depuis 1987 jusqu'à aujourd'hui : les catalyseurs de postcombustion, les pots catalytiques, le développement des biocarburants, les carburants gazeux et les véhicules électriques.
- Les sources fixes.
- La surveillance des émissions par le développement d'une politique d'autosurveillance qui porte sur les émissions des polluants et la qualité du milieu environnant.

1.3. Procédés classiques de traitement des COV

On distingue deux types de procédés classiques de traitement permettant soit i) la récupération par absorption, adsorption, condensation ou séparation membranaire ou ii) la destruction par oxydation thermique, oxydation catalytique, les traitements biologiques et récemment par le plasma non-thermique. Les méthodes récupératives permettent de récupérer une partie des molécules des COV à traiter tandis que les méthodes destructives, éliminent presque entièrement les molécules de COV à traiter tout en formant des molécules moins nocives voire plus valorisante à l'environnement.

1.3.1. Procédés récupératifs

Les techniques de récupération des COV consistent à diminuer leur volume par des méthodes de transferts sur des matrices gazeuses, soit sur des substrats solides comme l'adsorption ou bien sur des substrats liquides comme l'absorption (Soltys, 1998). Les différents types de procédés listés dans cette catégorie sont l'absorption, l'adsorption, la condensation et la séparation membranaire.

1.3.1.1. Absorption

L'absorption des polluants organiques repose sur le principe de transfert de masse d'un composé de la phase gazeuse vers la phase liquide. Lorsque le composé transféré n'est pas modifié, le processus est une simple absorption physique. Pour augmenter le transfert du composé, une réaction chimique peut être mise en œuvre.

Ce principe est démontré par la loi d'équilibre de Henry tel que :

$$Y = mX \tag{1.1}$$

Où Y, m et X sont la composition molaire du polluant en phase gazeuse, le coefficient de partage et la composition molaire du polluant en phase liquide, respectivement.

L'efficacité du traitement de gaz par absorption dépend de la nature des composés, de la solution de lavage utilisée, du type de colonne retenu (colonne à garnissage ou colonne à pulvérisation et atomisation) et des conditions de fonctionnement.

Le procédé de lavage dépend de deux étapes : le choix du liquide de lavage et le type de contacteur à mettre en œuvre. Le liquide de lavage dépend quant à lui de plusieurs critères :

- Forte capacité d'absorption
- Limitation de la consommation énergétique par la viscosité faible
- Pression de vapeur suffisamment basse
- Être inerte vis-à-vis des matériaux utilisés

L'ajout dans la solution de lavage de réactifs chimiques, permet l'élimination des polluants et la modification du profil de concentrations à proximité de l'interface, favorisant de plus le transfert de la phase gazeuse vers la phase liquide (Cloirec, 2004).

L'absorption permet de traiter des concentrations relativement faibles en COV, entre 500 ppm et 5000 ppm avec des débits variant entre 3000 et 20000 m³/h.

1.3.1.2. Adsorption

L'adsorption est un phénomène physique permettant à un solide de fixer les molécules du COV à sa surface par les forces de Van Der Waals. Cette méthode est utilisable pour une large gamme de débits allant de 100 à 100 000 m³/h et à des concentrations faibles de l'ordre de 20 à 5000 ppm. Son principe est de fixer des molécules de gaz d'une manière réversible et exothermique sur différents types de supports solides ou filtres dédiés à la récupération des COV qui sont : les charbons actifs, les zéolithes et les adsorbants à base de polymère dans une colonne d'adsorption.

La colonne d'adsorption se répartit en deux zones : la zone amont où l'adsorbant est saturé par le flux d'air contenant les COV et la zone aval où l'adsorbant est vierge. La frontière entre ces deux zones constitue le front d'adsorption. Ultérieurement, une étape de désorption consiste à régénérer les COV traités. La régénération du filtre peut se faire par le chauffage direct, le lavage chimique ou par utilisation d'un flux de vapeur à haute température.

L'adsorption dépend quantitativement des propriétés physiques du support solide (porosité, surface spécifique, ...) et des propriétés chimiques du COV (acidité, affinité sur les composés polaires ou non polaires, etc...). Cette méthode s'adapte aux variations de débits. Par contre, l'un des inconvénients majeurs est la régénération de l'adsorbant.

1.3.1.3. Condensation

La condensation d'un COV permet de le transformer de l'état gazeux à l'état liquide en le récupérant. Le taux d'évaporation d'un COV est proportionnel à sa vapeur de pression. Le principe de la condensation est limité par la pression de vapeur saturante des COV. À pression constante et pour une composition globale donnée, un mélange est entièrement gazeux à une température supérieure à sa température de rosée, il est entièrement liquide à une température inférieure à sa température d'ébullition et il est en équilibre liquide-vapeur entre ces deux températures. Pour pouvoir aboutir aux différentes plages de température, plusieurs sources de froid peuvent être utilisées comme : l'eau et l'air aux températures opératoires allant de 10°C à 20°C, l'eau saline, la réfrigération mécanique aux températures très faibles de 0 à -30°C et les fluides cryogéniques tels que l'azote liquide qui peut atteindre une température de -140°C (condensation cryogénique). Différentes équations ont été proposées pour établir la relation entre pression de vapeur et température couramment utilisée est l'équation d'Antoine :

$$\text{Log } p = \frac{A - B}{t + C} \quad (1.2)$$

Où A , B , C sont des constantes empiriques, déterminées expérimentalement et t la température en degrés Celsius. Cette équation est applicable non seulement pour les variations des pressions de vapeur avec la température, mais aussi pour les effets de la température sur certaines propriétés physiques (viscosité, densité, indice de réfraction).

La condensation se fait d'une manière multi-étagée en fonction du degré de volatilité du COV considéré. Le ou les premiers étages consistent à pré-refroidir le COV, éliminer l'eau et le COV le moins volatil tandis que le dernier étage permet de condenser les COV les plus volatils. L'efficacité de ce procédé dépend de la nature et particulièrement de la pression de vapeur du polluant.

Différentes techniques de condensations existent selon la température à atteindre (Cloirec, 2004) :

- Condensation à contact direct entre l'effluent et le liquide de refroidissement.
- Condensation à contact indirect entre l'effluent et le liquide de refroidissement.
- Condensation à contact indirect avec le fluide caloporteur intermédiaire.

La condensation s'applique aux débits inférieurs à 1000 Nm³/h et permet de contrôler des effluents avec de fortes concentrations en COV (5000 à 10000 ppm).

1.3.1.4. Séparation par technique membranaire

Cette technique repose sur le principe de mettre en contact l'air chargé en COV sur l'une des faces d'une membrane en polymère dense tout en maintenant la face avale sous pression réduite (S. Revah, 2005). Le flux de transfert des COV par la membrane dépend de plusieurs facteurs tels que : la sélectivité, définie comme le rapport des perméabilités des composés présents dans l'effluent, est un paramètre essentiel de la séparation ; les caractéristiques du couple membrane/COV ; la différence de pression entre les faces de la membrane et la perméabilité ;

Une optimisation du flux de transfert prend en considération différents paramètres comme la diminution de l'épaisseur de la membrane, l'augmentation de la perméabilité d'où l'utilisation du polymère spécifique augmentant la sélectivité de COV comme le polydiméthylsiloxane (PDMS) en rendant la surface apolaire et l'augmentation de la différence de pression entre les deux faces de la membrane.

Le champ d'application de cette technique de récupération de COV n'est envisageable qu'aux débits et concentrations faibles et que pour un seul type de COV. Dans la plupart des cas, cette technique est couplée à la condensation ou l'adsorption.

1.3.2. Procédés destructifs

1.3.2.1. Oxydation thermique

Le procédé d'oxydation thermique ou d'incinération consiste à brûler les molécules organiques en présence de dioxygène dans le but de récupérer des composés inorganiques à des températures élevées (700°C – 1000°C) sous des processus d'oxydation. Les molécules d'eau et du CO₂ sont dans la plupart des cas résultant de la réaction d'oxydation, moins néfastes pour l'environnement. Cependant, la présence des hétéroatomes dans les molécules organiques contribue à la formation des produits indésirables comme les NO_x et

les SO_x (Soltys, 1998) d'où la nécessité de prévoir un traitement complémentaire de neutralisation.

La réaction d'oxydation globale des hydrocarbures, C_mH_n, est donnée par :



Les conditions indispensables à la réaction d'oxydation sont reconnues par la « règle des 3 T » (LeCloirec, 2004) :

- Température : elle doit être supérieure à la température d'autoinflammation du polluant à oxyder (> 700°C pour une oxydation thermique) ;
- Turbulence : le mélange entre les polluants et l'oxygène nécessaire à la réaction doit être le plus homogène possible ;
- Temps de séjour : le temps de séjour des gaz à la température requise doit être suffisant (0,5 à 1,5 s).

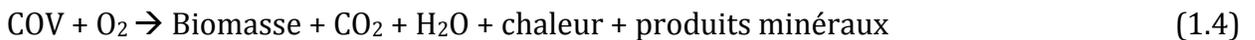
Les systèmes d'oxydation thermique sont constitués habituellement d'une chambre de combustion munie d'un brûleur alimenté par du gaz naturel, propane ou autre combustible, d'un échangeur primaire permettant de préchauffer les effluents en utilisant l'énergie contenue dans l'air sortant de la chambre de combustion, parfois d'un échangeur secondaire permettant de valoriser l'énergie thermique à la sortie de l'installation (production d'eau chaude, de vapeur ou de fluide thermique). Les effluents sont introduits dans la chambre de combustion où la température est maintenue à plus de 750°C par appoint de combustible, si la concentration en polluants n'est pas suffisante (F.I. Khan, 2000). Pour améliorer le taux de destruction des COV plusieurs paramètres sont pris en considération comme la température de fonctionnement qui est dépendante de la concentration en COV, l'énergie d'activation de décomposition des COV, la teneur en oxygène, la turbulence et le temps de séjour des COV dans l'incinérateur. Cette technique est utilisée principalement à des débits variés et élevés (100 – 850000 Nm³/h) et à des concentrations entre 100 et 2000 ppm.

1.3.2.2. Oxydation catalytique

L'oxydation catalytique est une technique d'oxydation effectuée aux températures de l'ordre de 200°C à 350°C. Elle repose sur le même principe que l'oxydation thermique mais en présence d'un catalyseur, généralement des métaux précieux (Au, Ag, Pt) ou des oxydes métalliques (F.I. Khan, 2000). Elle permet notamment d'éliminer toutes traces de NO_x dans les sous-produits formés. L'efficacité de conversion et de destruction des COV à travers ce procédé est dépendante des conditions opératoires comme la température et le temps de séjour du polluant. Plus la température est importante, plus les COV sont détruits efficacement. La nature du catalyseur est sélectionnée en fonction du type de COV à éliminer. La nécessité d'opérer à haute température provoque la perte d'une grande partie de l'énergie en chauffage du gaz. Un des avantages de ce procédé est la non-formation de sous-produits indésirables. Une partie de l'énergie est perdue dans l'étape primordiale qu'est le chauffage du gaz d'où la nécessité de mettre en place un procédé de récupération de chaleur.

1.3.2.3. Destruction par voie biologique

Le traitement biologique est basé sur une réaction d'oxydation exothermique des COV en présence de dioxygène et de micro-organismes, celle-ci conduisant à la formation de biomasse, d'eau et de produits minéraux :



Le traitement biologique s'effectue en deux étapes, l'absorption dans la phase aqueuse ou un biofilm suivie par l'oxydation. Il permet de traiter de moyennes concentrations de COV contenus dans de forts débits gazeux. De plus, ce procédé s'effectue à température ambiante, ce qui diminue son coût. Selon le caractère mobile ou fixe de la phase aqueuse et de la biomasse, plusieurs configurations de procédés biologiques existent : le biofiltre (phase aqueuse et biomasse fixes), le laveur biologique (phase aqueuse mobile et biomasse en suspension) et le filtre percolateur (phase aqueuse mobile et biomasse immobilisée).

1.3.2.4. Plasma non-thermique

Le plasma non-thermique a fait l'objet de différentes recherches en vue de destruction des COV nocifs contenus dans les effluents gazeux. Il peut être créé par faisceaux d'électrons ou par décharges comme principalement les décharges à barrière diélectrique de volume ou de surface et les décharges couronnes. La différence entre ces méthodes réside dans les conditions opératoires de chacune, la configuration géométrique du réacteur ainsi que le type d'alimentation électrique. Dans ces décharges, le champ électrique permet de transférer une majeure partie de l'énergie aux électrons. Les plus énergétiques vont ensuite provoquer des collisions inélastiques avec les molécules du gaz, comme le dioxygène et le diazote, et créer des espèces réactives comme l'oxygène atomique et ses états excités $O(^1D)$ et $O(^3P)$, les radicaux O_2^{\bullet} et N_2^{\bullet} et le radical hydroxyle OH^{\bullet} . Ces dernières réagissent avec les molécules des COV suivant plusieurs types de réactions pour former principalement l'ozone et les différents sous-produits en fonction de la nature du COV mis en jeu.

En comparaison avec les techniques traditionnelles de traitement des COV, le traitement par plasma hors équilibre se fait à froid. Le plasma n'échauffe pas le gaz, il l'active chimiquement à froid, ce qui permet au final un traitement à basse consommation énergétique.

Donc les produits de décharge reconnus comme des oxydants puissants permettent l'oxydation des COV et font du procédé plasma froid une technique attirante pour le traitement des COV.

1.4. Bilan comparatif des procédés de traitement de COV

Un bilan comparatif des avantages et inconvénients des procédés de traitement des COV est présenté dans le Tableau 1. Pour choisir le meilleur procédé de traitement des COV en fonction des valeurs de rejet des émissions gazeuses dans l'atmosphère, deux paramètres essentiels sont à prendre en considération: la concentration C (ppm ou g/m^3) du polluant et la valeur de débit pour le traiter Q (Nm^3/h).

Pour la mise en œuvre du procédé de traitement de COV dans le laboratoire d'accueil PERSEE, on s'est dirigé précisément sur le traitement des COV par le plasma non-thermique. Ce choix-là est basé sur deux constatations faites d'après cette première partie de l'état de l'art qui sont :

i) La première se rapporte aux gammes de concentrations faibles de COV. Le plasma non-thermique est un état de la matière dans lequel des réactions chimiques peuvent avoir lieu mais en état de non-équilibre thermodynamique à la différence de toutes les autres méthodes conventionnelles de traitement des COV qui se font en conditions d'équilibre thermodynamique. Le faible coût de consommation énergétique fait du plasma un procédé distingué aussi. Par contre, l'inconvénient majeur de ce procédé est la formation des sous-produits générés des différentes réactions chimiques à faible énergie.

ii) La deuxième constatation concerne la gamme de débit à laquelle le plasma est utilisé entre 10 Nm³/h et 1000 Nm³/h. L'objectif de la thèse est de mettre en œuvre une pompe active à plasma froid (ou pompe EHD) permettant de pomper un débit de 10 Nm³/h de COV tout en ayant d'importants taux d'abattement de COV.

Méthodes de traitement des COV	Débit de COV (Nm ³ /h)	Concentration des COV (ppm)	Avantages	Inconvénients
1- Absorption	3000 - 20000	2 - 50	- Efficacité de traitement élevée	- Utilisation de solvants
2- Adsorption	< 100000	20 - 50000	- Adapter aux variations de débits - Simple utilisation	- Obstruction des pores par certains composés - Zéolithes sont chers
3- Condensation	< 1000	5000 - 10000	- Récupération de solvants	- Coût énergétique - Débit limité - Limitation par

				rapport aux COV à forte tension de vapeur
4- Séparation membranaire	600 – 6000		<ul style="list-style-type: none"> - Sélectivité - Coût énergétique faible 	<ul style="list-style-type: none"> - Pertes de charge - Temps de séjour important - Nettoyage fréquent
5- Oxydation thermique	100 – 850000	100 - 2000	<ul style="list-style-type: none"> - Efficacité élevée - Chaleur récupérée de 60 à 98% 	<ul style="list-style-type: none"> - Coût énergétique élevé - Coût d'investissement important - Sélectivité - Formation de produits secondaires comme les NO_x
6- Oxydation catalytique	1000 – 20000	1000-100000	<ul style="list-style-type: none"> - Efficacité élevée - Chaleur récupérée de 50 à 70% 	<ul style="list-style-type: none"> - Coût énergétique élevé - Coût d'investissement important - Formation de produits secondaires
7- Traitement biologique	< 150000	1-100000	<ul style="list-style-type: none"> - Traitement de faibles concentrations de COV - Faibles coûts d'investissement 	<ul style="list-style-type: none"> - Faible sélectivité - Emprise au sol

8- Plasma	1- 10000	0,01 - 100	- Destruction physico-chimique à température ambiante	- Consommation énergétique
-----------	----------	------------	---	----------------------------

Tableau 1. Bilan comparatif des procédés classiques de traitement des COV : Procédés de récupération de 1 à 4 et les procédés de destruction de 5 à 8 (N. Soltys, 1998).

1.5. Généralités sur les plasmas

Le plasma, est couramment défini comme le quatrième état de la matière au même titre que les états solide, liquide et gaz. Historiquement, il fut découvert par Sir William Crookes en 1879 et Irvin Langmuir le nomma plasma en 1928. C'est le plus répandu des quatre dans l'univers. C'est un gaz ionisé dans lequel coexiste des électrons libres, des ions et des neutres (atomes, molécules, radicaux). Il réagit de ce fait à des champs électromagnétiques qui lui sont soumis. La présence de charges électriques libres le rend électriquement conducteur, plus le plasma est ionisé plus sa conductivité électrique est grande. Il existe deux types de plasma: i) le plasma thermique et ii) le plasma non-thermique (ou plasma froid). Le plasma thermique est à l'équilibre thermodynamique local c'est-à-dire que les électrons et les autres espèces sont quasiment à la même température, à la différence du plasma non-thermique qui ne vérifie pas l'équilibre thermodynamique local et pour lequel la température des électrons est très supérieure à celle des autres espèces.

La classification des plasmas se fait à l'aide du degré d'ionisation défini par la relation :

$$\alpha = \frac{n_e}{n_e + n_0} \quad (1.5)$$

Où n_e est la densité électronique et n_0 la densité des neutres. On admet qu'un plasma est dit non-thermique lorsque son degré d'ionisation est inférieur à 10^{-4} . La température du gaz (T_g) est alors liée à la température électronique (T_e) et au rapport entre l'énergie électrique accumulée par un électron (charge e) sur la distance de son libre parcours moyen λ_e et l'énergie thermique dissipée :

$$T_g = T_e \left[1 - \frac{m_g}{4m_e} \left(\frac{\lambda_e e E}{\frac{3}{2} k T_e} \right)^2 \right] \quad (1.6)$$

Où k représente la constante de Boltzmann, m_e et m_g sont les masses de l'électron et la masse moyenne des molécules du gaz. Cette relation montre que plus le champ électrique est fort et plus la pression est faible (libre parcours moyen élevé), plus l'écart à l'équilibre thermodynamique est grand. Cela explique la difficulté à créer des plasmas non-thermiques aux hautes pressions ($P \sim$ pression atmosphérique). Mais pour de nombreuses applications industrielles sous contrainte énergétique, il est nécessaire de privilégier la pression atmosphérique afin de s'affranchir du coût élevé d'une installation basse pression (dite sous-vide).

Dans un plasma non-thermique comme celui étudié dans cette thèse, les espèces lourdes restent à une température voisine de la température ambiante alors que les électrons acquièrent grâce au champ extérieur appliqué une énergie suffisante pour effectuer des collisions inélastiques d'excitation, de dissociation et d'ionisation qui rendent le milieu très réactif. Le milieu ne s'échauffe pas ou presque mais il est enrichi en espèces excitées, ions et radicaux dont la réactivité chimique est grandement supérieure aux molécules neutres (cinétiques jusqu'à 100 fois plus rapides) (K. Bouamra, 2003) d'où son intérêt pour de nombreuses applications de traitement chimique (traitement de surface, traitement des gaz, ...). Il est en particulier intéressant d'utiliser un plasma non-thermique pour la dégradation de composés organiques en phase gazeuse dans des procédés de dépollution. En effet, les valeurs d'énergie transférables aux espèces d'un plasma non-thermique par effet électronique peuvent dépasser une dizaine d'eV alors que les énergies de liaison de la plupart des composés organiques (type hydrocarbures) sont inférieures à 10 eV (K. Urashima, 2000).

1.6. Création d'un plasma froid à pression atmosphérique

Le mécanisme de base permettant de débiter l'amorçage à pression atmosphérique d'un plasma non-thermique est l'avalanche électronique, tout comme à basse pression. Les électrons présents dans le gaz sont accélérés par le champ électrique extérieur appliqué.

Ils acquièrent de l'énergie tant qu'ils n'entrent pas en collision avec une molécule de gaz. Pour une distance inter-électrodes et un gaz donné, une avalanche électronique est possible en appliquant une tension minimale appelée « tension de claquage ». Quand le champ extérieur est suffisant, l'ionisation par collision électronique augmente exponentiellement le nombre de porteurs de charge dans le milieu. Le nombre d'électrons N créés à partir d'un électron initial, est :

$$N = e^{(\alpha-\eta) x} \quad (1.7)$$

Où α est le coefficient de dissociation, η le taux d'attachement et x la distance qui le sépare à la cathode. L'avalanche électronique est entièrement contrôlée par la différence des coefficients $(\alpha-\eta)$, qui est elle-même fonction du champ électrique par unité de densité de gaz (Figure 2). Quand l'avalanche est suffisamment efficace, la quantité d'électrons créés provoque alors la création d'une charge d'espace forte par la différence de mobilité entre les électrons et les ions (lourds).

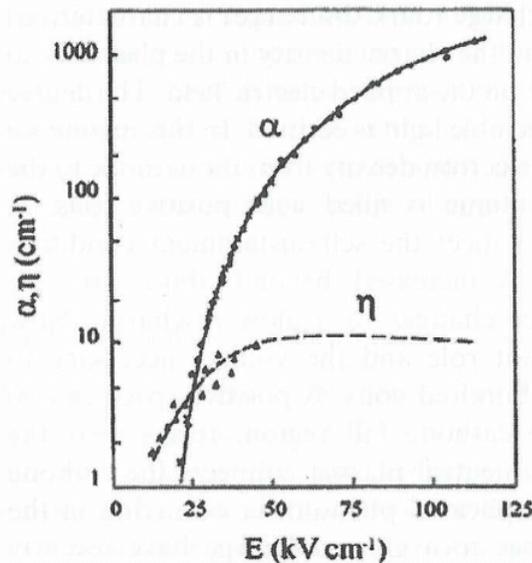


Figure 2. Évolution du coefficient d'ionisation et du coefficient d'attachement dans l'air sec en fonction du champ électrique par unité de densité de gaz (Y. Raizer, 1991).

Cette charge d'espace peut être considérée comme un dipôle ayant son propre champ électrique, d'autant plus intense que l'avalanche se multiplie. Dans ce dipôle, ce champ s'oppose au champ appliqué. Mais en tête d'avalanche, il s'y ajoute, amplifiant ainsi l'accélération des électrons. Lorsque l'avalanche atteint l'anode, les électrons entrent dans

le métal laissant derrière eux une tête positive. Si l'avalanche primaire génère 10^8 électrons, l'avalanche primaire se transforme en streamer (critère de Meek) (J.M. Meek, 1953).

Il existe deux types de streamer : i) le streamer positif qui correspond à une onde d'ionisation se propageant en direction de la cathode, ii) le streamer négatif qui correspond à une onde d'ionisation se propageant en direction de l'anode.

1.6.1. Streamer positif

Un streamer est constitué d'une tête positive qui se propage de proche en proche. En plus de la charge d'espace électrique équivalente créée, les collisions électroniques avec la tête positive du streamer provoquent des états radiatifs. Les photons émis par la désexcitation radiative de ces états sont alors rapidement absorbés et susceptibles d'ioniser le milieu en créant des photoélectrons. Ce procédé isotrope sert surtout en direction de la cathode où ces photoélectrons sont soumis à un champ électrique intensifié correspondant à la somme du champ électrique extérieur et du champ de charge d'espace qui viennent neutraliser la zone positive du streamer. La tête positive se propage alors de proche en proche jusqu'à la cathode. A la fin de la propagation, un canal faiblement conducteur est établi entre les électrodes.

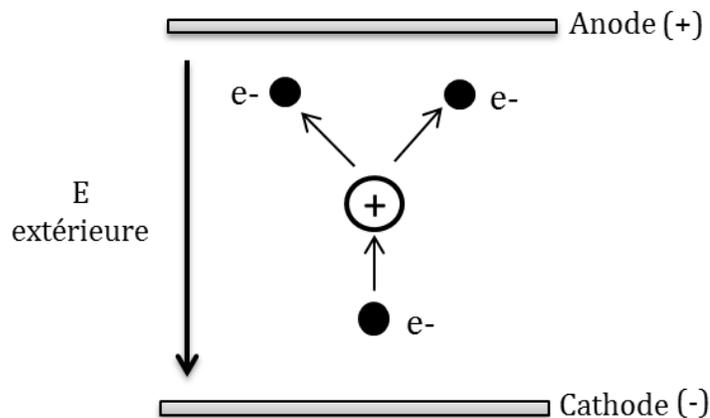


Figure 3. L'avalanche électronique et multiplication des électrons.

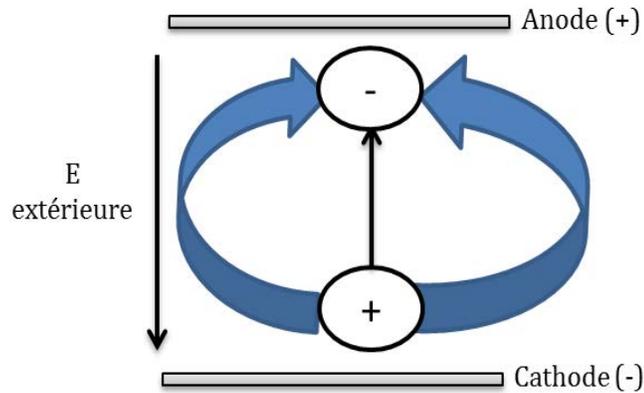


Figure 4. Création du dipôle.

1.6.2. Streamer négatif

Si le critère de Meek est atteint à proximité de la cathode au lieu de l'anode, il y a formation d'un streamer négatif. Dans ce cas, il s'agit d'une tête négative qui se propage donc dans le même sens des électrons. Les électrons en tête sont accélérés dans la zone d'amplification du champ, tandis que les électrons à l'arrière sont dans une zone de champ plus faible contribuant ainsi à la neutralité du canal. Des avalanches secondaires peuvent être produites par photoionisation en aval de la tête, même si dans ce cas la composante de propagation est moins importante.

Lorsque l'un des streamers (positif ou négatif) atteint l'électrode opposée, il s'opère une transition streamer-arc qui termine l'évolution de la décharge électrique. Pour maintenir le plasma non-thermique dans la zone de décharge, il faut éviter le passage à l'arc. Différentes méthodes existent, la plus simple consiste à utiliser une barrière diélectrique entre les électrodes. Si le gaz est de l'air à pression atmosphérique avec une distance inter-électrodes de l'ordre du cm, le plasma est inhomogène et constitué d'un ensemble de petits filaments ($\sim 100 \mu\text{m}$) provenant des streamers qui traversent l'espace gazeux sur des temps très courts ($\sim 10 \text{ ns}$). Dans ce cas, le plasma est dit filamentaire.

1.7. Les Décharges à Barrière Diélectrique (DBD)

Les décharges à barrière diélectrique (DBD) sont connues depuis l'invention de l'ozoneur par Siemens en 1857. Une DBD est une décharge composée de deux électrodes et d'au moins une barrière diélectrique qui permet d'éviter le passage à l'arc. La présence du

diélectrique permet de: i) limiter la charge transportée et la densité de courant moyenne, ii) répartir d'une manière homogène la décharge induisant un claquage du gaz en plusieurs points à la différence de l'arc électrique. Elle ne peut fonctionner qu'en courant alternatif et ne peut pas fonctionner en courant continu à cause de l'effet capacitif du diélectrique qui impose une alternance de polarité pour le cycle de charge/décharge (V. Nehra, 2008). Les matériaux diélectriques les plus couramment utilisés sont : le verre (N. Takeuchi, 2007), le PMMA (M. Forte, 2007), la résine époxy, le quartz, le pyrex et les couches de polymère. Leurs permittivités relatives sont données dans le

Tableau 2. Les fréquences de fonctionnement sont comprises entre 50 Hz et 10 MHz (U. Kogelschatz, 2003). Le courant est dépendant des propriétés géométriques (épaisseur) et physiques du diélectrique (permittivité).

Type de diélectrique	Permittivité relative
Verre	4 – 6
Résine époxy	3,5
Pyrex	4,5
Quartz	3 – 7
Céramique	10 – 10000

Tableau 2. Permittivité relative de différents types de barrière diélectrique.

Le champ d'application des DBD est large, il va du traitement de surface des matériaux (dépôt des couches minces (V. Rohani, 2008), fonctionnalisation, ...) au traitement des effluents gazeux ((R. Atkinson, 2004), (S. Futamura, 1997), (O. Herbinet, 2011),...) en passant par l'excitation laser (J.L. Bobin, 1973).

1.7.1. Les différentes configurations de DBD

Selon la forme géométrique des électrodes et de la ou des barrières diélectriques et de leur disposition relative, deux catégories de DBD existent : les DBD de volume et les DBD de Surface (DBDS). La différence entre les deux configurations se résume dans le Tableau 3 et

la Figure 5 et la Figure 6. Les DBD de volume ont été largement étudiées dans la littérature (U. Kogelschatz, 2003) et ne seront pas développées ici.

Propriétés	DBD de volume	DBD de surface
Champ électrique	Uniforme	Hétérogène
Volume	Déterminé	Variable

Tableau 3. Différence des propriétés entre DBD de volume et DBD de surface.

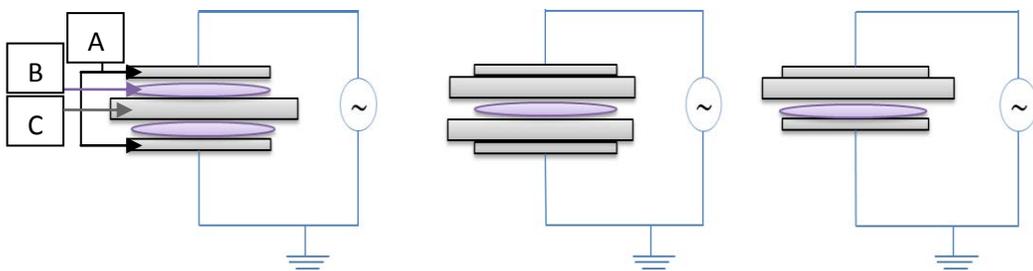


Figure 5. Configurations de DBD de volume existantes : A. Electrodes ; B. Espace gazeux où le plasma se crée ; C. Barrière diélectrique. (U. Kogelschatz, 2003)

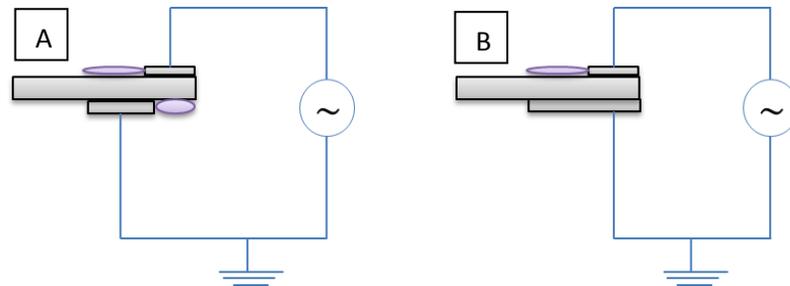


Figure 6. Configurations asymétriques de DBD de surface existantes.

Les DBDS ont été mise au point par Roth et al. (J. R. Roth, 1998) à la fin des années 90 pour la conception d'un nouveau type d'actionneur aérodynamique (G. I. Font, 2006). Contrairement aux DBD de volume, la DBDS, une barrière diélectrique est prise en sandwich entre deux électrodes.

Tout comme les DBD de volume, une tension sinusoïdale est appliquée entre les deux électrodes, créant le plasma à la surface du diélectrique à partir de l'une des deux électrodes comme représenté sur la Figure 6. Il existe différentes configurations de DBDS :

les configurations symétriques et les configurations asymétriques dont quelques exemples sont représentés sur la Figure 6.

La configuration choisie dans cette thèse est une configuration de type asymétrique (présentée dans la Figure 6 (B)) qui présente deux avantages : i) la création d'un plasma sur une seule face de la barrière diélectrique, ii) une fabrication simple sans nécessité d'encastrement d'une électrode dans la barrière diélectrique.

Tout au long de ce manuscrit, nous appellerons électrode non-exposée ou électrode active, placée au-dessous du diélectrique, sans contact avec le gaz plasmagène et portée à haute-tension ainsi que la contre-électrode exposée ou électrode passive est l'électrode placée au-dessus du diélectrique en contact direct avec le gaz plasmagène et reliée à la masse.

1.7.2. Caractéristiques des DBDS et force électrohydrodynamique (EHD)

Contrairement aux DBD de volume, les DBDS ont une particularité qui est de créer un vent électrique dirigé tangentiellement à la surface de la barrière par le biais d'une force dite EHD (électrohydrodynamique). C'est pour cette raison qu'elles ont d'abord été conçues comme actionneurs aérodynamiques. La force EHD s'établit comme représentée sur la Figure 7 (G. I. Font, 2006).

L'application de la différence de potentiel entre les électrodes permet le passage d'un courant de gaz. Sous l'effet de la force de Coulomb, les particules chargées du plasma accélèrent et transmettent une partie de leurs quantités de mouvement aux particules neutres par collision. Un écoulement macroscopique induit résulte de ce processus, appelé « vent électrique ». La propagation de ce vent électrique dans le milieu se fait par transmission visqueuse.

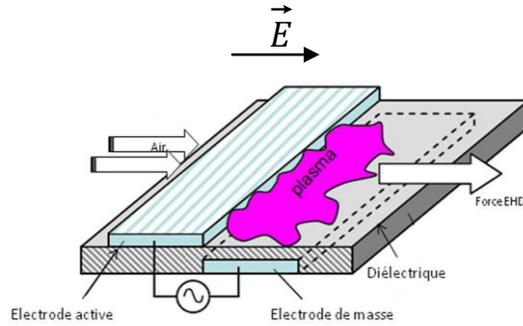


Figure 7. Dispositif de la Décharge à Barrière Diélectrique de Surface reconnu par l'actionneur plasma (G. I. Font, 2006).

D'après (A.V. Likhanskii, 2006), sous l'effet de la force coulombienne, les ions migrent dans le champ et acquièrent une vitesse supérieure aux molécules du gaz environnant. Un nuage d'ions se déplace alors comme un piston poreux et entre en collision avec les molécules neutres du gaz, leur cédant une partie de leur quantité de mouvement. Plusieurs travaux d'études numériques ont été effectués par (A.V. Likhanskii, 2007), (D. M. Orlov, 2007) (D.M. Orlov, 2005) et (J.P. Boeuf, 2005) pour simuler ce transfert de quantité de mouvement et évaluer la poussée générée attribuée à la force EHD.

Des mesures de vitesse en LDV (Laser Doppler Velocimetry) effectuées par Forte *et al.* (M. Forte, 2007) ont montré que l'amplitude de la vitesse du vent induite est plus grande durant l'alternance négative que durant l'alternance positive. En parallèle, des expériences d'imagerie ont montré que la décharge est plus diffuse durant l'alternance négative que durant l'alternance positive où elle est filamentaire. Ces deux observations sont expliquées par le fait d'avoir une surface de contact plus importante entre la région ionisée où s'établit la force coulombienne et la région neutre sur une alternance négative, donc une mesure de la force EHD plus grande.

De plus, d'après (J.P. Boeuf, 2005), sur une alternance positive c'est-à-dire lorsque la décharge est filamentaire, la poussée est concentrée dans la tête de la décharge (gaine d'expansion) ce qui réduit encore plus l'effet de poussée sur une alternance positive. Cette dissymétrie de poussée explique la création d'un vent électrique orienté dans un sens malgré l'alternance de polarité du signal sinusoïdal d'excitation.

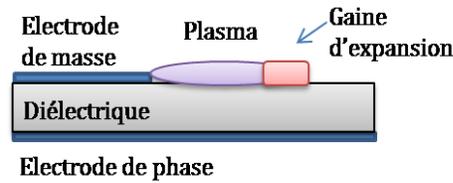


Figure 8. Présentation de la gaine d'expansion pour une décharge filamentaire (J.P. Boeuf, 2005).

D'après la littérature, la force EHD dépend de plusieurs paramètres :

- La dimension des électrodes qui agit sur l'étalement du plasma à la surface de la barrière (J. W. Gregory, 2007).
- La disposition des électrodes de part et d'autre de la barrière (N. Takeuchi, 2007) :
 - i) En configuration symétrique, dans laquelle les deux électrodes de mêmes dimensions sont disposées selon une symétrie centrale. Si l'une des électrodes n'est pas encastrée dans la barrière diélectrique alors une décharge est créée sur chaque face de la barrière. Les forces EHD alors produites de part et d'autre du diélectrique sont orientées en sens opposés.
 - ii) En configuration asymétrique, dans laquelle les deux électrodes sont de dimensions différentes et décalées l'une par rapport à l'autre. Le cas le plus intéressant est celui utilisé dans cette thèse (voir Figure 6 (B)) car il permet de n'avoir une décharge significative que sur une seule face et donc d'intensifier la force EHD.
- L'épaisseur, la permittivité et la nature du diélectrique (N. Takeuchi, 2007).
- La tension et la fréquence appliquées (C. Borghi, 2008), (B. Dong, 2008). A tension fixe, la poussée augmente avec la fréquence.

Pour caractériser l'effet aérodynamique d'une DBDS, deux méthodes sont employées dans la littérature : la première consiste à directement mesurer la force EHD à l'aide d'une balance, méthode employée par (J. R. Roth, 1998) (J. Roth, 2000). Elle a été mesuré 40 mN/m à une tension de 5 kV rms en configuration symétrique. La seconde consiste à mesurer la vitesse de l'écoulement induit par la décharge à partir de sondes vélocimétriques (Sonde de Pitot...) classiquement utilisées en aérodynamique (N. Takeuchi K. Y., 2009).

Ces deux méthodes ont permis d'exprimer de façon analytique la force EHD, celle-ci est au premier ordre proportionnel à la résultante de la force de Coulomb s'appliquant sur les charges du plasma. Ainsi :

$$F_{EHD} \propto e(n_i - n_e)E \quad (1.8)$$

Où e est la charge de l'électron, n_i et n_e les densités d'ions (en faisant l'approximation de la présence uniquement d'ions monochargés) et d'électrons, E le champ électrique appliqué.

Cette force peut être considérée comme agissant de façon permanente sur le fluide dans la zone de décharge. On peut alors introduire la force EHD dans la 2ème équation de Navier-Stokes :

$$(\rho_g U \cdot \nabla) \vec{U} = \nabla P + \mu_d \nabla^2 \vec{U} + \vec{F}_{EHD} \quad (1.9)$$

Où ρ_g est la densité du gaz, \vec{U} la vitesse d'écoulement du vent électrique, P la pression, μ_g la viscosité du gaz et F_{EHD} la force EHD.

Dans ses travaux de modélisation, Borghi et al. (C. Borghi, 2008) simplifient la formule de la force EHD en négligeant l'effet des électrons sur le transfert de quantité de mouvement du fait de leurs faibles masses ce qui aboutit à la relation (1.10) :

$$F = en_i E \quad (1.10)$$

En l'exprimant en fonction de la densité du courant (j_i), de la mobilité des ions (μ_i) et de la vitesse moyenne des ions (v_{in}), la force devient :

$$F \approx n_i m_i v_{in} \mu_i = \frac{j_i}{\mu_i} \quad (1.11)$$

1.7.3. Les paramètres influençant la conversion électromécanique d'une DBDS

La conversion électromécanique d'une DBDS est caractérisée par son rendement électromécanique. Le rendement de la DBDS η_{EM} est défini par le rapport entre la puissance mécanique récupérée $P_{méc.}$ et la puissance électrique injectée $P_{él.}$:

$$\eta_{EM} = \frac{P_{méc.}}{P_{él.}} \quad (1.12)$$

La puissance mécanique est calculée par la mesure de vitesse du vent induit à l'aide d'une sonde vélocimétrique placée au voisinage de la DBDS, tandis que la puissance électrique est calculée par la mesure de la tension et du courant aux bornes de la DBDS. Les paramètres principaux qui influencent la conversion électromécanique d'une DBDS sont : les paramètres électriques, géométriques et matériaux.

1.7.3.1. Paramètres électriques

Les paramètres électriques influençant la conversion électromécanique de la DBDS sont : la tension et le courant d'alimentation, la fréquence d'excitation conduisant à la puissance injectée dans la décharge. A noter que la puissance injectée dépend de la géométrie du système (longueur des électrodes, décalage entre les électrodes, espace inter-électrodes...) et des matériaux utilisés (nature et épaisseur du diélectrique, etc...).

1.7.3.1. A. Tension et courant d'alimentation

La configuration des électrodes joue un rôle important sur le comportement électrique de la DBDS (N. Takeuchi, 2007). Le courant mesuré par sonde électrique est la somme du courant de charge capacitive du système et celui circulant dans les microdécharges. Lorsque la configuration des électrodes est asymétrique le nombre de pics de courant observés sur l'oscillogramme, correspondant au courant des microdécharges, est important (Figure 9). Le nombre de pics est en revanche beaucoup plus faible en configuration symétrique des électrodes (Figure 10).

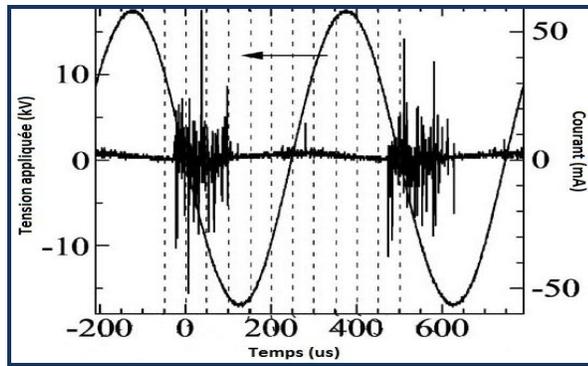


Figure 9. Variation de la tension et du courant en fonction du temps en configuration asymétrique ((F = 2 kHz, U = 33 kV), (N. Takeuchi, 2007).

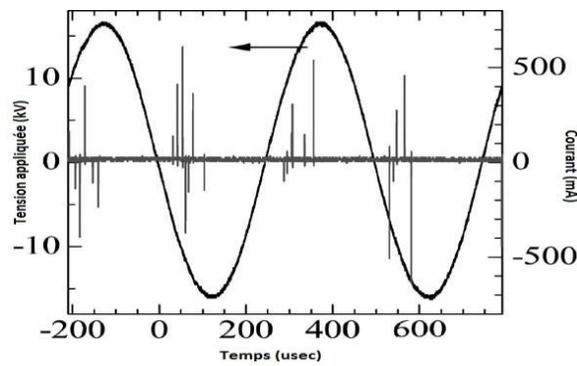


Figure 10. Variation de la tension et du courant en fonction du temps en configuration symétrique ((F = 2 kHz, U = 33 kV), (N. Takeuchi, 2007).

1.7.3.1. B. Fréquence appliquée

La plage de fréquences couramment utilisée pour faire fonctionner les DBDS pour la conversion électromécanique est : 1-10 kHz (J. W. Gregory, 2007). De nombreuses études ont montré qu'une DBDS ne pouvait être dissociée de son alimentation électrique car un couplage lie les deux. Dans le cas d'une alimentation sinusoïdale, le couple DBDS/alimentation électrique est assimilable à un circuit RLC résonant. Dans ce cas, il existe une fréquence de résonance qui maximise la puissance électrique injectée dans la décharge. J. Kreigseis et al. (J. Kreigseis, 2011) semblent indiquer que la tension appliquée modifie la valeur de la fréquence de résonance (Figure 11) pour trois largeurs d'extension du plasma (A = 0,15m ; B = 0,30 m et C = 0,45 m). Ce dernier point n'a pas été observé dans le cadre de la thèse.

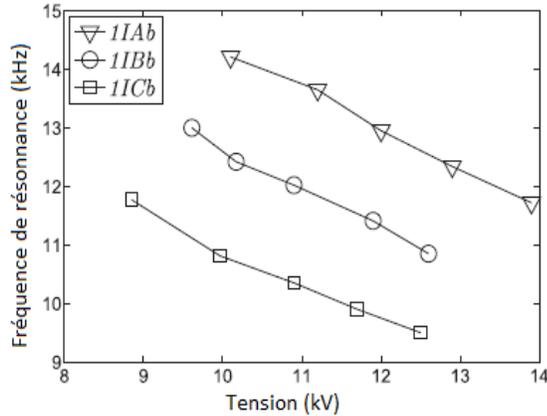


Figure 11. Variation de la fréquence de résonance (kHz) en fonction de la tension (kV) pour trois largeurs différentes d’extensions du plasma (A, B et C) (J. Kreigseis, 2011).

Les paramètres électriques précédents permettent de déterminer la puissance électrique injectée dans la décharge. Elle peut être calculée selon deux manières différentes :

- Directement en mesurant la tension aux bornes des électrodes $U_{HT}(t)$ et le courant de la décharge $I(t)$, puis en calculant l’intégrale de leur produit sur une période du signal (M. Forte, 2007).
- Indirectement par le tracé de la figure de Lissajous $Q = f(U)$, l’aire du cycle étant égale à la puissance électrique (J. Kreigseis, 2011).

Comme attendu, la puissance électrique injectée varie proportionnellement avec la tension d’alimentation (Figure 12). Dans la littérature, Forte *et al.* (M. Forte, 2007) et Pons *et al.* (J. Pons, 2005) ont montré expérimentalement que la puissance électrique est liée à la tension d’alimentation par l’expression : $P_{él.} = A \times f \times (U_{HT} - U_0)^2$. Dans ce cas, la puissance est directement proportionnelle à la fréquence appliquée et au carré de la différence entre la tension mesurée en fonctionnement (U_{HT}) et la tension de claquage (U_0) (qui dépend elle-même de la géométrie du système). (J. R. Roth, 1998) et (J. W. Gregory, 2007) ont montré plus généralement que la puissance électrique consommée suit la loi :

$$P_{él.} = A \times f \times (U_{HT} - U_0)^n \quad (1.13)$$

Avec $2 \leq n \leq 4$, n dépendant de la géométrie et la configuration expérimentale de la DBDS. La Figure 12 compare les courbes $P_{él.}(U_{HT})$ obtenues expérimentalement par différentes

équipes. Ces courbes correspondent relativement bien à la fonction analytique (1.13), chacune pour une valeur de n qui lui est propre.

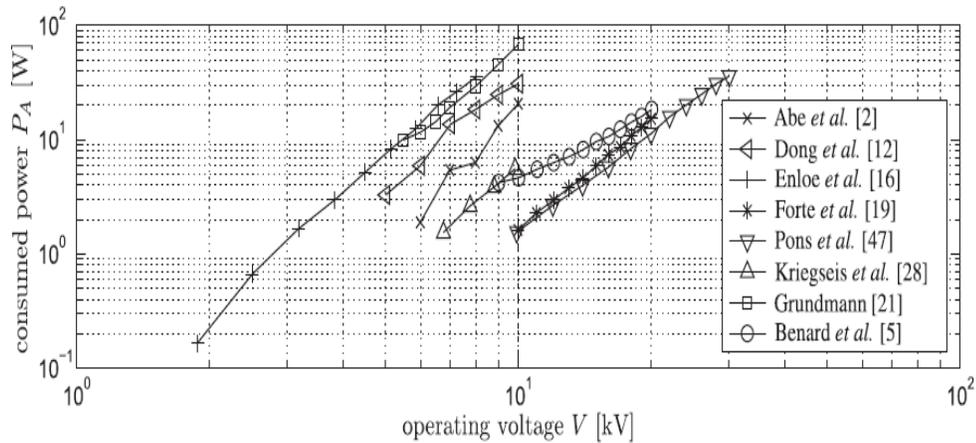


Figure 12. Comparaison de la loi $P_{el.} (W) = f(U_{HT} - U_0 (kV))$ pour plusieurs auteurs (J. Kriegseis, 2011) : (T. Abe, 2008), (B. Dong, 2008), (C.L. Enloe, 2004), (M. Forte J. J., 2007), (J. Pons, 2005), (J. Kriegseis, 2010), (Grundmann, 2008), (N. Bernard, 2009).

Quelques études présentent une estimation du rendement électromécanique d'un actionneur DBDS (J. Pons, 2005) (J. Jolibois, 2008), elles l'estiment inférieur à 1% (J. Jolibois, 2008).

1.7.3.2. Paramètres géométriques

Pour l'étude du comportement électromécanique de la DBDS, plusieurs paramètres géométriques ont fait l'objet d'études approfondies. Parmi les plus influençant, on retrouve la largeur des électrodes et l'épaisseur du diélectrique (E. Moreau, 2007).

1.7.3.2. A. Largeur des électrodes HT

N. Takeuchi *et al.* (N. Takeuchi, April 2009) ont étudié l'extension du plasma (zone motrice) à la surface du diélectrique en fonction de trois largeurs différentes d'électrode HT. La Figure 13 montre qu'en augmentant la largeur de 2 à 8 mm, la surface d'étalement du plasma augmente de 3 à 7 mm, induisant ainsi une augmentation de la vitesse du vent électrique de 0,9 m/s à 2,3 m/s. Ceci indique par la même occasion qu'une extension du plasma à la surface de la barrière augmente la vitesse du vent électrique, en accord avec les travaux de M. Forte *et al.* (M. Forte, 2007).

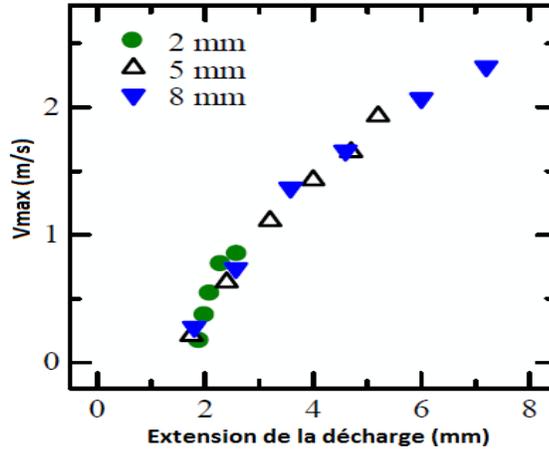


Figure 13. Variation de V_{\max} (m/s) en fonction de la longueur d'extension du plasma (mm) pour trois largeurs d'électrodes HT différentes (Epaisseur du verre = 1 mm, $U = 4-8$ kV, $F = 10$ kHz) (N. Takeuchi, 2009).

1.7.3.2. B. Epaisseur du diélectrique

J. Pons *et al.* (J. Pons, 2005) a étudié la variation de la puissance électrique et de la vitesse d'écoulement du vent électrique en fonction de l'épaisseur d'un diélectrique en verre. Ils ont déterminé dans son étude que lorsque l'épaisseur du diélectrique augmente, la puissance électrique et la vitesse d'écoulement diminuent respectivement (Figure 14). La réduction de l'épaisseur renforce le champ électrique tout en diminuant la tension nécessaire à l'amorçage.

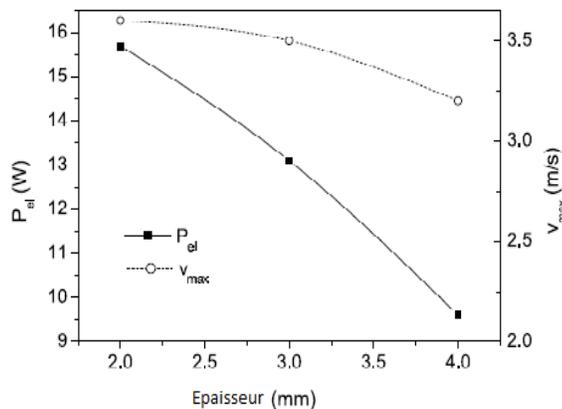


Figure 14. Variation de la puissance électrique et de la vitesse d'écoulement du vent électrique en fonction de l'épaisseur du diélectrique (Epaisseur du verre = 4 mm, $U_{\max} = 20$ kV, $f = 300$ Hz) (J. Pons, 2005).

1.7.3.2. C. Décalage horizontal inter-électrodes (en configuration symétrique)

En utilisant deux diélectriques différents (PMMA (Figure 15) et verre (Figure 16)) en configuration de DBDS symétrique, Forte *et al.* (M. Forte, 2007) et Pons *et al.* (J. Pons, 2005) ont montré que la vitesse du vent électrique d'une DBDS variait avec le décalage horizontal inter-électrodes. Quelle que soit la nature du diélectrique, le décalage horizontal optimal trouvé est de 5 mm. Il correspondrait au meilleur compromis entre la valeur du champ électrique et l'étirement du plasma à la surface de la barrière.

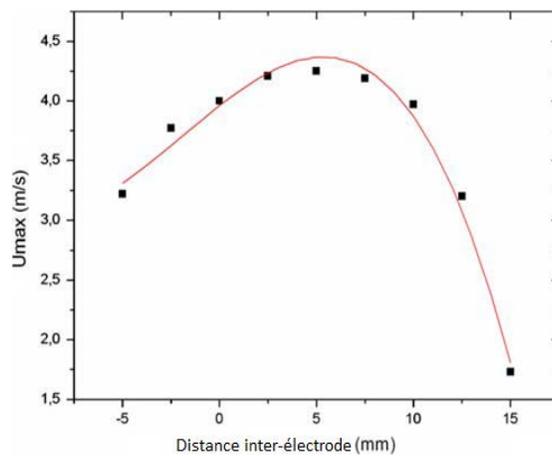


Figure 15. Variation de la vitesse d'écoulement du vent électrique (m/s) en fonction de la distance inter-électrode (mm) (Epaisseur du PMMA = 3 mm, $f = 700$ Hz, $U = 20$ kV) (M. Forte, 2007).

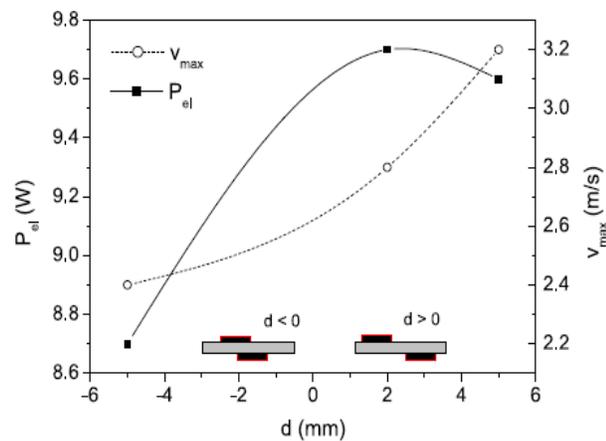


Figure 16. Variation de la vitesse d'écoulement du vent électrique (m/s) et de la puissance électrique P_{el} (W) en fonction de la distance inter-électrode (mm) (Epaisseur du verre = 4 mm, $U_{max} = 20$ kV, $f = 300$ Hz.) (J. Pons, 2005).

1.7.3.3. Paramètres matériaux

1.7.3.3. A. Nature du diélectrique

La nature du diélectrique de la surface active a été modifiée par plusieurs auteurs pour étudier les performances de la décharge et son efficacité en termes de consommation d'énergie. Forte *et al.* (M. Forte, 2007) ont comparé dans leurs travaux, le PMMA ($\epsilon_r \sim 3$) et le verre ($\epsilon_r \sim 10$) à épaisseur constante et ont obtenu un vent électrique plus important avec le verre qu'avec le PMMA (Figure 17) aux faibles tensions. Ceci indique qu'il est préférable d'augmenter la permittivité du diélectrique pour de meilleures performances de la DBDS à faible tension. L'idéal étant une grande permittivité et une faible épaisseur.

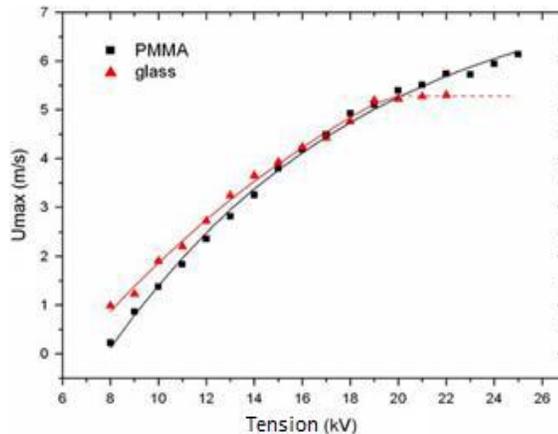


Figure 17. Evolution de la vitesse d'écoulement du vent électrique (m/s) en fonction de la tension (kV) pour deux types différents de diélectriques ($f = 700$ Hz, 8 kV $< V < 26$ kV) (M. Forte, 2007).

1.8. Décomposition des COV par DBD

Depuis une vingtaine d'années, les DBD sont étudiées pour des applications de dépollution et en particulier pour le traitement des COV dans l'air et ce principalement car elles permettent la création de plasmas non-thermiques à pression atmosphérique possédant des densités de puissances relativement élevées comparées aux autres sources à pression atmosphérique (H.H. Kim, 2004). Par DBD, l'énergie transférable aux espèces du milieu peut dépasser une dizaine d'eV ce qui est suffisant pour décomposer un grand nombre de molécules organiques. A titre d'exemple, une sélection de quelques liaisons présentes dans les molécules organiques ainsi que leur énergie respective est donnée dans le

Tableau 4.

Type de liaison	Energie de liaison E (eV)
C-C	3,6
C-O	3,7
C-H	4,3
C=C	6,3
C=O	7,7

Tableau 4. Différentes énergies de liaison (K. Urashima, 2000).

Outre la décomposition des molécules organiques par rupture de liaisons via les électrons, un certain nombre d'espèces chimiques créées dans le plasma d'air généré par DBD sont susceptibles de participer à la dégradation. La littérature fait mention des principales espèces suivantes : le radical hydroxyle OH•, l'ozone O₃, les métastables singulets N₂ (a¹Σ_u⁻, a¹Π_g, w¹Δ_u) (8,4 ; 8,55 ; 8,89 eV) et triplet N₂ (A³Σ_u⁺) (6,2 eV) de l'azote moléculaire, le fondamental oxygène O (3P) et l'oxygène atomique à l'état excité O (1D). O (3P), O₃ et le radical hydroxyle OH sont de puissants oxydants pour les COV tandis que les métastables N₂ (a¹Σ_u⁻, a¹Π_g, w¹Δ_u) et N₂ (A³Σ_u⁺) les dissocient par quenching (L. Yu, 2010), (W. Faider, 2013).

Les principales réactions oxygène–azote en DBD d'air humide (A. Chiper, 2010):

Production de l'O (3P) (N. Blin-Simiand, 2008 ; A. Chiper, 2010) :

- Réactions de dissociation électronique :



- Réaction de quenching de l'oxygène :



- Réactions de collisions avec les métastables de l'azote moléculaire :



Production de l'O₃ (W Faider, 2013):

- Réaction de formation de l'ozone :



- Réactions de dissociation de l'ozone :



Production du radical hydroxyle OH• (A.M. Vandenbroucke, 2011) en cas de présence d'eau:

- Réaction d'attachement électronique dissociatif :



- Réaction de dissociation par collision électronique :



- Réaction de dissociation par O (¹D) :



- Réactions de collisions avec les métastables de l'azote moléculaire



Dans la littérature, nous pouvons trouver des études portant sur l'abattement de plusieurs molécules par DBD (B. Ramaraju, 2012): le propane (N. Moreau, 2010), le benzène (A. Ogata, 2001), l'acétone (T. Oda, 1995), le 2-heptanone (A. Chiper, 2010), le 2-butanone (J.R. Vacher, 2008), l'acétaldéhyde (W. Faider, 2013), le trichloréthylène (M. Magnureau, 2007), le tétrachloréthylène (Magnureau, 2007), le toluène (J.Y. Ban, 2006) (N. Blin-Simiand, 2008), le p-xylène (T. Kuroki, 2010), le formaldéhyde (N. Blin-Simiand, 2009).

Ces composés organiques sont traités soit seuls, soit en mélange, tel que le taux d'abattement des COV est donné par la formule (M. Magnureau, 2007) :

$$\text{conv}(\%) = \left(\frac{[\text{COV}]_{in} - [\text{COV}]_{out}}{[\text{COV}]_{in}} \right) \times 100 \quad (1.26)$$

Où $[COV]_{in}$ et $[COV]_{out}$ sont respectivement les concentrations de COV avant et après traitement.

La densité d'énergie est donnée par la SIE (Specific Input Energy (SIE (J/L)) :

$$SIE(J/L) = \frac{P(W)}{\text{débit}(l/s)} \quad (1.27)$$

Quant au rendement de dépollution donnant la masse de COV convertie par kWh (Dou, 2008), il s'exprime :

$$\eta(g/kWh) = \left(\frac{([COV]_{in} - [COV]_{out}) \times Q}{P} \right) \times 1000 \quad (1.28)$$

Où les $[COV]_{in}$ et $[COV]_{out}$ sont les concentrations avant et après dépollution des COV ; Q est le débit massique des COV et P est la puissance d'alimentation électrique.

Le

Tableau 5 ci-dessous récapitule les résultats du traitement de plusieurs COV par DBD en fonction de divers paramètres qui sont : la puissance moyenne de la décharge, le débit volumique, la densité d'énergie, et l'énergie injectée par molécule pour pouvoir calculer la conversion des COV.

Type de Polluants (Concentration ppm)	Puissance moyenne de la décharge (W)	Débit (m ³ /h)	SIE (J/L)	E _{in} (eV/molécule)	Conversion (%)	Référence
Trichloréthylène (100 - 400 - 750) (100 ou 1000)	1 - 7.8	3.2 - 8.2	117 - 303	> 0.2	100	(M. Magnureau, 2007)
	0.5	6.4	75	0.0173	≥ 99	(T. Oda, 1998)
1,2-dichloroéthane (270 et 590)	1 - 7.8	3200	0.3 - 2.34	0.1 - 0.6	25 - 60	(M. Magnureau, 2007)
Acétone (100)	16	15.4	1000	0.234	78.6	(Oda et al., Jan/Feb 1998)
Toluène (200)		80	66	0.0154	70	(Y.S. Mok,

	5.5 W 11 W		132.5	0.0308	50	2002)
		31.6	166.66 333.33	0.038 0.077	42.5 24	
Propylène (150)	2.1 W 5.5 W	160.3	12.57 32.93	2.92×10^{-3} 7.65×10^{-3}	58.66 76.66	(Y.S. Mok, 2002)
		319.6	6.3 16.51	1.46×10^{-3} 3.83×10^{-3}	30 60.66	
n-propanol (100)	0.8 - 2.5 W	4.5-14 2.2-6.8	170 - 350		80 - 100	(B. Ramaraju, 2012)
p-xylene (75)		4.5-14 1.5-5	170 - 500		45 - 90	
Dioxane (75)		4.5-14 1.5-5	170 - 500		58 - 85	

Tableau 5. Présentation de la conversion de plusieurs types de COV traités par DBD.

D'après la littérature, les paramètres qui influencent la conversion des COV par DBD d'air sont :

- **L'énergie déposée par impulsions haute tension** : plusieurs équipes ont étudié l'efficacité de conversion des COV par DBD d'air en prenant en considération les paramètres se reliant aux impulsions de tension comme l'amplitude, la fréquence, la durée et le temps de montée. Les impulsions courtes permettent de limiter les pertes joules dans l'échauffement du filament du plasma.
- **La puissance électrique injectée** (B. Ramaraju, 2012) : Plus la puissance électrique injectée est importante, meilleur est le taux d'abattement. Cependant, l'augmentation de la puissance électrique diminue le rendement de dépollution.
- **Le débit d'air** : à puissance électrique constante, plus le débit est important, plus la densité d'énergie est faible. Cela conduit en général à une diminution du taux d'abattement.
- **La température** (N. Bin-Slimiand, 2009) (D. Staack, 2006) : une augmentation modérée de la température par rapport à la température ambiante peut jouer un

rôle positif sur le taux d'abattement, cela étant dû à une meilleure activation des réactions d'oxydation des COV par les radicaux OH• et l'oxygène atomique.

- **Temps de résidence** (Z. Ye, 2008) : le temps de résidence peut être lié au débit mais pas seulement. Plus le temps de résidence est long, plus les COV sont convertis.
- **Concentration initiale en COV** (J.H. Byeon, 2010) : Plus la concentration en COV est grande, plus le taux d'abattement a tendance à diminuer. A titre d'exemple, dans les travaux de (C.M. Du, 2007), le taux d'abattement du toluène chute de 99,9% à 78% lorsque la concentration augmente de 120 à 2920 ppm.
- **Humidité** (Y.F. Guo, 2006) (A.M. Vandenbroucke, 2011) : la vapeur d'eau étant la source du radical OH, plus l'air pollué est humide, plus la conversion des COV est importante tout en ayant un optimum selon les conditions opératoires.

Dans le cas d'un couplage plasma/catalyse, l'humidité peut jouer un rôle inverse car pouvant être inhibiteur de la catalyse (F. Holzer, 2005).

Dans certaines études, le plasma est couplé à la catalyse ce qui a pour but d'améliorer la conversion des COV (augmentation du taux d'abattement, destruction des sous-produits) (C. Subrahmanyam, 2010), (J.H. Oh, 2009), (V. Demidiouk, 2005), (U. Roland, 2005), (H.H. Kim, 2011).

Le couplage peut se faire de deux façons différentes : i) le couplage non-intégré qui consiste à placer le catalyseur en amont ou en aval du réacteur, ii) le couplage intégré qui consiste à placer le catalyseur dans la DBD. Le but principal du couplage est de limiter la formation de sous-produits de décomposition plus dangereux que la molécule initiale.

1.9. Conclusion

L'étude bibliographique a servi de point de départ et de base de référence à cette thèse, le but de celle-ci étant la conception d'une pompe chimiquement active dédiée à la dépollution organique de l'air pollué en COV et reposant sur une association originale de DBDS asymétriques. L'originalité de ce système repose sur l'addition simultanée de deux effets : i) un effet de pompage hydrodynamique de l'air pollué et, ii) l'abattement de ses COV.

Dans un premier temps, une optimisation de la conversion électromécanique du système multi-DBDS est nécessaire, ce sera l'objet du chapitre 2. Celle-ci se fait dans notre étude en deux étapes : à partir d'une configuration de DBDS optimale que nous avons choisie, nous réaliserons une surface active multi-DBDS puis à partir de celle-ci, un canal actif pompant. Dans un deuxième temps, la capacité d'abattement des COV de ce canal actif ainsi conçu sera étudiée, cette étude fera l'objet du chapitre 3.

Chapitre 2

Conception et étude de la conversion électromécanique de la surface active et du canal actif

2.1. Introduction

Ce chapitre présente la conception et l'étude de la conversion électromécanique de la surface active et du canal actif pour laquelle a été adoptée une démarche d'optimisation paramétrique. La surface active est une surface simple composée d'une association de DBDS alors que le canal actif est un assemblage miroir de deux surfaces actives. L'étude paramétrique repose sur des mesures électriques (tension $U(F)$, courant $I(F)$) d'une part et sur des mesures mécaniques (vitesse du vent électrique VVE) d'autre part, et consiste à faire varier les paramètres suivants :

Au niveau de la surface active :

- L'épaisseur et la nature du diélectrique,
- La distance inter-DBDS,
- Le nombre de DBDS.

Au niveau du canal actif :

- La hauteur du canal (hauteur séparant les deux surfaces actives).

Dans ce chapitre, nous présentons une description du banc expérimental et du protocole expérimental. Puis nous abordons la conception et l'optimisation paramétrique de la surface active à l'aide d'une approche théorique et d'une approche expérimentale. Au niveau théorique, nous cherchons à optimiser le transfert de la puissance de la source vers le plasma par modélisation électrique consistant à simuler le comportement du système à l'aide d'un circuit électrique équivalent, d'en déterminer l'impédance complexe et la fréquence de résonance en fonction des différents paramètres. Au niveau expérimental,

nous mesurons la puissance électrique injectée que nous comparons à la puissance théorique calculée, nous mesurons la vitesse du vent électrique à l'aide d'une sonde de Pitot pour calculer la puissance mécanique récupérée en fonction des différents paramètres. Après optimisation de la surface active, nous la dupliquons pour en faire un canal actif par assemblage et nous effectuons l'étude de sa conversion électromécanique en fonction du paramètre géométrique : hauteur du canal.

2.2. Description du banc expérimental et du protocole expérimental

Les appareils constituant le banc expérimental de la DBDS sont les suivants (Figure 19):

- a. Générateur Basse Fréquence (GBF) Agilent 33210A
- b. Boîtier de commande du robot cartésien
- c. Amplificateur RMX2450
- d. Transformateur
- e. Oscilloscope Agilent Technologies DSO1002A
- f. Robot cartésien (support de la Sonde de Pitot)
- g. Sonde de Pitot métallique
- h. Sonde de tension
- i. Surface active
- j. Ordinateur

La surface active est constituée de plusieurs DBDS placées successivement, leur nombre variant de 1 à 14 dans notre étude. La configuration de DBDS choisie est de type asymétrique pour créer un plasma de surface uniquement sur une seule face de la barrière celle en contact avec l'air à traiter. La polarité des électrodes est telle que : i) la petite électrode (celle exposée) est l'électrode de masse, ii) la grande électrode (celle non-exposée) est l'électrode de haute-tension. La mesure du vent électrique se fait par une sonde vélocimétrique de type Pitot placée en aval de la dernière DBDS de la surface active. La figure ci-dessous (Figure 18) schématise une surface active à 2 DBDS et son dispositif de mesure vélocimétrique.

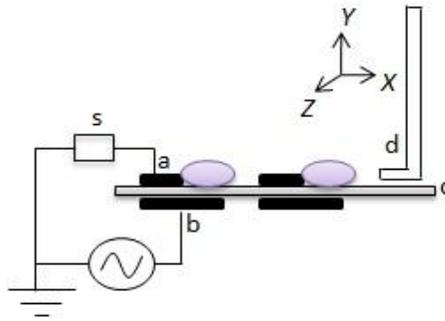


Figure 18. Position de la sonde de Pitot par rapport à la dernière bande de la surface active suivant les axes x, y et z : (exemple de deux bandes d'électrodes à la surface du diélectrique) a: électrode passive; b: électrode HT; c: barrière diélectrique; d: Sonde de Pitot; s: shunt.

La surface active est alimentée par un générateur haute-tension sinusoïdale. Dans cette thèse, on se limite à ce type de générateur en raison des contraintes industrielles. Cette alimentation a été réalisée et testée à MINES ParisTech. Le principe de cette alimentation repose sur l'amplification-transformation d'un signal sinusoïdal délivré par un Générateur Basses Fréquences (GBF). L'amplification se fait avec un coefficient d'amplification variant de 0 à 32 dB. La transformation se fait, elle, avec un facteur dépendant de la fréquence (facteur max = 100). La surface active est connectée en sortie de cette alimentation, à ses bornes la tension peut aller jusqu'à 10 kV, elle est mesurée à l'aide d'une sonde de haute-tension de rapport 1/1000. Un shunt d'une résistance de 100Ω est placé à la masse de la surface active afin de mesurer le courant traversant la surface. La tension et le courant sont visualisés et enregistrés sur un oscilloscope à haute fréquence d'échantillonnage de l'ordre du ns.

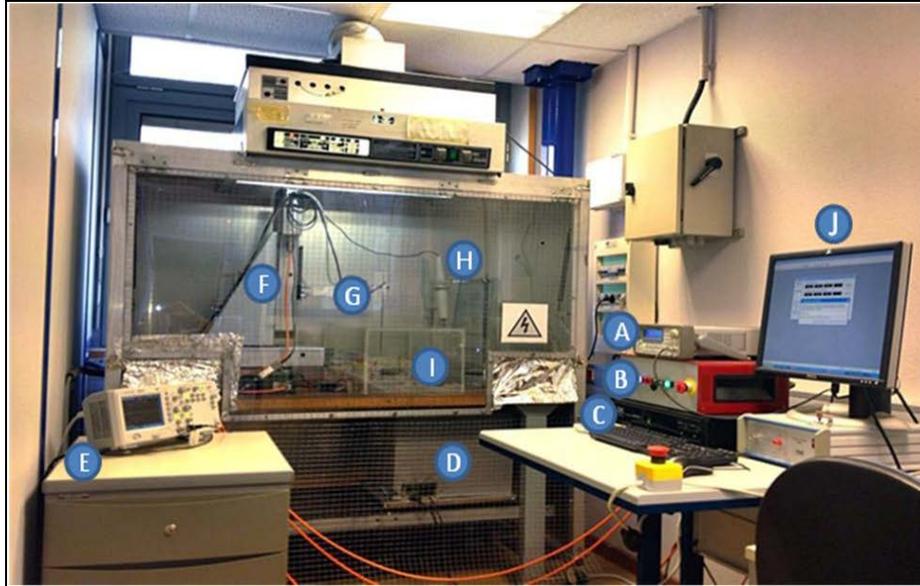


Figure 19. Dispositif expérimental de la surface active à MINES ParisTech – Sophia Antipolis : a) GBF, b) boîtier de commande du robot cartésien, c) amplificateur, d) transformateur, e) oscilloscope, f) robot cartésien, g) sonde de Pitot, h) sonde de tension, i) surface active, j) ordinateur.

Un exemple d'oscillogramme (U, I) obtenu en décharge allumée est donné sur la Figure 20. Le signal du courant possède deux composantes : la première correspond à une porteuse sinusoïdale de même période que la tension. Notons toutefois que le courant est en déphasage avec la tension dû à la charge capacitive du système. La seconde s'additionne à la porteuse et est constituée de très courtes impulsions de courant caractéristiques qui correspondent chacune à une microdécharge des DBDS.

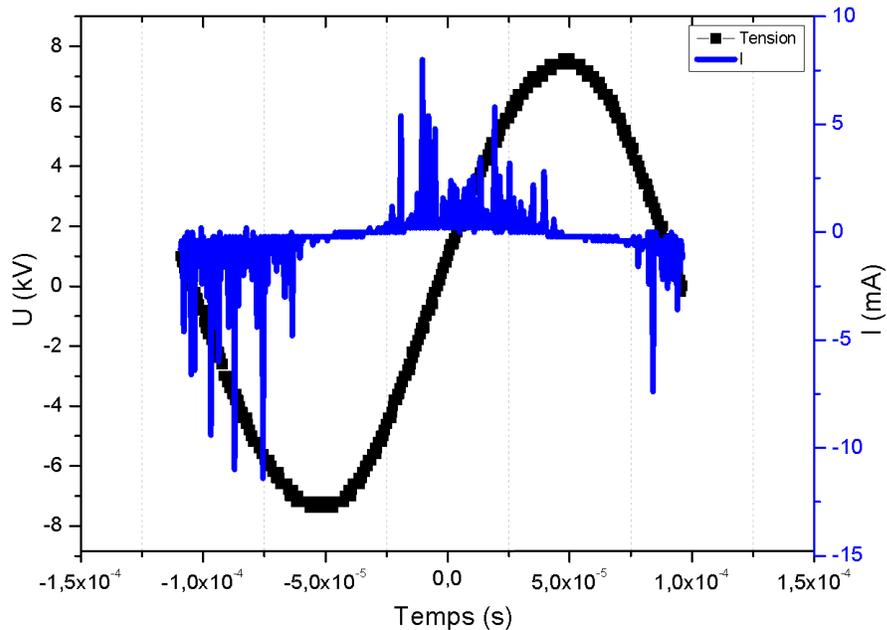


Figure 20. Oscillogrammes tension (kV) - courant (mA) en fonction du temps (μ s) à $F = 5$ kHz.

On peut diviser la chaîne électrique en deux parties : i) le circuit primaire, comportant le GBF, l'amplificateur et le primaire du transformateur, ii) le circuit secondaire, comportant le secondaire du transformateur et notre dipôle c'est-à-dire la surface active. Cette division nous amène à la modélisation électrique RLC du circuit secondaire.

Il est important de noter que le primaire du transformateur ne pouvant supporter qu'une tension maximum de 330 V (correspondant à un réglage donné tension/GBF en amont), toutes les expériences de cette thèse ont été effectuées au réglage tension/GBF et gain d'amplification maximum supportés par le transformateur. Le but étant de fournir le plus de puissance possible, à toute fréquence, au système.

2.3. Modélisation électrique du circuit secondaire

Le circuit secondaire est constitué des composants du secondaire du transformateur à savoir la résistance (R_{II}) égale à $3,73 \text{ k}\Omega$ et l'inductance (L_{II}) égale à 16 H de la bobine secondaire, et un générateur équivalent à un tore magnétique ainsi que des composants de notre dipôle. Ce dernier peut se modéliser par le circuit inférieur de la Figure 21 composé de : i) la capacité (C_d') du diélectrique de la zone de recouvrement des électrodes

(partie symétrique), ii) la capacité (C_d) du diélectrique dans la zone de non recouvrement des électrodes (partie asymétrique), iii) la capacité (C_g) du gaz dans la zone de non recouvrement et iv) la résistance (R_p) du plasma qui est la résistance équivalente de tous les microfilaments de la DBDS.

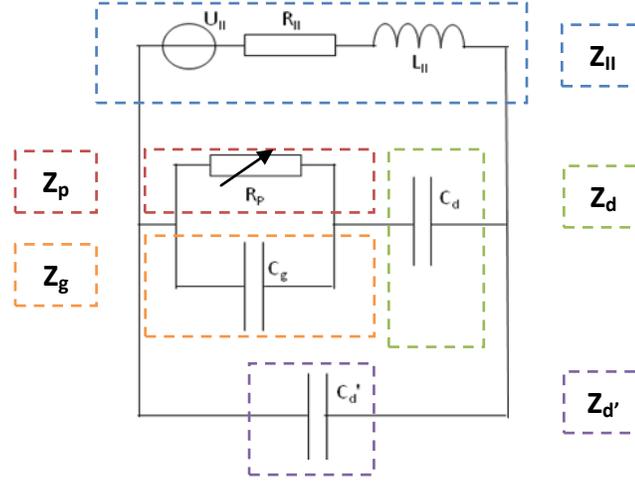


Figure 21. Représentation schématique du circuit électrique équivalent du système.

Les impédances du diélectrique de la partie asymétrique (Z_d), de la partie symétrique (Z_d'), du gaz (Z_g) et du plasma (Z_p), sont données ci-dessous :

$$Z_d = \frac{1}{j\omega C_d} ; Z_{d'} = \frac{1}{j\omega C_{d'}} ; Z_g = \frac{1}{j\omega C_g} ; Z_p = R_p$$

C_g , C_d et $C_{d'}$ sont calculés d'après les expressions suivantes (2.1), (2.2) et (2.3):

$$C_g = \frac{\epsilon_0 \epsilon_r^g S_2}{e_g} \quad (2.1)$$

$$C_d = \frac{\epsilon_0 \epsilon_r^d S_2}{e_d} \quad (2.2)$$

$$C_{d'} = \frac{\epsilon_0 \epsilon_r^d S_1}{e_d} \quad (2.3)$$

Ces capacités dépendent de la géométrie des électrodes, l'épaisseur du gaz (pour C_g) et l'épaisseur du diélectrique (pour C_d et $C_{d'}$). $C_{d'}$ dépend de la largeur d'électrode (l_1). Quant à

C_d et C_g , ils dépendent de l'épaisseur du gaz qui est la largeur du plasma (l_2) comme illustré dans la Figure 22. Dans les relations (2.1 ; 2.2 et 2.3), ε_0 est la permittivité du vide ($= 8.85 \times 10^{-12}$ F.m⁻¹), ε_r^g ($= 1$) et ε_r^d sont les permittivités relatives de l'air et du diélectrique respectivement. S_1 est la surface d'électrode égale au produit de la longueur (L_e) et la largeur (l_1) d'électrode en m², S_2 est la surface correspondante au produit de la longueur (L_e) et la largeur du plasma (l_2) en m², e_d est l'épaisseur du diélectrique en mètre et e_g est l'épaisseur du plasma suivant la direction Oy . L'épaisseur du plasma est déterminée en fonction de la longueur des filaments voire la différence entre les deux largeurs d'électrodes par analyse de l'intensité lumineuse du plasma.

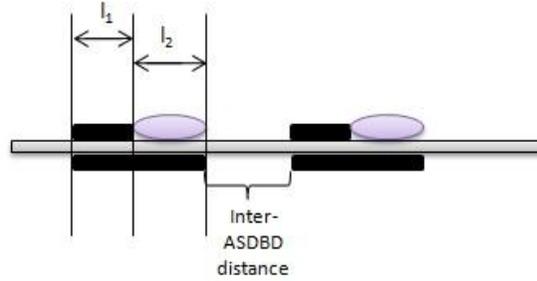


Figure 22. Différence entre la largeur entre les électrodes (l_1) et la partie de création du plasma (l_2).

Dans toute notre étude nous avons choisi les valeurs géométriques suivantes pour les électrodes : $L_e = 120$ mm, $l_1 = 2$ mm et $l_2 = 5$ mm. Ces valeurs se basent sur les résultats d'une étude paramétrique complète de l'influence des paramètres géométriques d'électrodes sur la conversion électromécanique, obtenus par les travaux de Takeuchi *et al.* (N. Takeuchi, 2009).

Comme illustrée sur la Figure 21, la capacité du gaz (C_g) et la résistance du plasma (R_p) sont placées en parallèle dans le circuit électrique équivalent. La résistance du plasma est

$$\text{déterminée d'après la relation suivante : } R_p(t) = \frac{U_p(t)}{I_p(t)} \quad (2.4)$$

$$\text{Tels que : } U_p(t) = \left(1 + \frac{C'_d}{C_d}\right)U_m(t) - \frac{1}{C_d} \int I_m(t) dt \quad (2.5)$$

$$\text{Et } I_p(t) = \left(\frac{C_d + C_g}{C_d}\right)I_m(t) + \left[\frac{(C_d + C_g)C'_d + C_d C_g}{C_d}\right] \frac{dU_m(t)}{dt} \quad (2.6)$$

Où $U_m(t)$ et $I_m(t)$ sont les tensions et courant mesurés aux bornes de la surface active.

L'impédance résultante des deux paramètres est ajoutée à l'impédance de la première partie du diélectrique (qui est la capacité C_d) et correspond à la relation suivante :

$$\underline{Z}_{p,g,d}(f) = \frac{1 + j2\pi.f.R_p(C_d + C_g)}{-4\pi^2 f^2 R_p C_d C_g + j2\pi.f.C_d} \quad (2.7)$$

$\underline{Z}_{p,g,d}(f)$ est parallèle à $\underline{Z}_{d'}$ (f), l'impédance du diélectrique dans la partie symétrique. Chaque terme du circuit électrique équivalent du système est calculé séparément, permettant ainsi la détermination de l'impédance totale de la DBDS comme détaillée dans la relation suivante :

$$\underline{Z}_{DBDS}(f) = \frac{1 + j2\pi.f.R_p(C_d + C_g)}{-4(C_{d'}.R_p(C_d + C_g) + R_p C_d C_g)f^2\pi^2 + j2\pi.f.(C_d + C_{d'})} \quad (2.8)$$

A partir du calcul de l'impédance de l'actionneur, on a pu établir le calcul de l'impédance totale $\underline{Z}_T(f)$ du circuit secondaire :

$$\underline{Z}_T(f) = \frac{(1 - 4(R_{II}(C_{d'}.R_p(C_d + C_g) + R_p C_d C_g) + L_{II}(C_d + C_{d'}))f^2\pi^2 + 2\pi f j(R_p(C_g + C_d) + R_{II}(C_d + C_{d'}) - 4\pi^2 f^2 L_{II}(C_{d'}.R_p(C_d + C_g) + R_p C_d C_g))}{4(-C_{d'}.R_p(C_d + C_g) - R_p C_d C_g)\pi^2 f^2 + 2\pi f j(C_d + C_{d'})} \quad (2.9)$$

Les impédances $\underline{Z}_{DBDS}(f)$ et $\underline{Z}_T(f)$ nous permettent de calculer la fonction de transfert du système :

$$H(jf) = \frac{\underline{Z}_{DBDS}}{\underline{Z}_T} = \frac{1 + 2\pi f j R_p(C_d + C_g)}{1 - 4(R_{II}(C_{d'}.R_p(C_d + C_g) + R_p C_d C_g) + L_{II}(C_d + C_{d'}))f^2\pi^2 + 2\pi f j(R_p(C_d + C_g) + R_{II}(C_d + C_{d'}) - 4\pi^2 f^2 L_{II}(C_{d'}.R_p(C_d + C_g) + R_p C_d C_g))} \quad (2.10)$$

Cette fonction dépend de la permittivité du diélectrique et de la géométrie de la DBDS.

L'impédance de la DBDS $\underline{Z}_{DBDS}(f)$ (voir relation 2.5) nous permet de calculer la densité linéique de puissance par unité de longueur d'électrodes p_e (W/cm) :

$$p_e(\text{W/cm}) = \frac{U_{rms}^2 \text{Re}[Z_{DBDS}(f)]}{L_e \cdot (\text{Re}[Z_{DBDS}(f)]^2 + \text{Im}[Z_{DBDS}(f)]^2)} \quad (2.11)$$

Où U_{rms}^2 est le carré de la tension efficace mesurée en kV, L_e est la longueur des électrodes en cm, $\text{Re}[Z_{DBDS}(f)]$ et $\text{Im}[Z_{DBDS}(f)]$ sont les parties réelle et imaginaire de l'impédance de la DBDS données en ohms.

L'impédance d'une surface active à plusieurs DBDS s'exprime :

$$Z_{N-DBDS} = \frac{Z_{DBDS}}{N} \quad (2.12)$$

Où N est le nombre de DBDS disposées successivement, branchées parallèlement.

Le générateur dans le circuit de la Figure 21 n'est pas un générateur idéal de tension mais un générateur de puissance à cause des caractéristiques de l'amplificateur. Les trois paramètres de réglage qui font varier la puissance électrique reçue au dipôle sont : U_{GBF} , G (gain du GBF) et fréquence. Pour un même dipôle, lorsque le couple de valeurs (U_{GBF} , G) est fixe, seule la fréquence d'excitation fait varier la puissance électrique reçue.

De plus, U et I aux bornes du dipôle peuvent s'ajuster en fonction de la valeur de l'impédance de celui-ci de manière à conserver la puissance reçue à la résonance. Ainsi, deux dipôles différents (dans la même gamme de valeur d'impédance), recevront la même puissance électrique à leur fréquence de résonance respective, pour un même réglage primaire du couple (U_{GBF} ; G).

Compte tenu de l'expression de Z_{N-DBDS} , ceci implique que la valeur de la tension mesurée devrait en principe suivre la loi suivante en fonction du nombre de DBDS de la surface :

$$\frac{U_{rms,DBDS}}{U_{rms,N-DBDS}} = \sqrt{N} \quad (2.13)$$

Cette loi a pu être vérifiée avec un écart de $\pm 10\%$ lors de nos expériences.

2.4. Analyse de l'intensité lumineuse du plasma

Outre l'étude électrique de la surface active, il est intéressant de faire une analyse optique du plasma pour localiser précisément les zones de décharge à la surface de la barrière et de déterminer l'épaisseur du plasma.

A l'aide d'une caméra Canon d'objectif EF-S 18-55mm f/3.5-5.6 IS II, des photographies de la surface de la barrière ont été prises avec plasma (plasma ON) et sans plasma (plasma OFF) afin d'effectuer une soustraction d'images [Plasma ON – Plasma OFF]. La Figure 23 montre le résultat de cette soustraction pour une surface active de 14 DBDS. Elle met en évidence la génération de décharges lumineuses tout autour des électrodes malgré la configuration asymétrique des DBDS et la mesure d'une résultante de vent électrique dirigée dans le sens représenté sur la Figure 23. L'épaisseur du plasma étant égale à 3 mm, correspondante à la surface S_2 .

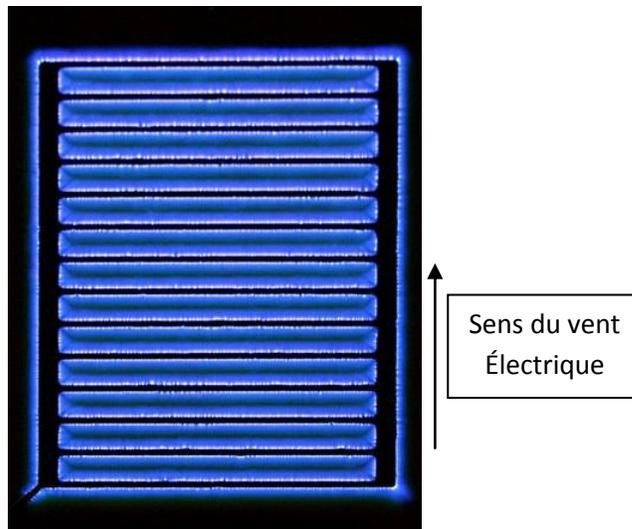


Figure 23. Image obtenue par soustraction de photographies de la surface active [Plasma ON - Plasma OFF].
Caractéristiques de la DBDS : nature de la barrière résine époxy, $N = 14$, distance inter-DBDS (d) = 10 mm,
largeur de l'électrode non-exposée ($L_{\text{électrode}}$) = 5 mm.

Cette image a ensuite subi un traitement sous Matlab consistant à quantifier l'intensité lumineuse de chaque pixel de l'image et à établir un mapping 2D de la valeur d'intensité. La Figure 24 présente un profil d'intensité lumineuse obtenu selon l'axe (Ox) (le vent électrique est orienté de gauche à droite sur ce profil) passant par le milieu de chaque électrode. La présence d'une zone de forte intensité lumineuse de part et d'autre de chaque électrode est confirmée par ce profil prouvant ainsi la création de décharges en amont et en aval de chaque électrode. Cette double création entraîne ainsi, sur le plan mécanique,

deux actions de poussée successives en opposition dans la direction de l'écoulement. On remarque toutefois que les décharges amont sont moins larges que les décharges aval, ce qui explique l'orientation de la poussée dans un sens préférentiel qui est bien celui attendu.

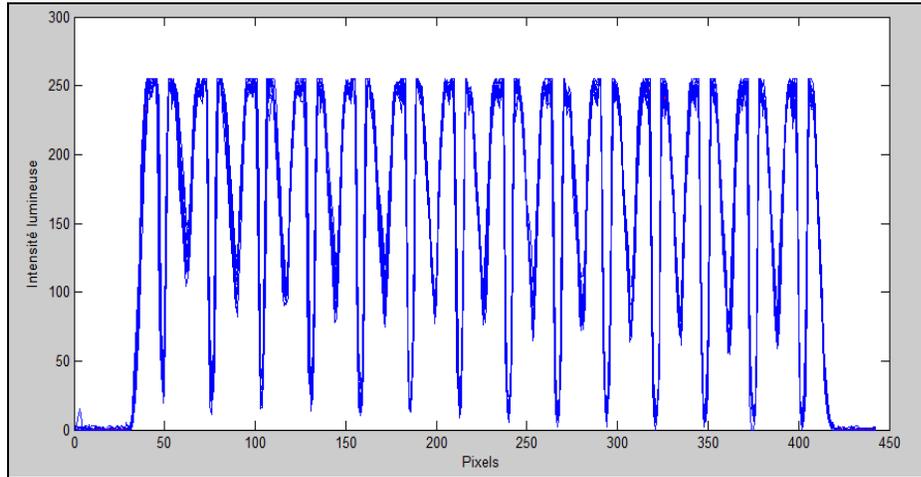


Figure 24. Profil de l'intensité lumineuse suivant l'axe Ox passant par le milieu des bandes.

La Figure 25 donne le mapping 2D complet de l'intensité lumineuse de la décharge de surface.

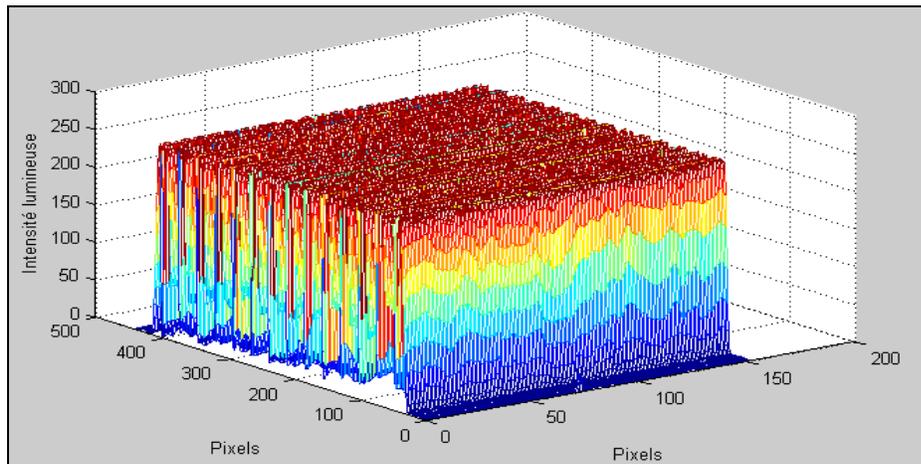


Figure 25. Mapping de l'intensité lumineuse de la décharge de surface.

2.5. Etude électromécanique de la surface active en fonction des différents paramètres

Nous rappelons que dans toute notre étude, aussi bien sur les surfaces actives seules que sur le canal actif, les paramètres géométriques des électrodes sont les suivants :

- Largeur de l'électrode non-exposée (HT) = 5 mm
- Largeur de la contre-électrode exposée (masse) = 2 mm
- Longueur des électrodes = 120 mm

La modification continue du banc expérimental de la surface active en vue de son amélioration nous a permis de tester plusieurs matériaux diélectriques : résine époxy de circuit imprimé ($\epsilon_r = 3,5$; épaisseur = 2 mm), plaques en Borosilicate ($\epsilon_r = 4,6$; épaisseur = 1 mm) et en Quartz ($\epsilon_r = 3,5$; épaisseur = 1 mm). Une étude de la réponse électromécanique de surfaces actives fabriquées avec des barrières diélectriques de permittivités et d'épaisseurs différentes a été menée pour confirmer les résultats de la littérature.

Les réglages d'alimentation au primaire sont les suivants :

- Pour la surface active en résine époxy : $U_{GBF} = 1,5$ V et $G = +23$ dB.
- Pour les surfaces actives en borosilicate : $U_{GBF} = 1,5$ V et $G = +26$ dB. Le choix des couples de valeurs de réglage (U_{GBF} ; G) repose sur le fait qu'au-delà de ce gain, les expériences montrent que la surface à une DBDS est détruite par rupture de la barrière (tension électrique limite).

2.5.1. Résine époxy

Le premier matériau diélectrique testé est la résine époxy, ayant une permittivité diélectrique relative de 3,5. Pour le test, une surface active ayant une barrière époxy d'épaisseur 2 mm et possédant 14 DBDS distantes de 10 mm deux à deux et composées d'électrodes en cuivre de conductivité électrique $\sigma = 59,6 \times 10^6$ S.m⁻¹ déposées et gravées par voie chimique du circuit imprimé sur la barrière, a été fabriquée.

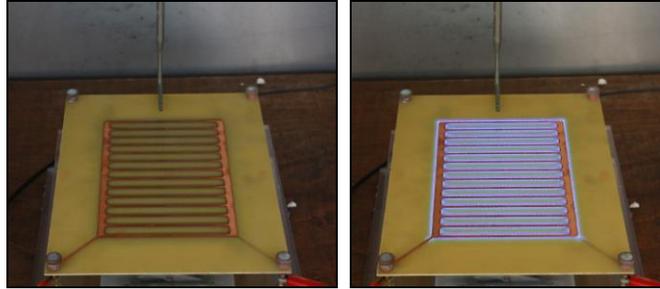


Figure 26. Photos du circuit imprimé en absence (gauche) et en présence du plasma (droite) (Barrière en résine époxy, $N = 14$, épaisseur = 2 mm, distance inter-DBDS (d) = 10 mm, largeur de l'électrode non-exposée = 5 mm, largeur de la contre-électrode exposée = 2 mm).

Pour l'étude des comportements électrique et mécanique de cette surface active, on procède de la façon suivante : (i) calcul de la fonction de transfert du système et détermination théorique de la fréquence de résonance, ii) vérification expérimentale de la fréquence de résonance par le tracé de la courbe de réponse fréquentielle $P_{\text{él.}}(F)$, et iii) mesure de la vitesse du vent électrique induit puis calcul de la puissance mécanique.

2.5.1.1. Détermination théorique de la fonction de transfert : S.A. en résine époxy

En se basant sur le modèle électrique du circuit secondaire, on détermine le module de la fonction de transfert H en fonction de la fréquence. La courbe de H est tracée sur la Figure 27. Elle fait apparaître une fréquence de résonance à 4 kHz, fréquence à laquelle la surtension est maximum. De cette courbe, il est également possible d'identifier une plage fréquentielle de surtension, plage allant de 0,5 kHz à 5,69 kHz (Figure 28).

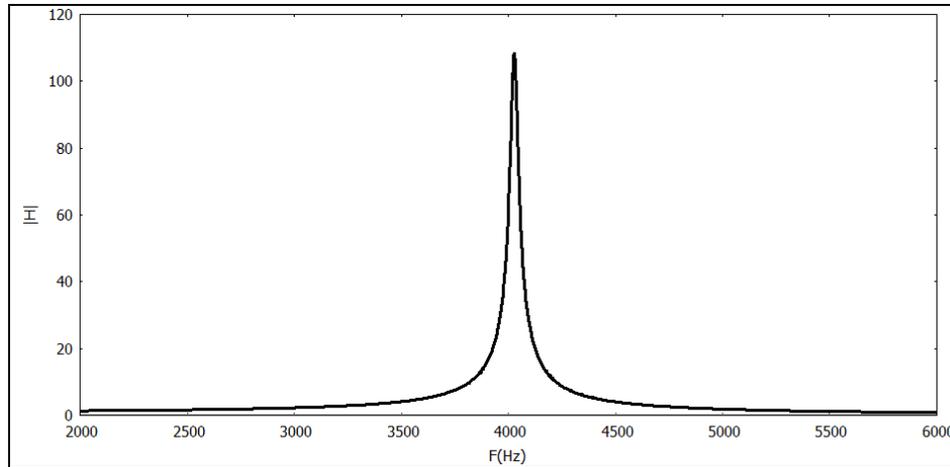


Figure 27. Evolution du module de la fonction de transfert du système électrique équivalent en fonction de la fréquence appliquée pour la surface active en résine époxy ($L_{\text{contre-électrode}} = 2 \text{ mm}$, $L_{\text{électrode}} = 5 \text{ mm}$, $d = 1 \text{ cm}$, $N = 14$).

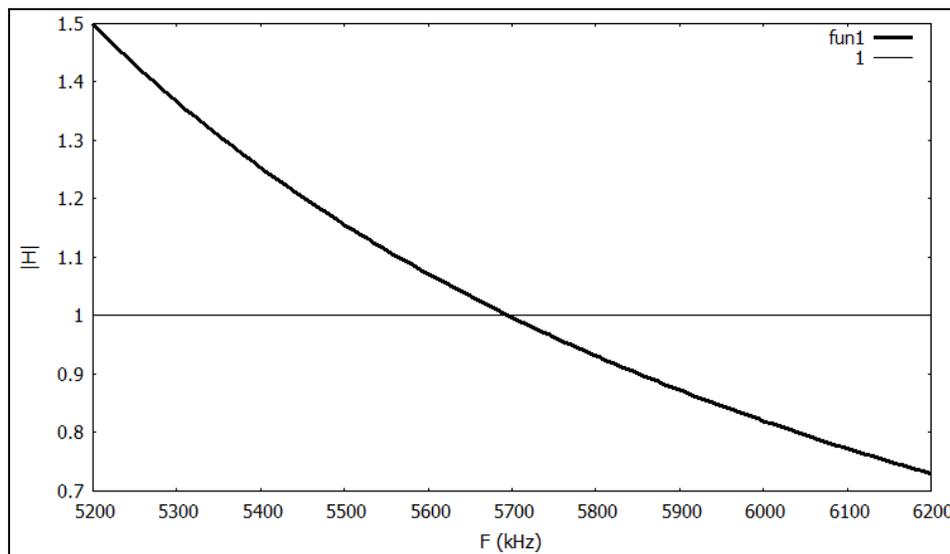


Figure 28. Intersection entre la droite de gain 1 et la courbe théorique de la surface active en résine époxy.

2.5.1.2. Courbe expérimentale de réponse fréquentielle : S.A. en résine époxy

Pour le traçage de la courbe expérimentale de réponse fréquentielle, la puissance électrique injectée dans le dipôle est calculée à l'aide des mesures expérimentales de la tension U et du courant I aux bornes du dipôle.

La puissance électrique $P_{el.}$ est obtenue par le calcul intégral suivant :

$$P_{el.}(W) = F \int_0^T U(t)I(t)dt \quad (2.11)$$

Où F est la fréquence appliquée en KHz et T la période de la tension en s.

Pour calculer cette intégrale, il est indispensable que la résolution de la courbe de courant soit suffisamment grande. En effet, les pics de courant présents sur l'oscillogramme de courant ont une durée moyenne de l'ordre de la dizaine de nanosecondes (durée de vie approximative d'une microdécharge). Afin de remédier à cela, nous avons sélectionné une valeur de la fréquence d'échantillonnage de l'oscilloscope supérieure à 100 MHz.

Un calcul supplémentaire de la densité linéique de puissance injectée p_e (W/cm) (par unité de longueur de DBDS) est effectué, tel que :

$$p_e(W/cm) = \frac{P_{el.}(W)}{NL_e} \quad (2.12)$$

La Figure 29 représente la puissance électrique injectée en fonction de la fréquence, entre 1 et 6 kHz. Sur cette courbe, la puissance électrique maximum de 30 W est obtenue pour une fréquence aux alentours de 4 kHz, c'est la fréquence de résonance de notre surface active.

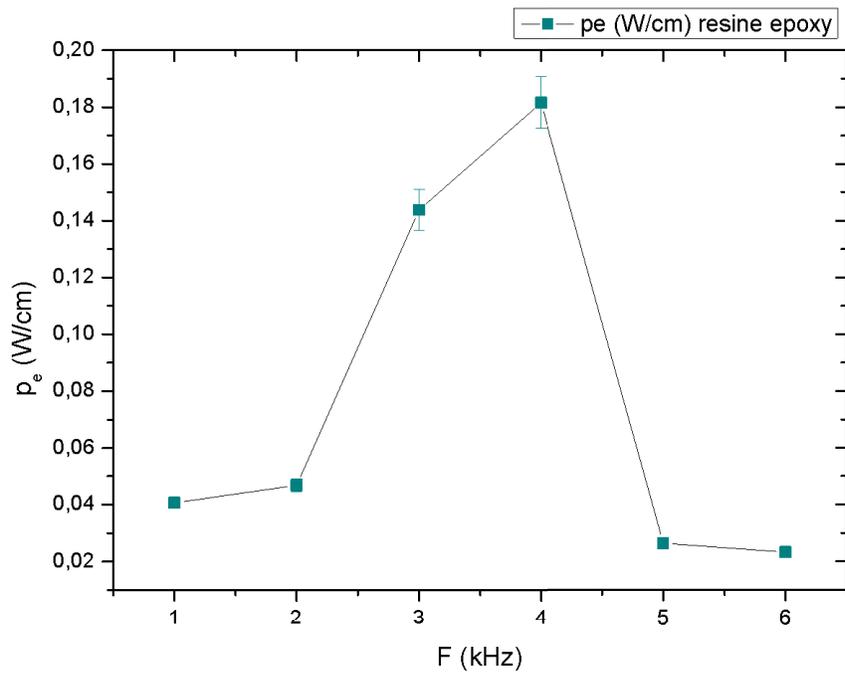
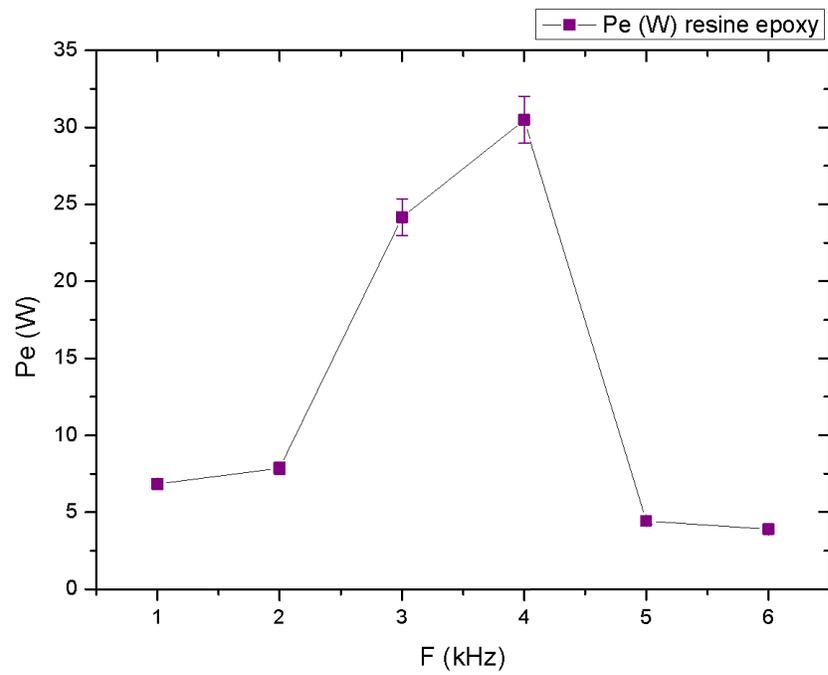


Figure 29. Variation de la puissance électrique injectée en fonction de la fréquence appliquée pour la surface active en résine époxy ($L_{\text{contre-électrode}} = 2 \text{ mm}$, $L_{\text{électrode}} = 5 \text{ mm}$, $d = 1 \text{ cm}$).

2.5.1.3. Caractérisation mécanique : S.A. en résine époxy

Après la détermination de la puissance électrique injectée en fonction de la fréquence, nous étudions à présent la réponse mécanique de la surface active par : i) la mesure de la vitesse de l'écoulement du vent électrique, ii) le tracé du profil de vitesse ainsi obtenu, iii) le calcul de la puissance mécanique produite.

La vitesse du vent électrique est mesurée à l'aide d'une sonde de Pitot, reliée à un boîtier d'acquisition numérique de résultats. Un système de déplacement automatisé permet de positionner la sonde de Pitot suivant les axes d'orientation x, y et z avec un pas de 0,01 mm sur une course de 400 mm. La pression dynamique du flux d'air induit par le plasma est mesurée par la sonde de Pitot et convertie en valeurs numériques enregistrés sur un PC, mesurant ainsi la valeur de vitesse du vent électrique. Toutes les valeurs de vitesse mesurées ont une erreur égale à $\pm 0,2$ m/s et tous les appareils de mesure sont placés dans une cage de Faraday pour éviter les interférences électromagnétiques.

La sonde de Pitot est placée ici à une distance fixe de 8 mm de la dernière DBDS de la surface suivant l'axe Ox , au milieu de la surface suivant l'axe Oy , et à une hauteur z allant de 1 à 14 mm au-dessus de la surface active.

Les profils de vitesse suivant l'axe Oz tracés sur la Figure 30 ont été obtenus aux fréquences respectives : 3 kHz, 4 kHz et 5 kHz. On remarque que le profil ayant la vitesse maximum la plus importante des trois est le profil obtenu à la fréquence de résonance du système, c'est-à-dire 4 kHz. C'est à cette fréquence que la conversion semble la plus performante.

Ces profils montrent que la vitesse est maximum au plus près de la surface de la barrière. L'impossibilité de faire des mesures de vitesse à l'aide de la sonde dans nos conditions en dessous de 1 mm (la sonde de Pitot arrivant en butée contre la barrière), ne nous a pas permis de visualiser la zone d'augmentation rapide de la vitesse d'écoulement depuis la surface jusqu'au point de vitesse maximum. (E. Moreau, 2007) a montré avec des mesures plus précises que la vitesse suivait un profil parabolique dans cette zone.

Pour les fréquences de 4 et 5 kHz, les profils font apparaître une forme escarpée entre $z = 5$ mm et $z = 14$ mm. Cela peut résulter en aval de la dernière DBDS, d'une superposition des jets et contre-jets produits par les DBDS successives de la surface active.

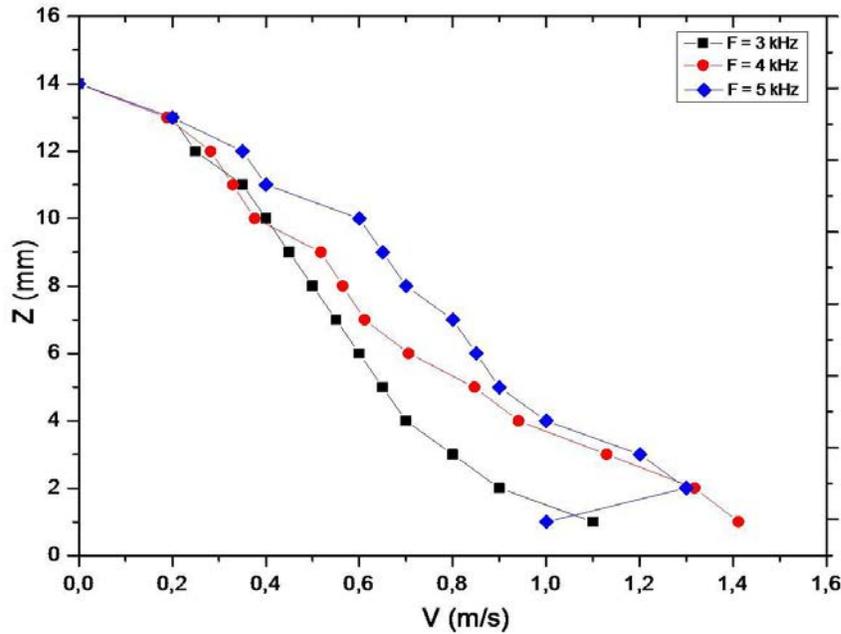


Figure 30. Profils de vitesse du vent électrique mesurée ($L_{\text{contre-électrode}} = 2 \text{ mm}$, $L_{\text{électrode}} = 5 \text{ mm}$, $d = 1 \text{ cm}$ à $3 \text{ kHz} < F < 5 \text{ kHz}$ pour la résine époxy).

2.5.1.3. A. Calcul de la puissance mécanique

A partir des trois profils précédents, nous calculons la puissance mécanique P_m produite par la surface active à ces valeurs de fréquence. Pour effectuer ce calcul, on considère que la vitesse augmente depuis la surface jusqu'au point de vitesse maximum en suivant une loi parabolique de couche limite.

Sous l'hypothèse du flux stationnaire en fonction du temps, la puissance mécanique est exprimée de la manière suivante (M. Forte, 2007) :

$$P_m (W) = \frac{1}{2} \rho l \int_{z=0}^{z=\delta'} V^3(z) dz \quad (2.13)$$

Où ρ est la densité de l'air (1.184 kg.m^{-3} , à 25°C , $P = 1 \text{ bar}$), $V(z)$ est la vitesse mesurée en fonction de z , δ' est l'épaisseur de la couche limite et l la longueur de l'électrode. La Figure 31 présente l'évolution de la puissance mécanique en fonction de la fréquence d'excitation des DBDS.

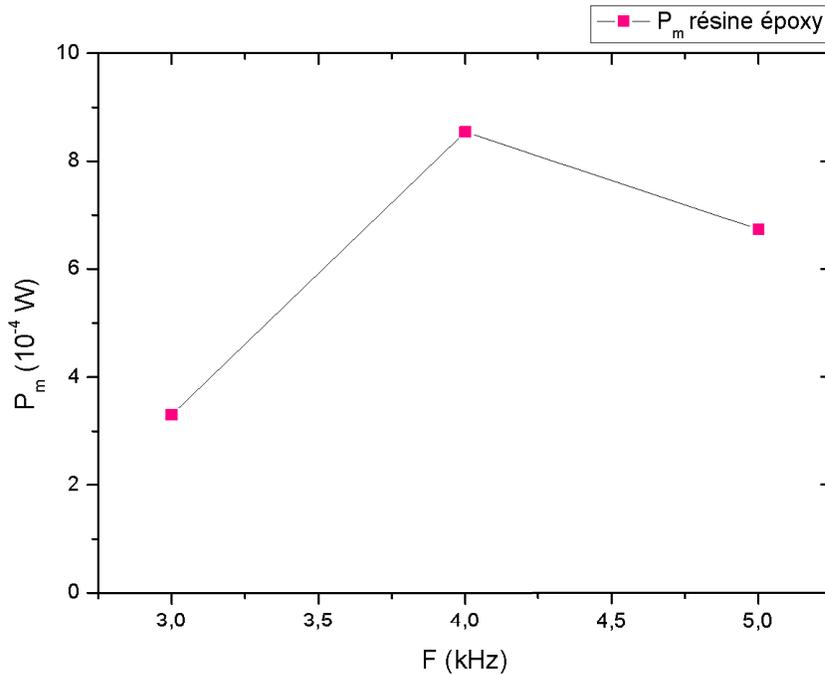


Figure 31. $P_m = f(F)$ pour la résine époxy ($L_{\text{contre-électrode}} = 2$ mm, $L_{\text{électrode}} = 5$ mm, $d = 1$ cm).

2.5.2. Verre Borosilicate (Pyrex ©)

Nous testons à présent un autre matériau diélectrique : le verre borosilicate de qualité Pyrex©. Le verre borosilicate possède des meilleures propriétés électriques, thermiques et mécaniques que la résine époxy (L. Oukacine, 2009). De plus, il a une permittivité diélectrique relative ($\epsilon_r = 4,6$) supérieure à la résine époxy. Pour des raisons techniques, nous avons changé le matériau des électrodes qui est maintenant en aluminium et non plus en cuivre. Malgré la plus faible conductivité électrique de l'aluminium ($\sigma_{\text{Al}} = 37,7 \times 10^6$ S.m⁻¹) et son potentiel redox plus faible que le cuivre ($\sigma_{\text{Cu}} = 59,6 \times 10^6$ S.m⁻¹), l'aluminium est facile à travailler et a une bonne tenue à la corrosion oxydative grâce à sa passivation. Pour faciliter leur réalisation, les surfaces actives Pyrex © testées ici ont été volontairement choisies plus simples, elles possèdent au plus deux DBDS dans le but d'étudier la modification du comportement électro-mécanique de la DBDS en fonction du nombre de DBDS.

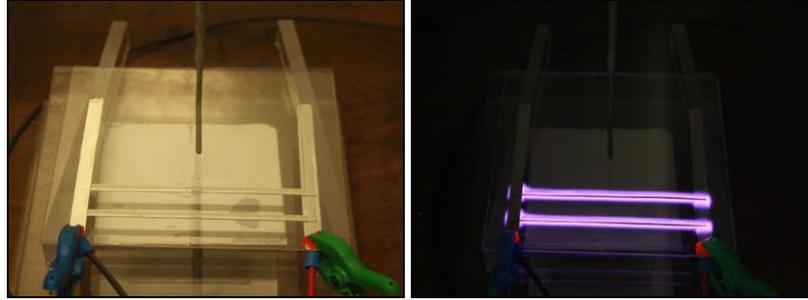


Figure 32. Exemple de verre borosilicate (à deux DBDS) en absence du plasma (à gauche) et en présence du plasma (à droite).

2.5.2.1. Réponse fréquentielle : S.A. en Pyrex ©

L'étude de la réponse fréquentielle se base sur la même démarche que précédemment, appliquée à une surface active en Pyrex © comportant une DBDS ($N = 1$) et une surface identique à deux DBDS ($N = 2$).

Pour la surface à une DBDS, le circuit électrique équivalent est le même que celui indiqué sur la Figure 21. Pour la surface à deux DBDS, une duplication parallèle convient. L'impédance de cette dernière est dans ce cas égale à la moitié de $Z_{DBDS}(f)$, conformément à la relation (2.9).

La Figure 33 présente les réponses fréquentielles théorique et expérimentale de la densité linéique de puissance injectée dans les deux surfaces actives pour les mêmes conditions d'alimentation.

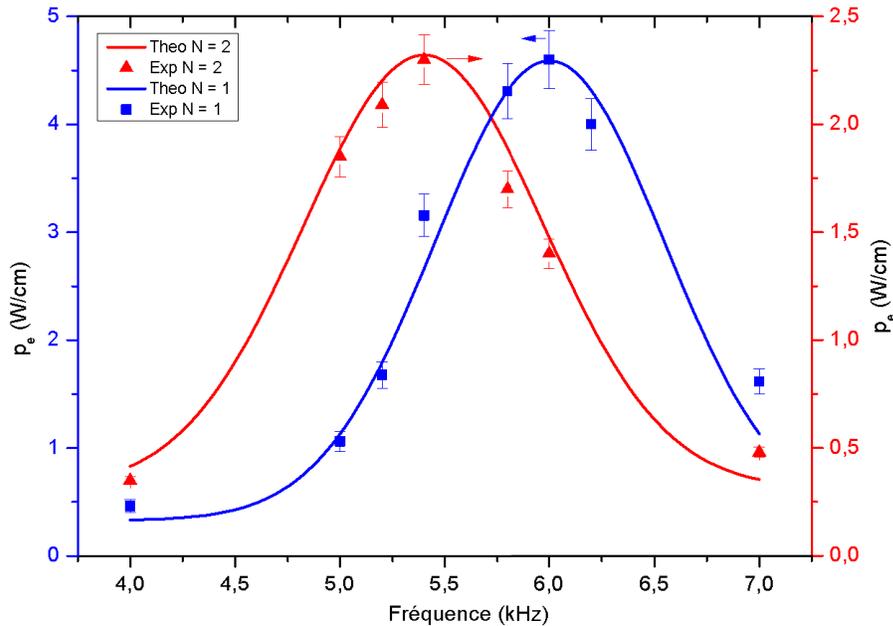


Figure 33. Densité linéique de puissance obtenue par le calcul théorique et la mesure expérimentale en fonction de la fréquence à N = 1 et N = 2.

Sur cette figure, la correspondance entre les courbes théoriques et les points expérimentaux est bonne. Elles montrent que la densité linéique de puissance est maximum à 6 kHz pour N = 1 et à 5,4 kHz pour N = 2, qui sont les fréquences de résonance du système {surface active, générateur} des deux surfaces respectives.

En effet, l'ajout d'une deuxième DBDS modifie l'impédance de la surface active en la diminuant, ce qui décale la fréquence de résonance vers les basses fréquences.

Les valeurs de la densité linéique de puissance des DBDS sont les mêmes pour les deux méthodes utilisées : 4,6 W/cm pour la surface à une DBDS et 2,3 W/cm, soit deux fois moins, pour la surface à deux DBDS.

Cela veut dire que la puissance électrique totale injectée pour N = 1 est la même que pour N = 2, s'expliquant par le fait que le générateur utilisé ici n'est pas un générateur idéal de tension mais un générateur de puissance qui s'adapte à l'impédance du dipôle qu'il alimente. Les mesures montrent que le rapport entre les valeurs de tension efficace pour N = 1 et N = 2 est en effet égal à $\sqrt{2}$ ($\pm 10\%$).

2.5.2.2. Caractérisation mécanique : S.A. en Pyrex ©

Après avoir déterminé la fréquence de résonance de chaque surface, une caractérisation de la structure de la couche limite de celles-ci est effectuée, suivie par l'analyse de la réponse mécanique de la surface à deux DBDS en fonction de la distance inter-DBDS à la fréquence de résonance.

Tous les profils de vitesse sont réalisés à : *i*) x fixé à 16 mm derrière la dernière DBDS, distance minimale pour éviter les interactions entre le plasma et la Sonde de Pitot métallique (cette distance de sécurité est plus grande qu'avec la résine époxy car les interactions observées sont plus importantes), *ii*) y fixé au milieu de la longueur de bande et, *iii*) z allant de 1 mm à 16 mm au-dessus de la barrière.

2.5.2.2. A. Surface active à une DBDS

Les mesures de la vitesse du vent électrique ont été effectuées dans le plan vertical de la surface active en aval de l'électrode exposée. Les conditions électriques pour lesquelles les expérimentations ont été effectuées sont les suivants : $f_0 = 6$ kHz (fréquence de résonance), et $p_e = 4,6$ W/cm. Comme le montre la Figure 34, le profil du vent électrique obtenu est divisé en trois couches : $0 < z < 1$ mm, $1 < z < 4$ mm and $4 < z < 16$ mm. La première, d'épaisseur 1 mm, dans laquelle la vitesse croit rapidement de 0 à 1,65 m/s (vitesse maximum mesurée) selon un profil parabolique comme mesuré par (E. Moreau, 2007). La deuxième d'épaisseur 3 mm, dans laquelle la décroissance de la vitesse (1,65 m/s - 0,6 m/s) peut être donnée par une loi de puissance d'exposant $\frac{1}{4}$ et correspondant à une zone laminaire où le $Re \approx 180$. Une troisième d'épaisseur 12 mm, dans laquelle la vitesse décroît plus lentement jusqu'à atteindre une valeur de 0 m/s à $z = 16$ mm, le régime est également laminaire et le nombre de Reynolds y est environ égal à 640.

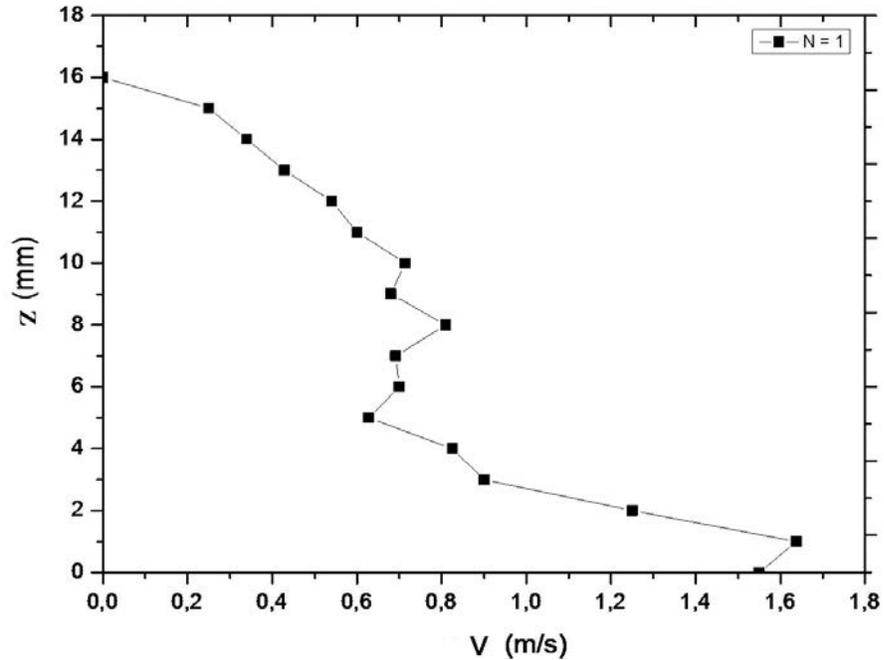


Figure 34. Z (mm) = f (V (m/s)) à une DBDS pour une position de la Sonde de Pitot à 16mm en aval de l'électrode ($L_{\text{contre-électrode}} = 2$ mm, $L_{\text{électrode}} = 5$ mm, $P_e = 60$ W à $f_0 = 6$ kHz pour le verre borosilicate).

2.5.2.2. B. Surface active à deux DBDS

Les conditions électriques pour lesquelles les expérimentations ont été effectuées sont les suivantes : $f_0 = 5,4$ kHz et $p_e = 2,3$ W/cm.

Sur la Figure 35 qui compare la vitesse maximum mesurée en fonction de la fréquence entre la surface à une et celle à deux DBDS, on remarque que la vitesse maximum induite à $N = 2$ est toujours supérieure à la vitesse induite à $N = 1$, quelle que soit la fréquence. A la fréquence de résonance, la vitesse maximum est de 2,3 m/s à $N = 2$ alors qu'elle est de 1,5 m/s à $N = 1$. Ces résultats sont en accord avec les recherches de (M. Forte, 2007). Cela prouve qu'à même puissance électrique injectée, l'effet de l'addition de DBDS est favorable à l'intensification du vent électrique produit, malgré la réduction de la densité linéique de puissance dans chaque DBDS.

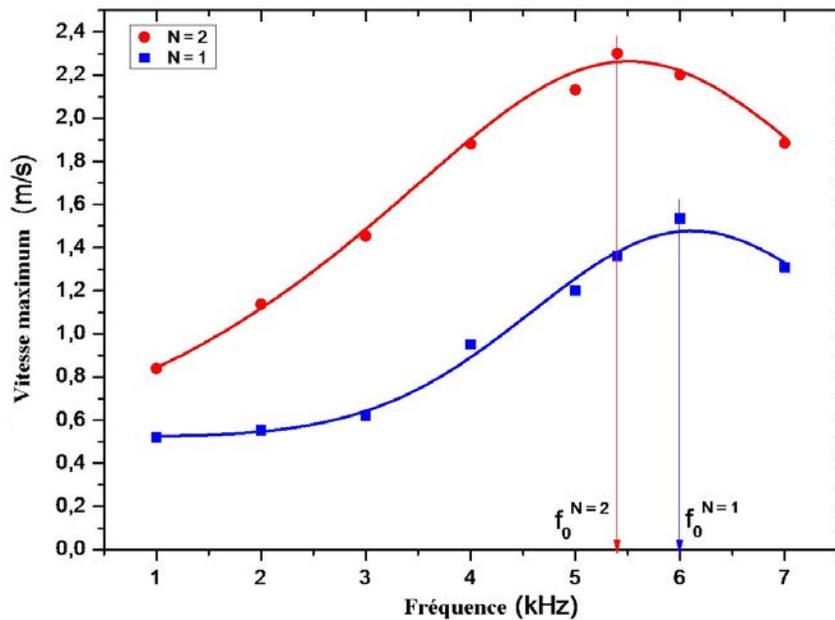


Figure 35. Amplitude de la vitesse maximum mesurée en fonction de la fréquence à une et deux DBDS ($L_{\text{contre-électrode}} = 2 \text{ mm}$, $L_{\text{électrode}} = 5 \text{ mm}$, $P_e = 60 \text{ W}$, $d = 2 \text{ cm}$ pour le verre borosilicate).

Une étude des profils de vitesse obtenus avec la surface active à deux DBDS en fonction de la distance inter-DBDS est réalisée à la fréquence de résonance (tous réglages d'alimentation fixes). Dans la Figure 37, cinq profils de vitesse sont établis en fonction de la distance inter-DBDS (de 1 cm à 5 cm) dans le but de trouver la distance inter-DBDS optimale. La structure du profil de vitesse est similaire à celle de la surface à une DBDS, constituée d'une superposition de trois couches. Selon la valeur de la distance inter-DBDS, la vitesse maximum peut aller de 1,95 m/s à 2,55 m/s : i) une première couche, fine, dans laquelle la vitesse passe très rapidement de 0 à la vitesse maximum, ii) une deuxième couche, moins fine, dans laquelle l'écoulement est laminaire et où la vitesse diminue progressivement de manière similaire pour toutes les distances inter-DBDS testées. Cette similitude confirme que cette couche correspond à une zone de gaz neutre dans laquelle le mouvement est établi par transmission visqueuse, iii) une troisième couche, plus épaisse, dans laquelle la vitesse diminue plus lentement. Le profil dans cette zone n'est pas lisse et présente quelques bosses. Cette zone pourrait donc correspondre, de par sa forme, à la trace d'un jet décollé venant se superposer au jet principal. Elle est intéressante car elle

pourrait valider l'hypothèse de l'apparition de rouleaux de recirculation entre les DBDS provenant de l'interaction entre le vent co-courant produit en aval de la première DBDS et le vent contre-courant produit en amont de la deuxième DBDS (Figure 24). Le rouleau induit serait dans ce cas à l'origine du décollement d'une partie du jet (Figure 36).

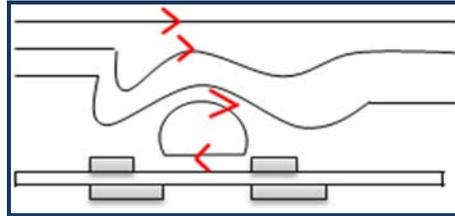


Figure 36. Double circulation dans la zone du jet.

La Figure 37 démontre aussi l'existence d'une valeur de distance inter-DBDS optimale, égale à 4 cm dans nos conditions opératoires, pour laquelle la vitesse du vent électrique induite par la création du plasma est la plus grande.

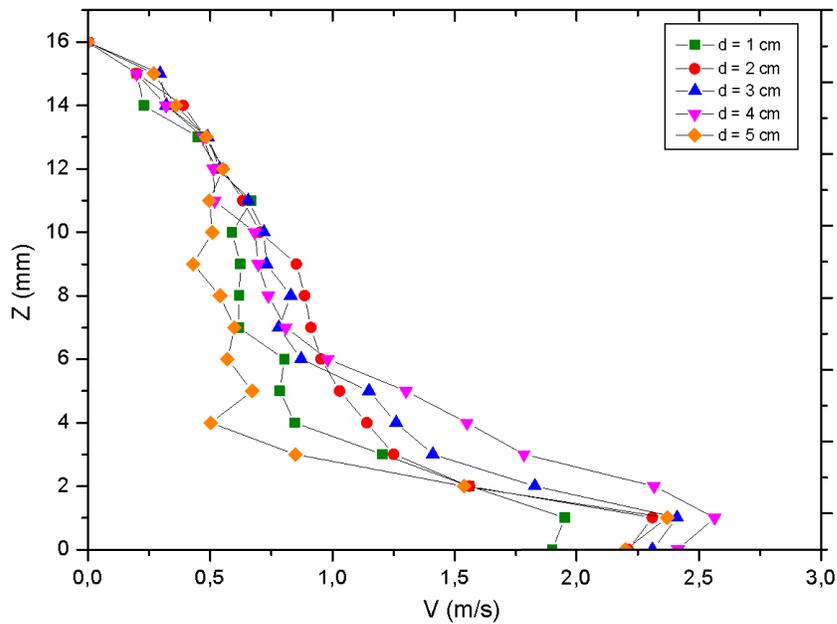


Figure 37. Profils de vitesse en fonction de la distance inter-DBDS (Mesures effectuées jusqu'à 16 mm en dessus de la 2^{ème} DBDS et à $f_0 = 5,4$ kHz pour le verre borosilicate).

2.5.2.3. Calcul de la puissance mécanique produite par la surface active à 2 DBDS

D'après les profils de vitesse établis dans la partie précédente, la puissance mécanique (p_m (W)) pour chacune des distances inter-DBDS est calculée aux conditions opératoires électriques constantes voire même densité linéique de puissance électrique.

A partir de ces données, la courbe de la puissance mécanique calculée est tracée en fonction de la distance inter-DBDS. Comme démontré dans la Figure 38, la densité de puissance mécanique obtenue varie de $1,14 \times 10^{-5}$ à $3,6 \times 10^{-3}$ W en passant par un maximum pour une distance inter-DBDS optimale égale à $d = 4$ cm. Cette distance pour laquelle la densité de puissance mécanique est à son maximum, est un paramètre clé pour la conception d'une surface ou d'un canal actif à plusieurs DBDS.

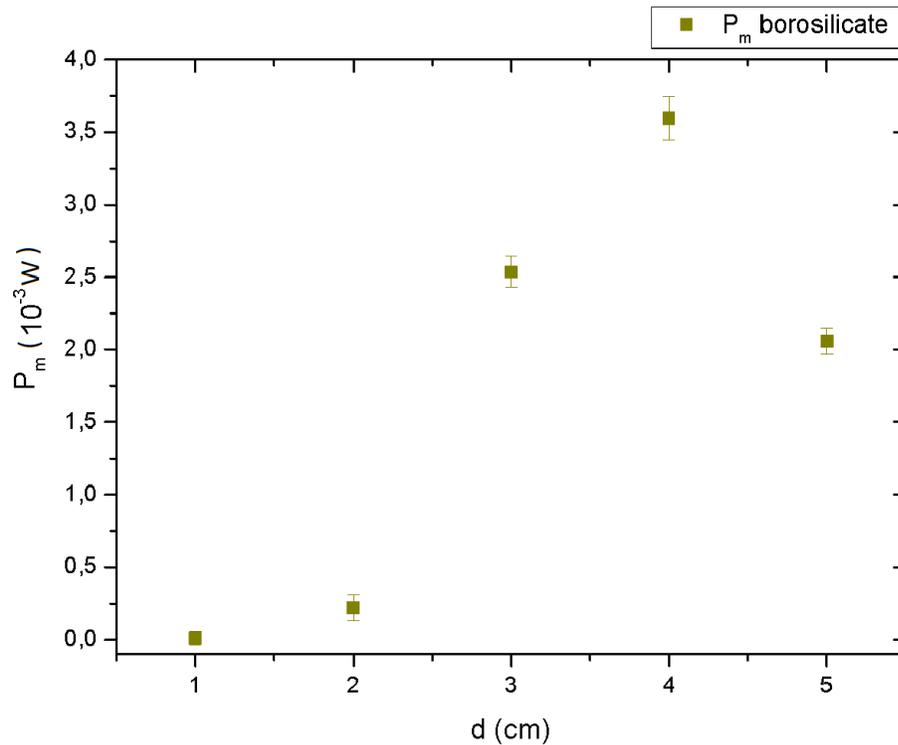


Figure 38. Puissance mécanique en fonction de la distance inter-DBDS d'une surface à deux DBDS ($f_0 = 5,4$ kHz).

2.6. Conception et étude électromécanique du canal actif

2.6.1. Dispositif expérimental

A l'aide des résultats des études menées sur les surfaces actives et l'identification des paramètres géométriques optimaux pour la résine époxy et le Pyrex ©, nous avons conçu un canal composé de deux surfaces actives. La tenue mécanique étant un critère très important pour la conception du canal, le matériau diélectrique choisi est le Quartz car il a des propriétés électriques et thermiques proches du Pyrex© mais une meilleure tenue mécanique.

Le canal est constitué de deux plaques en Quartz parfaitement identiques de dimensions 150 mm × 150 mm × 1 mm. Chacune des surfaces actives est composée de quatre DBDS dont le matériau d'électrode est l'aluminium. Les électrodes ont les mêmes dimensions que dans l'étude précédente : leur longueur est identiquement égale à 120 mm, la largeur des contre-électrodes exposées est de 2 mm tandis que la largeur des électrodes non-exposées est de 5 mm. La distance inter-DBDS est, elle, de 40 mm.

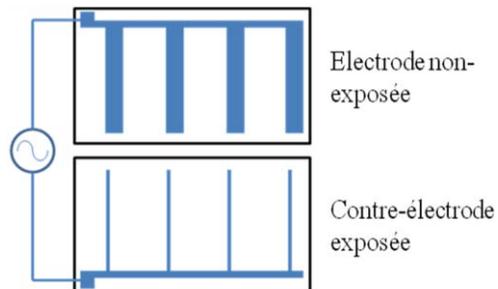


Figure 39. Configuration des électrodes des surfaces du canal actif.

Comme le montre la Figure 39, les contre-électrodes exposées des deux plaques sont placées de façon symétrique l'une en face de l'autre à l'intérieur du canal afin de générer un débit de gaz dans une même direction et un même sens.



Figure 40. Effet miroir du canal actif.

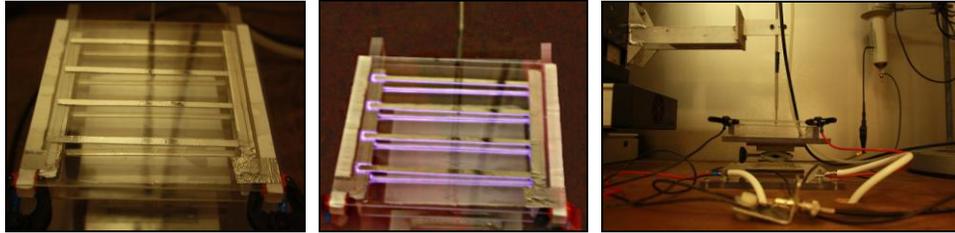


Figure 41. Photos du canal actif en absence du plasma (gauche), en présence du plasma (milieu) ainsi que son emplacement dans la cage de Faraday (droite).

Pour la conception d'un canal actif optimisé, l'influence d'un paramètre est importante à étudier : la hauteur du canal (hauteur séparant les deux surfaces actives). Nous menons trois séries d'expériences, chacune correspondant à une hauteur de canal différente : $H = 25$ mm, $H = 10$ mm, et $H = 6$ mm. Pour chaque condition de hauteur, les expériences consistent à mener la même étude que précédemment, à savoir, la détermination de la fréquence de résonance du canal (invariante avec la hauteur), les calculs : i) de la puissance électrique injectée (invariante avec la hauteur), ii) du débit hydrodynamique du canal, iii) de la puissance mécanique produite et, iv) du rendement électromécanique.

2.6.2. Modélisation électrique du canal actif

Nous suivons la même démarche théorique que précédemment pour tracer la fonction de transfert du système ainsi conçu et en déterminer la fréquence de résonance théorique. Pour ce faire, nous utilisons le modèle électrique équivalent d'une surface à 8 DBDS, Nous exprimons les termes relatifs à chacun des composants en prenant les propriétés du Quartz. Ce qui nous permet de calculer le module de la fonction de transfert du système, sachant que le générateur reste le même. La Figure 42 représente le module de cette fonction de transfert avec la fréquence. La courbe de transfert admet un maximum à 4 kHz, c'est la fréquence de résonance du canal. On remarque qu'il existe une similitude entre les fréquences de résonance obtenues dans les Figure 27 et Figure 42 pour deux configurations différentes. Nous pensons que cela est dû au fait qu'à partir d'un certain

nombre de DBDS, l'impédance de la surface active devient significativement inférieure à celle de l'alimentation, l'impédance du système tend alors vers celle de l'alimentation.

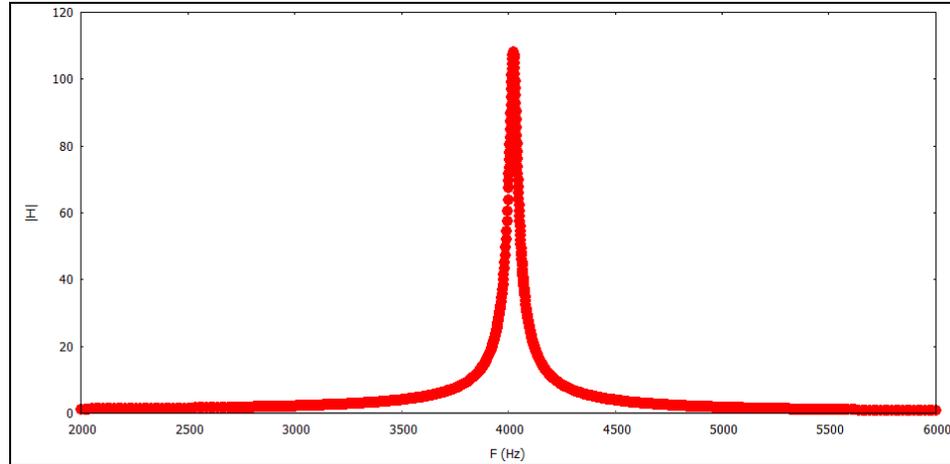


Figure 42. Evolution de la fonction de transfert du système équivalent électrique en fonction de la fréquence appliquée au canal actif.

Le calcul de la puissance électrique injectée dans le canal actif en fonction de la fréquence appliquée (aux mêmes réglages primaires que les surfaces actives en borosilicate ($U_{GBF} = 1,5 \text{ V}$, $G = +26 \text{ dB}$)), à l'aide des mesures faites de courant et de tension, conduit au tracé de la courbe présentée en Figure 43. Cette courbe confirme une fréquence de résonance aux alentours de 4 kHz. La puissance électrique y est maximum, environ égale à 60 W, ce qui correspond à une densité linéique de puissance d'environ 0,62 W par cm d'électrode.

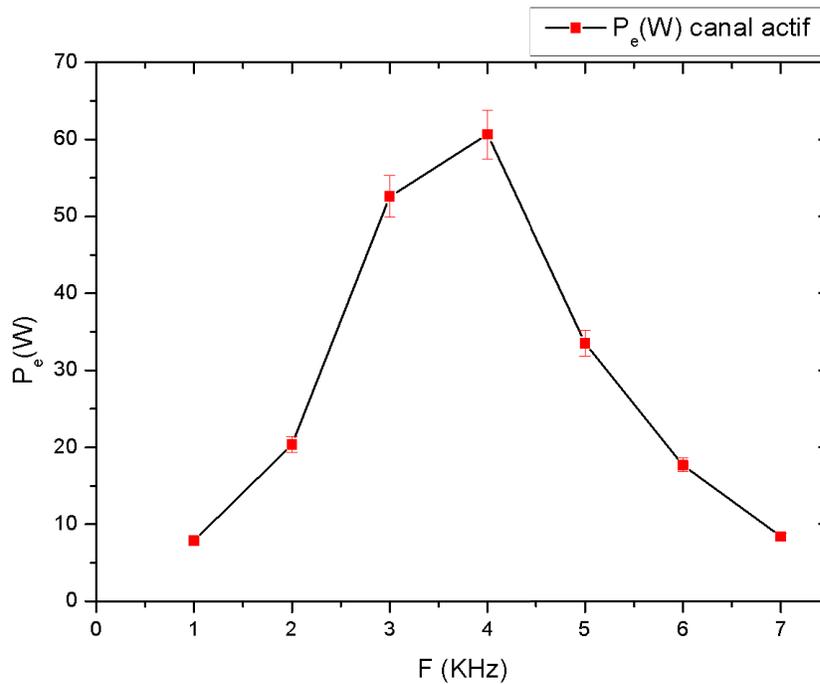


Figure 43. Evolution de la puissance électrique injectée en fonction de la fréquence appliquée (canal actif, 8 DBDS, distance inter-DBDS = 4 cm, $P_e = 60$ W, $H = 25$ mm).

2.6.3. Influence de la hauteur du canal actif

2.6.3.1. $H = 25$ mm

La première valeur de hauteur testée est 25 mm. Celle-ci correspond à environ deux fois l'épaisseur de la couche de gaz mobilisée par une surface active seule. Une expérience de pompage à l'aide du canal actif a d'abord été effectuée en se plaçant à la fréquence de résonance. Un profil de vitesse du vent électrique produit a été tracé suivant Oz en Figure 44. Tout comme une surface seule, la vitesse maximum est obtenue en proche paroi (à environ 1 mm), elle est ici égale à 1,6 m/s.

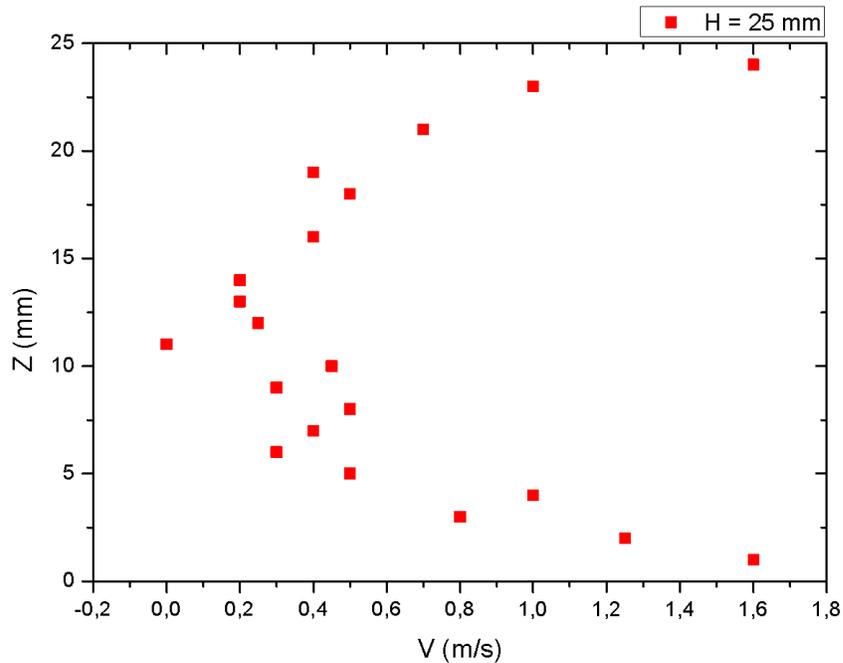


Figure 44. Profil de vitesse du canal actif à H = 25 mm. Les coordonnées du point de mesure sont : x à 16 mm derrière la dernière bande, y au milieu du canal, z variable.

On remarque sur ce profil que la zone centrale du gaz a une vitesse nulle qui contribue à réduire le rendement de conversion, une hauteur plus faible serait donc plus appropriée.

Le profil de vitesse a été tracé pour différentes valeurs de y afin de calculer le débit de pompage du canal actif à H = 25 mm, d'une section de $3,25 \times 10^{-3} \text{ m}^2$:

- La vitesse moyenne du vent électrique sur la section est de 0,62 m/s.
- Le débit total de pompage est de : $Q = 6,7 \text{ m}^3/\text{h}$.

La puissance mécanique produite peut aussi être calculée grâce à la valeur de la vitesse moyenne du vent électrique sur la section : $P_{\text{mécanique}} = 0,5 \times \rho \times v^3 \times S = 4,23 \times 10^{-4} \text{ W}$.

Telle que la masse volumique de l'air à la température ambiante $\rho = 1,184 \text{ Kg}/\text{m}^3$.

Plusieurs expériences de pompage ont ensuite été effectuées à des fréquences différentes afin de vérifier que la fréquence de résonance correspond bien au maximum du débit induit. La Figure 45 présente la variation de la vitesse moyenne du vent électrique

mesurée sur la section en fonction de la fréquence appliquée. La plus grande vitesse moyenne est obtenue à la fréquence de résonance.

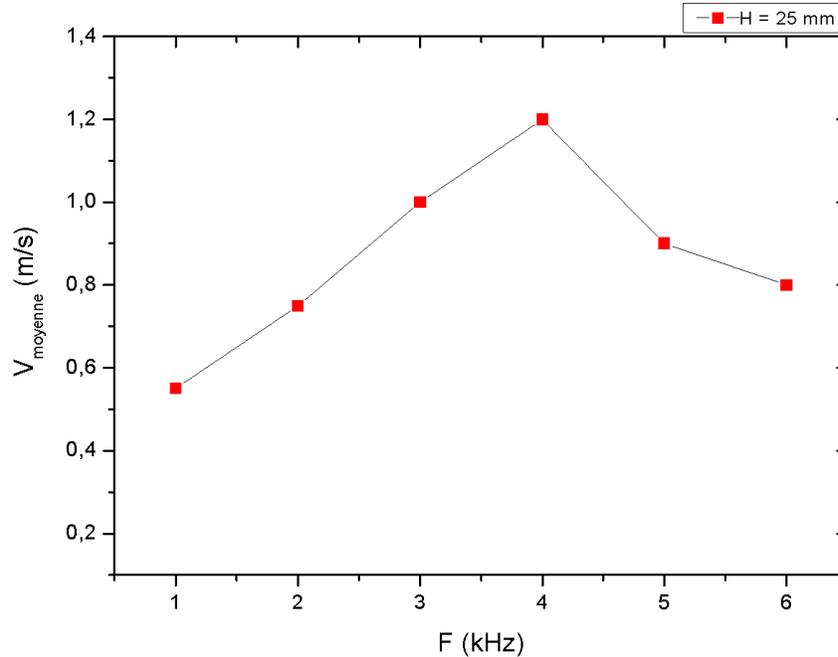


Figure 45. Variation de la vitesse moyenne (V_{moyenne}) en fonction de la fréquence appliquée (F) pour $H = 25$ mm.

2.6.3.2. $H = 10$ mm

Suite au résultat acquis à $H = 25$ mm mettant en évidence une zone centrale immobile dans le profil de vitesse de l'air pompé, la hauteur du canal a été réduite à 10 mm afin de faire disparaître cette zone immobile. Le profil de vitesse obtenu est alors celui de la Figure 46. Nous constatons d'abord la disparition attendue de la zone immobile, mais aussi une uniformisation du profil vertical de vitesse. La vitesse maximum passe ici à 3 m/s alors qu'elle n'était que de 1,6 m/s à $H = 25$ mm. De plus, la vitesse moyenne augmente significativement.

Tout comme à $H = 25$ mm, le profil de vitesse a été tracé pour différentes valeurs de y afin de calculer le débit de pompage du canal actif à $H = 10$ mm, d'une section de $1,3 \times 10^{-3} \text{ m}^2$:

- La vitesse du vent électrique sur la section est de 2,12 m/s.

- Le débit de pompage est de : $Q = 9,16 \text{ m}^3/\text{h}$.

Et de la même façon que précédemment, la puissance mécanique produite est calculée grâce à la valeur de la vitesse moyenne du vent électrique sur la section : $P_{\text{mécanique}} = 6,77 \times 10^{-3} \text{ W}$. Elle est seize fois supérieure à la puissance mécanique produite à $H = 25 \text{ mm}$.

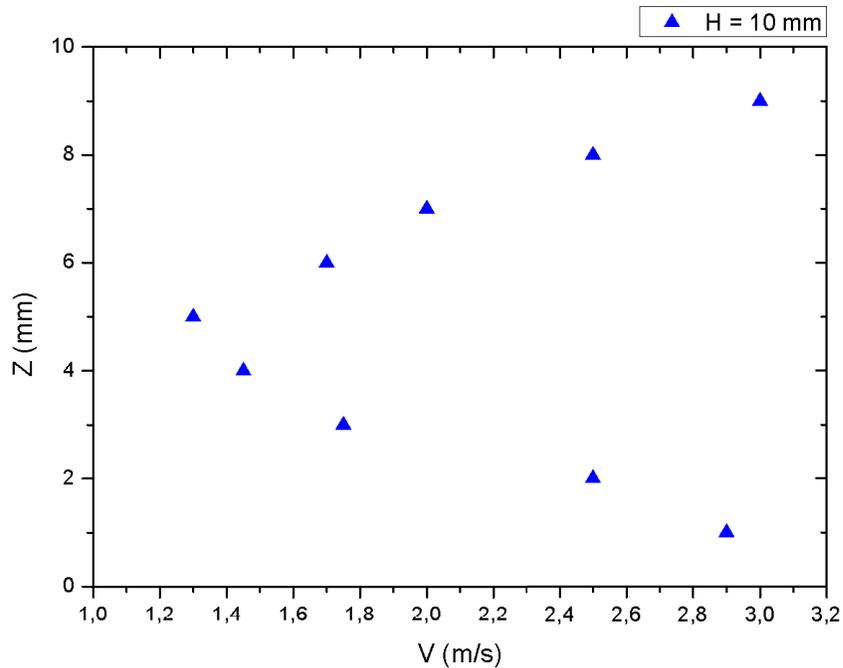


Figure 46. Profils de vitesse du canal actif à $H = 10 \text{ mm}$. Les coordonnées des points de mesure sont : x à 16 mm derrière la dernière bande, y au milieu du canal, z variable.

Là encore, comme à $H = 25 \text{ mm}$, des expériences de pompage ont ensuite été effectuées à des fréquences différentes afin de vérifier que la fréquence de résonance correspond bien au maximum de la vitesse moyenne et donc du débit de pompage. Comme le montre la Figure 47, c'est bien le cas.

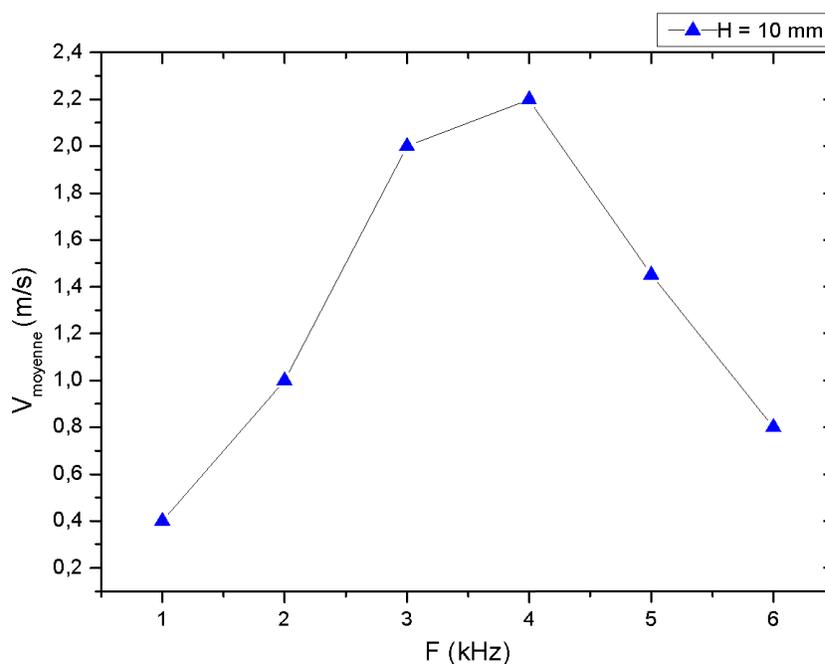


Figure 47. Variation de la vitesse moyenne (V_{moyenne}) en fonction de la fréquence appliquée (F) pour $H = 10$ mm.

2.6.3.3. $H = 6$ mm

Les résultats prometteurs à $H = 10$ mm prouvent que la réduction de la hauteur du canal joue un rôle bénéfique sur l'efficacité de la conversion électromécanique du canal actif. Mais il est important de poursuivre cette réduction afin de voir si cette tendance se poursuit. Ainsi, la hauteur du canal a été réduite à 6 mm et un profil de vitesse a été tracé de la même façon que les cas précédents. La Figure 48 présente ce profil et montre que la réduction de la hauteur augmente encore les valeurs de vitesse. La vitesse maximum atteinte est maintenant de 3,3 m/s et le profil de vitesse s'uniformise davantage.

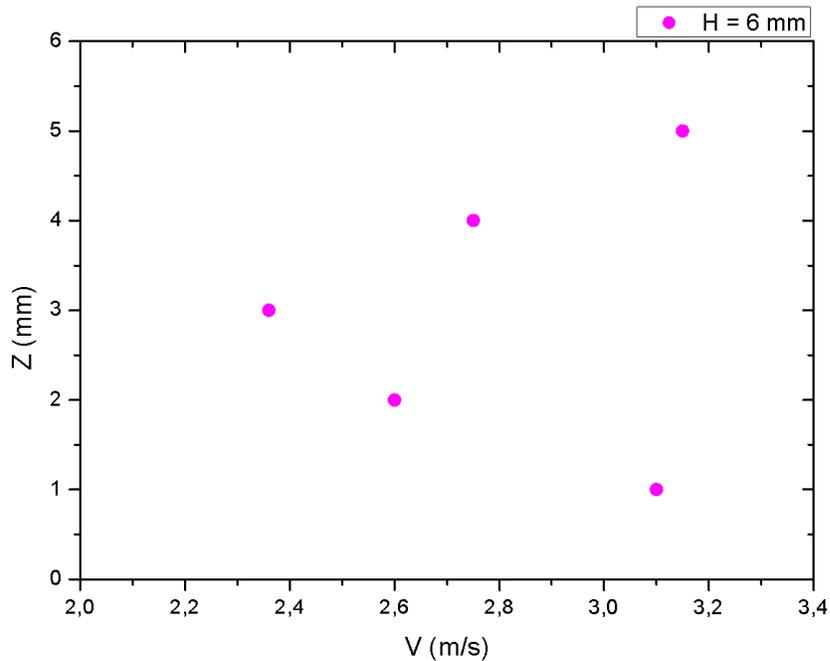


Figure 48. Profil de vitesse du canal actif à $H = 6$ mm. Les coordonnées du point de mesure sont : x à 16 mm derrière la dernière bande, y au milieu du canal, z variable.

Tout comme à $H = 25$ mm et $H = 10$ mm, le profil de vitesse a été tracé pour différentes valeurs de y afin de calculer le débit de pompage du canal actif à $H = 6$ mm, d'une section de $7,2 \times 10^{-4} \text{ m}^2$:

- La vitesse du vent électrique sur la section est de 2,79 m/s
- Le débit de pompage est de : $Q = 7,23 \text{ m}^3/\text{h}$.

Et de la même façon que précédemment, la puissance mécanique produite est calculée grâce à la valeur de la vitesse moyenne du vent électrique sur la section : $P_{\text{mécanique}} = 9,26 \times 10^{-3} \text{ W}$.

On constate ainsi que malgré une hausse de la puissance mécanique induite, le débit de pompage est lui diminué lorsqu'on baisse la hauteur du canal en dessous d'une certaine valeur de la hauteur.

2.6.3.4. Calcul du rendement

Le calcul des puissances électriques et mécaniques permet de déterminer le rendement électromécanique du canal actif pour les trois hauteurs testées. Le rendement de conversion électromécanique est calculé comme suit :

$$\eta = \frac{P_m(W)}{P_e(W)} \quad (2.14)$$

Ci-dessous, les valeurs du rendement pour les trois cas :

Pour H = 25 mm : $\eta = 7,05 \times 10^{-6}$

Pour H = 10 mm : $\eta = 1,13 \times 10^{-4}$

Pour H = 6 mm : $\eta = 1,54 \times 10^{-4}$

La puissance électrique injectée ne variant pas avec la hauteur, le rendement suit la tendance de la puissance mécanique produite, ce qui veut dire que le plus haut rendement est celui obtenu à H = 6 mm.

2.6.4. Choix de la hauteur du canal optimale

La comparaison des trois cas (Figure 49) montre que la meilleure hauteur entre les trois est 10 mm dans le cas où l'on souhaite concevoir une pompe monocanal, car bien que le rendement de conversion électromécanique soit moins bon qu'à H = 6 mm, le débit de pompage est lui notablement supérieur (Figure 50). Nous avons donc choisi cette hauteur de canal pour concevoir un prototype de pompe électrohydrodynamique en configuration monocanal, le débit de 10 m³/h étant un objectif du cahier des charges initial établi avec l'industriel. Bien entendu, pour la conception d'une pompe plus complexe, le choix optimal de configuration serait celui d'une pompe à multiple canaux superposés de hauteur caractéristique de canal plus faible (proche de 6 mm) permettant d'atteindre par la superposition un débit de pompage total de 10 m³/h. Cette solution nécessitant une étude complémentaire pour sa mise en œuvre (étude paramétrique de la superposition des canaux) n'a pas été étudié dans le cadre de cette thèse.

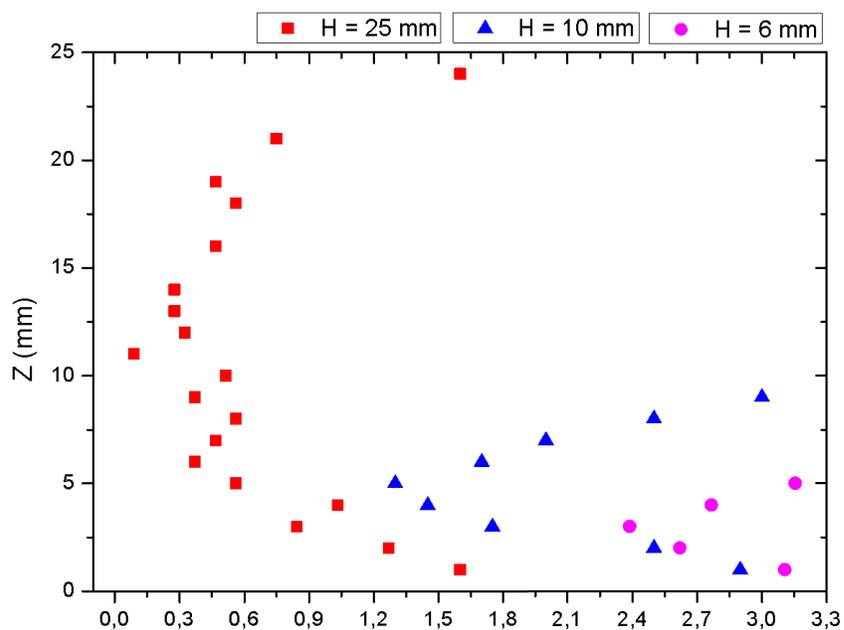


Figure 49. Les profils de vitesse pour les trois hauteurs $H = 25 \text{ mm}$, $H = 10 \text{ mm}$ et $H = 6 \text{ mm}$.

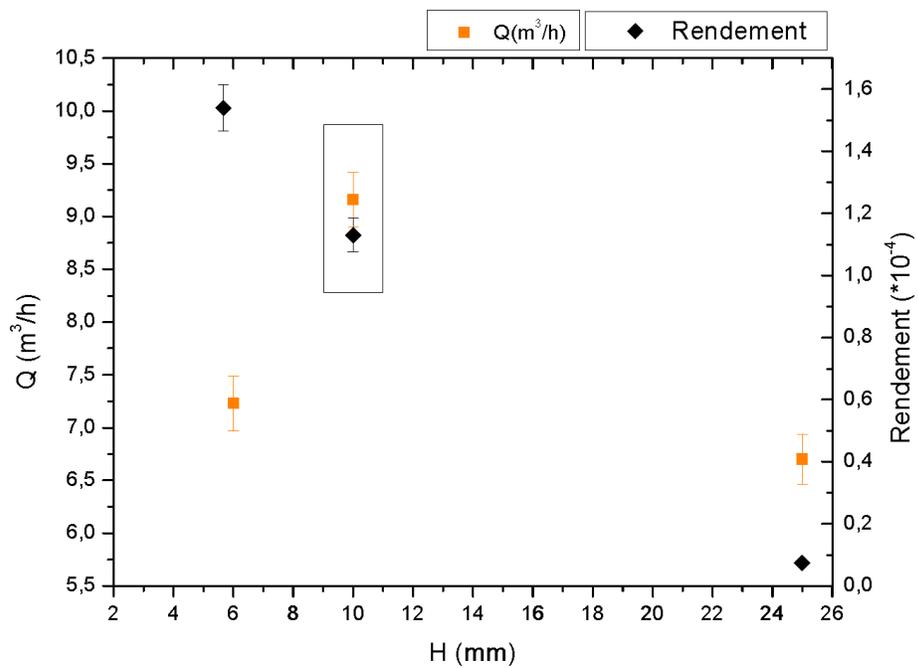


Figure 50. Q et rendement = $f(H)$.

2.7. Conclusion

L'étude expérimentale a permis:

- D'apporter de nouveaux résultats sur la réponse fréquentielle du système physique {DBDS/générateur}.
- D'ébaucher un premier modèle électrique de dipôle équivalent permettant de comprendre la réponse fréquentielle et d'ouvrir la voie à une méthode d'optimisation du système {DBDS/générateur} basée sur l'accord fréquentiel de composants.
- De faire le choix du matériau le plus adapté pour la fabrication de surfaces actives et des paramètres géométriques optimaux : Quartz d'épaisseur d'1 mm, distance inter-DBDS de 4 cm dans une configuration des électrodes asymétrique : largeur d'électrode non exposée de 5 mm et largeur de l'électrode exposée de 2 mm.
- A partir du choix paramétrique approprié pour une surface active, d'effectuer la conception d'un canal aspirant à deux faces actives.
- De fabriquer et tester un canal actif d'une capacité de pompage d'environ 10 m³/h et ce dans une configuration monocanal.

Maintenant que le canal actif, l'élément principal d'une pompe active EHD, a été réalisé, caractérisé et optimisé sur le plan de la conversion électromécanique, il est à présent temps d'aborder le chapitre suivant dédié à la construction d'une pompe active EHD à proprement parlé et à son utilisation dans le traitement de l'air pollué par abattement en COV.

Chapitre 3

Conception d'une pompe active EHD et étude de la conversion des COV

3.1. Introduction

Nous avons exposé dans le chapitre précédent la conception d'un canal actif permettant de pomper un débit d'air maximum de 10 Nm³/h avec une puissance électrique de l'ordre de 60 W. Nous abordons à présent dans ce chapitre la conception d'une pompe active EHD composé d'un seul canal actif, conçu et décrit dans le chapitre précédent, et son utilisation comme réacteur chimique pour l'abattement des COV dans l'air.

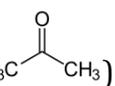
Le chapitre suivra les étapes suivantes :

- Choix des polluants et cahier des charges défini avec le partenaire industriel sur la nature, la concentration et le débit des COV à traiter.
- Conception et réalisation d'une pompe active basée sur le canal actif du chapitre 2.
- Réalisation d'un banc pour l'injection des polluants et la mesure du taux d'abattement des COV dans l'air.
- Mise en œuvre d'un protocole expérimental.
- Résultats d'abattement des COV par la pompe active EHD : taux d'abattement, caractérisation des sous-produits et schéma réactionnel. Les résultats sont donnés pour des expériences menées en mode d'injection *polluant par polluant* et en mode d'injection *polluants mélangés* en fonction du débit d'air.

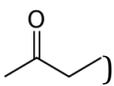
3.2. Choix de polluants et cahier de charges

Notre choix de COV s'est dirigé vers trois familles de composés différents: cétones, aldéhydes et esters.

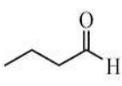
Les deux cétones sont :

- L'acétone (C_3H_6O ; )

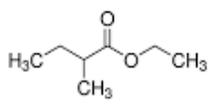
C'est un solvant très utilisé dans l'industrie et en laboratoire ayant pour avantage de solubiliser rapidement de nombreuses espèces organiques. Elle est à la base de la fabrication de polymères, de médicaments, du bisphénol A par réaction avec le phénol. L'acétone est également utilisée pour le stockage et le transport de l'acétylène ainsi que le dégraissage industriel.

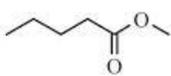
- Le 2-butanone ou méthyl éthyl cétone (MEK) (C_4H_8O ; ) : c'est une cétone utilisée généralement comme solvant dans l'industrie.

L'aldéhyde est :

- Le butyraldéhyde (C_4H_8O ; ) : Il est utilisé dans les industries de polymères, dans les solvants et les polymères. Quand il est émis dans l'atmosphère, il se dégrade par réaction photochimique avec le radical hydroxyle, ce dernier ayant une durée de vie de 16 heures.

Les esters sont :

- Le méthyl butyrate ($C_5H_{10}O_2$; ) : il est utilisé comme arôme dans l'industrie alimentaire et la parfumerie.

- Le méthyl valérate ($C_6H_{12}O_2$; ) : il est utilisé dans l'industrie alimentaire et dans la parfumerie. Les émissions de ce type de COV par les rejets industriels dans l'environnement aboutissent à une pollution atmosphérique.

Dans la littérature, il existe un grand nombre d'études portant sur le traitement des cétones ((N. Sebban, 2011), (S. Lovascio, 2012)) et des aldéhydes ((W. Faider, 2013), (N. Blin-Simiand, 2009), (A. Chiper, 2010)) mais très peu sur les esters.

3.3. Plan d'expérience

Deux modes d'injection ont été utilisés :

- Le mode d'injection *polluant par polluant*, qui consiste à injecter un seul polluant dans une matrice d'air afin de l'abattre. Dans ce mode d'injection, la concentration du COV est fixée à 25 ppm d'après le cahier de charges établi entre le laboratoire d'accueil et VERI.
- Le mode d'injection *polluants mélangés*, qui consiste à injecter les cinq polluants ensemble dans une même matrice d'air afin de les abattre simultanément. Dans ce mode d'injection, la concentration de chacun des COV est fixée à 10 ppm.

Les expériences d'abattement des COV dans les deux modes d'injections ont été effectuées pour des débits d'air variant entre 0,48 Nm³/h à 10,74 Nm³/h.

3.4. Conception et réalisation d'un démonstrateur composé d'une pompe active EHD, de son banc d'expérimentation et de ses appareils de caractérisation

La conception du démonstrateur suit trois étapes :

- Conception d'une pompe active EHD pour le traitement des COV à partir du canal conçu dans le chapitre 2.
- Mise en œuvre de deux châssis : un bâti *VERI* permettant l'injection des COV dans une matrice air à des concentrations et débits déterminés suivant un outil de dosage.
- Choix des appareils de caractérisation pour la mesure du taux d'abattement des COV et l'identification des sous-produits de décomposition.

3.4.1. Pompe active EHD

3.4.1.1. Conception de la pompe EHD

La conception de la pompe EHD se base sur les résultats de l'étude et de l'optimisation du canal actif (voir chapitre 2).

Pour la fabrication de la pompe EHD, on a fait le choix de l'ABS (Acrylonitrile Butadiène Styrène) afin d'utiliser une imprimante 3D uPrint Stratasys dont dispose le centre PERSEE. L'ABS est un polymère thermoplastique présentant une bonne tenue mécanique et chimique (la température maximum supportée est de 200°C).

La pompe EHD a les dimensions suivantes : 186 mm × 220 mm × 56.5 mm. Elle est constituée des pièces suivantes (Figure 51, Figure 52 et Figure 53):

- Deux cônes : un cône divergent en entrée de la chambre de décharge et un cône convergent en sortie.
- Deux grilles placées au niveau des deux cônes pour laminariser l'écoulement.
- Un circuit de refroidissement.
- Un canal actif identique à celui du chapitre 2 pour $H = 10$ mm. Le diélectrique utilisé est le quartz à permittivité relative de 3,5 de dimensions 150 mm×150 mm×1 mm. Les électrodes sont en aluminium tels que la largeur de la contre-électrode exposée et l'électrode non-exposée sont de 2 et 5 mm, respectivement.
- Quatre capots couvrant complètement l'ensemble du canal actif.
- Deux hublots pour la visualisation du plasma créé à l'intérieur de la pompe EHD. Ces hublots sont en quartz et ont une dimension de 145 mm × 9 mm × 1 mm.

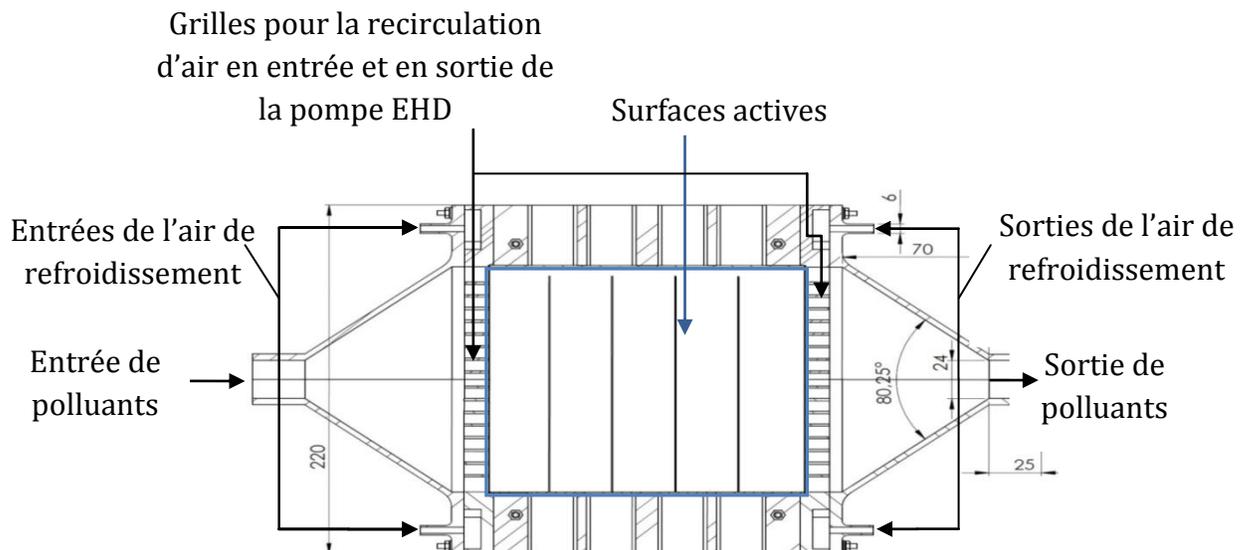


Figure 51. Composition interne de la pompe EHD.

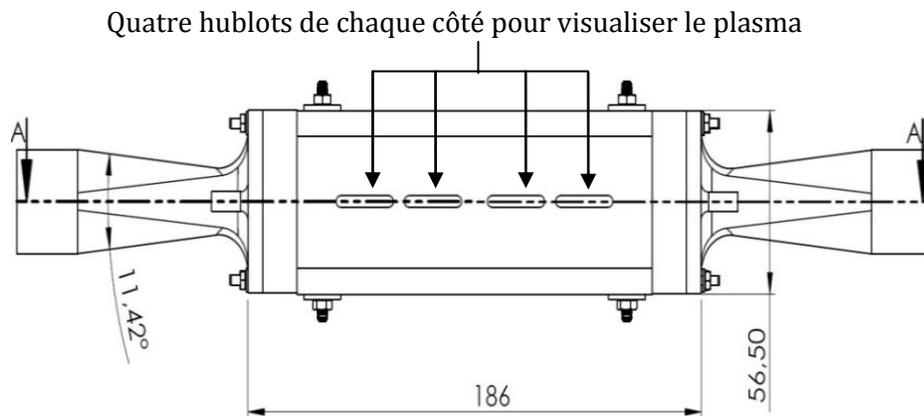


Figure 52. Format externe de la pompe EHD.

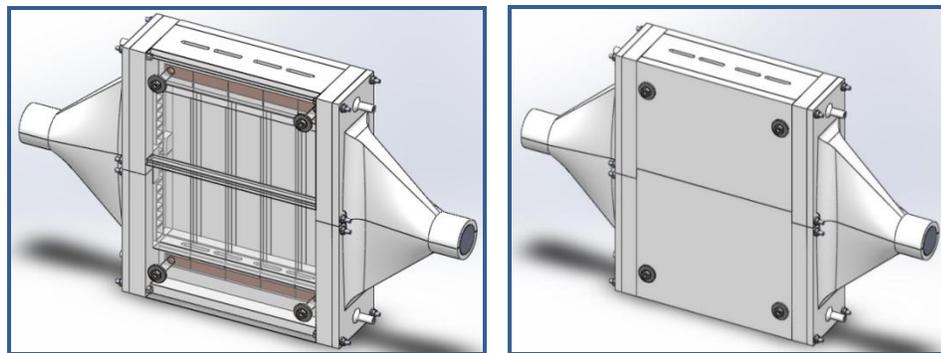


Figure 53. Assemblage de la pompe EHD avec vue sur la partie interne.

3.4.1.2. Disposition du rack de la pompe EHD

Pour rendre le réacteur mobile, il a été disposé sur un rack qui se divise en plusieurs blocs :

- Un bloc transformateur
- Un bloc d'amplification basse fréquence
- Un générateur basse fréquence
- Un dispositif d'analyse électrique : oscilloscope
- Un boîtier d'acquisition pour la mesure de la vitesse du vent électrique
- Un boîtier EHD où la pompe EHD est placée avec ses appareils de mesure (anémomètre, sonde de haute tension, shunt, inter-connexions)

Comme nous le montrons sur les Figure 54, Figure 55, Figure 56, le boîtier EHD contient :

- Des conduites d'acheminement de l'air pollué et d'évacuation de l'air traité, de part et d'autre de la pompe EHD. Quelques coudes sont présents dans ces conduites afin d'empaqueter l'ensemble dans le boîtier et d'améliorer le mélange des polluants avant l'entrée de la pompe.
- Des points de piquage du gaz en entrée sortie de la pompe sont placés sur les conduites pour effectuer des analyses chromatographiques différentielles entrée/sortie.
- Une sonde de Pitot est placée en sortie dans la conduite d'évacuation pour faire des mesures de vitesse d'écoulement. Celle-ci est placée à une distance égale à 17 fois le diamètre interne de la conduite d'évacuation afin de faire une mesure dans une zone laminaire (Figure 57).
- Des connexions électriques reliant la pompe EHD au transformateur pour son alimentation électrique.
- Une sonde de tension et un shunt d'une résistance de $100\ \Omega$ sont placés dans le boîtier de la pompe EHD pour effectuer des mesures électriques et en faire l'acquisition grâce à un oscilloscope.

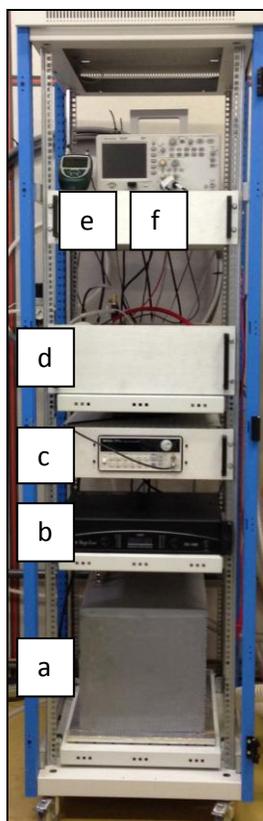


Figure 54. Photo du rack : (a) Transformateur ; (b) Amplificateur à basse fréquence ; (c) Générateur basse fréquence ; (d) boîtier EHD ; (e) Boîtier de mesure de la vitesse du vent électrique ; (f) Oscilloscope ;

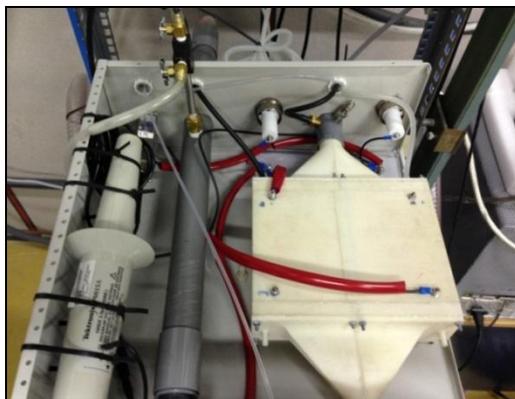


Figure 55. Vue globale des connexions de la pompe EHD.



Figure 56. Piquage en sortie de la pompe EHD.



Figure 57. Emplacement de la Sonde de Pitot.

3.4.1.3. Simulation des performances de la pompe EHD sous Solidworks

Afin de procéder à l'intégration de la pompe EHD dans le rack, une simulation de l'écoulement gazeux a été faite sous le logiciel Solidworks™ pour étudier les pertes de charges dans les conduites d'entrée et d'évacuation. La Figure 58 montre les résultats de cette simulation. On remarque sur cette figure un décollement au niveau du coude de la conduite d'entrée provoquant des boucles de recirculation. Ceci est un point positif car la recirculation augmente le temps de séjour de l'air pollué dans la zone de décharge. Les pertes de charge sont estimées à 20 mbar pour un débit de fonctionnement de 4 Nm³/h.

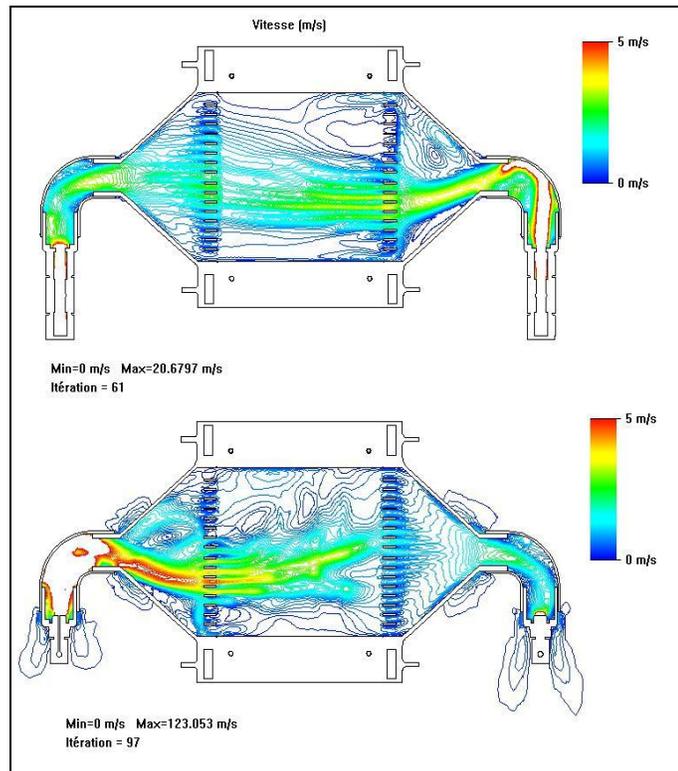


Figure 58. Pertes de charge au niveau du coude de la conduite d'entrée de la pompe EHD.

De même une simulation de la température moyenne des pièces en ABS constituant la pompe EHD en fonction du temps d'expérimentation est effectuée pour identifier la compatibilité de la nature des pièces avec les conditions opératoires. Cette simulation montre que la température se stabilise aux alentours de 26,5°C pour une durée de 2h d'expérimentation. Même si dans la conception de la pompe EHD un circuit de refroidissement a été intégré, la simulation montre qu'il n'est pas nécessaire car le chauffage est limité dans nos conditions d'expérimentations.

La simulation de l'écoulement gazeux nous permet également d'estimer la vitesse du fluide en entrée et sortie de la pompe pour un débit de 10 Nm³/h. Cette simulation est présentée sur la Figure 59, le sens de circulation de l'air se fait de la droite vers la gauche. La vitesse est estimée à 4 m/s en entrée et en sortie de la pompe EHD.

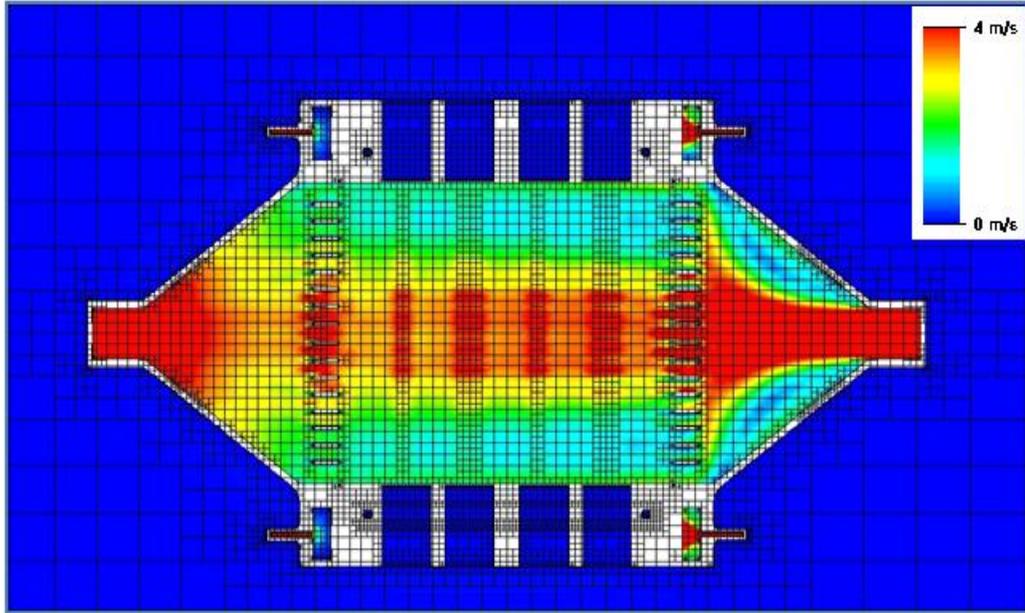


Figure 59. Maillage de la pompe EHD pour les conditions suivantes: température des polluants = 60°C ; Débit volumique d'air de refroidissement = 2 m³/h ; Pression = 1,013 bar ; débit volumique d'entrée des polluants = 10 m³/h.

Le premier test d'assemblage des pièces de la pompe EHD a permis d'étudier son étanchéité. Puis des tests d'allumage du plasma ont permis d'observer la présence d'intenses points lumineux au niveau de la connexion électrique commune des électrodes de haute-tension (Figure 60). Une perte de charge électrique est donc induite par cette imperfection.

D'autres points lumineux apparaissent aussi lorsque le capot supérieur est assemblé au niveau des écrous de maintien. En conséquence, un raccord « parfait » a été nécessaire pour éviter l'apparition de ces points lumineux. Les pièces d'assemblage du prototype ont été recouvertes de Téflon, les raccords ont été renforcés avec une colle thermofusible ce qui a conduit à l'étanchéité quasi parfaite de l'ensemble.

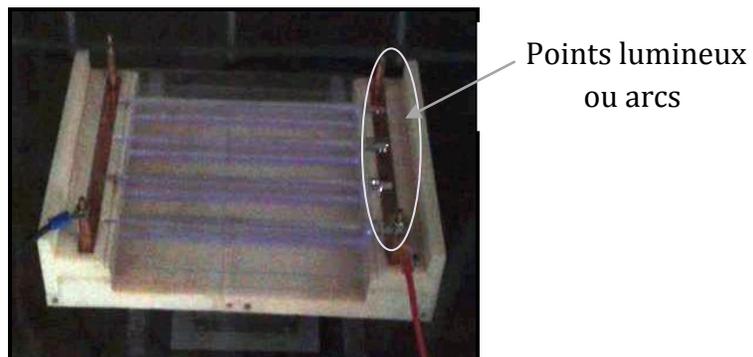


Figure 60. Premier test électromécanique de la pompe EHD.

Une mesure vélocimétrique de l'écoulement gazeux à l'aide de la sonde de Pitot a été effectuée en sortie de pompe, au niveau de la conduite d'évacuation en se plaçant dans les conditions optimales d'alimentation électrique du canal actif composant la pompe (fréquence de résonance = 4 kHz, réglage tension/gain max. au primaire). La vitesse mesurée est de 1,3 m/s pour un diamètre de tuyau de 25×10^{-3} m. Ce qui donne un débit de :

$$D = \frac{\pi d^2}{4} \times V \times 3600 = 2,3 \text{ m}^3 / \text{h} \quad (3.1)$$

Ceci démontre que dans notre configuration fermée, le canal actif ne débite plus que 2,3 m³/h à la place de 10 m³/h de débit obtenu en configuration ouverte (sans les pertes de charges accumulées).

3.4.2. Banc expérimental

Le banc expérimental est composé d'un bâti et d'un rack intégrant la pompe EHD (Figure 61 et Figure 62).

Le bâti se base sur le principe de dilution des COV dans une matrice d'air humide à l'aide de deux mélangeurs statiques placés en série pour l'injection à des concentrations définies et en continue dans la pompe EHD. Les COV sont injectés à l'aide d'un pousse seringue (PD001) dans un flux d'air comprimé (PCV001) à une pression de 2 bars et un débit de 2 Nm³/h réglé au débitmètre massique (FT003) (Figure 61). Ce flux est homogénéisé par un mélangeur statique (MS003) puis dilué à environ 10% suivant un réglage par défaut dans une première veine gazeuse (MS001). L'entrée d'air ambiant alimentée par le premier compresseur (SP001) se fait à un débit par défaut de 10 Nm³/h qui peut être réglé suivant la concentration finale souhaitée de COV. L'homogénéisation du flux des polluants liquides avec de l'air comprimé et l'air ambiant a lieu au niveau du mélangeur statique (MS001). À un débit de 0,8 m³/h réglé au débitmètre à bille (FI001) de grande précision, le flux primaire du mélange (air ambiant + air comprimé + polluants liquides) est envoyé vers un réseau d'air secondaire également alimenté par un compresseur (SP002) d'un débit de 10,7 Nm³/h (FT002) pour être de nouveau dilué par homogénéisation au niveau du mélangeur statique (MS002). Ce réseau secondaire d'air pollué se termine par une chambre de

décompression (C1) à partir de laquelle un piquage permet d'injecter l'air pollué dans la pompe EHD au débit d'air (D_e) allant de 0,48 Nm³/h à 10,74 Nm³/h car la pompe EHD seule est limitée à un débit maximum de 2,3 m³/h en circuit fermé. Le surplus des circuits primaires et secondaires (off gaz) est évacué vers un système d'extraction.

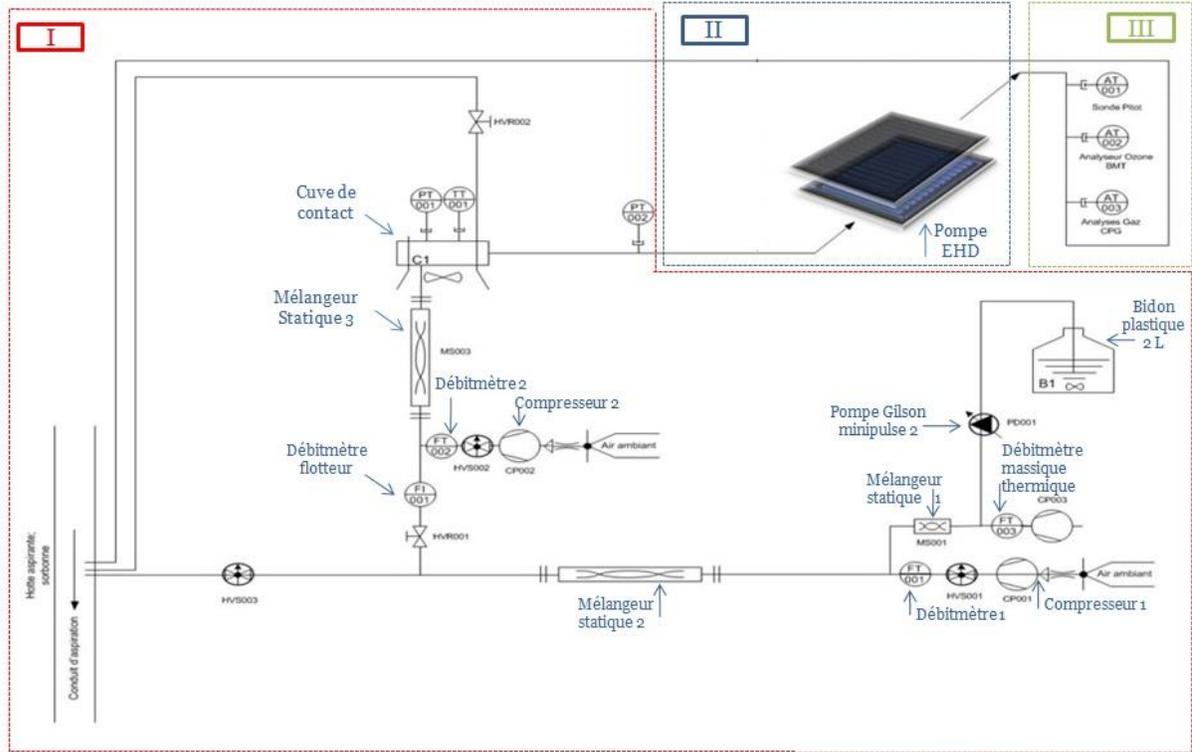


Figure 61. PID rassemblant les trois parties principales de la maquette expérimentale: I. Bâti, II. Pompe EHD, III. Métrologie et méthodes de caractérisation.



Figure 62. Rack contenant la pompe EHD et son alimentation électrique (à gauche) + bâti (à droite).

3.4.3. Appareils de caractérisation

La métrologie chimique permettant de caractériser les performances chimiques de la pompe active EHD est composée des appareils de mesure suivants :

- La *chromatographie en phase gazeuse (détecteur FID)* pour la détection, l'identification et la quantification des COV permettant de déterminer le taux d'abattement de chaque COV,
- La *chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse* pour l'identification des sous-produits de décomposition après traitement
- Et un *analyseur d'ozone* pour la détermination de la concentration d'ozone créée par les décharges de surface.

Les principes de ces méthodes d'analyse sont détaillés dans les annexes I, II et III.

3.5. Protocole expérimental

Le protocole expérimental est constitué des étapes suivantes :

- Etalonnage des COV par chromatographie en phase gazeuse à l'aide de gaz étalons.

- Détermination du taux d'abattement de chacun des COV injectés séparément par le mode d'injection *polluant par polluant* pour des débits d'air allant de 0,48 m³/h à 10 m³/h.
- Détermination du taux d'abattement du mélange des 5 COV à une concentration totale de 50 ppm (10 ppm chacun) à deux débits d'air : 1,23 Nm³/h et 4 Nm³/h.
- Identification des sous-produits en sortie de la pompe EHD pour 2 polluants des 5 par chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse.
- En se basant sur les résultats obtenus, établissement d'un schéma réactionnel de décomposition de deux molécules choisies parmi les 5 COV : 2-butanone et de l'acétone.
- Détermination de la concentration d'ozone en sortie de pompe EHD.
- Mesure de la consommation électrique du rack d'alimentation de la pompe EHD.

3.6. Résultats et discussions

3.6.1. En mode d'injection : *polluant par polluant*

3.6.1.1. Etude du taux d'abattement des COV en fonction du débit d'air D (Nm³/h)

Pour réaliser les expérimentations aux débits ayant les valeurs suivantes : 0,48 Nm³/h, 1,23 Nm³/h, 4 Nm³/h et 10,74 Nm³/h, un débitmètre à bille est placé en entrée de la pompe EHD. Le premier débit testé pour l'étude du taux d'abattement est 0,48 Nm³/h. A l'aide des mesures chromatographiques en entrée et en sortie de la pompe EHD, le taux d'abattement est calculé de la manière suivante :

$$\text{Abattement (\%)} = \left(1 - \frac{A(S)}{A(E)} \right) \times 100 \quad (3.2)$$

Où :

- A(S) est l'aire moyenne du pic chromatographique de sortie (calculée sur une série de mesures, dans notre cas 10),
- A(E) l'aire moyenne du pic chromatographique d'entrée (calculée sur une série de mesures, dans notre cas 10).

L'erreur relative est calculée pour chacune des séries de mesures en entrée et sortie en prenant en considération le rapport entre la variance de la moyenne et la moyenne des mesures effectuées.

3.6.1.2. Exemples de chromatogrammes en entrée et sortie de la pompe EHD

Deux exemples de chromatogrammes obtenus avant et après traitement du butyraldéhyde seul (25 ppm dans l'air) aux débits d'air respectifs de 0,48 Nm³/h et 1,23 Nm³/h, sont présentés sur les Figure 63 et Figure 64. Les temps de rétention sont respectivement de 0,87 minute et 0,85 minute. Sur ces chromatogrammes, on observe une différence notable entre l'aire des pics en entrée et celle des pics en sortie, indiquant une conversion significative du butyraldéhyde par le plasma. Pour D = 0,48 Nm³/h (Figure 63), le calcul des aires de pics donne 4,29 en entrée et 0,89 et 0,68 en sortie. Cela montre que deux mesures successives en sortie ne donnent pas exactement les mêmes résultats. Il est donc nécessaire pour chaque expérience de faire une série de mesures en entrée/sortie et d'en prendre la valeur moyenne affectée d'une erreur. Les résultats présentés dans la suite de ce travail ont été obtenus à partir de séries de dix mesures pour chaque condition d'expérimentation.

De la même façon pour D = 1,23 Nm³/h (Figure 64), le calcul des aires de pics sur cet exemple brut, donne 3,33 en entrée et 1,06 en sortie.

Une fois la moyenne calculée sur une série de dix mesures, la différence des aires moyennes en entrée et sortie nous sert à calculer le taux d'abattement du COV.

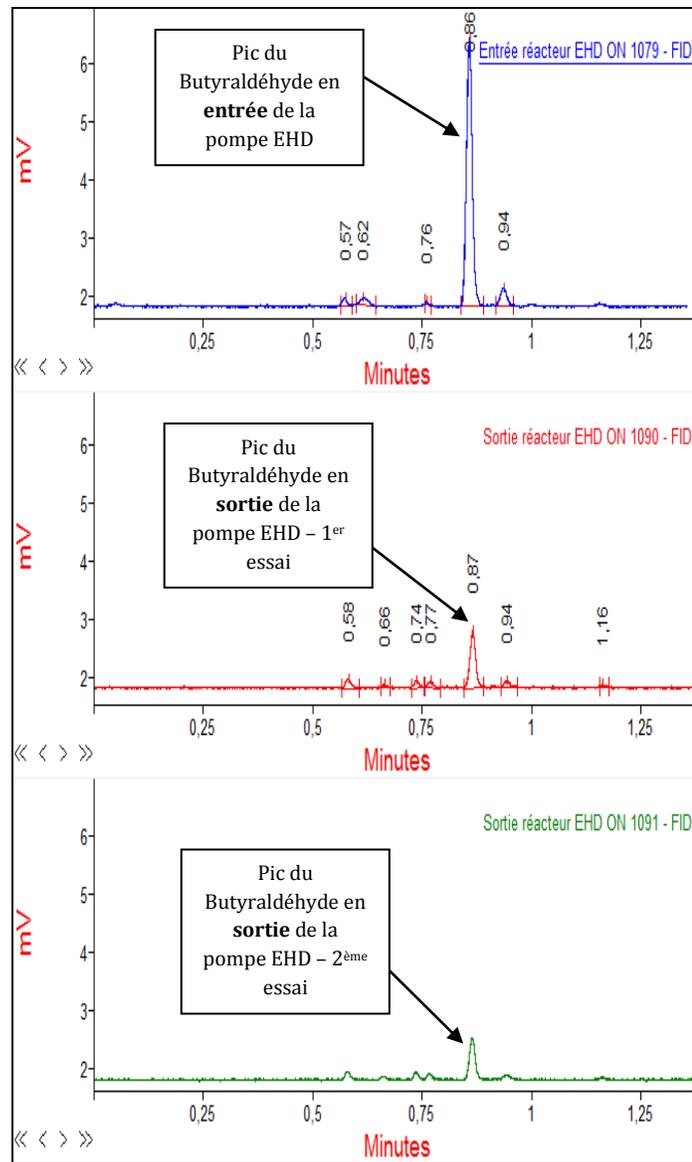


Figure 63. Chromatogrammes du Butyraldéhyde obtenus en entrée et en sortie de la pompe EHD pour un débit de $0,48 \text{ Nm}^3/\text{h}$ à $t_R = 0,87 \text{ min}$.

Dans la figure 63, rubrique « pic du Butyraldéhyde en entrée de la pompe EHD », une présence de plusieurs petits pics est observée. Cela résulte de la présence de traces des autres COV dans l'ensemble de la pompe EHD et des conduites.

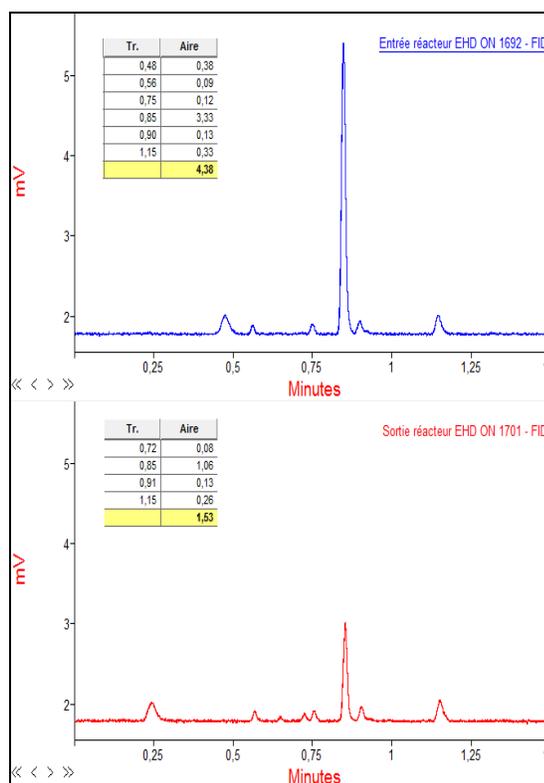


Figure 64. Chromatogrammes du Butyraldéhyde obtenus en entrée et en sortie de la pompe EHD pour un débit de 1,23 Nm³/h.

3.6.1.3. Résultats

Le Tableau 6 suivant donne les résultats d'abattement des 5 COV en mode d'injection *polluant par polluant* en fonction du débit.

COV	D = 0,48 Nm ³ /h (SIE = 400 J/l)	D = 1,23 Nm ³ /h (SIE = 162,2 J/l)	D = 4 Nm ³ /h (SIE = 49,2 J/l)	D = 10,74 m ³ /h (SIE = 18,2 J/l)
	Taux d'abattement (%)			
Acétone	55 ± 8,3	51 ± 2,6	36,5 ± 3	7,86 ± 0,5
2-Butanone	65 ± 6,4	59 ± 5	38,5 ± 4	8,86 ± 1,03
Butyraldéhyde	82 ± 4,7	64,5 ± 3,9	43 ± 2	11,2 ± 0,9
Méthyle Butyrate	46,8 ± 8,8	47,6 ± 4,3	39 ± 3	1,2 ± 0,4
Méthyle Valérate	15,2 ± 3,5	5,93 ± 5,7	■	■

Tableau 6. Taux d'abattement des COV en fonction du débit imposé en entrée de la pompe EHD en mode d'injection *polluant par polluant*.

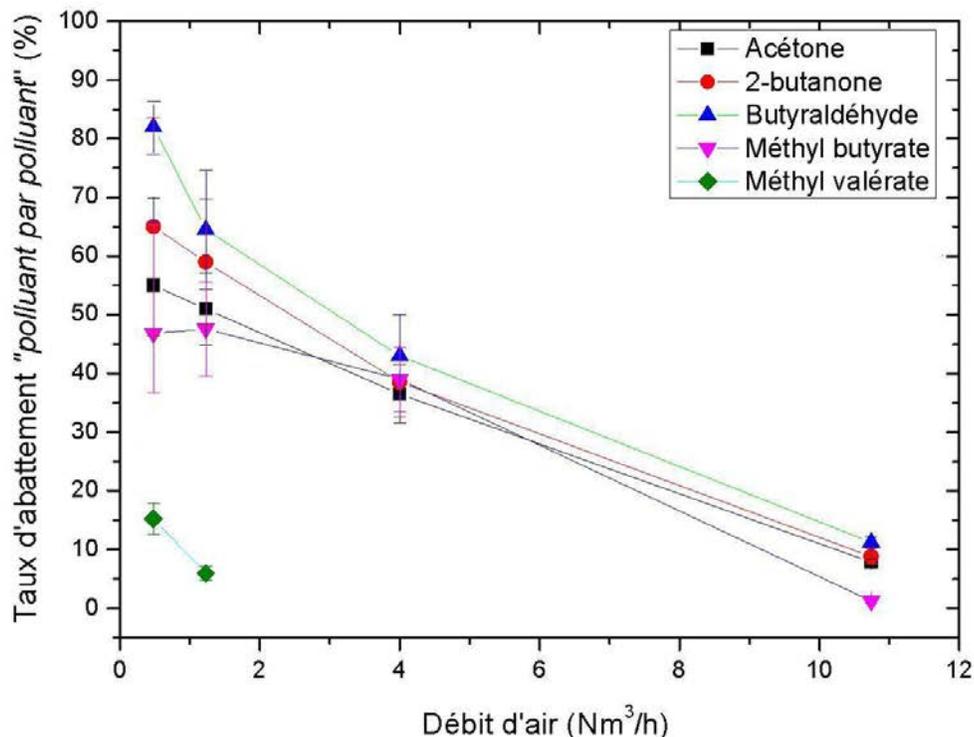


Figure 65. Taux d'abattement des COV en fonction du débit d'air imposé en entrée de la pompe EHD.

Le Tableau 6 montre que, pour un débit initial de 0,48 Nm³/h, le taux d'abattement est supérieur à 50% pour tous les COV excepté le méthyl valérate ayant un taux d'abattement de l'ordre de 15%. Par ailleurs, comparé aux autres COV, le méthyl valérate est celui qui possède le taux d'abattement le plus faible, ce quelque soit la valeur du débit variant entre 0,48 Nm³/h et 10,74 Nm³/h. D'après la littérature, pour une même famille fonctionnelle (ester, cétone, aldéhyde...), la facilité de décomposition dans un plasma froid croit avec le nombre d'atomes de carbone dans la molécule (N. Blin-Simiand, 2008). Les résultats obtenus sur la Figure 67, Une conclusion aussi catégorique ne peut être tirée des résultats que l'on obtient ici car le méthyl valérate qui comporte un nombre d'atomes de carbone plus grand que le méthyl butyrate est moins bien converti que ce dernier.

Une deuxième série de mesures est effectuée à un débit d'air de 1,23 Nm³/h. Comparé aux taux de conversion obtenus au débit de 0,48 Nm³/h, on observe une diminution du taux d'abattement des COV, excepté pour le méthyle butyrate pour qui une conversion est maintenue aux erreurs expérimentales près. Les taux d'abattement de l'acétone et du 2-butanone diminuent, respectivement de 4% et 6% tandis que le butyraldéhyde et le méthyl valérate diminuent un peu plus, respectivement, de 17,5% et 10%. Le méthyle butyrate est à peu près stable.

Cette diminution du taux de conversion peut être corrélée à la diminution du temps de séjour dans la chambre de décharge plasma de près de moitié lorsque le débit varie de 0,48 Nm³/h à 1,23 Nm³/h. Tout en ayant un taux d'abattement le plus élevé pour le butyraldéhyde.

Pour continuer à étudier l'influence du débit d'air sur la capacité de conversion des COV de la pompe, une série de mesures à un débit d'air de 4 Nm³/h a été réalisée dans les mêmes conditions de concentration que précédemment (25 ppm). On remarque que le taux d'abattement diminue pour tous les COV.

Pour finir cette étude paramétrique, une série d'expériences a été effectuée à un débit d'air de 10,74 Nm³/h. On observe une chute du taux d'abattement des cinq COV, le butyraldéhyde restant la molécule la mieux convertit des cinq avec un taux d'abattement de 11% à ce débit d'air. Le débit d'air étant ici 23 fois supérieur au premier débit testé (D = 0,48 Nm³/h), il est attendu que le taux d'abattement diminue car le temps de séjour dans la chambre de décharge est écourté due à l'augmentation du débit d'air.

Dans le cadre des essais menés jusqu'à présent sur les polluants pris séparément (25 ppm chacun), l'étude paramétrique a montré qu'un débit inférieur à 1,23 Nm³/h devait être utilisé pour avoir un taux d'abattement minimum de 50%. Notons également que les taux d'abattement de l'acétone que nous obtenons ici sont comparativement plus élevés que les taux d'abattement par plasma de cette molécule obtenus dans la littérature (S. Lovascio, 2012) tout en prenant en considération la concentration plus faible d'acétone injecté dans

le réacteur. L'acétone est connue pour être une molécule difficile à abattre en condition froide.

On peut conclure d'après ces expérimentations que :

- Le taux d'abattement diminue progressivement avec le débit d'air.
- Le butyraldéhyde est le composé ayant la meilleure conversion quel que soit le débit considéré.

3.6.1.4. Débit de COV converti

Le débit de COV converti est calculé par la formule :

$$D_{COV} = \frac{\chi}{100} \times [COV] \times D_{air} \quad (3.3)$$

Où la concentration de COV est égale à 25×10^{-6} .

La Figure 66 trace la courbe du débit de COV converti en fonction du débit d'air pour chaque molécule. On remarque que, bien que le taux d'abattement soit maximum à un débit d'air de $0,48 \text{ Nm}^3/\text{h}$, le débit de molécules convertis est lui maximum à un débit d'air de $4 \text{ Nm}^3/\text{h}$.

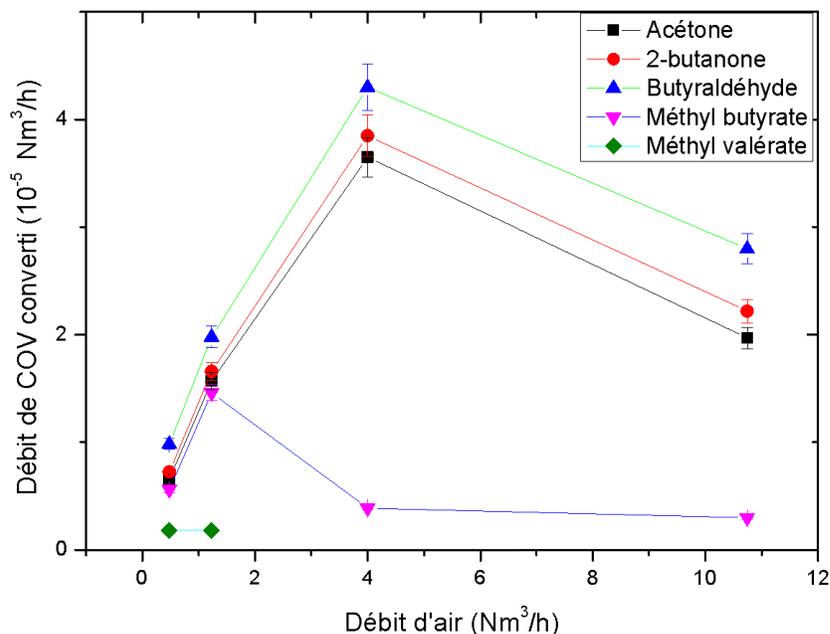


Figure 66. Etude du débit de COV converti en fonction du débit d'air (Nm^3/h).

3.6.2. En mode d'injection : polluants mélangés

Les cinq molécules sont injectées ensemble dans la matrice air, chacune à une concentration de 10 ppm. L'air pollué a donc une concentration totale en COV de 50 ppm. L'objectif ici est de savoir si le traitement suit la même tendance en fonction du débit d'air en mode d'injection *polluants mélangés*.

Comme le montre la Figure 67, cette tendance est confirmée pour trois des COV : l'aldéhyde et les deux cétones. Par contre la tendance ne se confirme pas pour les esters, le taux d'abattement du méthyl butyrate est quasi constant avec le débit d'air (autour de 32 %) tandis que celui du méthyl valérate augmente. En revanche, l'affinité de conversion est conservée entre les deux modes d'injection car en effet, le butyraldéhyde reste la molécule la plus abattue quel que soit le débit, suivie par les cétones, les esters étant eux les moins bien abattus. Cependant, nous remarquons qu'en injection simultanée des COV, l'augmentation du débit d'air tend à uniformiser l'affinité de l'abattement, c'est-à-dire égaliser les taux d'abattement.

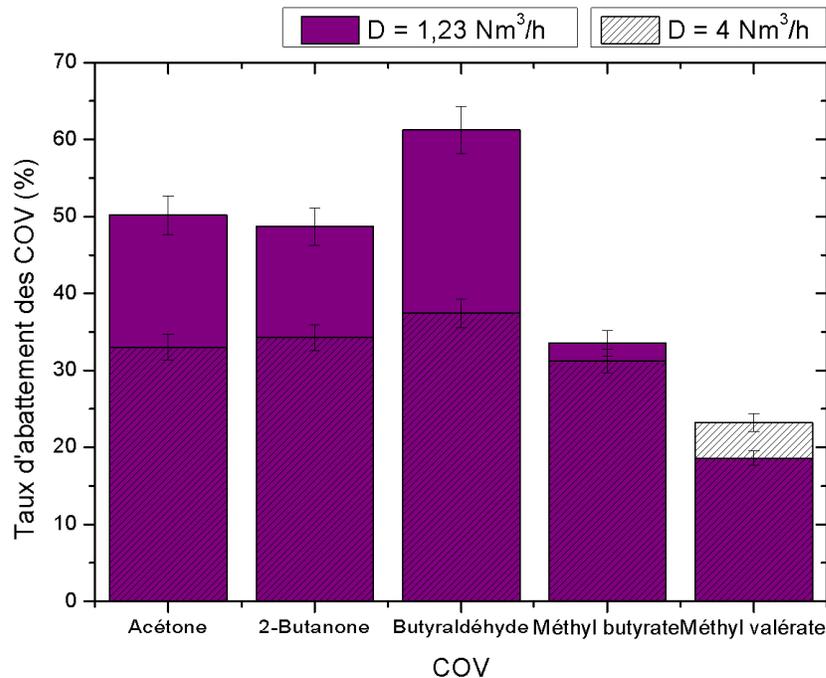


Figure 67. Taux d'abattement du mélange de COV en fonction du débit d'air.

3.6.3. Identification des sous-produits de dégradation des deux cétones : 2-butanone et acétone – proposition d'un schéma réactionnel

L'identification des sous-produits de dégradation du 2-butanone et l'acétone est effectuée par chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse (GC-MS). Cette identification n'a été effectuée que lors d'essais où les polluants étaient injectés seul (i.e. pas en mélange). L'identification des sous-produits détectés se fait par la mesure du rapport masse/charges dans un détecteur quadripolaire.

Le Tableau 7 liste tous les composés détectés par GC-MS en sortie de pompe EHD dans le cas du traitement du 2-butanone en injection seul (25 ppm) au débit d'air de 4 Nm³/h.

Composés	Nomenclatures	Caractéristiques
N ₂	Azote MM = 28 g.mol ⁻¹	Molécules de l'air et sous-produits d'oxydation du COV
O ₂	Oxygène MM = 32 g.mol ⁻¹	
Ar	Argon MM = 18 g.mol ⁻¹	
CO	Monoxyde de carbone MM = 28 g.mol ⁻¹	
CO ₂	Dioxyde de carbone MM = 44 g.mol ⁻¹	
H ₂ O	Eau MM = 18 g.mol ⁻¹	

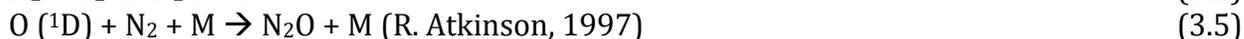
NO	Monoxyde d'azote MM = 30 g.mol ⁻¹	Sous-produits de l'oxydation du COV et/ou de sa dissociation par N ₂ dans le plasma
NO ₂	Dioxyde d'azote MM = 46 g.mol ⁻¹	
N ₂ O	Protoxyde d'azote MM = 44 g.mol ⁻¹	
N ₂ O ₅	Pentoxyde de diazote MM = 108 g.mol ⁻¹	
NH ₃	Ammoniac MM = 17 g.mol ⁻¹	
HNO ₃	Acide Nitrique MM = 63 g.mol ⁻¹	
HCN	Cyanure d'hydrogène MM = 27 g.mol ⁻¹	
C ₂ H ₅ NO ₂	Nitrite d'éthyle MM = 75 g.mol ⁻¹	
CH ₃ NH ₂	Méthyl amine MM = 31 g.mol ⁻¹	
CH ₄	Méthane MM = 16 g.mol ⁻¹	
CH ₃ OH	Méthanol MM = 32 g.mol ⁻¹	

 : Composés de l'air ambiant (S. Lovascio, 2012)

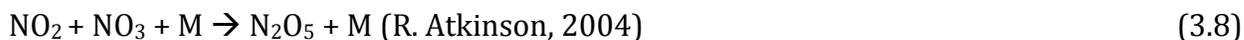
Tableau 7. Sous-produits de décomposition du 2-butanone.

Lorsqu'un COV est quasi complètement décomposé, les produits qui en résultent sont le dioxyde de carbone (CO₂), le monoxyde de carbone (CO) et l'eau (H₂O) (H. Kohno, 1998). Les sous-produits de décomposition du 2-butanone présents dans le Tableau 7 proviennent soit de l'oxydation du 2-butanone, soit de l'oxydation de l'azote de l'air. Différentes traces de sous-produits sont observées dans le traitement du 2-butanone qui résultent d'après la littérature des réactions suivantes.

Le protoxyde d'azote (N₂O) provient de l'oxydation du diazote N₂ :



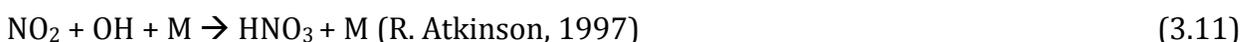
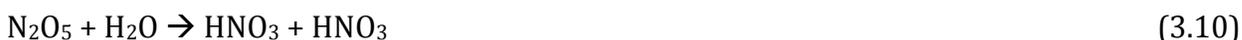
Le pentoxyde de diazote (N₂O₅) provient de la réaction entre le dioxyde d'azote et le trioxyde d'azote :



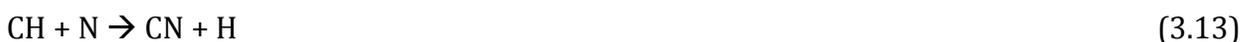
Le NO₂ est produit à partir de la réaction entre NO₃ et les produits de dissociation de l'eau (i.e. OH résultant lui-même de la dissociation par collision électronique de H₂O) :



L'acide nitrique (HNO₃) provient de la réaction entre le N₂O₅ et la vapeur d'eau existante dans le milieu et aussi de l'oxydation du NO₂ par OH :



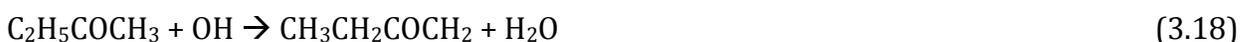
D'autre part, le cyanure d'hydrogène (HCN) est obtenu par la réaction du radical CH avec l'azote atomique ou moléculaire (L. Yu, 2010):



Le radical hydroxyle (OH•) produit dans le plasma de surface est plus réactif que l'oxygène atomique ; il est de ce fait, le principal responsable de la décomposition des COV (J. Zador, 2009), (S. Pasquiers, 2013), (J. Badra, 2014). Il décompose notamment le CH₃ par la réaction :



Il a été démontré par (N. Sebbar, 2011) que le 2-butanone réagit constamment avec le radical hydroxyle (OH•) du plasma d'air pour former trois types de radicaux :



Ces trois radicaux sont les 2-butanone-1-yl (3.16), 2-butanone-3-yl (3.17) et 2-butanone-4-yl (3.18). D'après (N. Sebbar, 2011), la liaison C-H du radical 2-butanone-3-yl a une énergie

de liaison égale à 90 kcal/mole. La liaison C-H du 2-butanone-1-yl est de 96 kcal/mole et celle du 2-butanone-4-yl est de 106 kcal/mole. La réaction du 2-butanone-1-yl est la plus dominante à faibles températures, ce qui correspond à nos conditions opératoires. Ce radical réagit ensuite avec le dioxygène pour former le radical peroxy 2-butanone-4-yl (N. Sebbar, 2011) (3.18). L'énergie de liaison du groupe C-OO du radical peroxy est influencée par le groupe carbonyle C=O.



La constante de vitesse de la réaction (3.19) déterminée par le NIST (NIST Chemical Kinetics Database) par l'expression suivante : $k = 7,31 \times 10^{-2} \pm 1,19 \times 10^{-2} \text{ cm}^3 \cdot \text{molec}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ à température ambiante.



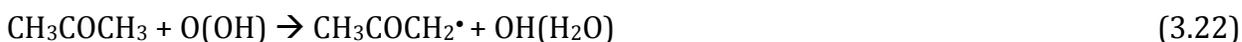
Comme la concentration initiale du 2-butanone et de l'acétone est faible (de 25 ppm), on n'arrive pas à observer d'autres traces de sous-produits comme par exemple l'acétaldéhyde ou le formaldéhyde pour pouvoir compléter les mécanismes réactionnels de dégradation de cette molécule.

D'autre part, le Tableau 8 liste les sous-produits identifiés par la GC-MS après dégradation de l'acétone en sortie de la pompe EHD. On remarque que la liste est presque identique entre le 2-butanone et l'acétone sauf pour la formation de la cyanamide d'hydrogène.

Les réactions de formation des oxydes d'azote sont les mêmes que précédemment décrites (voir relations (3.4 – 3.11)) pareil pour la cyanure d'hydrogène (relations 3.12 – 3.14).

En suivant la même logique de décomposition de l'acétone dans les travaux de (S. Lovascio, 2012), on suppose que l'acétone réagit en premier lieu avec l'oxygène atomique et les radicaux hydroxyles présents dans le milieu.

Les réactions abondantes sont détaillées comme suit :





Etant donné par le NIST (NIST Chemical Kinetics Database) que les constantes de vitesse des réactions d'oxydation de l'acétone sont moins importantes, principalement la réaction (3.22) ayant un coefficient de vitesse $k = 4,82 \times 10^{-22} \text{ cm}^3.\text{s}^{-1}$, que celles de dissociation avec l'azote, la décomposition de l'acétone se fait principalement par ces dernières pour former les radicaux CH_3COCH_2 , CH_3CO et le CH_3 .

Composés	Nomenclatures	Caractéristiques
N ₂	Azote MM = 28 g.mol ⁻¹	Molécules de l'air et sous-produits d'oxydation du COV
O ₂	Oxygène MM = 32 g.mol ⁻¹	
Ar	Argon MM = 18 g.mol ⁻¹	
CO	Monoxyde de carbone MM = 28 g.mol ⁻¹	
CO ₂	Dioxyde de carbone MM = 44 g.mol ⁻¹	
H ₂ O	Eau MM = 18 g.mol ⁻¹	
NO	Monoxyde d'azote MM = 30 g.mol ⁻¹	Sous-produits de l'oxydation du COV et/ou de sa dissociation par N ₂ dans le plasma
NO ₂	Dioxyde d'azote MM = 46 g.mol ⁻¹	
N ₂ O	Protoxyde d'azote MM = 44 g.mol ⁻¹	
N ₂ O ₅	Pentoxyde de diazote MM = 108 g.mol ⁻¹	
NH ₃	Ammoniac MM = 17 g.mol ⁻¹	
HNO ₃	Acide Nitrique MM = 63 g.mol ⁻¹	
HCN	Cyanure d'hydrogène MM = 27 g.mol ⁻¹	
C ₂ H ₅ NO ₂	Nitrite d'éthyle MM = 75 g.mol ⁻¹	
CH ₃ NH ₂	Méthyl amine MM = 31 g.mol ⁻¹	
CH ₄	Méthane MM = 16 g.mol ⁻¹	
CH ₃ OH	Méthanol MM = 32 g.mol ⁻¹	
CH ₂ N ₂	Cyanamide d'hydrogène MM = 42 g.mol ⁻¹	

: Composés de l'air ambiant (S. Lovascio, 2012)

Tableau 8. Sous-produits de décomposition de l'acétone.

3.6.4. Mesure de l'ozone produite par la pompe EHD

Pour mesurer la concentration d'ozone en sortie de pompe EHD, nous avons utilisé un analyseur d'ozone. La mesure d'ozone est faite par un piquage dans la conduite d'évacuation juste en sortie de pompe. Ce piquage achemine une partie de l'air traitée dans l'analyseur d'ozone. La concentration d'ozone a été mesurée pour deux débits d'air de 4 Nm³/h et de 10,74 Nm³/h passant dans la pompe EHD. L'analyseur d'ozone est de grande précision, les mesures sont affectées d'une erreur de l'ordre de 0,5%. Pour rappel, les mesures d'ozone se font dans les mêmes conditions d'alimentation électrique de la pompe EHD que pour le traitement des COV c'est-à-dire à fréquence de résonance ($F = 4$ kHz) et $P_e = 60$ W.

Pour chaque débit, une série de sept acquisitions a été faite en injectant du 2-butanone dans la pompe EHD. La période entre deux acquisitions consécutives est d'une minute. La Figure 68 présente les résultats. A partir de cette figure, nous pouvons calculer la valeur moyenne (sur les sept acquisitions) de la concentration d'ozone pour les deux débits d'air : 4 Nm³/h et 10,74 Nm³/h. La concentration d'ozone moyenne produite est de 460 ppm pour un débit d'air de 4 Nm³/h et de 226 ppm pour un débit d'air de 10,74 Nm³/h. Nous observons donc que la concentration d'ozone diminue avec l'augmentation du débit. Ceci pourrait en partie expliquer, en dehors des observations faites plus hauts et liés au temps de séjour, les faibles taux d'abattement à haut débit. Pour remédier au problème du rejet d'ozone vers l'extérieur, il suffit de rajouter un four ou un catalyseur en aval de la pompe EHD.

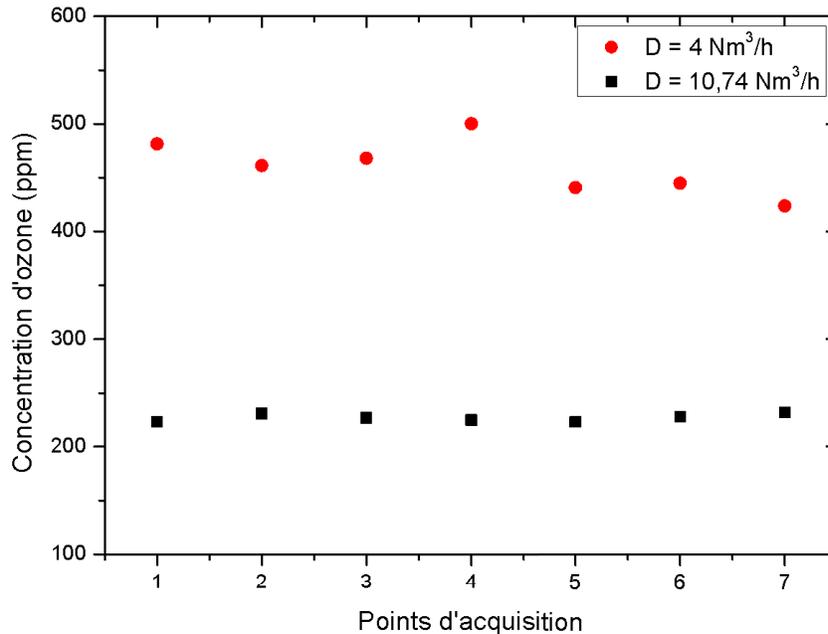


Figure 68. Variation de la concentration d’ozone en sortie du réacteur EHD en fonction du débit d’air 4 Nm³/h et 10,74 Nm³/h respectivement.

3.6.5. Mesure de la consommation électrique totale du rack

Après avoir déterminé les performances chimiques de la pompe EHD, nous avons effectué une mesure de la consommation électrique totale du rack dans lequel se trouve la pompe EHD et son alimentation électrique à l’aide d’un wattmètre à la prise secteur.

Lorsque le plasma est allumé aux conditions fournissant 60 W dans la pompe EHD, la consommation électrique totale du rack mesurée à la prise secteur est de 800 W ± 80 W. En conclusion, les traitements effectués à une puissance électrique effective de 60 W ont nécessités 800 W de disponibilité secteur. Une amélioration de la chaîne d’alimentation permettrait de réduire cet écart.

Conclusion générale et perspectives

Les travaux rapportés dans cette thèse ont été menés dans le but de concevoir une pompe active EHD appliquée au traitement de l'air pollué en composés organiques volatils (COV). L'état de l'art présenté dans cette étude justifie l'intérêt des procédés basés sur les décharges à barrière diélectrique pour le traitement des COV dans l'air.

Le procédé étudié dans cette thèse se base sur la génération d'un plasma de surface créé par les décharges à barrière diélectrique de surface. Ce type de plasma est intéressant pour le traitement d'air pollué car il a l'avantage d'associer un effet mécanique, utile pour le pompage de l'air pollué, et un effet chimique, pour le traitement de celui-ci.

L'objectif de notre étude était de caractériser un système composé de plusieurs DBDS dans le but de réaliser une surface active puis une pompe active EHD pour son utilisation dans la décomposition des COV dans l'air.

Premièrement, l'étude du comportement électrique de la DBDS a montré l'existence d'une fréquence de résonance à laquelle la puissance électrique injectée dans le système est à son maximum, pour une alimentation donnée.

Deuxièmement, le choix de la configuration et l'optimisation des paramètres géométriques et matériaux de la DBDS conçue dans cette étude, a permis d'atteindre des performances de conversion électromécanique de deux dispositifs multi-DBDS (surface active, canal actif) relativement élevées. Les rendements de conversion pouvant atteindre jusqu'à $1,54 \times 10^{-4}$.

Une fois les paramètres optimaux trouvés pour la conception d'un canal actif pompant efficacement, nous avons réalisé une pompe active EHD dans le but d'abattre cinq composés organiques volatils cibles dilués dans l'air : acétone, 2-butanone, butyraldéhyde, méthyl butyrate et méthyl valérate. Ces composés organiques volatils sont injectés soit séparément (mode d'injection *polluant par polluant* à concentration de 25 ppm), soit ensemble (mode d'injection *polluants mélangés* à concentration de 10 ppm chacun).

Une étude paramétrique du taux d'abattement des COV en fonction du débit d'air (de 0,48 Nm³/h à 10,74 Nm³/h) a d'abord été menée dans les deux modes d'injection ; suivie d'une étude d'identification des sous-produits de décomposition des deux cétones (2-butanone et acétone) en mode d'injection *polluant par polluant*. Une première ébauche de schémas réactionnels, basés sur les résultats de la littérature et couplés à nos résultats ont été élaborés pour les deux composés en question. Ces schémas permettent en partie d'expliquer la formation des sous-produits de réactions.

Nous retiendrons que :

- Le taux d'abattement est globalement une fonction décroissante du débit d'air.
- Le débit de molécules convertis est maximum pour un débit d'air optimum de 4 Nm³/h pour trois des cinq polluants, différent du débit d'air minimum (0,48 Nm³/h).
- Le butyraldéhyde est le composé le plus réactif à ce traitement avec des taux d'abattement pouvant atteindre 80% suivi par les cétones, qui sont elles aussi, relativement bien abattus. Notons que l'acétone, molécule pourtant difficile à décomposer dans un plasma froid est plutôt bien abattue dans le cadre de nos expériences avec des taux d'abattement pouvant atteindre 50%.
- Les esters sont moins bien convertis au traitement que les autres composés. Leurs taux d'abattement maximum est de 46% et 15% pour respectivement le méthyl butyrate et le méthyl valérate au débit de 0,48 Nm³/h.

Ce travail a permis de confirmer l'intérêt de l'utilisation des décharges à barrière diélectrique de surface pour l'abattement des COV dans l'air. Ce travail a par ailleurs mis en évidence l'impact de la nature du polluant sur le taux d'abattement. Le système (pompe EHD/alimentation électrique) a été conçu et optimisé mais il reste encore une optimisation à réaliser en termes de consommation électrique totale et de design pour le traitement chimique. Parmi les voies possibles d'amélioration et les perspectives du dispositif plasma, un réglage de la hauteur caractéristique du canal inférieur à 10 mm constituerait une voie d'amélioration pour la conversion électromécanique et le mélange des espèces créées par le plasma et l'air pollué dans la chambre de décharge.

ANNEXES - LES OUTILS DE DIAGNOSTICS PHYSICO-CHIMIQUES

ANNEXE I

Chromatographie en phase gazeuse (CPG)

La chromatographie en phase gazeuse est une des techniques les plus utilisées pour l'analyse des gaz pour les applications en dépollution. Cette technique permet d'identifier et de quantifier les espèces organiques présentes dans un mélange de gaz. Un chromatographe est constitué de trois organes principaux : l'injecteur, le four contenant la colonne et le détecteur.

- *L'injecteur* permet d'introduire le mélange de gaz ou le liquide vaporisé instantanément qui est transféré par la suite dans la colonne.
- Le four dans lequel se trouve la *colonne* qui existe en deux types : remplies ou capillaires selon le type de phase stationnaire. Pour les colonnes remplies, la phase stationnaire est immobilisée par imprégnation avec le support poreux. Alors que pour les colonnes capillaires, la phase stationnaire est déposée à la surface interne de la colonne. La séparation chromatographique est optimisée en grande partie par rapport au choix de la phase stationnaire de la colonne. D'une manière générale, les composés polaires sont retenus par les phases polaires (PEG....) alors que les composés apolaires sont retenus par les phases apolaires comme les polysiloxanes. On a utilisé la colonne capillaire Stabilwax 15 m × 0,25 mm × 0,5µm.
- Le *détecteur* met en évidence le passage du mélange de gaz séparé par la colonne. Actuellement, deux types de détecteurs sont les plus utilisés qui sont: TCD, détecteur à conductivité thermique appelé catharomètre et FID, détecteur à ionisation de flamme. Le TCD détecte la variation de la conductivité thermique du mélange gazeux par rapport à sa composition. Bien qu'il soit de réponse universelle, il possède une sensibilité plus faible que le FID. D'autre part, le FID possède une réponse bien définie par rapport aux composés organiques et il est beaucoup plus sensible que le TCD. Après séparation au niveau de la colonne, l'échantillon transporté par le gaz vecteur est brûlé dans une flamme d'hydrogène-air. Cette combustion forme des ions et particules chargées, responsable du passage du

courant d'ionisation entre deux électrodes, qui seront amplifiés grâce à un électromètre.

Le chromatographe présent dans nos laboratoires est de type Perichrom 2100. Cet appareil est équipé d'un détecteur à ionisation de flamme (FID). Il permet le branchement de colonnes remplies ainsi que des colonnes capillaires qui sont situées dans la même enceinte thermostatée et soumises aux mêmes variations de températures. Pour effectuer les mesures chromatographiques, une colonne Stabilwax de 15 m de longueur \times 0,25 mm en diamètre interne \times 0,5 μm pour le diamètre des pores de la phase stationnaire.

ANNEXE II

Chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse (CG-MS)

La Chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse est une unité composée de deux blocs principaux qui sont : le chromatographe en phase gazeuse et le spectromètre de masse (Figure 69). Le premier bloc est muni d'une colonne capillaire ayant des spécifications en termes de longueur, diamètre et épaisseur du film ainsi que les propriétés de la phase stationnaire. Le déplacement des molécules constituant un échantillon le long de la colonne capillaire se fait suivant les différences de propriétés chimiques d'où leur élution à différents temps de rétention du chromatographe en phase gazeuse. La fonction du spectromètre de masse placé en aval capture, ionise et détecte les molécules ionisées séparément. En fonction du rapport {masse/densité de charges}, le spectromètre de masse permet de détecter la molécule parent ainsi que les molécules. Les deux appareils sont complémentaires permettant une identification plus précise de la substance.

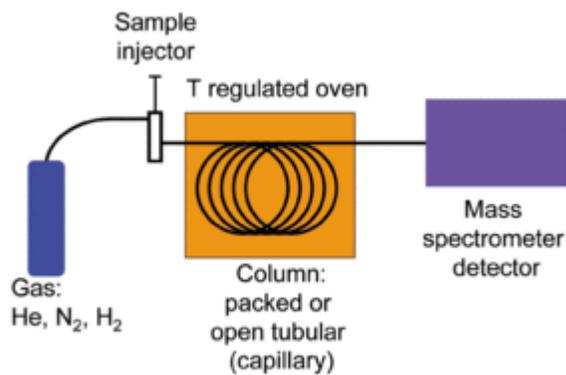


Figure 69. Schéma de principe de la GC-MS.

ANNEXE III

Analyseur d'ozone

La création d'ozone suite à la décharge de surface met en évidence une nécessité de d'estimer sa quantité produite dans le but du traitement des COV. Pour se faire, on s'est muni d'un analyseur d'ozone qui permet la mesure spectrophotométrique de la concentration d'ozone à la longueur d'onde $\lambda = 254$ nm. Cette longueur d'onde correspond à un maximum d'absorption d'ozone. Le flux se mesure dans une bande passante spectrale à un endroit bien précis: on mesure le rayonnement dans des bandes spectrales au moyen de filtres. La sensibilité du photomètre est dépendante de la longueur de la cuve qui est très stable. Cette méthode est précise et rapide de l'ordre de la seconde.

Un analyseur d'ozone de marque BMT-964 est mis à notre disposition pour effectuer les mesures de la concentration d'ozone dans le cas de la surface active puis de la pompe EHD. Le montage est réalisé en sortie de cette dernière à l'aide d'une vanne 3 voies permettant le basculement entre les mesures effectuées en entrée de la chromatographie en phase gazeuse et celles en sortie, d'une part et l'analyseur d'ozone, d'autre part.

Références bibliographiques

- A. Ogata, D. I. (2001). Removal of dilute benzene using a zeolite-hybrid plasma reactor. *IEEE Trans Ind Appl*, 959-964.
- A. Chipper, N. B.-S. (2010). Detailed characterization of 2-heptanone conversion by dielectric barrier discharge in N₂ and N₂/O₂ mixtures. *J. Phys. Chem. A*, 397-407.
- A.A. Chernov, (2001). Kinetics, products, mechanism of destruction of ethane in corona discharge: experiment and modeling . *3d int. symp. Non thermal plasma technology for pollution control, South Korea* , 192-193.
- A.V. Likhanskii, M. S. (2006). Modelling of interaction between weakly ionized near-surface plasmas and gas flow. *44th Aerospace Sciences Meeting and Exhibit* . Reno Nevada .
- A.V. Likhanskii, M. S. (2007). Optimization of Dielectric Barrier Discharge Plasma Actuators Driven by Repetitive Nanosecond Pulses . *45th AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit* . Reno Nevada.
- A.M. Vandembroucke, R. M. (2011). Non-thermal plasmas for non-catalytic and catalytic VOC abatement. *J Hazard Mater* , 30-54.
- B. Dong, J. M. (2008). Experimental study of a DBD surface discharge for the active control of subsonic airflow. *J. Phys. D: Appl. Phys.* *41*, 155201 (9 pp).
- B. Dou, (2008). Volatile Organic Compounds (VOCs) removal by using Dielectric Barrier Discharge. *IEEE explore*, ISBN 978-1-4244-1748-3/08.
- B. Penetrante, (1995). Comparison of Electrical Discharge Techniques for Non thermal Plasma Processing of NO in N₂. *IEEE transactions on plasma science Vol. 23 No. 4*.
- B. Ramaraju, (2012). Removal of mixture of VOCs by nonthermal plasma. *Composite interfaces Vol. 19*, 271-277.
- CCI Paris Ile de France. (2010). Récupéré sur Chambre de Commerce et d'Industrie de Paris :<http://www.entreprises.cci-paris-idf.fr/web/environnement/air-energie/reduire-emissions-atmospheriques/reglementation-cov-applicable-icpe>.
- C. Subrahmanyam, A. R.-M. (2010). Catalytic non-thermal plasma reactor for abatement of toluene . *Chem Eng J* , 677-682.
- C. Borghi, M. C. (2008). Electrohydrodynamic interaction induced by a dielectric barrier discharge. *J. Appl. Phys.* *103*.

- C. Thomas, J. L. (1999). Surfaces designed to control the projected area and shape of individual cells . *Trans. ASME. J. Biomech. Eng.* 121 (1), 40-48.
- C.L. Enloe, T. M. (2004). Mechanisms and responses of a single dielectric barrier plasma actuator : plasma morphology. *AIAA*, 589-594.
- Centre Interprofessionnel Technique d'Etudes de la Pollution Atmosphérique. (s.d.). Consulté le 02 2012, sur citepa: www.citepa.org
- C.M. Du, J. Y. (2007). Decomposition of toluene in a gliding arc discharge plasma reactor . *Plasma Sources Sci Tech*, 791-797.
- D. Staack, B. F. (2006). Spectroscopic studies and rotational and vibrational temperature measurements of atmospheric pressure normal glow plasma discharges in air. *Plasma Sources Sci Tech*, 818-827.
- D.M. Orlov, T. A. (2007). Modeling and experiment of leading edge separation control using SDBD plasma actuators. *AIAA 45th Aerospace Sciences Meeting* . Reno Nevada .
- D.M. Orlov, T. C. (2005). Numerical Simulation of Aerodynamic Plasma Actuator Effects . *43d AIAA Aerospace Sciences Meeting* . Reno Nevada .
- Database, N. C. (s.d.). *NIST Chemical Kinetics Database, Standard Reference Database 17, Version 7.0 (Web Version), Release 1.6.5, Data Version* . Récupéré sur NIST: <http://kinetics.nist.gov/kinetics/>
- E. H. Lock, (2006). Methanol and Dimethyl Sulfide Removal by Pulsed Corona Part I : Experiment . *Plasma Chem. Plasma Process* 26, 527-542.
- E. Moreau, (2007). Airflow control by non-thermal plasma actuators . *J. Phys. D: Appl. Phys.* (40), 605-636.
- F. Holzer, F. K. (2005). Influence of ferroelectric materials and catalysts on the performance of non-thermal plasma (NTP) for the removal of air pollutants. *Plasma Chem Plasma Process* , 595-611.
- F.I. Khan, A. G. (2000). Removal of volatile organic compounds from polluted air . *Journal of loss prevention in the process industries* , 527-545.
- G.I. Font, S. J. (2006). Simulation of the effects of force and heat produced by a plasma actuator on neural flow evolution . *44th AIAA Aerospace Sciences Meetings and Exhibit* .

- H. Kohno, A. B. (1998). Destruction of volatile organic compounds used in a semiconductor industry by a capillary tube discharge reactor . *IEEE Trans Ind Appl*, 953-966.
- H.H. Kim (2004). Nonthermal plasma processing for air-pollution control : a historical review, current issues and future prospects . *Plasma Process. Polym.*, 91-110.
- H.H. Kim, A. O. (2006). Effet of different catalysts on the decomposition of VOCs using flow type plasma-driven catalysis. *IEEE Trans Plasma Sci*, 984-995.
- H.H. Kim, A. O. (2011). Nonthermal plasma activates catalyst : from current understanding and future prospects . *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* , 13806.
- H.L. Luo, J. S. (2007). Plasma polymerization of styrene with carbon dioxide under glow discharge conditions . *Appl Surf Sci* , 5203-5207.
- H.R. Synder, (1998). Effect of air and oxygen content on the dielectric barrier discharge decomposition of chlorobenzene . *IEEE trans. Plasma Sci. vol. 26*, 1695-1699.
- INRS. (Juillet 2012). *Valeurs limites d'exposition professionnelle aux agents chimiques en France*. ed984.
- J. Zador, A. W. (2009). The reaction between propene and hydroxyl. *Phys. Chem. Chem. Phys.* 11040-11053.
- J. Badra, A. E. (2014). A shock tube and laser absorption study of ignition delay times and OH reaction rates of ketones: 2-Butanone and 3-buten-2-one. *Combustion and Flame*, 725-734.
- J. Chang, W. A. (1994). Electromagnetic Hydrodynamics. *IEEE Trans. Dielectric. Electr. Insul*, 871-895.
- J. Jolibois, M. F. (2008). Application of an AC barrier discharge actuator to control airflow separation above a NACA 0015 airfoil : optimization of the actuation location along the chord. *Journal of Electrostatics* , 496-503.
- J. Kreigseis, B. M. (2011). Capacitance and power consumption quantification of dielectric barrier discharge (DBD) plasma actuators . *Journal of Electrostatics* 69, 302-312.
- J. Kreigseis, S. G. (2011). Power consumption, discharge capacitance and light emission as measures of thrust production of dielectric barrier discharge plasma actuators. *J. Appl. Phys.* 110.
- J. Kreigseis, T. D. (2010). Flowfield-characteristics generated by DBD plasma actuators . *Springer Verlag, Berlin Heidelberg*.

- J. Pons, E. M. (2005). Asymmetric surface dielectric barrier discharge in air at atmospheric pressure: electrical properties and induced airflow characteristics . *J. Phys. D: Appl. Phys.* , 3655-3642.
- J. Pons (2005). Asymmetric surface dielectric barrier discharge in air at atmospheric pressure: electrical properties and induced airflow characteristics. *J. Phys. D: Appl. Phys.* , 3635-3642.
- J.L. Bobin, M. D. (1973). Harmonic generation and parametric excitation of waves in a laser-created plasma . *Phys. Rev. Lett.* , 594.
- J. M. Meek, J. G. (1953). *Electrical breakdown of gases* . Oxford : Clarendon.
- J. R. Roth (1998). Electrohydrodynamically induced airflow in a one atmosphere uniform glow discharge surface plasma. *25th IEEE International Conference on plasma science*.
- J. R. Roth, D. M. (1998). Boundary layer flow control with a one atmosphere uniform glow discharge surface plasma. *AIAA paper* .
- J. Roth, D. M. (1998). Boundary layer flow control with a one atmosphere uniform glow discharge surface plasma . *AIAA paper (0328)*.
- J. Roth, O. S. (2000). Electrohydrodynamically induced airflow in a one atmosphere uniform glow discharge surface plasma. *AIAA Journal*, 1172-1179.
- J.P. Boeuf, L. P. (2005). Electrohydrodynamic force and aerodynamic flow acceleration in surface dielectric barrier discharge. *Journal of Applied Physics*, 1-10.
- J.R. Vacher, F. J.-S. (2008). Partial ionization cross-sections of acetone and 2-butanone . *International Journal of Mass Spectrometry*, 117-125.
- J.H. Byeon, J. P. (2010). Removal of gaseous toluene and submicron aerosol particles using a dielectric barrier discharge reactor. *J Hazard Mater*, 417-422.
- J.H. Oh, Y. M. (2009). Destruction of HCFC-22 and distribution of byproducts in a nonthermal plasma reactor packed with dielectric pellets . *J Korean Phys Soc*, 1539-1546.
- J.Y. Ban, Y. S. (2006). Highly concentrated toluene decomposition on the dielectric barrier discharge (DBD) plasma-photocatalytic hybrid system with Mn-Ti incorporated mesoporous silicate photocatalyst (Mn-Ti-MPS). *Appl Surf Sci*, 535-542.

- J.W. Gregory, C. L. (2007). Force production mechanisms of a Dielectric Barrier Discharge Plasma actuator . *AIAA paper*.
- K. Bouamra, J. R. (2003). Electron impact ionisation and partial ionisation cross-sections of isooctane. *Chemical Physics Letters* , 237-244.
- K. Urashima, J. C. (2000). Removal of volatile organic compounds from air streams and industrial flue gases by non-thermal plasma technology. *IEEE Trans Dielect Electr Insul*, 602-614.
- L.N. Krasnoperov, (1997). Study of Volatile Organic Compounds Destruction by Dielectric Barrier Corona Discharge. *J. Adv. Oxid. Techno.* 2, 248.
- L. Oukacine, (2009). *Conception et élaboration d'un réacteur plasma pour le traitement de forts flux gazeux à faibles teneurs en COV*. Poitiers.
- L. Yu, X. L. (2010). Decomposition of naphthalene by dc gliding arc gas discharge. *J Phys Chem A* , 360-368.
- M. Magureanu, N. M. (2005). Plasma-assisted catalysis for volatile organic compounds abatement. *Appl Catal B-Environ*, 12-20.
- M. Magnureau, (2007). Chlorinated Organic compounds decomposition in a Dielectric Barrier Discharge. *Plasma Chem Plasma process* 27, 269 - 290.
- M. Forte, J. J. (2007). Optimization of a dielectric barrier discharge actuator by stationary and non-stationary measurements of the induced flow velocity. *Exp Fluids* , 917-928.
- N. Blin-Simiand, F. J.-R. (2008). Plasma reactivity and plasma-surface interactions during treatment of Toluene by a Dielectric Barrier Discharge. *Plasma Chem Plasma Process* , 429-466.
- N. Bin-Slimiand, S. P. (2009). Removal of formaldehyde in nitrogen and in dry air by a DBD : importance of temperature and role of nitrogen metastable states. *J Phys D Appl Phys* .
- N. Moreau, S. P.-S.-R. (2010). Propane dissociation in a non-thermal high-pressure nitrogen plasma . *J. Phys. D: Appl. Phys.* .
- N. Sebbar, J. B. (2011). Reactivity, thermochemistry and kinetics of 2-butanone radicals. *Chia Laguna*, (p. 10). Sardinia Italy .

- N. Bernard, E. M. (2009). Plasma flow control autonomous lift improvement by slope-seeking. *39th AIAA Fluid Dynamics Conference* . San Antonio, Texas, USA.
- N. Soltys, (1998, Juin 10). *Techniques Ingénieur* . Consulté en Octobre 2012, sur Techniques Ingénieur: www.techniques-ingenieur.fr
- N. Takeuchi, K. Y. (2007). Inducing mechanism of electrohydrodynamic flow by surface barrier discharge. *IEEE transactions on plasma science* , Vol. 35.
- N. Takeuchi, K. Y. (April 2009). Effect of the extension length in a surface barrier discharge on the driving force of the electrohydrodynamic gas flow. *IEEE transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol 16, No. 2.
- NIST Chemical Kinetics Database, Standard Reference Database 17, Version 7.0 (Web Version), <http://kinetics.nist.gov/kinetics/>
- O. Herbinet, P.-A. G.-L. (2011). Experimental and modeling study of the thermal decomposition of methyl decanoate. *Combustion and Flame* , 1288-1300.
- P. Cloirec, (2004). COV (Composés Organiques Volatils). *Techniques de l'ingénieur, base documentaire Environnement* .
- R. Atkinson, D. B. (1997). Evaluated Kinetic, Photochemical and Heterogeneous Data for Atmospheric Chemistry: Supplement V. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 521-1011.
- R. Atkinson, D. B. (2004). Evaluated kinetic and photochemical data for atmospheric chemistry : volume I - gas phase reactions of Ox, HOx, NOx and SOx species. *Atmos. Chem. Phys.*, 1461 - 1738.
- S. Grundmann, (2008). *Transition control using dielectric barrier discharge actuators*. Ph.D thesis, Technische Universität Darmstadt .
- S. Lovascio, N. B.-S. (2012). Ethanol/Acetone Mixtures Conversion in Air Dielectric Barrier Discharges. *International Journal of Plasma Environmental Science and Technology*.
- S. Futamura, A. Z. (1997). The dependence of nonthermal plasma behavior of VOCs on their chemical structures. *Journal of Electrostatics* , 51-62.
- S. Pasquiers, S. B.-S. (2013). Towards a kinetic understanding of the ignition of air-propane mixture by a non-equilibrium discharge : the decomposition mechanisms of propane. *Int. J. Aerodynamics*, 135-158.
- S. Revah, J. M.-S. (2005). Methods of odor and VOC control. *Biotechnology for odor and air pollution control*, 29-63 .

- S. Villegier, (2004). *Optimisation d'une post-décharge de N₂-O₂ en vue d'une application à un procédé de stérilisation*. Thèse de doctorat - Université Toulouse III - Paul Sabatier.
- T. Abe, Y. T. (2008). Experimental study for momentum transfer in a dielectric barrier discharge plasma actuator . *AIAA*.
- T. Kuroki, K. H. (2010). Decomposition of Adsorbed Xylene on adsorbents using nonthermal plasma with gas circulation. *IEEE transactions on industry applications* , 672-679.
- T. Oda, (1995). Low temperature atmospheric pressure discharge plasma processing for volatile organic compounds. *Journal of Electrostatics* 35, 93-101.
- T. Oda, (1998). TCE decomposition by the non-thermal plasma process concerning ozone effect. *Dept. Electronic Eng. Japan*.
- U. Kogelschatz, (2003). Dielectric-Barrier Discharges : their history, discharge physics and industrial applications . *Plasma chemistry and plasma processing* , 1-46.
- U. Roland, F. H. (2005). Combination of non-thermal plasma and heterogeneous catalysis for oxidation of volatile organic compounds Part 2. Ozone decomposition and deactivation of gamma-Al₂O₃. *Appl Catal B-Environ*, 217-226.
- V. Demidiouk, J. C. (2005). Decomposition of volatile organic compounds in plasma-catalytic system. *IEEE Trans Plasma Sci*, 157-161.
- V. Nehra, A. K. (2008). Atmospheric non-thermal plasma sources . *Int J Eng* .
- V. Rohani, G. B. (2008). Study of the treatment's homogeneity in plasma assisted chemical vapour deposition by atmospheric pressure dielectric barrier discharge. *Surface & coatings Technology* , 862-867.
- W. Faider, S. P.-S. (2013). Role of quenching of metastable states in acetaldehyde decomposition by a non-equilibrium nitrogen plasma at sub-atmospheric pressure . *J. Phys. D: Appl. Phys.*
- Y. Raizer, (1991). *Gas Discharge Physics*. Berlin Heidelberg: Springer Verlag.
- Y.F. Guo, D. Y. (2006). Humidity effect on toluene decomposition in a wire-plate dielectric barrier discharge reactor . *Plasma Chem Plasma Process*, 237-249.
- Y.S. Choi, (2000). A study on the Toluene decomposition using an adsorptive dielectric barrier discharge plasma . *Hwahak Konghak* 38, 423.

- Y. S. Mok, (2002). Decomposition of Volatile Organic Compounds and Nitric Oxide by Non thermal plasma discharge processes. *IEEE transactions on plasma science Vol. 30, No. 1.*
- Z. Bo, J. Y. (2007). Effects of oxygen and water vapor on volatile organic compounds decomposition using gliding arc gas discharge. *Plasma Chem Plasma Process*, 546-558.
- Z. Falkeinstein, (1997). Processing of C₃H₇OH, C₂HCl₃ and CCl₄ in flue gases using silent discharge plasmas (SDP's) enhanced by (V) UV at 172 nm and 253.7 nm. *J. Adv. Oxid. Technol. vol. 2, 223 - 238.*
- Z. Ye, Y. Z. (2008). Feasibility of destruction of gaseous benzene with dielectric barrier discharge . *Journal of Hazardous materials* , 356-364.

Etude d'une pompe active EHD basée sur la mise en œuvre de décharges de surface pour le traitement des effluents gazeux d'origine industrielle

RESUME : Les Composés Organiques Volatils (COV), émis dans l'atmosphère sous différentes formes par les activités industrielles, sont considérés comme des polluants principaux de l'air. Pour le traitement des forts débits de gaz faiblement concentrés en COV, caractéristiques des principales sources de COV industriels, il n'existe que très peu de procédés adaptés et efficaces d'où le plasma non thermique. Sa faible consommation d'énergie et sa grande compacité font du traitement par plasma non-thermique un candidat prometteur. Ma thèse consiste à élaborer et étudier un dispositif de traitement des COV basé sur l'utilisation de décharges à barrière diélectrique de surface, décharges ayant la caractéristique de produire un vent électrique dirigé. Pour ce faire, nous avons conçu et optimisé une pompe plasma chimiquement active, composée d'un assemblage de cellules à surfaces actives, capable d'aspirer et de traiter simultanément de l'air pollué en COV. Il a fallu d'abord travailler sur l'optimisation paramétrique : électrique, géométrique et matériaux, d'une surface active élémentaire. Puis concevoir un canal actif constitué de deux surfaces actives optimales placées en vis-à-vis, pour finalement aboutir à la construction d'une pompe plasma prototype ayant un débit de pompage de 10 Nm³/h. Cette pompe originale par sa capacité de traitement chimique, constitue le prototype d'étude physique et chimique de cette thèse. Elle a permis d'effectuer des essais d'élimination de 5 COV différents injectés dans l'air : acétone, méthyl-éthyle cétone, butyraldéhyde, méthyl-valérate, méthyl-butyrate et d'en évaluer les taux d'abattement respectifs, mais aussi, d'identifier à l'aide de la chromatographie en phase gazeuse couplée à la spectrométrie de masse, les principaux sous-produits de la dégradation.

Mots clés : plasma non-thermique ; décharge à barrière diélectrique de surface ; pompe électrohydrodynamique ; surface active ; composés organiques volatils (COV) ; sous-produits de dégradation ;

Study of an EHD pump based on the surface discharges for the treatment of wastes gases from industrial sources

ABSTRACT: The Volatile Organic Compounds (VOC) emitted in the atmosphere by various forms is considered as principal atmospheric pollutant. In order to treat a high flow of gaz with a low concentration, few efficient methods exist like the non-thermal plasma. Its low power consumption and compactness make the non-thermal plasma treatment a promising candidate. My thesis deals with the development and study of a VOC treatment device based on the surface dielectric barrier discharges which have the characteristic of producing an oriented electric wind. To do this, we have designed and optimized a chemically active plasma pump, composed of an assembly of active surfaces, capable of drawing and treating simultaneously the air polluted in VOC. At first, we had to work on the optimization of the following parameters: electrical, geometric and material of an elementary active surface. And then conceive an active channel consisting of two optimal active surfaces disposed in a mirror effect, eventually leading to the construction of a prototype plasma pump having a flow rate approximately equal to 10 Nm³/h. This original pump by its capacity of chemical treatment consists on the physical and chemical prototype of the thesis. It allowed testing the conversion of 5 different VOCs injected into air which are: ketone, methyl ethyl ketone, butyraldehyde, methyl pentanoate, methyl butyrate and evaluate the respective abatement rates, but also identifying the main by-products of degradation, using the gas chromatography coupled to the mass spectrometry.

Keywords : Non-thermal plasma; surface dielectric barrier discharge; electrohydrodynamic pump; active surface; volatile organic compounds (VOC); by-products;