

## 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 Nm<sup>3</sup>/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.

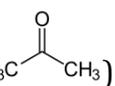
Le chapitre suivra les étapes suivantes :

- 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.

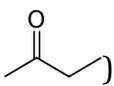
### 3.2. Choix de polluants et cahier de charges

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

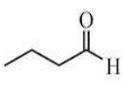
Les deux cétones sont :

- L'acétone ( $C_3H_6O$ ; )

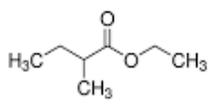
C'est un solvant très utilisé dans l'industrie et en laboratoire ayant pour avantage de solubiliser rapidement de nombreuses espèces organiques. Elle est à la base de la fabrication de polymères, de médicaments, du bisphénol A par réaction avec le phénol. L'acétone est également utilisée pour le stockage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

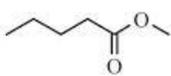
- Le 2-butanone ou méthyl éthyl cétone (MEK) ( $C_4H_8O$ ; ) : c'est une cétone utilisée généralement comme solvant dans l'industrie.

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 Nm<sup>3</sup>/h à 10,74 Nm<sup>3</sup>/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

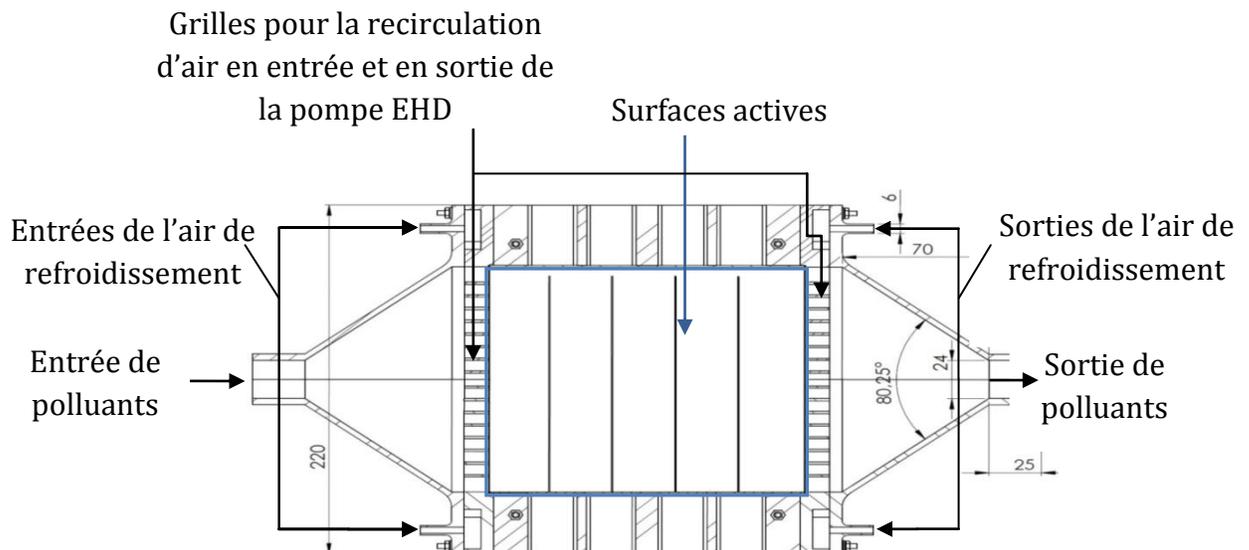
##### 3.4.1.1. Conception de la pompe EHD

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

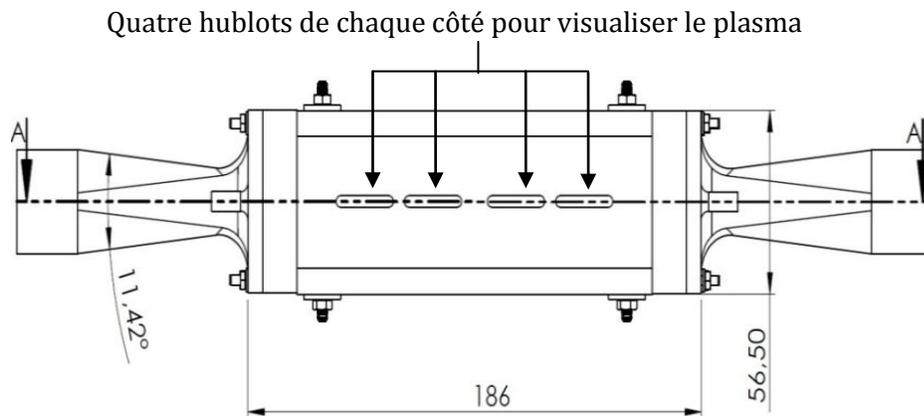
Pour la fabrication de la pompe EHD, on a fait le choix de l'ABS (Acrylonitrile Butadiène Styrène) afin d'utiliser une imprimante 3D uPrint Stratasys dont dispose le centre PERSEE. L'ABS est un polymère thermoplastique présentant une bonne tenue mécanique et chimique (la température maximum supportée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

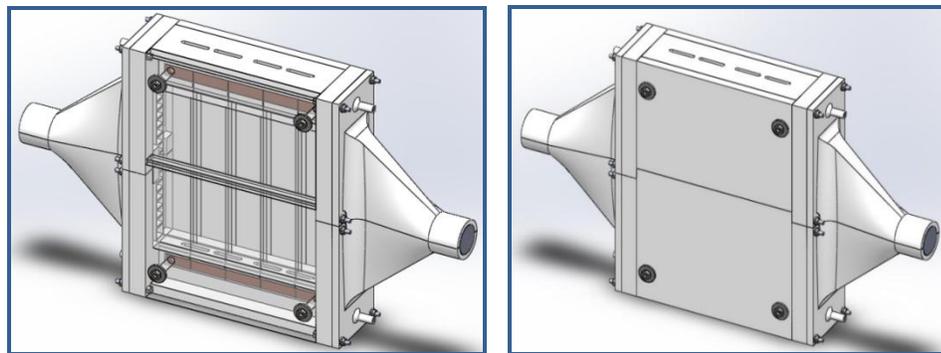
- Deux cônes : un cône divergent en entrée de la chambre de décharge et un cône convergent en sortie.
- Deux grilles placées au niveau des deux cônes pour laminariser l'écoulement.
- Un circuit de refroidissement.
- Un canal actif identique à celui du chapitre 2 pour  $H = 10$  mm. Le diélectrique utilisé 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.

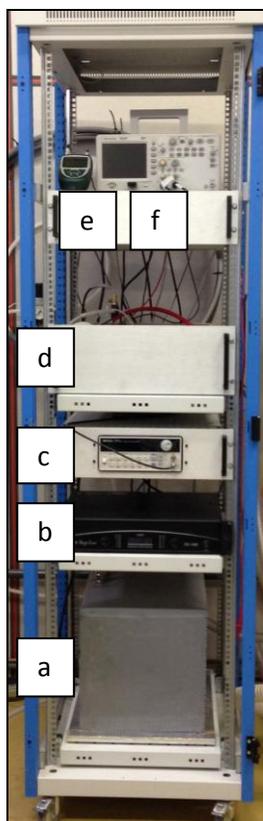
### **3.4.1.2. Disposition du rack de la pompe EHD**

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

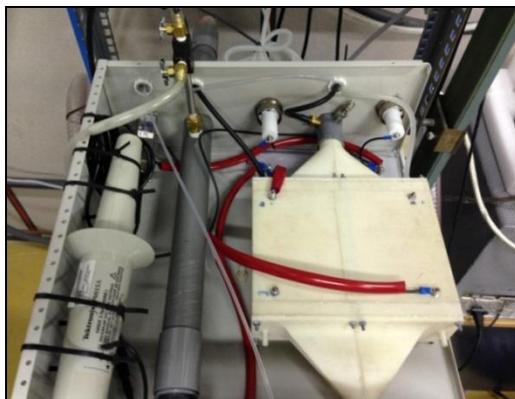
- Un bloc transformateur
- Un bloc d'amplification basse fréquence
- Un générateur basse fréquence
- Un dispositif d'analyse électrique : oscilloscope
- Un boîtier d'acquisition pour la mesure de la vitesse du vent électrique
- Un boîtier EHD où la pompe EHD est placée avec ses appareils de mesure (anémomètre,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



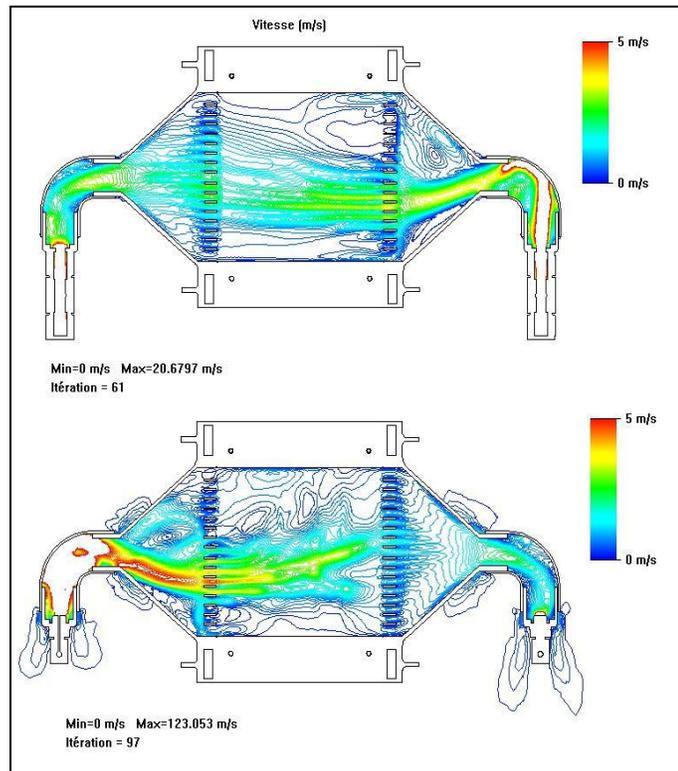
**Figure 56.** Piquage en sortie de la pompe EHD.



**Figure 57.** Emplacement de la Sonde de Pitot.

### ***3.4.1.3. Simulation des performances de la pompe EHD sous Solidworks***

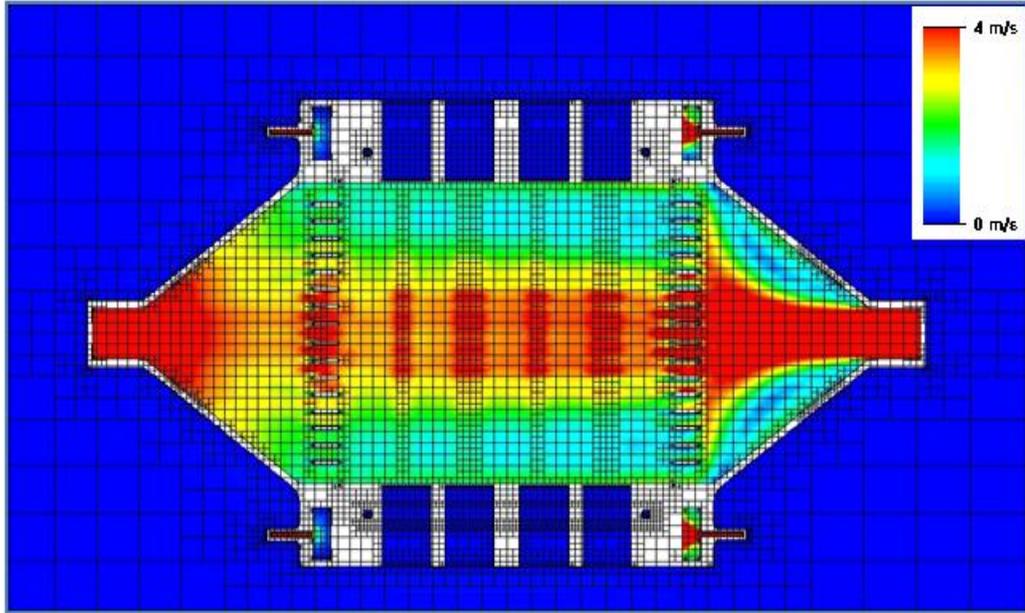
Afin de procéder à l'intégration de la pompe EHD dans le rack, une simulation de l'écoulement gazeux a été faite sous le logiciel Solidworks™ pour étudier les pertes de charges dans les conduites d'entrée et d'évacuation. La Figure 58 montre les résultats de cette simulation. On remarque sur cette figure 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 Nm<sup>3</sup>/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.

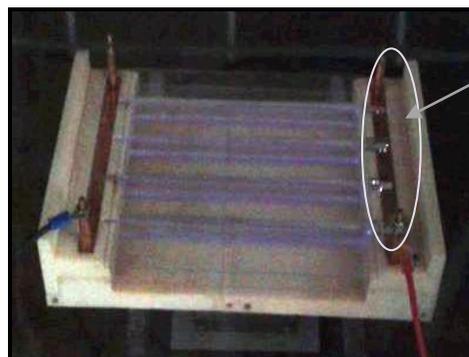
La simulation de l'écoulement gazeux nous permet également d'estimer la vitesse du fluide en entrée et sortie de la pompe pour un débit de 10 Nm<sup>3</sup>/h. Cette simulation est présentée sur la Figure 59, le sens de circulation de l'air se fait de la droite vers la gauche. La vitesse est estimée 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 m<sup>3</sup>/h ; Pression = 1,013 bar ; débit volumique d'entrée des polluants = 10 m<sup>3</sup>/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.



Points lumineux  
ou arcs

**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  $25 \times 10^{-3}$  m. Ce qui donne un débit de :

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

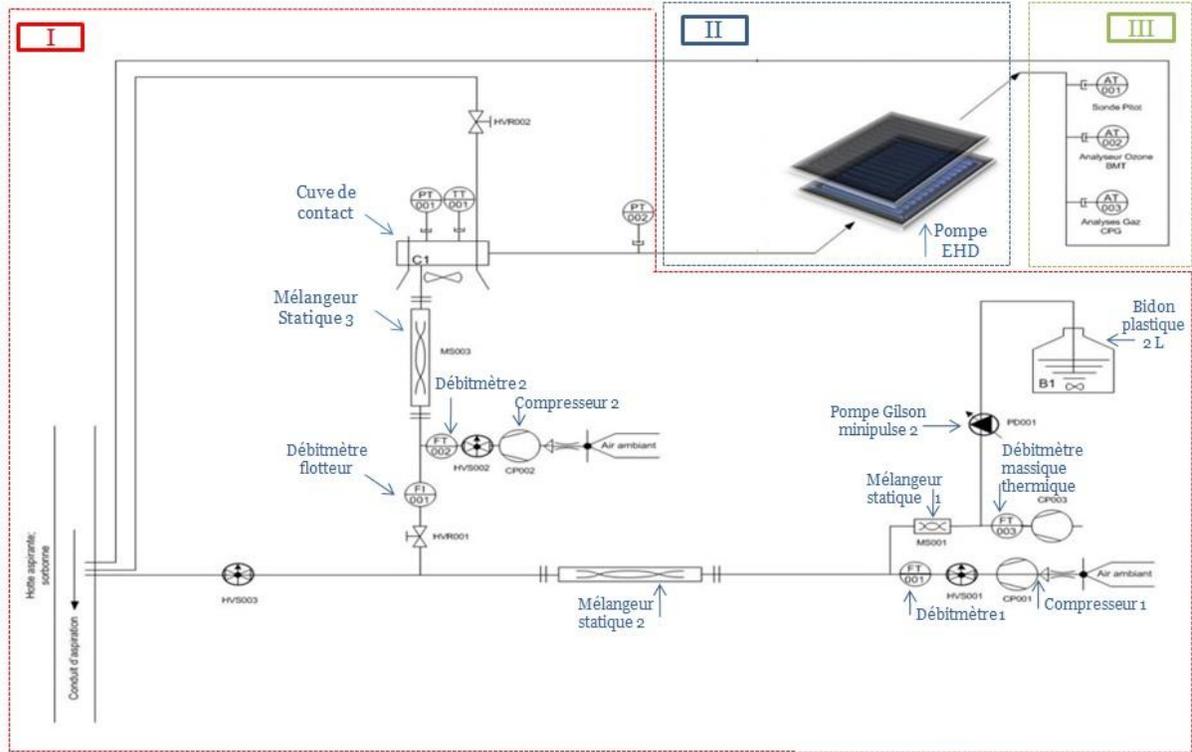
Ceci démontre que dans notre configuration fermée, le canal actif ne débite plus que 2,3 m<sup>3</sup>/h à la place de 10 m<sup>3</sup>/h de débit obtenu en configuration ouverte (sans les pertes de charges accumulées).

### **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 Nm<sup>3</sup>/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 suppresseur (SP001) se fait à un débit par défaut de 10 Nm<sup>3</sup>/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 m<sup>3</sup>/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 suppresseur (SP002) d'un débit de 10,7 Nm<sup>3</sup>/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 Nm<sup>3</sup>/h à 10,74 Nm<sup>3</sup>/h car la pompe EHD seule est limitée à un débit maximum de 2,3 m<sup>3</sup>/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. Bât, 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 m<sup>3</sup>/h à 10 m<sup>3</sup>/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 Nm<sup>3</sup>/h et 4 Nm<sup>3</sup>/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 $D$ (Nm<sup>3</sup>/h)

Pour réaliser les expérimentations aux débits ayant les valeurs suivantes : 0,48 Nm<sup>3</sup>/h, 1,23 Nm<sup>3</sup>/h, 4 Nm<sup>3</sup>/h et 10,74 Nm<sup>3</sup>/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 Nm<sup>3</sup>/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 :

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

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).

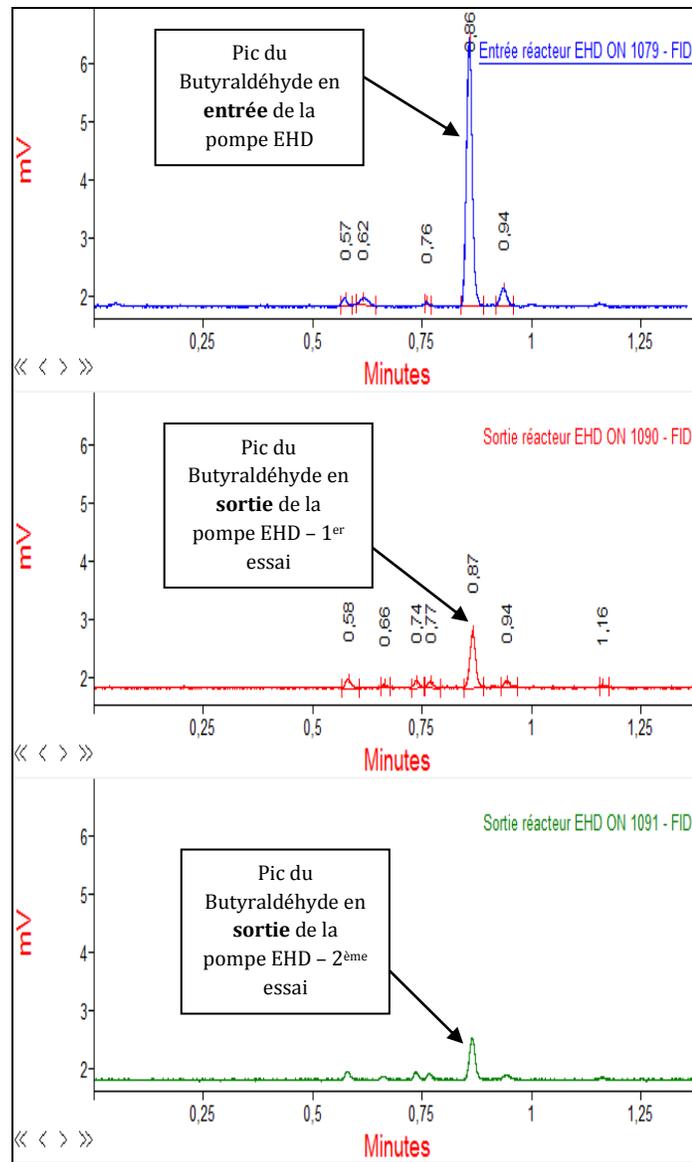
L'erreur relative est calculée pour chacune des séries de mesures en entrée et sortie en prenant en considération le rapport entre la variance de la moyenne et la moyenne des mesures effectuées.

### ***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 Nm<sup>3</sup>/h et 1,23 Nm<sup>3</sup>/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 Nm<sup>3</sup>/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.

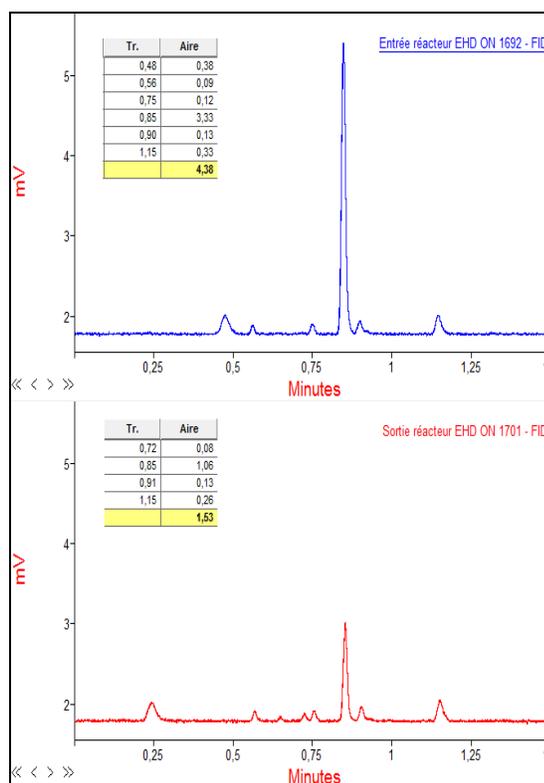
De la même façon pour D = 1,23 Nm<sup>3</sup>/h (Figure 64), le calcul des aires de pics sur cet exemple brut, donne 3,33 en entrée et 1,06 en sortie.

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.



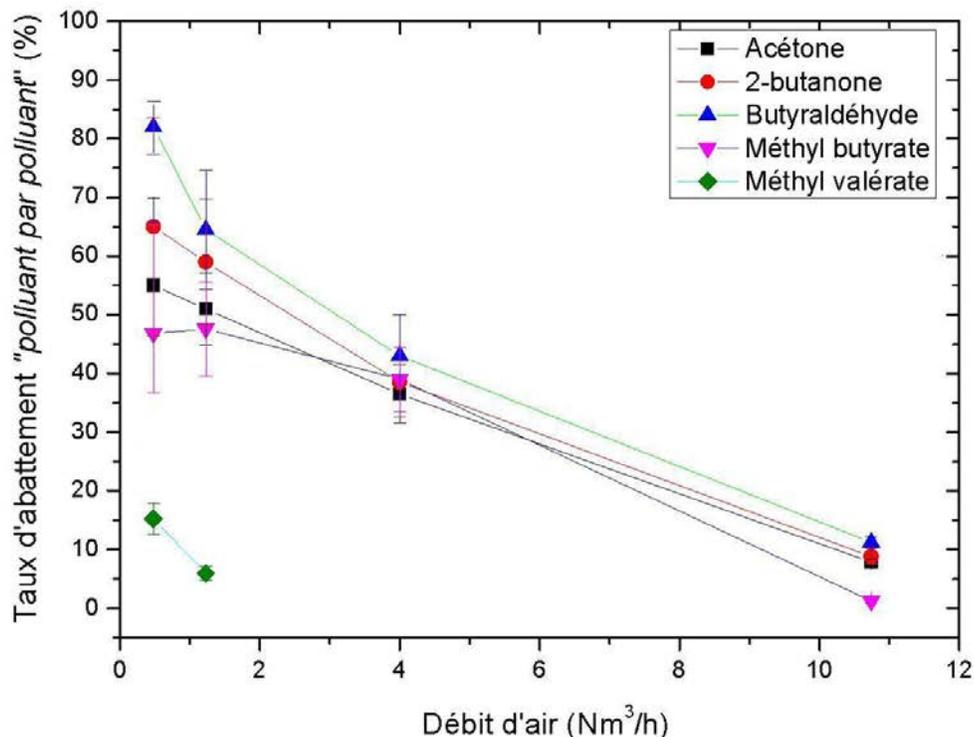
**Figure 64.** Chromatogrammes du Butyraldéhyde obtenus en entrée et en sortie de la pompe EHD pour un débit de 1,23 Nm<sup>3</sup>/h.

### 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 <sup>3</sup> /h (SIE = 400 J/l)	D = 1,23 Nm <sup>3</sup> /h (SIE = 162,2 J/l)	D = 4 Nm <sup>3</sup> /h (SIE = 49,2 J/l)	D = 10,74 m <sup>3</sup> /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 Nm<sup>3</sup>/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 Nm<sup>3</sup>/h et 10,74 Nm<sup>3</sup>/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 Nm<sup>3</sup>/h. Comparé aux taux de conversion obtenus au débit de 0,48 Nm<sup>3</sup>/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 Nm<sup>3</sup>/h à 1,23 Nm<sup>3</sup>/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 Nm<sup>3</sup>/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 Nm<sup>3</sup>/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 ( $D = 0,48 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ), 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 Nm<sup>3</sup>/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  $25 \times 10^{-6}$ .

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  $4 \text{ Nm}^3/\text{h}$ .

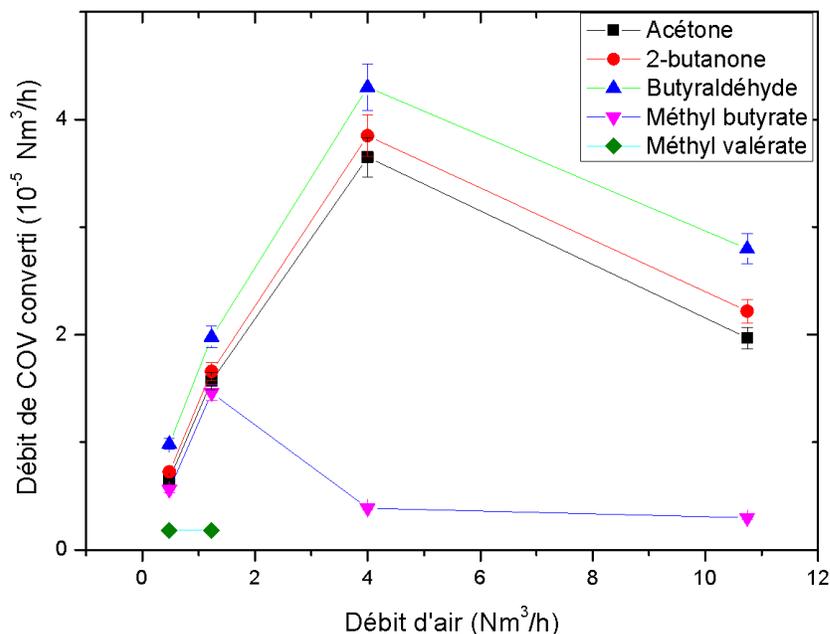


Figure 66. Etude du débit de COV converti en fonction du débit d'air (Nm<sup>3</sup>/h).

### **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.

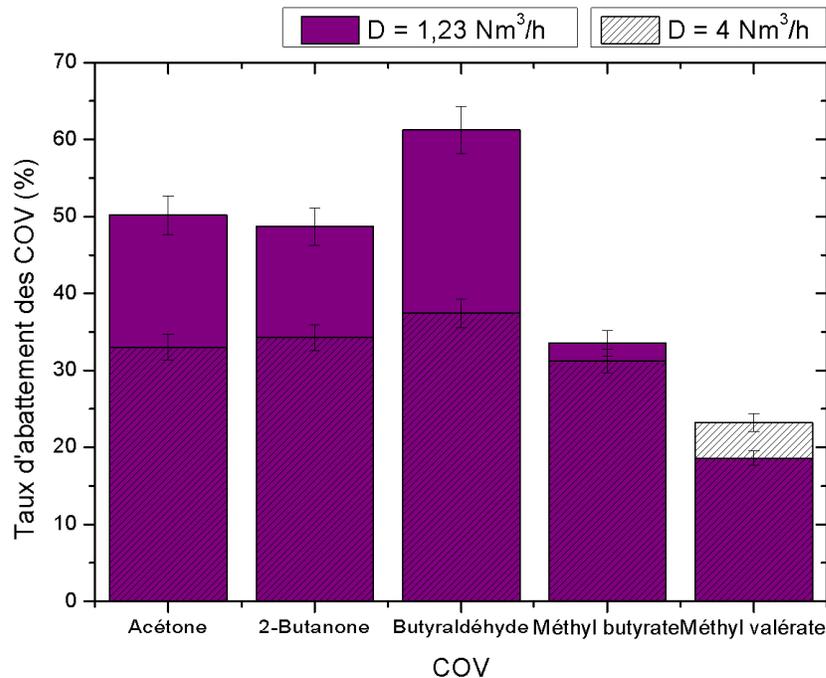


Figure 67. Taux d'abattement du mélange de COV en fonction du débit d'air.

### 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 <sub>2</sub>	Azote MM = 28 g.mol <sup>-1</sup>	Molécules de l'air et sous-produits d'oxydation du COV
O <sub>2</sub>	Oxygène MM = 32 g.mol <sup>-1</sup>	
Ar	Argon MM = 18 g.mol <sup>-1</sup>	
CO	Monoxyde de carbone MM = 28 g.mol <sup>-1</sup>	
CO <sub>2</sub>	Dioxyde de carbone MM = 44 g.mol <sup>-1</sup>	
H <sub>2</sub> O	Eau MM = 18 g.mol <sup>-1</sup>	

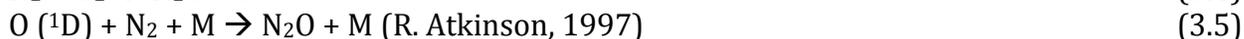
NO	Monoxyde d'azote MM = 30 g.mol <sup>-1</sup>	Sous-produits de l'oxydation du COV et/ou de sa dissociation par N <sub>2</sub> dans le plasma
NO <sub>2</sub>	Dioxyde d'azote MM = 46 g.mol <sup>-1</sup>	
N <sub>2</sub> O	Protoxyde d'azote MM = 44 g.mol <sup>-1</sup>	
N <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	Pentoxyde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

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

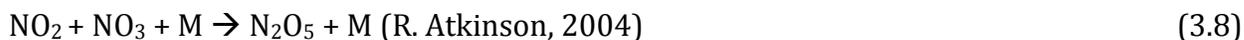
**Tableau 7.** Sous-produits de décomposition du 2-butanone.

Lorsqu'un COV est quasi complètement décomposé, les produits qui en résultent sont le dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>), le monoxyde de carbone (CO) et l'eau (H<sub>2</sub>O) (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 (N<sub>2</sub>O) provient de l'oxydation du diazote N<sub>2</sub> :



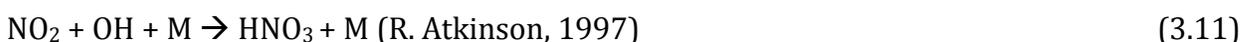
Le pentoxyde de diazote (N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) provient de la réaction entre le dioxyde d'azote et le trioxyde d'azote :



Le NO<sub>2</sub> est produit à partir de la réaction entre NO<sub>3</sub> et les produits de dissociation de l'eau (i.e. OH résultant lui-même de la dissociation par collision électronique de H<sub>2</sub>O) :



L'acide nitrique (HNO<sub>3</sub>) provient de la réaction entre le N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> et la vapeur d'eau existante dans le milieu et aussi de l'oxydation du NO<sub>2</sub> 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 CH<sub>3</sub> 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.



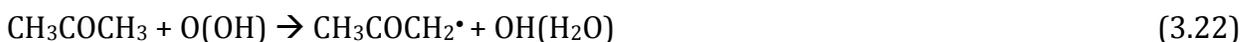
Comme la concentration initiale du 2-butanone et de l'acétone est faible (de 25 ppm), on n'arrive pas à observer d'autres traces de sous-produits comme par exemple l'acétaldéhyde ou le formaldéhyde pour pouvoir compléter les mécanismes réactionnels de dégradation de cette molécule.

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  $\text{CH}_3\text{COCH}_2$ ,  $\text{CH}_3\text{CO}$  et le  $\text{CH}_3$ .

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

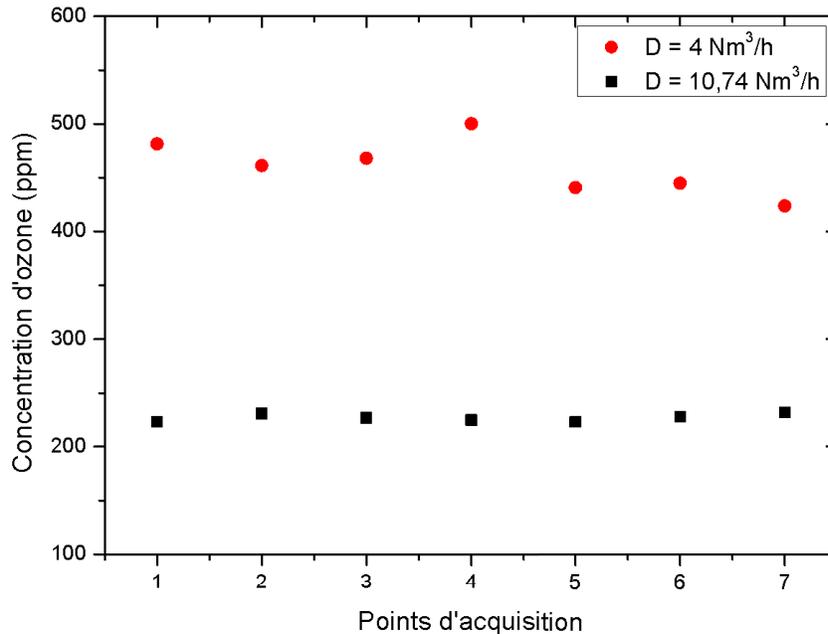
: Composés de l'air ambiant (S. Lovascio, 2012)

**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 Nm<sup>3</sup>/h et de 10,74 Nm<sup>3</sup>/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 Nm<sup>3</sup>/h et 10,74 Nm<sup>3</sup>/h. La concentration d'ozone moyenne produite est de 460 ppm pour un débit d'air de 4 Nm<sup>3</sup>/h et de 226 ppm pour un débit d'air de 10,74 Nm<sup>3</sup>/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 Nm<sup>3</sup>/h et 10,74 Nm<sup>3</sup>/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 Nm<sup>3</sup>/h à 10,74 Nm<sup>3</sup>/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 Nm<sup>3</sup>/h pour trois des cinq polluants, différent du débit d'air minimum (0,48 Nm<sup>3</sup>/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 Nm<sup>3</sup>/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.