

### **Introduction générale**

Le plasma est créé à partir des gaz selon deux possibilités : soit en les chauffant, soit en les soumettant à une décharge électrique. Cette dernière option permet d'obtenir un plasma qui possède une température relativement basse ; ce type de plasma, appelé « plasma froid », est très important à l'égard de nombreux procédés technologiques et son contrôle est un enjeu très important. Le plasma est un état de la matière concernant lequel beaucoup reste aujourd'hui à comprendre. Il a été découvert en 1879 par Siemens, et il fait l'objet de nombreuses études et son utilisation connaît de nombreuses applications, qui sont de plus en plus palpables dans la vie de tous les jours. Des applications relativement récentes, comme par exemple les écrans plats sont aujourd'hui bien connues du public; néanmoins, il est présent parmi nous depuis longtemps, avec les lampes phosphorescentes, les ozoneurs qui permettent de purifier l'eau. D'autres applications sont moins connues mais de grande importance, parmi lesquelles la destruction des gaz toxiques et des gaz à effet de serre, sujet très médiatisé depuis la fin des années 1970 avec la découverte d'un trou dans la couche d'ozone en Antarctique [1][2].

La croissance démographique et le développement industriel mondial entraînent une consommation énergétique de plus en plus importante. Cette consommation engendre une augmentation croissante des rejets de polluants gazeux dans l'atmosphère. Ces dernières décennies, les pays industrialisés ont enfin pris conscience de cette pollution et ont mis en place des normes de rejets qui, au fil des années, deviennent de plus en plus contraignantes[3].

A titre d'exemple, les centrales électriques à combustible fossile, les incinérateurs de déchets et les véhicules automobiles produisent des effluents gazeux contenant des polluants qui sont principalement :

- les oxydes d'azote  $\text{NO}_x$  et de soufre  $\text{SO}_x$ ,
- les composés organiques volatils COV,
- les métaux lourds,
- les poussières et les particules de suies (dont les tailles varient de quelques centaines de nanomètres à plusieurs micromètres).

Les polluants émis par ces activités du transport, du chauffage et par les industries font l'objet de réglementations de plus en plus contraignantes. Ces mesures ont permis depuis les années 70 de réduire de manière conséquente certains polluants dans l'atmosphère. Le domaine automobile constitue l'un des principaux polluants de l'air atmosphérique. En particulier, les véhicules émettent des polluants tels que des NO<sub>x</sub> des hydrocarbures et surtout des particules de suies. Le résultat de l'introduction dans l'atmosphère de rejet de tels composés polluants a pour conséquence une perturbation de l'écosystème, un risque de dégradation de la santé, des nuisances olfactives, la dégradation de la visibilité... [4].

Les particules de suies émises peuvent être de taille variable et présenter des phases adsorbées de compositions très différentes. Ce dernier aspect, essentiel dans le comportement des particules de suies présentes dans les émissions polluantes, conditionne leur interaction avec l'atmosphère et leur impact sur la santé. Les suies peuvent également jouer un rôle sur la chimie de l'atmosphère en provoquant des réactions hétérogènes qui peuvent intervenir dans les cycles de certains composés très importants du point de vue écologique, comme les oxydes d'azote et l'ozone. Ces facteurs ont incité les chercheurs à travailler sur les mécanismes de formation des suies, leur caractérisation et le développement de nouveaux procédés permettant leur destruction ou la réduction de leurs émissions.

Plusieurs solutions proposées concernent l'amélioration des conditions de combustion et des caractéristiques du carburant, notamment par adjonctions d'additifs permettant de limiter la formation de suie. Une autre voie a permis de réduire ces émissions suspectées nocives : c'est le filtre à particules. Placé à l'échappement moteur, il permet, lors de la phase de chargement, de collecter les particules par le passage des gaz d'échappement à travers une paroi poreuse. Puis, lors de la phase de régénération, les suies retenues sont éliminées par combustion.

Même présents en faibles quantités ces polluants sont nocifs pour l'environnement et l'Homme. Par exemple, les oxydes d'azote et de soufre sont responsables des pluies acides ; les COV et les particules de suies induisent des effets mutagènes sur l'organisme. Le traitement de ces polluants au moyen des procédés classiques (filtration, adsorption...) est très peu efficace à cause de leur faible concentration dans le mélange gazeux. Dans ces conditions, l'utilisation des réacteurs plasmas froids hors équilibre générés par des décharges électriques

de type couronne (combinés ou non avec des catalyseurs) est considérée comme un complément, voire une alternative aux procédés classiques de traitement des gaz d'échappement issus de la combustion [5].

Dans ces réacteurs, le rôle des décharges électriques hors équilibres est de produire des électrons libres suffisamment énergétiques pour exciter, ioniser et dissocier les molécules majoritaires du gaz d'échappement ( $N_2$ ,  $O_2$ ,  $CO_2$  et  $H_2O$ ) tout en limitant les transferts d'énergie thermique (prédominants dans les décharges à l'équilibre). Certains radicaux (espèces chimiques très réactives) formés durant cette phase de décharge amorcent ensuite une série de réactions chimiques qui transforment les polluants en espèces inoffensives ou plus facilement traitables par des procédés classiques (par exemple les oxydes d'azote et de soufre peuvent être transformés in situ en acide et neutralisés en sels par l'adjonction d'une base). Le traitement d'un volume important de gaz par ce type de procédé utilisant les décharges couronne est notamment rendu possible par la multiplication des décharges électriques (dont les canaux ionisés actifs ont un diamètre de quelques centaines de micromètres chacun) et par l'augmentation de leur fréquence d'apparition. Cependant, l'efficacité des réacteurs plasmas hors équilibres dépend de plusieurs paramètres tels que leur géométrie (multi pointes - plan, fil - cylindre, fil - plan avec ou sans barrière diélectrique), la manière dont le gaz est introduit dans le réacteur, le temps de résidence du gaz, la nature des polluants ou encore le régime d'alimentation en tension. On comprend ainsi la nécessité d'estimer la quantité de radicaux formés dans les canaux ionisés et de définir les conditions de fonctionnement optimal du réacteur pour leur création. Cependant, les décharges hors équilibres à la pression atmosphérique sont très éphémères (elles ne durent que quelques centaines de nanoseconde), se répartissent le plus souvent de manière aléatoires entre les électrodes et apparaissent sous la forme de filaments lumineux de la taille d'un cheveu. On comprend ainsi la limitation et les difficultés du diagnostic expérimental. Actuellement, seul un couplage étroit des études expérimentales et théoriques permet d'estimer à la fois la nature, la répartition et la quantité des radicaux formés durant la phase de décharge.

Le but de notre travail consiste à étudier les bases physiques permettant d'obtenir les compositions chimiques à l'équilibre thermodynamique d'un mélange gazeux contenant 77%  $N_2$ , 8 %  $O_2$ , 5%  $H_2O$ , 10%  $CO_2$  en fonction de la température variant de 1000 à 20000K. La

connaissance des concentrations de ces espèces est nécessaire pour la détermination des coefficients de transport et des propriétés thermodynamiques des gaz. La résolution des équations est assurée par la loi d'action de masse (loi de Saha et loi de Guldberg et Waage) qui permet, à l'équilibre thermodynamique, de calculer les concentrations de toutes les espèces présentes dans le mélange gazeux. Nous utilisons pour cela la méthode de Newton-Raphson. La validation de notre programme informatique se fera avec une autre composition :

74% N<sub>2</sub>, 6 % O<sub>2</sub>, 6% H<sub>2</sub>O, 14% CO<sub>2</sub>

Ainsi, ce mémoire se compose de 4 chapitres. Le premier chapitre présente des généralités sur la dépollution et les décharges électriques en général. Le second chapitre sera consacré à la modélisation mathématique basée sur l'équation de Boltzmann et les lois de l'équilibre thermodynamique. Dans le troisième chapitre on présente la méthode numérique de résolution dite loi d'action de masse. Les résultats numériques seront exposés et discutés dans le quatrième chapitre. Nous terminons ce travail par une conclusion générale et des perspectives.