



Décharge à Barrières Diélectriques à pression atmosphérique pour la charge bipolaire d'aérosol

Rémi Mathon

► To cite this version:

Rémi Mathon. Décharge à Barrières Diélectriques à pression atmosphérique pour la charge bipolaire d'aérosol. Physique des plasmas [physics.plasm-ph]. Université Paris Saclay (COMUE), 2015. Français. NNT : 2015SACLS261 . tel-01343294

HAL Id: tel-01343294

<https://theses.hal.science/tel-01343294>

Submitted on 8 Jul 2016

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.

NNT : 2015SACLS261

THESE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITE PARIS-SACLAY,
préparée à L'université Paris Sud
au Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas
ÉCOLE DOCTORALE N° 572 : Ondes et matières
Spécialité : Physique des Plasmas

Par

Rémi Mathon

Décharge à Barrières Diélectriques à pression atmosphérique
pour la charge bipolaire d'aérosol

Thèse présentée et soutenue à Supelec le 17/12/2015 :

Composition du Jury :

Mr Bouillaut, Frédéric	Professeur, Paris sud 11, Orsay	Président du jury
Mr Dascalescu, Lucien	Professeur, ENSIP Poitiers	Rapporteur
Mr Weber, Alfred	Professeur, TU Clausthal	Rapporteur
Mr Boulaud, Denis	Directeur adjoint à la Direction de l'environnement, IRSN, Le Vésinet	Examineur
Mr Jidenko, Nicolas	Chargé de recherche au LPGP	Invité encadrant
Mr Borra, Jean-Pascal	Directeur de Recherche au LPGP	Directeur de thèse

Remerciements

Ces travaux de thèse ont été effectués au sein de l'Equipe Décharges Electriques et Aérosols du Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas (LPGP). Je remercie Monsieur Gilles Maynard et Tiberiu Minea, Directeurs du Laboratoire, de m'avoir accueilli au sein de cette unité mixte de recherche.

Je tiens à exprimer ma gratitude à Monsieur Lucien Dascalescu, Professeur à l'ENSIP de Poitiers et à Monsieur Alfred Weber, directeur de l'Institut für Mechanische Verfahrenstechnik de Clausthal, pour avoir accepté d'être rapporteurs de ma thèse et m'avoir fait part de leurs réflexions avisées sur mes travaux.

Je remercie vivement Monsieur Denis Boulaud, directeur de la recherche environnement de l'IRSN et Monsieur Frédéric Bouillault, directeur du LGEP, pour avoir accepté de faire partie de ce jury.

Je tiens à remercier le ministère de l'enseignement supérieur et de la recherche de m'avoir octroyé via l'école doctorale Onde et Matière une allocation pour ma thèse. Je remercie également l'entreprise Palas et en particulier Maximilian Weiss pour l'aide financière apportée à l'étude.

Je remercie tout particulièrement mon Directeur de thèse, Monsieur Jean-Pascal Borra, qui tout au long de ces trois années m'a aidé, orienté et soutenu jusqu'à l'achèvement de la rédaction du document. Sa grande disponibilité, sa rigueur scientifique et ses conseils m'ont permis de progresser et de mener à bien ce travail.

Je remercie également Monsieur Nicolas Jidenko pour son aide patiente et ses conseils aussi bien lors des travaux expérimentaux et de la rédaction de ce document.

Je remercie enfin les personnes que j'ai eu le plaisir de côtoyer au laboratoire – en particulier Assia et Robert – ainsi que ma famille et toutes les personnes qui m'ont soutenue durant ces trois années.

Table des matières

Remerciements.....	1
Table des matières.....	iii
Liste des figures	vii
Liste des tableaux	ix
Liste des symboles	x
Introduction	1
Étude Bibliographique.....	5
I.1. Neutralisation d'aérosol pour la granulométrie par Analyseur Différentiel de Mobilité Électrique	6
I.1.1. Aérosol : généralités	6
I.1.1.1. Définition et mécanismes de formation.....	6
I.1.1.2. Croissance de l'aérosol	7
I.1.1.3. Paramètres caractéristiques.....	8
I.1.2. Métrologie	10
I.1.2.1. Composition chimique.....	10
I.1.2.2. Concentrations.....	11
I.1.2.3. Tailles	12
I.1.3. Charge d'aérosol	16
I.1.3.1. Mécanismes de charge	17
I.1.3.2. Charge bipolaire par diffusion	18
I.1.4. Neutraliseur: état de l'art	22
I.1.4.1. Neutraliseur radioactif.....	23
I.1.4.2. Neutraliseur par photo-ionisation du gaz.....	23
I.1.4.3. Neutraliseurs plasmas	24
I.1.4.4. Bilan	26
I.2. Plasma et décharge à barrières diélectriques dans l'air à PA.....	27
I.2.1. Ionisation et attachement	27
I.2.2. Généralités sur les plasmas	30
I.2.2.1. Définition d'un plasma.....	30
I.2.2.2. Champ électrique et condition d'auto-entretien	31
I.2.3. DBD généralités	34
I.2.4. DBD à PA dans l'air : Caractérisation électrothermique	36
I.2.4.1. Méthode de caractérisation	36
I.2.4.2. Caractérisation macroscopique	39
I.2.4.3. Propriétés des microdécharges dans l'air à PA	40
I.2.5. DBD à PA dans l'air : Caractérisation physico-chimique	41
I.2.5.1. Espèces chimiques neutres.....	41
I.2.5.2. Particules	42
I.2.5.3. Ions.....	43

I.3. Transport des ions en post-décharge	44
I.3.1. Propriétés des ions dans l'air à PA.....	44
I.3.2. Gaz composés de plusieurs espèces.....	45
I.3.3. Théorie du transport d'espèce	46
I.3.3.1. Équations de base.....	46
I.3.3.2. Phénomène de diffusion.....	47
I.3.3.3. Mécanismes de perte	50
I.3.3.4. Mesure des courants d'ions	51
I.4. Conclusions bibliographiques	52
Étude expérimentale.....	55
II. Introduction expérimentale	55
III. Matériels et méthodes	59
III.1. Conditionnement de gaz.....	60
III.2. Réacteur à DBD	61
III.2.1. Description des réacteur DBD	61
III.2.2. Contraintes de conception	63
III.3. Contrôle de la décharge.....	65
III.3.1. Tension et fréquence d'alimentation haute tension.....	66
III.3.2. Paramètres à mesurer et à calculer.....	67
III.3.3. Méthode de Lissajous	68
III.3.4. Mesure de $i(t)$	70
III.3.4.1. À l'échelle de la période,	70
III.3.4.2. Caractéristiques moyenne des filaments unitaires	71
III.3.5. Température	72
III.4. Caractérisation des ions bipolaires en post-décharge.....	72
III.4.1. Mesure des courants ioniques positifs et négatifs en post-DBD	73
III.4.2. Contraintes	74
III.5. Aérosol	77
III.5.1. Générateurs d'aérosols tests calibrés	77
III.5.2. Contrôle de concentration et de charge initiales.....	78
III.5.3. Caractérisation de l'état de charge des aérosols	79
III.6. Conclusions	81
IV. Caractérisation électro-thermique de Décharge à Barrières Diélectriques	82
IV.1. Justification de la géométrie "fil-fil"	82
IV.2. Temps de mise à l'équilibre	83
IV.3. Rétro-contrôle du champ total par la polarisation de surface.....	84
IV.4. Couplages électrothermiques.....	88
IV.4.1. Puissance	88
IV.4.2. Température.....	89
IV.5. Courants de décharge selon la tension crête-à-crête pour trois distances inter-diélectriques.....	90
IV.6. Caractéristiques électriques des filaments.....	92
IV.6.1. Filament unitaire	94
IV.6.2. Répartition spatio-temporelle des filaments dans une DBD « fil-fil »	95
IV.7. Conclusions	100
V. Courant d'ions en post-décharge à barrières diélectriques	102

V.1. Problématique	102
V.2. Conditions de mesure	105
V.2.1. Configurations et géométries de mesure.....	105
V.2.2. Mise à l'équilibre des courants d'ions en post-décharge	106
V.3. Phénoménologie : Compétition électro-hydrodynamique (EHD)	107
V.4. Extraction des ions de la décharge	109
V.5. Décroissance des densités d'ion (collection aux parois et recombinaison) en post-DBD : inter-diélectriques et post-diélectriques	114
V.5.1. Dans l'espace inter-diélectriques	114
V.5.2. En aval des diélectriques	116
V.5.3. Conclusions.....	118
V.6. Conditions de fonctionnement pour la neutralisation d'aérosol.....	119
V.6.1. Rapport $I_{ions}^{+} / I_{ions}^{-}$ et $n_{ions} \cdot \tau$ selon le temps de charge	119
V.6.1.1. Méthode d'estimation du produit $n_{ions} \cdot \tau$	119
V.6.1.2. Augmentation du rapport des courants $I_{ions}^{+} / I_{ions}^{-}$ dans le chargeur	121
V.6.2. Définition des conditions de fonctionnement du chargeur et évaluation du produit $n_{ions} \cdot \tau$	122
V.6.2.1. Caractéristique $I_{ions}^{+} / I_{ions}^{-}$ selon les conditions de travail (tension, débit, distance inter- diélectriques)	122
V.6.2.2. Produits $n_{ions} \cdot \tau$ dans les conditions retenues	124
V.7. Conclusions	126
VI. Charge bipolaire d'aérosol en post-DBD.....	128
VI.1. Principe de la granulométrie par mesure de mobilité électrique	128
VI.2. Validation de la méthode de mesure sur le neutraliseur de référence	129
VI.2.1. Distributions gaussiennes de charge.....	129
VI.2.2. Méthodes de détermination des distributions de charges.....	130
VI.2.2.1. Par mesure des mobilités positives et négatives	130
VI.2.2.2. Par estimation de $\langle q \rangle$ à σ fixé	133
VI.2.2.3. Conclusion	133
VI.2.3. Comparaison des méthodes de détermination des distributions de charge avec le neutraliseur de référence	134
VI.3. Charge bipolaire d'aérosol en post-DBD	137
VI.3.1. Introduction.....	137
VI.3.2. Contrôle de la distribution de charge par la tension de la DBD.....	138
VI.3.3. Neutralisation et lois de charge en post-DBD	140
VI.3.3.1. Concentration d'aérosol (np)	140
VI.3.3.2. Diamètre modal (dp)	141
VI.3.3.3. Loi de charge	144
VI.3.4. Granulométries d'aérosols neutralisés par DBD et Kr	144
VI.3.4.1. Granulométrie d'aérosol unimodal polydispersé ($\sigma_g > 1,2$).....	144
VI.3.4.2. Granulométrie d'aérosol polymodal	146
VI.3.4.3. Granulométrie d'aérosol atmosphérique	147
VI.4. Conclusions	148
Conclusions générales.....	149
Références	153

Annexes	158
Annexe 1 : Présentation du CNC	158
Annexe 2 : Calcul de la distribution de charge par le modèle de Fuchs	159
Annexe 3 : Propriétés des ions	162
Annexe 4 : Théorie du transport d'espèce	164
Annexe 5 : Montage et lignes de pression	165
Annexe 6 : Caractérisation de décharge	166
Annexe 7 : Principe de l'ESP et artefact de mesure du courant d'ions.....	169
Annexe 8 : Nébuliseur	172
Annexe 9 : SLG	173
Annexe 10 : Validation de la distribution gaussienne.....	174
Annexe 11 : Calculs simplifiés des pertes d'ions.....	175
Annexe 12 : Écarts de granulométrie induits par les distributions de charge.....	182
Liste des communications.....	184

Liste des figures

Figure 1 : chargeurs unipolaires et bipolaires pour la granulométrie depuis 1980.....	2
Figure I-1 : description des différents diamètres de particule.....	9
Figure I-2 : régimes continu (gauche) et moléculaire (droite)	10
Figure I-3 : schéma du CNC	11
Figure I-4 : principe de l'électromètre (documentation TSI)	12
Figure I-5 : différentes méthodes de caractérisation de la granulométrie d'un aérosol.....	13
Figure I-6 : schéma de principe d'un ADME	15
Figure I-7 : estimation de l'incertitude de mesure sur une granulométrie (Coquelin, 2013)..	15
Figure I-8 : méthode de détermination des distributions de charge.....	22
Figure I-9 : schéma de principe du neutraliseur TSI 3087.....	24
Figure I-10 : neutraliseur Plasma : a) double corona DC, b) corona AC, c) DBD surfacique pulsé	25
Figure I-11 : plasmas selon la densité électronique n_e , l'énergie $k_B.T_e$ et la longueur de Debye λ_{De}	31
Figure I-12: différentes géométries de DBD.....	34
Figure I-13 : développement du filament de décharge	35
Figure I-14 : résumé schématique des différents diagnostics plasma.....	36
Figure I-15: montage équivalent simplifié d'une DBD	36
Figure I-16 : tracé de la charge selon la tension appliquée pour une décharge filamentaire.	37
Figure I-17 : impulsion de courant dans le circuit extérieur, relative à une décharge filamentaire	38
Figure I-18 : concentration des effluents de la décharge selon T_{plasma} pour une géométrie pointe-plan.....	41
Figure I-19: concentration d'ozone et des oxydes d'azote selon a) P_u et b) $T_{électrode}$	42
Figure I-20: mécanisme de production de particules dans une DBD.....	42
Figure I-21 : principe de la diffusion sous un gradient de densité.....	48
Figure I-22: profil d'ions dans un tube de 5 mm de diamètre à $0,3 \text{ L.min}^{-1}$ selon L_{tube} en post-source radioactive	51
Figure I-23 : caractéristique $I(V)$ d'un précipitateur électrostatique idéal	52
Figure II-1 : schéma de principe de l'étude	56
Figure III-1 : schéma du dispositif expérimental	59
Figure III-2 : schéma d'une source d'ions DBD	61
Figure III-3: photographies et schémas de a) du réacteur 1 et b) du réacteur 2.....	62
Figure III-4 : montage de caractérisation électrique de décharge.....	66
Figure III-5 : figure de Lissajous sur 1 période pour $U_{cc} = 14.3 \text{ kV}$ et $f_r = 60 \text{ kHz}$	68
Figure III-6 : P_u selon la tension par $\langle u.i \rangle$ et par la figure de Lissajous.....	70
Figure III-7 : caractéristique $i_{ions}(V_{ESP})$ post-source radioactive à 4 L.min^{-1}	73
Figure III-8: schéma de la mesure des courants d'ions utilisée avec le premier réacteur.....	76

Figure III-9: granulométrie de la nébulisation (a) d'une solution de sel, (b) d'huile et (c) d'une suspension de bille de Polystyrène de 100 nm	77
Figure III-10: granulométrie en sortie de SLG selon la dilution de vapeur de DEHS.....	78
Figure III-11: évolution de V_{ADME} (a)(b) et mesure de n_p en sortie d'ADME correspondante (c)(d)	80
Figure III-12 : distribution de mobilité d'un aérosol monodisperse de 514 nm en sortie d'ADME.....	80
Figure IV-1 : dynamique de mise à l'équilibre de la température d'électrode.....	84
Figure IV-2 : évolution de la tension et du courant de la DBD.....	84
Figure IV-3 : cycle d'hystérésis de la DBD.....	86
Figure IV-4 : $U_{1er\ filament}$ des demi-périodes positives selon U_{cc}	87
Figure IV-5 : P_u selon (a) U_{cc} à $Q= 4\text{ L.min}^{-1}$ et (b) Q à $U_{cc} = 15,6\text{ kV}$	88
Figure IV-6 : $T_{\text{électrode}}$ pour $d_{gap} = 1,6\text{ mm}$ selon (a) P_u à 4 L.min^{-1} et (b) Q pour $P_u = 7\text{ W}$	89
Figure IV-7 : courant de décharge selon la tension crête-à-crête	91
Figure IV-8: répartition spatiale des filaments selon la tension	93
Figure IV-9 : courant d'une impulsion dans un réacteur fil-fil	94
Figure IV-10 : analyse qualitative des champs électriques et de la répartition des filaments pour des tensions faibles (Auto-organisation I).....	96
Figure IV-11 : analyse qualitative des champs électriques et de la répartition des filaments pour des tensions intermédiaires (auto-organisation II).....	97
Figure IV-12 : analyse qualitative des champs électriques et de la répartition des filaments pour des tensions élevées (auto-organisation III).....	99
Figure V-1 : problématique de l'étude	103
Figure V-2 : configurations de mesures des ions	105
Figure V-3 : I_{ions} (t) entre l'allumage et l'équilibre de la décharge a) sous flux et b) sans flux	106
Figure V-4 : courants d'ions selon (a) U_{cc} et (b) Q $d_{gap}=1\text{ mm}$ et $d_{sortie} = 10\text{ mm}$	108
Figure V-5 : courant d'ions selon (a) $I_{décharge}$ et (b) Q pour $d_{gap}= 0,5 ; 1 ; 1,7\text{ mm}$	110
Figure V-6 : I_{ions} selon U_{cc} en configuration 1 pour un débit de 4 L.min^{-1} et $d_{sortie}=25\text{ mm}$...	114
Figure V-7 : a) I_{ions}^+ et b) $I_{ions}/I_{décharge}$ selon le temps de transit du gaz dans l'espace inter-diélectriques.....	115
Figure V-8 : (a) I_{ions} et $I_{ions}/I_{décharge}$ selon le temps de transit.....	116
Figure V-9 : résumé des processus dominant la décroissance des ions selon le temps de transit dans la condition retenue pour la neutralisation d'aérosol	118
Figure V-10 : estimation du produit $n_{ions}.t$ en fonction du temps de parcours	120
Figure V-11 : I_{ions}^+/I_{ions}^- selon le temps de transit dans le chargeur pour $U_{cc} = 15, 17$ et 20 kV	121
Figure V-12 : I_{ions}^+/I_{ions}^- avec $Q= 1$ et 4 L.min^{-1} pour (a) $d_{gap} = 1,6\text{ mm}$ et (b) $d_{gap} = 1\text{ mm}$	123
Figure VI-1 : étapes du traitement de données permettant d'estimer la distribution de charge à partir de la distribution de mobilité électrique d'aérosol.....	131
Figure VI-2 : montage de validation des méthodes de mesure de charge d'aérosol	134

Figure VI-3 : distributions de charge obtenues par la mesure (Kr) et par Wiedensohler avec les barres de tolérance à 5%	135
Figure VI-4 : schéma du dispositif expérimental pour les mesures aérosol	137
Figure VI-5 : $\langle q \rangle$ et σ^2 selon la tension pour un aérosol monodispersé de 550 nm.....	139
Figure VI-6 : a) $\langle q \rangle$ et b) σ^2 d'un aérosol monodispersé selon n_p ; $\Delta V = 0,12$ kV.....	140
Figure VI-7 : granulométrie d'aérosol monodispersé pour $n_p =$ (a) $6 \cdot 10^4$ et (b) $2 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$.	141
Figure VI-8 : a) $\langle q \rangle$ et b) σ^2 selon d_p ; $\Delta V = 0,12$ kV	142
Figure VI-9 : granulométrie d'aérosol pour $d_p =$ (a) 100 nm, (b) 300 nm et (c) 550 nm.....	143
Figure VI-10 : granulométrie d'aérosol unimodal par nébulisation (a) de NaCl et (b) d'huile	145
Figure VI-11 : granulométrie d'aérosol polymodal utilisant une suspension de SiOx.....	146
Figure VI-12 : granulométrie d'aérosol atmosphérique.....	147

Liste des tableaux

Tableau I-1 : valeur des coefficients de l'approximation de Wiedensohler pour une source radioactive dans l'air (Wiedensohler, 1988)	20
Tableau I-2 : bilan des neutraliseurs par plasma.....	26
Tableau I-3: types de collision inélastique impliquant les ions.....	28
Tableau I-4 : propriétés des microdécharges (Kogelschatz, et al., 1997).....	40
Tableau I-5 : ordre de grandeur des propriétés des ions de décharges	44
Tableau III-1: Propriété mécanique et électrique des diélectriques	64
Tableau IV-1 : gamme de charge par filament la plus probable pour $d_{\text{gap}} = 0,5 ; 0,8$ et $1,6$ mm	95
Tableau V-1 : temps de transit pour les configurations 1 et 2.....	110
Tableau V-2: caractéristiques de la décharge utilisée pour la source d'ions bipolaires	125
Tableau V-3 : conditions de fonctionnement du neutraliseur DBD.....	125
Tableau VI-1: comparaison de $\langle q \rangle$ et σ^2 obtenue selon la méthode de traitement de données pour $d_p = 533$ nm, $n_p^{\text{Kr}} = 2,8 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-3}$, $Q_{\text{tot N2+air}} = 0.6$ lpm.....	134
Tableau VI-2 : position des diamètres multichargés pour le diamètre de coupure de l'ADME	145

Liste des symboles

Symbole	unité	dénomination
$\alpha_i(q)$	sans unité	coefficient de l'approximation de Wiedensohler
$\alpha_{gaz/ext}$	sans unité	facteur de correction mesure-gaz
a_p	m	rayon de la particule
$\vec{B}$	T	champ magnétique
C_c	sans unité	le facteur de correction de Cunningham
C_{DBD}^{off}	F	capacité du réacteur lorsqu'il n'y a pas de décharge
$C_{diélectriques}$	F	capacité résultante des deux diélectriques
C_{gaz}	F	capacité du gaz
C_{cond}	F	capacité du condensateur de mesure
C_{ions}	$m.s^{-1}$	vitesse thermique des ions
d_{gap}	m	distance inter-diélectrique
D_{ions}	$m^2.s^{-1}$	coefficient de diffusion thermodynamique
d_p	m	diamètre de particule
d_{sortie}	m	distance décharge-sortie des diélectriques
e	C	charge élémentaire = $1,6 \cdot 10^{-19}$ C
E/n_{gaz}	$V.m^{-4}$	champ réduit
E_c	$V.m^{-1}$	champ de claquage
E_{ce}	$V.m^{-1}$	champ de charge d'espace
E_{df}	$V.m^{-1}$	champ de décharge filamenteuse
E_L	$V.m^{-1}$	champ de laplace
E_{pa}	$V.m^{-1}$	champ de paschen
E_σ	$V.m^{-1}$	champ de polarisation
E_{sd}	$V.m^{-1}$	champ seuil de décharge
E_{si}	$V.m^{-1}$	champ seuil d'ionisation
E_{tot}	$V.m^{-1}$	champ total
E_p	$V.m^{-1}$	champ de charge d'espace
En_{cycle}	J	énergie dissipé par période
$En_{filament}$	J	énergie par filament
ϵ_0	$F.m^{-1}$	permittivité électrique du vide = $8,8542 \cdot 10^{-12}$ F.m ⁻¹
$f_{\vec{B}}$	Hz	fréquence cyclotronique
f_r	Hz	fréquence de l'alimentation de décharge
$I_{décharge}$	A	courant de décharge
I_{ions}	A	courant d'ions
k_B	$j.k^{-1}$	constante de Boltzmann = $1,3806 \cdot 10^{-23}$ j.k ⁻¹
K_n	sans unité	nombre de Knudsen
L	m	distance entre l'injection et la fente de sélection dans l'ADME
$L_{électrode}$	m	longueur d'électrode
λ	m	libre parcours moyen
λ_{De}	m	longueur de debye
λ_{ions}	m	libre parcours moyen des ions
m_{ions}	kg	masse des ions
m'_{ions}	uma	masse des ions en unité de masse atomique

M_{ions}	kg/mol	masse molaire des ions
n_e	m^{-3}	densité électronique
n_{gaz}	m^{-3}	densité du gaz
n_{ions}	m^{-3}	densité d'ions
n_p	m^{-3}	concentration de particules d'aérosols
η	Pa.s	viscosité dynamique de l'air
$\eta_{extinction}$	sans unité	efficacité d'extraction
η_{pertes}^1	sans unité	efficacité de perte d'ions dans la décharge
η_{pertes}^2	sans unité	efficacité de perte d'ions dans l'espace inter-diélectrique
η_{pertes}^3	sans unité	efficacité de perte d'ions en post-diélectrique
P	Pa	pression
P_s	Pa	pression partielle de l'élément s
P_u	W	puissance
q	sans unité	nombre de charge par particule
$\langle q \rangle$	sans unité	nombre moyen de charge de la distribution de charge de l'aérosol
q_{fil}	C	charge par filaments
q_{ions}	C	charge des ions
q_{max}	C	charge maximale transférée entre les diélectriques
Q	$L.min^{-1}$	débits
Q_a	$L.min^{-1}$	débit de prélèvement d'aérosol
Q_s	$L.min^{-1}$	débit de sortie du ADME
Q_t	$L.min^{-1}$	débit total dans le ADME
r_1	m	rayon interne du ADME
r_2	m	rayon externe du ADME
R_{gaz}	Ω	résistance du gaz
R_{mes}	Ω	résistance de mesure
σ_g	sans unité	écart-type de la distribution granulométrique
σ	sans unité	écart-type de la distribution de charge
$\sigma_{ions/gaz}$	m^2	section efficace de collision
T	K	température
T_0	K	température des neutres
T_e	K	température électronique
T_g	K	température du gaz
T_{ions}	K	température ionique
t_m	s	temps de montée de l'impulsion
t_{exp}	s	temps de décroissance exponentiel du courant induit par un filament
t_{diff}	s	temps caractéristique de diffusion
t_{elec}	s	temps caractéristique de précipitation électrostatique
$t_r^{\pm}$	s	temps caractéristique de recombinaisons
τ	s	temps caractéristique de charge des aérosols
$U_{1er\ filament}$	V	tension du 1 ^{er} filament par demi-période
$u_{app}(t)$	V	tension appliquée instantanée
$U_{cc}^{1er\ allumage}$	V	tension crête-à-crête de premier allumage
U_{conv}	V	tension de conversion charge-énergie mesuré dans le circuit extérieur
U_{fil}	V	amplitude maximum de l'impulsion de courant d'un filament unitaire
$u_{mes}(t)$	V	tension de mesure sur l'électrode de masse
$\nu_{ions/gaz}$	s^{-1}	fréquence de collision ions-gaz
$V_{paschen}$	V	tension de Paschen

V_{ADME}	V	tension appliquée sur l'électrode de l'ADME
V_{ESP}	V	tension d'ESP
V_{gaz}	V	chute de tension à travers l'espace gazeux
ΔV	V	surtension par rapport à la tension d'extinction
$\vec{v}_E$	$m.s^{-1}$	vitesse électrique
$\vec{v}_{td}$	$m.s^{-1}$	vitesse de diffusion
x	m	position suivant le flux par rapport à la décharge
x_{mes}	m	position de la mesure
Z	$m^2.V^{-1}.s^{-1}$	mobilité électrique
$Z_{ions}^{\pm}$	$m^2.V^{-1}.s^{-1}$	mobilité électrique des ions $\pm$
Z_p	$m^2.V^{-1}.s^{-1}$	mobilité électrique de particule

Abréviation

ADME	Analyseur de mobilité diélectrique
CNC	Compteur à Noyau de Condensation
CNTP	Conditions Normales de Température et de Pression
COV	Composés Organique Volatile
CSTP	Conditions Standards de Température et de Pression
DBD	Décharge à Barrières Diélectrique
DEHS	DI-Ethyl-Hexyl-Sebaçat
SLG	Sinclair-Lamer Generator

Introduction

Les propriétés physiques d'un aérosol (particules solides ou liquides en suspension dans un gaz) dépendent, au premier ordre, de la distribution en taille, c'est-à-dire la concentration de particules par gamme de diamètre. La méthode la plus utilisée pour mesurer la distribution de taille d'aérosols submicroniques (de 10 nm à 1 μm) est l'analyse différentielle de mobilité électrique (ADME). Cette méthode repose sur la séparation des particules en suspension selon la mobilité électrique, qui dépend de leur taille et de leur charge. La détermination de distribution de taille à partir de la mesure de la distribution de mobilité nécessite donc la maîtrise de la distribution de charge de l'aérosol, c'est-à-dire que pour chaque diamètre, il faut connaître les fractions de particules mono-, bi-, tri- ...n-fois chargées.

Pour imposer la distribution de charge des particules, les appareils de mesure de distribution de taille sont munis d'un neutraliseur qui confère à l'aérosol une distribution de charges centrée sur 0 par diffusion d'ions gazeux jusqu'à la surface des particules. Les fractions de particules mono-, bi-, ... n-fois chargés sont alors des fonctions de la taille des particules et indépendantes de la concentration de l'aérosol.

Notre objectif est ici de remplacer les sources radioactives d'ions bipolaires utilisées pour la neutralisation d'aérosols. En effet, l'usage de matériaux radioactifs est soumis à une législation stricte et donc coûteuse et contraignante (personnel formé à la radioprotection, contrôle d'exposition et gestion des déchets).

Des alternatives existent pour produire des ions gazeux : la thermo-ionisation, la photo-ionisation et l'avalanche électronique. La thermo-ionisation nécessite des températures très supérieures à la température ambiante, incompatibles avec la caractérisation d'aérosol du fait de la dégradation thermique des particules (fusion, évaporation, ...). Des neutraliseurs basés sur la photo-ionisation du gaz par rayon X ont déjà été développés. Toutefois, leur durée de vie se limite à quelques milliers d'heures (une centaine de jours d'utilisation) et leur coût est relativement élevé.

Les décharges électriques (basées sur les avalanches électroniques) sont utilisées pour la simplicité de mise en œuvre et la production de densités d'ions stables et supérieures

à 10^{15} m^{-3} . En effet, la charge unipolaire par décharges couronnes est utilisée depuis un siècle pour filtrer les fumées chaudes et plus récemment pour la métrologie aérosol (cf. Figure 1). Pour la mesure de taille des aérosols nanométriques, ces chargeurs unipolaires permettent d'augmenter la fraction chargée et donc la sensibilité et la représentativité des mesures (en sortie de chargeur, en deçà de 10 nm seuls quelques pourcents de l'aérosol sont chargés). En revanche, ils ne sont pas adaptés aux aérosols de taille submicronique visés dans cette étude. En effet, les niveaux de charge élevés jusqu'à une centaine de charges par particule de $1 \mu\text{m}$, impliquent des pertes d'aérosols aux parois par répulsions électrostatiques et rendent l'évaluation de la taille très délicate en raison des recouvrements de mobilité électrique d'aérosol de taille différente.

Des systèmes basés sur deux décharges continues de polarités opposées ou sur une décharge alimentée en alternatif, sont aussi commercialisées comme neutraliseur d'aérosol. Cependant, outre la production d'ozone qui oxyde les matériaux en aval de ces chargeurs/neutraliseurs, la collection d'aérosol dans la décharge perturbe celle-ci et entraîne des instabilités de la production d'ions et donc de la distribution de charge des aérosols. De plus, les électrodes métalliques s'oxydent et s'érodent par interaction avec le plasma. Notre choix pour cette étude se porte sur les Décharges à Barrières Diélectriques qui ont l'avantage d'être stables dans le temps et très robustes. En effet, contrairement aux décharges électriques de type décharge couronne ou glow, dans une décharge à barrières diélectriques (ou DBD), les surfaces en contact avec le plasma sont des oxydes métalliques comme l'alumine (Al_2O_3) qui ne s'oxydent pas et dont l'érosion peut être limitée en contrôlant l'énergie d'interaction du plasma (énergie des filaments de décharge). Les DBD ont ainsi été développées mais restent limitées par la production d'ozone et la collection d'aérosols dans la décharge.

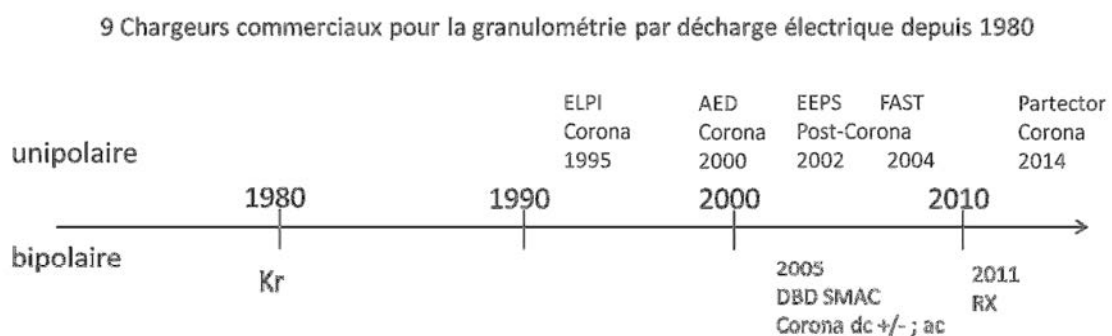


Figure 1 : chargeurs unipolaires et bipolaires pour la granulométrie depuis 1980

Cette étude vise donc à développer un neutraliseur à DBD comme alternative aux neutraliseurs radioactifs et à rayons X. Afin de limiter la perturbation de la décharge par la collection d'aérosols chargés dans l'espace inter-électrodes, les aérosols sont injectés en post-décharge dans un nuage d'ions bipolaires extraits de la décharge (brevet). Par principe, les densités d'ions (critique pour définir les gammes de concentration et de taille d'aérosol neutralisable) sont inférieures en post-décharge que dans l'espace inter-électrodes. Ainsi, Ce travail tente d'une part d'apporter de nouveaux éléments sur la production d'ions bipolaires par Décharge à Barrières Diélectriques et sur le transport de ces ions en post-décharge et d'autre part, d'étudier la charge bipolaire en post-DBD afin de valider que ce système est applicable à la granulométrie d'aérosol par ADME. Cette étude permet donc de poser les bases nécessaires (faisabilité, contrainte métrologique, validation des protocoles) pour le développement d'un neutraliseur post-DBD sans ozone.

L'étude bibliographique permet d'abord d'introduire les propriétés qui caractérisent un aérosol (composition, concentration, taille, charge, ...). En particulier, les conditions nécessaires pour la neutralisation d'aérosol sont identifiées (débit d'aérosol à neutraliser, produit $n_{ions} \cdot \tau$ minimal à atteindre-avec τ le temps que l'aérosol passe dans la densité d'ions n_{ions} et enfin le rapport $(n_{ions}^+ \cdot Z_{ions}^+) / (n_{ions}^- \cdot Z_{ions}^-)$ qui contrôle la charge moyenne de l'aérosol avec Z_{ions} la mobilité des ions). Ensuite, les paramètres de régulation de la décharge (géométrie, tension, fréquence, nature des diélectriques, débit de gaz) et leurs conséquences sur les propriétés du plasma (puissance, charge/énergie par filament, températures ...) sont présentés. Enfin, les processus de production, d'entraînement ainsi que de pertes aux parois et de recombinaison, impliqués dans la diminution des densités d'ions, sont décrits.

Après une description du matériel et des méthodes, la synthèse des résultats expérimentaux est présentée dans trois chapitres. Le premier vise à définir les conditions de production des ions par la décharge à barrières diélectriques. La DBD « fil-fil » est composée de deux plans d'alumine séparés d'un intervalle gazeux dans lequel se produit le plasma, les plans d'alumine sont polarisés par deux électrodes cylindriques (de 4 mm de diamètre). Le plasma se développe sous la forme de décharges filamenteuses de 100 μm de diamètre durant quelques nanosecondes, répartis dans l'espace inter-diélectriques entre les électrodes. Les caractéristiques électriques de la décharge (courant impulsionnel, charge par filaments,

courant de décharge, puissance) ainsi que la répartition spatiale et temporelle des filaments de décharge sont comparées selon les paramètres de contrôle (tension, débit, géométrie) au cas de référence en géométrie « plan-plan ».

Le second chapitre traite des courants d'ions mesurés en post-DBD et des fractions d'ions extraites de la décharge pour identifier les processus qui gèrent l'entraînement des ions bipolaires et la décroissance des densités d'ions entre la décharge (source des ions) et l'entrée du neutraliseur en post-DBD. D'abord, nous confirmons qu'une compétition électrohydrodynamique (EHD) gère les flux d'ions bipolaires extraits de la décharge grâce à une étude selon la tension appliquée à la décharge et le débit de gaz. En effet, ces paramètres contrôlent d'une part les propriétés de la décharge (i.e. la production d'ions) et d'autre part les températures, les champs électriques et la vitesse d'entraînement des ions qui affectent la recombinaison et sont à l'origine des pertes par collection aux parois. En particulier, nous montrerons la corrélation entre la répartition spatiale des filaments et la fraction d'ions extraite de la décharge. L'importance relative des mécanismes de décroissance des densités d'ions en post-décharge est ensuite déterminée par l'étude des variations de densité d'ions selon le temps de parcours et selon les paramètres géométriques de la décharge et de la post-décharge. Sont ensuite définies, la géométrie du chargeur bipolaire et les gammes de conditions de fonctionnement pour atteindre les conditions de charge des aérosols requises : c'est-à-dire un produit $n_{ions} \cdot \tau$ minimum de $6.10^{12} \text{ s.m}^{-3}$ et un rapport $(n_{ions}^+ \cdot Z_{ions}^+) / (n_{ions}^- \cdot Z_{ions}^-)$ proche de 1.

Le troisième chapitre vise à déterminer les conditions de fonctionnement de notre système dans les gammes prédéfinies pour le cahier des charges (diamètre de particule entre 10 nm et 1 μm et concentration d'aérosol jusqu'à 10^7 cm^{-3}). Contrairement aux neutraliseurs usuels, la densité d'ions décroît le long du trajet de l'aérosol dans le chargeur bipolaire. L'état de charge final de l'aérosol dépend des densités d'ions positifs et négatifs rencontrées dans la zone de charge. Après avoir choisi la condition de fonctionnement (fréquence, tension, débit) à partir de l'analyse des distributions de charge d'aérosols monodispersés, la relation charge-diamètre du neutraliseur DBD est établie et validée quelle que soit la concentration de l'aérosol. Dans cette condition, les granulométries mesurées en sortie de neutraliseurs radioactif et à DBD sont comparées afin de prouver que le neutraliseur post-DBD est viable pour la granulométrie des aérosols submicroniques.

Étude Bibliographique

L'objectif de cette thèse est de produire un neutraliseur d'aérosol basé sur une décharge à barrières diélectriques pour remplacer les cartouches radioactives utilisées dans les systèmes de mesure de distribution en taille d'aérosol.

La première étape consiste en la détermination des conditions requises pour le fonctionnement d'un neutraliseur d'aérosol. Au cours de cette première partie, les aérosols et leurs propriétés sont définis par les paramètres caractéristiques en physique des aérosols : la composition de l'aérosol, la concentration de particules (n_p) ; la taille et plus précisément la distribution en taille de particule (d_p et $n_p(d_p)$) ; la charge de particule q . Ensuite, les méthodes de caractérisation d'aérosol, en particulier en termes de taille d'aérosol, sont présentées afin de déterminer les conditions de travail requises pour ces méthodes. Parmi ces méthodes, la plus utilisée pour caractériser la distribution de taille d'aérosols submicroniques est basé sur des champs électrostatiques pour séparer les aérosols chargés par gamme de taille. Le comportement des particules d'aérosols dans ces champs dépend de la quantité nette de charge que ces particules possèdent. Ainsi, les mécanismes de charge de particules sont présentés. Enfin, différentes catégories de neutraliseurs sont comparées afin d'identifier les conditions et contraintes de fonctionnement requises pour l'application.

Deux méthodes permettant de remplacer les neutraliseurs radioactifs ressortent : les plasmas froids à pression atmosphérique et les sources à rayon X. Nous avons choisi d'utiliser une Décharge à Barrières Diélectriques (DBD) à pression atmosphérique dans l'air comme source d'ions bipolaire pour la neutralisation des aérosols. La seconde étape de ce chapitre permet d'identifier les propriétés des DBD afin de déterminer les conditions de travail nécessaire pour l'application. Dans cette étape, les mécanismes de productions des ions bipolaires sont présentés. Ensuite, les propriétés générales des plasmas sont développées. Enfin, les propriétés des DBD sont présentées d'après leurs propriétés électrothermiques et physicochimiques à pression atmosphérique (PA) dans l'air.

La troisième partie est focalisée sur les propriétés et processus physiques qui régissent le transport des ions et les différentes méthodes pour caractériser ces propriétés.

I.1. Neutralisation d'aérosol pour la granulométrie par Analyseur Différentiel de Mobilité Électrique

L'objectif de cette partie est de définir le cahier des charges du neutraliseur que nous cherchons à développer afin de contrôler l'état de charge avant la mesure de à l'aide d'un Analyseur Différentiel de Mobilité Electrique (ADME). Tout d'abord, les propriétés générales d'un aérosol sont présentées. Ensuite, les différentes méthodes de caractérisation des aérosols dont font partie les ADME sont décrites. La mobilité électrique des aérosols utilisée dans les ADME est liée à la charge que chaque particule possède. Ainsi, les méthodes de charge d'un aérosol et en particulier les théories de la charge bipolaire par collection d'ions gazeux sont développées. Enfin, différentes solutions de neutraliseur d'aérosol sont présentées.

I.1.1. Aérosol : généralités

I.1.1.1. Définition et mécanismes de formation

Un aérosol est un ensemble de particules liquides ou solides en suspension dans un gaz dont les effets gravitationnels peuvent être négligés (dans ce manuscrit, le mot « particule » désigne les composants d'un aérosol et non pas comme en physiques des plasmas : les électrons, ions...). Négliger les forces gravitationnelles revient à considérer la vitesse de chute négligeable. Concrètement, dans les conditions ambiantes, la taille des particules varie entre quelques nanomètres et quelques microns.

Il est possible de classer les aérosols suivant leur origine naturelle ou anthropique ou leur mode de formation. Dans l'environnement un aérosol est dit primaire s'il est émis dans l'atmosphère soit mécaniquement (érosion du sol par le vent, poussière de pneu ou de plaquette de frein, embruns....), soit par une combustion (feux de forêt, émission des moteurs thermiques,...); alors qu'un aérosol secondaire résulte de réactions chimiques en phase gaz suivies d'une conversion gaz-particule (appelé nucléation) (Hinds, 1982).

Les aérosols sont également impliqués dans de nombreuses applications industrielles. La technologie et la science des aérosols servent notamment dans la production de poudres (pigments de peinture, poudre métallique pour la sidérurgie), dans les nanotechnologies, pour les dépôts de couche mince. Il est possible de classer les aérosols industriels selon deux types de mécanismes de formation. Le premier type de mécanisme est mécanique (Soit par mise en suspension de poudre déjà formée par un flux de gaz ou une brosse tournante soit

par cisaillement de liquide par une gaz sous forme de bulle ou de jet pour produire des gouttes) et le second est la nucléation : des vapeurs chaudes sont produites et le refroidissement du gaz ou une variation de pression conduit à sursaturer le gaz (la pression partielle de vapeur dépasse la pression saturante d'un facteur 2 à 4) impliquant la formation de particule à partir du gaz. Deux types de nucléation peuvent être distinguées : la nucléation physique (les vapeurs sont produites à partir d'un solide ou d'un liquide par échauffement ou par érosion ionique) et la nucléation réactive (des réactions chimiques sont déclenchées dans une flamme, un plasma, par chauffage ou par photochimie pour produire un composé gazeux à faible pression de vapeur saturante).

I.1.1.2. *Croissance de l'aérosol*

Une fois formés, les aérosols peuvent « croître » par agglomération des particules ce qui génère des particules de quelques dizaines à quelques centaines de nm. Ainsi, la distribution en taille d'un aérosol atmosphérique est le plus souvent tri-modale (Hinds, 1982). La distribution est composée d'un mode fin ($d_p < 100$ nm dit de nucléation) ; un mode intermédiaire (au voisinage de 100 nm dit d'accumulation) et un mode constitué de particules plus grosses (de quelques micromètres dit mode mécanique).

Les noyaux de condensation produits par nucléation peuvent ensuite grossir atteignant des tailles de rayon dépassant la centaine de nanomètre). Différents processus de formation peuvent être décrits :

- La condensation de vapeurs sur les particules existantes (ou condensation hétérogène) lorsque le gaz contient des vapeurs condensables (dans les conditions ambiantes de 20 °C et 1 bar principalement de l'eau et des COV).
- La coagulation brownienne due aux collisions entre les noyaux en mouvements browniens. Ce processus est actif pour des concentrations d'aérosol dépassant 10^6 cm^{-3} .
- La coagulation coulombienne entre des particules chargées de signes opposés.

Les particules d'aérosol peuvent aussi disparaître, selon leurs tailles, par diffusion ou impaction sur les surfaces, par sédimentation sous l'action de la gravité et lors des processus de précipitations atmosphériques (neige, pluie), par lavage lors de la précipitation elle-même ou alors par processus électrostatiques pour les particules chargées. Ces processus de disparition déterminent le temps de vie des particules dans l'atmosphère.

I.1.1.3. *Paramètres caractéristiques*

Les paramètres qui contrôlent, au premier ordre, la physique des aérosols sont : la nature des matériaux, la taille des particules, la concentration de particule et la charge des particules.

La nature des matériaux dépend principalement de la méthode de production de l'aérosol.

La concentration d'un aérosol peut être exprimée dans trois unités :

- La concentration en masse est définie comme la masse d'aérosol contenue dans une unité de volume. Cette définition de la concentration est utilisée en particulier pour déterminer les taux de pollution de l'air et, dans l'industrie, des rendements de production.
- La concentration surfacique est définie comme la surface apparente des aérosols contenue dans une unité de volume de gaz. Cette concentration est de plus en plus utilisée pour caractériser les effets biologiques des aérosols.
- La concentration en nombre est définie comme le nombre de particules dans une unité de volume : dans cette thèse elle est noté n_p . Cette définition de la concentration est utilisée dans l'évaluation des processus physiques qui s'applique sur les aérosols. Cette définition de la concentration est en particulier utilisée pour les mesures de distribution de taille d'aérosol définies comme le nombre de particule appartenant à différentes gammes de taille dans une unité de volume. C'est la concentration utilisée par la suite.
 - La taille d'une particule est un paramètre difficile à définir car les aérosols peuvent avoir des formes très différentes selon leur nature et leur mode de production. En général, les particules sont considérées comme sphériques. Des diamètres équivalents sont définis en adéquation avec le type de propriétés étudiées.

Les diamètres équivalents généralement utilisés sont :

- $d_{optique}$: diamètre correspondant à la taille caractéristique de la particule mesuré au microscope (optique, électronique, ...)
- $d_{volumique}$: diamètre équivalent d'une sphère de même volume que la particule considérée de forme quelconque,
- d_{Stokes} : diamètre de stokes : diamètre d'une sphère possédant la même vitesse de chute et la même densité apparente,

- $d_{aérodynamique}$: diamètre aérodynamique : diamètre d'une particule sphérique de masse volumique 1000 kg.m^{-3} , ayant la même vitesse de chute qu'une particule de forme et de masse volumique quelconque,
- $d_{électrique}$: diamètre de mobilité électrique équivalent : diamètre d'une particule sphérique de même mobilité électrique qu'une particule chargée de forme quelconque. Ce diamètre est le diamètre mesuré par les ADME (cf .Figure II-2). C'est le diamètre utilisé dans ce manuscrit noté d_p .

						
Taille caractéristique	$d=d_0$	$d_{optique}$	$d_{volumique}$	d_{stokes}	$d_{aérodynamique}$	$d_{électrique}$
Volume	$V=V_0$	V	V_0	V	V	V
Masse Volumique	$\rho_v = \rho_v^0$	ρ_v	ρ_v	ρ_v^0	$\rho_v = 1000 \text{ kg.V}^{-1}$	ρ_v
Vitesse de chute	$v_{chute} = v_{chute}^0$	v_{chute}	v_{chute}	v_{chute}	v_{chute}^0	v_{chute}
Mobilité électrique	$Z = Z_0$	Z	Z	Z	Z	Z_0

Figure II-2 : description des différents diamètres de particule

Les aérosols naturels sont composés de particules possédant des tailles très diverses. Lorsqu'une distribution de taille d'aérosol présente une faible dispersion (écart type géométrique de la distribution $< 1,2$) par rapport à la taille moyenne, il est dit monodispersé (Hinds, 1982). Dans les autres cas, il est dit polydispersé.

Les particules ont la propriété de collecter des charges (ions et électron) selon une dynamique et un équilibre qui dépend de leur taille (cf. §1.1.3.2). Étant chargées, les particules vont donc être déviées lorsqu'un champ électrique est appliqué. La mobilité électrique est définie comme le rapport de la vitesse de la particule dans le champ électrique sur la valeur du champ électrique. La mobilité est une fonction de la taille des particules (Hinds, 1982) :

$$Z = \frac{v_{TE}}{E} = \frac{q \cdot e \cdot C_c}{3\pi \cdot \eta \cdot d_{part}} \quad II-1$$

Avec Z leur mobilité électrique (en $\text{m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$) ; $q \cdot e$ la charge de la particule (en C avec q le nombre de charge et e la charge unitaire : $e=1,6 \cdot 10^{-19} \text{C}$) ; η viscosité dynamique (en Pa.s) ; d_p le diamètre de la particule (en m) et C_c le facteur de correction de Cunningham déterminé empiriquement par : $C_c = 1 + K_n \left(1,142 + 0,558 \cdot \exp \left(- \frac{0,999}{K_n} \right) \right)$

Où K_n est le nombre de Knudsen défini comme le rapport entre le libre parcours moyen des molécules du gaz porteur (65 nm à 1 bar et 293 °C et de 120 nm à 1 bar et 473 °C, noté λ) et le rayon des particules, a_p (Kodas & Hamnden-Smith, 1999).

Régime continu : $a_p \gg \lambda \rightarrow K_n \ll 1$

Régime moléculaire $a_p \ll \lambda \rightarrow K_n \gg 1$

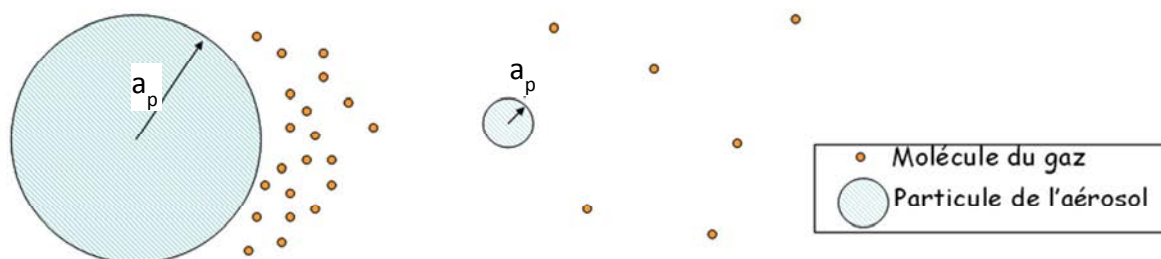


Figure II-3 : régimes continu (gauche) et moléculaire (droite)

Le nombre de Knudsen permet de répartir en trois régimes (Hinds, 1982) les situations rencontrées (Figure II-3) :

$K_n < 0,1$ (soit $d_p > 1,3 \mu\text{m}$ à 1 bar et 293 K) : *Régime continu* ; le gaz peut être considéré comme un fluide continu pour les particules.

$K_n > 10$ (soit $d_p < 13 \text{ nm}$ à 1 bar et 293 K) : *Régime moléculaire* ; la particule peut être considérée comme une particule de gaz et la théorie cinétique des gaz s'applique.

$0,1 < K_n < 10$: Régime intermédiaire.

Les particules étudiées ici se situent uniquement dans le régime intermédiaire. Seuls les formalismes adaptés à ces gammes de taille sont donc présentés.

I.1.2. Métrologie

I.1.2.1. Composition chimique

Les méthodes sont généralement des méthodes différées dans le temps par rapport à la collecte (Masclat & Marchand, 2004). Elles peuvent être classées selon que la nature des éléments recherchés (par exemple organique ou inorganique).

Dans le cas de l'analyse organique, les éléments sont dissous dans un solvant adapté à l'espèce organique recherché. Ensuite, elles subissent une chromatographie en phase gazeuse ou liquide (Masclat & Marchand, 2004).

Les méthodes d'analyse des éléments inorganiques sont plus nombreuses mais les plus fréquemment utilisées sont la méthode de fluorescence X (SFX) et la spectrométrie d'induction Plasma (ICP).

I.1.2.2. *Concentrations*

Les méthodes les plus usitées pour déterminer les concentrations (numérique et massique) sont résumées ci-dessous.

I.1.2.2.a. Concentration numérique

Les méthodes optiques sont les plus utilisées pour déterminer les concentrations en nombre de particules.

Les particules passent devant un ou plusieurs faisceaux lumineux ce qui permet via l'extinction de remonter à la concentration (Zheng, et al., 2006). Une autre manière de procéder est d'utiliser la diffraction de la lumière sur les particules. Les limites en taille de ces méthodes imposent des pré-grossissements des particules de taille inférieure à 200nm. C'est le principe du CNC (Compteur à Noyau de Condensation) présenté sur la Figure II-4 (Agarwal & Sem, 1980) (Zhang & Liu, 1990) et détaillé en Annexe 1 .

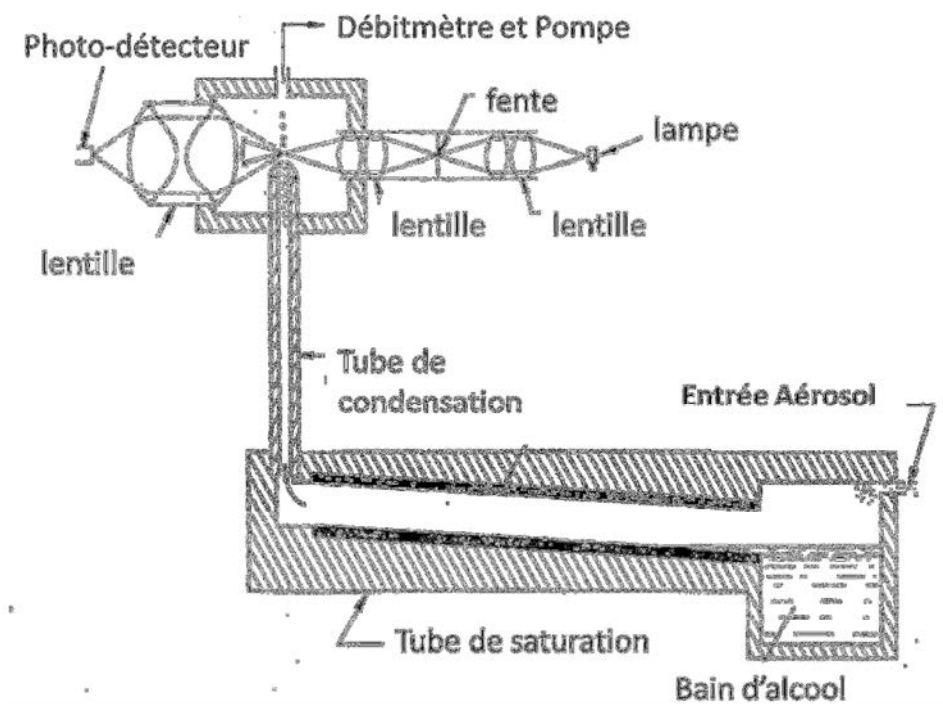


Figure II-4 : schéma du CNC

Enfin, une dernière méthode consiste à mesurer un courant de particules chargées. Le principe de mesure est présenté sur la Figure II-5.

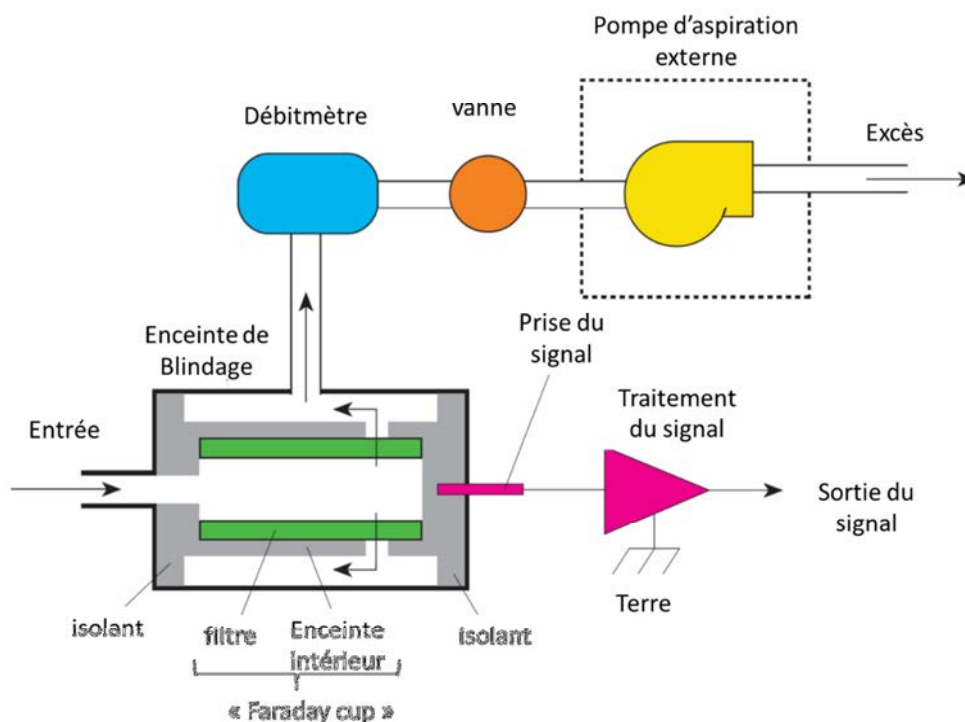


Figure II-5 : principe de l'électromètre (documentation TSI)

Avec cette méthode, il est nécessaire de corriger le courant mesuré par la charge (ou la distribution de charge) des particules pour remonter à la concentration.

I.1.2.2.b. Concentration massique

Le principe consiste à collecter les particules sur un système soumis à un flux connu. La méthode par impact de particule permet de déterminer leur concentration massique en faisant la mesure de variation de masse de l'impacteur par pesée, analyse par rayonnement β et méthode TEOM (Masclat & Marchand, 2004) (Willeke & Baron, 1993).

I.1.2.3. *Tailles*

L'un des paramètres importants pour la physique des aérosols est la distribution en taille de celui-ci. En effet, la taille d'un aérosol agit au premier ordre sur ses propriétés optiques, thermodynamiques et électriques. L'étude de la distribution en taille (granulométrie) des aérosols permet alors de remonter à leurs propriétés physiques. Les principales méthodes de la granulométrie des aérosols sont résumées sur la Figure II-6 (KLEITZ & BOULAUD, 2013).

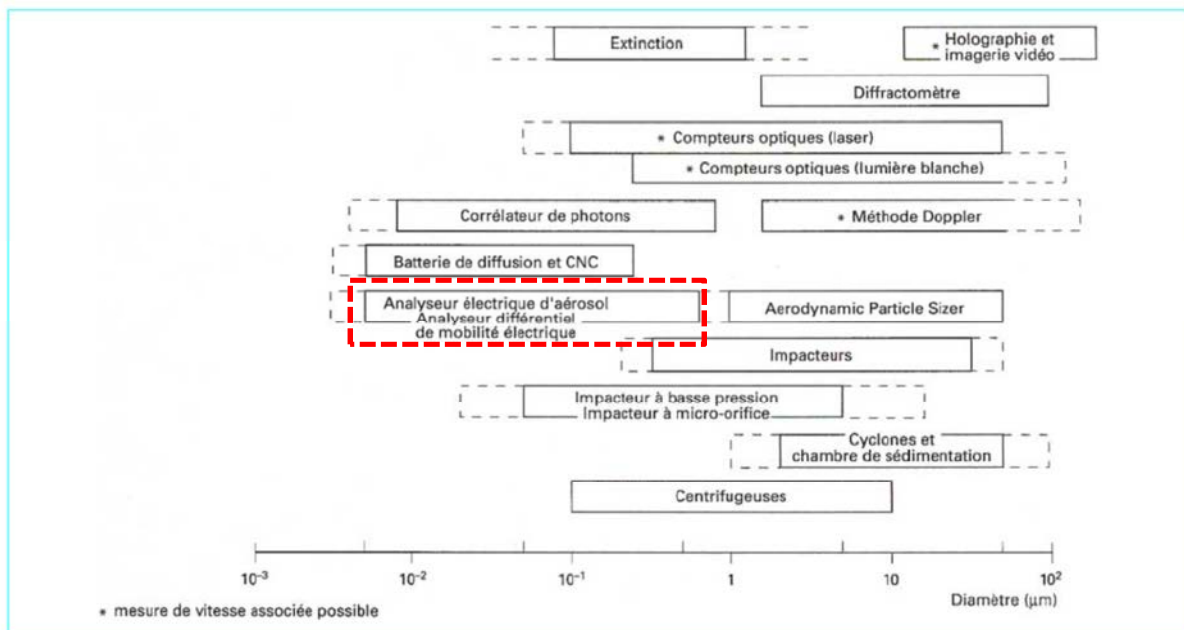


Figure II-6 : différentes méthodes de caractérisation de la granulométrie d'un aérosol

Les méthodes de mesure granulométriques (Renoux & Boulaud, 1998) peuvent se décomposer en deux groupes, les méthodes avec pré-sélection et les méthodes sans pré-sélection.

I.1.2.3.a. Les méthodes sans pré-sélection

La méthode la plus simple qui n'utilise pas de pré-sélection est l'observation à l'aide d'un microscope de l'aérosol déposé sur une membrane ou une grille. Cette méthode est longue car elle nécessite de mesurer un grand nombre de particule une à une pour obtenir une représentativité statistique. Cependant, elle permet d'établir une granulométrie quelle que soit la taille de l'aérosol.

Les principales autres méthodes d'analyse sans pré-sélection se basent sur l'analyse optique de l'aérosol. Parmi ces méthodes, il est possible de citer (Kleitz & Boulaud, 2013): l'holographie ; les méthodes par extinction ou par diffraction.

I.1.2.3.b. Les méthodes avec pré-sélection

Les méthodes avec pré-sélections se basent sur le fait que les propriétés physiques des aérosols dépendent de leurs tailles. Ainsi, un ou plusieurs processus physiques permettent de séparer les aérosols par gamme de taille. Ensuite, l'aérosol est compté par gamme de taille (cf. I.1.2.2).

La méthode de séparation la plus répandue est l'impaction. Le principe repose sur l'inertie des particules les plus grosses qui sont collectées sur une paroi alors que les plus fines sont

entraînées par le flux de gaz, lorsque celui-ci change de direction. La granulométrie d'un aérosol s'effectue à l'aide de plusieurs impacteurs placés les uns derrière les autres avec des tailles de coupure de plus en plus fines, ces systèmes sont qualifiés d'impacteur en cascade (Demokritou, et al., 2004) (Newton, et al., 1977).

D'autres méthodes inertielles permettent de déterminer la granulométrie (sédimentation ; centrifugation) (Willeke & Baron, 1993). Enfin, il existe également des méthodes basées sur la diffusion différentielle des particules selon leur taille (les particules sont collectées grâce à des grilles, tubes ou lit granulaire).

I.1.2.3.c. Analyseur Différentiel de Mobilité Électrique

La méthode la plus utilisée pour la granulométrie est la séparation par gamme de mobilité électrique. La mobilité des particules va principalement dépendre de la charge et de la taille des particules à analyser (cf. §I.1.3.2). Le principe est de créer à l'aide d'un chargeur une distribution de charge connue. Les particules ainsi chargées vont être envoyées dans un analyseur de mobilité différentiel (ADME) (Figure II-7). L'analyseur de mobilité différentiel fonctionne de la manière suivante : L'électrode centrale, polarisée négativement ou positivement, attire les particules de charge opposée. Pour une tension appliquée, seules les particules dans la gamme de mobilité sélectionnée sortent par la fente percée en bas du cylindre intérieur. Les particules de mobilité supérieure sont collectées sur la partie supérieure de l'électrode centrale, tandis que les particules moins mobiles sortiront par la sortie principale d'air en excès. Il existe donc une relation directe entre la tension appliquée et la gamme de mobilité sélectionnée. Pour une tension donnée V_{ADME} , la mobilité moyenne sélectionnée Z_p ($\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$) est donnée par la relation (Knutson & Whitby, 1975) :

$$Z_p = \frac{[Q_t - 0,5(Q_s + Q_a)] \ln \left(\frac{r_2}{r_1} \right)}{2\pi V_{ADME} L_{ADME}}$$

où Q_t est le débit total dans le ADME ($\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$), Q_s est le débit qui sort par la fente ($\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$); Q_a le débit d'entrée de l'aérosol ($\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$), r_1 et r_2 les rayons interne et externe de l'espace inter-électrodes (cm) et L_{ADME} la longueur du tube de collection entre l'injection et la fente de sélection (cm).

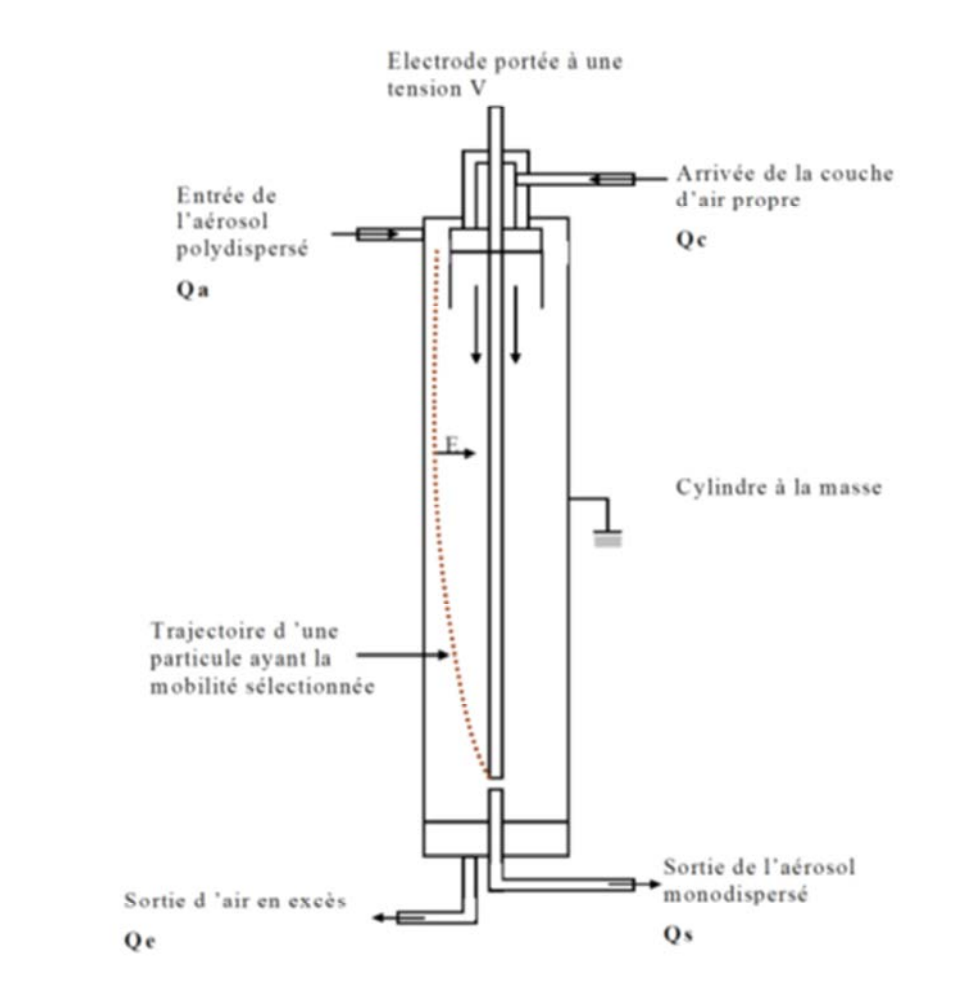


Figure II-7 : schéma de principe d'un ADME

Coquelin (Coquelin, 2013) présente dans sa thèse en 2013 une évaluation des incertitudes sur l'établissement de granulométrie par ADME. Une modélisation est représentée sur la Figure II-8.

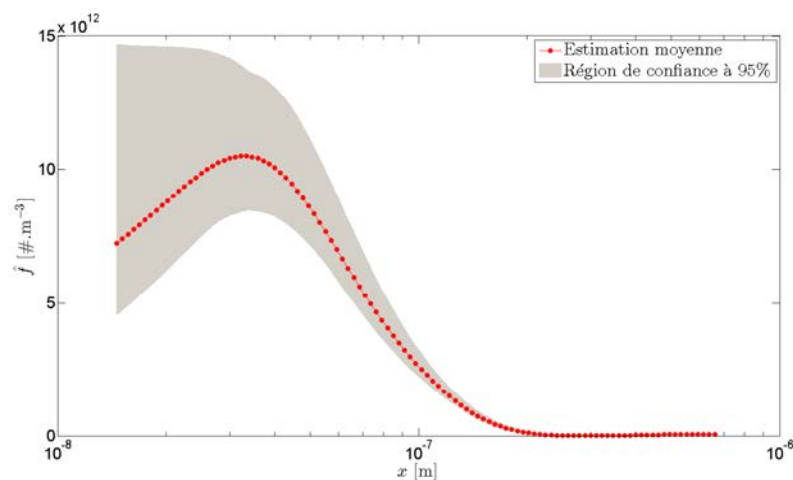


Figure II-8 : estimation de l'incertitude de mesure sur une granulométrie (Coquelin, 2013)

La région de confiance à 95% passe de 5% pour 200 nm à 200% pour 20 nm. Un autre défaut de précision des granulométries par ADME est lié à la mobilité de coupure. En effet, pour remonter d'une distribution de mobilité à une distribution en taille, il est nécessaire pour chaque diamètre de soustraire les concentrations d'aérosol de diamètre supérieur possédant la même mobilité. Pour cela il est nécessaire d'estimer la concentration d'aérosol de diamètre supérieur ce qui n'est pas possible pour les diamètres supérieurs au diamètre de coupure.

Les ADME commerciaux utilisent différents types de chargeurs (radioactifs, rayon X ou décharges électriques).

Pour obtenir des charges moyennes d'aérosol élevées, en particulier dans le cas d'une détection électrique en post-ADME ou pour des aérosols nanométrique dont la probabilité de charge est faible (inférieur au pourcent), le chargeur utilisé est en général un chargeur corona DC (plasma à pression atmosphérique qui produit de forte densité d'ions unipolaire permettant de charger les aérosols cf. §I.1.3) (Biskos, 2004). Toutefois, ce type de chargeur n'est pas adapté à la gamme submicronique d'aérosol en raison des recouvrements de mobilité électrique des particules de diamètre supérieur à 300 nm. De plus, la charge unipolaire des aérosols implique des pertes d'aérosols sur les parois lors du transport par répulsion électrostatique.

Pour obtenir des charges moyennes proches de 0 (qui réduisent les pertes électrostatiques d'aérosol), les neutraliseurs produisent des densités bipolaires d'ions. Les neutraliseurs les plus utilisés sont basés sur des sources radioactives pour produire les ions. D'autres méthodes, basées sur la photo-ionisation et sur les plasmas, ont également été développées (§I.1.4).

I.1.3. Charge d'aérosol

Les aérosols sont naturellement chargés soit en raison de leur mode de production soit par des mécanismes d'acquisition de charge après production. Tout d'abord, les différents mécanismes à l'origine de la charge d'aérosol sont présentés. Ensuite, la charge par collection d'ions gazeux, utilisée dans les chargeurs, est présentée.

I.1.3.1. Mécanismes de charge

I.1.3.1.a. Mécanisme de charge lors de la production de particule

La distribution de charge d'un aérosol lors de sa production dépend de la méthode de production.

Dans le cas de pulvérisation de liquide, Natanson interprètent la présence des charges d'aérosol comme une conséquence des fluctuations des densités d'ions dans l'électrolyte (Bricard, 1977). Lorsque l'aérosol est produit par spray, il apparaît une charge à cause d'effet de séparation dipolaire dans les gouttes (Forsyth, et al., 1998).

D'autre part, des charges peuvent également apparaître par des phénomènes de friction (tribo-charging) entre les aérosols et la paroi lors de leur pulvérisation (Forsyth, et al., 1998).

I.1.3.1.b. Charge par ionisation des particules d'aérosol

Les processus de charge par ionisation des particules d'aérosol sont :

La thermo-ionisation qui consiste à arracher thermiquement une charge à la particule. Cela exige des températures de l'ordre de l'énergie de liaison soit 10^4 K. Par effet tunnel, cette valeur peut descendre jusqu'à 1000°C (Schiel, et al., 2002), ce processus est appelé thermo-émission. Dans notre cas, ce mécanisme n'est pas envisageable pour contrôler l'état de charge de l'aérosol car la température peut affecter la granulométrie à mesurer. Par ailleurs, la température en post-DBD ne dépasse pas 200°C , ce processus est donc négligeable.

La photo-ionisation consiste à arracher une charge en apportant de l'énergie avec des photons UV et des rayons X. Dans notre cas, la distance des aérosols par rapport à la décharge qui produit ces rayonnements (directement par accélération électronique et indirectement par désexcitation des produits de décharge) et les dimensions restreintes de la fenêtre de passage de rayonnement entre la décharge et le chargeur d'aérosol limitent l'effet de ce processus.

Les réactions chimiques avec les molécules neutres très réactives dites « métastables » produites par la décharge qui ont pour la plupart des temps de vie inférieurs à la milliseconde dans l'azote (Massines, et al., 2009).

I.1.3.1.c. Mécanismes de charge par collection d'ions gazeux

Il existe deux mécanismes de charge par collection d'ions gazeux : la charge par diffusion et la charge par champ.

Les paramètres qui contrôlent la charge unipolaire au premier ordre sont : le produit $n_{ions} \cdot \tau$ avec n_{ions} la densité d'ions autour de la particule et τ le temps de séjour dans la zone de densité n_{ions} , le champ électrique appliqué $\vec{E}$ (uniquement pour la charge par champ), la taille de particule d_p ,

Le premier mécanisme de capture d'ions est la charge par diffusion. Sous l'effet de l'agitation thermique des ions, certains ions entrent en collision avec une particule. Celle-ci acquiert donc les charges des ions qui l'ont percutée.

Le second mécanisme est la charge par champ. Des lignes de champ se terminent sur les particules qui subissent donc le bombardement des ions qui suivent ces lignes de champ. L'augmentation du nombre de charges sur la particule conduit à un champ électrostatique qui repousse les ions et diminue la vitesse de charge, jusqu'à un état de charge maximum dans ces conditions, appelé saturation. Ce processus n'est actif que sur des particules de taille supérieure à une centaine de nanomètres et pour des champs supérieurs à 10^5 V.m^{-1} . Il est alors dominant par rapport à la charge par diffusion.

I.1.3.2. *Charge bipolaire par diffusion*

I.1.3.2.a. Lois théoriques

Dans le cas de la neutralisation, le mécanisme dominant est la charge par diffusion d'ions bipolaires. Les deux lois les plus répandues pour décrire ce mécanisme sont ceux de Boltzmann (ou de Gunn avec prise en compte d'une charge moyenne non nulle) et de Fuchs. Enfin, l'approximation de Wiedensohler (basée sur la loi de Fuchs pour modes de charge entre -2 et +2 et le modèle de Boltzmann pour les autres modes de charge) est présentée.

Le modèle de Boltzmann

Le principe d'équipartition de l'énergie de Boltzmann (rapport de l'énergie électrostatique de la particule sur l'énergie d'agitation thermique des ions) permet de déterminer, à l'équilibre, la fraction de particules portant q charges électriques (Gensdarmes, 2000) (Adachi, et al., 1993) :

$$\frac{n_q}{n_{total}} = \frac{\exp\left(\frac{-q^2 e^2}{4\pi\epsilon_0 d_p k_B T}\right)}{\sum_{p=-\infty}^{+\infty} \exp\left(\frac{-q^2 e^2}{4\pi\epsilon_0 d_p k_B T}\right)}$$

Avec q le nombre de charge ; e la charge élémentaire ($e = 1,6 \cdot 10^{-19} \text{C}$) ; d_p le diamètre de la particule (m) ; k_B la constante de Boltzmann ($k_B = 1,3806 \cdot 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$) ; T la température (K) ; ϵ_0 la permittivité électrique du vide ($8,8542 \cdot 10^{-12} \text{ F.m}^{-1}$) ; n_q concentration de particule de charge q (m^{-3}) ; n_{total} concentration totale de particules (m^{-3}).

Gunn étend l'applicabilité de cette loi au cas des distributions de charge dont la charge moyenne $\langle q \rangle$ est non nulle (Gunn, 1955):

$$f_q = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \cdot \exp\left(-\frac{[q - \langle q \rangle]^2}{2\sigma^2}\right) \quad //2$$

avec $\langle q \rangle = \sigma^2 \cdot \ln\left(\frac{n_{ions}^+ \cdot Z_{ions}^+}{n_{ions}^- \cdot Z_{ions}^-}\right)$ et $\sigma^2 = \frac{2\pi\epsilon_0 \cdot d_p \cdot k_B \cdot T}{e^2}$. σ correspond alors à l'écart type de la distribution de charge.

De nombreuses études expérimentales ont été menées sur la charge par diffusion. Liu et Pui (Liu & Pui, 1974) trouvent des résultats en accord avec la loi de Boltzmann pour des particules de diamètre entre 0,02 et 1,17 μm . Les résultats de (Pollak & Metnieks, 1962) montrent que la formule de Boltzmann sous-estime le nombre de particules chargées pour des particules de diamètre inférieur à 30 nm. Des études plus récentes pour des diamètres entre 4 et 30 nm montrent que la théorie la plus proche des mesures est celle de Fuchs (Fuchs, 1963) avec la prise en compte des différences de propriétés entre les ions positifs et négatifs.

Le modèle de Fuchs

Ce modèle se base sur l'hypothèse de l'état stationnaire du flux d'ions à travers une sphère calculée par un système d'équations de type mobilité-diffusion. Ce modèle ne possède pas de forme analytique et nécessite donc une résolution numérique d'équations différentielles couplées pour déterminer les fractions de particules d'une charge donnée. Les équations et hypothèses du calcul sont données en Annexe 2

L'approximation de Wiedensholer (Wiedensohler, 1988) :

Le modèle de Gunn n'étant applicable que pour des diamètres supérieurs à 50 nm, Wiedensohler utilise une approximation du modèle de Fuchs pour construire une forme analytique de la distribution de charge en sortie de source radioactive sous la forme :

- si $|q| \geq 3$: modèle de Gunn (Gunn, 1955) : gaussienne décalée de 0 (cf. équation II-2)
- $|q| < 3$: Wiedensohler propose une approximation dont les coefficients sont calculés par comparaison avec la théorie de Fuchs pour une même densité d'ions positif et négatif et un rapport $\frac{z_{ions}^+}{z_{ions}^-} = 0,875$ (Wiedensohler, et al., 1986)

$$f_q = \frac{n_q}{n} = 10^{[\sum_{i=0}^5 a_i(q) \cdot (\log(d_p \text{ (en nm)}))^i]}$$

Tableau II-1 : valeur des coefficients de l'approximation de Wiedensohler pour une source radioactive dans l'air (Wiedensohler, 1988)

	q				
$a_i(q)$	-2	-1	0	1	2
a_0	-26,3328	-2,3197	-0,0003	-2,3484	-44,4756
a_1	35,9044	0,6175	-0,1014	0,6044	79,3772
a_2	-21,4608	0,6201	0,3073	0,4800	-62,8900
a_3	7,0867	-0,1105	-0,3372	0,0013	26,4492
a_4	-1,3088	-0,1260	0,1023	-0,1544	-5,7480
a_5	0,1051	0,0297	-0,0105	0,0320	0,5059

I.1.3.2.b. Condition de l'état stationnaire

Bien que la charge de chaque particule évolue, en moyenne, dans un nuage d'ions avec des concentrations d'ions constant, la fraction de particule d'un nombre de charges données évolue jusqu'à une valeur constante. Lorsque toutes les fractions chargées n'évoluent plus, la distribution de charge atteinte est constante : on parle d'état stationnaire. Dans ces conditions, pour une distribution de taille donnée de l'aérosol, les distributions de charges pour chaque taille de particule, en sortie du neutraliseur, sont indépendantes de la concentration ou de l'état de charge initial de l'aérosol.

Le paramètre critique pour l'obtention de l'état stationnaire donné dans la littérature est le produit $n_{ions} \cdot \tau$ avec n_{ions} la densité d'ions et τ le temps de séjour de la particule dans cette densité. Une valeur usuelle est un produit $n_{ions} \cdot \tau \geq 6 \cdot 10^{12} \text{ s} \cdot \text{m}^{-3}$ (Liu & Pui, 1974). La norme ISO (BS ISO 15200:2009(E), 2009) impose un produit $n_{ions} \cdot \tau$ de $10^{13} \text{ s} \cdot \text{m}^{-3}$.

Une approche plus complète, prenant en compte la concentration et la taille des particules, a récemment été développée par de La Verpillière (de La Verpillière, et al., 2015) à l'aide de deux paramètres adimensionnels (l'un spécifique à la densité d'ions et l'autre au temps de résidence de l'aérosol). Chacun de ces paramètres doit remplir une condition pour assurer l'état d'équilibre des distributions de charge en sortie de neutraliseur. Toutefois, cette approche nécessite une approche tri-dimensionnelle du neutraliseur si la répartition spatiale

des ions n'est pas homogène, comme dans le cas des sources radioactives ou des DBD-neutraliseurs.

I.1.3.2.c. Caractérisation des distributions de charge

Afin de valider les modèles de charge, ceux-ci ont été comparés avec différents neutraliseurs. D'autre part, ces neutraliseurs ont également été comparés entre eux.

Pour étudier la charge d'un aérosol, les modes de représentation utilisés sont :

- Sous forme de graphique :

- la fraction non-chargée ou fraction chargée ((Vivas, et al., 2008) ; (Lee, et al., 2005) ; (Han, et al., 2009); (Yun, et al., 2009); (Kwon, et al., 2005); (Kwon, et al., 2006)) ; (Alonso, et al., 1997)
- la fraction chargée de q charges en fonction de d_p (Adachi, et al., 1993)
- Les distributions de mobilité [(Vivas, et al., 2008); (Lee, et al., 2005); (Yun, et al., 2009)]
 - $n_p = f(V_{ADME})$
 - $n_p = f(d_p)$
 - $n_p = f(Z_p)$
- Les distributions de charge (fraction de particule possédant p charges) [((Vivas, et al., 2008); (Han, et al., 2009); (Adachi, et al., 1993); (Romay, et al., 1994); (Kwon, et al., 2005)]
- Dans le cas des comparaisons entre neutraliseur, la granulométrie d'un même aérosol neutralisé avec des chargeurs différents.

- Sous forme de tableau :

- fraction possédant q charges pour différents d_p [(Hinds, 1982) (Wiedensohler, 1988)].

Deux types de présentation ressortent : la présentation des concentrations mesurées (granulométrie ou distribution de mobilité) et la présentation des fractions chargées qui permet de s'affranchir des effets de concentration entre différentes expériences.

La fraction de particules chargées q fois est calculée, pour un diamètre donné, par le rapport entre la concentration de particules chargées q fois, sur la concentration totale de particule de cette taille. Il existe différentes méthodes pour déterminer ces deux concentrations. Généralement, les auteurs utilisent le mode principale d'une distribution de mobilité avec un

état de charge de l'aérosol connu : soit avec des particules monochargées comme ci-dessous, soit grâce à un neutraliseur déjà étalonné.

Par exemple, dans (Romy, et al., 1994), l'aérosol monodispersé test est monochargé à l'entrée du neutraliseur. Sans neutraliseur, la hauteur du mode de mobilité (ou concentration modale) représente la concentration de référence de l'aérosol considéré (n_{ref} c'est-à-dire 100 % de l'aérosol considéré).

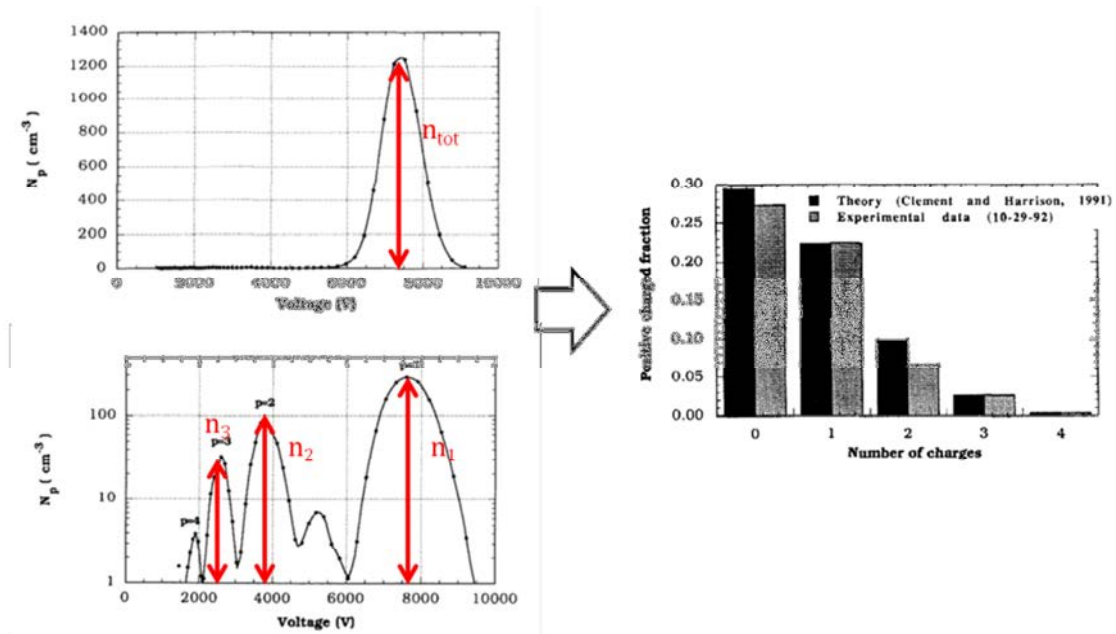


Figure II-9 : méthode de détermination des distributions de charge

Les distributions de charges théoriques sont alors présentées sous la forme de fractions de particules de charge donnée. Selon les conditions de travail, les auteurs se comparent à l'une des trois lois présentées ci-dessus.

I.1.4. Neutraliseur: état de l'art

Il existe quatre mécanismes d'ionisation d'un gaz, décrits au paragraphe I.2.1. Les trois principales méthodes d'ionisation utilisées dans les neutraliseurs sont: l'ionisation par source radioactive [(Taylor, 1911); (Bumstead, 1916); (Millikan, et al., 1920); (Polk, 1934)...]; la photo-ionisation (Varney & Loeb, 1935) et les plasmas (Whitby & Peterson, 1965) (Bourgeois, et al., 2009).

I.1.4.1. *Neutraliseur radioactif*

Le neutraliseur le plus couramment utilisé aujourd'hui dans les systèmes de mesure est le neutraliseur radioactif [(Cooper & Reist, 1973) ; (Covert, et al., 1997) ; (Ji, et al., 2004) ; (Vivas, et al., 2008)]. Pour ce neutraliseur, l'aérosol traverse un espace irradié par un élément radioactif, usuellement ^{241}Am , ^{85}Kr , ^{210}Po . Les radiations α et β de forte énergie vont produire des ions positifs et négatifs. La densité d'ions créés dépend de l'élément radioactif (qui définit l'énergie du rayonnement), de l'activité de la source (nombre de désintégrations par seconde en Becquerel noté Bq) et de la géométrie du neutraliseur ainsi que du débit d'aérosol (qui définissent le temps de transit du gaz dans le neutraliseur) (Cooper & Reist, 1973).

- Densité d'ions: selon l'élément radioactif, les densités produites peuvent varier de 10^{12} m^{-3} [(Vivas, et al., 2008) pour une source ^{241}Am (période radioactive de 432 ans) de faible activité de l'ordre de 10 MBq], à près de $5,3 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-3}$ [(Modesto-Lopez, et al., 2011) avec le neutraliseur ^{210}Po (période radioactive de 138 jours) de 185 MBq, modèle de TSI 348002]. Dans cette étude, le neutraliseur de référence sera le neutraliseur TSI 3077 utilisant du ^{85}Kr (période radioactive de 10 ans) possédant une activité de 74 MBq (TSI, s.d.) et dont les densités d'ions sont de l'ordre de 10^{13} m^{-3} pour un débit de $0,3 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ (Modesto-Lopez, et al., 2011).
- Charge et concentration des aérosols pouvant être neutralisés: l'aérosol est neutralisé si sa distribution de charge atteint l'état stationnaire en sortie de neutraliseur (cf. §I.1.3.2). En particulier, le modèle TSI 3077 pour un débit d'aérosol de $0,3 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ permet de neutraliser les aérosols de concentration de 10^{12} m^{-3} initialement chargés 10 fois pour des diamètre de 40 à 250 nm (Ji, et al., 2004).

Le principal problème de ces neutraliseurs est lié aux contraintes législatives qui restreignent leur utilisation et à leur période radioactive.

I.1.4.2. *Neutraliseur par photo-ionisation du gaz*

Le neutraliseur basé sur ce principe utilise des rayons X pour générer des ions (Lee, et al., 2005). L'énergie des photons est inférieure à 9,5 keV.

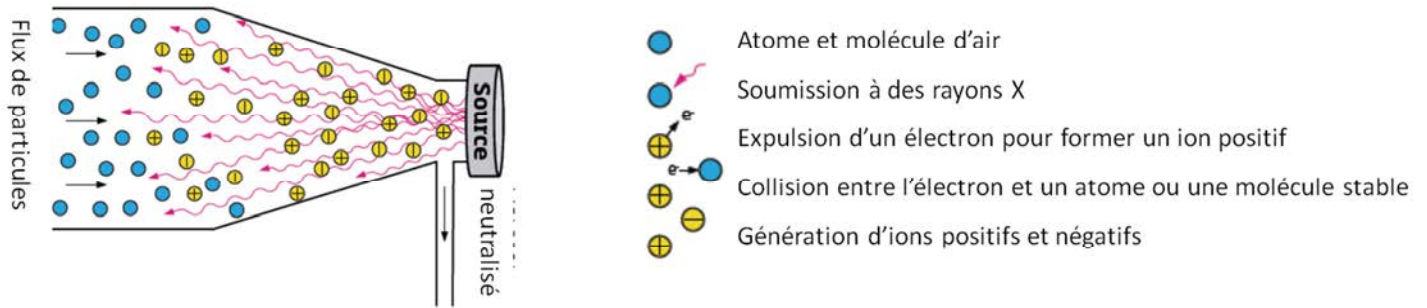


Figure II-10 : schéma de principe du neutraliseur TSI 3087

- Densités d'ions produites par neutraliseur à rayon X : la densité d'ion dépend de l'énergie injectée dans le générateur (Han, et al., 2003). Le premier test en tant que neutraliseur est celui de Lee (Lee, et al., 2005) qui mesure des densités de l'ordre de 10^{12} m^{-3} . La densité d'ion maximale estimée est de l'ordre de $3 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-3}$ (Han, et al., 2003). Enfin Modesto-Lopez (Modesto-Lopez, et al., 2011) mesure des densités de l'ordre de 10^{14} m^{-3} .
- Charge et concentration des aérosols pouvant être neutralisés par ce système

Dans les premiers tests, pour des particules de 1 à 100 nm, la concentration d'aérosol maximale est de l'ordre de $5 \cdot 10^{11} \text{ m}^{-3}$ (Lee, et al., 2005). Le modèle de neutraliseur TSI 3087 permet de neutraliser des concentrations d'aérosol jusqu'à 10^{13} m^{-3} .

Ce type de neutraliseur permet de remplacer les neutraliseurs radioactifs car ils présentent peu de risque sanitaire. De plus, ils ne produisent que très peu de particules ($< 0,01 \text{ cm}^{-3}$) (TSI, 2012). Cependant, ils ne fonctionnent que dans l'air ou l'azote et possèdent des durées de seulement quelques milliers d'heures de fonctionnement (lié à la durée de vie de la source de rayon X).

I.1.4.3. *Neutraliseurs plasmas*

Les décharges à pression atmosphérique ont très largement été utilisées pour modifier la charge d'aérosol [(Whitby & Peterson, 1965) ; (Adachi, et al., 1993) ; (Romy, et al., 1994) (Kwon, et al., 2005) ; (Stommel & Riebel, 2004),...]

Il existe trois familles de décharges pour la neutralisation d'aérosol : La double décharge couronne DC (Adachi, et al., 1993) ; la décharge couronne AC (Kimoto, et al., 2009) (MSP corporation, s.d.) ; la décharge à barrières diélectriques (Kwon, et al., 2005).

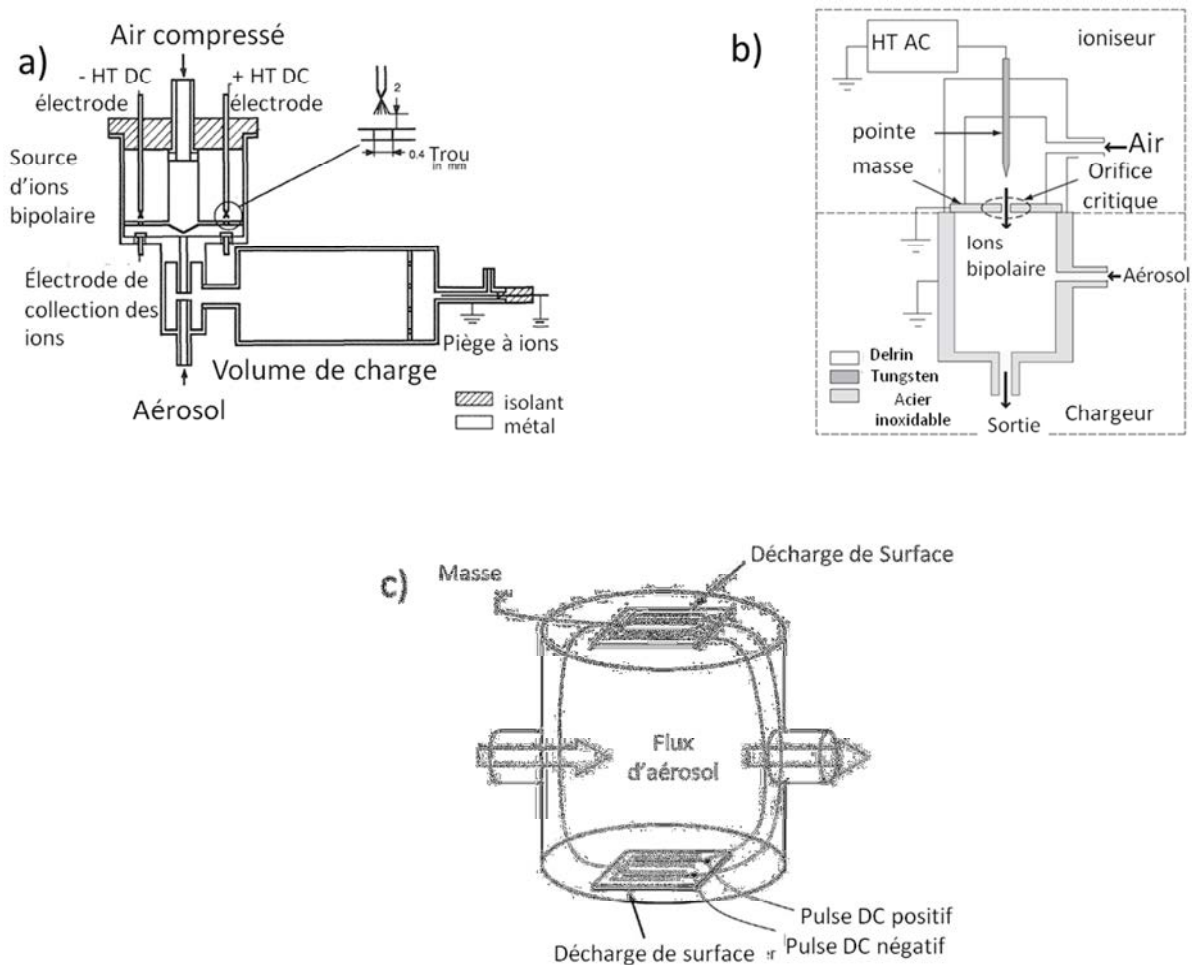


Figure II-11 : neutraliseur Plasma : a) double corona DC, b) corona AC, c) DBD surfacique pulsé

- Densité d'ions produits par neutraliseur à plasma

Les densités d'ions produits dans la plupart des systèmes à plasma sont de l'ordre de 10^{12} m^{-3} dans la zone de mélange avec les aérosols. Les valeurs typiques sont : 10^{12} m^{-3} pour un neutraliseur par double chargeur DC à fibre de carbone (Han, et al., 2009) ; $4 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-3}$ pour un neutraliseur par DBD surfacique (Kwon, et al., 2005). Des études effectuées avec des plasmas dans l'air pour des pressions supérieures à la pression atmosphérique donne des densités plus élevées : 10^{14} pour une double décharge couronne DC entre 1,3 et 2 bar (Adachi, et al., 1993) ; 10^{14} à 10^{15} m^{-3} pour une double décharge DC à 2,067 bar (Romy, et al., 1994) ; 2 à $3 \cdot 10^{15} \text{ m}^{-3}$ pour une décharge couronne AC entre 2 et 4 bar (Kimoto, et al., 2009).

- Charge et concentration des aérosols pouvant être neutralisés par ce système

Les chargeurs bipolaires à plasma permettent de neutraliser des aérosols faiblement chargés jusqu'à des concentrations de l'ordre 10^{11} m^{-3} .

Tableau II-2 : bilan des neutraliseurs par plasma

Neutraliseur	type de production	d_{part} (nm)	charge initiale	n_{part} (en m^{-3})	effluent
SMAC (Kwon, et al., 2006) (Kwon, et al., 2005)	DBD surfacique	10 à 200	0	$< 10^{10}$	O_3 (< 0,1 ppm) particules : ($d_p < 20 \text{ nm}$)
DBD (Byeon, et al., 2008)	DBD	118 à 241	/////	/////	/////
décharge couronne AC (Stommel & Riebel, 2004)	décharge couronne AC	30 à 670	0	$< 4 \cdot 10^{12}$	O_3 (0 à 1,2 ppm)
EI Mod. 1090 MSP corp. USA (Kallinger, et al., 2012)	décharge couronne AC	30 à 170	faible	/////	/////
ioniseur à fibre de carbone (Han, et al., 2009)	double micro décharge couronne DC	20 à 120	forte charge initial	jusqu'à $8 \cdot 10^{11}$	Ozone : ($< 0,05 \text{ ppm}$)
décharge couronne (Adachi, et al., 1993)	double décharge couronne DC	300 à 1000	350	/////	particule : $< 0,1 \text{ cm}^{-3}$ pour des tailles $> 0,01 \text{ nm}$

- Effluents de décharge.

Les décharges électriques dans l'air présentent une limite critique: la production d'effluents gazeux et particulaires qui peuvent affecter les caractéristiques physiques de la décharge (cf. I.2.5), modifier les propriétés des aérosols (nature, taille ...), endommager les appareils de mesure et nuire à la santé des utilisateurs. À faible température dans l'air, le principal produit de décharge est l'ozone. Certains systèmes sont spécifiquement conçus pour minimiser la concentration d'ozone : Le SMAC (Kwon, et al., 2006) qui produit moins de 0,1 ppm ; le double chargeur DC à fibre de carbone (Han, et al., 2009) qui produit moins de 0,05 ppm ; la décharge couronne AC avec une électrode isolée par un condensateur (Stommel & Riebel, 2004) qui produit entre 0 et 1,2 ppm.

I.1.4.4. Bilan

Les neutraliseurs produisent des densités d'ions supérieures à 10^{12} m^{-3} . Cette densité permet de neutraliser des aérosols faiblement chargés (moins de 5 charges en moyenne) de concentration maximale de l'ordre de 10^{11} m^{-3} .

Pour remplacer les neutraliseurs radioactifs, la technologie des rayons X représente à ce jour la meilleure option. Les principales limites de cette technologie sont la complexité des sources de rayon X, les coûts, la faible durée de vie et la nature du gaz (air ou azote).

Les neutraliseurs à plasma présentent un bon potentiel pour produire des densités importantes d'ions (supérieures à 10^{13} m^{-3}) avec un ratio de densités entre ions positifs et négatifs contrôlable. Cependant, plusieurs problèmes se posent : production d'éléments chimiques corrosifs, production de nanoparticules qui perturbent la granulométrie des aérosols, et le fait que le passage de l'aérosol dans le réacteur perturbe la décharge, donc la source d'ions et la neutralisation.

Un neutraliseur idéal permet d'atteindre : une densité d'ions supérieure à 10^{12} m^{-3} (de préférence des densités de l'ordre de 10^{13} à 10^{14} m^{-3}), de contrôler les densités relatives d'ions positifs et négatifs. Si la source d'ions est une décharge, il est préférable de mélanger l'aérosol en post-décharge, enfin, il faut déterminer les conditions de fonctionnement qui minimisent la concentration des autres effluents de la décharge.

I.2. Plasma et décharge à barrières diélectriques dans l'air à PA

L'objectif de ce paragraphe est de donner les propriétés physiques des décharges critiques pour la charge d'aérosol. La première sous-partie traite de la production des ions atmosphériques. La seconde sous-partie consiste à définir les plasmas et à donner leurs caractéristiques principales. La troisième sous-partie permet de présenter les caractéristiques générales des DBD ainsi que certaines applications. Les deux dernières sous-parties présentent les caractéristiques spécifiques des DBD dans l'air à pression atmosphérique.

I.2.1. Ionisation et attachement

Pour ioniser un atome ou une molécule, il faut que l'un de ses électrons acquière suffisamment d'énergie pour quitter son orbite. Pour conférer cette énergie à l'électron, il faut le faire interagir avec un élément dont l'énergie est supérieure à celle de l'électron (durant cette thèse, le mot élément est utilisé pour parler des électrons, ions, photon, molécule, atome, ...; car le mot particule est utilisé pour parler des composants d'un aérosol dont la taille varie de 1 nm à quelques microns cf. § I.1.1). L'interaction entre l'atome ou la

molécule et les autres éléments qui l'entourent est appelée collision (Mitchner & Kruger, 1973).

- La collision est élastique lorsque les énergies internes des éléments avant et après collision n'ont pas été modifiées. Il ne s'agit alors que d'un transfert d'énergie cinétique. Ces collisions sont également à l'origine de la viscosité des fluides.

La collision est inélastique lorsque la nature des éléments avant et après collision a été modifiée. Ces collisions permettent de produire des atomes et des molécules excités ou ionisés. Ces éléments peuvent se désexciter en produisant un photon ou en collisionnant un autre élément auquel ils transmettent une partie de leur énergie. Lorsque l'énergie transférée lors d'une collision inélastique est supérieure au seuil d'énergie d'ionisation, un électron peut être libéré. L'énergie caractéristique d'ionisation est de l'ordre de la dizaine d'électrons-Volt (eV). Différents mécanismes liés aux collisions inélastiques dans le gaz sont résumés sur le Tableau II-3

Tableau II-3: types de collision inélastique impliquant les ions

$A + e \rightarrow A^+ + e^- + e^-$	Collision électronique
$A + \gamma \rightarrow A^+ + e^-$	Photo-ionisation
$A^* + B \rightarrow A + B^+ + e^-$	Effet Penning
$A^* + B \rightarrow C^+ + e^-$	Désexcitation ionisante
$A + B \rightarrow C^+ + e^- (T > 10^5 \text{ K})$	Thermo-ionisation
$A + e^- \rightarrow A^-$	Attachement électronique
$A^+ + B^- \rightarrow A + B$	Recombinaison

- un électron est accéléré dans un champ électrique jusqu'à atteindre une énergie supérieure à l'énergie d'ionisation de la molécule ou de l'atome (typiquement 15,58 eV pour N₂ et 24,2 eV pour O₂ sachant que les énergies de dissociation de N₂ et O₂ sont inférieures aux énergies d'ionisation – respectivement 9,5 et 5,1 eV. les énergies d'ionisation atomique sont de 14,5 pour N et de 13,6 eV pour O (Fauchais, 2000)),

- un photon qui possède une énergie supérieur à l'énergie d'ionisation du gaz appelé photo-ionisation. La photo-ionisation se produit lorsque l'énergie portée par le photon est supérieure à l'énergie d'ionisation. L'énergie d'un photon est inversement proportionnelle à la longueur d'onde. Une énergie supérieure à la dizaine d'eV correspond à des longueurs d'onde inférieur quelques centaines de nm. Cette valeur est dans la gamme des ultra-violets

(UV). Autrement dit, la photo-ionisation peut être réalisée par des UV, des rayons X, ou du rayonnement γ .

- un atome (ou molécule) neutre excité A^* et une particule cible dans l'état fondamental B telle que l'énergie d'excitation de A soit supérieure à l'énergie d'ionisation de B : effet Penning.

- un atome ou molécule dans l'état fondamental $\Rightarrow$ l'énergie cinétique des éléments du gaz est supérieure à la dizaine d'eV, il s'agit de thermo-ionisation,

- Si un électron n'a pas beaucoup d'énergie (en champ électrique faible) $\Rightarrow$ un atome ou une molécule peut le capturer, ce processus est appelé attachement électronique. Ce processus produit des ions négatifs.

- La thermo-ionisation : lorsqu'un gaz est chauffé à une température T_{gaz} , les électrons libres qui existent toujours, dus aux rayons cosmiques par exemple, ont une distribution de vitesses de type Maxwell-Boltzmann comme les molécules du gaz. Cette distribution a une traîne vers les hautes vitesses. Plus T_{gaz} est élevée, plus le nombre d'électrons très énergétiques croît et plus l'ionisation par bombardement croît. Le processus de thermo-ionisation devient efficace à partir de températures de l'ordre de 10^4 K. À des températures encore plus élevées, les chocs entre les molécules peuvent conduire à l'ionisation des molécules. Ce processus n'est donc pas adapté à la charge des aérosols car à ces températures, l'aérosol est dégradé.

- Attachement électronique : lorsqu'un électron peu énergétique rencontre un atome ou une molécule, il peut être capturé et produire un ion négatif.

- Recombinaison : un ou plusieurs éléments neutres sont produits lors de la collision entre une charge positive (ions) et négative (ions ou électron).

Lorsque les électrons acquièrent leur énergie suite à une accélération dans un champ électrique, cela provoque des collisions ionisantes en chaîne (avalanche électronique) qui ionise le gaz sur son parcours. Lorsque l'énergie de l'avalanche est suffisante pour produire plus d'électrons par ionisation que d'ions négatifs ou d'élément neutre par attachement et recombinaison, la décharge est dite auto-entretenu. Le champ électrique correspondant est appelé champ seuil de décharge (cf. §1.2.2.2). L'avalanche produit alors un plasma (cf. §1.2.2).

I.2.2. Généralités sur les plasmas

I.2.2.1. Définition d'un plasma

Un plasma est un gaz ionisé de charge globalement neutre (on parle de quasi neutralité). Les plasmas représentent la grande majorité de la matière visible dans l'univers et sont utilisés dans de nombreux domaines industriels (électronique et micro-électronique, traitement de surface, propulsion spatiale, fusion nucléaire ...). Pour produire un plasma, il faut apporter aux atomes et molécules une quantité d'énergie suffisante (~ 10 eV) pour arracher des électrons aux molécules ou aux atomes. En laboratoire, des ondes électromagnétiques fournissent aux électrons une énergie moyenne de quelques eV. Même si l'énergie moyenne des électrons est inférieure au seuil d'ionisation, les électrons possèdent une distribution de vitesses de type Maxwell-Boltzmann avec une traîne vers les hautes vitesses, certains électrons plus énergétiques sont capables d'ioniser le gaz.

Parmi les paramètres critiques dans les plasmas voici ceux qui permettent de définir les caractéristiques d'un plasma :

- La température (T_e la température électronique, T_{ions} la température ionique, T_0 la température des neutres) traduit l'énergie cinétique moyenne de l'élément considéré.
- La longueur de Debye (λ_{De}) traduit la distance caractéristique d'écrantage d'un champ électrique. Le plasma est défini par le fait que la densité d'espèces chargées dans une sphère de Debye est suffisante pour considérer la charge moyenne nulle. Cela se traduit par le critère :

$$n_{charge} * \lambda_{De}^3 \gg 1$$

Il existe deux grands types de plasma : les plasmas chauds et les plasmas froids.

- Le plasma est dit chaud lorsque les électrons et les ions sont à l'équilibre thermodynamique c'est-à-dire lorsque $T_e = T_{ions}$. Ces plasmas sont dit chauds car $T_0 \sim T_{ions} > 10\,000$ K. Il existe de nombreux exemples de ces plasmas tel que la foudre, le soleil, les plasmas d'arc...
- Le plasma est dit froid lorsque la température des ions est très faible par rapport à celle des électrons (par exemple dans un tube d'éclairage $T_i = T_0 \sim 300$ K et $T_e \sim 10\,000$ K soit 1eV).

Les plasmas peuvent être faiblement ou fortement ionisés.

- un plasma est dit faiblement ionisé lorsque les interactions dominantes sont les interactions électron-neutre et ions-neutres,
- un plasma est dit fortement ionisé lorsque les interactions électrons-ions, électrons-électrons et ions-ions dominant.

Les plasmas sont généralement classés par rapport à 2 paramètres : la densité électronique (n_e) et la température ou énergie électronique (T_e ou $k_B.T_e$).

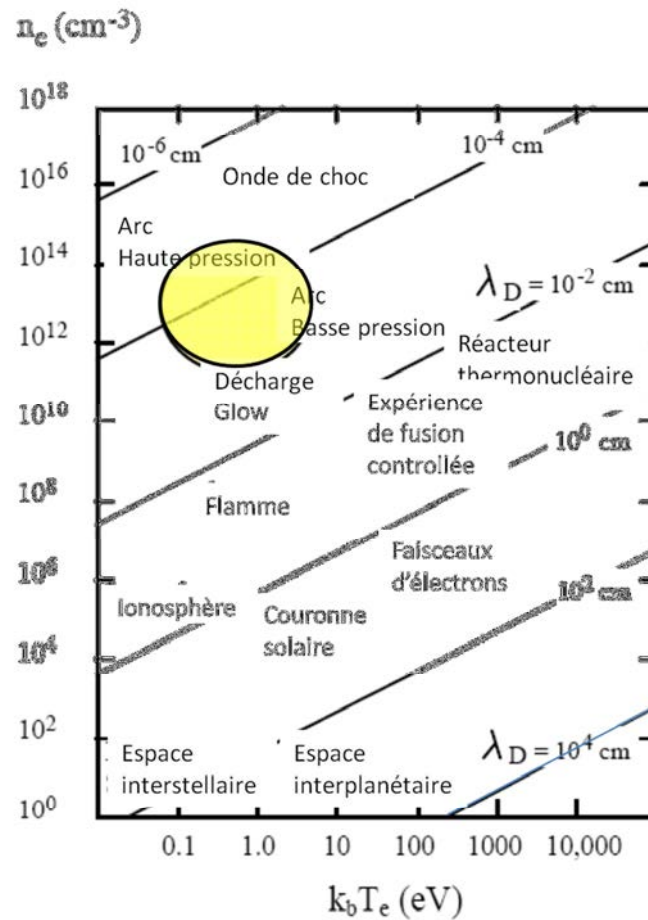


Figure II-12 : plasmas selon la densité électronique n_e , l'énergie $k_B.T_e$ et la longueur de Debye λ_{De}

Les gammes de densité du gaz peuvent varier de moins de quelque m^{-3} (milieu intergalactique) jusqu'à plus de 10^{31} m^{-3} (cœur du soleil), nous travaillerons à 10^{25} m^{-3} (pression atmosphérique à 300K).

1.2.2.2. *Champ électrique et condition d'auto-entretien*

La dynamique des espèces chargées dans un gaz est contrôlée par les champs électromagnétiques. Si seul un champ électrique est appliqué, dans la limite non relativiste, les forces produites par le champ magnétique induit est négligeable. De plus, lorsque la

fréquence de collision des ions devient grande devant la fréquence cyclotronique ($f_B = \frac{qB}{m}$), les effets du champ magnétique peuvent être négligés. Or, à pression atmosphérique, la fréquence de collision ($\sim 10^9$ Hz pour les ions cf. Tableau II-5) est supérieure à la fréquence cyclotronique ($\sim 10^8$ Hz pour les ions soumis à un champ magnétique de 1T), c'est-à-dire que les effets magnétiques sont négligeables même à champ fort (>1 T ; remarque : champ magnétique terrestre ≈ 50 μ T en France).

La condition d'auto-entretien est définie comme la condition pour laquelle la production d'électrons secondaires est supérieure aux pertes d'électrons.

Cette condition d'auto-entretien dépend du mécanisme qui permet de générer des électrons secondaires à partir de l'avalanche électronique.

- L'avalanche auto-entretenu de Townsend correspond à la production d'électrons secondaire par la collision des ions sur les électrodes
- L'avalanche de type semblable au streamer ou décharge filamentaire correspond à la production des électrons secondaires par photo-ionisation dans le volume du gaz

Des champs électriques caractéristiques peuvent être définis.

- Le champ seuil d'ionisation (E_{si}) est le champ électrique qui permet à un électron d'acquérir une énergie suffisante pour ioniser un gaz sur un libre parcours moyen. il est de l'ordre de $2,5 \cdot 10^6$ V.m⁻¹ pour l'air à pression atmosphérique. C'est le champ minimum pour former une avalanche.
- Le champ seuil de décharge (E_{sd}) est le champ électrique qui permet de produire un plasma de type décharge électrique. La valeur de ce champ dépend des conditions de fonctionnement et du processus qui contrôlent l'auto-entretien de la décharge. Les champs correspondants sont définis par :
 - Le champ de Paschen (E_{pa}) : Champ seuil de décharge qui permet d'obtenir un processus d'auto-entretien de type Townsend. Ce champ dépend en particulier des propriétés des surfaces en contact avec le plasma, du champ réduit (E/n_{gaz} avec n_{gaz} la densité du gaz), du produit de la distance inter-électrodes par la pression du gaz.
 - Le champ de développement de streamer, ou décharge filamentaire (E_{df}) : Champ seuil de décharge qui traduit le fait que l'avalanche atteint le critère de Meek sur la taille de l'avalanche électronique ($\alpha \cdot d_a \approx 20$, avec α le coefficient d'ionisation et d_a la longueur de l'avalanche) (Guerra-Garcia & Martinez-Sanchez, 2013).

- Le champ de claquage (E_c) : Champ électrique seuil de décharge qui traduit la création d'un plasma thermique. On utilise aussi le terme de champ disruptif.

Le champ électrique que subissent les éléments chargés dans un système est composé de trois types de champ électrique : Le champ de Laplace, le champ de charge d'espace et le champ de polarisation.

- Le champ de Laplace (E_L) est le champ produit dans le gaz par la présence d'électrodes soumises à une tension. Ce champ dépend de la tension appliquée, de la géométrie des électrodes, de la position de l'électrode par rapport au gaz (en particulier, la présence de diélectrique peut modifier l'intensité du champ électrique dans le gaz),
- Le champ de charge d'espace (E_ρ) est le champ produit par la présence d'une densité de charge en volume dans le gaz,
- Le champ de polarisation (E_σ) est dû à la présence de charge sur les surfaces autour du volume considéré.

À pression atmosphérique dans l'air, les champs seuils de décharge de Paschen, de claquage et de décharge filamentaire sont proches ($\sim 3.10^6 \text{ V.m}^{-1}$). Pour éviter la production d'arc électrique qui endommage les électrodes et produit des aérosols, il existe trois méthodes :

- confiner le champ fort dans l'espace (en utilisant des électrodes à faible rayon de courbure, c'est le principe utilisé pour produire les décharges dites « couronne »),
- limiter la durée de champ fort pour éviter la thermalisation et le passage à l'arc (en utilisant une alimentation haute tension pulsée avec une durée d'impulsion de tension inférieure à $1 \mu\text{s}$),
- limiter le courant de décharge : soit par un circuit électrique positionné entre l'alimentation et l'électrode polarisée, soit en insérant un matériau diélectrique entre les électrodes, qui une fois la décharge déclenchée se polarise, réduit le champ électrique et bloque donc le développement de la décharge (c'est le principe des Décharges à Barrières Diélectriques -DBD-).

I.2.3. DBD généralités

Une décharge à barrières diélectriques est un plasma produit entre deux électrodes séparées par un matériau diélectrique. L'ajout d'un diélectrique entre les électrodes métalliques permet d'augmenter le champ électrique sans passage à l'arc (Manley, 1943). L'intérêt principal des DBD est leur simplicité de mise en œuvre pour une grande gamme de condition de fonctionnement. (Kogelschatz, et al., 1997).

À cause de la présence des diélectriques qui, une fois polarisés, bloque le champ électrique, les DBD ne peuvent fonctionner qu'avec une alimentation alternative. La fréquence de travail (période du signal sinusoïdal, triangulaire, ... ou la fréquence de répétition des pulses) doit être adaptée à l'application.

Il existe différentes configurations de décharge à barrières diélectriques qui sont décomposées en deux grandes familles [(Kogelschatz, 2010) (Gibalov & Pietsch, 2000)] : les décharges en volume et les décharges de surface (Figure II-13 (Wagner, et al., 2003)). Pour une décharge en volume le plasma traverse un intervalle gazeux entre deux surfaces séparées par un gaz. Les géométries les plus courantes sont les décharges plan-plan, fil-fil, cylindre-cylindre concentrique. Dans une décharge dite de surface les électrodes sont situées sur le même diélectrique et le plasma se propage alors dans le gaz, le long de ce diélectrique.

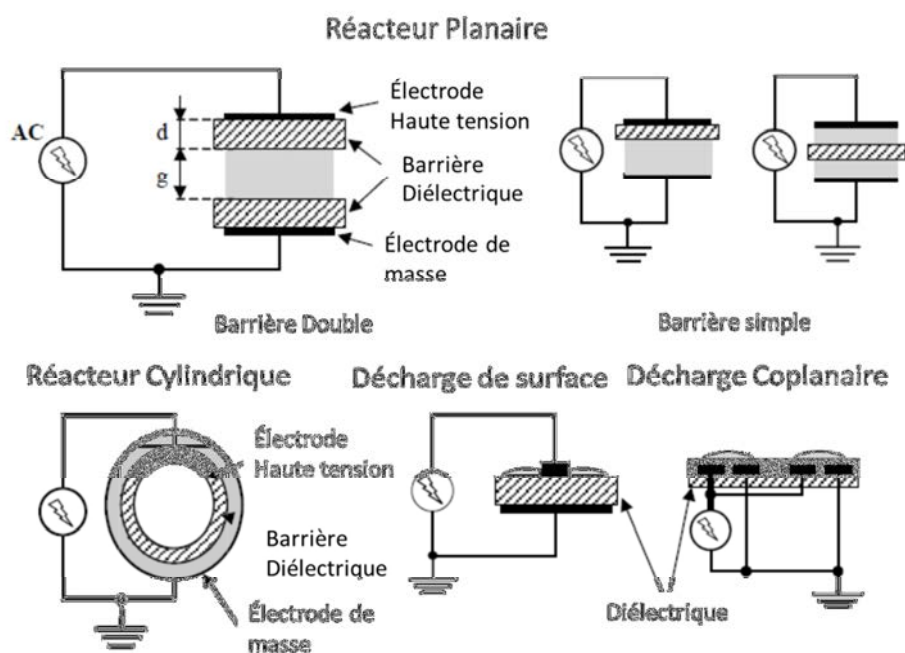


Figure II-13: différentes géométries de DBD

Les DBD peuvent fonctionner selon deux régimes de décharge : les décharges filamenteuses et les décharges homogènes.

Il existe deux types de DBD homogène selon le mécanisme de production d'électrons secondaires (Massines, et al., 2009). Dans une DBD homogène de type Townsend (APTD Atmospheric Pressure Townsend Discharge) l'émission d'électrons secondaires à l'origine de l'auto-entretien du plasma est due à l'impact des ions sur les diélectriques. Une DBD de type glow (APGD Atmospheric Pressure Glow Discharge) est induite par une émission d'électrons secondaires par effet Penning (mécanisme de désexcitation de molécules métastables cf. §I.2.1) (Massines, et al., 1998). Ce mode de décharge apparaît dans les DBD pour des conditions du produit entre la pression et la distance faible ($<1,3 \text{ Pa.m}$ pour l'air) (Choi, et al., 2006).

La décharge de type filamenteuse est une décharge dite de type streamer (Figure II-14) (Chirokov, et al., 2005). Le streamer est la formation successive de nuage d'ions positifs produits par des avalanches électroniques. Cette densité de charge positive peut créer un champ électrique du même ordre de grandeur que le champ géométrique appliqué. Dans ce cas, des études optiques ont montrées qu'une boule d'ionisation se propage par bonds vers la cathode. En fait, le plasma produit des photons qui vont ioniser l'espace devant la charge d'espace ionique (i.e. en champ fort). Les électrons produits par photo-ionisation sont à l'origine de nouvelles avalanches électroniques. Ces avalanches vont neutraliser la charge d'espace positive précédente en laissant derrière eux une nouvelle zone de charge positive.

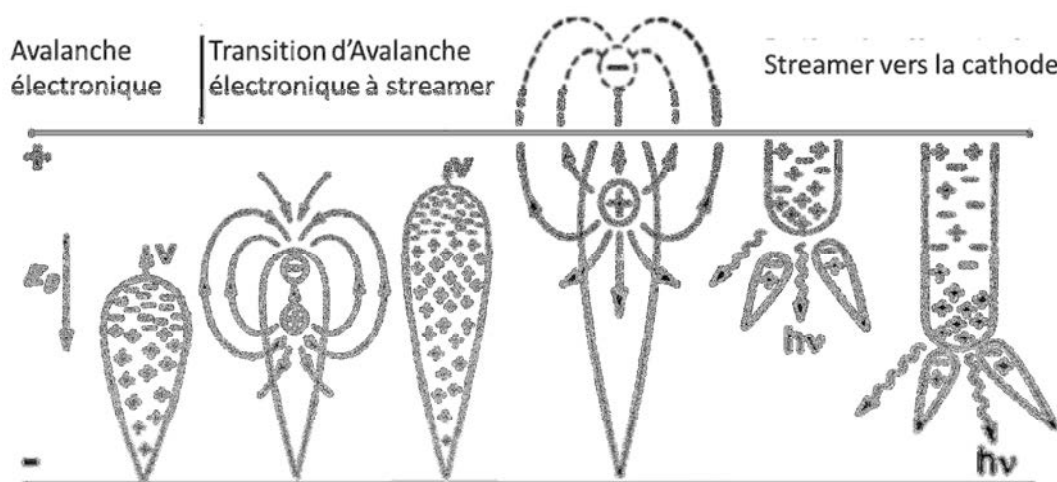


Figure II-14 : développement du filament de décharge

Ce mode de décharge apparaît pour de forte valeur du produit pression distance ($> 1,3 \text{ Pa.m}$) (Choi, et al., 2006). À pression atmosphérique ($1,013 \text{ bar}$ ou $1,013 \cdot 10^5 \text{ Pa}$ ou 760 Torr) cela correspond à une distance caractéristique de décharge de $13 \mu\text{m}$ minimum. Dans la suite de l'étude, seule la décharge de type filamentaire sera considérée.

I.2.4. DBD à PA dans l'air : Caractérisation électrothermique

I.2.4.1. Méthode de caractérisation

Les différentes méthodes de diagnostic qu'il est possible d'appliquer à un plasma sont présentées sur la Figure II-15 (Bruggeman & Brandenburg, 2013).

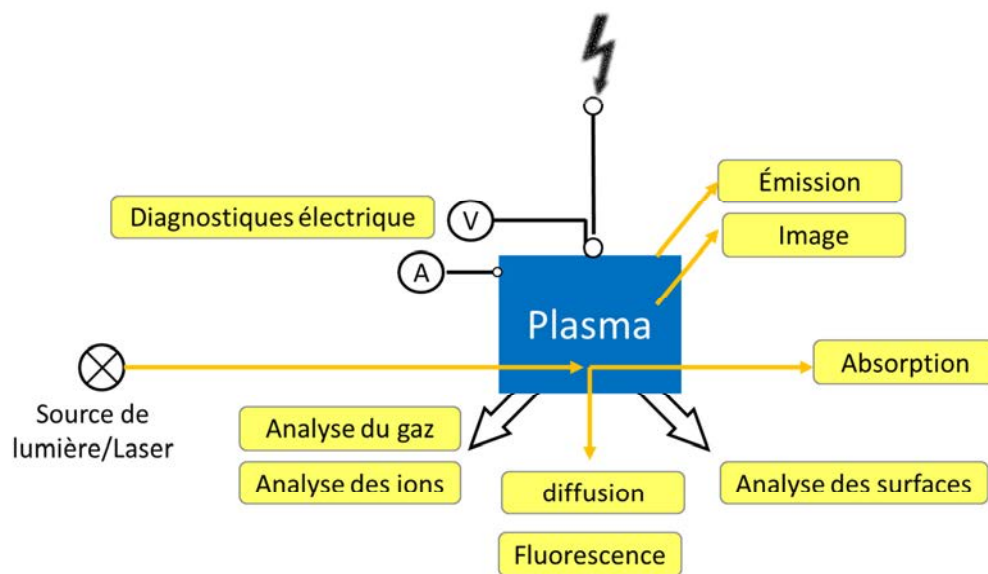


Figure II-15 : résumé schématique des différents diagnostics plasma

Dans le cas des DBD, les caractéristiques électriques peuvent être étudiées en considérant le montage équivalent présenté sur la Figure II-16 (Kogelschatz, 2003).

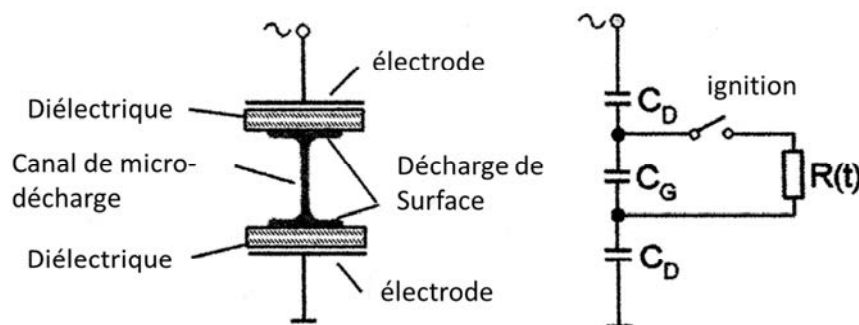


Figure II-16: montage équivalent simplifié d'une DBD

La méthode principale de caractérisation électrique macroscopique de la décharge est l'utilisation des diagrammes charge-tension aussi appelés figures de Lissajous [(Manley, 1943) ; (Pipa, et al., 2012) ; (Falkenstein & Coogan, 1997);...]. Il s'agit de mesurer la charge qui transite aux bornes d'un condensateur insérer dans le circuit extérieur en fonction de la tension appliquée. Si le régime de décharge est filamentaire, excité par une tension sinusoïdale la figure de Lissajous se présente sous la forme d'un parallélogramme (cf. Figure II-17) (Falkenstein & Coogan, 1997).

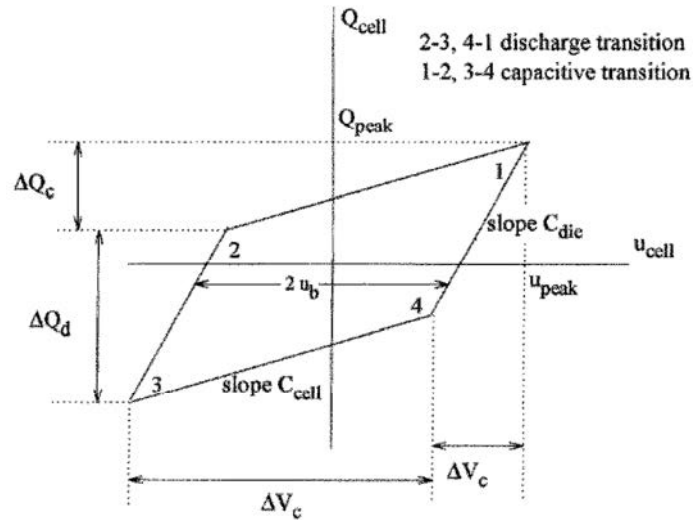


Figure II-17 : tracé de la charge selon la tension appliquée pour une décharge filamentaire

Les côtés 1-2 et 3-4 du parallélogramme correspondent aux « phases capacitives » de la DBD sans plasma, le réacteur se comporte électriquement parlant comme un condensateur. Dans ce cas, la pente de la droite de la courbe charge-tension (capacité équivalente du système durant cette phase : C_{eq}) est égale à la capacité du réacteur (noté C_{cell} sur la figure et C_{DBD}^{off} dans cette thèse). Les côtés 2-3 et 4-1 du parallélogramme sont liées à « la partie active » c'est-à-dire à la présence de filament où $C_{eq} = C_{die}$ (capacité des diélectriques noté $C_{diélectriques}$ dans cette thèse) et la chute de tension à travers l'espace gazeux (V_{gaz}) est constante. La variation de la charge pendant la phase active est égale à la charge maximale transférée par le biais de l'espace gazeux (q_{max}).

Le tracé classique du diagramme q-u peut être décrit par l'équation :

$$q(t) \pm \frac{q_0}{2} = C_{eq}(U(t) \pm U_g)$$

Où en phase active de décharge $C_{eq} = C_{die}$; et dans phase passive $C_{eq} = C_{cell}$

Une autre méthode de caractérisation de la décharge consiste à mesurer l'évolution du courant électrique dans le circuit extérieur. Ce courant est lié au développement de la décharge c'est-à-dire au déplacement des charges transférées dans l'intervalle gazeux (qui peut être traduit en termes de courant de décharge). Le courant dans le circuit extérieur se présente sous la forme d'une composante capacitive (indépendante de la décharge) et d'une composante liée aux charges transférées dans le gap. En régime filamentaire, le courant dans le circuit extérieur présente des impulsions de courant chacune liée à une décharge filamentaire (cf. Figure II-18). En raison de la mobilité 1000 fois plus grande des électrons par rapport aux ions, ce courant peut être assimilé à un courant électronique. Toutefois, une fraction des ions restent en suspension pendant quelques μs conduisant à des courants très faibles (>1000 fois moins intense que le courant maximum de l'impulsion, mais dont l'intégrale (i.e. la charge) est du même ordre de grandeur que la charge de l'impulsion (Xu & Kushner, 1998).

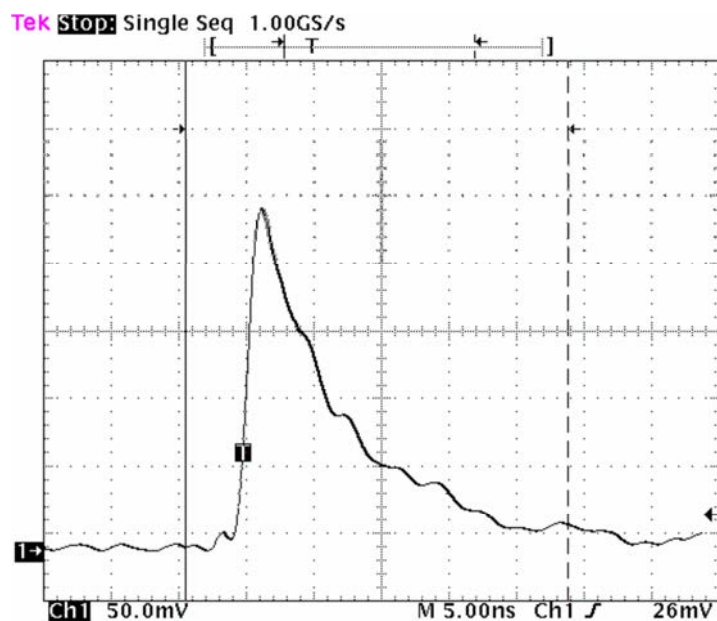


Figure II-18 : impulsion de courant dans le circuit extérieur, relative à une décharge filamentaire

Chaque impulsion se compose d'une petite bosse de moins de 1 mA, durant 1 ns (liée à la propagation du streamer), suivie d'une montée rapide (relative à la jonction du streamer et l'établissement d'un canal conducteur entre les deux diélectriques ~ 2 ns) et d'une décroissance exponentielle. La décroissance exponentielle est liée à deux phénomènes. Le premier est l'attachement électronique qui réduit la mobilité des porteurs de charge et donc le courant. Le second phénomène est la polarisation des diélectriques qui réduit le champ

électrique et donc la vitesse des porteurs de charge. La durée totale de l'impulsion et de l'ordre de la dizaine de ns.

I.2.4.2. *Caractérisation macroscopique*

La production d'espèces réactives ou ionisées dépend de l'énergie apportée au plasma et de la répartition spatio-temporelle de cette énergie. Dans le cas d'une DBD dans l'air à pression atmosphérique, sous l'hypothèse qu'il n'y a pas de dissipation d'énergie dans les diélectriques, cette énergie est injectée dans les filaments de décharge. La somme des énergies de chaque filament au cours d'une période correspond à l'énergie dissipée au cours de cette période. La puissance dissipée par le système est donc la moyenne de l'énergie fournie au cours du temps pour alimenter les filaments.

Dans une DBD, l'énergie électrique est transmise aux électrons puis se répartit dans le gaz et sur les surfaces diélectriques. Cette énergie sert à ioniser le gaz, produire des espèces chimiques neutres (par excitation des molécules du volume de gaz), à vaporiser des électrodes (Jidenko, 2004)) et également à augmenter la température du gaz et des électrodes.

La puissance totale augmente avec la tension et la fréquence. Cela provient de l'augmentation du nombre de microdécharges par unité de temps et de surface.

Une autre variable critique pour la physique et la chimie dans les décharges est la température du gaz et des parois du réacteur. Ces températures sont contrôlées par les processus électro-hydro-thermodynamiques dans le plasma (Jidenko, et al., 2010).

Les éléments qui contrôlent la température sont :

- pour la température de surface :
 - Le transfert thermique par conduction, convection, et radiation au niveau des filaments (chauffage)
 - Les réactions chimiques au niveau des parois (action des espèces réactives, désexcitation des molécules métastables, etc....)
 - L'effet de courant variable induit à travers les matériaux diélectriques
 - Les échanges thermiques avec le gaz de l'espace inter diélectrique et avec le milieu extérieur à travers l'enceinte.
- pour la température du gaz :
 - La température du gaz en entrée,

- Le transfert thermique par conduction, convection, et radiation au niveau des filaments (chauffage),
- Les échanges thermiques avec les parois du réacteur,
- Les réactions physico-chimiques en phase gaz (action des espèces réactives, désexcitation des molécules métastables, etc....)

Le processus dominant de chauffage du gaz est le transfert thermique entre les parois chaudes et le gaz, qui conduit à des températures de gaz et de surface similaire à quelques dizaines de K près. En régime permanent dans les DBD plan-plan symétrique, la température des surfaces (et du gaz en un point) évolue linéairement avec la puissance injectée dans la décharge (Jidenko, et al., 2010).

1.2.4.3. Propriétés des microdécharges dans l'air à PA

Les DBD dans l'air à pression atmosphérique fonctionnent en régime filamentaire. Les ordres de grandeurs des caractéristiques des microdécharges sont présentés dans le Tableau II-4.

Tableau II-4 : propriétés des microdécharges (Kogelschatz, et al., 1997)

Propriétés	amplitude
Durée	1 à 10 ns
rayon des filaments	~ 0,1 mm
courant de décharge	~ 0,1 A
densité de courant	~ 100 à 1000 A/cm ²
charge totale	0,1 à 1 nC
densité d'électron	10 ¹⁴ à 10 ¹⁵ cm ⁻³
Energie des électrons	1 à 10 eV
température moyenne du gaz dans le filament	~ température moyenne du gaz en dehors de la microdécharge

Une étude statistique des propriétés des microdécharges dans une configuration donnée de double décharge à barrières diélectriques plan-plan symétrique, démontre l'invariabilité du phénomène unitaire (Jidenko, 2004) En clair, les quantités de charges, les durées, les courants maximum des impulsions sont identiques à 20 % près et quasi-indépendante de la tension, de la fréquence (entre 750 Hz et 60 kHz), de la température ou de la vitesse du gaz (au-delà de 0,5 m.s⁻¹). Cela s'explique par le rétro-contrôle du champ électrique dans le gaz dû au dépôt de charges sur les barrières diélectriques isolantes. Ainsi, la charge par filament est contrôlée au premier ordre par la distance inter-diélectriques.

Cette invariance du phénomène unitaire permet d'estimer l'influence des processus physiques ou chimiques locaux (autour de chaque microdécharge) à partir de mesures

macroscopiques intégrées à l'échelle du réacteur (telle que la puissance, la concentration d'espèces chimiques/chargées ou de nanoparticule produits par les filaments de décharges et mesurées en sortie du réacteur)

Les DBD sont stables (pas d'évolution temporelle des caractéristiques du plasma) une fois l'équilibre thermique atteint (environ 30 minutes après allumage de la décharge). Toutefois l'injection d'aérosols dans une DBD conduit à la diminution du courant de décharge relative à la masse déposée dans le réacteur jusqu'à l'extinction de la décharge (Jidenko & Borra, 2012) (Park, et al., 2015).

I.2.5. DBD à PA dans l'air : Caractérisation physico-chimique

Les décharges produisent des éléments neutres et ionisés très réactifs. Ces éléments peuvent être répartis en trois grandes catégories : des molécules neutres, des aérosols et des ions (Eliasson & Kogelschatz, 1991)

I.2.5.1. *Espèces chimiques neutres*

Les espèces neutres principalement produites par les DBD sont l'ozone et les oxydes d'azote. Les principales espèces d'oxyde d'azote présentes sont : N_2O_5 ; N_2O ; NO_2 ; NO_3 . Selon les trace d'éléments qu'il peut y avoir dans le gaz, les DBD vont aussi produire : H_2O_2 ; S_xO_y ; et des COV.

En fait la production des différents éléments dans une configuration donnée dépend au premier ordre de la température. Une étude faite sur une DBD en géométrie pointe plan montre que l'ozone domine pour des températures du plasma inférieures à 1300 K (cf. Figure II-19) (Parissi, et al., 1999).

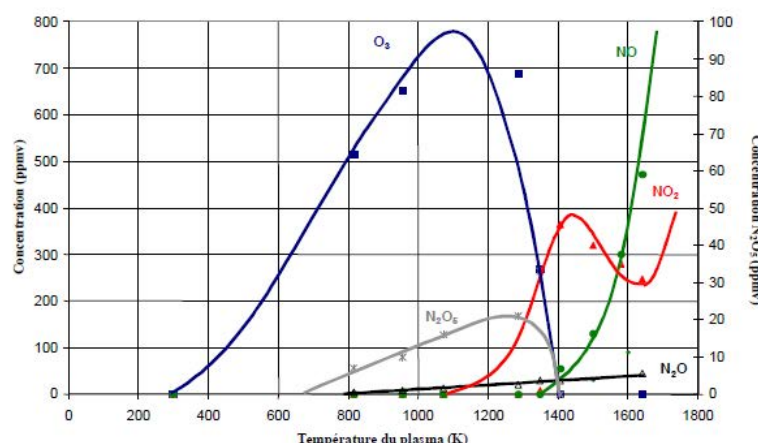


Figure II-19 : concentration des effluents de la décharge selon T_{plasma} pour une géométrie pointe-plan

Une étude effectuée sur des DBD plan-plan montre une transition entre l’ozone et les oxydes d’azote pour des température d’électrodes de l’ordre de 100 °C (Jidenko, 2004):

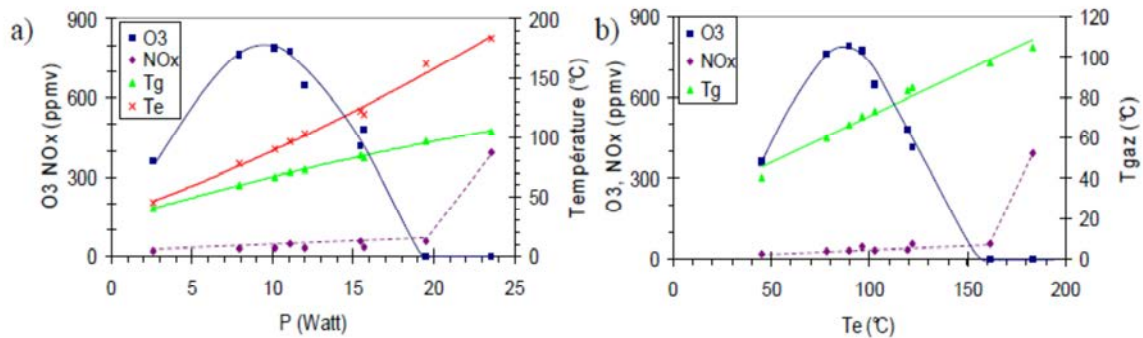


Figure II-20: concentration d'ozone et des oxydes d'azote selon a) P_u et b) $T_{\text{électrode}}$

Donc, il est nécessaire de contrôler la température du gaz pour contrôler sa chimie. Ce contrôle est d'autant plus important qu'il va jouer sur la nature des ions présents dans le gaz. Les autres paramètres qui contrôlent la production d'ozone sont : la distance inter-électrodes (Drimal, et al., 1988) et la nature des diélectriques (Ewell, 1906).

1.2.5.2. *Particules*

Dans un gaz sans composé organique volatil (COV), les particules sont produites par interaction plasma-surface soit par vaporisation des surfaces et nucléation des vapeurs soit par arrachement de matière lié au bombardement ionique. Les processus de formation sont schématisés sur la Figure II-21 (Jidenko, 2004).

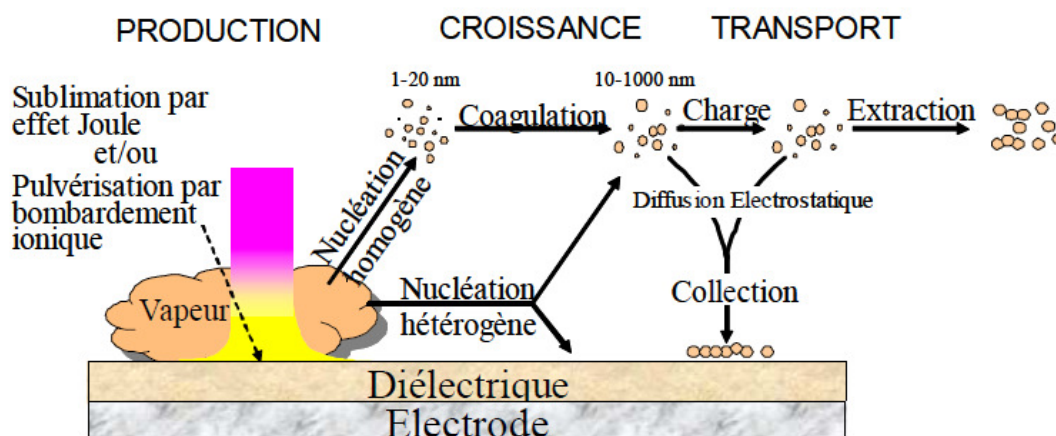


Figure II-21: mécanisme de production de particules dans une DBD

Les particules ainsi produites possèdent des diamètres inférieurs à 10 nm et sont composées des mêmes éléments chimiques que les surfaces en contact avec la décharge. (Borra, et al., 2015)

En outre, selon la composition du gaz (en particulier avec des traces de COV), des réactions chimiques au sein de la décharge peuvent produire des composés qui vont condenser par nucléation hétérogène sur les ions.

I.2.5.3. **Ions**

Les ions sont essentiellement produits par les décharges filamentaires. Derrière la boule de charge positive se crée un plasma dit « électronégatif », car il est composé non seulement d'ions positifs, mais également d'ions négatifs créés par attachement électronique sur les molécules électronégatives du gaz (typiquement l'oxygène). En dehors des filaments, les autres processus d'ionisation sont : les avalanches électroniques ne conduisant pas à une décharge, la photo-ionisation d'espèce par le rayonnement UV et X produit lors de la désexcitation de produit de décharge et la désexcitation en volume et en surface des éléments métastables produits dans la décharge.

Les ions négatifs sont produits en quantité inférieure (les processus d'ionisation produisent autant d'ions positifs que d'électrons mais les électrons se répartissent entre la surface et la production d'ions négatifs). Les ions négatifs ont également la propriété d'être plus mobiles que les ions positifs donc ils sont plus facilement perdus aux parois.

Les ions produits sont principalement N_2^+ , O_2^+ , O^+ , O_2^- . Leurs mobilités réduites (cf. §I.3.1) est données dans l'article (Bourgeois, et al., 2009):

- spectre continu entre 0,4 et $1,7 \text{ cm}^2.V^{-1}.s^{-1}$ pour les ions positifs et de l'ordre de 1,05 ; 1,15 ; 1,35 à forte température. La valeur moyenne est de $1,1 \text{ cm}^2.V^{-1}.s^{-1}$

- $1,75 \text{ cm}^2.V^{-1}.s^{-1}$ à basse température pour les ions négatifs

Le rapport de mobilité moyenne positif sur négatifs est alors de 0,63. Les même mesure en sortie du neutraliseur par DBD développé par Kwon et. Al. (Kwon, et al., 2005), donne des valeurs moyenne de mobilité de 1,14 et $1,91 \text{ cm}^2.V^{-1}.s^{-1}$ respectivement pour les ions positifs et négatifs conduisant à un rapport de mobilité de 0,6.

Les courants d'ions mesurés en post décharge sont supérieurs à 10 pA soit des densités d'ions supérieures à $3,75 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-3}$. (Bourgeois, et al., 2009)

Les masses des ions de décharge n'ont pas été mesurées mais les différentes caractéristiques des ions peuvent être estimées en considérant la masse des ions produits par une décharge couronne à pression atmosphérique pour une température ambiante de 20°C (Manninen, et al., 2011) :

- masse des ions négatifs 62 et 125 uma (1 uma = $1,66 \cdot 10^{-27}$ kg),
- masse des ions positifs 100 à 199 uma.

Les propriétés des ions calculées à partir des formules données en Annexe 3 et des valeurs données ci-dessus sont reportées dans le Tableau II-5.

Tableau II-5 : ordre de grandeur des propriétés des ions de décharges

Variable	ions positifs	ions négatifs
mesure de mobilité ($\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$) (Bourgeois, et al., 2009)	0,4 à 1,7	1,75
mesure de masse (uma) (Manninen, et al., 2011)	100 à 199	62 et 125
coefficient de diffusion ($10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)	1 à 4,3	4,4
vitesse thermique ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)	175 à 248	315 et 222
libre parcours moyen (nm)	15 à 88	35,7 et 50,7
fréquence de collision (10^9 Hz)	2,8 à 24	8,83 et 4,38
rayon de collision (nm)	0,38 à 1,3	0,6 et 0,9

I.3. Transport des ions en post-décharge

Afin d'éviter de perturber les propriétés de la décharge (qui jouent sur les propriétés des effluents) il est préférable de travailler en post-décharge. Il est donc nécessaire de comprendre le transport des ions depuis la décharge jusque dans le chargeur.

I.3.1. Propriétés des ions dans l'air à PA

L'étude s'effectue dans l'air à pression atmosphérique. L'air est composé d'un mélange de gaz (N_2 ; O_2 ; H_2O ; CO_2 ; COV; NOX; ...). Ainsi, chaque mécanisme d'ionisation va produire des effets différents sur la nature des ions présents. De plus les ions vont avoir tendance à « coaguler » certaines molécules autour d'elle pour former ce que l'on appelle des clusters (Bricard, 1977). Ce processus de coagulation est contrôlé au premier ordre par la composition du gaz et la température (Tabrizchi & Rouholahnejad, 2005). Ainsi, les propriétés des ions (masse, mobilité, coefficient de diffusion...) possèdent des distributions statistiques uni- ou poly-modale, toutefois en première approximation dans la majorité des études, seules les valeurs moyennes seront prises en compte.

Les paramètres importants des ions pour la charge d'un aérosol sont (cf. §I.1.3.2) : la charge des ions (q_{ions}), la masse des ions (M_{ions} en kg/mol ; m_{ions} en kg ; m'_{ions} en unité de masse

atomique), la mobilité des ions (Z_{ions} en $m^2.V^{-1}.s^{-1}$), le coefficient de diffusion thermodynamique (D_{ions} en $m^2.s^{-1}$), vitesse thermique des ions (c_{ions} en $m.s^{-1}$), et le libre parcours moyen des ions (λ_{ions}). Les valeurs des quatre derniers paramètres vont dépendre de la pression et de la température du gaz. La pression atmosphérique est de 1 bar (10^5 Pa) à moins de 10% près. La température ambiante est de 300 K à moins de 10 % près. Deux conditions de normalisation des variables peuvent être définies : les Conditions Normales ou Standard de Température et de Pression (CNTP ou CSTP). Dans ces deux cas, la pression est définie par la pression atmosphérique à $1,013 \cdot 10^5$ Pa. La température est définie dans les CNTP à 20 °C (293,15 K) et dans les CSTP à 0 °C (273,15 K)

La masse des ions dépend de la nature des ions et du cluster qu'il forme dans les conditions de l'étude. Dans les CNTP pour l'air, la valeur de masse des ions positifs varie entre 50 uma et 200 uma et la valeur de masse des ions négatifs varient entre 50 uma et 150 uma (les différentes valeurs et leurs sources sont données en annexe).

- La mobilité des ions dépend de la fréquence de collision ions-gaz ($\nu_{ions/gaz}$ en Hz), de la charge de l'ion (en C), et de la masse de l'ion (kg)

$$Z_{ions} = \frac{q_{ions}}{m_{ions} \nu_{ions/gaz}} \quad // -3$$

La distribution en mobilité des ions dépend de leur source (Kwon, et al., 2005). Dans les CNTP en air sec, la mobilité des ions positifs varie entre $0,7 \cdot 10^{-4} m^2.V^{-1}.s^{-1}$ et $2,2 \cdot 10^{-4} m^2.V^{-1}.s^{-1}$. En air humide, elle varie entre $0,4 \cdot 10^{-4} m^2.V^{-1}.s^{-1}$ et $1,4 \cdot 10^{-4} m^2.V^{-1}.s^{-1}$. En air sec, la valeur de mobilité des ions négatifs varie entre $1,7 \cdot 10^{-4} m^2.V^{-1}.s^{-1}$ et $2,5 \cdot 10^{-4} m^2.V^{-1}.s^{-1}$. En air humide, elle varie entre $1,6 \cdot 10^{-4} m^2.V^{-1}.s^{-1}$ et $2,2 \cdot 10^{-4} m^2.V^{-1}.s^{-1}$. (Les différentes valeurs et les équations sont données en Annexe 3).

I.3.2. Gaz composés de plusieurs espèces

Dans cette étude, le gaz en post-décharge est un gaz faiblement ionisé qui n'est pas un plasma (pas de quasi-neutralité). De plus, il est composé de particules qui doivent être classées par gamme de mobilité électrique.

La propriété principale d'un gaz composé de plusieurs espèces est que les différents éléments du gaz vont posséder une dynamique propre. Ainsi, les processus de transport

seront liés aux couplages entre les comportements des éléments identiques et les interactions entre les différents éléments.

Certaines propriétés des plasmas peuvent être étendues aux gaz ionisés. Les autres propriétés peuvent être définies par extension des propriétés des gaz classiques.

La distance caractéristique d'écrantage des champs électriques défini dans les plasmas comme la longueur de Debye peut être appliquée au gaz ionisé. Cette longueur correspond au rapport entre les effets cinématiques et les effets du champ électrique. Pour des densités d'ions de l'ordre de 10^{12} m^{-3} (cf. §I.2.5.3) dans les conditions ambiantes cette longueur est de l'ordre de $7 \cdot 10^{-5} \text{ m}$. Cette valeur permet de confirmer qu'il ne s'agit pas d'un plasma : $n_{charge} \cdot (\lambda_{De})^3 \sim 0,33$ (plasma si $n_{charge} \cdot \lambda_{De}^3 \gg 1$ cf. I.2.2.1). Cela signifie qu'il n'y a pas quasi neutralité.

Dans le cas des gaz à plusieurs espèces, la pression est définie comme la somme des pressions partielles des différents composants. La pression partielle d'un composant est définie par la pression qu'aurait l'élément du gaz s'il occupait seul le volume total que le gaz occupe. Dans l'approximation des gaz parfaits, elle peut être définie par la loi des gaz parfait :

$$P_s = n_s k_B T_s \quad II-4$$

Avec P_s la pression partielle de l'élément (Pa), n_s la densité de l'élément (m^{-3}), k_B la constante de Boltzmann ($1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$), T_s la température de l'élément (K).

La température d'une espèce est définie par l'énergie cinétique moyenne de l'élément considéré.

I.3.3. Théorie du transport d'espèce

I.3.3.1. Équations de base

Les équations du transport d'espèce dans un gaz composés de plusieurs espèces se basent sur la théorie multi-fluide (cf. Annexe 4). Ces équations sont utilisées pour les calculs de type mobilité-diffusion notamment dans les théories de la charge d'aérosol (cf. I.1.3.2.a).

Les deux équations les plus utilisées pour la caractérisation du transport sont :

L'équation de conservation de la matière :

$$\frac{\partial n_s}{\partial t} + \text{div}(n_s \vec{v}_s) = \left(\frac{\delta n_s}{\delta t} \right)_{\text{collision}} \quad II-5$$

Avec n_s la densité de l'espèce s (m^{-3}), v_s la vitesse de l'espèce s ($m.s^{-1}$) et $\left(\frac{\delta n_s}{\delta t}\right)_{collision}$ les variations de densité de l'espèce s suite aux collisions avec d'autres éléments ($m^{-3}.s^{-1}$).
L'équation de conservation de la quantité de mouvement :

$$n_s m_s \left(\frac{D\vec{v}_s}{Dt} \right)_s + \overrightarrow{grad}(P_s) - n_s \langle \sum \vec{F} \rangle = \left(\frac{\delta M_s}{\delta t} \right)_{collision} \quad II-6$$

Qui peut se mettre sous la forme :

$$n_s m_s \left(\frac{\partial \vec{v}_s}{\partial t} + (\vec{v}_s \cdot \overrightarrow{grad})(\vec{v}_s) \right) = -\overrightarrow{grad}(P_s) + n_s \langle \sum \vec{F} \rangle - n_s m_s v_{s/gaz} (v_s - v_{gaz}) \quad II-7$$

Avec n_s la densité de l'espèce s (m^{-3}), v_s la vitesse de l'espèce s ($m.s^{-1}$), v_{gaz} la vitesse du gaz, m_s la masse de l'espèce s (kg), P_s la pression partiel de l'espèce s (Pa), $\vec{F}$ les forces qui s'applique sur l'espèce s (N) et $v_{s/gaz}$ la fréquence de collision élastique entre l'espèce et le gaz

Dans un gaz ionisé à pression atmosphérique, les seules forces qui s'appliquent sont les forces gravitationnelles et les forces électrostatiques. Dans notre cas, nous supposons que les forces gravitationnelles sont négligeables.

Les forces électriques qui s'appliquent sont liées au champ électrique. Comme il est dit au §1.2.2.2, trois types de champ électrique sont présents dans le système :

- Le champ de Laplace (E_L)
- Le champ de charge d'espace (E_ρ)
- Le champ de surface (E_σ) : composition du champ de polarisation (dominant pour des parois diélectriques) et du champ image (dominant pour des parois métallique).

Donc l'équation II-7 peut se mettre sous la forme :

$$n_s m_s \left(\frac{\partial \vec{v}_s}{\partial t} + (\vec{v}_s \cdot \overrightarrow{grad})(\vec{v}_s) \right) = -\overrightarrow{grad}(P_s) + n_s q_s \overrightarrow{E}_{tot} - n_s m_s v_{s/gaz} (v_s - v_{gaz}) \quad II-8$$

Dans l'hypothèse d'un équilibre quasi-stationnaire, l'équation ci-dessus peut être traduite en termes de vitesse de diffusion, comme décrit au paragraphe suivant.

1.3.3.2. *Phénomène de diffusion*

Le terme de diffusion est utilisé dans de nombreux domaines. Il représente le bilan macroscopique d'un système suite à des collisions (diffusion de photon, d'électron, d'atome ...). Dans notre cas, la diffusion est la résultante des phénomènes d'équilibre de

transport d'espèce dans un gaz collisionnel. Cet équilibre est associé par une vitesse au processus de mise en mouvement.

Sous l'hypothèse que le système est à l'équilibre et que le gaz possède une vitesse nulle l'équation II-8 devient :

$$\overrightarrow{grad}(P_s) - n_s q_s \overrightarrow{E}_{tot} = -n_s m_s v_{s/gaz} \overrightarrow{v}_s \quad II-9$$

Les effets diffusifs les plus courants sont la diffusion thermodynamique (somme de la diffusion thermique et brownienne) et la diffusion électrostatique.

- la diffusion thermodynamique traduit la présence d'un gradient de pression partielle.

Elle se met sous la forme :

$$\overrightarrow{v}_{td} = \frac{1}{n_s m_s v_{s/gaz}} \overrightarrow{grad}(P_s) \quad II-10$$

En développant avec la loi des gaz parfaits, on obtient :

$$\overrightarrow{v}_{td} = -D_s \left(\frac{\overrightarrow{grad}(n_s)}{n_s} + \frac{\overrightarrow{grad}(T_s)}{T_s} \right) \quad II-11$$

Avec : $D_s = \frac{k_B T_s}{m_s v_{s/gaz}}$ le coefficient de diffusion thermodynamique,

La Figure II-22 (Physics, 2014) présente le principe de diffusion sous l'effet d'un gradient de densité.

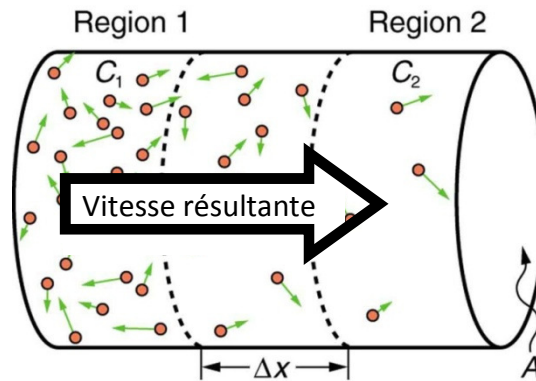


Figure II-22 : principe de la diffusion sous un gradient de densité

- La diffusion électrostatique traduit la présence d'un gradient de potentiel électrique. La vitesse se met sous la forme :

$$\overrightarrow{v}_E = -Z_s \overrightarrow{grad}(\phi) = Z_s \vec{E} \quad II-12$$

Avec : $Z_s = \frac{q_s}{m_s v_{s/gaz}}$ la mobilité électrique de l'élément considéré.

Dans les plasmas, il est fait référence à la diffusion ambipolaire. En fait, il s'agit de la traduction des mouvements couplés entre les charges positives et négatives qui obéissent à une loi semblable aux lois de diffusion.

I.3.3.3. Mécanismes de perte

Deux processus peuvent générer des pertes durant le transport des ions et des particules : les collisions inélastiques avec les parois et les collisions inélastiques avec d'autres éléments du gaz.

Les collisions inélastiques avec les autres éléments du gaz sont de trois types : les collisions entre ions, les collisions entre particules et les collisions entre les ions et les particules. Les collisions inélastiques ions-ions sont appelées recombinaison.

Les mécanismes de collisions entre ions et particules sont traités au paragraphe I.1.3.2.a, cependant, si la densité d'ions est très supérieure à la densité de particule, ces collisions n'auront d'effet que sur l'état de charge des particules d'aérosol.

Les pertes par collisions avec la paroi sont principalement dues à des effets de diffusion (au sens large).

- En présence d'un champ extérieur appliqué, les éléments chargés dérivent vers les parois. Ce mécanisme est usuellement appelé précipitation électrostatique.

- Pour des charges unipolaires, le mécanisme de diffusion dominant est la diffusion électrostatique par les champs électriques induits par ces mêmes charges unipolaires. Les deux forces qui contrôlent au premier ordre ce mécanisme sont :

- 1 : la force engendrée dans le gaz par la distribution de densité de charge,

- 2 : la force image qui traduit le fait que le potentiel sur une paroi métallique possède un potentiel constant. Il est alors possible de remplacer le tube par une distribution fictive de charge produisant le même potentiel.

- Les pertes par thermophorèse sont dues à la diffusion jusqu'aux parois contrôlée par un gradient de température entre la paroi (plus froide) et le gaz (plus chaud),

- Les pertes par diffusion sont liées à l'agitation thermique et au mouvement Brownien des ions et particules qui en découle et entraîne des collisions avec les parois. Il est à noter que ce mécanisme conduit à un gradient de densité à proximité des parois qui contrôle les pertes par diffusion

Par la suite, le terme de perte par diffusion est utilisé pour désigner la collection suite à la thermophorèse et à la diffusion brownienne. La collection liée aux champs unipolaires est désignée par pertes par self-répulsion et les pertes par un champ extérieur sont désignées par précipitation électrostatique.

La décroissance des ions dans un tube a été étudiée en post-source radioactive (Hoppel & Frick, 1988) (Gensdarmes, 2000) (Tigges, et al., 2015).

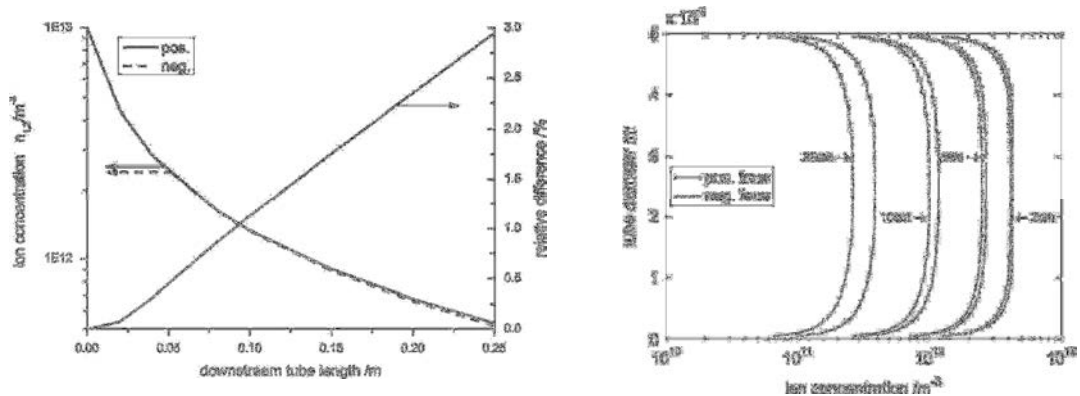


Figure II-23: profil d'ions dans un tube de 5 mm de diamètre à $0,3 \text{ L.min}^{-1}$ selon L_{tube} en post-source radioactive

En post-source radioactive, la densité d'ions dans les nuages bipolaires homogènes décroît de près de 2 ordres de grandeur en 1 seconde (Figure II-23). Les conclusions principales (Hoppel & Frick, 1988) sont :

- la recombinaison contrôle au premier ordre les pertes d'ions pendant le transport,
- les effets électrostatiques tendent à égaliser les densités d'ions positifs et négatifs,
- les pertes d'ions par diffusion entraînent une augmentation du rapport de la densité d'ions positifs sur la densité d'ions négatifs (Figure II-23).

I.3.3.4. **Mesure des courants d'ions**

Le principe de la mesure de la concentration en ions dans un milieu repose sur leur collection par une électrode et la détermination du courant résultant (Figure II-24). Pour cela, on utilise généralement un condensateur plan ou cylindrique dans lequel circule le gaz. Lorsqu'on applique une tension entre les électrodes, les ions bipolaires vont être collectés distinctement par les deux électrodes. Pour un débit et une tension fixés dans le condensateur, il est possible de définir une mobilité critique telle que tous les ions ayant une mobilité supérieure à celle-ci seront collectés. Dans le cas de la mesure des ions, la mobilité critique doit donc correspondre à la limite inférieure du domaine de mobilité. Un électromètre est utilisé pour mesurer le courant reçu par l'électrode de collection. Nous pouvons ainsi, suivant la polarisation du condensateur, mesurer soit la concentration en ions positifs soit celle en ions négatifs (Gensdarmes, 2000).

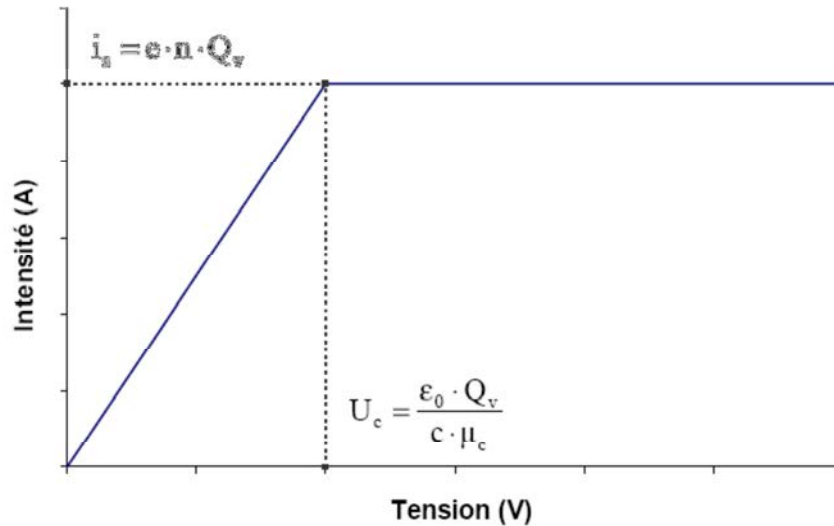


Figure II-24 : caractéristique $I(V)$ d'un précipitateur électrostatique idéal

Supposons qu'il n'y ait que des ions dans le milieu, et que la tension est suffisante pour tous les capter, le courant reçu par l'électrode collectrice s'exprime alors par :

$$i_{\pm} = e \cdot n_{\pm} \cdot Q_v, \quad \text{II-13}$$

où $i_{\pm}$ représente le courant (A), e la charge élémentaire (C), $n_{\pm}$ la concentration des ions positifs ou négatifs (m^{-3}) et Q_v le débit d'air dans le condensateur ($\text{m}^3 \text{s}^{-1}$). Les compteurs d'ions à géométrie cylindrique sont les plus courants. Cependant, certains auteurs (Hoppel & Frick, 1990) utilisent une géométrie plane mieux adaptée à leurs conditions.

I.4. Conclusions bibliographiques

La physique des aérosols est contrôlée au premier ordre par la distribution de taille des particules qui la composent. Ainsi la caractérisation en taille des aérosols est un point critique des études et recherches en physique des aérosols. L'instrument de mesure le plus utilisé pour déterminer la taille des particules de diamètres compris entre 10 nm à 1 μm est l'analyseur différentiel de mobilité électrique. En effet, la mobilité des aérosols dépend de leur taille et de leur charge. Ainsi, il est possible de déterminer la distribution granulométrique à partir de la mesure des distributions de mobilités électriques, mais uniquement si l'état de charge des particules injectées dans l'instrument est connu.

Pour obtenir un état de charge contrôlé des particules avec une charge moyenne nulle, la majorité des instruments de mesure sont dotés d'un neutraliseur radioactif. Ce neutraliseur permet d'imposer, pour chaque diamètre de particules entre 10 nm et 1 μm , une

distribution de charge Gaussienne centrée sur une valeur de charge moyenne proche de 0 et ce, indépendamment de la concentration d'aérosol jusqu'à 10^7 cm^{-3} , pour des débits d'aérosols de 0,3 à 2 L.min^{-1} . Dans ce cas, la charge des particules atteint un état stationnaire c'est-à-dire que la distribution de charge n'évolue plus dans des densités d'ions constants correspondant à une valeur du produit $n_{ions} \cdot \tau$ supérieur à $6 \cdot 10^6 \text{ s.cm}^{-3}$. Ces caractéristiques correspondent au cahier des charges du neutraliseur que nous cherchons à développer. En effet, les neutraliseurs radioactifs sont coûteux et soumis à d'importantes contraintes législatives et en termes de sécurité. Parmi les différentes alternatives existantes (rayons X ou plasmas), aucune n'est, pour l'instant, satisfaisante en termes de coûts et/ou de durée de vie.

La neutralisation des aérosols est obtenue grâce au mécanisme de charge par diffusion d'ions gazeux jusqu'à la surface des aérosols. Une méthode simple et bon marché pour produire des ions à pression atmosphérique est l'utilisation d'un plasma froid hors équilibre thermodynamique. Le principal défaut des plasmas est la production d'ozone (à basse température) et de nanoparticules. Notre choix pour cette étude se porte sur les Décharges à Barrières Diélectriques qui ont l'avantage d'être stables dans le temps et très robustes. En effet, contrairement aux décharges électriques classiques (du type décharge couronne ou glow) pour lesquelles les électrodes métalliques s'oxydent et s'érodent par interaction avec le plasma, dans une décharge à barrières diélectriques, les surfaces en contact avec le plasma sont des oxydes métalliques comme l'alumine (Al_2O_3) qui ne s'oxydent pas et dont l'érosion peut être limitée en contrôlant l'énergie d'interaction du plasma (énergie des filaments de décharge). Les DBD dans l'air à pression atmosphérique se développent sous la forme de décharges filamenteuses (diamètre $\sim 100 \text{ }\mu\text{m}$ et durée $\sim 20 \text{ ns}$) homogènement réparties dans l'espace entre les électrodes et qui permettent de produire des densités d'ions en post-décharge du même ordre de grandeur que dans un neutraliseur radioactif ($\sim 10^{13} \text{ m}^{-3}$).

Nous avons choisi de travailler en post-DBD pour éviter la collection d'aérosol sur les diélectriques qui conduit à la déstabilisation de la décharge et à la modification des propriétés des ions produits par la décharge et donc à la modification des conditions de charge de l'aérosol.

La neutralisation d'aérosol par collection d'ions gazeux dépend au premier ordre du produit $n_{ions} \cdot \tau$ (avec τ le temps que l'aérosol passe dans la densité d'ions n_{ions}). Ce produit $n_{ions} \cdot \tau$ doit être supérieur à $6 \cdot 10^{12} \text{ s} \cdot \text{m}^{-3}$ pour pouvoir neutraliser des aérosols très concentrés (concentration supérieure à 10^6 cm^{-3}) ou possédant une charge initiale élevée (supérieure à 10 charges par particules en moyenne). De plus, la charge moyenne des aérosols en sortie de neutraliseur dépend du rapport $(n_{ions}^+ \cdot Z_{ions}^+) / (n_{ions}^- \cdot Z_{ions}^-)$ (avec Z_{ions} la mobilité des ions). Ce sont donc les deux paramètres ioniques que nous allons chercher à contrôler et à optimiser. Dans une DBD de type plan-plan, les paramètres de régulation qui contrôlent au premier ordre la décharge sont :

- la distance inter-électrodes qui définit la quantité de charge et l'énergie des filaments de décharge
- La surface des électrodes et la tension appliquée qui déterminent le nombre de filament par période.
- la fréquence de l'alimentation haute tension qui contrôle la répétition de ce nombre de filament dans le temps.

Ces trois caractéristiques (énergie par filament, nombre de filament par période et fréquence de l'alimentation) définissent la puissance injectée dans le plasma. Le conditionnement thermique (nature de l'enceinte de décharge et flux de gaz dans la décharge) permet de contrôler les températures de surface et de gaz pour une puissance plasma constante.

Cependant, le lien entre les propriétés des DBD et les densités d'ions en post-décharge n'est pas parfaitement établi. L'influence de la géométrie de la DBD et plus particulièrement la présence d'hétérogénéités spatiales de la décharge et leurs conséquences sur le courant d'ions en post-décharge n'a jamais été traité à notre connaissance. Enfin, pour pouvoir estimer les conditions de charge des aérosols, il est nécessaire d'évaluer les profils de densité le long du parcours des aérosols dans le volume de charge et de mesurer les distributions de charge d'aérosols monodispersés en sortie du neutraliseur. Pour cela, il sera nécessaire de développer des outils et des méthodes fiables présentés au chapitre 0.

Étude expérimentale

II. Introduction expérimentale

L'objectif de ce travail est de contrôler la charge d'aérosol grâce à des flux d'ions positifs et négatifs (charge bipolaire). La distribution de charge par particule à la sortie du chargeur bipolaire dépend, au premier ordre, du diamètre de la particule (d_p), du produit $n_{ions} \cdot \tau$ [avec n_{ions} la densité d'ions traversée par l'aérosol durant son parcours dans la zone de charge et τ le temps dans cette densité d'ions (Fuchs, 1963)], et du rapport $(n_{ions}^+ \cdot Z_{ion}^+) / (n_{ion}^- \cdot Z_{ion}^-)$ [rapport des produits mobilité-densité d'ions positifs sur négatifs qui contrôle la charge moyenne de l'aérosol] et, au second ordre, de la température du gaz (T). Ces paramètres définissent ce que nous appellerons les conditions de charge de l'aérosol.

Les mobilités d'ions sont considérées comme invariantes en post-décharge. La distribution de charge en sortie de chargeur dépend donc, au premier ordre, des profils de densités d'ions positifs et négatifs ($n_{ions}^{\pm}$) dans la zone de charge de l'aérosol. Ainsi, cette étude vise à contrôler les distributions spatiales des densités ioniques stationnaires selon les conditions de fonctionnement afin de contrôler la distribution de charge des aérosols quelles que soient leurs distributions en taille ($d_p \in [10 ; 1000]$ nm) et leurs concentrations jusqu'à 10^7cm^{-3} .

Pour produire ces ions, nous avons choisi d'utiliser une Décharge à Barrières Diélectriques (DBD) dans l'air à pression atmosphérique. Ces décharges se développent sous la forme de filaments de plasma contrôlés par le champ électrique réduit (E/n_{gaz} avec E le champ électrique et n_{gaz} la densité du gaz). Le champ électrique en chaque point de l'espace résulte de trois champs électriques liés : aux électrodes métalliques polarisées (champ de Laplace), aux charges électriques déposées sur les surfaces diélectriques et aux charges réparties dans le gaz (cf. §I.2.3). La Figure II-1 schématise les différentes étapes de production d'ions par la DBD, de transport des ions de la décharge au chargeur bipolaire d'aérosols en post DBD. En

effet, la charge des aérosols s'effectue en post-décharge pour des raisons de stabilité de la décharge.

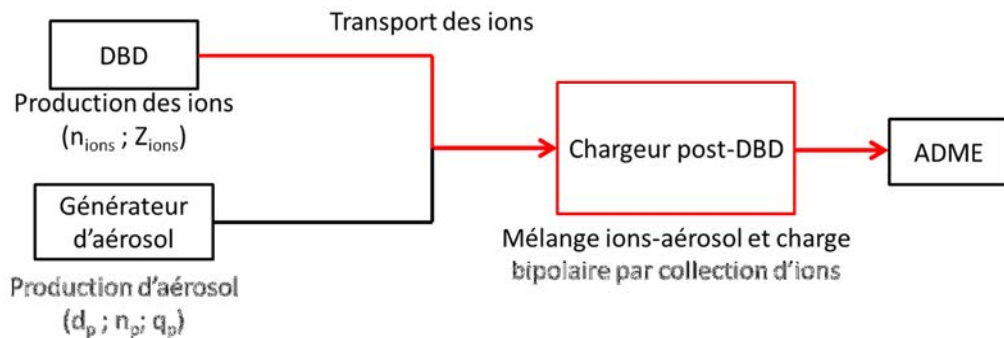


Figure II-1 : schéma de principe de l'étude

Les ions sont produits dans le volume inter-électrodes par impact électronique en champ électrique supérieur à 10^6 V.m^{-1} . Dans une moindre mesure, les ions sont produits dans le volume des filaments et à proximité des filaments par photo-ionisation et par désexcitation d'éléments métastables en volume et aux parois (Mitchner & Kruger, 1973).

Les ions sont alors entrainés depuis les filaments de plasma vers la zone de charge par dérive électrostatique, diffusion et entrainement hydrodynamique. Pendant le transport, une fraction des ions est perdue par recombinaisons ions-ions et ions-électrons, par précipitation électrostatique dans la décharge et en post-décharge ainsi que par diffusion aux parois (cf. §0).

Les courants d'ions entrants dans le chargeur bipolaire en post-DBD dépendent ainsi de la production d'ions par unité de temps pour le terme source et des processus de collection (pertes aux parois) et de recombinaisons pour les termes puits.

- 1) Le terme source dépend des profils de champ électrique dans la décharge qui définissent le nombre de filament par unité de temps, la répartition spatio-temporelle des filaments dans l'espace inter-électrodes à l'origine des nuages d'ions bipolaires et la production d'ions pour chaque filament selon son « environnement électrostatique ».
- 2) Les pertes par répulsions électrostatiques et par diffusion d'une part et la recombinaison d'autre part, contrôlent la décroissance des densités d'ions positifs et négatifs pendant le transport entre la production et l'injection dans le chargeur.

La stratégie de l'étude consiste à jouer sur les paramètres de régulation de la décharge (tension, débit de gaz, fréquence, géométrie des réacteurs) pour maîtriser les variables critiques pour la production, ainsi que sur la géométrie post-DBD qui contrôle

l'entraînement et la diminution des densités d'ions et donc les conditions de charge de l'aérosol qui permettent la neutralisation pour la granulométrie. Par ailleurs, les paramètres de régulation de la décharge affectent aussi bien les processus de production, d'entraînement que de pertes des ions.

Dans l'idéal, il faudrait étudier le couplage des divers processus de production, d'entraînement et de diminution des densités d'ions (pertes et recombinaison) afin d'optimiser le flux d'ions entrant dans le chargeur, critiques en termes de concentration maximale d'aérosols « neutralisables ». Toutefois, les constantes de temps de mesure des courants d'ions en post-décharge sont de l'ordre de 0,1 s, bien au-delà de la durée d'une demi-période de tension (8 μ s) et à fortiori d'un filament (10 ns). Cette dynamique de mesure des courants d'ions en aval des diélectriques intégrés sur toute la section de passage de gaz et moyennés sur 0,1 s ne permet donc pas de caractériser la succession des nuages d'ions positifs et négatifs par demi-période et donc de remonter à l'influence de chaque processus de production, de transport et de diminution des densités d'ions sur le flux d'ion entrant dans le chargeur.

Nous pourrions néanmoins déterminer l'influence des paramètres de régulation de la décharge sur les courants d'ions pour optimiser les flux d'ions entrant dans le chargeur d'une part et hiérarchiser les processus de diminution des densités d'ions à production constante, par variation de la géométrie post-DBD, d'autre part.

L'évaluation des densités d'ions est possible lorsque la vitesse des ions est proche de la vitesse du gaz (i.e. quand les vitesses de dérive électrostatique des ions dans le sens du flux sont négligeables). Comme la charge s'effectue à plus de quelques centimètres de la décharge, le champ de Laplace est négligeable et les ions forment des nuages d'ions bipolaires mélangés homogènes à l'origine d'un champ de charge d'espace négligeable (comme démontré au §V.5). Ainsi, il sera possible d'estimer les densités d'ions dans le chargeur et donc le produit $n_{ions}.\tau$.

Après la présentation du matériel et des méthodes, l'étude se décompose en trois parties :

La caractérisation électrothermique des DBD nous permet de confirmer que les propriétés des décharges étudiées sont identiques aux propriétés connues des DBD, et d'évaluer le terme source (nombre d'ions produits par seconde) et les gammes de températures selon les conditions de fonctionnement de la décharge.

Les courants d'ions en post-décharge sont mesurés après plusieurs minutes, une fois le réacteur à l'équilibre thermique, selon les paramètres de régulation. Ces mesures nous permettent d'identifier les processus dominants le transport des ions dans l'espace inter-électrodes, en post-DBD dans l'espace inter-diélectriques et dans le chargeur. Nous pouvons ainsi définir la configuration de décharge et les gammes de conditions de fonctionnement qui permettent une charge d'aérosol similaire à celle obtenue avec le neutraliseur radioactif de référence pour permettre l'intégration directe du chargeur post-DBD dans un granulomètre, sans modifier le logiciel d'inversion de donnée.

Enfin, des aérosols calibrés en taille, concentration et charge initiale sont injectés dans le chargeur bipolaire afin de mesurer les distributions de charge en sortie selon la tension appliquée à la DBD, le diamètre de particule et la concentration d'aérosol. Enfin, dans les conditions de fonctionnement retenues, des granulométries d'aérosols polydispersés mesurées avec les neutraliseurs DBD et radioactif sont comparées pour démontrer que le chargeur bipolaire post-DBD est utilisable comme neutraliseur pour la granulométrie d'aérosol par distribution de mobilité.

III. Matériels et méthodes

Ce chapitre décrit le dispositif expérimental développé pour comprendre les processus physiques impliqués dans la production par les Décharges à Barrières Diélectriques (DBD) et le transport des ions bipolaires en post-décharge.

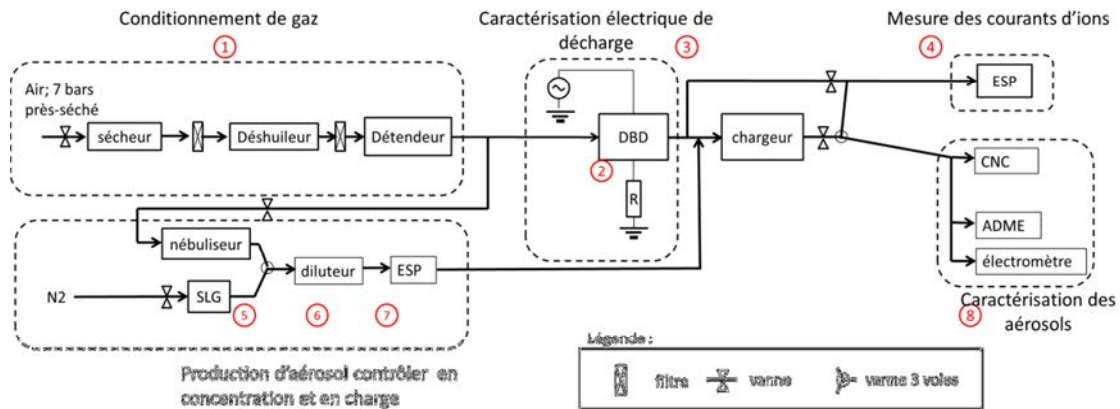


Figure III-1 : schéma du dispositif expérimental

Le dispositif expérimental schématisé sur la Figure III-1 se compose :

- 1 : du circuit de conditionnement du gaz (déshuilage, filtration et séchage)
- 2 : du réacteur à DBD, dont les caractéristiques contrôlent la charge unitaire des filaments et la puissance électrique injectée dans le plasma.
- 3 : un dispositif de caractérisation électrique (résistance, condensateur, sonde HT, oscilloscope, Figure III-4) et thermique de la décharge, pour déterminer les caractéristiques unitaires des filaments et la puissance consommée par la décharge. Ces mesures visent, en particulier, à comparer les distributions des caractéristiques unitaires des filaments de décharge dans les DBD selon la géométrie « filaire » et « planaire » des électrodes. Des thermocouples permettent d'estimer les températures qui affectent la charge par filament, la mobilité des ions et les mécanismes de transport d'ions en post-décharge.
- 4 : un précipitateur électrostatique (ESP) pour la mesure des courants d'ions positifs et négatifs en post DBD afin de caractériser (i) l'évolution des courants d'ions lors du transport depuis la décharge jusqu'au chargeur où se mélangent les ions bipolaires et les aérosols et (ii) les conditions de charge de l'aérosol i.e. les profils de densités d'ions le long du chargeur.
- 5 : des systèmes de production d'aérosols calibrés en taille (nébuliseur et Sinclair Lamer Generator), concentration et charge initiale qui permettent de disposer d'aérosols tests monodispersés avec une concentration stable dans le temps (critique pour la reproductibilité des mesures et la précision des lois de charge dn_p/dq à établir). Ces mêmes

générateurs permettent aussi de produire des aérosols tests poly-dispersés avec une concentration et une distribution en taille stables dans le temps. Cette stabilité est critique pour comparer les granulométries obtenues successivement avec le neutraliseur de référence et le neutraliseur DBD.

6 : d'un diluteur d'aérosol pour contrôler la concentration d'aérosols à neutraliser. En effet, les granulomètres par ADME fonctionnent pour des concentrations d'aérosol de 10^4 à 10^7 cm^{-3} . Il est donc nécessaire de vérifier que la distribution de charge est invariante dans cette gamme de concentration.

7 : d'un ESP qui permet de collecter les particules chargées pour tester la charge sur un aérosol de charge initiale égale à 0 (pas de particule chargée i.e. $f_0 > 99\%$) ou dans un état de charge bipolaire (avec $f_0 \approx 10\%$) si l'ESP n'est pas polarisé. En effet, les deux générateurs sont basés sur la nébulisation d'une solution qui produit un aérosol bipolaire.

8 : d'un dispositif de caractérisation de la distribution de charge des aérosols (ADME, CNC, électromètre) pour caractériser le chargeur, il est nécessaire de mesurer les distributions de charge et de les comparer à celles obtenues avec le neutraliseur radioactif de référence.

III.1. Conditionnement de gaz

L'air injecté dans la décharge provient d'un réseau d'air comprimé à 7 bars, le gaz est ensuite conditionné comme décrit en dessous.

Réduction de la concentration en composés organiques volatils (COV) : ces composés, susceptibles de réagir dans la décharge pour former des espèces à faible pression de vapeur saturante, peuvent conduire à la formation de particules par nucléation réactive. C'est pourquoi l'air, qui peut contenir des traces d'huile du compresseur ou des COV, est traité par un filtre à charbon actif pour piéger l'huile et les COV.

Séchage des gaz : l'injection d'un gaz humide affecte sur les propriétés de la décharge en modifiant la conductivité de surface des diélectriques et les propriétés des ions. En effet, l'adsorption d'eau par les ions modifie les mobilités électriques et mécaniques des ions. Le gaz injectés dans la décharge est donc séché pour garantir une humidité inférieure à $0,005 \text{ mg.L}^{-1}$, soit une humidité relative inférieure à 0,3 % à 20 °C.

Filtration : le gaz doit aussi être exempt de particule pour éviter la collection de particules dans la décharge qui modifie les caractéristiques électriques de celle-ci et donc la production d'ions. En outre, cela constituerait un bruit de fond gênant lors des mesures aérosols. Ainsi,

deux filtres à particules permettent de réduire la concentration de particule de taille supérieure à 20 nm à $n_p < 10^{-2} \text{ cm}^{-3}$ soit 6 ordres de grandeur en deçà des concentrations d'aérosol testées.

Régulation des débits et pressions : en sortie des sécheurs, un détendeur abaisse la pression à 2 bars. Un débitmètre massique impose un débit de gaz entre 0 et 10 L.min^{-1} , à une pression égale à la somme de la pression atmosphérique et de la surpression induite par les pertes de charge dans les éléments situés entre le débitmètre massique et la sortie à pression atmosphérique. (Annexe 5)

La pression dans le réacteur influe sur la densité du gaz et donc sur le champ réduit, qui contrôle la décharge. Par ailleurs, de trop grandes surpressions dans le réacteur risquent de créer des fuites hydrauliques. Ici, la pression relative dans le réacteur (par rapport à la pression atmosphérique) n'excède pas 60 mbar sur toute la gamme de débit (jusqu'à 10 L.min^{-1}) mais reste inférieur à 40 mbar dans les conditions testées ($0,6 \text{ L.min}^{-1}$).

III.2. Réacteur à DBD

III.2.1. Description des réacteur DBD

Le chargeur se compose de :

- 1) La décharge qui produit les ions.
- 2) La zone de transport des ions entre la décharge et le chargeur
- 3) Le chargeur où l'aérosol est mélangé avec les ions et chargé.

La Figure III-2 présente une vue schématique de la source d'ions ainsi que différents paramètres géométriques étudiés pour tester leurs effets sur les flux d'ions injectés dans le chargeur bipolaire en post-DBD.

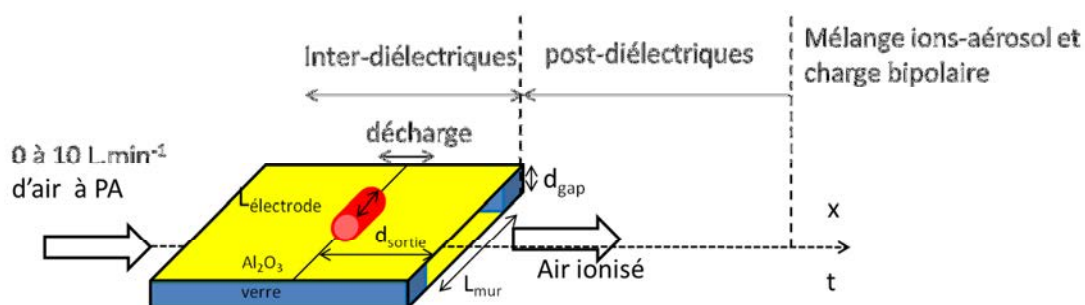


Figure III-2 : schéma d'une source d'ions DBD

Deux réacteur à DBD sont utilisées (cf. Figure III-3) : dans le premier réacteur, les mesures d'ions ne peuvent être effectuées qu'en aval du réacteur (cf. Figure V-2 configuration 1 et

Figure III-3 a) ; le second réacteur est conçu à partir des résultats préliminaires pour limiter la température des effluents et permettre des mesures d'ions en sortie de diélectrique et en sortie du chargeur (cf. Figure V-2 configuration 2 et Figure III-3 b), et est retenu pour la charge d'aérosols. Les deux enceintes sont en métal à la masse (acier inoxydable pour la première et Aluminium pour la seconde). L'étanchéité est assurée par des joints plats et de la pâte de silicone. Dans la première enceinte, le joint plat est placé entre le diélectrique et l'enceinte pour limiter les transferts thermiques et la chaleur de la décharge qui chauffe les diélectriques et le gaz. Dans la seconde enceinte, l'étanchéité est assurée sur les parois extérieures de l'enceinte. Les diélectriques sont maintenus en place dans le système par deux blocs d'aluminium qui évacuent la chaleur et limitent l'échauffement du gaz et des diélectriques.

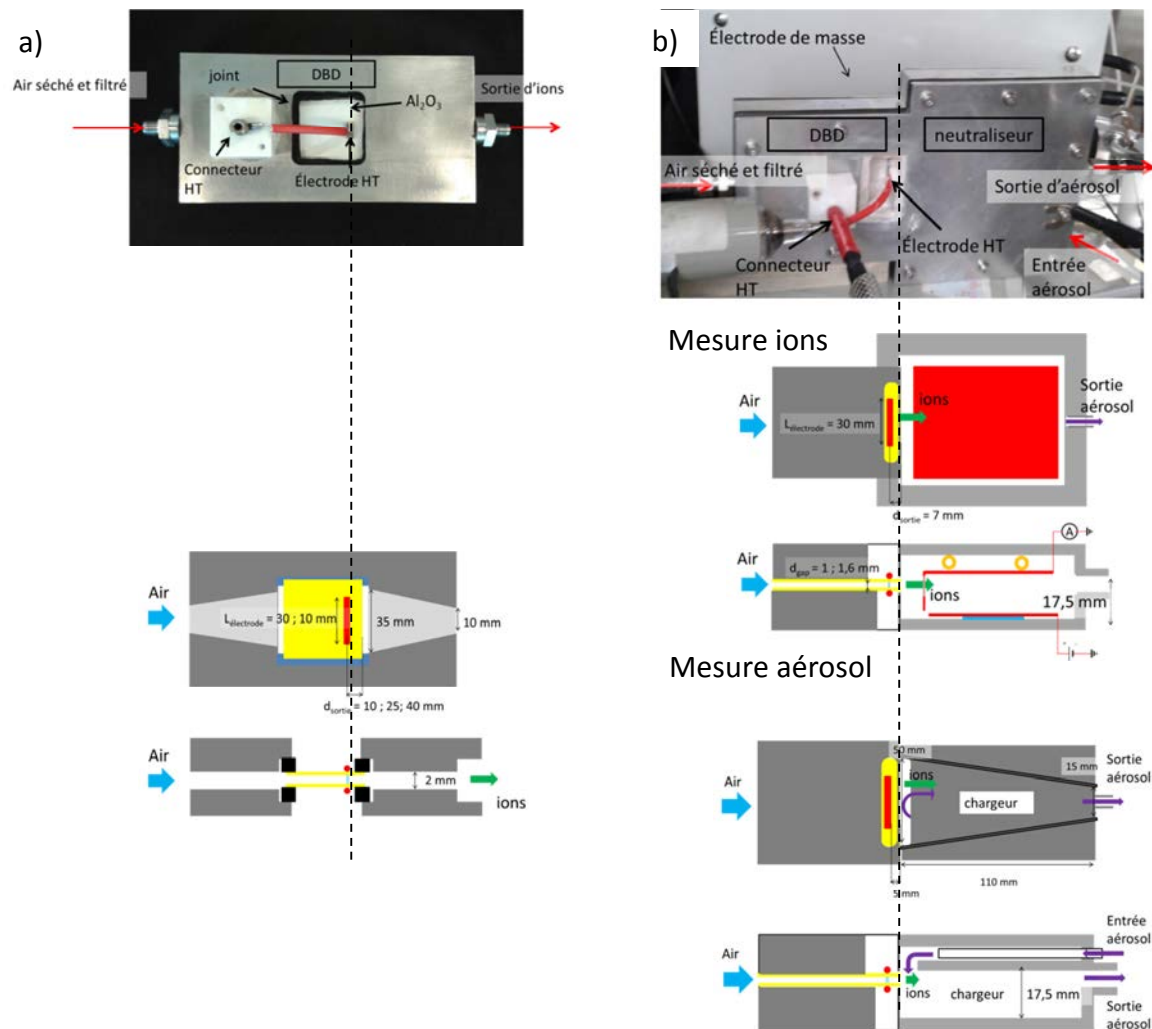


Figure III-3: photographies et schémas de a) du réacteur 1 et b) du réacteur 2

Les DBD sont constituées d'électrodes cylindriques de diamètre 4 mm et de longueur variable (de 1 à 3 cm) positionnée perpendiculairement au flux de gaz. Le diélectrique est de l'alumine choisi pour ses propriétés diélectriques et thermiques, d'épaisseur 0,5 mm afin de limiter les tensions de fonctionnements, tout en conservant une résistance mécanique pour éviter de casser les diélectriques au montage. Des cales latérales de verre confinent le flux de gaz et permettent de contrôler la distance inter-diélectriques. Cette distance inter-diélectriques est l'intervalle gazeux dans lequel se développent les filaments de décharge (cf. Figure III-2).

III.2.2. Contraintes de conception

Les contraintes électriques, mécaniques, thermiques et hydrodynamiques prises en compte pour la conception des réacteurs sont détaillées ci-dessous :

Contraintes électriques : les principaux phénomènes à éviter pour assurer un fonctionnement de la décharge en régime filamenteux sans claquages parasite sont :

- fuites de courant à la surface des parois du réacteur entre l'électrode haute tension et la masse : ces fuites consomment une partie de la puissance fournie par l'alimentation et modifient les potentiels de surface des diélectriques donc les propriétés de la décharge (forme filamentaire du plasma, répartition spatiale et temporelle des filaments, caractéristiques des filaments, caractéristiques électrothermiques) et les pertes d'ions dans l'espace inter-diélectriques.
- claquages à l'extérieur du réacteur, des câbles polarisés à la haute tension vers les masses voisines, ce qui impose soit de supprimer le gaz autour des câbles, soit d'éloigner les masses.
- décharges électriques en dehors de l'espace inter-diélectriques entre l'électrode polarisée et le diélectrique. Les décharges parasites en dehors de l'espace inter-diélectriques créent des points chauds qui renforcent le risque de fracture localisée du diélectrique et de passage à l'arc. Une pâte de silicone est donc placée entre le métal et le diélectrique pour prévenir le développement de ces décharges parasites en dehors de l'espace inter-diélectriques.
- décharges de surface de contournement de l'espace inter-diélectriques longeant les cales de verres qui confinent le gaz : une distance supérieure à 1,5 fois la longueur de l'espace inter-diélectriques a donc été imposée entre le bord de l'électrode et les cales pour éviter ces décharges de surface. Dans ces conditions, la longueur de contournement représente 4 fois la distance inter-diélectriques ($1,5 d_{gap} + d_{gap} + 1,5 d_{gap}$).

⇒ *Contraintes mécaniques* : une fissuration ou une rupture du diélectrique entraîne un passage à l'arc. Or lorsque les diélectriques sont composés d'oxydes métalliques (alumine ou verre), en particulier dans le cas de l'utilisation de plaques fines ($\approx 0,5$ mm), leur résistance aux contraintes de cisaillement doit permettre le montage et démontage sans casse.

Le Tableau III-1 présente les propriétés mécanique et électrique du verre, de l'Alumine et dioxyde de titane.

Tableau III-1: propriété mécanique et électrique des diélectriques testés

matériau	Module d'Young (MPa)	module de cisaillement (MPa)	Permittivité diélectrique relative	Rigidité diélectrique (kV/mm)
Al ₂ O ₃	375-340	140-120	9	10-35
verre	50 - 90	30	4,5	10
TiO ₂	250-300	-	100	-

⇒ *Contraintes pour éviter les contaminations atmosphériques* :

- étanchéité du réacteur : un défaut d'étanchéité peut entraîner l'entrée d'aérosol atmosphérique humide dans le réacteur. L'étanchéité du réacteur est donc assurée par la géométrie des pièces constituant l'enceinte, par des joints et au besoin par un ruban de téflon ou de la pâte de silicone. Afin de minimiser l'introduction d'air ambiant dans le réacteur dans le cas où des micro-fuites demeurent, le réacteur est soumis à une légère surpression.

⇒ *Contraintes pour éviter la contamination par COV* :

- absence de matériaux organiques chauffés au contact des effluents de décharge : une élévation de la température de ces matériaux entraîne en effet l'émission de vapeurs organiques. Pour les réacteurs dans lesquels un fonctionnement à une température supérieure à 40 °C est envisagé, toutes les pièces situées au contact du gaz (entrée et sortie du réacteur, cales) sont donc constituées de métaux ou d'oxydes métalliques dégraissés.

Contraintes thermiques : les limites de température à respecter dans chacun des réacteurs sont fixées selon les matériaux dont il est constitué et les contraintes mécaniques imposées aux diélectriques en cas de chauffage (cf. ci-dessus). Ces limites thermiques conduisent à définir les conditions de fonctionnement des réacteurs (puissance maximale selon le débit de gaz). Les matériaux en contact avec les diélectriques sont du verre ou du caoutchouc qui permettent soit de limiter la dilatation thermique pour le verre, soit d'être souple pour le caoutchouc. D'autre part, les connexions des électrodes sont des soudures à l'étain dont le

point de fusion est à 232°C. Pour tous les réacteurs dans la gamme de débit étudié ($[0 ; 10] \text{ L.min}^{-1}$), la puissance et la température n'excèdent pas 30 W et 130 °C.

Contraintes hydrodynamiques :

- confinement du gaz dans l'espace inter-diélectriques à l'aide de cales latérales parallèles au flux de gaz et donc perpendiculaires aux électrodes,
- au voisinage du Reynolds de transition turbulent ($Re \approx 2000$) le courant d'ions en post-décharge s'écroule (Bourgeois, et al., 2009). Le nombre de Reynolds doit être inférieur au nombre de Reynolds de transition turbulent ($Re \approx 2000$) quel que soit le réacteur. Dans nos conditions, cette condition est respectée pour l'ensemble des réacteurs à un débit inférieur à 10 L.min^{-1} .

III.3. Contrôle de la décharge

Le schéma électrique de caractérisation de la décharge est présenté sur la Figure III-4 : Une sonde haute tension permet la mesure de tension appliquée. Les caractéristiques de décharge sont mesurées soit par une résistance pour la mesure du courant instantané dans le circuit extérieur (interrupteurs sur les positions 1 sur la Figure III-4 :), soit par une capacité pour la mesure de la charge transférée dans le circuit selon la tension instantanée (méthode dite de Lissajous avec les interrupteurs sur les positions 2).

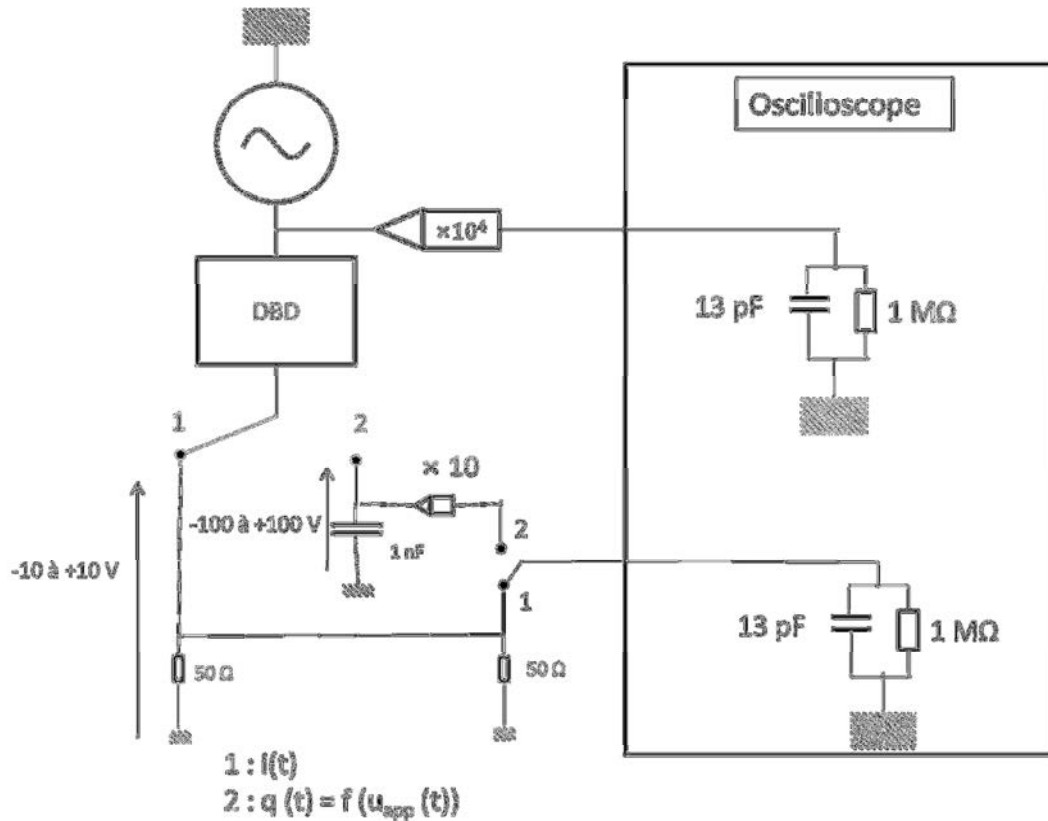


Figure III-4 : montage de caractérisation électrique de décharge

Ce paragraphe est focalisé sur les paramètres de la décharge à mesurer et les méthodes de mesure de ces paramètres à l'aide du montage présenté sur la Figure III-4

III.3.1. Tension et fréquence d'alimentation haute tension

La Décharge à Barrières Diélectriques est alimentée par une haute tension sinusoïdale. Des résultats antérieurs sur l'extraction d'ions par DBD (Bourgeois, et al., 2009) selon la fréquence montrent que le courant d'ions post-DBD est nul en dessous de 10 kHz et augmente avec la fréquence. Cependant, l'augmentation de la fréquence conduit à une élévation de température des surfaces et du gaz qui peut entraîner une modification de l'aérosol (évaporation, sintering...). En effet, la température pour un débit donné dépend au premier ordre de la puissance consommée. La puissance minimum pour une décharge est obtenue lorsqu'un unique filament est présent par demi-période. La puissance, dans ces conditions, est le produit de l'énergie de deux filaments unitaires par la fréquence. Ainsi, la gamme de puissance accessible (et donc de température) est contrôlée par la fréquence. La température de gaz doit être inférieure à 50 °C. Nous avons donc choisi de travailler à une fréquence comprise entre 55 à 65 kHz selon les propriétés du réacteur DBD utilisé pour

lesquelles la température d'électrode est comprise entre 20 et 130 °C avec des températures de gaz, dans le chargeur, inférieures à 50° C à 0,3 L.min⁻¹.

Le diélectrique utilisé est l'alumine. La rigidité diélectrique de l'alumine (champ maximum que peut supporter un diélectrique sans détérioration) est de l'ordre de 20 kV.mm⁻¹. Pour nos réacteurs, nous utilisons 2 plaques d'alumine de 0,5 mm d'épaisseur. Ainsi la tension appliquée doit être au maximum de 10 kV crête, soit inférieur à 20 kV en crête-à-crête.

En raison de la mise à l'équilibre thermique de l'alimentation haute tension, la tension crête-à-crête décroît pendant 2 heures après le 1^{er} allumage de la tension. Après 2 heures de fonctionnement de l'alimentation, la mise à l'équilibre ne dure que quelques minutes.

Les mesures des tensions sont effectuées à l'aide d'un oscilloscope (bande passante : 1GHz ; échantillonnage maximum : 8GS/s ; sensibilité : 1mV à 2V par division).

- La notation $u_{app}(t)$ désigne la tension appliquée.
- La notation $u_{mes}(t)$ désigne la tension mesurée sur l'électrode passive de la décharge (électrode qui n'est pas soumise à la tension appliquée).

III.3.2. Paramètres à mesurer et à calculer

D'après l'étude bibliographique, les paramètres qui permettent de maîtriser les processus d'ionisation, de transferts de masse et de chaleur critiques pour la production et le transport des ions sont :

- L'énergie ($En_{filament}$) et la charge ($q_{filament}$) des filaments qui composent la décharge.
- La puissance totale consommée par la décharge (P_u). Elle représente le paramètre de contrôle généralement utilisé pour la caractérisation des DBD. Dans cette étude, il permet simplement d'évaluer les températures de surface et de gaz lorsqu'une mesure directe n'est pas possible (cf. §IV.4).

L'objectif de cette étude est de produire des ions pour neutraliser un aérosol. Le courant de décharge ($I_{décharge}$) relatif à la totalité des charges produites dans le gap ($I_{décharge} = f_r \times \sum_{période} |q_{fil}|$) doit donc être mesuré. C'est le paramètre choisi pour caractériser les DBD.

Dans le cas d'une décharge à barrières diélectriques, le courant mesuré à l'oscilloscope est un courant d'influence puisque aucune charge ne traverse les diélectriques. Ce courant est la somme d'un courant capacitif sinusoïdal déphasé de $\pi/2$ par rapport à la tension et du courant impulsionnel induit par le mouvement des charges dans l'espace inter-diélectriques pendant le développement des microdécharges.

Les propriétés des diélectriques modifient la contribution au courant mesuré des charges présentes dans l'espace inter-diélectriques, il est donc nécessaire d'introduire la notion de courant réel. Le courant réel est défini comme le courant qui serait induit dans le circuit extérieur uniquement par le déplacement des charges dans l'espace inter-diélectriques en champ homogène. On introduit donc un facteur de correction $\alpha_{\text{gaz}}^{\text{ext}}$ pour corriger les valeurs de charge mesurées (Bibinov, et al., 2001) (détermination en Annexe 6).

La méthode de la figure de Lissajous, détaillée ci-dessous (aussi appelée diagramme Q-U) permet de remonter à la valeur de ce facteur correctif.

III.3.3. Méthode de Lissajous

La méthode de Lissajous permet de déterminer, la puissance, le courant de décharge ainsi que les capacités des diélectriques et du réacteur.

La méthode consiste à placer un condensateur entre l'électrode passive et la masse (cf. Figure III-4 : position 2).

Dans le cas de décharges symétriques en régime filamentaire alimentées par une tension sinusoïdale, la figure de Lissajous se présente sous la forme d'un parallélogramme ((Kogelschatz, et al., 1997) ; (Manley, 1943); (Falkenstein & Coogan, 1997)). Une caractéristique classique obtenue est présentée sur la Figure III-5 : pour une période du signal de tension.

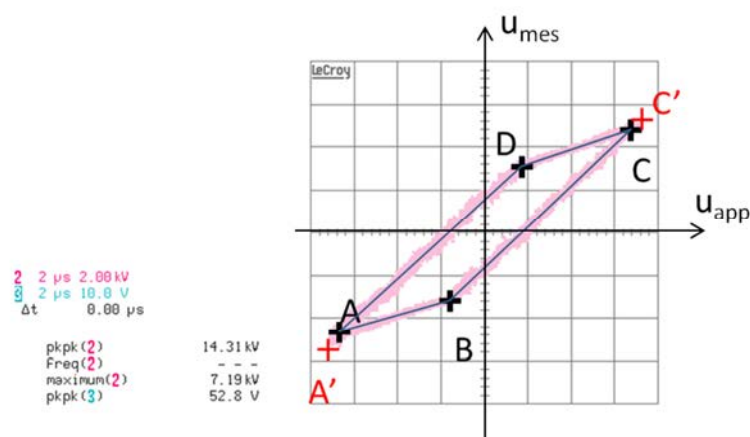


Figure III-5 : figure de Lissajous sur 1 période pour $U_{cc} = 14.3 \text{ kV}$ et $f_r = 60 \text{ kHz}$

L'axe des ordonnées représente la tension mesurée aux bornes du condensateur et est reliée à la charge qui transite dans le circuit extérieur par $q = C_{\text{cond}} \times u_{\text{mes}}(t)$ (Le choix du condensateur est justifié en Annexe 6).

L'axe des abscisses représente la tension appliquée sur l'électrode haute tension de la DBD. La différence de potentiel entre les deux électrodes de la DBD est $u_{DBD} = u_{app} - u_{mes}$ avec $|u_{app}| \sim 0 \text{ à } 10 \text{ kV}$; $|u_{mes}| \sim 0 \text{ à } 100 \text{ V}$ C'est-à-dire que $u_{DBD} \approx u_{app}$ (dans la suite, nous utiliserons cette approximation).

Sur ce cycle, 6 points particuliers sont définis (cf. Figure III-5 :) :

- A, B, C, D qui représentent les sommets du parallélogramme,
- A' et C' dont les coordonnées dans l'espace (u, q) sont $(U_{min}; q_{min})$ et $(U_{max}; q_{max})$.

La différence entre les points A et A' ainsi que C et C' est liée à la probabilité d'allumage des filaments au maximum de tension. En effet, la charge mesurée sur le condensateur correspond à l'intégrale du courant dans le circuit extérieur. Ce courant se compose du courant impulsionnel et du courant capacitif. Entre la tension du dernier filament d'une demi-période et le maximum de tension, seul le courant capacitif contribue à la variation de charge mesurée par le condensateur. Ainsi, les points A et C représentent les valeurs de tensions correspondant aux derniers filaments des demi-périodes alors que les points A' et C' représentent les valeurs de tensions correspondant au maximum et au minimum de tension.

La tension crête-à-crête est définie par $U_{cc} = U_{max} - U_{min}$

L'aire du cycle $q = f(u_{app})$ correspond alors à l'énergie fournie par le générateur pendant une période du signal de tension. La puissance représente l'énergie consommée par unité de temps c'est-à-dire le produit de l'énergie par période et de la fréquence :

$$P_u = f_r \times E n_{période} \quad III-1$$

Le dernier paramètre qui peut être déterminé par la méthode de Lissajous est le courant décharge ($I_{décharge}$). Ce courant est calculé à partir de la charge totale qui a transité dans le circuit extérieur (charge des filaments et charge correspondant au courant capacitif) $\Delta q_{période} = 2(q_{max} - q_{min})$. À cette valeur, la composante de charge liée au courant capacitif est soustraite, puis la valeur obtenue est corrigée avec le facteur $\alpha_{gaz/ext}$ pour obtenir la charge transférée dans le gaz pendant une période. Pour obtenir le courant, il faut multiplier cette charge par la fréquence.

$$I_{décharge} = 2 \times f_r \times \alpha_{gaz/ext} \times ((q_{max} - q_{min}) - C_{DBD}^{off} \times U_{cc}) \quad III-2$$

III.3.4. Mesure de $i(t)$

La charge de chaque filament appelée charge unitaire est estimée à partir de la mesure de l'évolution temporelle du courant, c'est-à-dire de la tension aux bornes d'une résistance de mesure ($R_{mes} = 25 \Omega$ cf. Figure III-4 :). Pour la caractérisation électrique des DBD, 2 échelles de temps sont utilisées :

- période ($\approx 17 \mu s$) observée sur le calibre $5 \mu s/\text{carreau}$,
- filaments ($\approx 20 \text{ ns}$) observés sur le calibre $5 \text{ ns}/\text{carreau}$.

III.3.4.1. À l'échelle de la période,

La puissance et la capacité en régime capacitif sont mesurées et moyennées sur plusieurs milliers de périodes.

La capacité du système est définie par :

$$C_{DBD}^{off} = \frac{U_{mes} CC}{U_{app} CC \times R \times 2\pi f_r} \quad III-3$$

La puissance, fournie par l'alimentation électrique, est calculée sur un nombre entier de périodes du signal de tension (noté n) par la moyenne du produit de la tension $u(t)$ imposée entre les électrodes par le courant $i(t)$ mesuré dans le circuit extérieur, soit :

$$P_u' = \frac{f_r}{N} \int_0^{N/f_r} \left(u_{app} \times \frac{u_{mes}}{R_{mes}} \right) dt \quad III-4$$

La Figure III-6 présente une comparaison des deux méthodes de mesure de la puissance : la moyenne du produit du courant par la tension et la figure de Lissajous.

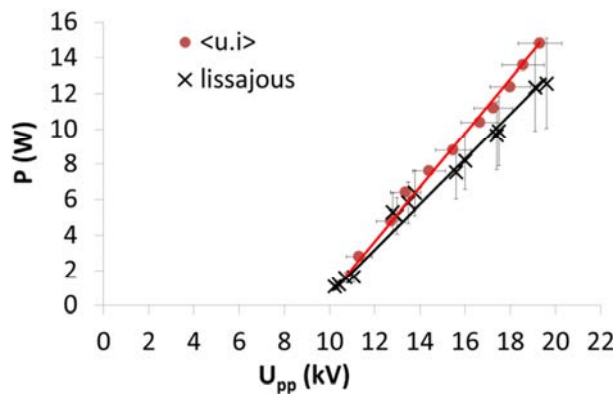


Figure III-6 : P_u selon la tension par $\langle u.i \rangle$ et par la figure de Lissajous

Sur la Figure III-6, les puissances mesurées entre les deux méthodes diffèrent au maximum de 20 % comme déjà mis en évidence (Jidenko, 2004).

Les écarts entre ces deux mesures sont liés aux incertitudes de mesure de P_u et P_u' . Pour P_u' , l'incertitude de mesure est liée au fait que la moyenne du produit du courant par la tension n'est pas effectuée sur un nombre réellement entier de périodes et à la résolution de la mesure. Pour P_u' , la position des points A, B, C et D définissant le parallélogramme sur la figure de Lissajous est précise à moins de 3% près c'est-à-dire que l'erreur maximale sur la puissance est de 24 % (4 points * 2 coordonnées * 3% de précision). Enfin, la figure de Lissajous n'est pas toujours un parallélogramme idéal ajoutant également à l'incertitude. Enfin, le rapport du courant de décharge par la puissance, donne la tension de conversion.

III.3.4.2. *Caractéristiques moyenne des filaments unitaires*

À l'échelle du filament, nous mesurons l'amplitude de courant : I_{fil} ; le temps de montée : t_m ; et le temps caractéristique de décroissance exponentiel : t_{exp} .

L'amplitude du filament est définie comme la différence entre le maximum du pic de courant et la valeur de la composante capacitive. Les impulsions de courant peuvent être représentées comme une montée linéaire avec un temps de montée t_m et d'une décroissance exponentielle avec un temps caractéristique t_{exp} . Le filament est décrit sur la (Figure IV-9).

La charge du filament unitaire est définie par l'intégrale de la tension mesurée pour un filament divisée par la résistance et corrigée pour le facteur ($\alpha_{gaz/ext}$) défini précédemment. Ainsi les valeurs du courant maximum du filament, sa charge et son énergie sont :

$$I_{fil} = \alpha_{\frac{gaz}{ext}} \times \frac{U_{fil}}{R} \quad III-5$$

$$q_{fil} = \alpha_{\frac{gaz}{ext}} \times \frac{U_{fil}}{R} \left(\frac{t_m}{2} + t_{exp} \right) \quad III-6$$

$$E_{fil} = q_{fil} \times V_{conv} \quad III-7$$

La charge totale transférée par période est obtenue en intégrant l'ensemble des charges des filaments qui ont lieu au cours d'une période. Le courant de décharge transféré dans le circuit extérieur est déterminé en multipliant la charge totale transférée par la fréquence. Ensuite, si ce courant est multiplié par le facteur correctif et la fréquence pour obtenir le courant de décharge. Cependant, les charges par filament calculées se basent sur la mesure d'un courant principalement électronique conduisant à une mesure du courant de décharge inférieur à la valeur déterminée par Lissajous. De plus, cette méthode de détermination de la charge par période présente l'inconvénient que la précision de la méthode nécessite de bien séparer la fraction du courant impulsionnel du courant capacitif. En effet, à forte tension (ou

pour un écart entre la tension de travail et la tension d'extinction important de l'ordre de 3 kV) le temps entre deux filaments devient inférieur à la durée d'un filament (20 ns) et il devient difficile de retirer la ligne de base sans passer par un traitement de signal comme défini lors de précédentes études (Jidenko, et al., 2006).

III.3.5. Température

Un thermocouple est mis en contact avec l'électrode de mesure. L'ajout du thermocouple produit un artefact de mesure des impulsions à moyenne nulle diminuant la précision des mesures de charge unitaire mais qui n'affecte pas la figure de Lissajous : L'étude des caractéristiques filamenteuses s'effectue donc séparément de la caractérisation thermique.

La température d'électrode ainsi mesurée est une image de la température de surface des diélectriques qui contrôle au premier ordre la température du gaz. Or, la température joue sur l'ensemble des processus impliqués dans la production, l'entraînement et la diminution des courants d'ions dans le système. De plus, le diamètre d'aérosols composés de liquide peut évoluer par évaporation ou condensation. Il est donc critique de ne pas mélanger de gaz chaud avec l'aérosol à caractériser (dans l'idéal il faut travailler avec une température du gaz porteur des ions égale à la température du gaz contenant l'aérosol).

III.4. Caractérisation des ions bipolaires en post-décharge

Notre objectif est d'optimiser l'extraction des ions de la décharge et les conditions de mélange post-décharge avec les aérosols. L'un des paramètres critiques qui contrôle la charge des aérosols est la densité d'ions « vue » par l'aérosol pendant son transit.

L'estimation de la densité d'ions est réalisée à partir des mesures de courants d'ions si la vitesse des ions est proche de la vitesse du gaz. Dans ce cas, la densité d'ions s'écrit :

$$n_{ions} = \frac{I_{ions}}{eQ} \quad III-8$$

Avec I_{ions} le courant d'ions positifs/négatifs (A) ; $e=1,6 \cdot 10^{-19}$ C la charge élémentaire et Q le débit ($m^3 \cdot s^{-1}$).

Cependant, les ions sont également soumis à une vitesse de diffusion et de dérive électrostatique (cf. §I.3). En particulier, des mesures de courant à 0 L.min⁻¹ en sortie des diélectriques nous prouve que ces processus ne sont pas négligeables sur les espèces du gaz et en particulier sur les ions en sortie de diélectrique (cf § V.2.2 et V.4). Ainsi, par la suite, les mesures sont présentées en courant. Les résultats présentés en densités calculées à partir

de l'équation III-8 permettent seulement de discuter en termes d'ordre de grandeur afin d'évaluer le produit $n_{ions} \cdot \tau$ critique pour la charge des aérosols.

III.4.1. Mesure des courants ioniques positifs et négatifs en post-DBD

Pour définir les profils de densités d'ions de chaque polarité dans le chargeur bipolaire, nous avons choisis de caractériser les courants d'ions positifs et négatifs. Le caractère bipolaire des nuages d'ions impose de séparer les ions des deux polarités afin de déterminer les courants d'ions négatifs et positifs.

Pour cela, un précipitateur électrostatique (ESP : ElectroStatics Precipitator) a été dimensionné. Le principe (Annexe 7) est de séparer les ions dans un champ électrostatique et de mesurer consécutivement les polarités positives et négatives. L'ESP est composé d'une électrode polarisée (tension V_{ESP}) et d'une électrode à la masse appelée électrode de mesure connectée à un électromètre. Le précipitateur électrostatique présente la caractéristique $I(V_{ESP})$ suivante (testé en post-source radioactive à 4 L.min⁻¹) :

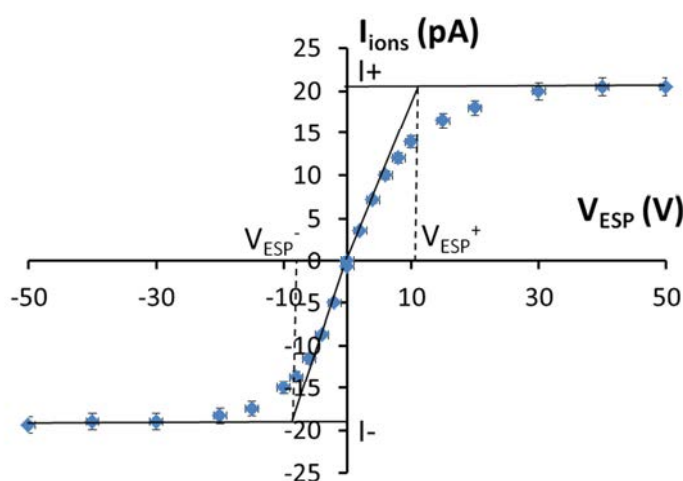


Figure III-7 : caractéristique $i_{ions}(V_{ESP})$ post-source radioactive à 4 L.min⁻¹

A tension d'ESP nulle (Figure III-7), le courant mesuré correspond à la résultante de la diffusion des ions sur l'électrode de mesure qui dépend des coefficients de diffusion et des densités des ions positifs et négatifs. Comme les coefficients de diffusion dépendent de la polarité (cf. Tableau II-5§ 1.2.5.3) et que les densités d'ions positifs et négatifs ne sont pas égales (sur la Figure III-7 $I_{ions}^{+} = 21\text{pA}$ et $I_{ions}^{-} = 19\text{pA}$ soit un écart de 2 pA soit ~10%).

Pour chaque polarité, à tension croissante, le courant d'ions augmente jusqu'à la collection totale des ions. La tension de collection totale dépend de la géométrie, du débit d'ions et de la mobilité des ions. Les différentes causes d'artefact de mesure et les moyens mis en place

pour les éviter sont présentés en Annexe 7 . Les valeurs de courants mesurés pour des tensions supérieures aux tensions de collection totale (i.e. sur les plateaux) correspondent aux flux total d'ions positifs et négatifs en entrée d'ESP.

III.4.2. Contraintes

Les sources d'ions DBD sont comparées au neutraliseur Krypton TSI 3077. La source ^{85}Kr produit un nuage d'ions bipolaires avec une densité de l'ordre de 10^{13} m^{-3} (Modesto-Lopez, et al., 2011) (de La Verpilliere, et al., 2015). La concentration maximale d'aérosol neutralisable pour un débit donné est contrôlée par le nombre de charges créées par unité de temps et de volume. Pour la source radioactive cette valeur est de $9,4 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ soit un courant entrant dans le neutraliseur équivalent à 1,5 nA. Ainsi, pour atteindre une densité d'ions équivalente à la densité dans la source radioactive pour un débit de $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$, il est nécessaire d'atteindre un courant d'ions de l'ordre de 150 pA à l'entrée du chargeur pour un débit de $0,6 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ (correspond au débit de travail comme justifié au § V.6.2).

Deux modèles d'électromètre (Keithley 610C et 6514) sont utilisés. La précision de mesure de ces électromètres (qui dépend du calibre) est inférieure à 1 pA dans nos conditions. Les courants mesurés varient de 1 pA à 10 nA. Le bruit de fond de mesure doit être inférieur à 10% de la mesure, c'est-à-dire 0,1 pA. Les causes de bruit de mesure sont :

- *Courant de conduction* entre les éléments polarisés (l'électrode polarisée, dépôt d'ions sur les diélectriques, potentiel résiduel sur le blindage à cause de la résistance non nulle des connexions entre le blindage et la terre ...) et l'électrode de mesure : en assumant que la décharge et l'ESP sont séparés par une résistance infinie entre les électrodes de décharge et les électrodes de l'ESP, le potentiel le plus important est celui de l'électrode polarisée. La tension de travail pour collecter tous les ions est de l'ordre de 100 V. Pour obtenir un courant de conduction inférieur à 0,1 pA, il est nécessaire que la résistance entre les différents éléments de l'ESP soit supérieure à $10^{15} \Omega$.
- *Courant capacitif de charge du système de mesure* : le système de mesure se comporte comme un circuit composé d'un condensateur (les deux plaques du précipitateur) et d'une résistance correspondant à l'impédance d'entrée de l'électromètre. Ainsi, chaque variation de tension entraîne la présence d'un courant de charge ou de décharge du condensateur qui évolue pendant plusieurs minutes jusqu'à une valeur nulle.

- *Courant induit* par les sources de rayonnements électromagnétiques ambiants (50 Hz, Radio, mobile, ...), et produits par l'alimentation haute tension à 60 kHz et par les filaments de décharge. Le déplacement des électrons à des vitesses pouvant atteindre 10^6 m.s^{-1} est à l'origine d'un champ rayonné à très haute fréquence (GHz) de très faible intensité mais reproduit à chaque filament.

Ainsi, l'isolation des électrodes de l'ESP est réalisée avec des diélectriques (Téflon, polyacétal, Mylar, céramique) (d sur Figure III-8) qui permettent d'assurer des résistances supérieures à $10^{15} \Omega$. De plus, une électrode de garde (c sur Figure III-8) connectée à la masse est placée entre l'électrode de mesure (b sur Figure III-8) et l'électrode polarisée (a sur Figure III-8) afin de capter les courants de fuite.

Les mesures sont effectuées lorsque le système est à l'état quasi-stationnaire (10 min pour l'ESP utilisé avec le premier réacteur pour les mesures à 10 cm de la décharge et 1 min pour l'ESP utilisé pour les mesures dans le second réacteur avec des mesures à 2 cm de la décharge, après la mise à l'équilibre de la décharge (cf. § IV.2).

- La Figure III-8 présente le montage de mesure d'ion dans premier réacteur (cf. §III.2.1). Le principe de mesure dans le second réacteur (cf. §III.2.1) est similaire. L'ESP est placée dans une cage de Faraday (cage en métal) à la masse (1) afin de s'affranchir des rayonnements électromagnétiques ambiants et les retours de courants rayonnés par les câbles de mesures. La principale différence entre le premier et le second réacteur est que la cage de Faraday pour limiter l'influence du rayonnement de la décharge est remplacé dans le second réacteur par une séparation en métal à la masse. L'alimentation stabilisée (2) et l'électromètre (3) sont positionnés sur un même plan de masse (4) pour limiter les différences de potentiel entre les masses des appareils qui conduisent à des courants artéfactuels.

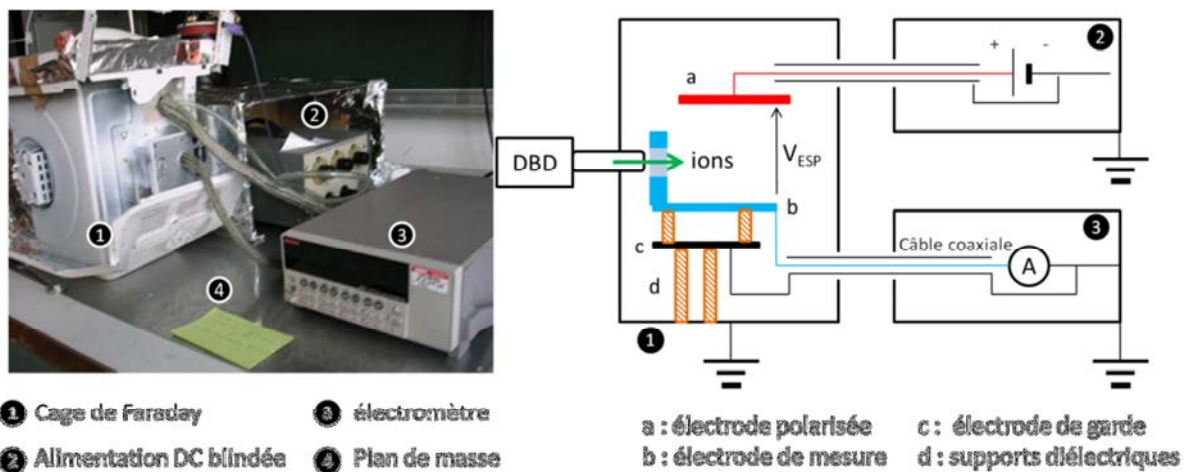


Figure III-8: schéma de la mesure des courants d'ions utilisée avec le premier réacteur.

Ainsi, les courants d'ions positifs et négatifs sont mesurés pour une tension d'ESP supérieure à la valeur nécessaire pour atteindre les plateaux (de l'ordre de 100 V cf. Figure III-7) pour un temps supérieur à la mise à l'équilibre de l'ESP.

III.5. Aérosol

III.5.1. Générateurs d'aérosols tests calibrés

Afin d'étudier la charge et la granulométrie d'aérosol, deux générateurs calibrés en diamètre et en concentration sont utilisés.

1) Nébuliseur (marque TSI ; modèle 3075/3076)

Ce générateur permet à partir d'une solution de produire un nuage de gouttes liquides dont la distribution de taille est unimodale polydispersée (principe en Annexe 8).

Trois solutions sont utilisées ici :

- De l'huile d'arachide. Avec l'huile peu volatile, la taille des gouttes évolue peu par évaporation avant injection dans le chargeur ainsi l'aérosol d'huile reste unimodal polydispersé de diamètre modal de 300 nm ($\sigma_g=1,45$).

- Une solution d'eau salée qui conduit après séchage des gouttes d'eau à un aérosol de sel unimodal de diamètre modal qui dépend de la concentration de sel et du temps de transit des aérosols. Pour une concentration de sel de 500 mg/L, le mode est centré sur 50 nm et ($\sigma_g=1,7$).

- Une suspension de bille de polystyrène ou de SiO_x . Ces suspensions conduisent à des aérosols tri-modaux (cf. Figure III-9c) : un mode fin (< 50 nm) correspondant aux impuretés de l'eau et au surfactant contenu dans la solution mère de la suspension (son intensité dépend de la pureté de l'eau utilisée et du temps de fonctionnement du nébuliseur), un mode correspondant au diamètre des billes en suspension et des modes correspondant aux modes d'agglomération des billes (son intensité dépend de la dilution appliquée à la solution mère pour produire la solution de travail).

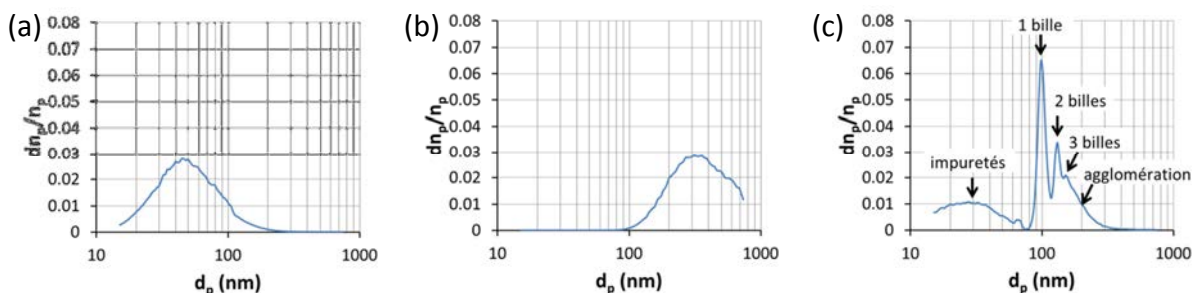
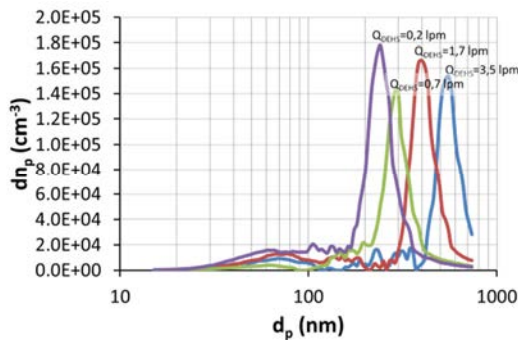


Figure III-9: granulométrie de la nébulisation (a) d'une solution de sel, (b) d'huile et (c) d'une suspension de bille de Polystyrène de 100 nm

2) Générateur par évaporation-condensation (Sinclair-Lamer Generator = SLG)

Ce générateur permet, à partir d'un cycle d'évaporation et de condensation de DEHS sur un aérosol unimodal (post-nébuliseur) de sel, de produire un aérosol monodispersé de taille contrôlée. Le principe du SLG est présenté en Annexe 9 . La taille de l'aérosol dépend, au premier ordre, du rapport de la concentration de vapeur de DEHS sur la concentration de noyau de sel c'est-à-dire de la quantité de vapeur condensable par noyau de condensation :

- La concentration de noyau de sel dans le condenseur dépend des pertes d'aérosol entre le nébuliseur et le condenseur. Ces pertes dépendent au premier ordre de la taille de l'aérosol c'est-à-dire de la concentration de sel dans la solution du nébuliseur.
- la concentration de vapeur de DEHS est contrôlée par la température d'évaporation et par la dilution des vapeurs avant la condensation. La Figure III-10 présente les diamètres obtenus pour une température du DEHS de 140°C, selon la dilution de vapeur contrôlée par le débit volumique.



Q_{total} (L.min ⁻¹)	$Q_{\text{saturateur}}$ (L.min ⁻¹)	d_p^{mode} (nm)	σ_g	n_p (10 ⁶ cm ⁻³)
3,5	3,5	532	1,14	1,87
	1,7	400	1,2	2,21
	0,7	290	1,25	1,75
	0,2	240	1,27	2,69

Figure III-10: granulométrie en sortie de SLG selon la dilution de vapeur de DEHS

Il convient de souligner que les tests de comparaison du neutraliseur radioactif et DBD avec le SLG sont effectués avec une concentration et un diamètre constant.

III.5.2. Contrôle de concentration et de charge initiales

Pour cette étude, la concentration d'aérosol est contrôlée entre 10³ et 10⁷ cm⁻³. Les concentrations produites par les générateurs d'aérosols sont supérieures à 10⁶ cm⁻³. Une dilution est alors nécessaire pour atteindre les concentrations requises. La concentration en sortie de dilution est mesurée grâce à un compteur optique (un compteur de noyaux de condensation -CNC 3022 (cf. Annexe 1).

Un neutraliseur idéal doit conférer à un aérosol une distribution de charge pour chaque diamètre indépendant de la charge et de la concentration de l'aérosol à neutraliser. Ainsi,

pour valider le fonctionnement du chargeur bipolaire, la charge de l'aérosol injecté peut être :

- La charge initiale l'aérosol en sortie de générateur. La distribution de charge de l'aérosol en sortie de nébuliseur et de SLG est une distribution de charge bipolaire.

- Aérosol non chargé : le principe est d'injecter l'aérosol dans un ESP. Les particules chargées sont collectées. L'aérosol possède alors une fraction de particule non chargées supérieure à 99%.

Pour valider les méthodes de détermination des distributions de charge bipolaire et valider les résultats de distributions de taille obtenues avec le neutraliseur DBD, chaque aérosol est neutralisé successivement par la source radioactive de référence et le neutraliseur DBD.

III.5.3. Caractérisation de l'état de charge des aérosols

Trois instruments sont utilisés pour caractériser les aérosols : le compteur de noyaux de condensation (CNC 3022 TSI) pour la mesure de concentration de l'aérosol ; l'analyseur différentiel de mobilité électrique (ADME colonne TSI 3071 cf. I.1.2.3.c) pour mesurer la distribution de charge et un électromètre pour mesurer la charge nette moyenne de l'aérosol.

L'objectif est de déterminer les paramètres de la distribution gaussienne de charge (Annexe 10):

- $\langle q \rangle$ (la charge moyenne) ;
- σ (L'écart type de la distribution) ;
- $f_{\langle q \rangle}$ (la hauteur modale) normalisée ($\sum_{-\infty}^{+\infty} f_q = 1$).

Avec l'hypothèse qu'il est possible de substituer la somme par l'intégrale, la fonction de distribution gaussienne s'écrit alors :

$$f_q = \frac{n_q}{n_{tot}} = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} * e^{\left(-\frac{(q-\langle q \rangle)^2}{2\sigma^2}\right)}$$

Ainsi pour pouvoir construire l'ensemble de la distribution, il faut déterminer $\langle q \rangle$ et σ .

Afin de limiter les erreurs de détermination de charge moyenne et d'écart-type, nous mesurons successivement la distribution de mobilité d'aérosol monodisperse en polarité positive et négative avec l'ADME. Le principe de l'ADME est de mesurer l'évolution de la concentration d'aérosol lorsque la tension appliquée à l'ADME varie Figure III-11.

$V_{ADME} < 0 \rightarrow$ concentration d'aérosol positif $V_{ADME} > 0 \rightarrow$ concentration d'aérosol négatif

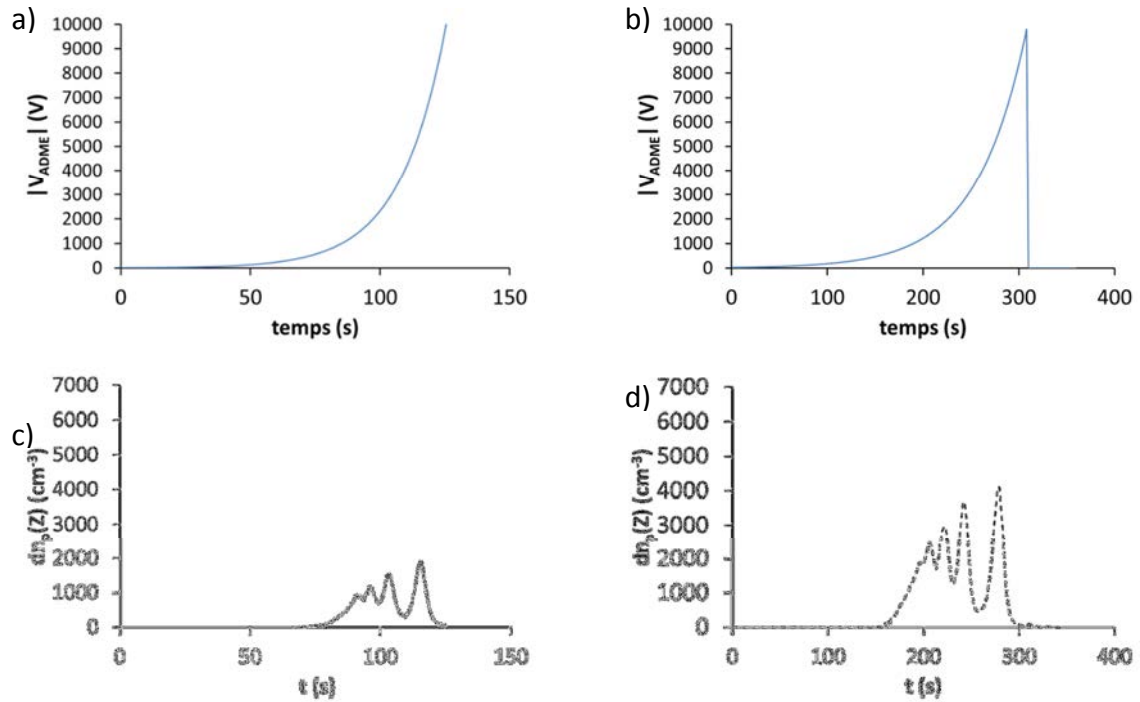


Figure III-11: évolution de V_{ADME} (a)(b) et mesure de n_p en sortie d'ADME correspondante (c)(d)

Chaque temps correspond alors à une tension dans l'ADME et donc à une gamme de mobilité électrique définie. Ainsi, le temps est converti en mobilité électrique (Figure III-12).

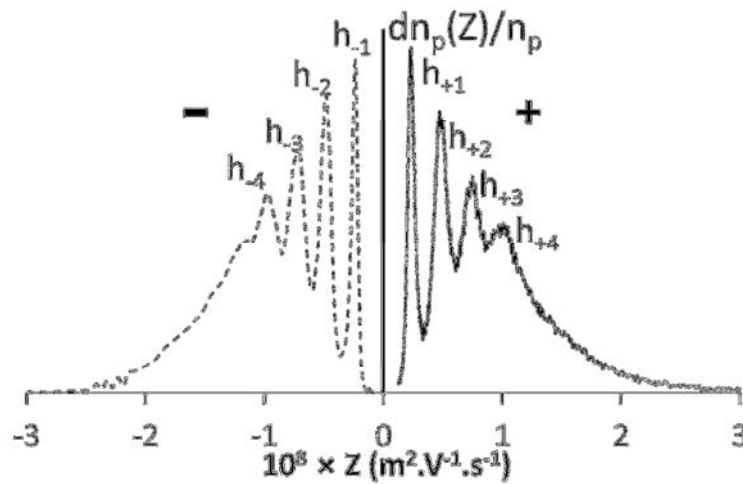


Figure III-12 : distribution de mobilité d'un aérosol monodisperse de 514 nm en sortie d'ADME

La mesure des aérosols de charge positive s'effectue avec la source de tension fournie pour le granulomètre TSI. La distribution de mobilité permet alors de remonter à la granulométrie de l'aérosol. Pour la mesure de polarité négative, nous utilisons une alimentation HT séparée pour laquelle il est nécessaire d'ajuster les temps de croissance de la tension. Nous

imposons ces temps pour que la concentration mesurée pour une tension pendant le spectre corresponde à la valeur obtenue à tension fixe à l'équilibre (soit une évolution de 0V à 10 kV en 310 s). La différence d'évolution de la tension entre les polarités positive (évolution de 0V à 10 kV en 125 s) et négative (Figure III-11 a et b) engendre une différence artéfactuelle de concentration entre les deux polarités (Figure III-11 c et d). Pour remonter à la distribution de charge, la polarité positive est corrigée par le rapport entre la concentration du mode +1 sur le spectre de mobilité (Figure III-12) et la concentration mesurée pour un suivi de concentration de ce mode à tension fixe.

Les valeurs des modes des distributions de mobilité sont ensuite retraitées pour tracer les distributions de charge par particule (cf. § VI.2.2).

III.6. Conclusions

Nous avons établi des protocoles de montage de décharge dans deux réacteurs qui permettent de produire et d'extraire les ions bipolaires. Les méthodes de caractérisations de la décharge permettent de déterminer les propriétés unitaires des filaments, la puissance et le courant de décharge relatif à la production de charge par la DBD. Ensuite, nous avons développé un dispositif de mesure d'ions proche d'une source rayonnante permettant de mesurer séparément les courants d'ions bipolaires en sortie de décharge avec une précision inférieure à 1 pA. Enfin, nous avons mis en place un dispositif de production d'aérosol contrôlé et développé des méthodes de détermination des distributions de charge qui permettent la validation de la neutralisation post-DBD pour la granulométrie.

L'étude se décompose ainsi en trois volets :

- la caractérisation des décharges « fil-fil » utilisées dans cette étude,
- les mesures d'ions en post-décharge afin de déterminer les processus dominant le transport des ions et pour établir les conditions de fonctionnement de la décharge pour la charge bipolaire,
- la caractérisation du chargeur bipolaire pour la neutralisation et la granulométrie d'aérosol.

IV. Caractérisation électro-thermique de Décharge à Barrières Diélectriques

Ce chapitre vise à caractériser les DBD "fil-fil" (2 plans d'alumine polarisés par des électrodes cylindriques de 4 mm de diamètre) utilisées dans cette étude afin de produire les ions bipolaires. La stratégie est d'évaluer l'influence des paramètres de régulation de la décharge sur le courant de décharge relatif à la production d'ions et sur la répartition spatio-temporelle des filaments qui influe sur l'extraction des ions. Les propriétés des DBD plan-plan étant bien maîtrisées et documentées (cf. I.2), ces décharges serviront de base de comparaison pour analyser les propriétés des DBD fil-fil (forme filamentaire du plasma, répartition spatiale et temporelle des filaments, caractéristiques électriques des filaments, couplages électrothermiques).

Pour cela, les caractéristiques de décharge mesurées sont : la tension d'allumage du premier filament de la demi-période relative à la valeur du champ réduit en un point, la charge par filament qui correspond à la production locale de charge, le courant de décharge qui traduit la production de charge par unité de temps, la puissance relative à l'énergie consommée qui contrôle les températures de gaz et de surface.

IV.1. Justification de la géométrie "fil-fil"

La densité d'ions (n_{ions}) est évaluée en aval de l'espace inter-diélectriques, à partir de la mesure du courant d'ions en post-décharge (I_{ions}). Des résultats préliminaires montrent un effet négligeable de la surface d'électrode (à 1 L.min⁻¹, d_{gap} = 1 mm : 3 cm² I_{ions} [10 ; 100] pA et pour 0,3 cm² [20 ; 40], soit un facteur 2 sur le courant I_{ions} pour un facteur 10 sur les surfaces) pour une distance constante entre la décharge et la sortie des diélectriques. Nous avons interprété ce résultat par le fait que les filaments les « plus proches » de la sortie de l'espace inter-diélectriques contribuent majoritairement au courant d'ions mesuré en post-DBD.

Après des tests (non présentés) avec des couples électrodes : fil-fil de 10 µm de diamètre ou plan-plan de 4 mm de large, nous avons retenu des électrodes cylindriques (4 mm de diamètre), colinéaires, posées sur des plans d'Al₂O₃ de 0,5 mm d'épaisseur (en raison de ses propriétés thermiques, électriques et mécaniques cf. Tableau III-1) afin de :

- diminuer la puissance consommée (i.e. la température) par rapport à des électrodes de surface plus grande, qui produisent un courant d'ions positifs et négatifs plus grand mais augmente la température du gaz et du panache ionique en sortie de DBD pouvant altérer l'aérosol à neutraliser
- augmenter le rendement (charges extraites/charges produites).

Pour ces réacteurs « fil-fil », il est nécessaire de contrôler précisément la position relative des électrodes. En effet, contrairement à la géométrie « plan-plan », un faible décalage des électrodes (de quelques centaines de micromètres) entraîne une modification de la décharge. En particulier, si les électrodes ne sont pas parfaitement en regard, il n'existe pas de plan de symétrie, la distance inter-électrodes et donc les propriétés des filaments varient selon la position. Un protocole de montage a été développé pour positionner les électrodes cylindriques sur les plans diélectriques en assurant qu'elles soient parallèles et l'une au-dessus de l'autre. Ce protocole permet en outre de contrôler l'épaisseur de la pâte de silicone utilisée pour supprimer l'air entre l'électrode cylindrique et le plan diélectrique afin d'éviter le développement de décharge parasite en dehors de l'espace inter-diélectriques.

Cette configuration crée un renforcement de champ dans le plan de symétrie (contenant les axes des électrodes). La réduction des surfaces des électrodes conduit à une augmentation des effets de bord, ou des décharges se produisent en dehors de l'espace inter-diélectriques en champ électrique hétérogène. Une augmentation de tension, avec des électrodes cylindriques, conduit à augmenter le volume inter-diélectriques dans lequel les décharges filamenteuses se développent. La répartition spatiale et temporelle des filaments est donc différente de celle décrite en géométrie "plan-plan" usuelle comme présenté au § IV.6.2.

IV.2. Temps de mise à l'équilibre

Ce paragraphe décrit, toutes choses égales par ailleurs (géométrie, fréquence, débit et nature de gaz) la phénoménologie (temps caractéristique de mise à l'équilibre, allure des courants et des tensions, caractéristique courant/tension, ...) de la décharge "fil-fil".

Les résultats présentés sont obtenus après la mise à l'équilibre de l'alimentation haute tension (cf. III.3.1). La tension appliquée à la DBD est une tension sinusoïdale de 60 kHz. La fréquence est choisie afin d'obtenir les courants d'ions (I_{ions}) maximums en post-DBD, tout en limitant les valeurs des températures des diélectriques en deçà de 50°C. En effet, la mobilité des ions négatifs au-delà de 50°C est inférieure à la mobilité des ions négatifs pour

une température en deçà de 80°C en raison d'une modification de la nature chimique des ions (Bourgeois, et al., 2009) ce qui est critique en terme de dynamique de charge.

L'équilibre thermique du système (déterminé à partir de la mesure de température d'électrode) s'établit 20 min après la variation de tension (cf. Figure IV-1).

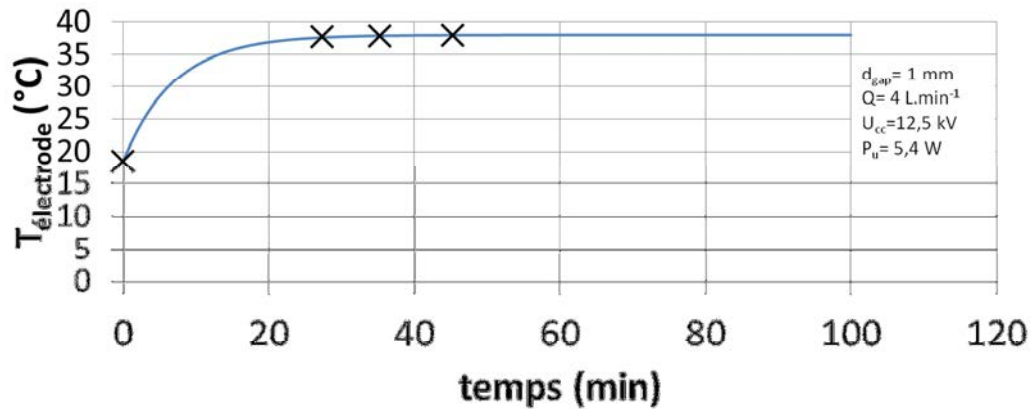


Figure IV-1 : dynamique de mise à l'équilibre de la température d'électrode

Ainsi, tous les résultats présentés sont obtenus 20 minutes après une variation des conditions de fonctionnement de la décharge pour garantir l'équilibre thermique. En effet, une variation de température entraîne une variation de densité du gaz et donc modifie la valeur du champ réduit (E/n_{gaz}) qui contrôle au premier ordre les caractéristiques de décharge. La température d'équilibre varie entre la température ambiante et 130 °C selon les conditions de fonctionnement (tension, débit, enceinte utilisée, géométrie).

IV.3. Rétro-contrôle du champ total par la polarisation de surface

La Figure IV-2 présente l'évolution temporelle de la tension (sinusoïdale) et du courant (capacitif et impulsif) à l'échelle de quelques périodes.

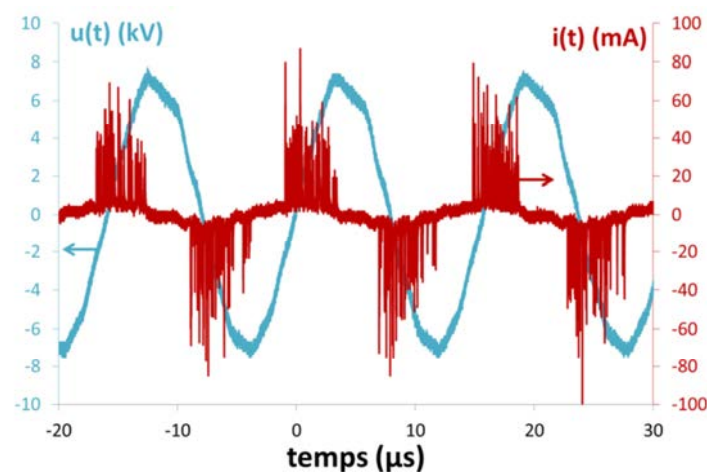


Figure IV-2 : évolution de la tension et du courant de la DBD

Chaque filament engendre une impulsion de courant dans le circuit extérieur de mesure. Ce courant représente une image du flux de charge (ions et électrons) dans chaque filament. En raison de la mobilité 1000 fois plus grande des électrons comparée à celles des ions, le courant mesuré est principalement un courant électronique ainsi, le calcul de l'intégrale à partir des mesures représente le nombre d'électrons créés pendant le développement de chaque filament de plasma. Comme dans le cas des DBD planaires (cf. §I.2.4.1), le courant se compose d'un courant capacitif auquel s'additionne les courants de chaque impulsion. La décharge se présente sous la forme de filaments identiques se produisant en sens inverse alternativement d'une demi-période à l'autre et à la même position du fait de la polarisation des surfaces. Il faut toutefois noter que la répartition spatiale des filaments peut fluctuer dans le temps malgré la présence des dépôts de charge.

Le principal intérêt des DBD, reproduit sur les 20 systèmes étudiés, est d'éviter le passage à l'arc. En outre, les DBD permettent de réduire la tension minimale de fonctionnement de la décharge grâce au champ de polarisation produit par les charges déposées sur les surfaces diélectriques. Cela se traduit par :

- 1 : la présence d'une hystérésis de la caractéristique courant-tension avec une tension « crête-à-crête » d'extinction de la décharge sur des surfaces polarisées inférieure à la tension « crête-à-crête » de premier allumage sur des diélectriques vierges de charge pourtant toutes les deux relatives au même champ seuil de décharge dans cet espace inter-diélectriques (cf. Figure IV-3).
- 2 : une diminution avec la tension « crête-à-crête » de la tension instantanée d'allumage du premier filament de la demi-période positive (Figure IV-4) et une augmentation avec la tension « crête-à-crête » de la tension instantanée d'allumage du premier filament de la demi-période négative.

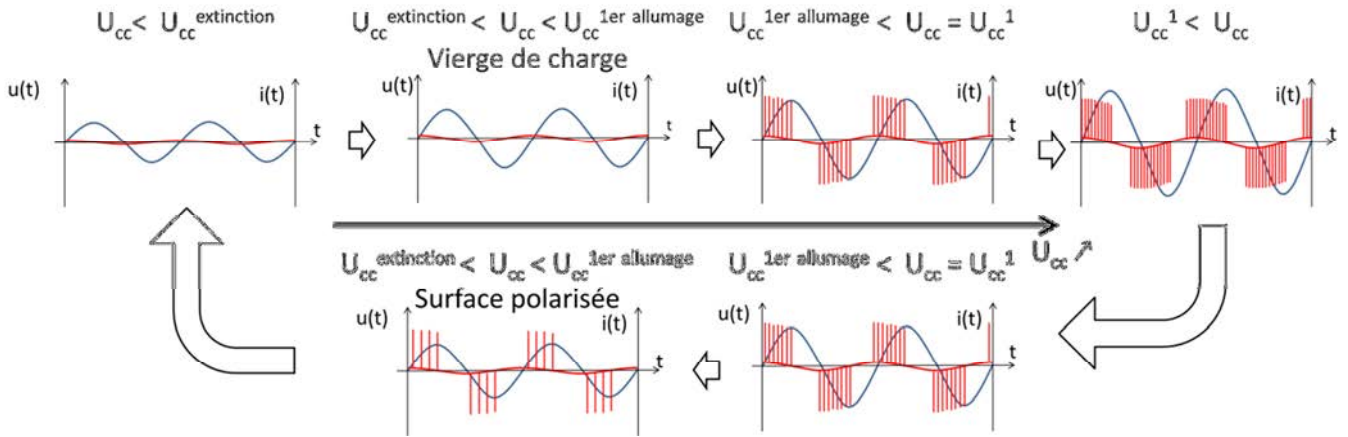


Figure IV-3 : cycle d'hystérésis de la DBD

S'il n'y a pas de charge déposée sur les surfaces diélectriques, la mesure du courant instantané ne comprend que le courant capacitif tant que la tension « crête-à-crête » est inférieure à la tension de 1^{er} allumage ($U_{cc}^{1er\ allumage}$), c'est-à-dire la tension pour laquelle la décharge s'allume. Lorsque la tension est supérieure à la tension d'allumage, les décharges filamenteuses se développent. Le temps pour déclencher la décharge dépend alors de la probabilité de présence d'électrons libres dans le gaz et de l'écart à la tension de 1^{er} allumage (Berger, 1980). Parmi la centaine d'électrons par cm^3 produits par la radioactivité naturelle, seule une fraction rencontre les conditions de champ électrique et de distance parcourue suffisant pour déclencher une avalanche électronique à l'origine d'un streamer.

Lorsque la décharge est allumée, le nombre de filaments par demi-période augmente avec la tension (cf. I.2.4) entraînant une augmentation de la puissance (cf. §IV.4.1) et du courant de décharge $I_{décharge} = 2 \cdot f_r \cdot \alpha_{gaz/ext} \cdot N_{imp\ par\ \frac{T}{2}} \cdot q_{fil}$ (cf. §IV.5).

La présence des charges sur les surfaces diélectriques permet de déclencher les filaments tant que le champ électrique total est supérieur au champ seuil de déclenchement d'un filament (cf. §I.2.2.2). Ainsi, la tension d'extinction de la décharge est inférieure à celle du 1^{er} allumage. Il existe donc une plage de tension où la décharge peut-être soit allumée soit éteinte selon l'état de polarisation des diélectriques (cf. Figure IV-3 $U_{cc}^{extinction} < U_{cc} < U_{cc}^{1er\ allumage}$).

Ce contrôle du champ par la polarisation des surfaces entraîne que la tension du premier filament de la demi-période dépend de la tension crête-à-crête appliquée. Cela est illustré

pour des électrodes de 3 cm de longueur perpendiculaires au flux de gaz, une distance inter-diélectriques de 1 mm et un débit de 4 L.min⁻¹ sur la Figure IV-4.

En raison de la symétrie du système, la courbe pour les tensions des demi-périodes négatives est symétrique par rapport à l'axe des ordonnées de celle présentée.

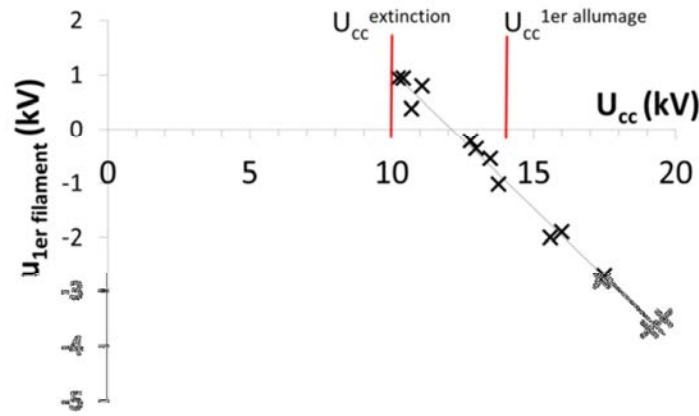


Figure IV-4 : $U_{1er\ filament}$ des demi-périodes positives selon U_{cc}

Lorsque la tension U_{cc} augmente, la tension instantanée du premier filament de la demi-période positive/négative diminue/augmente au point de changer de signe (cf. Figure IV-4).

La tension « crête-à-crête » contrôle au premier ordre la quantité de charges transférées par demi-période (cf. § I.2.4.2 et cf. § IV.5). A tension « crête-à-crête » croissante, le nombre de charges déposées par demi-période sur chaque diélectrique augmente. Ainsi, le champ engendré par ces charges surfaciques augmente. Le déclenchement de la décharge est contrôlé par le champ électrique total (E_{tot}) qui est la somme de trois champs électriques :

- le champ de Laplace (E_L) produit par les électrodes polarisées,
- le champ de polarisation (E_σ) produit par les charges déposées en surface et qui dépend de la durée de dépolarisation des surfaces contrôlée par la fréquence et la résistivité de surface (relative à la nature du diélectrique, l'humidité relative et la température de surface)
- le champ de charge d'espace (E_ρ) produit par les charges en volume. Ce champ est très intense pendant le développement du filament (c'est grâce à E_ρ que le streamer se propage) mais est considéré comme négligeable en dehors.

Si E_σ augmente, E_L (et donc la tension appliquée) nécessaire pour atteindre le champ seuil de décharge diminue dans la demi-alternance suivante.

Les propriétés des DBD caractérisées ici sont similaires à celles « plan-plan » car ces propriétés sont dans les deux configurations contrôlées par le champ réduit E/n_{gaz} .

Les résultats sur la quantité de charge par filament sont détaillés au paragraphe IV.6.1 pour la géométrie filaire de DBD retenue pour l'étude.

IV.4. Couplages électrothermiques

Les températures des différents éléments du système affectent la décharge à l'origine de la production d'ions ainsi que les processus d'entraînement et de diminution de la densité d'ions entre la décharge et la zone de mélange. Les transferts de chaleur entre les différentes parties du système se produisent : du plasma vers le gaz et les surfaces, des surfaces vers le gaz dans la décharge et du gaz vers les surfaces en post-décharge.

IV.4.1. Puissance

D'après la bibliographie, les températures des DBD sont contrôlées au premier ordre par la puissance et le débit de gaz qui évacuent la chaleur. La première étape consiste donc à déterminer la puissance consommée selon la tension appliquée (Figure IV-5 a) et le débit de gaz (Figure IV-5 b).

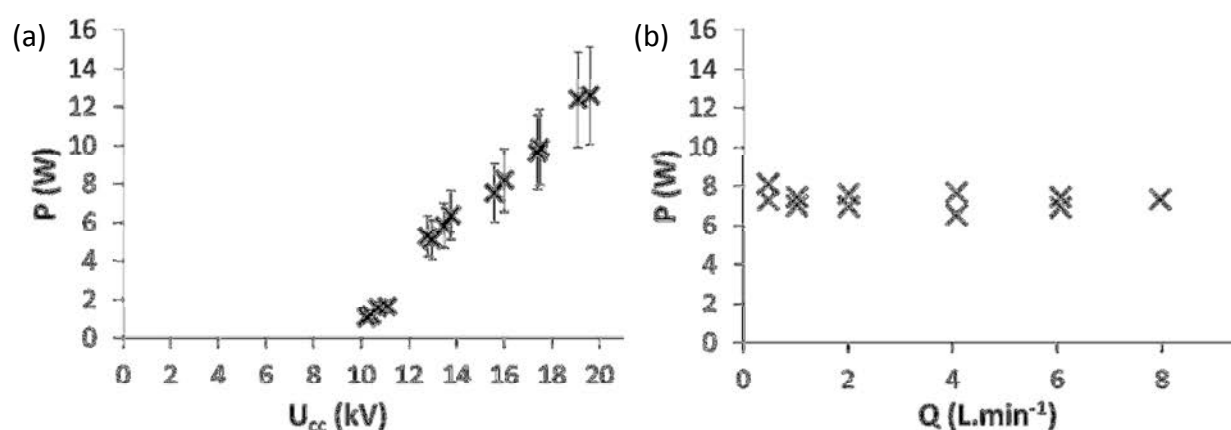


Figure IV-5 : P_u selon (a) U_{cc} à $Q = 4 \text{ L.min}^{-1}$ et (b) Q à $U_{cc} = 15,6 \text{ kV}$

Comme pour les décharges « plan-plan », la puissance évolue quasi-linéairement avec la tension appliquée et constante avec le débit dans la gamme de débit étudiée [0,3-10] L.min⁻¹. Aux abords de la tension d'extinction, le faible nombre de filament par demi-période (<3) entraîne une répartition aléatoire des filaments dans l'espace et le temps écartant les valeurs de puissance de la droite obtenue à plus forte tension. Cette augmentation de puissance reflète l'augmentation du nombre de microdécharges par unité de surface et de temps et du courant de décharge relatif (cf. §IV.5).

IV.4.2. Température

Les évolutions de la température d'électrode selon la puissance et le débit sont présentées sur la Figure IV-6.

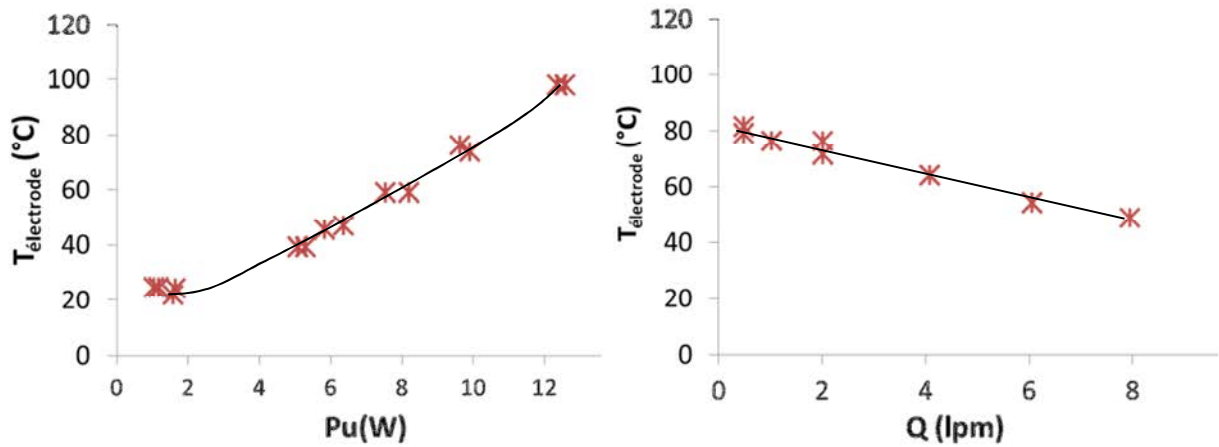


Figure IV-6 : $T_{\text{électrode}}$ pour $d_{\text{gap}} = 1,6 \text{ mm}$ selon (a) P_u à 4 L.min^{-1} et (b) Q pour $P_u = 7 \text{ W}$

Comme observé sur des réacteurs « plan-plan » (cf. I.2.4), la température augmente avec la puissance. D'autre part, la température d'électrode et donc les températures de surface des diélectriques diminuent à débit de gaz croissant.

Le paramètre qui contrôle, au premier ordre, la température d'électrode est la puissance totale. Les gammes de puissance déterminent les gammes de température d'électrode selon le conditionnement thermique du réacteur (qui le contrôle des flux de chaleur du réacteur vers le milieu ambiant) et selon le débit (qui le contrôle des flux de chaleur emporté par le gaz). Cela permet de modifier la relation puissance-température, selon le débit ou le conditionnement thermique toutes choses égales par ailleurs.

Ces résultats vont permettre dans la suite de l'étude d'inclure les variations de température dans l'analyse des données sur l'extraction et les variations de densité d'ions en post-décharge et dans le choix des conditions de fonctionnement du chargeur d'aérosol (cf. chapitre V).

IV.5. Courants de décharge selon la tension crête-à-crête pour trois distances inter-diélectriques

Afin de déterminer l'efficacité d'extraction, il est nécessaire de déterminer le nombre de charges produit par unité de temps.

Comme présenté dans la bibliographie, les ions sont produits par avalanche électronique à l'origine des filaments et par ionisation du gaz soit par des photons et soit par désexcitation d'éléments métastables produits par le filament. Ainsi, la charge par filament (intégrale du signal du courant impulsif relatif à chaque filament) est une image des ions produits. Nous définissons le courant de décharge comme la somme des charges unitaires des filaments pendant une période multipliée par la fréquence (cf. §III.3.2) image de la production de charges par unité de temps par la décharge. Il convient de souligner ici que les charges unitaires mesurées par l'intégrale du courant représentent le nombre d'électrons produits, nous utilisons ici le courant de décharge obtenu par la figure de Lissajous qui intègre le courant ionique et le courant électronique.

La Figure IV-7a représente la mesure du courant de décharge pour 3 distances inter-diélectriques (0,5 mm; 1 mm et 1,7 mm) à 4 L.min^{-1} selon la tension appliquée. Les caractéristiques électriques de la décharge sont contrôlées par le champ électrique réduit (E/n_{gaz}) dans l'espace inter-diélectriques. Les mesures ne permettent de remonter qu'au champ de Laplace appliqué, égal à la tension appliquée aux bornes de l'espace inter-diélectriques sur la distance inter-diélectriques. Toutefois, dans certain cas, notamment pour comparer des réacteurs de distance inter-diélectriques différent, il est préférable de représenter le courant de décharge en fonction du champ de Laplace, nous avons choisi de le représenter, sur la Figure IV-7 b, en fonction de la surtension appliquée dans le gaz (différence entre la tension aux bornes de l'intervalle gazeux, liée à la tension appliquée et la tension d'extinction de la décharge dans le gaz), image du sur-champ de Laplace par rapport au champ seuil d'extinction de la décharge.

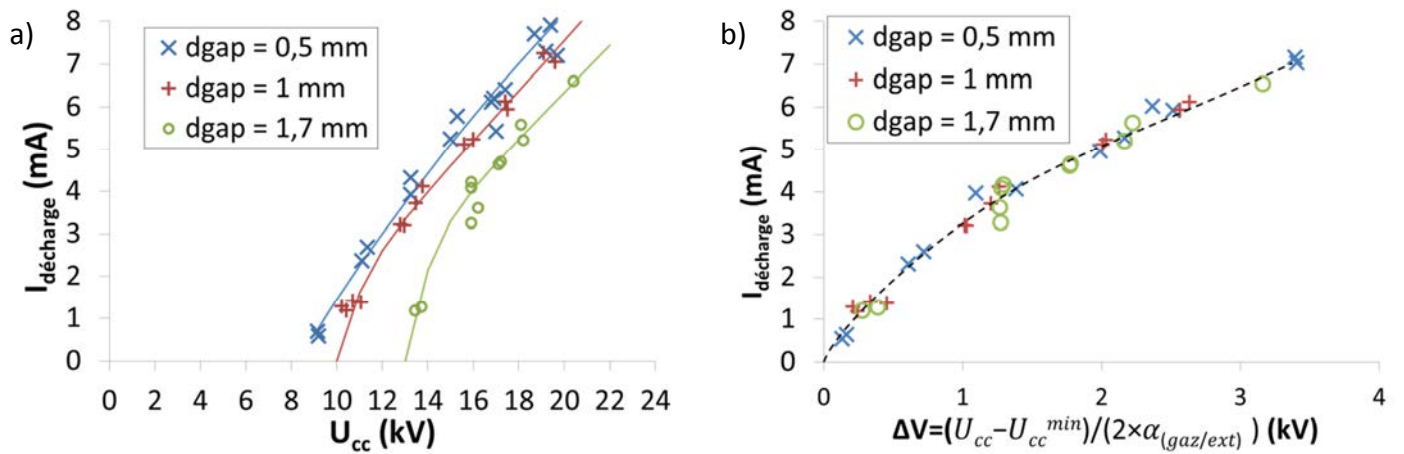


Figure IV-7 : courant de décharge selon la tension crête-à-crête

Quelle que soit la distance inter-diélectriques, le courant de décharge varie de 1 à 8 mA. Ce résultat est confirmé dans d'autres configurations (mêmes électrodes mais en modifiant la distance entre les électrodes et le bord de l'alumine, ou la distance entre les électrodes et les parois latérales, ou encore l'orientation des électrodes par rapport au flux de gaz). Il sera donc possible de comparer l'influence des configurations sur le transport des ions à production d'ions constante (cf. §V.4).

En fonction de la tension crête-à-crête, U_{cc} , la tension d'extinction augmente avec l'espace inter-diélectriques. Le champ électrique est le rapport de la tension par la distance inter-électrodes. Ainsi, le même champ seuil de décharge correspond de ce fait à une tension appliquée d'autant plus grande que l'espace inter-électrode est grand, d'où l'augmentation de la tension d'extinction. De la même façon, on notera que pour une même tension appliquée U_{cc} , le courant de décharge augmente à distance inter-diélectriques décroissante (cf. Figure IV-7 a). Cela traduit l'augmentation de tension dans le gaz requise pour atteindre le champ seuil de propagation des streamers (qui est indépendant de la distance inter-diélectriques dans la gamme du produit $P.d_{gap}$ étudiée).

Enfin, dans cette configuration, le courant de décharge selon la surtension par rapport à la tension d'extinction est indépendant de la distance inter-diélectriques (cf. Figure IV-7 b). Par principe, les propriétés de décharge sont contrôlées par l'évolution spatio-temporelle des profils de champ électrique (E_L , E_σ et E_p). La surtension représente l'écart du potentiel de surface induit par le champ de Laplace au maximum de tension par rapport au potentiel minimum à appliquer pour obtenir le champ seuil. Le courant de décharge traduit le nombre

de charge transféré dans l'espace inter-diélectriques par demi-période et donc une valeur moyenne du potentiel de surface à l'origine du champ de polarisation. Ainsi, la similitude des courants de décharge selon la surtension traduit l'équilibre entre les champs de surface et de Laplace en termes de potentiel moyen de surface. Cependant, l'augmentation de la distance inter-diélectriques entraîne une augmentation des divergences de dépôt de charge sur les surfaces. Ainsi, des mesures de courant de décharge et du facteur correctif ($\alpha_{\text{gaz/ext}}$) d'une part et de l'évolution de la tension d'extinction d'autre part permettraient de mettre en évidence les écarts de courant de décharge selon la distance inter-diélectriques. Par ailleurs, ce résultat, spécifique à cette configuration de décharge, n'est pas confirmé dans d'autres configurations, en particulier avec les électrodes orientées parallèlement au flux de gaz, qui implique que les effluents des filaments en entrée de DBD affectent le gaz dans le lequel se produit les filaments en sortie de DBD.

En outre, même si l'évolution des courants de décharge est similaire entre les trois distances inter-diélectriques, il est à noter que pour un courant de décharge donné, la puissance croît avec la distance inter-diélectriques. En fait, la tension de conversion charge-énergie (cf. III.3.4.1) augmente avec la distance inter-diélectriques (comme pour la tension d'extinction). Ainsi, le même courant de décharge correspond à des filaments plus énergétiques et des températures de gaz plus élevées à distance inter-diélectriques croissante.

Ainsi, les courants d'ions seront soit présentés selon le courant de décharge pour discuter en terme de production et soit selon la surtension pour parler des effets de potentiel de surface c'est-à-dire de collection électrostatique.

IV.6. Caractéristiques électriques des filaments

Dans une DBD « plan-plan », le champ de Laplace est homogène dans l'espace inter-électrodes et son amplitude oscille à la fréquence de la tension appliquée. Les caractéristiques des filaments et leur répartition spatiale et temporelle sont donc contrôlées par (cf. §I.2.4):

- Le champ de polarisation créé par les filaments : dans une demi-période, avant l'allumage des filaments, le champ électrique augmente à l'aplomb des dépôts de charges aux pieds des filaments de la demi-alternance précédente en raison de l'augmentation du champ de Laplace, puis le champ diminue brutalement après le dépôt de charges provenant des filaments de la demi-alternance en cours (cf. §IV.6.2).

- La probabilité de présence d'électrons germes.

Il en résulte une répartition spatiale des filaments homogène sur la surface des électrodes (Kogelschatz, 2003). La distribution de charge par filament présente une valeur moyenne unique représentative de l'ensemble des filaments (cf. §I.1.4.3).

Dans un DBD plan-plan, le volume de décharge peut être séparé en 2 volumes. Entre les électrodes métalliques, le champ de Laplace est homogène et induit une répartition homogène des filaments dans l'espace inter-électrodes. En bordure du volume de champ de Laplace homogène, un volume de champ inhomogène apparaît (effet de bord). Le rapport des volumes de champ de Laplace homogène et inhomogène diminue avec la réduction des surfaces d'électrodes métalliques.

Avec des électrodes filaires, le volume de champ inhomogène est supérieur au volume de champ homogène. Le champ total est alors à l'origine d'une auto-organisation des filaments en rideaux. La Figure IV-8 présente des photos prises dans l'axe des électrodes pour une distance inter-diélectriques de 1 mm avec des durées d'exposition de l'ordre de quelques millisecondes soit de 100 à 1000 demi-périodes avec des filaments identiques se produisant en sens inverse alternativement d'une demi-période à l'autre et à la même position du fait de la polarisation des surfaces.

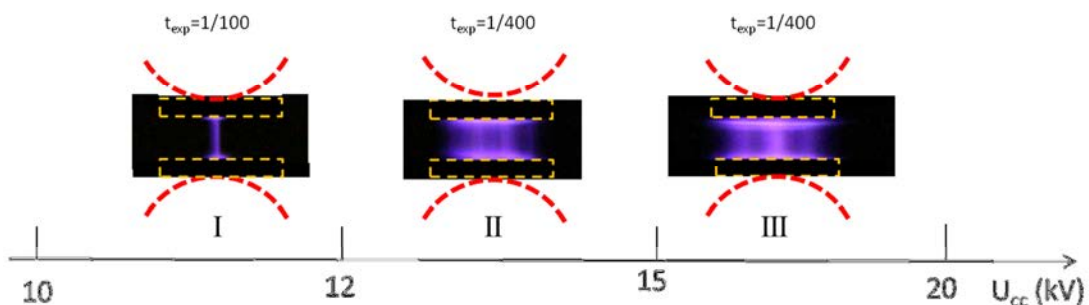


Figure IV-8: répartition spatiale des filaments selon la tension

Ainsi, l'auto-organisation des filaments dans ce système conduit à des rideaux de filaments qui s'écartent les uns des autres lorsque la tension augmente, passant de 1 rideau (I) à basse tension, à 2 rideaux (II) puis à 3 rideaux (III).

IV.6.1. Filament unitaire

Une impulsion de courant mesurée dans le circuit extérieur pour une distance inter-électrodes de 1,5 mm est représentée sur la Figure IV-9.

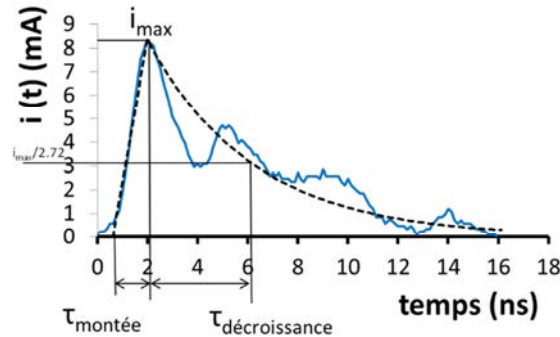


Figure IV-9 : courant d'une impulsion dans un réacteur fil-fil

On retrouve les différentes phases d'une microdécharge (cf.I.2.4.3):

- L'avalanche électronique et la propagation sont à l'origine de la légère augmentation du courant sur la mesure (0,5 mA de 0 à 0,5 ns, sur Figure IV-9).
- La création d'un pont conducteur entre les deux diélectriques est à l'origine de la montée de l'impulsion de courant jusqu'à son maximum (temps caractéristique < 1 ns : temps mesuré limité par la bande passante de l'oscilloscope).
- La décroissance est liée à l'attachement électronique et à la diminution du champ électrique par les dépôts de charges sur les diélectriques. Les pics qui apparaissent dans la décroissance de l'impulsion sont des échos de l'impulsion dans la ligne de mesure, communément appelés « rebond » du signal dans le câble de mesure.

Donc, lorsque le champ électrique dans l'axe du filament ne permet plus d'alimenter la décharge ($t > 20$ ns après le maximum du pic), il reste dans l'espace inter-électrodes des ions positifs et négatifs qui dérivent en sens opposés selon la polarité dans le champ électrique à l'origine d'une séparation des nuages selon leurs polarités.

Les filaments sont étudiés en termes de charge unitaire par filament, définie par l'intégrale du courant impulsionnel pendant la durée du phénomène, comme expliqué dans le chapitre matériel et méthode (cf. §III.3.4.2). Le Tableau IV-1 présente les gammes de charge par filament le plus probables pour 3 distances inter-diélectriques.

Tableau IV-1 : gamme de charge par filament la plus probable pour $d_{gap} = 0,5 ; 0,8$ et $1,6$ mm

distance inter-diélectriques	gamme de charge par filament (nC)	courant max (mA)	temps de décroissance (ns)
0,5 mm	[0,1 - 0,3]	[12 - 40]	[2,9 - 3,5]
0,8 mm	[0,2 - 0,5]	[32 - 120]	[2 - 5]
1,6 mm	[0,3 - 0,9]	[40 - 160]	[3 - 8]

La charge par filament est contrôlée par le champ réduit le long du filament et la longueur du filament. Ainsi, la charge par filament augmente avec la distance inter-diélectriques et évolue selon la géométrie et les conditions de fonctionnement de la décharge (débit ; tension, nature du gaz) d'où la présence de gamme de variation, pour une distance inter-diélectriques donnée.

IV.6.2. Répartition spatio-temporelle des filaments dans une DBD « fil-fil »

Les notations des différents axes utilisés dans la discussion qui suit sont :

$\vec{x}$: colinéaire au flux ; $\vec{y}$: parallèle aux électrodes ; $\vec{z}$: axe perpendiculaire aux plan diélectrique

La répartition spatio-temporelle des filaments est relative à l'évolution temporelle des profils spatiaux de E/n_{gaz} et dépend donc du champ de Laplace et du champ de polarisation. Dans un but didactique, ce couplage est illustré avec les hypothèses simplificatrices suivantes :

- Pas d'effet de E_p , en effet ce champ est critique pour la propagation des streamers et le transport des ions, mais peut être négligé vis-à-vis de la répartition des filaments.
- Les filaments s'allument aux mêmes positions d'une demi-période sur l'autre, cela se vérifie dans plus de 99% des cas (cf. §1.2.4).
- À un instant donné, 1 seul filament est présent dans l'espace inter-électrodes. Cette hypothèse est simplificatrice, comme le montrent les mesures électriques avec des impulsions de courant qui se superposent parfois ce qui prouve que des filaments se produisent au même instant mais à différents endroits de l'espace inter-diélectriques.
- La décharge est à l'équilibre : la puissance, la température et la tension crête-à-crête n'évoluent plus.
- Enfin, les profils de champs électriques selon l'axe $\vec{y}$ ne sont pas détaillés (ils sont constants pour E_L , sauf aux bords des électrodes et similaires à ceux présentés selon l'axe $\vec{x}$ pour E_o), c'est donc la moyenne des champs électriques selon l'axe $\vec{y}$ qui est représentée pour simplifier la représentation.

- A faible tension $U_{cc} < 12$ kV : 1 rideau de décharge (Auto-organisation I)

La Figure IV-10 présente, pour l'auto-organisation en 1 rideau, la répartition des filaments dans l'espace inter-électrodes et les champs électriques E_L , E_σ et E_{tot} :

- avant le premier filament de la demi-période (t_0),
- après le premier filament de la demi-période ($t_{1er\ filament}$),
- après l'allumage des filaments de la demi-période, au maximum de tension ($t_{u(t)\ max}$)
- à l'inversion de tension ($t_{u(t)=0}$).

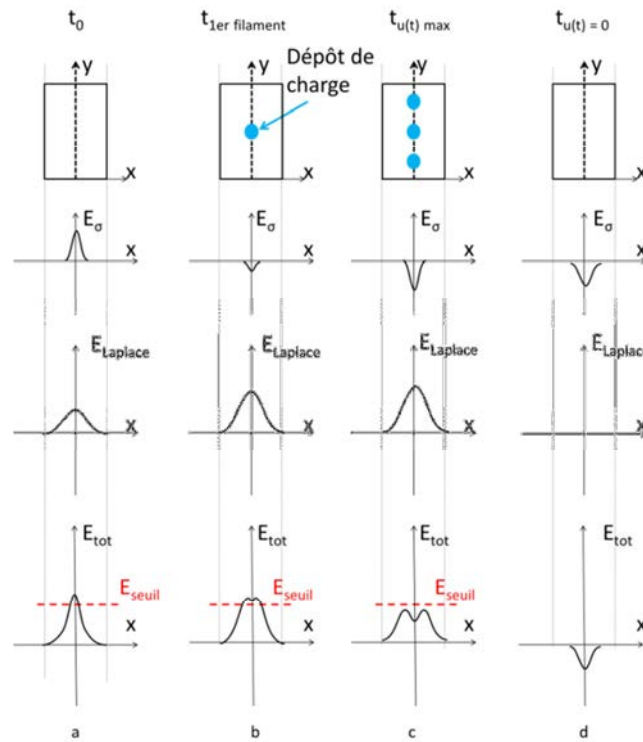


Figure IV-10 : analyse qualitative des champs électriques et de la répartition des filaments pour des tensions faibles (Auto-organisation I)

Avant l'allumage du premier filament de la demi-période (t_0), le dépôt de charge de la demi-période précédente crée un E_σ maximal dans le plan de symétrie des électrodes qui s'additionne à E_L et renforce E_{tot} . Ainsi, le E_{tot} maximal est situé dans le plan de symétrie (cf. Figure IV-10 a). Le premier filament se produit alors au niveau du maximum de champ, c'est-à-dire dans le plan de symétrie - $t_{1er\ filament}$ - (cf. Figure IV-10 b). Le premier filament produit un champ de polarisation qui s'oppose localement au champ de Laplace (principe de la DBD, cf. I.2.3).

Lorsque la tension appliquée est proche de la tension d'extinction, le champ total est insuffisant pour produire des filaments en dehors du plan de symétrie des électrodes donc

les filaments sont alignés suivant dans le plan des électrodes (axe $\vec{y}$) où E_L est maximum (cf. Figure IV-10 c). Le dépôt de charge produit en conséquence un maximum de champ électrique dans le plan de symétrie qui s'additionne au champ de Laplace après l'inversion de tension (cf. Figure IV-10 d).

- $12 < U_{cc} < 15$ kV : 2 rideaux de filaments (Auto-organisation II)

La Figure IV-11 représente, pour l'auto-organisation en 2 rideaux, la répartition des filaments dans l'espace inter-électrode, les champs E_L , E_σ et E_{tot} :

- a) avant le premier filament de la demi-période (t_0),
- b) après le premier filament de la demi-période ($t_{1er \text{ filament}}$),
- c) après le second filament de la demi-période ($t_{2nd \text{ filament}}$).
- d) Après allumage de l'ensemble des filaments durant la demi-période i.e. au maximum de tension ($t_{u(t) \text{ max}}$)
- e) à l'inversion de tension ($t_{u(t)=0}$).

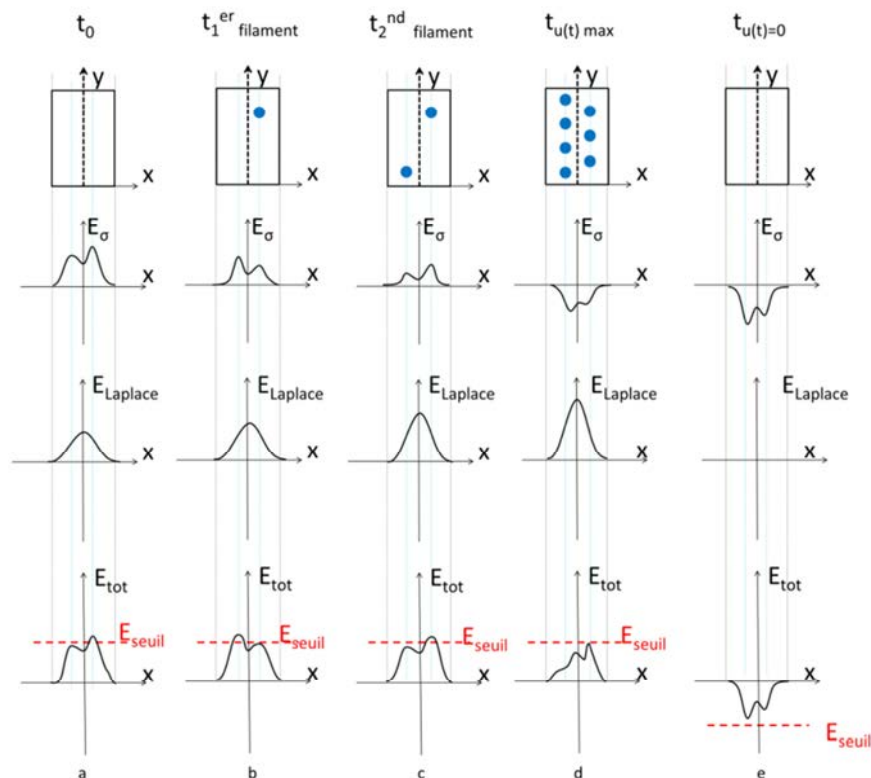


Figure IV-11 : analyse qualitative des champs électriques et de la répartition des filaments pour des tensions intermédiaires (auto-organisation II)

Lorsque la tension augmente, le champ E_{tot} est suffisant pour atteindre le champ seuil de développement des streamers (E_{seuil}) en dehors du plan de symétrie et que des filaments se développent (cf. Figure IV-11a et b). Les dépôts de charge restent à proximité de ce plan

produisant un champ de polarisation qui bloque la propagation de la décharge dans le plan de symétrie. Les filaments se produisent alors sur deux plans de part et d'autre du plan de symétrie (cf. Figure IV-11c et d).

Lors de la demi-période précédente, le dernier filament est positionné en dehors du plan de symétrie. Le champ électrique total est maximum à l'aplomb du dépôt de charge (cf. Figure IV-11a). Le premier filament de la demi-période se produit donc au même emplacement que le dernier filament de la demi-période précédente (cf. Figure IV-11b). La position (x ; y) du second filament se place au niveau du champ le plus intense situé de l'autre côté du plan de symétrie (cf. Figure IV-11c). Ainsi, le champ de polarisation est maximum à la fin de la demi-période se situe à l'aplomb du dernier filament (cf. Figure IV-11e).

En fait, des filaments peuvent apparaître dans le plan de symétrie des électrodes cependant, ces filaments écrantent le champ électrique total dans le plan de symétrie conduisant à l'allumage des filaments suivants en dehors de ce plan.

- $U_{cc} > 15$ kV: 3 rideaux de filaments (Auto-organisation III)

La Figure IV-12 représente, pour l'auto-organisation en 3 rideaux, la répartition des filaments dans l'espace inter-électrodes ainsi que les champs électriques E_L , E_σ et E_{tot} :

- a) avant le premier filament de la demi-période (t_0),
- b) après le premier filament de la demi-période ($t_{1er\ filament}$),
- c) après le second filament de la demi-période ($t_{2nd\ filament}$)
- d) après le troisième filament ($t_{3ème\ filament}$),
- e) après allumage de l'ensemble des filaments durant la demi-période i.e. au maximum de tension ($t_{u(t)\ max}$),
- f) à l'inversion de tension ($t_{u(t)=0}$).

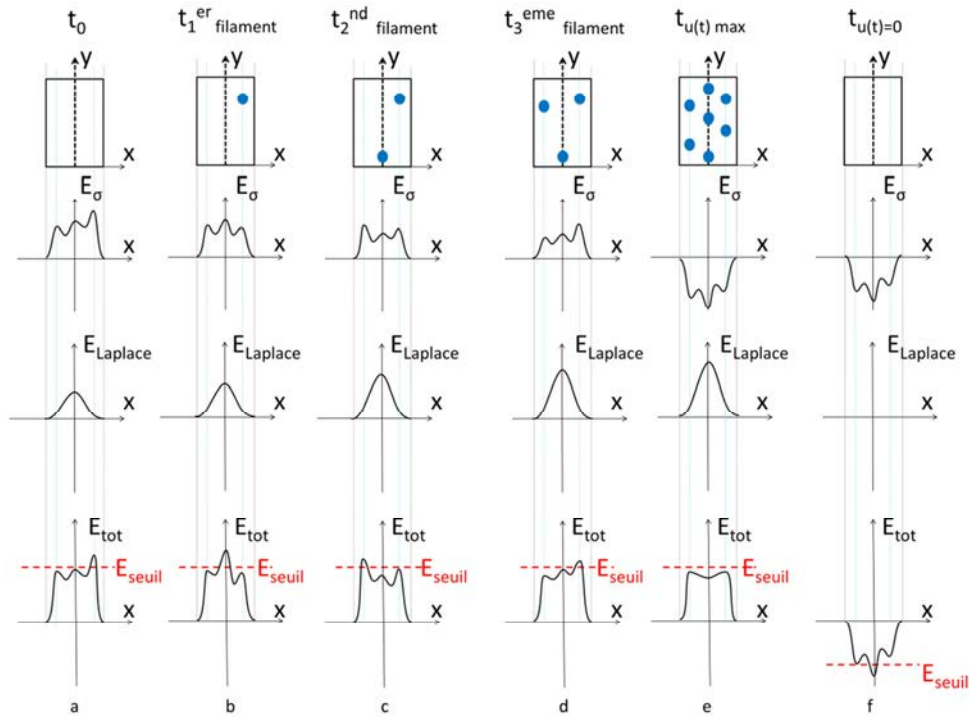


Figure IV-12 : analyse qualitative des champs électriques et de la répartition des filaments pour des tensions élevées (auto-organisation III)

Pour les tensions les plus élevées, les filaments périphériques sont suffisamment écartés pour permettre l'allumage de filament dans le plan de symétrie. Les filaments se produisent alors sur trois plans : deux, de part et d'autre du plan de symétrie, et le dernier dans le plan de symétrie.

Lors de la demi-période précédente, le dernier filament est positionné en dehors du plan de symétrie. Le champ électrique total est maximum à l'aplomb du dépôt de charge (cf. Figure IV-12a). Le premier filament de la demi-période se produit donc au même emplacement que le dernier filament de la demi-période précédente (cf. Figure IV-12b). La position (x ; y) du second filament se situe au niveau du champ le plus important situé en dehors du volume écranté par le E_σ , dans le plan de symétrie à cause du maximum de champ de Laplace (cf. Figure IV-12c). La présence de ces deux dépôts de charges implique que le maximum de champ se situe sur le 3^{ème} rideau (cf. Figure IV-12d). Ce troisième filament se développe nécessairement plus loin du second filament que du premier du fait du temps d'écoulement des charges du premier filament plus important qui réduit le E_σ produit par les charges déposées en surface. Ensuite, les filaments s'allument successivement dans les trois plans selon la position des filaments précédents. Le dernier filament de la demi-alternance peut être situé sur n'importe lequel des trois plans (cf. Figure IV-12e).

À cause des dépôts de charge de la demi période précédente, la majorité des filaments se rallume préférentiellement sur les mêmes 3 plans (cf. Figure IV-12f).

L'auto-organisation des filaments contrôle à la fois la dynamique d'injection d'ions dans l'espace inter-électrodes mais également l'évolution du champ électrostatique qui affecte le transport des ions dans l'espace inter-diélectriques, comme nous le verrons au §V.3 les courants d'ions mesurés en post-DBD ainsi que les efficacités d'extraction des ions dépendent de l'auto-organisation des filaments.

IV.7. Conclusions

Afin de contrôler les densités d'ions (requis pour définir les conditions de charge de l'aérosol), il est nécessaire de contrôler les caractéristiques du plasma. En effet, les ions bipolaires qui chargent l'aérosol sont produits par le plasma.

Nous avons d'abord développé différentes méthodes de caractérisation de la décharge et établi des protocoles de mesures fiables (à l'équilibre, hors bruits de fond, reproductibles) afin de caractériser la charge moyenne par filament, la puissance injectée dans la décharge, le courant de décharge et la température d'électrode et de gaz.

Une étude préliminaire montre que les ions extraits de la décharge proviennent en majorité des filaments pour lesquels le temps de parcours des ions est minimum dans l'espace inter-électrodes. Cela nous a conduit à tester une bi-DBD « fil-fil » : 2 plans diélectriques polarisés par deux cylindres de 4 mm de diamètre avec la décharge qui se développent sous la forme de filaments entre les deux plans d'alumine.

Les propriétés de la décharge (forme filamentaire du plasma, répartition spatiale et temporelle des filaments, caractéristiques des filaments, caractéristiques électrothermiques) sont caractérisées et comparées aux propriétés connues en géométrie « plan-plan ».

L'évolution temporelle du courant confirme que, dans l'air à pression atmosphérique, cette décharge prend la forme de filaments de plasma. La réduction des surfaces d'électrodes entraîne une diminution du nombre de filaments par demi-période par rapport à la géométrie « plan-plan » et diminue la part relative de filaments générés en champ de Laplace « homogène » dans le volume entre les 2 électrodes cylindriques, par rapport aux filaments générés au bord de l'électrode en champ inhomogène.

Dans ce système, la somme des champs de surface et de Laplace dans l'espace inter-électrodes entraîne une auto-organisation des filaments en 1, 2 ou 3 rideaux, comme il sera présenté dans le chapitre suivant, cette répartition en rideaux conduit à des variations de l'efficacité d'extraction des ions (cf .V.4).

Nous confirmons également dans ce système « fil-fil » les couplages électrothermiques observés en géométrie « plan-plan » qui permettront de prendre en compte la température qui affecte l'intensité des processus physiques de transport des ions et les variations de densité d'ions en post-décharge (cf.V) ainsi que dans le choix des conditions de fonctionnement pour la charge d'aérosol.

Dans une bi-DBD « fil-fil » avec des électrodes de 4 mm de diamètre et de 3 cm de long, les caractéristiques électriques de la décharge pour des distances inter-diélectriques d_{gap} de 0,5 à 1,6 mm et des surtensions ΔV dans le gaz par rapport à la tension d'extinction de 0 à 3 kV sont les suivantes :

- 1 : la charge par filament qui varie de 0,1 et 0,9 nC selon d_{gap} , correspond à la production locale de charge,
- 2 : le courant de décharge varie de 1 à 8 mA selon ΔV et traduit la production de charge par unité de temps,
- 3 : la puissance, qui évolue de 1 à 14 W selon d_{gap} et ΔV , est relative à l'énergie consommée qui contrôle les températures des surfaces et du gaz.

Enfin, la caractérisation des décharges vise à évaluer la production d'ions utilisés pour la neutralisation d'aérosols. Nous définissons donc un courant de décharge relatif au nombre de charge produit par la décharge par unité de temps. La variation de la distance inter-diélectriques (d_{gap}), de l'orientation des électrodes par rapport au flux de gaz, de la proximité des électrodes avec les parois latérales confinant le gaz entre les 2 diélectriques (pour une distance supérieure à 2 d_{gap}) et la distance entre la décharge et le post-diélectrique ne modifie pas la gamme de courant de décharge (de 1 à 8 mA). Ainsi, il sera possible d'étudier l'effet de ces paramètres géométriques sur les variations de densité d'ions à production constante et/ou sur la production d'ions à efficacité de d'extraction ($I_{produit}/I_{sortie}$) constante, objet du chapitre suivant.

V. Courant d'ions en post-décharge à barrières diélectriques

Les objectifs de ce chapitre sont de définir la géométrie et les gammes de conditions de fonctionnement du neutraliseur afin :

- d'atteindre des courants d'ions bipolaires en entrée de chargeur > 150 pA et le produit $n_{ions} \cdot \tau > 6.10^{12} \text{ m}^{-3} \cdot \text{s}$ requis pour neutraliser un aérosol submicronique à $0,6 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ (cf. §V.6.2.2).
- d'ajuster le rapport I_{ions}^+ / I_{ions}^- qui contrôle la charge moyenne de l'aérosol.

Après un rappel de la problématique et la définition des conditions de mesure, nous confirmerons que le transport des ions est contrôlé par une compétition électro-hydrodynamique (EHD). En particulier, nous mettrons en évidence les mécanismes d'extraction des ions de la décharge. L'évolution des courants d'ions entrant dans le chargeur selon le temps de transit de la DBD jusqu'au chargeur permet ensuite d'identifier les mécanismes dominants (parmi les mécanismes diffusionnels, la recombinaison ion-ion et l'électro-précipitation, cf. § 0) qui contrôlent les densités d'ions bipolaires. Ces mêmes mécanismes sont à l'origine de la décroissance des profils de densité d'ions dans le chargeur en post-DBD. Ces résultats sont ainsi utilisés pour évaluer les courants d'ions bipolaires à l'entrée du chargeur et le produit $n_{ions} \cdot \tau$, qui contrôlent la charge des aérosols, détaillées au chapitre VI.

V.1. Problématique

La caractérisation électrothermique des décharges nous a permis d'identifier les paramètres critiques (U_{cc} , d_{gap}) qui contrôlent la production des ions à fréquence fixée. Ce chapitre est focalisé sur l'influence de ces paramètres sur les courants d'ions extraits de la décharge et sur l'évolution des courants d'ions en post-décharge.

Les variables qui contrôlent la charge des aérosols sont (cf. §I.1.3.2) :

- Les courants d'ions positifs et négatifs entrants dans le chargeur ($I_{ions}^\pm$) : traduisent le nombre d'ions disponibles par particule qui doivent remplir la contrainte $n_{ions}/n_p > 100$ d'après de la Verpilliere (de La Verpilliere, et al., 2015) et permettent d'estimer la concentration maximale d'aérosol « neutralisable » pour un débit donné. Dans le neutraliseur radioactif de référence, le taux de renouvellement des ions de $9,4 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ correspond à un courant d'ions entrants d'environ 1,5 nA (Modesto-

Lopez, et al., 2011). Dans ces conditions, ce chargeur bipolaire est efficace pour neutraliser des aérosols submicroniques jusqu'à des concentrations de 10^7 cm^{-3} pour des débits jusqu'à 5 L.min^{-1} . Le débit imposé pour le neutraliseur DBD est de $0,6 \text{ L.min}^{-1}$ (cf. §V.6.2.2). Nous chercherons donc à atteindre un courant d'ions à l'entrée du chargeur supérieur à 150 pA (10 fois moins que les $1,5 \text{ nA}$ requis pour 5 L.min^{-1}).

- Le produit $n_{ions} \cdot \tau$ ($n_{ions} \cdot \tau = \int n_{ions}(t) dt$), relatif au temps de charge nécessaire dans un profil de densité d'ions donné, pour atteindre des distributions de charge constantes pour chaque taille de particules quels que soient la distribution de taille, la concentration et la charge initiale de l'aérosol (cf. §I.1.3.2.b).

- Le rapport entre le produit densité-mobilité des ions positifs divisé par le produit densité-mobilité des ions négatifs $\frac{n_{ions}^+ \cdot Z_{ions}^+}{n_{ions}^- \cdot Z_{ions}^-}$ contrôle, au premier ordre, la charge moyenne de la distribution de charge, pour un aérosol donné (cf. §I.1.3.2.a). En assumant des mobilités d'ions positifs et négatifs constantes (valeur moyenne de 1,1 et 1,8 soit un rapport de 0,6 cf. §I.2.5.3 Tableau II-5), le rapport des densités d'ions positifs et négatifs permet de contrôler la charge moyenne. En première approximation, nous nous baserons sur le rapport du courant d'ions positifs sur le courant d'ions négatifs : $I_{ions}^+ / I_{ions}^- (t_{charge})$.

La problématique du transport des ions est présentée sur la Figure V-1.

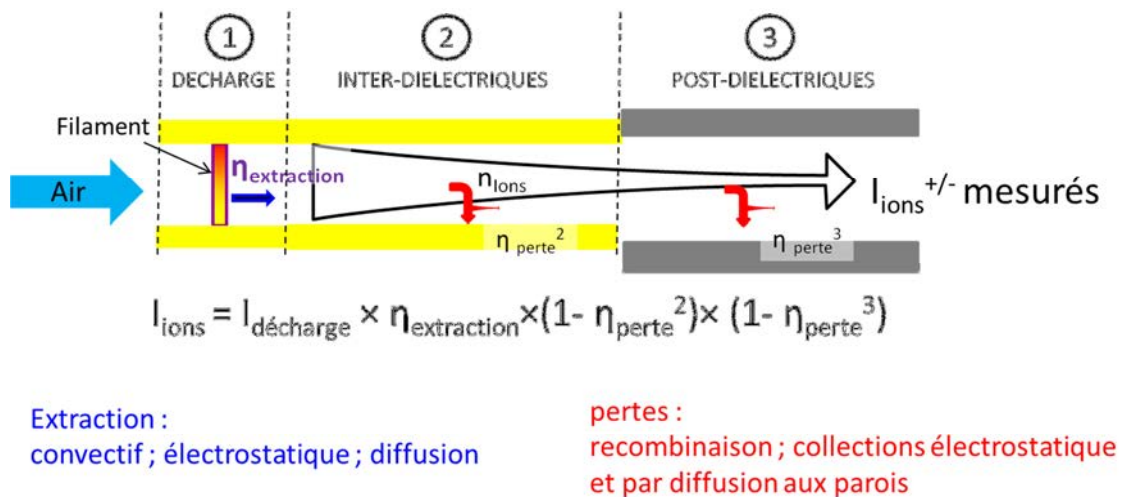


Figure V-1 : problématique de l'étude

Après avoir été produits par les filaments, les ions transitent successivement dans trois espaces :

1. Le volume 1 dénommé « décharge » est le volume dans lequel des filaments peuvent s'allumer. En raison de la variation de l'auto-organisation des filaments, ce volume varie avec la tension. Par la suite, pour simplifier les discussions, nous considérons que ce volume correspond à l'espace inter-électrodes, c'est-à-dire le volume de gaz inter-diélectriques délimité par les projections des électrodes sur les plans diélectriques.
2. l'espace inter-diélectriques correspond au volume de gaz compris entre les diélectriques en aval de la décharge.
3. l'espace post-diélectriques correspond au volume en aval des diélectriques jusqu'à la mesure.

Même si les ions sont produits par différents mécanismes (cf. §I.2.1) dans et en dehors des filaments, dans ce chapitre, nous considérons que l'ensemble des ions sont produits dans les filaments. La production d'ions ($I_{décharge}$ sur la Figure V-1) peut donc être estimée par le courant de décharge défini au § III.2.1 qui représente la moyenne des charges transférées dans l'espace inter-électrodes par unité de temps.

Le courant d'ions en post-DBD peut être exprimé selon la fraction de courants d'ions extraits des filaments (appelée efficacité d'extraction et notée $\eta_{extraction}$) et des fractions de courant d'ions perdus (η_{perte}^2 dans le volume inter-diélectriques; η_{perte}^3 dans l'espace post-diélectriques) dans chacun des espaces par les différents mécanismes de pertes.

La principale difficulté de l'analyse des résultats réside dans le couplage des mécanismes depuis la décharge jusqu'à la mesure de courant d'ions. De plus, les courants mesurés représentent le flux moyen traversant la section d'entrée de l'ESP moyenné dans le temps à l'échelle de quelques secondes à 1 minute selon le calibre de l'électromètre. Ces moyennes sur la mesure ne permettent pas de rendre compte de l'évolution spatio-temporelle (i) de la densité d'ions, (ii) du champ électrique, (iii) de la température du gaz et des surfaces et (iv) de la vitesse des ions qui régissent les différents mécanismes. Il ne sera donc pas possible de quantifier l'intensité des différents mécanismes dans les différents espaces à chaque instant. Cependant, en considérant que chaque demi-période est identique à la précédente, l'intensité relative moyenne (à l'échelle de quelques périodes i.e. de quelques dizaines de μs) des différents processus peut être évaluée à partir des valeurs moyennes mesurées.

Ainsi, dans ce chapitre, nous identifierons les mécanismes d'extraction et de perte d'ions. De plus, l'évaluation des mécanismes de pertes d'ions en post-DBD nous permettra d'apporter

des éléments concernant la répartition des ions dans le chargeur. Nous pourrions ainsi évaluer les produits $n_{ions} \cdot \tau$ et l'évolution du rapport I_{ions}^+ / I_{ions}^- critique pour la charge des aérosols.

V.2. Conditions de mesure

V.2.1. Configurations et géométries de mesure

La fréquence du signal sinusoïdal haute tension est fixée à 60 kHz (cf. §III.3.1), les diélectriques sont des plaques d'alumine de 0,5 mm d'épaisseur, les électrodes métalliques filaires sont des cylindres de laiton de 4 mm de diamètre. Sauf mention contraire, les parois latérales de confinement du gaz dans l'espace inter-diélectriques sont des cales de verre.

Deux configurations de mesure des ions ont été utilisées et sont présentées sur la Figure V-2.

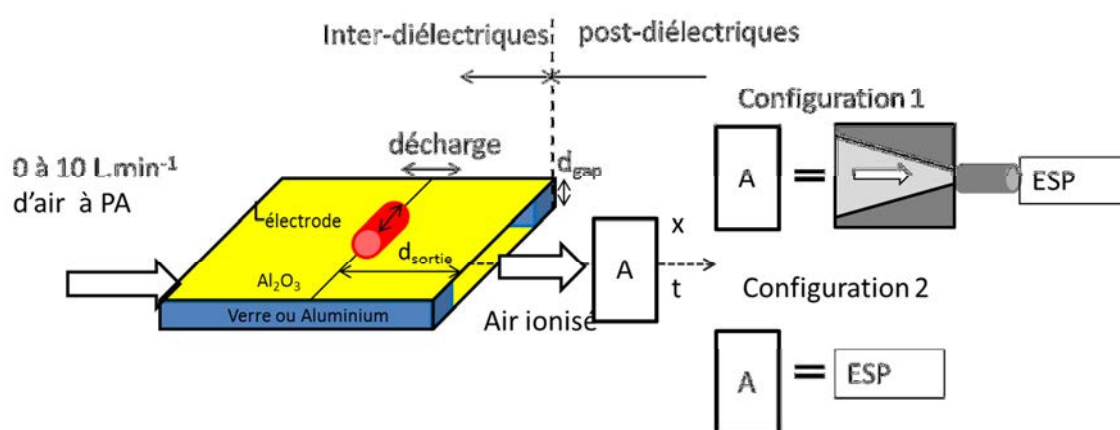


Figure V-2 : configurations de mesures des ions

- La première configuration, désignée dans ce chapitre par « configuration 1 » correspond au réacteur 1 présenté au paragraphe III.2.1. Dans cette configuration, le gaz est guidé en sortie des diélectriques d'une section rectangulaire de 2 mm sur 3 cm à un tube de 4 mm de diamètre. Le tube guide les ions jusqu'à l'ESP de mesure. Cette configuration, avec une précision inférieure à 1 pA (soit < 5% de la mesure), permet d'effectuer l'étude phénoménologique (cf. §V.3) et de fixer une partie des paramètres pour la seconde configuration ($d_{sortie} = 7$ mm ; $L_{électrode} = 3$ cm) (cf. §V.6.2).

- La seconde configuration, désignée dans ce chapitre par « configuration 2 » correspond au réacteur 2, utilisé pour la charge d'aérosol (cf. §III.2.1). Le principe est ici de mesurer le courant d'ions directement en sortie des diélectriques. La diminution de la distance entre l'ESP et la décharge entraîne une augmentation de l'intensité des courants induits par rayonnement (cf. § III.4.2) à l'origine d'une diminution de la précision (< 25% de la mesure

au lieu de 5% en configuration 1). Les mesures effectuées dans cette configuration permettent en particulier de déterminer le courant d'ions entrant dans la zone de charge.

Enfin, les courants d'ions négatifs mesurés I_{ions^-} seront discutés en valeur absolue.

V.2.2. Mise à l'équilibre des courants d'ions en post-décharge

Les évolutions des courants d'ions avec et sans flux de gaz sont représentées afin de caractériser les dynamiques de mise à l'équilibre des courants d'ions en post-DBD. Les dynamiques sont également comparées selon la configuration de mesure (cf. §V.2.1).

La Figure V-3 représente l'évolution du courant d'ions à partir de l'allumage de la décharge pour une distance inter-diélectriques de 1 mm avec (a) un débit de 1 L.min^{-1} et (b) sans débit de gaz dans la décharge. Les temps de transit du gaz pour les configurations 1 et 2 sont respectivement de 54 et 185 ms à 1 L.min^{-1} .

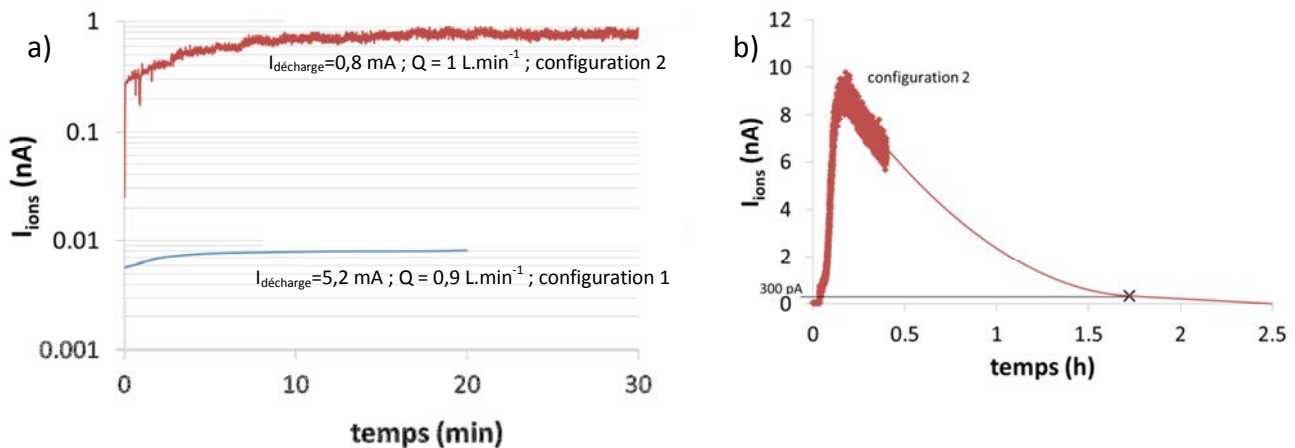


Figure V-3 : $I_{ions}(t)$ entre l'allumage et l'équilibre de la décharge a) sous flux et b) sans flux

Tant que la décharge est éteinte, le courant d'ions est inférieur à la précision de mesure ($< 1 \text{ pA}$). Cela prouve que les ions sont bien produits par la décharge.

- Sous flux (la Figure V-3 (a)), trois temps caractéristiques sont observés :
- 300 ms : temps d'échantillonnage de la mesure de courants d'ions variant à des fréquences supérieures à 3 Hz. Ces variations sont probablement induites par la fluctuation de la quantité de charge par filament (durée de 10 ns) engendrée par la position et l'instant d'allumage de chaque filament pendant une demi-période et d'une demi-période sur l'autre dans un champ hétérogène d'une part, et de la répartition spatio-temporelle des filaments par $\frac{1}{2}$ période (9 μs) d'autre part. Ces deux paramètres affectent transitoirement tant la source d'ions que les champs d'extraction (dans le sens du flux) et de collection (selon l'axe inter-diélectriques) dans la décharge.

- 2 min : deux hypothèses peuvent expliquer ces variations : d'une part, la polarisation des surfaces diélectriques et l'écoulement des charges engendrent une modification des champs électriques de collection et d'extraction à l'origine d'une variation périodique du courant, comme déjà observé avec des nuages d'ions unipolaires (Unger, 2001). D'autre part, la variation du taux d'humidité relatif de l'air varie à chaque basculement des voies du sécheur toutes les 2 minutes 30.

- 20 min : temps de mise à l'équilibre thermique de la décharge (cf. §IV.2). Outre le courant de décharge qui évolue, lorsque la température augmente, le coefficient de recombinaison diminue et les transferts convectifs et diffusionnels augmentent.

Dans la suite de l'étude, les courants représentés correspondent aux courants mesurés au minimum 15 minutes après une variation de condition de fonctionnement (tension ; débit) et moyennés sur des durées de l'ordre de 2 minutes.

- Sans flux de gaz (Figure V-3 (b), $Q=0 \text{ L.min}^{-1}$), pour les mesures dans la configuration 1, le courant d'ions est inférieur à la précision de mesure quelle que soit la tension. Ce résultat est cohérent avec un transport convectif dominant dans au moins un des espaces en amont de l'ESP. Dans la configuration 2, les courants d'ions augmentent jusqu'à un maximum (jusqu'à 10 fois la valeur obtenue à l'équilibre pour un débit de 1 L.min^{-1}). Ensuite, le courant diminue exponentiellement jusqu'à une valeur proche de 0 (300 pA après 1h30). Ce résultat prouve que les ions sont soumis à des processus d'extraction de l'espace inter-électrodes par diffusion et dérive électrostatique sans transport convectif. Par la suite, la décharge sera toujours sous flux car la durée de mise à l'équilibre est de plusieurs heures sans flux.

V.3. Phénoménologie : Compétition électro-hydrodynamique (EHD)

Après définition des conditions de mesures des courants d'ions à l'équilibre, l'étude paramétrique de ces courants est présentée afin de confirmer que le transport des ions résulte bien d'un équilibre électro-hydrodynamique.

La tension est le principal paramètre de régulation de la décharge (cf. chapitre IV). En effet, les variables clés (champs électriques, températures et nature du gaz) qui déterminent les caractéristiques de décharge (courant de décharge, répartition spatio-temporelle des filaments) sont contrôlées par la tension. Les ions sont ensuite entraînés par le gaz, de la décharge où ils sont produits jusqu'au chargeur.

La Figure V-4 représente le courant d'ions en post-décharge selon (a) la tension appliquée (U_{cc}) à débit fixé de 4 L.min^{-1} correspondant au milieu de gamme de l'étude et selon (b) le débit de gaz dans la décharge pour une tension de $15,5 \text{ kV}$, dans la configuration 1 (cf. §V.2.1) pour une distance inter-diélectriques de 1 mm et des distances entre la décharge et la sortie des diélectriques de 10 mm . Les lignes verticales délimitent les gammes de tensions de transition (en pointillé = début de transition et en traits pleins = fin de transition) entre les différentes auto-organisations des filaments identifiées dans le paragraphe IV.6.

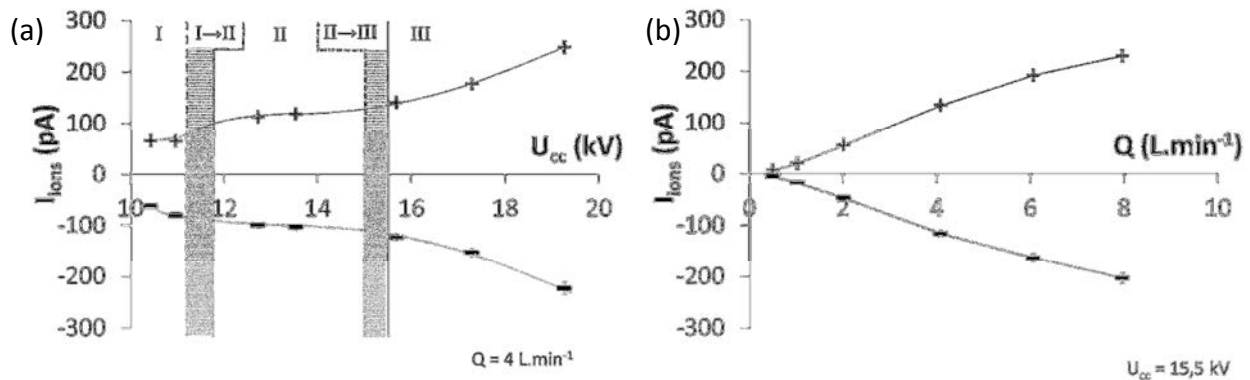


Figure V-4 : courants d'ions selon (a) U_{cc} et (b) Q $d_{gap}=1 \text{ mm}$ et $d_{sortie}=10 \text{ mm}$

Les courants positifs et négatifs sont du même ordre de grandeur et ont les mêmes tendances. Ce résultat est reproduit dans l'ensemble des 20 réacteurs étudiés. Cela confirme que la DBD est une source d'ions bipolaires quels que soient le débit et la tension.

Sur la Figure V-4 (a), le courant d'ions mesuré en post-décharge augmente avec la tension, ce qui prouve que la production d'ions augmente plus que les pertes d'ions. Notamment les pertes par électro-précipitation qui augmentent avec le champ de Laplace (selon l'axe inter-diélectriques) dans l'espace inter-électrodes et dans l'espace inter-diélectriques. De plus, l'augmentation de la puissance par la tension appliquée entraîne des températures plus élevées qui augmentent la collection par diffusion et qui réduit les pertes par recombinaison (cf. Annexe 11). Par ailleurs, les tendances des courants d'ions sont corrélées aux différentes auto-organisations des filaments. Ce résultat implique que les mécanismes d'extractions d'ions sont liés à l'interaction par répulsion et attraction coulombienne des charges déposées c'est-à-dire la répartition spatio-temporelle des charges dans le gaz et en surface.

Sur la Figure V-4 (b), à débit de gaz nul ($Q = 0 \text{ L.min}^{-1}$), le courant est inférieur à la sensibilité de mesure ($< 1 \text{ pA}$). À débit et donc à vitesse de gaz croissants, le courant d'ions augmente en conséquence de la diminution du temps de transit des ions en post-décharge et de

l'augmentation de la vitesse des ions entrant dans l'ESP. Ainsi, le transport convectif est le mécanisme d'entraînement dominant depuis la décharge jusqu'au précipitateur électrostatique en configuration 1.

En conclusion, pour une production d'ions donnée, le courant d'ions en post-DBD résulte de l'extraction et de la collection électrostatique d'une part et de l'entraînement par transport convectif d'autre part c'est-à-dire d'une compétition électro-hydrodynamique (EHD).

V.4. Extraction des ions de la décharge

La corrélation des courants d'ions avec l'auto-organisation des filaments met en évidence le rôle probable des répulsions coulombiennes dans la décharge qui participent à l'extraction des ions. Pour confirmer ces mécanismes d'extraction, la répartition spatio-temporelle des charges dans la décharge est modifiée. L'augmentation de la distance inter-diélectriques permet de produire des filaments dont la quantité de charges transférées est supérieure (cf. §IV.6.1). Il en découle, à $I_{décharge}$ constant (i.e. à production d'ions constante) et à distance inter-diélectriques croissante, que les charges se répartissent sur des dépôts plus grands et plus éloignés les uns des autres dans l'espace inter-électrodes. Enfin, la comparaison des trois distances inter-diélectriques nous permettra de choisir la distance selon les conditions de charge requises (cf. §V.6.2).

Les courants d'ions (seuls les courants d'ions positifs I_{ions}^+ étant donnée la similarité entre les courants des deux polarités) sont représentés pour des distances inter-diélectriques de 0,5 mm, 1 mm et 1,7 mm sur la Figure V-5 selon (a) le courant de décharge ($I_{décharge}$) pour un débit de 4 L.min⁻¹ (soit des temps de transit respectivement selon d_{gap} de 39,8 ; 42 et 46 ms dont 2,7 ; 4,9 et 9,2 ms dans l'espace inter-diélectriques, cf. Tableau V-1), et (b) le débit qui contrôle l'entraînement des ions. Comme précédemment, les transitions entre les différentes auto-organisations des filaments sont représentées par des lignes pointillées et pleines correspondant au début et à la fin des transitions. Les parois de confinement de gaz entre les diélectriques sont en verre à l'exception de la configuration 2 ($d_{gap} = 1,6$ mm) qui possède des parois en aluminium à la masse. Les temps de transit pour les configurations (a) 1 et (b) 2 selon la distance inter-diélectriques sont donnés par le Tableau V-1.

Tableau V-1 : temps de transit pour les configurations 1 et 2

(a) Configuration 1

t (ms)	d_{gap} (mm)		
Débit (L.min ⁻¹)	0,5	1	1,7
1	159	168	185
2	79,5	84	92,5
4	39,8	42	46
8	19,9	21	23

(b) Configuration 2

t (ms)	d_{gap} (mm)	
Débit (L.min ⁻¹)	1	1,6
1	36	61
2	18	30,5
4	9	15
8	4,5	7,6

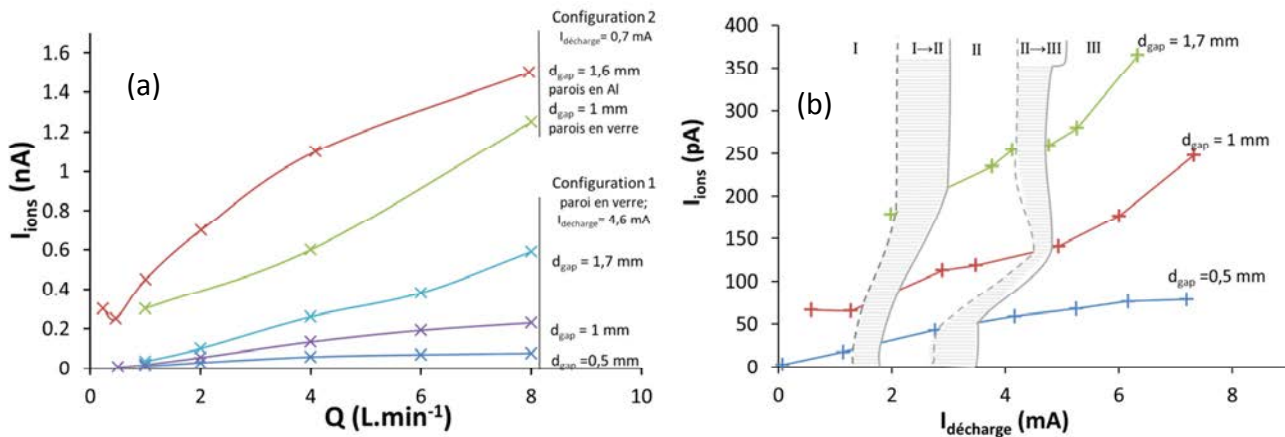


Figure V-5 : courant d'ions selon (a) $I_{décharge}$ et (b) Q pour $d_{gap} = 0,5 ; 1 ; 1,7$ mm

Sur la Figure V-5 (a), à production croissante (i.e. à courant de décharge croissant), le courant d'ions augmente quelle que soit la distance inter-diélectriques. À production d'ions constante (i.e. à courant de décharge constant) pour un débit donné, le courant d'ions augmente avec la distance inter-diélectriques.

Sur la Figure V-5 (b) au-delà de 1 L.min⁻¹, comme attendu (cf. §V.3), le courant d'ions augmente avec le débit de gaz quelle que soit la configuration de décharge. De plus, à débit constant pour un courant de décharge donné, le courant d'ions augmente avec la distance inter-diélectriques.

Ces résultats sont analysés ci-dessous en étudiant l'influence sur les courants d'ions des variations de distance inter-diélectriques, de la configuration de mesure puis de la nature des parois en post-décharge.

Distance inter-diélectriques :

Pour augmenter les courants d'ions en post-décharge à production d'ions constante, il est nécessaire d'augmenter l'extraction de la décharge ou de diminuer les pertes en post-décharge.

Concernant les pertes, la diffusion est un mécanisme de perte secondaire qui est négligé par la suite (cf. §V.5). Par ailleurs, les pertes par recombinaison dépendent de deux variables : le

temps de transit et le temps caractéristique de recombinaison qui résulte de l'inverse du produit du coefficient de recombinaison (qui dépend de la température du gaz) et de la densité d'ions d'une polarité. L'hétérogénéité des nuages d'ions positifs et négatifs (démonstré au §V.5) conduit à un délai entre l'extraction des ions du filament et le commencement du mécanisme de recombinaison. Ce délai est inférieur à la milliseconde en raison de la fréquence d'oscillation des nuages ($\approx 10 \mu\text{s}$) et de la dynamique de mélange des ions ($< 1\text{ms}$ pour une densité nette supérieure à 10^{14} m^{-3} (Cole & Jones, 2002)). Ainsi, pour simplifier la discussion, nous considérons que les variations de l'efficacité de recombinaison sont similaires aux variations d'efficacité en nuage bipolaire homogène.

À distance inter-diélectriques croissante et I_d constant, la température dans l'espace inter-diélectriques augmente en raison de l'augmentation de la puissance injectée (cf. § IV.5) ce qui conduit à une diminution de l'efficacité de recombinaison (cf. Annexe 11). Cette diminution est compensée par l'augmentation du temps de transit dans l'espace inter-diélectriques. En effet, pour un courant de décharge de 6 mA, la température d'électrode varie de 75°C à 95 °C (qui en première approximation est assimilée à la température moyenne du gaz dans l'espace inter-diélectriques) et le temps de transit total varie de 40 à 46 ms conduisant à un écart d'efficacité théorique inférieur à 2 % (cf. Annexe 11). Ainsi, l'efficacité de recombinaison peut être considérée comme invariante avec la distance inter-diélectriques (i.e. les variations de perte par recombinaison sont négligeables devant la variation des autres processus).

Sur la Figure V-5 (b) l'influence du débit de gaz est moindre que celle de la distance inter-diélectriques. En effet, à 2 L.min^{-1} , le courant d'ions varie de 30 à 100 pA pour une variation de la distance inter-diélectriques de 0,5 à 1,7 mm (un facteur 3 sur le courant pour un facteur 3,4 sur la distance inter-diélectriques soit un rapport de 0,9) alors que pour une distance inter-diélectriques de 0,5 mm le courant d'ions varie de 30 à 78 pA pour une variation de débit de 2 à 8 L.min^{-1} (un facteur 2,6 sur le courant pour un facteur 4 sur les débits soit un rapport de 0,65). Ce résultat peut s'expliquer par une extraction électrostatique des ions de la décharge en plus d'une diminution des pertes par précipitation électrostatique qui est le mécanisme de perte dominant dans l'espace inter-diélectrique (cf. §V.5.1). En effet, à distance inter-diélectriques croissante, les quantités de charges transférées par filament augmentent. Cela entraîne des champs radiaux (dans les plans

parallèles aux diélectriques) supérieurs qui augmentent l'efficacité d'extraction des ions des filaments aussi bien vers l'amont que vers l'aval de la décharge. De plus, l'augmentation de charge par filament entraîne une augmentation de l'interaction électrostatique entre les filaments. En effet, les répulsions coulombiennes entre les filaments dépendent de la charge et de la distance entre deux filaments. Même si, à courant de décharge constant, la distance moyenne inter-filaments pendant une demi-alternance augmente avec la distance inter-diélectriques, l'augmentation de la charge par filament compense cet éloignement et conduit à une augmentation des répulsions coulombiennes. En particulier, cette variation de l'interaction entre les filaments peut expliquer l'augmentation, avec la distance inter-diélectriques, de la pente du courant d'ions selon le courant de décharge avec l'auto-organisation en trois rideaux (cf. Figure V-5 a).

Configuration de mesure :

Pour un débit donné, les courants d'ions 5 à 10 fois plus grands dans la configuration 2 que dans la configuration 1 résultent majoritairement de la réduction du temps de transit qui limite les pertes d'ions entre la décharge et la mesure.

Sur Figure V-5 (b), en configuration 2 pour une distance inter-diélectriques de 1,6 mm, le courant d'ions est plus grand à $0,5 \text{ L.min}^{-1}$ qu'à 1 L.min^{-1} . Cette décroissance de courant à faible débit est observée dans différentes conditions en configuration 2. Trois hypothèses peuvent expliquer ce résultat : (i) les mécanismes d'extraction non convectifs, (ii) la diminution de la dilution des espèces (ions et neutres) dans le gaz qui conduit à une augmentation des densités affectant l'ensemble des processus de transport et (iii) une modification des champs électriques dans l'espace inter-diélectriques liés à des courants de fuites entre l'électrode polarisée de la DBD et les masses environnantes. Ainsi, dans certaines conditions, travailler à débit plus faible peut permettre d'augmenter le courant d'ions entrant dans le chargeur.

Nature des parois :

Enfin, des tests (non présentés) effectués en configuration 2 avec des parois en verre présentent des courants d'ions supérieurs aux mesures avec des parois en aluminium à même courant de décharge. Ainsi, les parois de confinement du gaz dans l'espace inter-diélectriques sont en verre dans le chargeur bipolaire.

En conclusion, en tenant compte des variations des densités d'ions liées aux collections et à la recombinaison, l'étude selon la distance inter-diélectriques met en évidence une extraction des ions de la décharge liée au gradient de densité de charges dans la décharge qui affecte le champ électrique et donc la dérive électrostatique dans le sens du flux. De même que la variation de précipitation électrostatique dans le volume inter-diélectriques, cette extraction participe à l'augmentation des courants d'ions en post-décharge à distance inter-diélectriques plus grande.

V.5. Décroissance des densités d'ion (collection aux parois et recombinaison) en post-DBD : inter-diélectriques et post-diélectriques

Les courants d'ions entrants et les profils de densité d'ions dans le chargeur sont contrôlés par les mécanismes de décroissance des ions pendant leur transit. Par une étude qualitative, nous déterminerons l'influence de ces mécanismes sur le courant d'ions en post-décharge ce qui permettra dans le paragraphe V.6 d'estimer les conditions de charge.

V.5.1. Dans l'espace inter-diélectriques

Après avoir été produits et extraits des filaments, les ions transitent dans l'espace inter-électrodes et dans l'espace inter-diélectriques avant d'être injectés dans le chargeur (cf. Figure V-1). Pour augmenter les courants d'ions entrant dans le chargeur, il est donc nécessaire de déterminer les mécanismes contrôlant les variations de densité d'ions dans l'espace inter-diélectriques.

La Figure V-6 représente le courant d'ions en post-décharge selon la tension appliquée (U_{cc}) à débit fixé de 4 L.min^{-1} correspondant au milieu de gamme de l'étude dans la configuration 1 pour une distance inter-diélectriques de 1 mm et une distance entre la décharge et la sortie des diélectriques de 25 mm. Les lignes verticales délimitent les gammes de tensions de transition (en pointillé = début de transition et en trait pleins = fin de transition) entre les différentes auto-organisations des filaments identifiées au paragraphe IV.6.

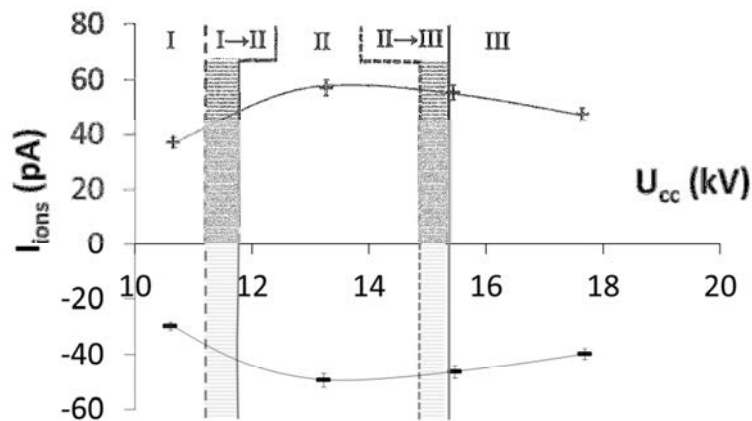


Figure V-6 : I_{ions} selon U_{cc} en configuration 1 pour un débit de 4 L.min^{-1} et $d_{sortie}=25 \text{ mm}$

Sur la Figure V-6 à forte tension ($> 14 \text{ kV}$), le courant d'ions diminue à tension croissante alors que la production d'ions augmente (cf. V.3). Ce résultat est cohérent avec une

augmentation de la collection dans l'espace inter-électrodes et inter-diélectriques en post-DBD liée à l'augmentation du champ de Laplace dans l'espace inter-électrodes et inter-diélectriques.

Pour confirmer que les pertes par collection électrostatiques sont bien le mécanisme dominant, le courant d'ions est mesuré à débit constant de 4 L.min^{-1} et à volume constant ($2,47 \text{ cm}^3$), c'est-à-dire à temps de transit constant, en aval des diélectriques dans la configuration 1 pour des distances entre la décharge et la sortie des diélectriques de 10, 25 et 40 mm. La longueur de l'électrode est de 3 cm. La largeur de l'espace inter-diélectriques est de 36 mm et la distance inter-diélectriques est de 1 mm. La Figure V-7 représente le courant d'ions positifs (étant donnée la similarité entre les courants des deux polarités) et le rapport $I_{\text{ions}}/I_{\text{décharge}}$ (mesuré/produit) en fonction du temps de transit total (temps inter-diélectriques variable et temps en aval des diélectriques constant).

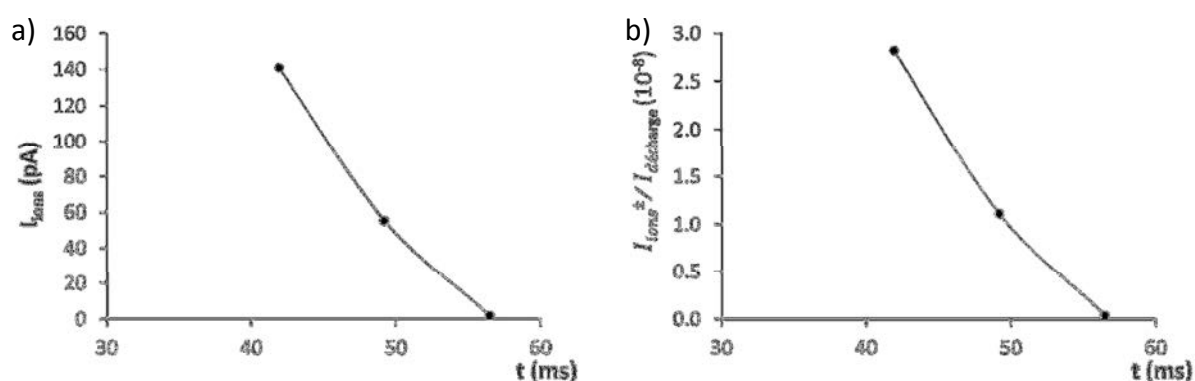


Figure V-7 : a) I_{ions}^+ et b) $I_{\text{ions}}/I_{\text{décharge}}$ selon le temps de transit du gaz dans l'espace inter-diélectriques

Le courant d'ions mesuré diminue de 2 ordres de grandeur lorsque le temps de transit évolue de 42 ms à 56,5 ms. Cette amplitude de variation est incompatible avec un processus de perte par diffusion dominant qui induirait des pertes de l'ordre de 15% (cf. Annexe 11). De plus, la recombinaison ion-ion engendre une diminution de courant inférieure à un facteur 2 (cf. § V.5.2). Ainsi, l'écart de deux ordres de grandeur ne peut s'expliquer que par un mécanisme de collection électrostatique dominant dans l'espace inter-diélectriques, lié aux composantes de champs de Laplace, de charge d'espace et de surface perpendiculaires aux diélectriques. Le rôle de la précipitation électrostatique permet d'interpréter l'augmentation des courants d'ions mesurée à distance inter-diélectriques croissante (cf. §V.4).

V.5.2. En aval des diélectriques

La Figure V-8 représente pour la configuration 1 (a) les courants d'ions I_{ions}^+ et $-I_{ions}^-$ ainsi que (b) le rapport $I_{ions}^+/I_{décharge}$ selon le temps de transit contrôlé par la longueur du tube à diamètre constant (diamètre de 4 mm). La longueur des électrodes est de 1 cm, la distance inter-diélectriques de 1,6 mm, la largeur de passage du gaz de 1,7 cm et la distance entre la décharge et la fin des diélectriques de 7 mm. Le courant de décharge est de 0,8 mA et le débit de 4 L.min⁻¹.

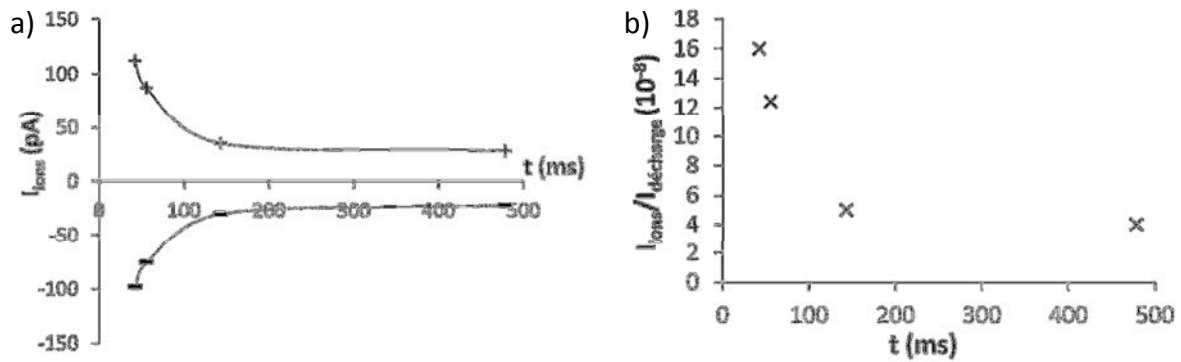


Figure V-8 : (a) I_{ions} et $I_{ions}/I_{décharge}$ selon le temps de transit

L'ordre de grandeur du rapport du courant d'ions sur le courant de décharge évolue de 10^{-7} à 10^{-8} pour des temps de transit de 50 à 500 ms. De plus, la pénétration des ions (rapport entre la densité moyenne sur la section de sortie sur la densité moyenne sur une section en entrée d'un système) est de 30% pour des temps de 42 à 143 ms (soit en 100 ms). Le rapport des courants et la pénétration sont compatibles avec soit la collection électrostatique par self-répulsion d'un nuage unipolaire (i.e. en ne considérant qu'une polarité) soit la recombinaison d'un nuage homogène (cf. Annexe 11). Avec l'hypothèse que le tube de transport est de diamètre constant de 4 mm pour un débit fixé de 4 L.min⁻¹ (les pertes par diffusion aux parois dépendant du diamètre du tube de transport), la pénétration liée aux pertes par diffusion est de 60% et non de 30%. Ainsi, même si la diffusion joue sur les décroissances de densité d'ions, ce n'est pas le mécanisme dominant.

Il reste à trancher entre la collection électrostatique et la recombinaison. Pour cela, nous nous appuyons sur la similarité des décroissances d'ions positifs et négatifs (Figure V-8 a).

De 43 à 479 ms, la pénétration des ions positifs est de 25% et la pénétration des ions négatifs est de 22%. Les pénétrations d'ions des deux polarités sont proches avec une

pénétration des ions positifs supérieure de 3 %. Cet écart s'amplifie lorsque le temps de transit augmente.

D'après les calculs détaillés dans l'Annexe 11 (pour lesquels les pertes par diffusion sont supposés négligeables), les pertes par self-répulsion de nuages unipolaires séparés ne permettent pas d'expliquer l'écart de 3% mesurés (soit un rapport de pénétration positive sur négative de 1,36). En effet dans ce cas, la pénétration des ions négatifs est inférieure à la pénétration des ions positifs avec un facteur entre 1,5 et 2 (selon la température et la densité initiales) entre les deux pénétrations, en raison de l'écart de mobilité des ions positifs et négatifs.

Dans le cas d'un nuage d'ions homogène, les pertes par self-répulsion (lié au champ de charge d'espace nette) entraînent une pénétration plus importante des ions négatifs liés à l'excès d'ions positifs. Cette hypothèse n'est donc pas cohérente avec les mesures car elle conduit à une pénétration des ions négatifs supérieure à celle des ions positifs contrairement à ce qui est mesuré. Il faut noter que la prise en compte des pertes par diffusion ne permet pas de compenser l'écart entre les mesures et les calculs.

Par principe, le champ de charge d'espace entraîne un mélange des ions des nuages unipolaires (la densité nette est divisée par 2 pour des temps de l'ordre de 10 à 100 ms selon la densité initiale considérée de 10^{13} à 10^{12} m^{-3} (Cole & Jones, 2002)). Lors de l'homogénéisation, le système va évoluer d'une condition où la pénétration des ions positifs est supérieure à une condition où la pénétration des ions négatifs est plus importante. Cette évolution des pénétrations est incompatible avec l'amplification mesurée de l'écart entre la polarité positive en excès et la polarité négative.

L'écart mesuré entre les deux polarités avec une pénétration des ions positifs plus grande que celle des ions négatifs, sur l'ensemble de l'espace post-diélectriques ne peut donc s'expliquer que par un mécanisme de recombinaison dominant dans un nuage d'ions positifs et négatifs homogènement répartis. En effet, pour la recombinaison, la pénétration est plus forte pour la polarité en excès et est équivalente pour des densités équivalentes en polarité positive et négative. Par ailleurs, comme en post-source radioactive (cf.0), le courant net (i.e. l'écart entre le courant d'ions positifs et le courant d'ions négatifs) est contrôlé par les mécanismes de self-répulsion et de diffusion.

Ainsi, le processus dominant en post-diélectriques est donc la recombinaison d'un nuage d'ions bipolaire homogène.

V.5.3. Conclusions

La Figure V-9 synthétise les conclusions concernant l'évolution des ions en post-décharge appliquée aux conditions retenues au §V.6.2.2 pour la charge bipolaire d'aérosol (en particulier pour le calcul des temps de transit).

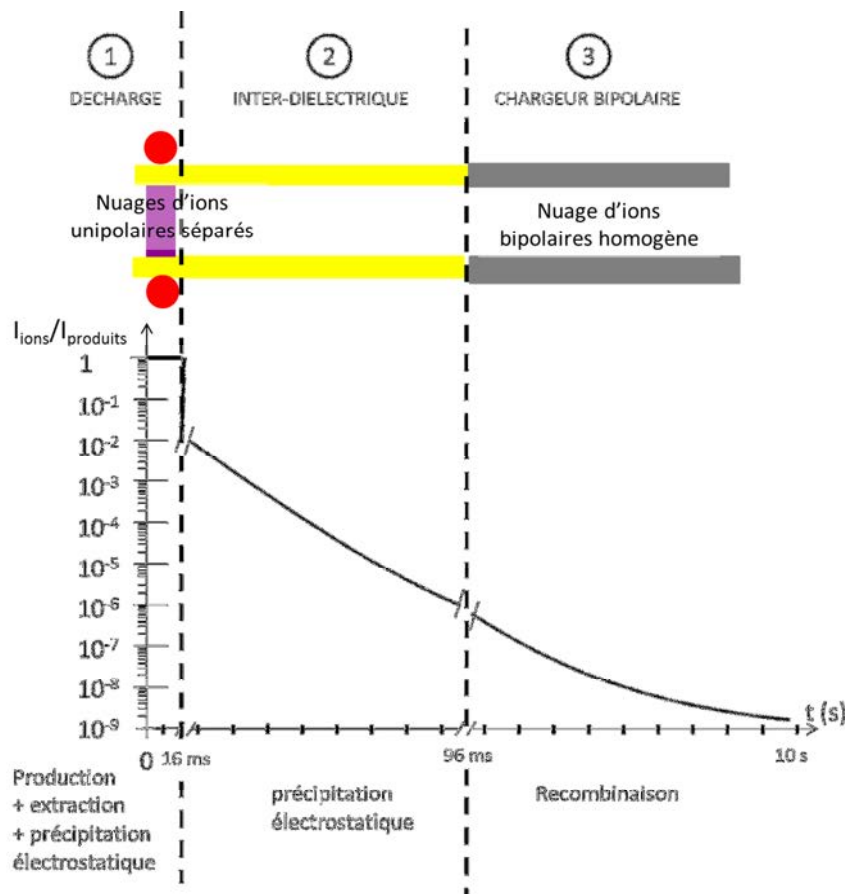


Figure V-9 : résumé des processus dominant la décroissance des ions selon le temps de transit dans la condition retenue pour la neutralisation d'aérosol

Comme démontré précédemment par l'analyse de l'évolution des courants ioniques unipolaires en post-DBD, la précipitation électrostatique est le processus dominant la décroissance des ions dans la décharge et dans l'espace inter- diélectrique, alors qu'en aval des diélectriques, le processus de perte d'ions dominant est la recombinaison.

Les charges (ions et électrons qui s'attachent aux molécules électronégatives pour former les ions négatifs) produites pendant les filaments ($\approx 10\text{ ns}$, cf. §I.2.4.3) sont séparées dans des champs forts ($> 10^5\text{ V.m}^{-1}$) jusqu'à l'inversion du champ électrique total dans l'espace inter-électrodes (toutes les $8\text{ }\mu\text{s}$). Chaque filament (cf. §I.2.5.3) peut être considéré comme

une source transitoire et récurrente d'ions bipolaires. Les ions produits par chaque filament sont initialement répartis en deux nuages unipolaires séparés de part et d'autre du filament de décharge à la fin de chaque filament. Les ions ainsi produits transitent dans des champs électriques oscillant à l'origine de la précipitation électrostatique jusqu'à la sortie des diélectriques (de 16 à 96 ms).

Dans l'espace inter-diélectriques, il existe une évolution de la distribution spatiale des ions bipolaires produits par chaque filament sous forme de nuages unipolaires séparés vers une distribution homogène en post-diélectriques où la recombinaison devient le processus de perte d'ions dominant.

V.6. Conditions de fonctionnement pour la neutralisation d'aérosol

Les densités d'ions décroissent le long du chargeur. De ce fait, les conditions de charge ($n_{ions} \cdot \tau$; I_{ions}^+ / I_{ions}^-) évoluent le long du chargeur. Pour déterminer les conditions de charge, nous allons, dans un premier temps, nous intéresser à l'évolution des rapports I_{ions}^+ / I_{ions}^- et du produit $n_{ions} \cdot \tau$ en fonction du temps de transit. Dans un second temps, le réacteur utilisé pour la charge bipolaire des aérosols est défini et caractérisé en termes de conditions de charge des aérosols. Dans ce paragraphe focalisé sur le chargeur, les effets électrostatiques sont négligeables et nous assumons que les ions se déplacent dans le sens du flux à la vitesse du gaz, il est ainsi possible d'estimer les densités d'ions à partir des courants mesurés (cf. § III.4).

V.6.1. Rapport I_{ions}^+ / I_{ions}^- et $n_{ions} \cdot \tau$ selon le temps de charge

V.6.1.1. Méthode d'estimation du produit $n_{ions} \cdot \tau$

Une valeur de produit $n_{ions} \cdot \tau$ de $6 \cdot 10^{12} \text{ s} \cdot \text{m}^{-3}$ est requise pour atteindre un état de charge indépendant des propriétés de l'aérosol (taille, densité, charge initiale cf. §I.1.3.2.b). Les courants d'ions positifs et négatifs, et donc, les densités d'ions, décroissent au cours du temps. La valeur du produit $n_{ions} \cdot \tau$ est alors estimée par la somme, sur un nombre d'intervalle égal au nombre de mesures, des produits $n_{ions} \cdot \Delta t$ de chaque intervalle avec n_{ions} la valeur de densité évaluée à partir des mesures de courants d'ions et Δt l'écart de temps de transit entre chaque mesure.

Ces résultats ont été obtenus dans la configuration 1. Dans cette configuration, nous avons montré que les ions en post-diélectriques forment un nuage bipolaire homogène (cf. V.5.2).

Ainsi, nous pouvons faire les hypothèses suivantes :

- la valeur de la densité moyenne est représentative de la densité en chaque point,
- la densité moyenne peut être estimée par le rapport du courant mesuré sur le débit de gaz : $n_{ions}^{\pm} = \frac{I_{ions}^{\pm}}{eQ}$ avec $n_{ions}^{\pm} (m^{-3})$ la densité d'ions +/-, $I_{ions}^{\pm} (A)$ le courant d'ions +/-, $e = 1,6 \cdot 10^{-19} C$ la charge élémentaire et $Q (m^3.s^{-1})$ le débit de gaz.

La Figure V-10 représente la densité d'ions positifs (trait plein) calculée à partir des courants d'ions mesurés, les valeurs de $n_{ions} \cdot \Delta t$ calculées pour chaque intervalle (rectangle) et la valeur de $n_{ions} \cdot \tau$ cumulée (pointillés noirs) pour un débit de $1 L.min^{-1}$.

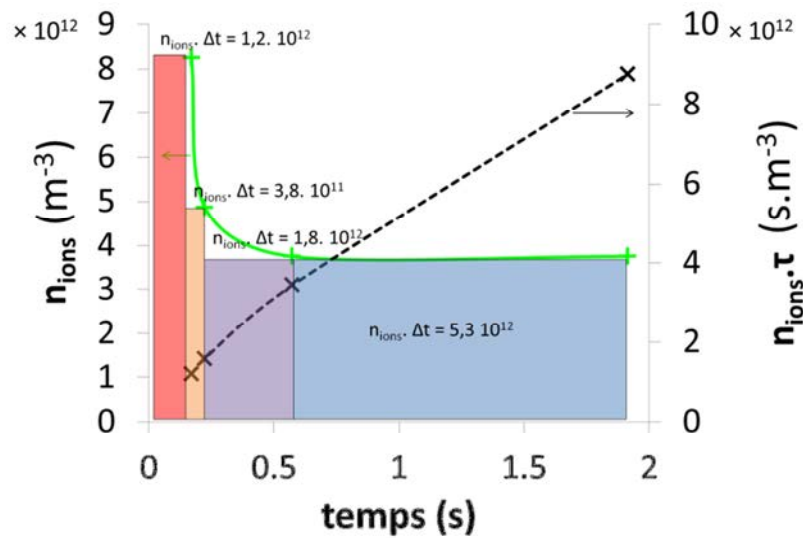


Figure V-10 : estimation du produit $n_{ions} \cdot t$ en fonction du temps de parcours

Le produit $n_{ions} \cdot \tau$ augmente avec le temps de charge. La valeur estimée de $8,75 \cdot 10^{12} s.m^{-3}$ est une sous-estimation car la valeur réelle représente l'intégrale de la courbe alors que la valeur calculée correspond à la somme des rectangles. Le produit de la densité d'ions en sortie de chargeur par le temps total de charge est de $7,1 \cdot 10^{12} s.m^{-3}$ soit 0,8 fois la valeur de $8,75 \cdot 10^{12} s.m^{-3}$ calculée précédemment. Ainsi, pour s'assurer que la valeur du $n_{ions} \cdot \tau$ est supérieure à $6 \cdot 10^{12} s.m^{-3}$, il faut que le produit du temps de charge par la densité en sortie de chargeur ($n_{ions}^{\pm}(sortie\ de\ chargeur) \cdot t_{charge}$) soit supérieur à $4,9 \cdot 10^{12} s.m^{-3}$. Ce calcul est utilisé par la suite pour confirmer que ce chargeur peut être utilisé comme neutraliseur (cf. §V.6.2.2).

Enfin, la valeur de $n_{ions} \cdot \tau$ finale est supérieure à $6 \cdot 10^{12} s.m^{-3}$, considérée comme la valeur à atteindre pour pouvoir neutraliser de façon certaine un aérosol dont la concentration peut atteindre $10^7 cm^{-3}$. Le système peut donc être utilisé comme chargeur bipolaire.

V.6.1.2. *Augmentation du rapport des courants I_{ions^+}/I_{ions^-} dans le chargeur*

La charge moyenne de l'aérosol bipolaire dépend du rapport des densités d'ions positifs sur négatifs (cf. I.1.3.2.a). Or, à cause des pertes différentielles entre les ions positifs et négatifs, ce rapport évolue au cours du transit des ions dans le neutraliseur. La Figure V-11 présente pour trois tensions ($U_{cc} = 15 ; 17$ et 20 kV), les variations du rapport des courants d'ions positifs sur négatifs en fonction du temps de transit pour un débit constant de 1 L.min^{-1} .

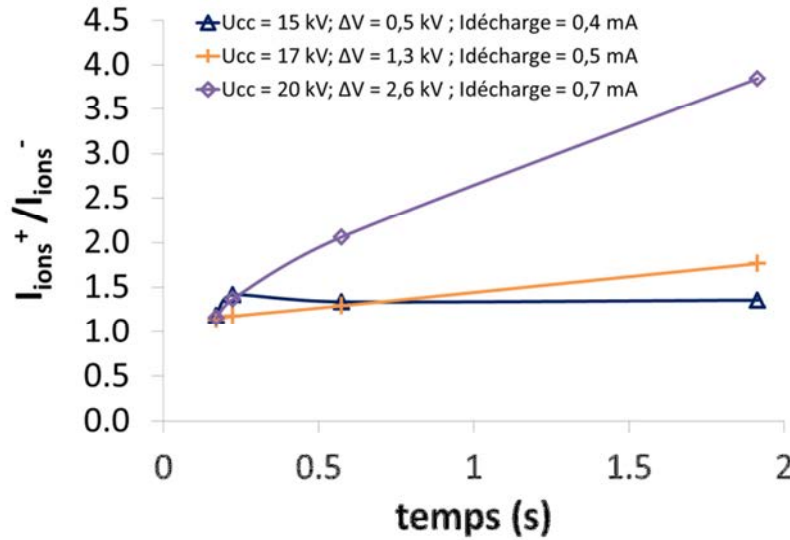


Figure V-11 : I_{ions^+}/I_{ions^-} selon le temps de transit dans le chargeur pour $U_{cc} = 15, 17$ et 20 kV

Le rapport des courants d'ions I_{ions^+}/I_{ions^-} est constant ou augmente avec le temps de transit des ions en post-décharge. Cette variation est relative à la différence de propriétés des ions positifs et négatifs, les ions négatifs sont moins lourds et plus mobiles que les ions positifs donc plus facilement perdus aux parois par diffusion.

En fait, la variation du rapport I_{ions^+}/I_{ions^-} dépend des mécanismes de pertes d'ions pendant le transport dans le chargeur. Pour définir l'influence respective des différents mécanismes de perte, le rapport I_{ions^+}/I_{ions^-} est exprimé en fonction du courant net d'ions (somme des courants d'ions positifs et négatifs) :

$$\frac{I_{ions^+}}{I_{ions^-}} = 1 + \frac{I_{net}}{I_{ions^-}} \quad V-1$$

Considérons l'équation V-1, quel que soit le mécanisme de perte considéré, le courant d'ions négatifs diminue toujours lorsque le temps de transit augmente. Cependant, la variation de courant net dépend du mécanisme considéré :

- La recombinaison correspond à la disparition d'un ion négatif pour un ion positif de sorte que le courant d'ions négatif diminue alors que le courant net reste constant.

- si $I_{net} > 0$: $\frac{I_{net}}{I_{ions}^-}$ augmente $\rightarrow \frac{I_{ions}^+}{I_{ions}^-}$ augmente
- si $I_{net} < 0$: $\left| \frac{I_{net}}{I_{ions}^-} \right|$ augmente $\rightarrow \frac{I_{net}}{I_{ions}^-}$ diminue $\rightarrow \frac{I_{ions}^+}{I_{ions}^-}$ diminue

- La collection des ions par diffusion sur les parois dépend au premier ordre du coefficient de diffusion supérieur pour les ions négatifs (cf. Tableau II-5 dans §I.2.5.3). Ainsi, le courant d'ions négatifs décroît plus vite que le courant d'ions positifs. :

- I_{ions}^- diminue et I_{net} augmente $\rightarrow \frac{I_{ions}^+}{I_{ions}^-}$ augmente (cf. 0 utilisé pour expliquer la variation de ce rapport en aval de sources radioactives).

- La collection d'ions par répulsion coulombienne a tendance à faire tendre le rapport $\frac{I_{ions}^+}{I_{ions}^-}$ vers 1 c'est-à-dire à faire tendre I_{net} vers 0 :

- si $I_{net} > 0$: $\frac{I_{ions}^+}{I_{ions}^-}$ diminue
- si $I_{net} < 0$: $\frac{I_{ions}^+}{I_{ions}^-}$ augmente

Ainsi, l'augmentation du rapport I_{ions}^+ / I_{ions}^- avec un courant net positif (rapport I_{ions}^+ / I_{ions}^- supérieur à 1) confirme que les mécanismes de décroissance des ions dominant en post-diélectrique (i.e. dans le chargeur) sont la recombinaison (cf. paragraphe V.5.2) et la diffusion aux parois. Il en découle que lorsque le temps de charge de l'aérosol augmente, la charge moyenne de l'aérosol dérive vers les charges positives.

V.6.2. Définition des conditions de fonctionnement du chargeur et évaluation du produit $n_{ions} \cdot \tau$

Afin de bénéficier de courants d'ions maximums pour les aérosols, l'injection d'aérosol s'effectue dès la sortie des diélectriques. La distance entre la décharge et la sortie des diélectriques est de 7 mm afin de limiter les pertes électrostatiques dans le volume inter-diélectriques sans risque de contournement des diélectriques par la décharge. Les mesures de courants d'ions entrants dans le chargeur sont effectuées avec la configuration 2.

V.6.2.1. Caractéristique I_{ions}^+ / I_{ions}^- selon les conditions de travail (tension, débit, distance inter-diélectriques)

La charge moyenne de l'aérosol en sortie de neutraliseur dépend du rapport mobilité-densité des ions positifs sur les ions négatifs (cf. §I.1.3.2.a) qui varie le long de la trajectoire

de l'aérosol pendant la charge et est rapporté ici au même rapport en entrée de chargeur. En première approximation, le rapport de mobilité entre ions positifs et ions négatifs est supposé constant égal à 0,6 (cf. §I.2.5.3). La charge moyenne sera donc contrôlée au premier ordre par le rapport des densités d'ions positifs et négatifs. Seules les tendances des courbes sont discutées (cf. §V.1) afin de choisir le réacteur utilisé pour les tests de charge bipolaire et afin d'analyser les mesures de charge des aérosols grâce au rapport I_{ion^+}/I_{ion^-} .

Dans ce paragraphe, le courant d'ions et le rapport des courants d'ions positifs sur négatifs (relatif au rapport des densités d'ions) sont représentés (Figure V-12) selon la surtension ΔV (qui traduit la collection dans l'espace inter-diélectriques) pour 2 débits (1 et 4 L.min⁻¹) et 2 distances inter-diélectriques (1 et 1,6 mm). La surtension est la différence entre la tension appliquée et la tension d'extinction corrigée (circuit extérieur / espace inter-électrodes) et permet de comparer des réacteurs dont les tensions d'extinction sont différentes.

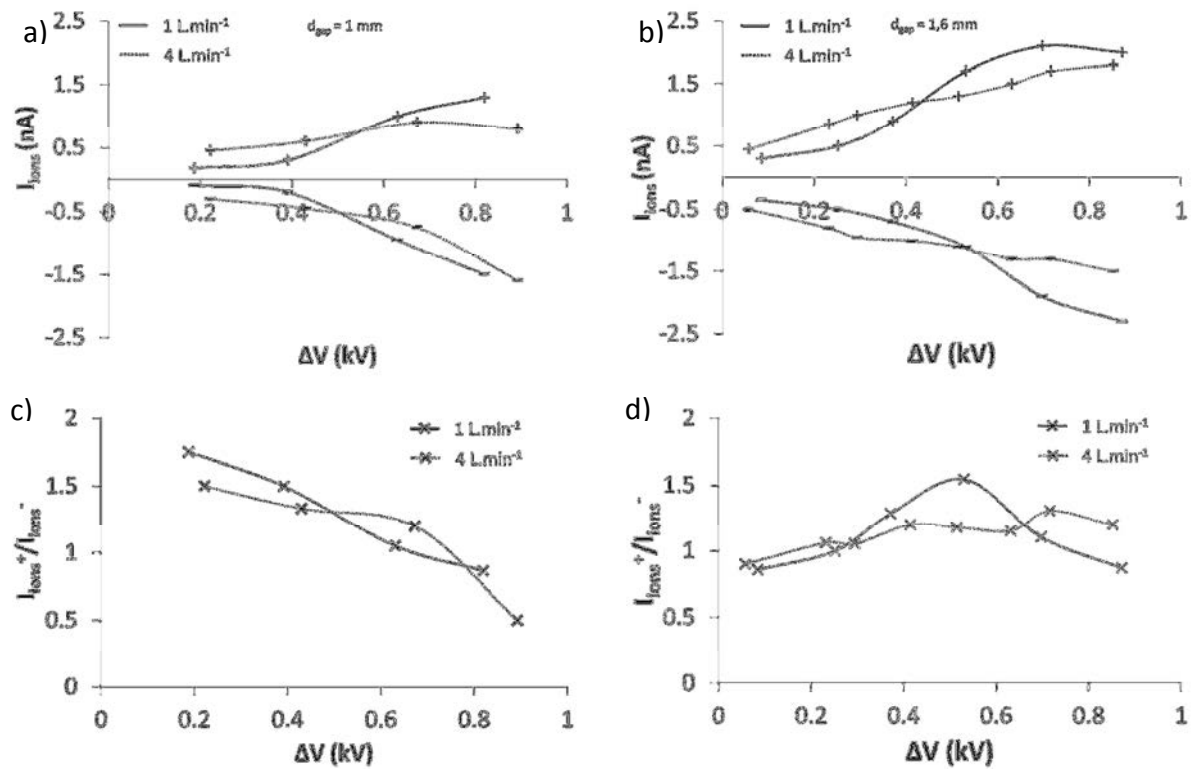


Figure V-12 : I_{ions^+}/I_{ions^-} avec $Q = 1$ et 4 L.min⁻¹ pour (a) $d_{gap} = 1,6$ mm et (b) $d_{gap} = 1$ mm

Les tendances des courants mesurés en entrée de chargeur (Figure V-12 (a) et (b)) sont identiques à celle obtenues dans la configuration 1 avec un ΔV compris entre 0 et 1 (courant de décharge de 0 à 3 mA cf. §V.3). Les courants varient entre 0,1 et 2,5 nA soit des courants d'ions 2 à 10 fois supérieurs à la configuration 1. Ce résultat est en accord avec les mesures

de la Figure V-5 (b) et traduit la différence de temps de transit entre les deux configurations. Enfin, comme vu au paragraphe V.4, une distance inter-diélectriques de 1,6 mm permet d'obtenir un courant d'ions entrant dans le chargeur 4 fois plus élevé qu'à 1 mm.

Pour la distance inter-diélectriques de 1 mm (Figure V-12 c), le rapport de courant diminue avec la tension quel que soit le débit. Pour la distance inter-diélectriques de 1,6 mm (Figure V-12 d), pour une surtension inférieure à 0,5 kV ; le rapport des courants d'ions augmente avec la tension. À 1 L.min⁻¹, ce rapport décroît à partir de 0,5 kV. Les variations du rapport de courant traduit des décroissances différentes pour les ions positifs et négatifs liée à leur nature (i.e. leur mobilité et leur coefficient de diffusion) d'une part et à leur répartition spatiale au niveau de la décharge qui engendrent des mécanismes d'extraction et de collection d'intensités différentes sur les deux polarités d'autre part.

Ainsi, une distance inter-diélectriques de 1,6 mm est retenue afin d'obtenir les courants d'ions maximums en post-DBD. Enfin, à débit fixé (0,6 L.min⁻¹), la charge moyenne des aérosols en post-DBD peut être contrôlée par la tension appliquée à la DBD (cf. §VI.3.2).

V.6.2.2. Produits $n_{ions} \cdot \tau$ dans les conditions retenues

L'objectif de ce paragraphe est de définir les conditions de fonctionnement (U_{cc} ; Q) qui permettent d'utiliser le chargeur DBD bipolaire comme un neutraliseur pour le granulomètre d'un partenaire industriel composé d'un couple ADME-CNC dont le CNC fonctionne pour un débit de 0,3 à 0,6 L.min⁻¹. L'idée est de comparer le neutraliseur radioactif et le neutraliseur DBD en prélevant le même aérosol ce qui impose un débit minimum de 0,3 L.min⁻¹. Les neutraliseurs radioactifs sont d'autant plus efficaces (capables de neutraliser des aérosols plus concentrés) que le débit est faible. Ainsi, le débit de prélèvement d'aérosol est imposé à 0,3 L.min⁻¹ pour comparer les neutraliseurs avec les concentrations d'aérosol les plus élevées possibles. Les conditions de fonctionnement retenues sont présentées ci-dessous.

Pour atteindre un courant d'ions supérieur à 150 pA (cf. V.1) à l'équilibre à l'entrée du chargeur et limiter la diffusion d'aérosol vers la décharge, il est nécessaire d'imposer un débit dans la DBD. Nous choisissons d'injecter 1 volume d'ions provenant de la décharge pour 1 volume d'aérosol. Ainsi, le débit dans la décharge est imposé à 0,3 L.min⁻¹. La géométrie retenue pour la décharge est présentée dans le Tableau V-2.

Tableau V-2: caractéristiques de la décharge utilisée pour la source d'ions bipolaires

Paramètres	Valeurs
Forme d'électrode	Cylindre
Longueur d'électrode	3 cm
Largeur d'électrode	4 mm
Nature des diélectriques	Al ₂ O ₃
Épaisseur des diélectriques	0,5 mm
Distance inter-diélectriques	1,6 mm
Largeur entre les parois latérale	50 mm
Nature des parois latérales	Verre
Orientation des électrodes par rapport au flux de gaz	perpendiculaire
Distance entre la décharge et la sortie des diélectriques	5 mm

Les densités d'ions estimées après quelques secondes de transit sont de l'ordre de 10^{12} m^{-3} . Pour atteindre un produit $n_{ions} \cdot \tau$ supérieur à $6.10^{12} \text{ s.m}^{-3}$, le temps de transit de l'aérosol dans le chargeur doit ainsi être de l'ordre de 6 secondes. Ce temps de transit pour $0,6 \text{ L.min}^{-1}$ de débit total, correspond à un volume de chargeur de 60 cm^3 .

Comme montré précédemment, la charge moyenne des aérosols varie avec la tension. Comme justifié dans le chapitre sur la charge d'aérosol (cf. §VI.3.2), ce système fonctionnera avec une surtension de 0,12 kV. Le Tableau V-3 représente les courants et densités à l'entrée et la sortie du chargeur ainsi que les produits $n_{ions} \cdot \tau$ calculés en sortie de chargeur.

Tableau V-3 : conditions de fonctionnement du neutraliseur DBD

$\Delta V = 0,12 \text{ kV}$; $Q = 0,6 \text{ lpm}$ $Q_{DBD} = 0,3 \text{ lpm} = Q_{aerosol}$	$t = t_0$	$t = t_0 + 5,9 \text{ s}$	$n_{ions} \cdot \tau \text{ min}$
$I_{ions}^+ \text{ (pA)} // n_{ions}^+ \text{ (m}^{-3}\text{)}$	300 // $1,88.10^{14}$	1,92 // $1,19.10^{12}$	$7.10^{12} \text{ s.m}^{-3}$
$I_{ions}^- \text{ (pA)} // n_{ions}^- \text{ (m}^{-3}\text{)}$	300 // $1,88.10^{14}$	1,08 // $6,81.10^{11}$	$4.10^{12} \text{ s.m}^{-3}$
I_{ions}^+ / I_{ions}^-	1	1,8	

Le courant d'ions entrant dans le chargeur est supérieur au 150 pA défini comme nécessaire pour avoir une charge bipolaire d'aérosol indépendante de la concentration (cf. §V.1).

Le rapport I_{ions}^+ / I_{ions}^- évolue de 1 en entrée de le chargeur (à 10 % près) jusqu'à un facteur 1,8 en sortie de zone de mélange comme attendu d'après l'analyse du §V.6.1.2.

Le produit $n_{ions} \cdot \tau$ est supérieur à $7.10^{12} \text{ s.m}^{-3}$ pour les ions positifs et supérieurs à $4.10^{12} \text{ s.m}^{-3}$ pour les ions négatifs. D'après l'analyse du paragraphe V.6.1.1, le produit $n_{ions} \cdot \tau$ est au minimum de $5.10^{12} \text{ s.m}^{-3}$ ($4.10^{12}/0,8$). Nous confirmerons grâce aux mesures aérosols (cf. §VI.3.4) que le produit $n_{ions} \cdot \tau$ réel est supérieur au $6.10^{12} \text{ s.m}^{-3}$ requis pour la neutralisation.

V.7. Conclusions

Après avoir défini les conditions de mesure des courants d'ions bipolaires en post-DBD, les courants d'ions et les profils de densités d'ions (i.e. les conditions de charge des aérosols) ont été caractérisés à l'équilibre selon les paramètres électriques et hydrodynamiques.

Dans un premier temps, pour une géométrie donnée, l'influence de deux des paramètres de régulation (tension et débit de gaz) sur les courants d'ions en post-DBD est caractérisée. La tension contrôle le champ de Laplace, le nombre d'ions produits par unité de temps, les températures de surface et de gaz ainsi que les champs électriques dans la décharge et en post-décharge qui régissent l'auto-organisation des filaments et la collection des ions. A tension croissante, les courants d'ions mesurés dans cette géométrie augmentent de +50 pA à +250 pA. Ces résultats sont cohérents avec l'augmentation du nombre d'ions produits par unité de temps et l'augmentation des températures qui limite la recombinaison. L'évolution des courants d'ions selon la tension dépend du nombre de rideaux de filament, i.e. du mode d'auto-organisation des filaments. Cela confirme l'importance des processus électrostatiques dans le transport des ions.

Le débit contrôle l'entraînement des ions et donc le temps de transit des ions en post-DBD. Les courants d'ions pour les géométries fixées varient entre 0 et 250 pA, pour des débits de 0 à 8 L.min⁻¹. Les tendances observées dans le chargeur sont cohérentes avec un nuage homogène d'ions bipolaires dans le chargeur.

L'évolution des tendances des courants d'ions selon le débit et de la tension nous permet de confirmer que le transport des ions résulte d'une compétition électro-hydrodynamique.

Dans un second temps, l'étude selon la distance inter-diélectriques montre que l'extraction des ions de la décharge par répulsion électrostatique n'est probablement pas négligeable devant l'entraînement par le flux de gaz.

L'augmentation de la distance inter-diélectriques qui affecte les propriétés (en particulier la charge par filaments) des filaments unitaires et donc leur répartition spatio-temporelle et les processus de collection électrostatique et par diffusion permet d'augmenter les courants d'ions quel que soit le courant de décharge à débit fixé ou le débit à courant de décharge fixé. Ce résultat est induit par la diminution de la collection électrostatique dans l'espace inter-diélectriques d'une part et également par l'extraction des ions de la décharge liée au gradient de densité de charges dans la décharge qui affecte le champ électrique et donc la

dérive électrostatique dans le sens du flux d'autre part. Les courants d'ions augmentent d'un facteur 4 lorsque la distance inter-diélectriques passe de 0,5 à 1,6 mm. La distance inter-diélectriques de 1,6 mm est donc retenue pour le chargeur, dont la tension crête maximale de fonctionnement doit rester inférieure à 10 kV.

L'étude des décroissances des courants d'ions selon le temps nous permet de conclure que dans l'espace inter-diélectriques, le mécanisme dominant les pertes d'ions est la précipitation électrostatique alors qu'en post-diélectrique, le mécanisme dominant est la recombinaison. En outre, cela prouve que les ions, initialement répartis sous la forme de nuages unipolaires séparés dans la décharge, forment un nuage homogène d'ions bipolaires dans le chargeur.

En résumé, les évolutions des courants d'ions selon la tension, le débit et le temps de transit permettent de démontrer que :

- la production par la décharge est contrôlée par la charge par filament et la répartition spatiale et temporelle des filaments par demi-période (i.e. du mode d'auto-organisation des filaments)
- le transport des ions résulte d'un couplage EHD. Les ions sont entraînés en post-DBD par convection hydrodynamique. De plus l'extraction des ions de la décharge s'effectue par répulsion coulombienne et par diffusion.
- la décroissance des densités d'ions résulte d'abord de la collection électrostatique aux parois dans la DBD comme dans l'espace inter-diélectriques en post-DBD où les nuages d'ions unipolaires se mélangent, puis de la recombinaison dans le nuage bipolaire ainsi formé à l'entrée et dans une moindre mesure de la diffusion dans le chargeur post-DBD.

Enfin, le produit $n_{ions} \cdot \tau$ estimé dans les conditions retenues est supérieur à $5 \cdot 10^{12} \text{ s} \cdot \text{m}^{-3}$. La caractérisation de la charge des aérosols au chapitre VI, confirmera que ce chargeur bipolaire permet de neutraliser l'aérosol fortement concentré ($>10^7 \text{ cm}^{-3}$) c'est-à-dire que le produit $n_{ions} \cdot \tau$ réel est bien supérieur à la valeur de $6 \cdot 10^{12} \text{ s} \cdot \text{m}^{-3}$ requise. Par ailleurs, le rapport du courant d'ions positifs sur le courant d'ions négatifs est ajustable entre 0,5 et 2 selon la tension et le débit. Ainsi, la charge moyenne des aérosols peut être contrôlée simplement par la tension appliquée à la décharge.

VI. Charge bipolaire d'aérosol en post-DBD

Ce chapitre est dédié à la définition des conditions de fonctionnement du chargeur post-DBD utilisé comme neutraliseur pour la granulométrie d'aérosol.

La première partie permet d'introduire le principe de mesure granulométrique basé sur la mesure des distributions de mobilités d'aérosols neutralisés et de valider les méthodes de mesures de distribution de charge des aérosols.

La seconde partie présente les distributions de charge mesurées en post-DBD sur des aérosols monodispersés pour définir les conditions de fonctionnement adaptées aux granulomètres commerciaux sans modification des logiciels d'inversion mobilité-diamètre. Enfin, dans les conditions retenues, la comparaison des distributions de taille d'aérosols unimodaux mono- et poly-dispersés, polymodaux et atmosphériques entérine l'intérêt du chargeur bipolaire post-DBD pour la granulométrie à des concentrations de 10^4 à 10^7 cm⁻³.

VI.1. Principe de la granulométrie par mesure de mobilité électrique

Cette méthode par analyse différentielle de mobilité électrique (ADME) est la plus utilisée pour la granulométrie d'aérosol submicroniques. Elle implique cinq étapes :

- L'aérosol est chargé par collection d'ions gazeux afin de maîtriser la distribution de charge bipolaire et donc de mobilité de particule pour chaque diamètre.
- L'aérosol est séparé par gamme de mobilité sous champ électrique contrôlé.
- Les concentrations d'aérosols sont mesurées en fonction de la mobilité.
- Inversion de données :

a) Les mobilités sont converties en diamètre de particules monochargées.

b) la concentration d'aérosols mesurée par gamme de mobilité (3) correspondant à des gammes de diamètres de particules monochargées (4), est corrigée par la fraction de particules monochargées du diamètre sélectionné, selon la loi de charge de Wiedensholer, prise en référence.

c) Pour chaque gamme de diamètre/mobilité, les concentrations sont corrigées pour rendre compte des fractions d'aérosols plus « gros » mais multichargés de même mobilité et selon le granulomètre, des pertes par diffusion dans le système.

Ainsi, un neutraliseur idéal permet de maîtriser les fractions neutres, mono, bi, tri-chargées de particules (distribution de charge) pour chaque diamètre, indépendamment des propriétés de l'aérosol (nature, concentration, charge initiale, poly-dispersion, ...).

Après la mesure des courants d'ions en entrée de neutraliseur (cf. chapitre V), l'état de charge ($\langle q \rangle$ et dn_p/dq_p) en sortie de neutraliseur est présenté ici selon les conditions de fonctionnement de la décharge (surtension et /ou Courant de décharge). L'étude est menée dans la géométrie retenue pour atteindre les seuils de $n_{ions}\tau$ et contrôler le rapport I_{ions^+}/I_{ions^-} (cf. §V.6.2), c'est-à-dire pour limiter les pertes et la recombinaison pendant le transport des ions de la DBD au chargeur, injecter des courants d'ions positifs et négatifs maxima dans le chargeur ($n_{ions}\tau$ max) et contrôler le rapport I_{ions^+}/I_{ions^-} (cf. §V.6.2).

VI.2. Validation de la méthode de mesure sur le neutraliseur de référence

Ce paragraphe présente les méthodes de détermination des distributions de charge selon le diamètre à partir de deux paramètres, la charge moyenne ($\langle q \rangle$) mesurée et l'écart-type (σ) théorique ou mesuré.

VI.2.1. Distributions gaussiennes de charge

Les distributions de charge peuvent être représentées comme des distributions de forme gaussienne (cf. validation Annexe 10). La distribution Gaussienne s'écrit sous la forme :

$$f_q = \frac{n_q}{n_{tot}} = f_{\langle q \rangle} * e^{\left(-\frac{(q-\langle q \rangle)^2}{2\sigma^2}\right)}$$

Avec f_q la concentration (ou fraction) modale du mode q fois chargé, $\langle q \rangle$: la charge moyenne de la distribution, σ l'écart type de la distribution et $f_{\langle q \rangle}$ la hauteur du maximum de la distribution.

La fonction de distribution de charge normalisée ($\sum_{-\infty}^{+\infty} f_q = 1$), en assumant qu'il est possible de substituer la somme par l'intégrale, s'écrit alors :

$$f_q = \frac{n_q}{n_{tot}} = \frac{1}{\sigma \cdot \sqrt{2\pi}} * e^{\left(-\frac{(q-\langle q \rangle)^2}{2\sigma^2}\right)}$$

Pour construire l'ensemble de la distribution, il faut donc déterminer $\langle q \rangle$ et σ .

Pour un diamètre de particule donné, à l'état stationnaire (c'est-à-dire pour $n_{ion}\tau > 6.10^6 \text{ s.cm}^{-3}$) lorsque la distribution de charge en sortie de neutraliseur est indépendante des propriétés initiales (concentration, charge et taille) de l'aérosol.

- L'écart type σ dépend de la température et du diamètre de l'aérosol.
- La charge moyenne $\langle q \rangle$ dépend du diamètre et des conditions de charge (T_{gaz} ; $n_{ions^+} \cdot Z_{ions^+} / n_{ions^-} \cdot Z_{ions^-}$).

Pour décrire les distributions de charge des particules d'une taille donnée en sortie de neutraliseur, deux distributions de charge sont principalement prises en référence :

- la distribution de Boltzmann (à densités et mobilités d'ions positifs et négatifs égales cf. I.1.3.2.a), prévoit une charge moyenne nulle quel que soit le diamètre,
- la loi de Wiedensolher est plus réaliste car elle prend en compte le rapport des mobilités d'ions positifs sur négatifs de 0,85 (cf. I.1.3.2.a). La charge moyenne est négative et proportionnelle au diamètre (*par exemple* : $\langle q \rangle_{500nm} = -0,58$). C'est la loi de charge utilisée dans les granulomètres, qui décrit le mieux les distributions de charge mesurées en sortie d'un neutraliseur radioactif. En effet, les écarts entre les concentrations modales mesurées avec une source radioactive et calculées avec la loi de Wiedensolher restent inférieurs à 10%, quelle que soit la taille des particules inférieure à 1 μm et pour des concentrations de 10^7 cm^{-3} (cf. §VI.2.2).

VI.2.2. Méthodes de détermination des distributions de charges

Deux stratégies sont envisageables. Il est possible de recalculer la distribution de charge extrapolée à partir du spectre de mobilité (3 méthodes du § VI.2.2.1). Par ailleurs, dans l'hypothèse de l'EQS conduisant à des distributions de charges gaussiennes, σ est connu et les mesures sont utilisées pour déterminer $\langle q \rangle$ (2 méthodes du § VI.2.2.2).

VI.2.2.1. *Par mesure des mobilités positives et négatives*

En raison des recouvrements de mobilité des modes mono et multi-chargés qui empêchent l'évaluation de la concentration de particules mono, bi, tri chargées d'une taille donnée, cette méthode ne s'applique que pour un aérosol monodispersé. Elle implique 2 étapes :

- La première consiste à déterminer pour un aérosol de diamètre donné, la distribution de charge non-normalisée (en cm^{-3} ; $\propto n_p$) selon le nombre de charge par particule.
- La deuxième étape consiste à normaliser la distribution de charge non-normalisée afin d'obtenir la distribution de charge par particule.

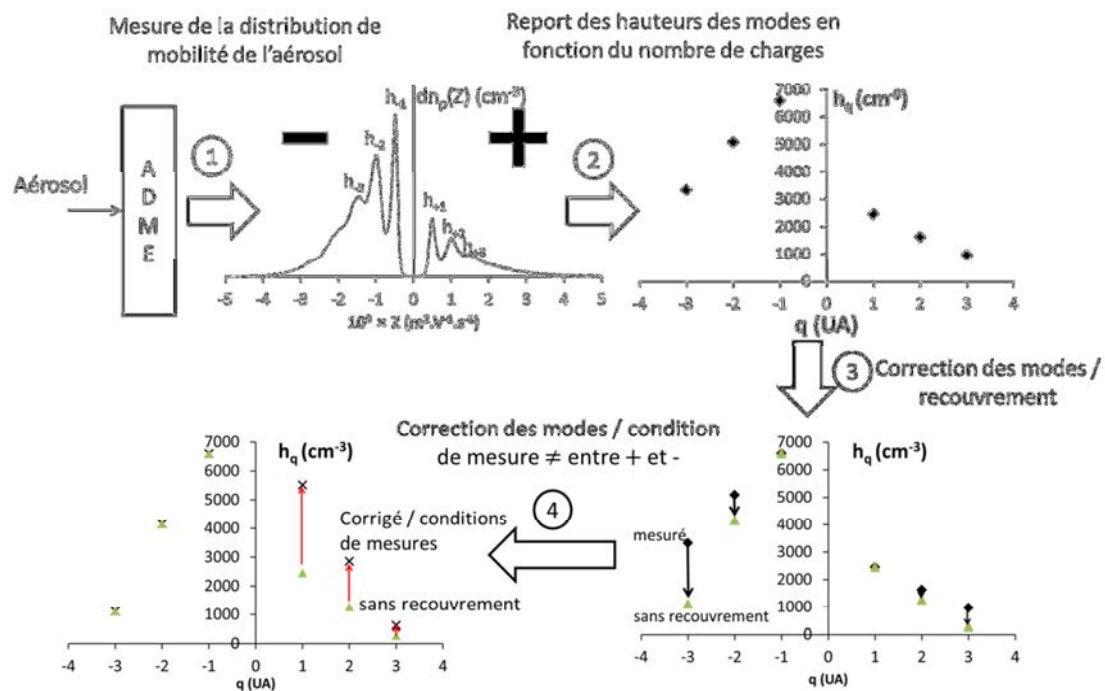


Figure VI-1 : étapes du traitement de données permettant d'estimer la distribution de charge à partir de la distribution de mobilité électrique d'aérosol

La première étape est présentée sur la Figure VI-1 et résumée ici :

- 1 mesure de la distribution de mobilité à l'aide d'un ADME
- 2 report des hauteurs des modes relatives au concentration d'aérosol mono-, bi- et tri-chargé selon le nombre de charge sur l'aérosol pour les polarités positives et négatives
- 3 prise en compte du recouvrement entre les modes
- 4 ajustement lié aux conditions de mesure (l'évolution de la concentration d'aérosol ; différence d'alimentation de l'ADME pour la polarité positive et négative)

Trois méthodes peuvent être utilisées pour reconstruire les distributions de charge normalisées à partir de la distribution de charge non corrigée (extrapolée à partir de la distribution de mobilité mesurée).

- La première méthode repose sur l'hypothèse que la distribution de charge est voisine de la distribution de Wiedensohler. Ainsi, la concentration du diamètre modal est recalculée en divisant la valeur de concentration monochargée par la fraction donnée par la loi de Wiedensohler. Ensuite les valeurs de concentration des modes bi- et tri-chargé sont divisées par la concentration du diamètre modal pour remonter aux fractions d'aérosol bi- et tri-chargés. Le principal inconvénient de cette méthode est que si la distribution est éloignée de la distribution de Wiedensohler les fractions

recalculées sont fausses et il est donc nécessaire d'effectuer la mesure de la granulométrie avec le neutraliseur de référence (Kr).

- La seconde méthode est un ajustement Gaussien. Elle s'applique lorsque les concentrations d'aérosol mono-, bi- et tri- chargé ne sont pas corrigées entre les spectres de mobilité positive et négative. Dans ce cas, deux hypothèses sont utilisées :

- les distributions de charge sont représentées par une unique gaussienne normalisée identique pour la polarité positive et négative. Cette gaussienne possède une charge moyenne à ajuster et un écart type donné par la loi de Gunn (cf. § I.1.3.2.a pour un aérosol supérieur à 100 nm),

- seul le facteur entre la distribution normalisée et la distribution de charge non-normalisée selon la charge est modifié entre les polarités positive et négative.

Deux gaussiennes sont alors construites de même charge moyenne (ajustée à l'ensemble des mesures dans chaque polarité), de même écart type et dont les hauteurs sont adaptées selon la polarité (également ajusté aux mesures dans chaque polarité). Il s'agit ici d'un traitement manuel de la distribution qui rend cette méthode longue et imprécise car dépendant de la précision de l'opérateur.

- La troisième méthode est un ajustement parabolique du logarithme de la distribution de charge. En effet, le logarithme d'une fonction gaussienne est un polynôme d'ordre 2 i.e. une parabole. Les étapes sont les suivantes :
 - 1) les logarithmes des hauteurs (i.e. des concentrations modales) sont calculés,
 - 2) une parabole est ajustée sur la fonction du logarithme des hauteurs selon le nombre de charge à l'aide des courbes de tendance Excel
 - 3) les paramètres de la gaussienne sont recalculés à l'aide des paramètres de cette parabole (cf. Annexe 10)
 - 4) la gaussienne est normalisée pour remonter à la distribution de charge

Les principales limites de cette méthode sont liées à la stabilité de l'aérosol et sur la correction du recouvrement des modes de la distribution de mobilité.

VI.2.2.2. *Par estimation de $\langle q \rangle$ à σ fixé*

En supposant l'EQS qui conduit à des distributions de charges gaussienne, σ est connu et les mesures sont utilisées pour déterminer $\langle q \rangle$. L'écart-type est supposé égal à l'écart-type de la distribution de charge prévu par Gunn, le carré de l'écart-type proportionnel au diamètre

$$\sigma^2 = \frac{2\pi\epsilon_0 d_p k_B T}{e^2}$$

Les charges moyennes sont déterminées par 2 méthodes :

- sur les hauteurs ± 1 (concentrations modales des modes +1 et -1 des distributions de mobilités électriques). Le principe est de mesurer, pour un diamètre donné, la concentration d'aérosol monochargé positif (h_{+1}) et négatifs (h_{-1}). Si la distribution est gaussienne, en suivant le principe de Gunn la charge moyenne ($\langle q \rangle$) s'écrit sous la forme : $\langle q \rangle = \frac{\sigma^2}{2} \ln\left(\frac{h_{+1}}{h_{-1}}\right)$
- par mesure de I_{net} à l'électromètre : Le principe est de mesurer en parallèle le courant net de charge (électromètre) et la concentration d'aérosol en sortie de chargeur. La charge moyenne ($\langle q \rangle$) s'écrit sous la forme : $\langle q \rangle = \frac{I_{net}}{eQn_{aérosol}}$

VI.2.2.3. *Conclusion*

Six méthodes ont été testées pour déterminer la distribution de charge d'aérosol, parmi lesquelles, deux sont rejetées :

- 1) la détermination de distribution de charge par approximation de la loi de Wiedensohler car la charge moyenne en post-DBD peut-être très différente de la loi de Wiedensohler, avec un écart de charge moyenne entre la distribution en post-DBD et la loi de Wiedensohler supérieur à 1 charge par particule.
- 2) La mesure des courants d'aérosol positifs et négatifs car cela impose de développer un ESP blindé sensible à 1 pA, pour des aérosols de taille comprise entre 10 nm et 1000 nm.

Ainsi, les mesures de charge seront obtenues par les méthodes comparées ci-dessous.

VI.2.3. Comparaison des méthodes de détermination des distributions de charge avec le neutraliseur de référence

Les quatre méthodes d'évaluation des distributions de charges retenues sont comparées en sortie du neutraliseur radioactif de référence (^{85}Kr) :

- 1) Ajustement gaussien à partir de deux gaussiennes positives et négatives, mesurées.
- 2) Mesure des distributions de mobilité positive et négative puis ajustement polynomiale sur le logarithme de la distribution de charge corrigée (cf Figure VI-1) non normalisée
- 3) La détermination de la charge moyenne par comparaison des concentrations d'aérosol +1 et -1 d'un diamètre donné en sortie D'ADME.
- 4) La mesure du courant net à l'électromètre.

Les tests sont effectués avec un aérosol de DEHS d'un diamètre de 533 nm dans l'azote. La source Kr est placée entre l'ESP et le chargeur post-DBD. Le schéma du montage est présenté sur la Figure VI-2.

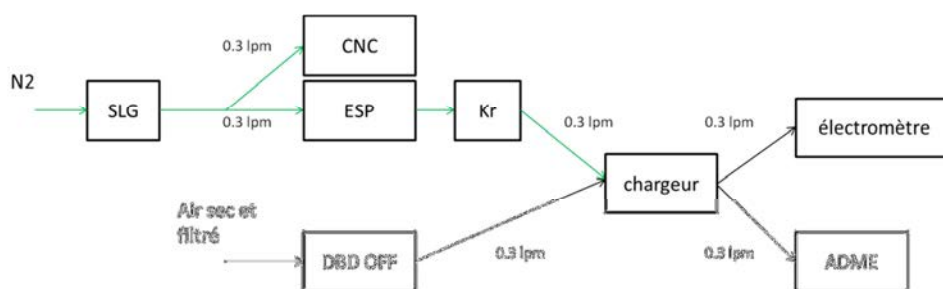


Figure VI-2 : montage de validation des méthodes de mesure de charge d'aérosol

Les charges moyennes et les carrés des écart-types obtenus pour ces quatre méthodes sont présentés dans le Tableau VI-1.

Tableau VI-1: comparaison de $\langle q \rangle$ et σ^2 obtenue selon la méthode de traitement de données pour $d_p = 533 \text{ nm}$, $n_p^{Kr} = 2,8 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-3}$, $Q_{\text{tot N2+air}} = 0.6 \text{ lpm}$

Méthode	$\langle q \rangle$	σ^2
Wiedensohler /Gunn (dans l'air)	-0,76	4,68
Boltzmann	0	4,68
1) Ajustement Gaussien manuel à partir des distributions + et -	-0,35	4,7
2) Ajustement Gaussien par parabole	-0,37	4,69
3) n^{+1}/n^{-1}	-0,33	Hyp : 4,68
4) I_{net}	-0,18	Hyp : 4,68

Les trois méthodes basées sur la mesure ADME donnent une charge moyenne de $-0,35 \pm 0,02$ avec un écart-type identique à l'écart-type théorique. La charge moyenne mesurée pour du Krypton dans l'azote est 50% en deçà de la charge théorique prévue par Wiedensohler pour du Polonium dans l'air et résulte principalement de la nature des gaz.

La charge moyenne à partir du courant net présente une valeur moyenne de -0,18. Le courant mesuré à l'électromètre dérive de -15,5 fA à -27 fA soit une variation de charge moyenne de -0,14 à -0,24. La valeur utilisée pour le calcul est la moyenne du courant pendant la variation. La variation peut s'expliquer par l'augmentation de la concentration et une modification des conditions de charge, car les concentrations modales de particules monochargées dérivent également en sortie d'ADME (la polarité positive/négative diminue/augmente).

Ces quatre méthodes donnent des charges moyennes et des écart-types cohérents et peuvent donc être utilisées pour définir la distribution de charge d'un aérosol monodispersés. En effet, l'écart entre la charge moyenne déterminée à partir des mesures avec l'ADME et l'électromètre entraîne un écart inférieur à 13 % sur les modes mono-, bi- et tri-chargé de particule de 550 nm. Cet écart est du même ordre que l'écart reporté ci-dessous entre les distributions de charge mesurées en sortie d'ADME et la distribution de charge de référence de Wiedensohler utilisée pour l'inversion des distributions de mobilité en distributions de taille dans les appareils granulométriques sur le marché. En effet, les granulomètres basés sur la mobilimétrie d'aérosols neutralisés les plus couramment utilisés, reposent sur un algorithme d'inversion de données mobilimétriques en distribution granulométrique basée sur l'approximation de Wiedensohler.

La méthode 2 est appliquée sur un aérosol de DEHS de 550 nm avec un neutraliseur de référence (source Kr TSI 3077, âgé de 5 ans) et les résultats sont comparés à la loi théorique de Wiedensohler (Figure VI-3).

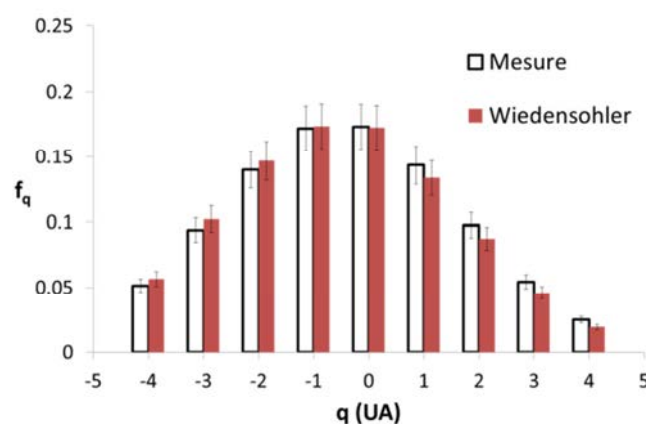


Figure VI-3 : distributions de charge obtenues par la mesure (Kr) et par Wiedensohler avec les barres de tolérance à 5%

Sur la Figure VI-3, la distribution de charge mesurée est décalée vers les charges positives par rapport à la distribution de charge calculée par l'approximation de Wiedensohler (correspondant à la distribution de charge des neutraliseurs radioactifs). Dans le neutraliseur de référence, cela induit un écart sur les fractions mono-, bi-, tri-... chargées inférieur à 10%. Pour remplacer le neutraliseur radioactif par notre neutraliseur post-DBD sans avoir à modifier le programme d'inversion de données, il faut que les écarts sur les fractions mono-, bi-, tri- chargée soit inférieurs à 10% par rapport à la distribution de charge théorique calculée par l'approximation de Wiedensohler. Par ailleurs, la fluctuation de la charge en post-DBD doit conduire à une fluctuation des concentrations modales inférieure à 10 %.

A ce stade, il convient de souligner que les conséquences sur la granulométrie reconstruite, en considérant que l'aérosol est chargé suivant la loi de Boltzmann mais inversée à partir de la loi de Wiedensohler (écart de distribution de charge réelles et de Wiedensholer utilisée pour inverser les données mobilités-diamètres), présentées en Annexe 12 et résumées ci-dessous, confirment ces résultats.

La granulométrie obtenue avec un aérosol monodispersé, chargé suivant la loi de Boltzmann et inversée à partir de la loi de Wiedensohler présente le même mode mais comporte deux différences par rapport à la granulométrie source : la hauteur du mode principal est supérieure à la hauteur du mode de la granulométrie source et un épaulement pour les diamètres inférieurs. Pour ce test, l'écart sur la hauteur de mode est de l'ordre de 20%. La hauteur de l'épaulement n'excède pas 10 % de la valeur du mode et peut donc être négligé. De même pour un aérosol unimodal, cet écart de distribution de charge réelles et de Wiedensholer utilisée pour inverser les données mobilités-diamètres, conduit à un décalage de 2% vers les diamètres plus fins.

Limites des méthodes et choix des méthodes retenues

Les deux types de mesure sont affectés par la précision des débits. De plus, la sensibilité des mesures à l'ADME ne permet de mesurer que les concentrations des aérosols de charge proche de la charge moyenne ($q_{max\ mes} = \pm 4$ charges) en deçà de 750 nm, diamètre de coupure de l'impacteur d'entrée alors que l'électromètre intègre l'ensemble des aérosols. Enfin, le calcul de la charge moyenne à partir du courant moyen mesuré à l'électromètre nécessite la mesure de la concentration, elle-même entachée d'incertitude. La première méthode de détermination des distributions de charge par ajustement Gaussien manuel à

partir des distributions de mobilité des aérosols positifs et négatifs est moins précise et n'est pas retenue. Seules les 3 dernières méthodes (notées 2, 3 et 4 au Tableau VI-1) seront comparées.

VI.3. Charge bipolaire d'aérosol en post-DBD

Après description des conditions expérimentales, nous montrerons comment la tension appliquée à la DBD permet de contrôler la charge moyenne. Dans des conditions de fonctionnement du neutraliseur post-DBD retenues, nous établirons les relations $\langle q \rangle$ et σ en fonction de d_p en utilisant des aérosols monodispersés.

VI.3.1. Introduction

Les mesures de charge bipolaire d'aérosol sont réalisées avec le montage de la Figure VI-4 :

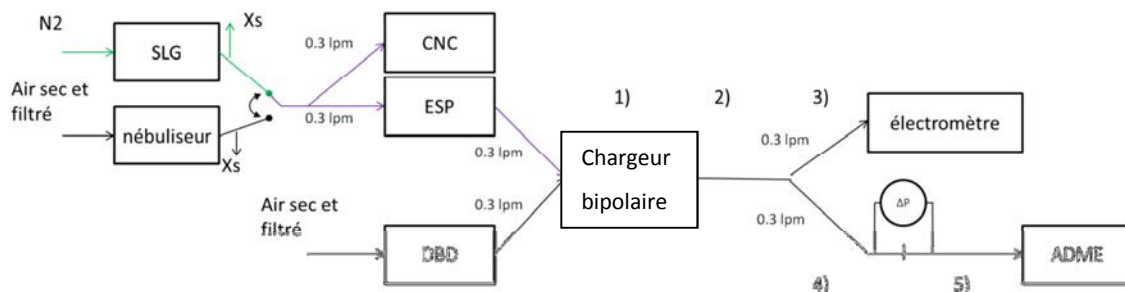


Figure VI-4 : schéma du dispositif expérimental pour les mesures aérosol

Pour toutes les mesures, le débit d'air dans la décharge est de $0,3 \text{ L.min}^{-1}$, le débit d'aérosol est de $0,3 \text{ L.min}^{-1}$. La dilution est prise en compte dans tous les résultats présentés.

- 1) L'aérosol est injecté perpendiculairement au flux d'ions par une fente de 5 mm sur 5 cm. Le temps de charge dans ce chargeur de forme trapézoïdale (5 cm en entrée et 1,5 cm en sortie, de longueur 9,5 cm et de hauteur 1,75 cm, soit un volume de 54 cm^3) est de 5.4 s. La distribution de charge évolue en sortie de neutraliseur du fait d'ions résiduels et des pertes de particules chargées pendant le transit du neutraliseur jusqu'aux appareils de mesure pour des temps de parcours suivants :
- 2) 0,5 s dans la voie commune à $0,6 \text{ L.min}^{-1}$ via 40 cm de tube souple conducteur ($10 \Omega.\text{cm}^{-1}$) de diamètre 4 mm, terminé par une connexion en T perpendiculaire.
- 3) 0,3 s, vers l'électromètre à $0,3 \text{ L.min}^{-1}$ via 12 cm de tube métallique ($d=4 \text{ mm}$) à la masse.
- 4) 0,4 s avant l'impacteur d'entrée du mobilimètre via 15 cm de tube ($d=4 \text{ mm}$) à la masse.
- 5) 0,4/0.3 s ou 1,13 s dans le mobilimètre, soit via 15/ 13 cm de tube métallique ($d=4 \text{ mm}$) à la masse, soit via 45 cm de tube téflon ($d=4 \text{ mm}$).

Deux réacteurs DBD ont été caractérisés ; le premier (réacteur 1, $d_{gap} = 1,6$ mm) est la source d'ions présenté au § V.6.2.2. La tension maximum de fonctionnement est 17 kV à cause de l'enceinte métallique à 5 mm de l'électrode polarisée.

Le second (réacteur 2) est modifié en éloignant les murs métalliques d'enceinte de l'électrode polarisée à la haute tension pour pouvoir augmenter la tension jusqu'à 20 kV.

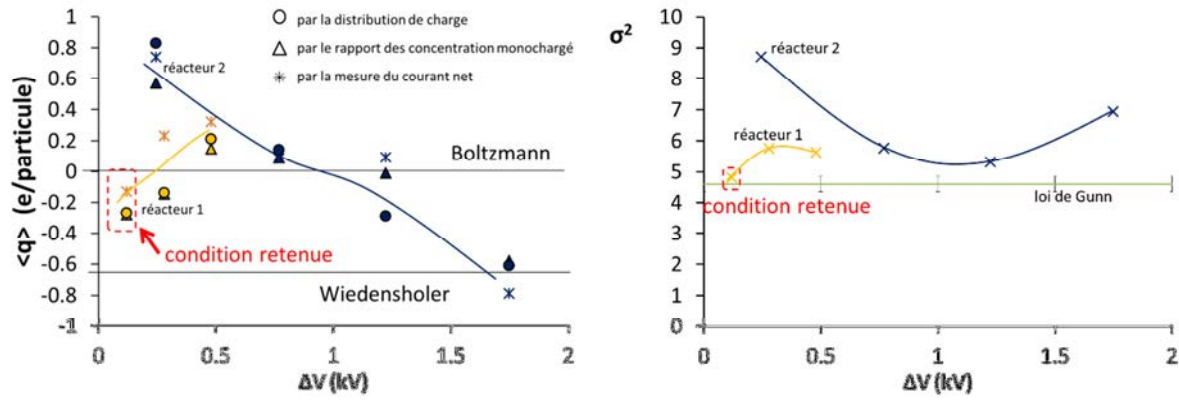
L'évolution des distributions de charge avec la tension appliquée, la concentration d'aérosol et le diamètre de l'aérosol sont représentées à l'aide des valeurs de charge moyenne et d'écart-type. L'écart-type est obtenu par ajustement d'une parabole sur le logarithme des distributions non normalisées (cf. §VI.2.2) et la charge moyenne par trois méthodes :

- par mesure des distributions de mobilité positive et négative puis ajustement polynomiale sur le logarithme de la distribution de charge corrigée (cf. Figure VI-1) non normalisée.
- par comparaison des concentrations d'aérosol +1 et -1 d'un diamètre donné (ADME à V cst).
- par la mesure du courant net à l'électromètre.

VI.3.2. Contrôle de la distribution de charge par la tension de la DBD

A débit fixe, le rapport des courants d'ions positifs sur négatifs I_{ions^+}/I_{ions^-} dans le chargeur est contrôlé par la tension appliquée et par la distance inter-diélectriques (cf. § V.6.2.1). Dans le réacteur 1 à 1 L.min⁻¹, pour des ΔV croissants de 0 à 0,5 kV, le rapport entre courants d'ions positifs et négatifs augmente de 0,9 à 1,6 puis diminue jusqu'à 0,9 pour des ΔV croissants de 0,5 kV à 1 (cf. Figure V-11). Par principe, la charge moyenne des aérosols devrait suivre la même tendance (cf. §VI.3.3.3) malgré un débit de 0,3 L.min⁻¹ dans la décharge.

La Figure VI-5 : présente la charge moyenne et le carré de l'écart type (en raison de la proportionnalité avec d_p cf. équation II-2) en fonction de la tension pour un aérosol de 550 nm à N_p entre $1,4 \cdot 10^5$ cm⁻³ et $4 \cdot 10^5$ cm⁻³ pour les 2 réacteurs DBD (1 et 2 cf. §VI.3.1). Il convient de souligner que ces trois méthodes donnent des charges moyennes identiques à +/- 0,2.



	réacteur 1			réacteur 2			
$n_p (10^5 \text{ cm}^{-3})$	1,4	1,4	1,4	4,0	4,0	2,4	2,4
$d_p (\text{nm})$	552	552	552	514	514	570	550
$\Delta V (\text{kV})$	0,12	0,28	0,48	0,24	0,77	1,22	1,75

Figure VI-5 : $\langle q \rangle$ et σ^2 selon la tension pour un aérosol monodispersé de 550 nm

Dans le réacteur 1, la charge moyenne augmente pour des ΔV croissants jusqu'à 0,5 kV tout comme le rapport des courants d'ions positifs sur négatifs I_{ions^+}/I_{ions^-} (cf. § V.6.2.1)

La charge moyenne dans le réacteur 2 diminue sur toute la gamme ΔV ce qui nous renseigne sur le rapport I_{ions^+}/I_{ions^-} (non mesuré dans ces conditions). Tout comme la distance inter-diélectriques affecte le rapport I_{ions^+}/I_{ions^-} , la tension de la DBD, les masses qui entourent la décharge affectent le champ électrique dans l'espace inter-diélectriques et permettent de contrôler le rapport I_{ions^+}/I_{ions^-} et donc la charge moyenne de l'aérosol.

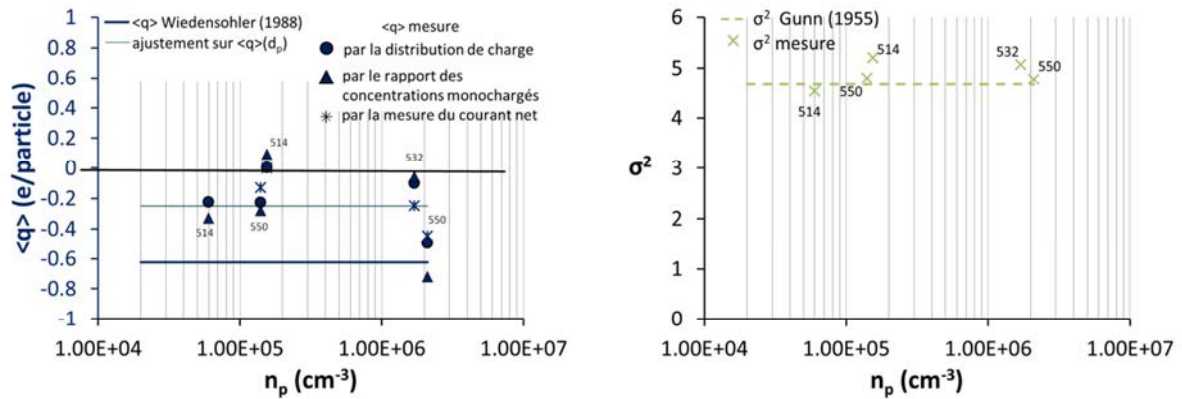
La variation de l'écart-type de la distribution avec la tension traduit des différences de condition de charge impliquées par des profils de densités d'ions positifs et négatifs, des profils de température du gaz et des profils de champ électrique inhomogènes dans le chargeur. De plus, lorsque la température d'électrode augmente de 20 à 100 °C (à cause de l'augmentation de la puissance de 1 à 12 W sur l'ensemble de la gamme de tension étudiée, cf. IV.4), la température du gaz dans le neutraliseur augmente dans une moindre mesure à 0,3 L.min⁻¹ jusqu'à 50°C et l'écart type de la distribution de charge augmente.

Enfin, pour l'application, la charge moyenne doit être la plus proche possible de la loi de Wiedensholler. Ces conditions sont réunies dans le réacteur 1 pour un ΔV de 0,12 kV qui permet de limiter le chauffage du gaz dans le neutraliseur à moins de 10°C au-dessus de la température ambiante. Ce sont les conditions de fonctionnement retenues pour le neutraliseur post-DBD dont les résultats sont présentés ci-dessous.

VI.3.3. Neutralisation et lois de charge en post-DBD

VI.3.3.1. Concentration d'aérosol (n_p)

Les neutraliseurs commerciaux permettent de neutraliser des concentrations d'aérosols jusqu'à 10^7 cm^{-3} . C'est-à-dire que la distribution de charge d'un aérosol d'une taille donnée d_p est indépendante de la concentration en deçà de 10^7 cm^{-3} . La Figure VI-6 : représente la charge moyenne et le carré de l'écart-type de la distribution de charge d'un aérosol monodispersé en fonction de la concentration d'aérosol.



$n_p (\text{cm}^{-3})$	$6 \cdot 10^4$	$1,4 \cdot 10^5$	$1,55 \cdot 10^5$	$1,70 \cdot 10^6$	$2,10 \cdot 10^6$
$d_p (\text{nm})$	514	550	514	532	550

Figure VI-6 : a) $\langle q \rangle$ et b) σ^2 d'un aérosol monodispersé selon n_p ; $\Delta V = 0,12 \text{ kV}$

Les carrés des écart-types des distributions de charge (Figure VI-6 : b) extrapolées à partir des distributions de mobilité sont proches (écarts inférieurs à 10 %) des valeurs attendues (4,63 ; 4,79 et 4,95 pour $d_p = 514, 532$ et 550 nm respectivement). La charge moyenne de la distribution fluctue autour d'une valeur moyenne avec un écart inférieur à 0,2 charges par particule pour un diamètre de 550 nm , indépendamment de la concentration (Figure VI-6 : a). Ces écarts peuvent s'expliquer, par une fluctuation des conditions de charge et la résolution des méthodes de mesure.

Il est important de signaler que ces écarts ne sont pas critique en termes de granulométries comme le démontre la Figure VI-7 :

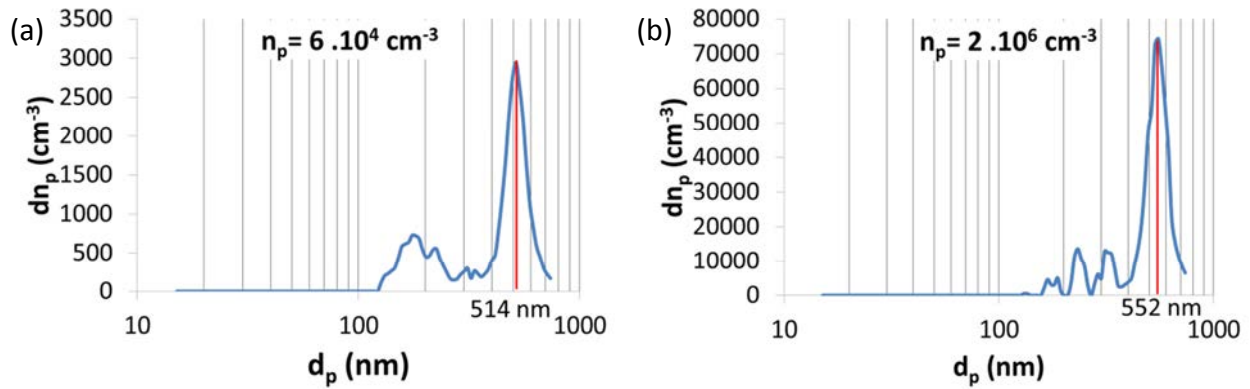


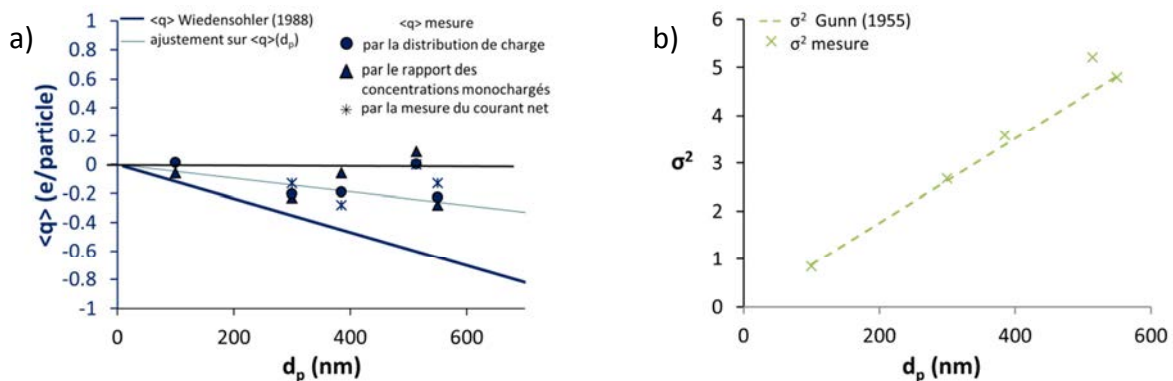
Figure VI-7 : granulométrie d'aérosol monodispersé pour $n_p =$ (a) $6 \cdot 10^4$ et (b) $2 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$

Le principal résultat est que quel que soit l'aérosol monodispersé, le diamètre modal de la granulométrie obtenue avec le neutraliseur DBD est identique au diamètre modal mesuré avec le neutraliseur de référence.

Comme attendu d'après l'analyse de l'effet de la charge moyenne sur la granulométrie (cf. Annexe 12), le décalage de la charge moyenne par rapport à la charge moyenne de Wiedensohler entraine l'apparition de modes « supplémentaires » pour des diamètres inférieurs au diamètre modal qui sont liés aux modes +2, +3 et +4 charges mal corrigés. Toutefois le rapport d'amplitude entre les modes supplémentaires par rapport au mode principal est de l'ordre de 1/10. De plus, la prise en compte de la loi de charge du neutraliseur DBD dans l'inversion de données permettrait de s'affranchir de cet artéfact.

VI.3.3.2. *Diamètre modal (d_p)*

Les lois théoriques prévoient une charge moyenne et un carré de l'écart-type de la distribution de charge proportionnels au diamètre, comme confirmé sur la Figure VI-8 : de 100 à 600 nm.



$n_p (\text{cm}^{-3})$	1.00E+04	2.00E+05	1.80E+05	1.55E+05	1.40E+05
$d_p (\text{nm})$	100	300	385	514	550

Figure VI-8 : a) $\langle q \rangle$ et b) σ^2 selon d_p ; $\Delta V = 0,12$ kV

Les valeurs de charge moyenne sont comprises entre les valeurs attendues par les lois de Boltzmann et de Wiedensohler, couramment utilisées pour l'inversion de donnée mobilité $\Leftrightarrow$ diamètre pour la granulométrie par ADME. Cela confirme l'intérêt de ce neutraliseur post-DBD pour les mesures granulométriques, du fait de la similitude des granulométries obtenues à partir de ces deux lois de charge (cf. § VI.2.1 et § VI.2.3).

L'écart-type des distributions présente un bon accord avec la loi de Gunn (valide car $d_p > 100$ nm). Dans le neutraliseur post-DBD, la charge s'effectue dans un profil stationnaire de densités d'ions décroissant (cf. § V.5.2). L'accord entre l'écart-type mesuré et prévu permet de déterminer les lois de charge sur l'ensemble de la gamme de diamètre en s'appuyant sur la valeur théorique.

Sur la Figure VI-9 les granulométries d'aérosols de 100 (a), 300 (b) et 550 nm sont représentées après neutralisation par la source Kr ou par le neutraliseur post-DBD.

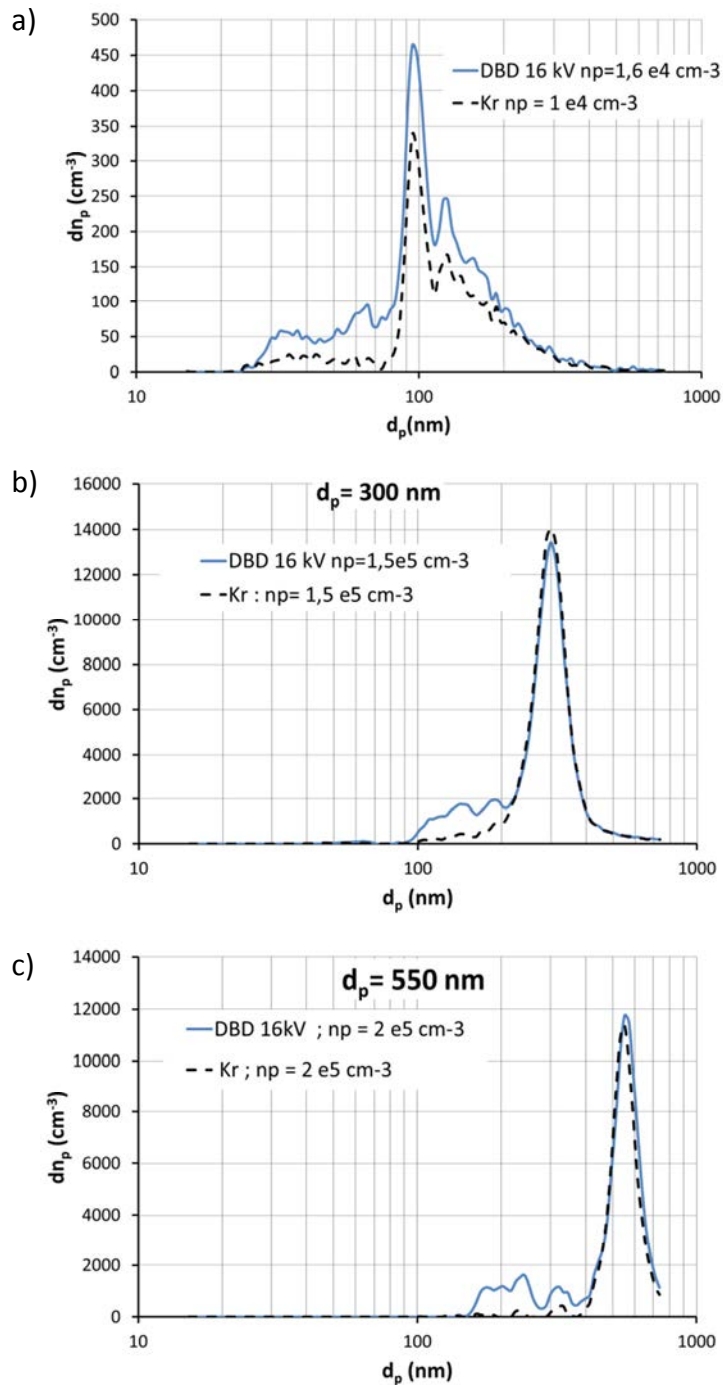


Figure VI-9 : granulométrie d'aérosol pour $d_p =$ (a) 100 nm, (b) 300 nm et (c) 550 nm

Pour l'ensemble des granulométries, le diamètre modal est identique entre le neutraliseur Kr et le neutraliseur DBD. Les concentrations modales mesurées avec le neutraliseur DBD présentent des valeurs identiques ou supérieures à celles mesurées avec le neutraliseur Kr, lié au décalage de la charge moyenne vers les charges positives (cf. §Annexe 12). Ce décalage est également à l'origine du mode fantôme qui apparaît sur les granulométries. Ainsi, le neutraliseur DBD permet bien de remplacer le neutraliseur Kr.

VI.3.3.3. *Loi de charge*

Par analogie avec la théorie de Gunn (cf. §I.1.3.2.a), la loi de charge pour des aérosols de diamètre supérieur à 50 nm prend la forme d'une gaussienne dont l'équation est :

$$f_q = \frac{n_q}{n_{tot}} = \frac{1}{\sigma \cdot \sqrt{2\pi}} * e^{\left(-\frac{(q - \langle q \rangle)^2}{2\sigma^2}\right)}$$

Deux paramètres sont nécessaires pour caractériser cette fonction : la charge moyenne et l'écart-type. La loi de Gunn définit l'écart-type par :

$$\sigma^2 = \frac{2\pi\epsilon_0 d_p k_B T}{e^2} \stackrel{T=300\text{ K}}{=} 9 \cdot 10^{-3} \times d_p (nm)$$

Dans la condition de fonctionnement du neutraliseur DBD retenue, la caractérisation des distributions de charges sur des aérosols monodispersés présentées ci-dessus en post-DBD (cf. Figure VI-8) permettent d'établir la relation suivante entre la charge moyenne et le diamètre, indépendamment de la concentration (cf. Figure VI-6) :

$$\langle q \rangle = -4.7 \cdot 10^{-4} * d_p (nm)$$

Comme attendu, cette relation est comprise entre la loi de Wiedensohler et de Boltzmann. Cela confirme l'intérêt de ce neutraliseur post-DBD pour les mesures granulométriques, du fait de la similitude des granulométries obtenues à partir de ces deux lois de charge (cf. § VI.2.1 et § VI.2.3). En conclusions, les paramètres qui définissent les distributions de charge en sortie du neutraliseur DBD pour des diamètres supérieurs à 50 nm sont :

$$\begin{aligned} \langle q \rangle &\geq 4,7 \cdot 10^{-4} \cdot d_p (nm) \\ \sigma^2 &= 9 \cdot 10^{-3} \cdot d_p (nm) \end{aligned}$$

VI.3.4. **Granulométries d'aérosols neutralisés par DBD et Kr**

Une fois les caractéristiques ($\langle q_p \rangle$, σ) de notre neutraliseur post-DBD définies, nous montrons les granulométries calculées par l'algorithme commercial basé sur la loi de Wiedensohler à partir des mesures mobilimétriques pour des aérosols unimodaux, polymodaux et un aérosol atmosphérique.

VI.3.4.1. *Granulométrie d'aérosol unimodal polydispersé ($\sigma_g > 1,2$)*

La granulométrie obtenue par neutralisation dans une source radioactive et par la DBD à $\Delta V = 0,12$ kV est représentée sur la Figure VI-10 pour (a) un aérosol de sel de 50 nm, d'écart type géométrique de 1,7 et de concentration $6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$ et (b) un aérosol d'huile d'arachide de mode 300 nm, d'écart type géométrique de 1,45 et de concentration $7 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$.

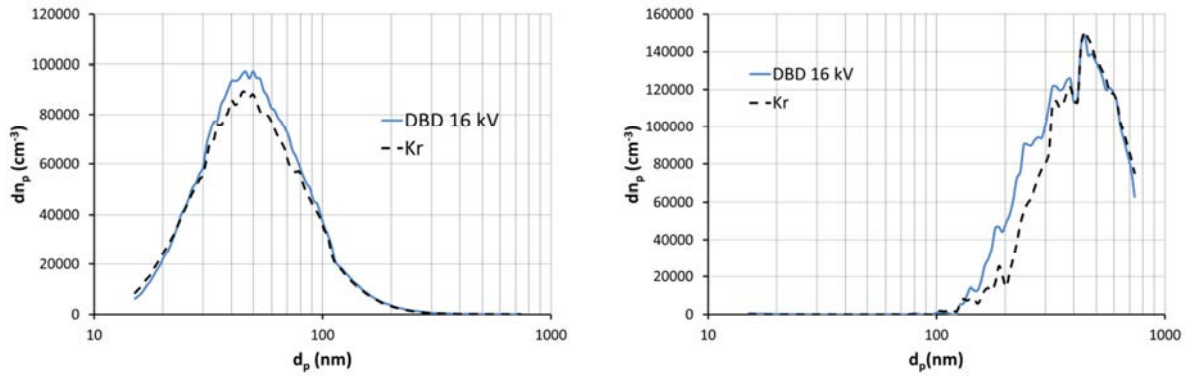


Figure VI-10 : granulométrie d'aérosol unimodal par nébulisation (a) de NaCl et (b) d'huile

Sur la Figure VI-10 (a), les granulométries avec le neutraliseur Kr et post-DBD sont similaires avec un écart de concentration modale relatif à l'écart de charge moyenne (cf. §Annexe 12). Pour un aérosol fin (<100 nm), cependant l'erreur commise est inférieure à 5% et donc négligeable en termes de granulométrie. Ainsi, nous avons démontré que le neutraliseur post-DBD fonctionne pour des aérosols de diamètre minimum d'au moins 20 nm.

Sur la Figure VI-10 (b), les granulométries sont similaires avec un écart de 10 à 50 % sur la montée. De plus, le mode prévu à 300 nm apparaît à 450 nm pour les deux neutraliseurs.

L'écart entre le mode attendu et le mode mesuré est lié à la correction multichargée par l'ADME. En effet, si la queue de la granulométrie est coupée, les particules multichargées de diamètre supérieur au diamètre de coupure (ici 740 nm) sont partiellement comptées mais ne sont pas corrigées car la fraction mono chargée n'est pas connue précisément qui entraîne une augmentation artéfactuelle de la concentration pour chaque diamètre correspondant à un multiple du diamètre de coupure. Les diamètres de coupure des modes multichargés sont comparés au saut de concentration de la granulométrie sur le Tableau VI-2.

Tableau VI-2 : position des diamètres multichargés pour le diamètre de coupure de l'ADME

Mode	Diamètre de coupure	Position du saut sur la granulométrie
1	740	
2	440	429
3	335	322
4	275	260
5	240	225

Le maximum de la granulométrie et les bosses dans la montée sont artéfactuels et résultent du traitement de donnée. Toutefois cet artefact n'est pas lié au neutraliseur DBD car un effet

similaire est mesuré avec le neutraliseur Kr. Ce neutraliseur post-DBD permet donc de neutraliser des aérosols unimodaux jusqu'à des concentrations 10^7 cm^{-3} .

VI.3.4.2. *Granulométrie d'aérosol polymodal*

La nébulisation de suspension de billes de polystyrène de 100 nm concentrées conduit à une distribution bimodale (cf. Figure VI-9). Le mode à 20 nm correspond aux impuretés dans la solution, le mode à 100 nm aux billes de polystyrène unitaires et le mode à 130 nm à l'agglomération de 2 billes. La granulométrie obtenue avec le neutraliseur post-DBD montre une bonne résolution de ces différents modes. Un second test utilisant une suspension de billes de SiO_x de 34 nm très concentrées est présenté sur la Figure VI-11 .

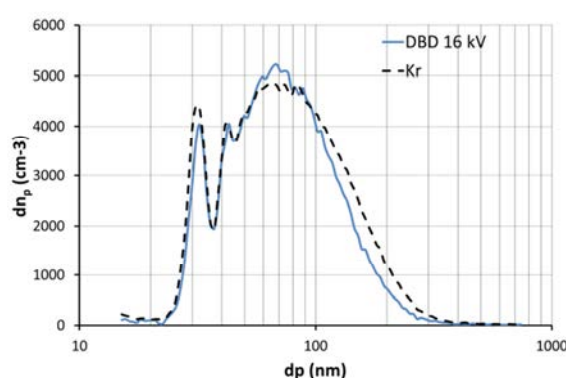


Figure VI-11 : granulométrie d'aérosol polymodal utilisant une suspension de SiO_x

La granulométrie présente deux modes : un mode à 34 nm (diamètre de la bille) est d'un mode plus large à 70 nm correspond à l'agglomération de deux à plusieurs billes.

Sur la Figure VI-11 , la comparaison des granulométries réalisées avec le Kr et le neutraliseur DBD montrent un bon accord sur la valeur des diamètres modaux. Comme attendu, la concentration modale du mode à 70 nm est plus grande avec le neutraliseur post-DBD qu'avec le Kr. Avec le neutraliseur DBD, le mode à 34 nm est bien résolu mais présente une concentration plus faible que la concentration obtenue avec le Kr. L'écart est inférieur à 10%. Cela indique que le neutraliseur DBD charge moins bien les aérosols fins ($< 50 \text{ nm}$). Cet effet peut être la conséquence de la configuration de mélange ions/aérosol où être lié au profil décroissant de densité d'ions. Cependant, cet écart n'est pas critique car l'erreur sur la concentration calculée pour des diamètres inférieurs à 50 nm est très supérieure à 10 % (Coquelin, 2013).

Donc le neutraliseur DBD est une solution viable de remplacement des sources radioactives pour la neutralisation d'aérosol.

VI.3.4.3. *Granulométrie d'aérosol atmosphérique*

Dans les conditions de fonctionnement retenues l'intérêt de ce neutraliseur DBD pour la neutralisation d'aérosol uni/polymodaux tests. L'objectif de cette partie est de confirmer les résultats sur l'aérosol atmosphérique. Un test a été effectué en prélevant l'air ambiant dans la salle, les granulométries mesurées avec les neutraliseurs de référence et DBD sont présentées sur la Figure VI-12 :

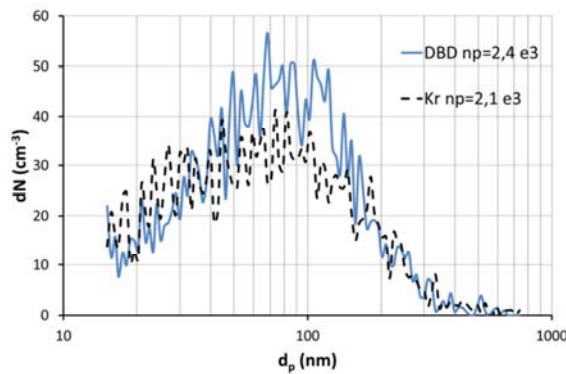


Figure VI-12 : granulométrie d'aérosol atmosphérique

La granulométrie de l'aérosol atmosphérique est bien centrée sur le mode agglomération attendu (autour de 100 nm). Les concentrations des deux granulométries sont identiques à 50 % près. La concentration d'aérosol étant de l'ordre de 10^3 cm^{-3} , les granulométries obtenues en 2 minutes ne sont pas statistiquement représentatives (comme le prouve les variations présentes sur les deux granulométries). Toutefois l'allure moyenne des courbes est similaire et l'écart de concentration ne dépasse pas 15 % ce qui est tout à fait satisfaisant en termes de mesures granulométriques.

On notera une légère sous-estimation des particules les plus fines comme déjà discuté au §VI.3.4.2, mais qui n'est pas critique.

VI.4. Conclusions

Du fait de la présence d'ions en sortie de neutraliseur et des pertes électrostatiques de particules chargées, les distributions de charge évoluent de la sortie du neutraliseur jusqu'au système de mesure de concentration par gamme de mobilité (mesurées mais non présentées). Malgré l'évolution des densités d'ions, le chargeur bipolaire post-DBD permet de contrôler la charge moyenne de l'aérosol selon la tension appliquée à la DBD, indépendamment de la concentration et avec un écart-type des distributions gaussiennes identique à celui des lois de charge classiques établies à l'EQS.

Les conditions de charge choisies conduisent à une loi décrivant une distribution de charge comprise entre les lois de Wiedensohler et de Boltzmann. L'écart entre la relation charge diamètre en post-DBD et la loi de Wiedensohler est du même ordre que l'écart mesuré entre les distributions de charge mesurées avec le neutraliseur de référence au Kr en sortie d'ADME et la distribution de charge de Wiedensohler prise en référence pour l'inversion des distributions de mobilité en distributions de taille, des appareils granulométriques actuels.

Les conditions retenues (débit de $0,3 \text{ L.min}^{-1}$ dans la décharge, débit de prélèvement d'aérosol de $0,3 \text{ L.min}^{-1}$, $\Delta V = 0,12 \text{ kV}$) ont été testées en termes de charge moyenne et d'écart type de la distribution de charge selon le diamètre et la concentration. Comme dans les neutraliseurs radioactifs, l'écart type et la charge moyenne de la distribution sont proportionnels au diamètre et indépendant de la concentration au-dessus de 100 nm .

Ainsi, après détermination des propriétés de la décharge et définition des conditions d'extraction des ions, l'étude de la charge des aérosols monodispersés permet de conclure que ce système fonctionne comme neutraliseur pour la granulométrie.

D'autre part, l'analyse granulométrique d'aérosol polydispersé nous permet de conclure que ce neutraliseur peut être utilisé pour des diamètres de 20 nm à $1 \text{ }\mu\text{m}$ et des concentrations jusqu'à 10^7 cm^{-3} , condition requise pour l'application commerciale du chargeur bipolaire en post-DBD.

Cependant, ce neutraliseur produit de l'ozone et des particules fines qui modifient la mesure et endommagent le matériel. Afin de s'affranchir ces limites, une alternative a été développée et brevetée (Borra & Jidenko, 2013).

Conclusions générales

Ce travail porte sur la production d'ions bipolaires par Décharge à Barrières Diélectriques (DBD) et du transport en post-DBD afin de concevoir un neutraliseur d'aérosol pour remplacer les sources radioactives utilisées dans des appareils de métrologie aérosols.

Afin de contrôler les densités d'ions requises pour définir les conditions de charge de l'aérosol, nous avons commencé par caractériser le plasma qui produit les ions. Dans un premier temps, nous avons développé différentes méthodes de caractérisation de la décharge. Les deux principales méthodes basées sur l'analyse du cycle de Lissajous concernent

- (i) la détermination du facteur correctif qui permet d'évaluer le courant « réel » dans l'intervalle gazeux à partir du courant mesuré

- (ii) le courant moyen de décharge dans le gaz relatif au nombre de charges produites par le plasma par unité de temps.

Nous avons également établi des protocoles de mesures fiables (à l'équilibre, hors bruits de fond, reproductibles) afin de caractériser la charge moyenne par filament, le courant moyen de décharge, la puissance et les températures d'électrode et de gaz.

Pour diminuer la puissance consommée et augmenter l'efficacité d'extraction des ions (rapport du courant d'ions mesuré en post-décharge sur le courant de décharge), nous avons choisi de travailler avec des électrodes cylindriques de 4 mm de diamètre.

Comme pour des DBD à électrodes planes, le champ électrique (somme des champs de Laplace, de polarisation et de charge d'espace) contrôle les propriétés de la décharge (plasma filamentaire, répartition spatiale et temporelle des filaments, caractéristiques des filaments, couplages électro-thermiques). En particulier, les filaments sont distribués dans le temps et l'espace inter-diélectriques selon trois modes d'auto-organisation. A tension croissante, les filaments s'alignent sur un rideau dans le plan de symétrie du système, sur deux de part et d'autre du plan de symétrie, puis sur ces trois rideaux.

Nous confirmons dans ce système, les couplages électrothermiques déjà décrits en géométrie plan-plan qui contrôlent la température du gaz. La température affecte le transport des ions et donc les variations de densité d'ions en post-décharge et peut modifier les propriétés de l'aérosol à neutraliser.

Dans une bi-DBD avec des électrodes de 4 mm de diamètre et de 3 cm de long, les caractéristiques électriques de la décharge pour des distances inter-diélectriques d_{gap} de 0,5 à 1,6 mm et des surtensions de 0 à 3 kV au-delà de la tension d'extinction sont les suivantes :

- la charge par filament qui varie de 0,1 et 0,9 nC selon d_{gap} , correspond à la production locale et pulsée de charges ($0,1-0,01 \text{ cm}^3$ pendant 10 ns à 10^{6-8} Hz),
- le courant de décharge varie de 1 à 8 mA selon ΔV et traduit la production de charge par unité de temps,
- la puissance, qui évolue de 1 à 14 W selon d_{gap} et ΔV , est relative à l'énergie consommée et contrôle les températures des surfaces et du gaz.

Après avoir développé un séparateur électrostatique et défini un protocole de mesure, les courants d'ions positifs et négatifs, l'efficacité d'extraction des ions ainsi que les profils de densités d'ions en post-DBD et les conditions de charge des aérosols ont été caractérisés à l'équilibre selon les paramètres électriques et hydrodynamiques.

Dans un premier temps, les influences de la tension et de la distance inter-diélectriques sur les courants d'ions en post-DBD ont été caractérisées. À débit constant, les courants d'ions augmentent avec la tension, de +50 à +350 pA selon la distance inter-diélectriques. Le débit de gaz affecte l'entraînement des ions et le temps de transit en post-DBD. Selon la configuration de mesure des ions, les courants d'ions maximum jusqu'à 0,6 nA et 2,5 nA, pour des débits de 0 à 8 L.min⁻¹. Les évolutions des courants et de l'efficacité d'extraction des ions avec la surtension démontrent que :

- la production par la décharge est contrôlée par la charge par filament, la répartition spatiale et temporelle des filaments par demi-période (i.e. du mode d'auto-organisation des filaments) et de la fréquence du signal de tension. Dans cette étude, la production d'ions par photo-ionisation et par désexcitation de métastable est considérée comme négligeable.
- le transport des ions résulte d'un couplage EHD. Les ions sont entraînés en post-DBD par convection hydrodynamique, dérive électrostatique et par diffusion,
- la décroissance des densités d'ions résulte d'abord de la collection électrostatique aux parois dans la DBD comme dans l'espace inter-diélectriques en post-DBD où les nuages d'ions unipolaires se mélangent, puis de la recombinaison dans le nuage bipolaire ainsi formé à l'entrée dans le chargeur post-DBD et dans une moindre mesure de la diffusion.

L'augmentation de la distance inter-diélectriques qui affecte les propriétés des filaments unitaires et leur répartition spatio-temporelle à l'origine de l'extraction électrostatique des

ions de la décharge ainsi que les processus de collection aux parois permet d'augmenter les courants d'ions quelle que soit la surtension. La distance inter-diélectriques optimale de 1,6 mm est donc retenue, pour ne pas dépasser la tension maximale de fonctionnement de la DBD du chargeur ($U_c < 10$ kV).

Enfin, le produit $n_{ions} \cdot \tau$ estimé dans les conditions retenues est supérieur à $5 \cdot 10^{12} \text{ s} \cdot \text{m}^{-3}$ et le rapport du courant d'ions positifs sur négatifs en entrée du chargeur est contrôlé par la tension et le débit. Ainsi, la charge moyenne des aérosols peut être contrôlée simplement.

La dernière étape de l'étude, nous permet de démontrer que ce chargeur bipolaire pourrait remplacer le neutraliseur radioactif pour la granulométrie d'aérosol.

Le chargeur bipolaire est testé sur des aérosols monodispersés de taille, concentration et charge initiale contrôlés, en termes de distribution de charge selon la tension de décharge. Du fait de la présence d'ions en sortie de neutraliseur et des pertes électrostatiques de particules chargées, les distributions de charge évoluent de la sortie du neutraliseur jusqu'au mobilimètre. Malgré l'évolution des densités d'ions, le chargeur bipolaire post-DBD permet de contrôler la charge moyenne de l'aérosol selon la tension appliquée à la DBD, indépendamment de la concentration et avec un écart-type des distributions gaussiennes identique à celui des lois de charge classiques établies à l'EQS.

Nous avons alors choisi une tension permettant d'injecter dans le chargeur des courants unipolaires d'ions de 200 pA pour atteindre un produit $n_{ions} \cdot \tau$ supérieur à $6 \cdot 10^{12} \text{ s} \cdot \text{m}^{-3}$, et donc des distributions de charge à l'EQS.

Les spécifications du neutraliseur retenu sont les suivantes. La DBD est constituée de deux électrodes cylindriques de 4 mm de diamètre et de 30 mm de long qui polarisent deux plaques d'alumine de 0,5 mm d'épaisseur, espacées de 1,6 mm. Les électrodes sont positionnées à 5 mm du bord des plaques d'alumine afin de bénéficier d'un flux maximal d'ions entrant dans le chargeur. Le chargeur est un volume métallique de 60 cm^3 assurant un produit $n_{ions} \cdot \tau$ supérieur à $6 \cdot 10^6 \text{ s} \cdot \text{cm}^{-3}$ afin d'atteindre un état de charge quasi-stationnaire, indépendant de la concentration d'aérosol et de la charge initiale de l'aérosol. La tension d'alimentation de la décharge est une sinusoïde de 60 kHz et d'amplitude crête de 8 kV. Les débits de gaz dans la décharge et de prélèvement aérosol sont de $0,3 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ afin de limiter le facteur de dilution et de limiter l'échauffement de l'aérosol tout en limitant les pertes et la recombinaison des ions.

Les conditions de charge sont choisies pour que la loi de charge en post-DBD décrivant les distributions de charge soit comprise entre les lois de Wiedensohler et de Boltzmann. L'écart entre la relation charge diamètre en post-DBD et la loi de Wiedensohler est du même ordre que l'écart entre les distributions de charge mesurées avec le neutraliseur de référence au Kr et la distribution de charge de Wiedensohler utilisée pour l'inversion des distributions de mobilité en distributions de taille des granulomètres actuels, pour éviter de modifier la procédure d'inversion de données. Comme dans le neutraliseur radioactif, le carré de l'écart-type et la charge moyenne de la distribution sont proportionnels au diamètre et indépendants de la concentration au-dessus de 100 nm.

Enfin, l'analyse granulométrique d'aérosols polydispersé nous permet de conclure que ce neutraliseur peut être utilisé pour des diamètres de 20 nm à 1 μm et des concentrations jusqu'à 10^7 cm^{-3} , conditions sine qua non d'utilisation du chargeur bipolaire en post-DBD.

En termes de précision granulométrique, en conservant la loi de Wiedensohler dans l'algorithme d'inversion de données, l'écart entre les concentrations mesurées avec les deux neutraliseurs (Kr et DBD) est au maximum de 20% sur les modes dominants, quel que soit le diamètre. Cet écart est très en deçà de l'incertitude établie pour les mesures ADME sur toute la gamme de taille de 10 nm à 1 μm . Il est toutefois possible de prendre en compte la loi de charge établie expérimentalement pour le neutraliseur DBD afin d'affiner l'inversion de données.

En outre, en deçà de 30 nm, il est envisageable d'améliorer la limite de détection et le diamètre de coupure en jouant sur la tension de fonctionnement de la DBD qui contrôle la loi de charge et permet d'augmenter la fraction chargée, ce qui implique de modifier la loi de charge prise en référence pour l'inversion des données mobilimétriques en granulométrie.

Ainsi le seul inconvénient qui reste à réduire est la production d'ozone et des particules fines qui modifient la mesure et endommagent le matériel. Afin de s'affranchir de ces limites, une alternative a été testée et brevetée dont la caractérisation et le développement sont en cours pour définir :

- d'une part, les conditions de fonctionnement de la source d'ions DBD
- d'autre part, les conditions de mélange ions aérosol pour maîtriser les conditions de charge qui définissent les gammes de fonctionnement en diamètre et en concentration.

Références

- Adachi, M., Pui, D. H. Y. & Liu, B. Y. H., 1993. Aerosol charge neutralization by a corona Ioniser. *Aerosol science and Technology*, 18(1), pp. 48-58.
- Agarwal, J. K. & Sem, G. J., 1980. Continuous flow, single-particle-counting condensation nucleus counter. *Journal of Aerosol Science*, 11(4), pp. 343-357.
- Alonso, M., Kousaka, Y., Nomura, T. H. T. & Hashimoto, N., 1997. Bipolar Charging and neutralization of nanometer-sized aerosol Particles. *Journal of aerosol science*, Volume 28, pp. 1479-1490.
- Berger, G., 1980. *thèse : Retard à la formation de la décharge couronne positive dans l'air*. Orsay: Université Paris-Sud.
- Bibinov, N. K., Fateev, A. & Wiesemann, K., 2001. On the influence of metastable reactions on rotational temperatures in dielectric barrier discharge in He-Ne mixtures. *Journal of physics D : applied physics*, 34(12), pp. 1818-1826.
- Biskos, G., 2004. *thèse : Theoretical and Experimental Investigation of the Differential Mobility Spectrometer*. Cambridge: Queens' College, University of Cambridge.
- Borra, J. & Jidenko, N., 2013. *Dispositif pour contrôler la charge d'un aérosol en post-décharge*. Europe, Brevet n° PCT/EP2013/077947 .
- Borra, J.-P., Jidenko, N., Hou, J. & Weber, A., 2015. Vaporization of bulk metals into single-digit nanoparticles by non-thermal plasma filaments in atmospheric pressure dielectric barrier discharges. *Journal of aerosol science*, pp. 109-125.
- Bourgeois, E., Jidenko, N., Alonso, M. & Borra, J. P., 2009. DBD as a post discharge bipolar ions source and selective ion-induced nucleation versus ion polarity. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 42(20), p. 205202.
- Bricard, j., 1977. *Physique des aérosols : 2ème partie*. s.l.:s.n.
- Bruggeman, P. & Brandenburg, R., 2013. Atmospheric pressure discharge filaments and microplasmas: physics, chemistry and diagnostics. *Journal of physics D: applied physics*, Volume 46, p. 464001.
- Bumstead, H. A., 1916. On the ionization of gases by alpha rays. *Physical review*, Volume 8, p. 715.
- Byeon, J. H. et al., 2008. Charge distributions of aerosol dioctyl sebacate particles charged in a dielectric barrier discharger. *Journal of Aerosol Science*, 39(5), pp. 460-466.
- Chirokov, A., Gutsol, A. & Fridman, A., 2005. Atmospheric pressure plasma of dielectric barrier discharges. *Pure and Applied Chemistry*, 77(2), pp. 487-495.
- Choi, J. H. et al., 2006. Investigation of the transition between glow and streamer discharge in atmospheric air. *Plasma Source Science and Technology*, Volume 15, pp. 416-420.
- Cole, C. & Jones, J., 2002. On the stability of concentric spherical clouds of bipolar gaseous ions. *Journal of Electrostatics*, 56(2), pp. 155-182.
- Cooper, D. W. & Reist, P. C., 1973. Neutralizing charged aerosol with radioactive source. *Journal of Colloid and Interface Science*, Volume 45, pp. 17-26.
- Coquelin, L., 2013. *Contribution aux traitements des incertitudes :application a la métrologie des nanoparticules en phase aerosol*. Gif-sur-Yvette: SUPELEC.
- Covert, D., Wiedensohler, A. & Russell, L., 1997. Particles charging and transmission Efficiency of aerosol charge neutralizer. *Aerosol science and Technology*, Volume 27, pp. 206-214.

- de La Verpilliere, J. L., Swanson, J. J. & Boies, A. M., 2015. Unsteady bipolar diffusion charging in aerosol neutralisers: A non-dimensional approach to predict charge distribution equilibrium behaviour. *Journal of Aerosol Science*, Volume 86, p. 55–68.
- Demokritou, P., Lee, S. J., Ferguson, S. T. & Koutrakis, P., 2004. A compact multistage (cascade) impactor for the characterization of atmospheric aerosols. *Journal of Aerosol Science*, 35(3), p. 281–299.
- Drimal, J., Gibalov, V. I. & Samoylovich, V. G., 1988. The dependence of ozone generation efficiency in silent discharge on a width of a discharge gap. *Czechoslovak Journal of Physics B*, 38(6), pp. 643–648.
- Eliasson, B. & Kogelschatz, U., 1991. Modelling and applications of silent discharge plasmas. *IEEE transactions on plasma science*, 19(2), pp. 309–323.
- Ewell, A. W., 1906. The electrical production of ozone.. *Physical Review (series I)*, 22(4), pp. 232–244.
- Falkenstein, Z. & Coogan, J. J., 1997. Microdischarge behaviour in the silent discharge of nitrogen–oxygen and water–air mixtures. *Journal of physics D: applied physics*, 30(5), pp. 817–825.
- Fauchais, P., 2000. Gaz ionisés et plasmas. *Téchniques de l'ingénieur*, p. AF 3560.
- Forsyth, B., Liu, B. Y. H. & Romy, F. J., 1998. Particle Charge Distribution Measurement for Commonly Generated Laboratory Aerosols. *Aerosol Science and Technology*, Volume 28, pp. 489–501.
- Fuchs, N. A., 1963. on the stationary charge distribution on aerol particles in a bipolar ionic atmosphere. *Geofisica Pura ed Applicata*, Volume 56, pp. 185–193.
- Gensdarmes, F., 2000. "Les processus de charge électrique : des aérosols non radioactifs en milieu fortement ionisé ; des aérosols radioactifs artificiels émetteurs BETA.. Saclay: Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, CEA/ Saclay.
- Gibalov, V. I. & Pietsch, G. J., 2000. The development of dielectric barrier discharges in gas gaps and on surfaces. *Journal of physics D: applied physics*, 33(20), p. 2618–2636.
- Guerra-Garcia, C. & Martinez-Sanchez, M., 2013. Gas-confined barrier discharges: a simplified model for plasma dynamics in flame environments. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 46(34), p. 345204.
- Gunn, R., 1955. The statistical electrification of aerosols ionic diffusion. *Journal of Colloid Science*, 10(1), pp. 107–119.
- Han, B. et al., 2009. A novel bipolar charger for submicron aerosol particles using carbon fiber ionizers. *Journal of Aerosol Science*, 40(4), pp. 285–294.
- Han, B., Shimada, M., Okuyama, K. & Choi, M., 2003. Classification of monodisperse aerosol particles using a adjustable soft X-ray charger. *Powder Technology*, Volume 135–136, pp. 336–344.
- Hinds, W. C., 1982. *Aerosol Technology*. Wiley éd. s.l.:s.n.
- Hoppel, A. W. & Frick, G. M., 1990. The nonequilibrium character of the aerosol charge distribution produced by neutralizers. *Aerosol science and technology*, 12(3), pp. 471–496.
- Hoppel, W. A. & Frick, G., 1988. *Aerosol charge distributions produced by radioactive ionizers*, Washington, DC: Naval Research Laboratory.
- Hoppel, W. A. & Frick, G. M., 1986. Ion-Aerosol attachment Coefficients and the steady state Charge Distribution on Aerosol in bipolar Ion Environment. *Aerosol science and Technology*, Volume 5, pp. 1–21.
- Hussin, A., Scheibel, H. G., Becker, K. H. & Porstendörfer, J., 1983. Bipolar diffusion charging of aerosol particles -I : experimental results within the diameter range 4–30 nm. *Journal of Aerosol Science*, 14(5), pp. 671–677.
- Jidenko, N., 2004. *thèse : Caractérisation électrique et couplages électro-thermiques des décharges à barrières diélectriques dans l'air à pression atmosphérique:Faisabilité de l'électrofiltration d'aérosol*. Orsay: Université Paris XI, UFR scientifique d'Orsay.

- Jidenko, N. & Borra, J., 2012. Self-cleaning, maintenance-free aerosol filter by non-thermal plasma at atmospheric pressure. *Journal of Hazardous Materials*, Volume 235–236, p. 237–245.
- Jidenko, N., Bourgeois, E. & Borra, J.-P., 2010. Temperature profiles in filamentary dielectric barrier discharges at atmospheric pressure. *Journal of physics D: applied physics*, 43(29), p. 295203.
- Jidenko, N., Petit, M. & Borra, J., 2006. Electrical characterization of microdischarges produced by dielectric barrier discharge in dry air at atmospheric pressure. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 39(2), p. 281–293.
- Ji, J., Bae, G. & Hwang, J., 2004. Characteristics of aerosol charge neutralizers for highly charged particles. *Journal of aerosol science*, Volume 35, pp. 1347-1358.
- Kallinger, P., Steiner, G. & Szymanski, W. W., 2012. Characterization of four different bipolar charging devices for nanoparticle charge conditioning. *Journal of nanoparticles research*, Volume 14, p. 944.
- Kimoto, S. et al., 2009. Aerosol charge neutralisation by mixing-type bipolar charger using Corona Discharge at High Pressure. *Aerosol science and Technology*, Volume 43, pp. 872-880.
- Kleitz, A. & Boulaud, D., 2013. Granulométrie des particules en mouvement et des aérosols. *Dossier Techniques de l'Ingénieur*, base documentaire : TIB540DUO(référence article : r2360).
- Knutson, E. O. & Whitby, K. T., 1975. Aerosol classification by electric mobility: apparatus, theory, and applications. *Journal of Aerosol Science*, 6(6), pp. 443-451.
- Kodas, T. T. & Hamnden-Smith, M., 1999. *Aerosol Processing of Materials*. New York: Wiley-VCH.
- Kogelschatz, U., 2003. Dielectric-barrier discharges : Their history, Discharge Physics, and Industrial Applications. *Plasma chemistry and Plasma Processing*, Volume 23, pp. 1-46.
- Kogelschatz, U., 2010. Collective phenomena in volume and surface barrier discharges. *Journal of Physics: Conference Series*, 257(1), p. 012015.
- Kogelschatz, U., Eliasson, B. & Egli, W., 1997. Dielectric-barrier discharges : Principle and Applications. *Journal de physique IV*, Volume 7, p. C4_47.
- Kwon, S. B. et al., 2005. Characteristics of aerosol charge distribution by Surface-discharge Microplasma Aerosol Charger (SMAC). *Aerosol science and Technology*, Volume 39, pp. 987-1001.
- Kwon, S., Sakurai, H., Seto, T. & Kim, Y., 2006. Charge neutralization of submicron aerosol using surface-discharge microplasma. *Journal of aerosol science*, Volume 37, pp. 483-499.
- Lee, H. M., Kim, C. S., Shimada, M. & Okuyama, K., 2005. Bipolar diffusion charging for aerosol nanoparticle measurement using a soft X-ray charger. *Journal of aerosol science*, Volume 36, pp. 813-829.
- Liu, B. Y. H. & Pui, Y. H., 1974. Electrical neutralization of aerosols. *Journal of Aerosol Science*, 5(5), pp. 465-472.
- Liu, B. Y. & Pui, D. Y., 1974. Equilibrium bipolar charge distribution of aerosols. *Journal of colloid and interface science*, 49(2), pp. 305-312.
- Manley, T., 1943. The Electric Characteristics of the ozonator Discharge. *Journal of the Electrochemical Society*, Volume 84, pp. 83-96.
- Manninen, H. E. et al., 2011. Characterization of corona-generated ions used in a neutral cluster air ion spectrometer (NAIS). *Atmospheric Measurement Techniques*, Volume 4, pp. 2767-2776.
- Maricq, M. M., 2008. Bipolar Diffusion charging of soot Aggregates. *Aerosol science and Technology*, Volume 42, pp. 247-254.
- Masclat, P. & Marchand, N., 2004. Méthode de prélèvement et d'analyse des aérosols. *Dossier technique de l'ingénieur*.
- Massines, F., Gherardi, N., Naudé, N. & Ségur, P., 2009. Recent advances in the understanding of homogeneous dielectric barrier discharges. *The european physical journal: applied physics*, 47(2), p. 22805.

Massines, F. et al., 1998. Experimental and theoretical study of a glow discharge at atmospheric pressure controlled by dielectric barrier. *Journal of applied physics*, 83(6), p. 2950.

Millikan, R. A., Gottschalk, V. H. & Kelly, M. J., 1920. The nature of the process of ionization of gases by alpha rays.. *The Physical review*, Volume 15, p. 157.

Mitchner, M. & Kruger, C. H. J., 1973. *Partially Ionized Gases*. 1ère éd. New York: John Wiley & Sons, Inc.

Modesto-Lopez, L. B., Kettleson, E. M. & Biswas, P., 2011. Soft X-ray charger (SXC) system for use with electrospray for mobility measurement of bioaerosols. *Journal of electrostatics*, Volume 69, pp. 357-364.

MSP corporation, s.d. *Model 1090—Electrical Ionizer*. s.l.:s.n.

Newton, G. J., Raabe, O. G., Mokler & V., B., 1977. Cascade impactor design and performance. *Journal of Aerosol Science*, 8(5), pp. 339-347.

Parissi, L. et al., 1999. *Temperature effects on plasma chemical reaction. Application to VOC removal*. E.V. Veldhuizen éd. s.l.:Raizers Book.

Park, S. S., Kang, M. S. & Hwang, J., 2015. Oil mist collection and oil mist-to-gas conversion via dielectric barrier discharge at atmospheric pressure. *Separation and Purification Technology*, Volume 151, p. 324–331.

Perkins, M. D. & Eisele, F. L., 1984. First mass spectrometric measurements of atmospheric ions at ground level. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 89(D6), pp. 9649-9657.

Physics, O. C., 2014. *Molecular Transport Phenomena: Diffusion, Osmosis, and Related Processes*. [En ligne]
Available at: <http://philschatz.com/physics-book/content/m42212.html> [Accès le 05 novembre 2014].

Pipa, A. V. et al., 2012. Experimental determination of dielectric barrier discharge capacitance. *Review of scientific instrument*, Volume 83, p. 75111.

Polk, O. E., 1934. Ionization of Air by Alpha- and Beta-Rays as a Function of Pressure. *The physical review*, Volume 46, p. 405.

Pollak, L. & Metnieks, A. L., 1962. On validity of Boltzmann's distribution law for the charges of aerosol particles in electrical equilibrium. *Geofisica pura e applicata*, 53(1), pp. 111-132.

Reischl, G. P., Mäkelä, J. M., Karch, R. & Neced, J., 1996. Bipolar Charging of ultrafine Particles in the size range below 10 nm. *Journal of aerosol science*, Volume 27, pp. 931-949.

Renoux, A. & Boulaud, D., 1998. *Les Aérosols : Physique et Métrologie*. Lavoisier TEC&DOC éd. Paris: Lavoisier.

Romay, F. J. & Pui, D. Y. H., 1992. On the Combination Coefficient of Positive Ions with Ultrafine Neutral Particles in the Transition and Free-Molecule Regimes. *Aerosol Science and Technology*, Volume 17, pp. 134-147.

Romay, F., Liu, B. Y. H. & Pui, D. Y. H., 1994. A sonic Jet corona Ionizer for Electrostatic discharge and aerosol neutralization. *Aerosol science and Technology*, Volume 20, pp. 31-41.

Schiel, A., Weber, A. P., Kasper, G. & Schmid, H.-J., 2002. In-Situ Determination of the charging of nanometer and submicron particles at high temperature. *Particle and particle systems characterization*, 19(6), pp. 410-418.

Stommel, Y. G. & Riebel, U., 2004. A new corona discharge based aerosol charger for submicron particles with low initial charge. *Journal of aerosol science*, Volume 35, pp. 1051-1069.

Stommel, Y. G. & Riebel, U., 2007. Comment on the calculation of the steady-state charge distribution on Aerosols < 100 nm by three body trapping method in a bipolar ion Environment. *Aerosol science and Technology*, Volume 41, pp. 840-847.

- Tabrizchi, M. & Rouholahnejad, F., 2005. Comparing the effect of pressure and temperature on ion mobilities. *Journal of Physics D: Applied Physics*, Volume 38, pp. 857-862.
- Taylor, T. S., 1911. On the ionization of gases by the alpha particles from polonium. *The physical review*, Volume 32, p. 236.
- Tigges, L., Jain, A. & Schmid, H.-J., 2015. On the bipolar charge distribution used for mobility particle sizing : Theoretical considerations. *Journal of Aerosol Science*, Volume 88, p. 119–134.
- TSI, 2012. *Advanced aerosol neutralizer model 3087*. s.l.:s.n.
- TSI, s.d. *Model 3077 Aerosol Neutralizer*. s.l.:s.n.
- Unger, L., 2001. *thèse : Charge d'aérosol par décharge électrique pour la filtration d'effluents particuliers*. Orsay: université Paris-sud 11.
- Varney, R. N. & Loeb, L. B., 1935. Photoionization in Gases. *Physical review*, Volume 48, p. 822.
- Vivas, M. M., Hontañón, E. & Schmidt-Ott, A., 2008. Design and evaluation of low-level (0,24 μCi) radioactive aerosol charger based on 241Am. *Journal of aerosol science*, Volume 39, pp. 191-210.
- Wagner, H.-E. et al., 2003. The barrier discharge : basic properties and application to surface treatment. *Vacuum*, Volume 71, pp. 417-436.
- Whitby, K. & Peterson, C. M. ., 1965. electrical neutralization and Particle size measurment of dye aerosols. *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals*, Volume 4, pp. 66-72.
- Wiedensohler, A., 1988. An approximation of Bipolar Charge distribution for particles in submicron size range. *Journal of aerosol science*, 19(3), pp. 387-389.
- Wiedensohler, A., Lütke-meier, E., Feldpausch, M. & Helsper, C., 1986. Investigation of the bipolar charge distribution at various gas conditions. *Journal of Aerosol Science*, 17(3), pp. 413-416.
- Willeke, K. & Baron, P. A., 1993. *Aerosol Measurment*. 1er éd. New York: Van Nostrand Reinhold.
- Xu, X. P. & Kushner, M. J., 1998. Ion composition of expanding microdischarges in dielectric barrier discharges. *Journal of applied physics*, 83(12), pp. 7522-7532.
- Yun, K. M. et al., 2009. Effect of X-ray energy and ionization time on the charging performance and nanoparticle formation of a soft X-ray photoionization charger. *advanced Powder Technology*, Volume 20, pp. 529-536.
- Zhang, Z. Q. & Liu, B. Y. H., 1990. Dependence of the Performance of TSI 3020 Condensation Nucleus Counter on Pressure, Flow Rate, and Temperature. *Aerosol Science and Technology*, 13(4), pp. 493-504.
- Zheng, Y., Liu, Q., Li, Y. & Gindy, N., 2006. Investigation on concentration distribution and mass flow rate measurement for gravity chute conveyor by optical tomography system. *Measurement*, Volume 39, p. 643–654.

Annexes

Annexe 1 : Présentation du CNC

1.1. Principe de fonctionnement

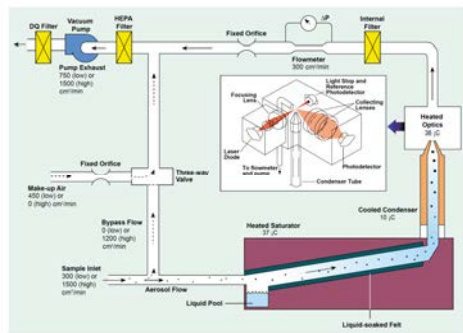


fig. 1 : Schéma de fonctionnement du CNC (source : documentation TSI)

L'aérosol est aspiré dans le Compteur de Noyaux de Condensation (CNC) à un débit de 0,3 lpm (litres par minute), puis injecté dans un saturateur partiellement rempli de butanol ($T = 35\text{ °C}$). Le butanol s'évapore dans le flux d'aérosol. Le gaz contenant les particules et les vapeurs entre ensuite dans un condenseur où la température est abaissée à 10 °C . Ceci entraîne la sursaturation des vapeurs et leur condensation sur les particules dont le diamètre est supérieur au diamètre minimal de détection. La croissance des particules par condensation leur permet d'atteindre un diamètre supérieur à 300 nm. Elles peuvent alors être détectées optiquement grâce à une source de lumière blanche et à des photomultiplicateurs.

1.2. Artéfacts de mesure liés au CNC

Outre les fluctuations réelles de la densité de particules détectables, des variations artéfactuelles de la concentration mesurée sont observées lors de certains changements de calibre de mesure du CNC. Elles sont liées à une modification de la durée de calcul de la moyenne glissante ou à un basculement du mode de détection photométrique (intégration de la lumière diffusée par l'ensemble des particules se trouvant dans la zone de détection) au comptage individuel des impulsions lumineuses correspondant à la lumière diffusée par chacune des particules. Ainsi, comme résumé fig. 2:

Lorsque la concentration décroît en-deçà de 10^2 cm^{-3} , le calibre de mesure 10^2 est conservé jusqu'à une concentration comprise entre 30 et 50 cm^{-3} . Lors du basculement au calibre 10^1 , la durée de calcul de la moyenne glissante passe de 2 à 20 s. Comme la concentration est décroissante, la prise en compte des comptages effectués durant les 20 s précédent le changement de calibre pour le calcul de la moyenne glissante entraîne une brusque augmentation de la valeur affichée par l'appareil.

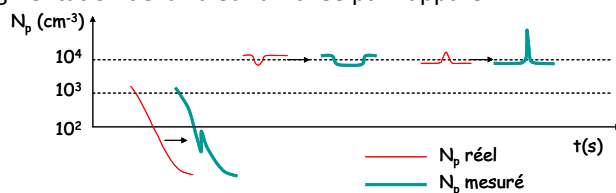


fig. 2 : Artéfacts de mesures liés aux changements du calibre de mesure du CNC

Lorsque la concentration est supérieure à 10^4 cm^{-3} et devient transitoirement inférieure à cette valeur, on passe du mode de comptage photométrique au comptage individuel des particules, avec une moyenne glissante calculée sur 1s de temps actif (ou « live-time »), correspondant au temps pendant lequel le détecteur n'est pas rendu momentanément inactif suite à la détection d'une particule. Or si immédiatement après le passage au calibre 10^3 la concentration de particules redevient supérieure à 10^4 cm^{-3} , un temps actif de 1s correspond à un temps effectif pouvant atteindre quelques minutes, pendant lequel la valeur affichée par le CNC demeure constante. Un passage momentané de la concentration au-delà de 10^4 entraîne un basculement du mode de comptage des impulsions individuelles au mode photométrique, qui fait apparaître un pic de concentration.

Annexe 2 : Calcul de la distribution de charge par le modèle de Fuchs

La théorie de Fuchs nécessite 5 paramètres ioniques : la mobilité électrique Z_{ions} ; la masse m_{ions} ; le coefficient de Diffusion D_{ions} ; vitesse thermique moyenne c_{ions} ; et le libre parcours moyen λ_{ions} . Seules deux de ces variables sont indépendantes (cf. I.3.1).

Ainsi, seul deux paramètres des ions doivent être connus. En général, les paramètres utilisés sont la mobilité et la masse. Cependant, à cause de la formation de clusters autour des ions, ces paramètres ne peuvent plus être définis de manière simple et doivent donc être mesurés ou estimés. Il est à noter que dans les conditions de fonctionnement des chargeurs, les ions présentent une distribution de mobilité. La mobilité utilisée pour le modèle peut-être la valeur du mode de mobilité ou la valeur moyenne.

L'utilisation de la méthode par régime continu utilisé pour la méthode de type mobilité-diffusion n'est valide que dans le cas où le nombre de Knudsen tend vers zéro (cf. I.1.1.2). Dans le cas de la charge bipolaire, Le nombre de Knudsen est défini par : $K_n^{ions} = \frac{\lambda_{ions}}{a_p}$

Avec a_{part} qui est le rayon de la particule. C'est-à-dire que lorsque le diamètre de la particule devient du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen des ions, les équations de diffusion continues ne sont plus valables.

Pour contourner le problème, Fuchs (Fuchs, 1963) applique la méthode de la sphère limite. C'est-à-dire qu'il définit une sphère dont le rayon (δ) est supérieur à la somme du rayon de la particule (a_{part}) et du libre parcours moyen des ions (λ_{ions}) (cf fig. 3). Au niveau de cette sphère, le modèle d'équation de mobilité diffusion est applicable. Dans la sphère limite, il applique la théorie cinétique des gaz basée sur la dynamique hamiltonienne. La continuité entre les deux zones est assurée par l'égalisation des flux d'ions à travers la sphère limite.

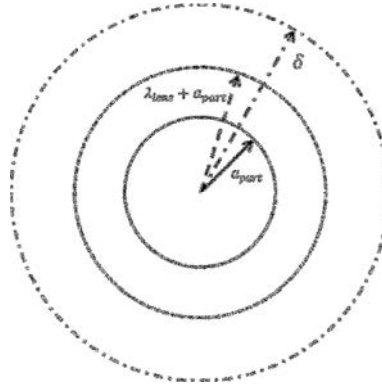


fig. 3 : schéma de principe de la sphère limite

Fuchs (Fuchs, 1963) utilise des paramètres identiques pour les ions positifs et négatifs. Cependant, d'autres auteurs ont choisis des paramètres plus réalistes [exemple : (Hoppel & Frick, 1986);

Les équations de diffusion-mobilité à l'état stationnaire dans la limite continue :

Le flux d'ions à travers une sphère de rayon r est donné par :

$$I_c = 4\pi r^2 \left[D_{ions} \frac{dn_{ions}(r)}{dr} - B_{ions} F(r) n_{ions}(r) \right]$$

Avec D_{ions} le coefficient de diffusion ; B_{ions} la mobilité mécanique des ions ; $F(r)$ force électrostatique qui s'applique sur l'ion ; n_{ions} densité d'ions

Fuchs fait l'hypothèse qu'à l'extérieur de la sphère limite I_c est une constante du rayon.

La solution de l'équation ci-dessus telle que la densité d'ions à l'infini soit la densité d'ion macroscopique n_∞ est :

$$n(r) = \exp \left[-\frac{\phi(r)}{k_B T} \right] * \left\{ n_0 + \frac{I_c}{4\pi D} \int_\infty^r \frac{1}{\rho^2} \exp \left[\frac{\phi(\rho)}{k_B T} \right] d\rho \right\}$$

Le potentiel électrostatique $\phi_i(r)$ est défini par (Kwon, et al., 2005) :

Équation VI-1

$$\phi_i(r) = - \int_\infty^r f(\rho) d\rho = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \left[\frac{i}{r} - \left(\frac{\epsilon_r - 1}{\epsilon_r + 1} \right) \frac{a_{part}^3}{2r^2(r^2 - a_{part}^2)} \right]$$

Avec ϵ_0 la constante diélectrique du vide ; i est positif si la particule et l'ion possèdent une charge de la même polarité sachant que la particule est chargée $|i|$ fois, négatif dans le cas contraire.

De la formule de $n(r)$ il découle :

Équation VI-2

$$I_{ci}^{\pm} = \frac{4\pi D_{ions}^{\pm} \left\{ n_0^{\pm} - n_{ions}^{\pm}(r) \exp \left[\frac{\Phi_i(r)}{k_B T} \right] \right\}}{\int_r^{\infty} \frac{1}{\rho^2} \exp \left[\frac{\Phi_i(\rho)}{k_B T} \right] d\rho}$$

L'exposant ($\pm$) traduit la polarité de l'ion considéré.

Pour pouvoir déterminer le flux d'ions qui permet de charger la particule, il faut éliminer le terme $n(r)$ de l'équation de I_c . Cette opération s'effectue via la continuité du flux au niveau de la sphère limite de rayon δ .

En général, il est fait l'hypothèse que $I_c(\delta)$ est proportionnel à n :

$$I_c(\delta) = \beta n(\delta)$$

Cela permet d'obtenir un courant d'ions

Équation VI-3

$$I_i^{\pm} = \frac{n_0^{\pm} \beta_i^{\pm} \exp \left[-\frac{\Phi_i(\delta^{\pm})}{k_B T} \right]}{1 + \exp \left[-\frac{\Phi_i(\delta^{\pm})}{k_B T} \right] \left(\frac{\beta_i^{\pm}}{4\pi D_{ions}^{\pm}} \right) \int_{\delta^{\pm}}^{\infty} \rho^{-2} \exp \left[\frac{\Phi_i(\rho)}{k_B T} \right] d\rho}$$

Dans cette équation, il reste à déterminer $\delta^{\pm}$ et $\beta^{\pm}$.

Fuchs utilise comme expression pour $\delta^{\pm}$:

$$\delta^{\pm} = \frac{a^3}{\lambda_{ions}^{\pm 2}} \left[\frac{1}{5} \left(1 + \frac{\lambda_{ions}^{\pm}}{a_{part}} \right)^5 - \frac{1}{3} \left(1 + \frac{\lambda_{ions}^{\pm 2}}{a_{part}^2} \right) \left(1 + \frac{\lambda_{ions}^{\pm}}{a_{part}} \right)^3 + \frac{2}{15} \left(1 + \frac{\lambda_{ions}^{\pm 2}}{a_{part}^2} \right)^{5/2} \right]$$

Avec $\lambda_{ions}^{\pm}$ le libre parcours moyen pour les ions positifs et négatifs.

Le flux d'ions qui traverse la sphère limite et impacte la particule est défini par :

$$I_k = 4\pi \delta^2 \left[\frac{n(\delta) c_{ions}}{4} \right] \alpha_{pc}$$

Où $\frac{n(\delta) c_{ions}}{4}$ représente le flux d'ions par unité de surface au niveau de la sphère limite ; α_{pc} représente la probabilité qu'un ion qui franchit la surface de la sphère limite impacte la surface.

Lorsqu'il n'y a pas de force α_{pc} est donné par :

$$\alpha_{pc} = \left(\frac{a_{part}}{\delta} \right)^2$$

Cependant, la charge des particules génère une force qui modifie ce facteur. Pour corriger ce facteur, Fuchs (Fuchs, 1963) utilise la théorie du paramètre d'impact b avec comme hypothèse qu'il existe un paramètre critique b_{min} correspondant au rayon minimum $(r_a)_{min}$ à partir duquel l'ion ne percute plus la particule. Il en découle que :

$$\alpha_{pc} = \left(\frac{b_{min}}{\delta} \right)^2$$

En appliquant la loi de conservation de l'énergie, la forme du paramètre d'impact dans un potentiel central est :

$$b^2 = r_a^2 \left\{ 1 + \frac{2}{3k_B T} [\phi(\delta) - \phi(r_a)] \right\}$$

Cette équation est cependant limitée en termes de trajectoire (Hoppel & Frick, 1986). Hoppel et Frick ont montré qu'il fallait modifier la valeur de α_{pc} car les hypothèses de Fuchs ne permettaient pas de déterminer correctement ce facteur. Wiedensohler (1989) a également ajouté une correction traduisant la distribution angulaire des trajectoires des ions à l'entrée dans la sphère limite.

Le facteur α_{pc} développé par Hoppel et Frick a été ensuite corrigé par Stommel et Riebel (Stommel & Riebel, 2007). Le facteur α_{pc} dépend des hypothèses sur les forces qui entrent en jeu lors des collisions ions-particule. Ces forces sont le potentiel coulombien, la force image, les forces liées à la présence d'autre particule.

Coefficient de combinaisons ions-aérosol :

On définit le coefficient dit d'attachement ou de combinaisons η par :

$$\eta = \frac{I}{n_0}$$

En remplaçant les termes, il sort :

$$\eta_i^\pm = \frac{\pi (\delta^\pm)^2 c_{ions}^\pm \alpha_{pci}^\pm \exp[-\frac{\Phi_i(\delta^\pm)}{k_B T}]}{1 + \exp[-\frac{\Phi_i(\delta^\pm)}{k_B T}]} \left(\frac{(\delta^\pm)^2 c_{ions}^\pm \alpha_{pci}^\pm}{4 D_{ions}^\pm} \right) \int_{\delta^\pm}^\infty \rho^{-2} \exp\left[\frac{\Phi_i(\rho)}{k_B T}\right] d\rho$$

En posant $x = \frac{\delta^\pm}{\rho}$ l'expression devient :

$$\eta_i^\pm = \frac{\pi (\delta^\pm)^2 c_{ions}^\pm \alpha_{pci}^\pm \exp[-\frac{\Phi_i(\delta^\pm)}{k_B T}]}{1 + \exp[-\frac{\Phi_i(\delta^\pm)}{k_B T}]} \left(\frac{(\delta^\pm)^2 c_{ions}^\pm \alpha_{pci}^\pm}{4 D_{ions}^\pm} \right) \int_0^1 \exp\left[\frac{\Phi_i(\frac{\delta^\pm}{x})}{k_B T}\right] dx$$

Soit $\sigma_i = \frac{i}{|i|}$ le signe de i et $p = |i|$ avec i comme défini précédemment

$$\eta_i^\pm = \eta_{\sigma_i p}^\pm$$

Les équations de conservation sont sous la forme :

$$\frac{dn_p^\pm}{dt} = \eta_{+(p-1)}^\pm n_{ions}^\pm n_{p-1}^\pm + \eta_{-(p+1)}^\mp n_{ions}^\mp n_{p+1}^\pm - \eta_{+(p)}^\pm n_{ions}^\pm N_p^\pm - \eta_{-(p)}^\mp n_{ions}^\mp n_p^\pm$$

Avec $n_p^\pm$ la concentration de particule chargée de p charges positivement (+) ou négativement (-) et $n_{ions}^\pm$ la concentration en ions

La distribution de charge peut être déterminé soit par une résolution directe des équations soit en faisant l'hypothèse de l'état stationnaire (discuté plus loin dans ce paragraphe),

Dans le cas de l'état stationnaire, nous avons $\frac{dn_p^\pm}{dt} = 0$

La relation précédente devient (Hussin, et al., 1983):

$$A_p^\pm = \frac{n_p^\pm}{n_{p-1}^\pm} = \left(\frac{n_{ions}^\pm}{n_{ions}^\mp} \right) \frac{\eta_{+(p-1)}^\pm}{\eta_{-(p)}^\mp + \left(\frac{n_{ions}^\pm}{n_{ions}^\mp} \right) \eta_{+(p)}^\pm - \eta_{-(p+1)}^\mp \left(\frac{n_{p-1}^\pm}{n_p^\pm} \right)}$$

D'où :

$$A_p^\pm = \left(\frac{n_{ions}^\pm}{n_{ions}^\mp} \right) \frac{\eta_{+(p-1)}^\pm}{\eta_{-(p)}^\mp + \left(\frac{n_{ions}^\pm}{n_{ions}^\mp} \right) \eta_{+(p)}^\pm - \eta_{-(p+1)}^\mp A_{p+1}^\pm}$$

Cette équation prend en compte les différences entre ions positifs et négatifs.

Des équations précédentes, il découle :

$$\frac{n_p^\pm}{n_0} = \prod_{j=1}^p A_j^\pm$$

Soit p_{max} le nombre maximum de charge sur une particule,

Le nombre total de particules peut s'écrire :

$$n = n_0 + \sum_{k=1}^{p_{max}} (n_k^- + n_k^+)$$

Ainsi, les fractions de particules chargées sont données par :

$$f_p^\pm(a) = \frac{n_p^\pm}{n} = \frac{\prod_{j=1}^p A_j^\pm}{1 + \sum_{k=1}^{p_{max}} (\prod_{j=1}^k A_j^- + \prod_{j=1}^k A_j^+)}$$

Et la fraction de particules neutres est donnée par :

$$f_p^\pm(a) = \frac{n_0}{n} = \frac{1}{1 + \sum_{k=1}^{p_{max}} (\prod_{j=1}^k A_j^- + \prod_{j=1}^k A_j^+)}$$

Annexe 3 : Propriétés des ions

3.1. Équation

Le coefficient de diffusion thermodynamique dépend de la température de l'ion, de la masse de l'ion, de la fréquence de collision ions-molécules de gaz :

$$D_{ions} = \frac{k_B T_{ions}}{m_{ions} \nu_{ions/gaz}}$$

avec k_B la constante de Boltzmann et T_{ions} la température de l'ion supposée égale à la température du gaz T_g .

Le coefficient de diffusion est relié à la mobilité par la relation d'Einstein :

$$\frac{D_{ions}}{Z_{ions}} = \frac{k_B T_{ions}}{q_{ions}}$$

La vitesse thermique des ions dépend de la température des ions et de leur masse (Romy & Pui, 1992) :

$$c_{ions} = \sqrt{\frac{8k_B T_{ions}}{\pi m_{ions}}}$$

Le libre parcours moyen des ions dépend de la vitesse des ions et de la fréquence de collision ions gaz $\nu_{ions/gaz}$:

$$\lambda_{ions} = \frac{c_{ions}}{\nu_{ions/gaz}}$$

et peut être exprimé en fonction de la mobilité et de la masse des ions par :

Équation VI-4

$$\lambda_{ions} = \frac{c_{ions} * Z_{ions} * m_{ions}}{q_{ions}}$$

Dans ces équations, il apparaît la fréquence de collision entre les ions et les molécules de gaz. Cette fréquence va dépendre de la température du gaz, de la densité du gaz et de la nature des ions et du gaz.

$$\nu_{ions/gaz} = n_{gaz} * \sigma_{ions/gaz} * c_{ions} = \frac{q_{ions}}{Z_{ions} * m_{ions}}$$

Avec l'hypothèse de collision de type sphère dure : $\sigma_{ions/gaz} \sim \pi(d_{ions/gaz})^2$

Où $d_{ions/gaz}$ correspond à la distance entre le centre de l'élément du gaz et le centre de l'ion. Cette distance varie en fonction des propriétés des clusters formés à partir des ions ce qui modifie la relation masse-mobilité dans le gaz.

Ainsi, les propriétés des ions dans l'air à pression atmosphérique seront déterminées par les valeurs de mobilité et de masse dans les CNTP ou CSTP. Les valeurs de masse et de mobilité mesurées dans l'air à PA par différents auteurs sont données au § suivant. La plupart des mobilités sont données en termes de mobilité réduite afin d'être comparées dans des conditions équivalentes :

$$Z_0 \triangleq Z \cdot \frac{P}{P_0} \cdot \frac{T_0}{T}$$

Avec $P_0 = 1,013 \cdot 10^5$ Pa et $T_0 = 293,15$ K (CNTP) ou $273,15$ K (CSTP).

3.2. Mesure de masse et de mobilité des ions

a) Mesure en air sec :

article	m +	m -	Z + (cm ² .V ⁻¹ .s ⁻¹)	Z – (cm ² .V ⁻¹ .s ⁻¹)	condition	source	méthode de mesure de masse	méthode de mesure de mobilité
(Alonso, et al., 2009)	X	X	0,7 à 2,2	2,00	à 0°C et PA	am-241		DMA
(Alonso, et al., 2009)	X	X	1,01 à 1,20	1,76 à 1,96	à 0°C et PA	décharge couronne		DMA
(Bourgeois, et al., 2009)	X	X	0,4 à 1,7	1,70		DBD		mobilimètre
(ZELENY, 1930)	X	X	1,08	2,40		Po-210		
(ZELENY, 1930)	X	X	1,05	2,45		Po-210		

b) Mesure en air humide

article	m ⁺ (uma)	m ⁻ (uma)	Z+ (cm ² .V ⁻¹ .s ⁻¹)	Z– (cm ² .V ⁻¹ .s ⁻¹)	humidité	source	méthode de mesure masse	méthode de mesure mobilité
(Alonso, et al., 1997)	150	80	1,15	1,65	////////	Am-241	estimé	DMA
(CHAPMAN, 1938)	X	X	1,50	1,80	air humide	X	X	X
(Han, et al., 2009)	X	X	0,9	1,7	40% à 50%	décharge fibre carbone	////////	DMA
(Han, et al., 2009)	X	X	0,9	1,7	40% à 50%	Kr-85	////////	DMA
(Hoppel & Frick, 1986)	150	90	1,2	1,35	////////	////////	estimé	estimé
(Kallinger, et al., 2012)	X	X	1,5	2,09	<2%	Am-241	////////	DMA
(Kallinger, et al., 2012)	X	X	1,57	1,85	<2%	Décharge couronne AC	////////	DMA
(Kallinger, et al., 2012)	X	X	1,6	1,68	<2%	rayon X	////////	DMA
(Kallinger, et al., 2012)	X	X	1,55	1,69	<2%	rayon X	////////	DMA
(Kwon, et al., 2005)	149	149	1.14	1.91	50 ppm	DBD	estimé	DMA
(Kwon, et al., 2005)	X	X	1,27	1,69	50 ppm	Am-241	////////	DMA
(Lee, et al., 2005)	X	X	1	1,8	(air humide)	rayon X	////////	DMA
(Manninen, et al., 2011)	100 et 199	62 et 125	1,60	1,80	entre 0 et 70 %	décharge couronne	spectrométrie de masse	DMA
(Maricq, 2008)	250	170	1,4	1,6		Po-210	admis	admis
(Perkins & Eisele, 1984)	54; 60; 80; 94	62; 125	X	X	air ambiant	naturel	spectrométrie de masse	X
(Reischl, et al., 1996)	292	79	1,15	1.90	////////	Am-241	admis	mesuré étude antérieur
(Reischl, et al., 1996)	292	79	1,15	1.425	////////	Am-241	admis	estimé
(Stommel & Riebel, 2007)	130	100	1,4	1,9			admis	admis
(CHAPMAN, 1938)	X	X	1,36	2,08	de 1,5 à 2 mg/L	Po-210	////////	

Annexe 4 : Théorie du transport d'espèce

4.1. Théorie particulaire

Principe fondamental de la dynamique appliqué à un élément dans un champ de force dans le vide :

$$m \frac{dv}{dt} = \sum \vec{F}$$

4.2. Théorie cinétique

Application du principe de conservation appliqué à une fonction de distribution :

$$\frac{df}{dt} = \left(\frac{\delta f}{\delta t} \right)_{collision}$$

Comme f est une fonction du temps, de la position et de la vitesse, d'où :

$$\frac{df}{dt} = \frac{\partial f}{\partial t} + \frac{\partial \vec{r}}{\partial t} \cdot \overrightarrow{grad_{\vec{r}}}(f) + \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} \cdot \overrightarrow{grad_{\vec{v}}}(f)$$

Il en découle l'équation :

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \vec{v} \cdot \overrightarrow{grad_{\vec{r}}}(f) + \left(\frac{1}{m} \sum \vec{F} \right) \cdot \overrightarrow{grad_{\vec{v}}}(f) = \left(\frac{\delta f}{\delta t} \right)_{collision}$$

4.3. Théorie multi fluide

Le principe est que l'ensemble des intégrales $\int (\otimes^n(\vec{v})) \times f(\vec{r}; \vec{v}; t) d^3v$ permet de remonter à la fonction de distribution.

Les intégrales sont liées à des paramètres fluides définis par :

$$n = \int_{-\infty}^{+\infty} f d^3v$$

$$\overrightarrow{v_{moy}} = \frac{1}{n} \int_{-\infty}^{+\infty} \vec{v} f d^3v$$

$$\frac{1}{2} m v_{moy}^2 + \frac{3k_B T}{2} = \frac{1}{2n} \int_{-\infty}^{+\infty} v^2 f d^3v$$

Les équations fluides reviennent à effectuer cette intégrale sur l'équation de la théorie cinétique.

Dans cette étude, seule l'équation de conservation de la matière et l'équation de conservation de l'impulsion sont utilisées :

$$\frac{\partial n_s}{\partial t} + \text{div}(n_s \overrightarrow{v_s}) = \left(\frac{\delta n_s}{\delta t} \right)_{collision}$$

$$n_s m_s \left(\frac{D \overrightarrow{v_s}}{Dt} \right)_s + \overrightarrow{grad}(P_s) - n_s \langle \sum \vec{F} \rangle = \left(\frac{\delta M_s}{\delta t} \right)_{collision}$$

Avec $\left(\frac{D \vec{X}}{Dt} \right)_s = \frac{\partial \vec{X}}{\partial t} + \overrightarrow{v_s} \cdot \overrightarrow{grad}(\vec{X}) ; \langle \sum \vec{F} \rangle = \int (\sum \vec{F}) f dv$

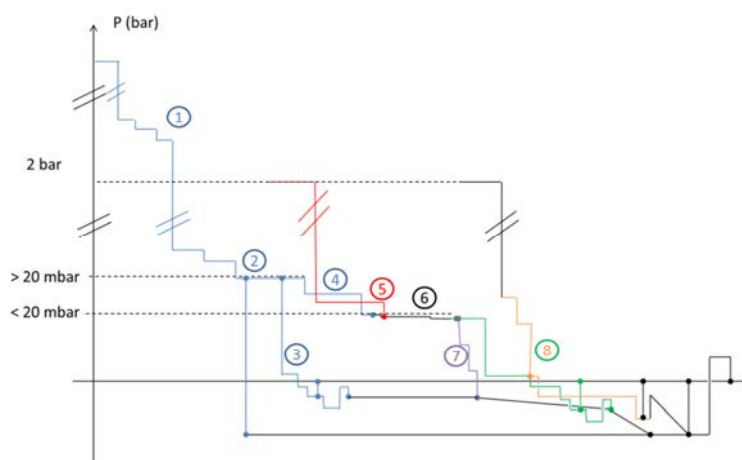
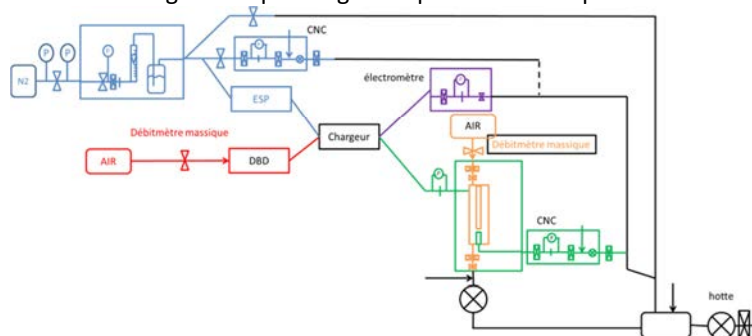
4.4. Théorie mono-fluide (MHD ou EHD)

La théorie mono-fluide revient à considérer que les éléments du fluide se déplacent de façon cohérente. Dans ce cas la densité est la densité totale, l'impulsion totale est la somme des impulsions et la pression est la somme des pressions.

Les écarts de comportement entre les éléments se traduisent par une loi d'Ohm.

Annexe 5 : Montage et lignes de pression

Ci-dessous est représenté le montage ainsi que la ligne de pression correspondant au mesure aérosol



Deux sources de gaz sont utilisées :

Pour la production d'aérosol par SLG, le flux provient d'une bouteille de N_2 avec un détendeur à 4 bars. Le passage par l'orifice critique et dans le saturateur diminue la pression en sortie de générateur à une pression de l'ordre de la pression atmosphérique. Une perte de charge est ajoutée dans la voie d'excès afin de garantir une surpression en amont de la zone de mélange et donc contrôler le flux.

D'autre part, un détendeur permet de descendre la pression de l'arrivée d'air du laboratoire de 7 bars à 2 bars en entrée de débitmètre massique. Le débitmètre massique contrôle le débit de $0,3$ à 10 L.min^{-1} . La surpression maximale en entrée de décharge est de 42 mbar. Cependant, pour des débits inférieurs à 1 L.min^{-1} comme utilisé dans le neutraliseur, la surpression n'excède pas 5 mbar.

1 : SLG	2	3 : CNC référence	4 : ESP	5 : DBD	6 : zone de charge	7: électromètre	8 : DMA
- Manomètre - Filtre - Nébuliseur - Débitmètre - Boiler	Pince réglable vers Xs	- Pince amont - Filtre - Débitmètre - Prise d'air - Filtre - Pompe - filtre	- Entrée ESP - Sortie ESP	- Débitmètre massique - Injection interalumine	- Entrée zone de charge - Sortie de zone de charge	- Filtre - Débitmètre - Vanne de régulation	- Impacteur - Débitmètre massique - sheat air - Filtre sheat air - Vanne sheat air - Entrée de la sélection - CNC (idem 3) - Filtre Xs - Vanne Xs - pompe

Annexe 6 : Caractérisation de décharge

6.1. Par la méthode de Lissajou

La méthode de Lissajous permet de déterminer, la puissance, le courant de décharge ainsi que les capacités des diélectriques et du réacteur.

La méthode consiste à placer un condensateur entre l'électrode passive et la masse (cf. Figure III-4 : position 2).

a) Choix du condensateur de mesure :

Dans notre circuit, le condensateur fait office de circuit intégrateur c'est-à-dire que la mesure correspond à la charge transférée

La charge maximale transférée dans le gap donne la tension max aux bornes de la capacité et de l'oscilloscope

$$U_{cond}^{max} = \frac{q_{max}}{C} < \min(u_{capa}^{max}; u_{oscillo}^{max})$$

Pour cette étude, le condensateur est couplé avec une sonde de division par 10 → 200 V max

La tension de claquage du condensateur est supérieure à 200 V

La charge transférée est inférieure à 100 nC

$C > 0,5$ pF

Dans les cas de décharge symétrique en régime filamentaire alimenté par une tension sinusoïdale, la figure de Lissajous se présente sous la forme d'un parallélogramme (Kogelschatz, et al., 1997); (Manley, 1943); (Falkenstein & Coogan, 1997)). Une caractéristique classique obtenue est présentée sur la fig. 4 pour une période du signal de tension.

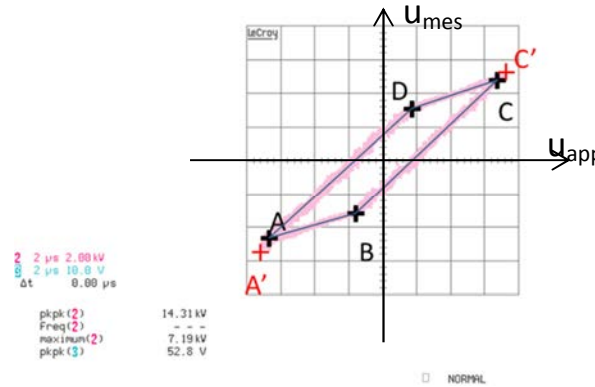


fig. 4: caractéristique Q-U ou figure de Lissajous sur 1 période pour $V_{cc} = 14.3$ kV et $f_r = 60$ kHz

L'axe des ordonnées représente la tension mesurée aux bornes du condensateur et est reliée à la charge par $q = C_{cond} \times u_{mes}(t)$ (Choix du condensateur en Annexe 6).

L'axe des abscisses représente la tension appliquée sur l'électrode haute tension de la DBD. La différence de potentiel entre les deux électrodes de la DBD est $u_{DBD} = u_{app} - u_{mes}$ avec $|u_{app}| \sim 0$ à 10 kV; $|u_{mes}| \sim 0$ à 100 V C'est-à-dire que $u_{DBD} \approx u_{app}$ (dans la suite, nous utiliserons cette approximation).

Sur ce cycle, 6 points particuliers sont définis (cf. Figure III-5 :) :

A, B, C, D qui représentent les sommets du parallélogramme

A' et C' dont les coordonnées dans l'espace (u, q) sont $(U_{min}; q_{min})$ et $(U_{max}; q_{max})$

La différence entre les points A et A' ainsi que C et C' est liée à la probabilité d'allumage des filaments au maximum de tension. En effet, la charge mesurée sur le condensateur correspond à l'intégrale du courant dans le circuit extérieur. Ce courant se compose du courant impulsif et du courant capacitif. Entre la tension du dernier filament d'une demi-période et le maximum de tension, seul le courant capacitif contribue à la variation de charge mesurée par le condensateur. Ainsi, les points A et C représentent les valeurs de tensions correspondant aux derniers filaments des demi-périodes alors que les points A' et C' représentent les valeurs de tensions correspondant au maximum et au minimum de tension.

La tension crête-à-crête est définie par $U_{cc} = U_{max} - U_{min}$

L'aire du cycle $q = f(u_{app})$ correspond alors à l'énergie fournie par le générateur pendant une période du signal de tension. Dans le cas d'un parallélogramme, l'énergie du cycle peut être définie par :

$$En_{cycle} = \|\vec{AB} \wedge \vec{AD}\| = \left\| \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ (u_B - u_A)(q_D - q_A) - (u_D - u_A)(q_B - q_A) \end{pmatrix} \right\| \quad \text{VI-5}$$

$$En_{cycle} = |(u_B - u_A)(q_D - q_A) - (u_D - u_A)(q_B - q_A)| \quad \text{VI-6}$$

La puissance représente l'énergie consommée par unité de temps. Elle se calcule par

$$P_u = f_r \times En_{cycle} \quad \text{VI-7}$$

Les valeurs des capacités nécessaires pour le calcul du facteur correctif sont obtenues par la mesure des pentes du parallélogramme. En effet, lorsque la décharge est éteinte (segment AB et CD) le système est en régime capacitif, sa capacité est donc la capacité résultante C_{DBD}^{off} . Lorsque la décharge est allumée (droite BC et DA) il est possible de faire l'approximation que le gaz est court-circuité (résistance négligeable), dans ce cas la capacité du réacteur ne dépend que de la capacité des diélectriques $C_{diélectriques}$.

En utilisant les valeurs de pente pour la détermination des capacités, on obtient :

$$\alpha_{gaz/ext} = \frac{C_{diélectriques}}{C_{diélectriques} - C_{DBD}^{off}} \quad \text{VI-8}$$

Le dernier paramètre qui peut être déterminé par la méthode de Lissajous est le courant décharge ($I_{décharge}$). Ce courant est calculé à partir de la charge totale qui a transité dans le circuit extérieur (charge des filaments et charge correspondant au courant capacitif) $\Delta q_{periode} = 2(q_{max} - q_{min})$. À cette valeur, la composante de charge liée au courant capacitif est soustraite, puis la valeur obtenue est corrigée avec le facteur $\alpha_{gaz/ext}$ pour obtenir la charge transférée dans le gaz pendant une période. Pour obtenir le courant, il faut multiplier cette charge par la fréquence :

$$I_{décharge} = 2 \times f_r \times \alpha_{gaz/ext} \times ((q_{max} - q_{min}) - C_{DBD}^{off} \times U_{cc}) \quad \text{VI-9}$$

L'hypothèse pour le calcul du facteur correctif conduit à une conservation de l'énergie entre le gaz et le circuit extérieur (c'est-à-dire que l'énergie perdue dans les diélectriques est négligeable - de l'ordre de quelques millièmes pour une fréquence de 10 kHz -). Ainsi, il est possible de déterminer l'énergie des filaments à partir de la charge par filament mesurée dans le circuit extérieur. Pour la conversion entre la charge et l'énergie, nous définissons une tension (U_{conv}) comme le rapport de l'énergie consommée durant une période (calculée pour déterminer la puissance) et la charge transférée (i.e. après soustraction de la charge capacitive) dans le circuit extérieur (calculé pour la détermination de $I_{décharge}$).

6.2. Mesure de $i(t)$

La charge de chaque filament appelée charge unitaire est estimée à partir de la mesure de l'évolution temporelle du courant, c'est-à-dire de la tension aux bornes d'une résistance de mesure ($R_{mes} = 25 \Omega$ cf. Figure III-4 :). Pour la caractérisation électrique des DBD, 2 échelles de temps sont utilisées :

- période ($\approx 17 \mu s$) observée sur le calibre $5 \mu s/\text{carreau}$,
- filaments ($\approx 20 ns$) observés sur le calibre $5 ns/\text{carreau}$.

a) À l'échelle de la période,

La puissance et la capacité en régime capacitif sont mesurées et moyennées sur plusieurs milliers de périodes.

La capacité du système est définie par (calcul en annexe) :

$$C_{DBD}^{off} = \frac{U_{mesCC}}{U_{appCC} \times R \times 2\pi f_r} \quad \text{VI-10}$$

La puissance fournie par l'alimentation électrique consiste à calculer sur un nombre entier de périodes du signal de tension (noté n) la moyenne du produit de la tension $u(t)$ imposée entre les électrodes par le courant $i(t)$ mesuré dans le circuit extérieur, soit :

$$P_u' = \frac{1}{nT} \int_0^{n/f_r} \left(u_{app} \times \frac{u_{mes}}{R_{mes}} \right) dt \quad \text{VI-11}$$

La Figure III-6 présente une comparaison des deux méthodes de mesure de la puissance : la moyenne du produit du courant par la tension et la figure de Lissajous.

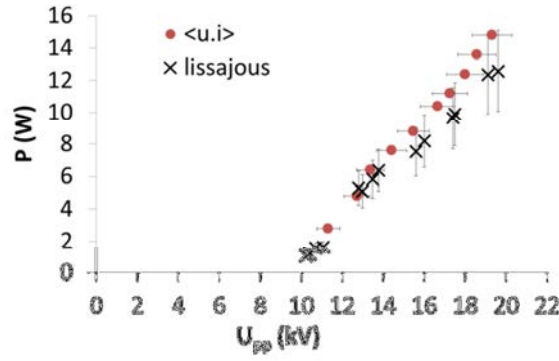


fig. 5: mesure de la puissance par la moyenne du produit de l'évolution temporelle de courant par la tension et par la méthode de Lissajous

Sur la fig. 5, les puissances mesurées entre les deux méthodes diffèrent au maximum de 20 % comme déjà mis en évidence (Jidenko, 2004).

Les écarts entre ces deux mesures sont liés aux incertitudes de mesure de P_u et P_u' . Pour P_u' , l'incertitude de mesure est liée au fait que la moyenne du produit du courant par la tension n'est pas effectuée sur un nombre réellement entier de périodes et à la résolution de la mesure. Pour P_u , la position des points A, B, C et D définissant le parallélogramme sur la figure de Lissajous est précise à moins de 3% près c'est-à-dire que l'erreur maximale sur la puissance est de 24 % (4 points * 2 coordonnées * 3% de précision). Enfin, la figure de Lissajous n'est pas toujours un parallélogramme idéal ajoutant également à l'incertitude.

Enfin, le courant de décharge est divisé par la puissance, cela donne la tension de conversion.

b) Caractéristiques moyenne des filaments unitaires

À l'échelle du filament, nous mesurons l'amplitude : U_{fil} ; le temps de montée : t_m ; et le temps caractéristique de décroissance exponentiel : t_{exp} .

L'amplitude du filament est définie comme la différence entre le maximum du pic et la valeur de tension hors d'un pic qui représente la valeur de la composante capacitive. Les impulsions correspondant aux filaments peuvent être représentées comme une montée linéaire avec un temps de montée t_m et d'une décroissance exponentielle avec un temps caractéristique t_{exp} .

La charge du filament unitaire est définie par l'intégrale de la tension mesurée pour un filament divisée par la résistance et corrigée pour « passer » du circuit extérieur, à la valeur dans le gaz par le facteur ($\alpha_{gaz/ext}$) défini précédemment. Ainsi les valeurs du courant maximum du filament, sa charge et son énergie sont:

$$I_{fil} = \alpha_{gaz/ext} \times \frac{U_{fil}}{R} \quad \text{VI-12}$$

$$q_{fil} = \alpha_{gaz/ext} \times \frac{U_{fil}}{R} \left(\frac{t_m}{2} + t_{exp} \right) \quad \text{VI-13}$$

$$E_{fil} = q_{fil} \times V_{conv} \quad \text{VI-14}$$

En intégrant l'ensemble des charges des filaments qui ont lieu au cours d'une période, la charge totale transférée par période est obtenue. En le multipliant par la fréquence, le courant de décharge transféré dans le circuit extérieur est déterminé. Ensuite, si ce courant est multiplié par le facteur correctif et la fréquence, on obtient le courant de décharge. Cependant, les charges par filament calculées se basent sur la mesure d'un courant principalement électronique conduisant à une mesure du courant de décharge inférieur à la valeur déterminée par Lissajous. De plus, cette méthode de détermination de la charge par période présente l'inconvénient que la précision de la méthode nécessite de bien séparer la fraction du courant impulsionnel du courant capacitif. En effet, à forte tension (ou pour un écart entre la tension de travail et la tension d'extinction important de l'ordre de 3 kV) le temps entre deux filaments devient inférieur à la durée d'un filament (20 ns) et donc il devient difficile de retirer la ligne de base sans passer par un traitement de signal comme défini lors de précédentes études (Jidenko, et al., 2006).

Annexe 7 : Principe de l'ESP et artefact de mesure du courant d'ions

7.1. Principe de l'ESP

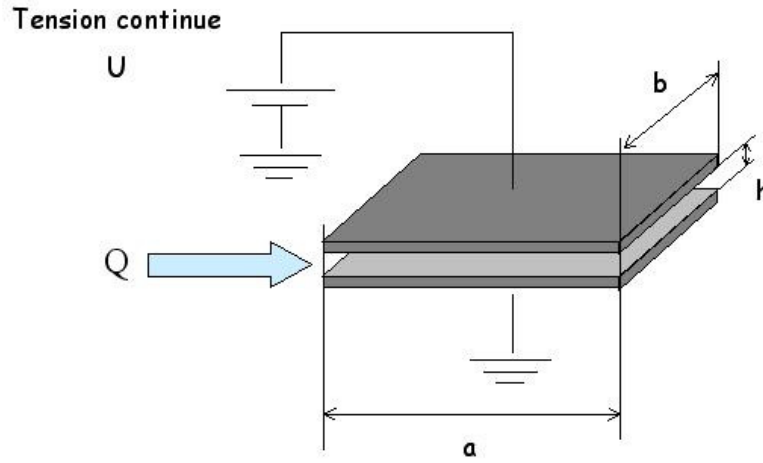


fig. 6: Schéma de l'ESP pour le calcul de la tension critique à appliquer

On considère un précipitateur électrostatique (ESP) formé de deux plaques planes métallique parallèles entre elles, de section $S = ab$ et séparées d'une distance h .

La vitesse de dérive entre les deux plaques électrostatique v d'une espèce chargée de mobilité électrique Z s'exprime sous la forme :

$$v = Z\|E\| = Z \frac{U}{h}$$

Le temps de dérive électrostatique associé (temps pour qu'une particule parcoure la distance h sous l'effet du champ électrique) est alors : $t_{\text{dérive}} = \frac{h}{v}$

Par ailleurs, le temps de transit dans l'ESP lié au transport par le gaz à un débit Q s'exprime sous la forme

$$t_{\text{transit}} = \frac{Sh}{Q}.$$

Pour que toutes les espèces chargées de mobilité électrique Z soit collectées sur les électrodes durant leur transit dans l'ESP, on doit avoir :

$$t_{\text{dérive}} \leq t_{\text{transit}} \Leftrightarrow \frac{h}{v} = \frac{h^2}{ZU} \leq \frac{Sh}{Q} \Leftrightarrow U \geq U_{\text{critique}} = \frac{Qh}{SZ}$$

Il y aura donc collection de toutes les particules chargées de mobilité Z si la tension U appliquée aux bornes de l'ESP est supérieure à la tension seuil U_{critique} .

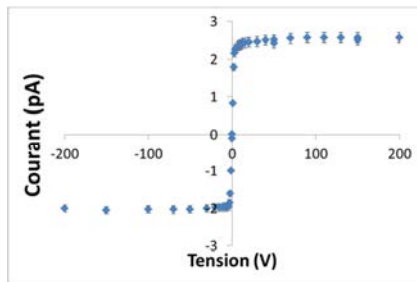
7.2. Contraintes à respecter pour les mesure d'ions

Ci-dessous, un résumé des problèmes rencontrés lors de la mesure des ions et les solutions trouvées

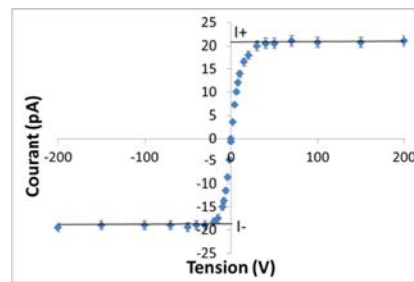
Contrainte	problème causé	solution	remarque	Cause physique
étanchéité	tout le flux ne passe pas dans les plaque donc les débits estimé dans l'ESP sont faux	boucher les trous au CAF4 et au Téflons	penser à étanchéifier dès le montage permet un gain de matériel et de temps	
pas de courant de fuite sur la mesure	courant surnuméraire qui évolue selon la tension appliquée	augmenter la résistance de fuite ajouter une électrode de garde au même potentiel que la mesure	pour des mesures au pA la résistance doit être supérieure à $10^{13} \Omega$ Attention, peut générer une tension entre la mesure et la garde, il faut donc maximiser la résistance entre les deux	Ecoulement des charges en surface des diélectriques
éviter les courants d'influence	courant > nA mesuré « sans ions » dans l'ESP	blindage de l'ESP et de la ligne de mesure séparation des terres (Terre d'alimentation $\neq$ Terre de blindage $\neq$ Terre de mesure)	il est fortement recommander d'ajouter un blindage par la Terre de mesure et par la référence de mesure en s'assurant que les résistances entre les différents blindages soit supérieur à $10^{13} \Omega$ (courant de fuite)	Rayonnement GHz des courant filamentaire circulant dans le gaz et dans le circuit d'alimentation e de mesure DBD
effet de polarisation des diélectriques	courant qui se décharge de manière cyclique aux électrodes	diminuer la surface des diélectriques en contact avec le gaz ionisé placer une électrode de garde entre les diélectriques et la mesure	même condition que pour les courants de fuite.	Ecoulement des charges en surface des diélectriques
Fiabilité de la mesure	Valeur de tension constante créant un offset qui s'ajuste au calibre (exemple : 10 PA sur calibre 200 PA pleine échelle $\rightarrow$ 10 nA sur calibre 200 nA pleine échelle)	S'assurer que l'électrode de mesure et la référence de mesure sont au même potentiel (pas d'effet de pile)	Il faut bien choisir les matériaux (effet de pile) et assuré le contact des connexions (pas de résistance de contacte)	Effet de pile ;
pas d'ESP secondaire	la caractéristique I(V) de l'ESP présente un maximum au lieu d'un plateau	augmenter la tension des ESP secondaire et réduire la tension de l'ESP de mesure	contrôler les potentiels des autres électrodes est recommandé	connexion de ligne de champs sur d'autres électrodes que l'électrode de mesure
pas de courant de fuite sur la mesure	courant surnuméraire	Placé tous les éléments sur un plan de masse unique		Hypothèse : Ecoulement des courants de conduction et d'influence sur la table de manipe jusqu'au appareil de mesure
éviter les courants d'influence	Rayonnement capté par le tube d'injection de gaz dans l'ESP	1 :Mettre tube à la masse 2 : mise du DBD en boîte 3 : utilisation tube isolant + injecteur à la masse	Il suffit d'une seul des 3 solutions	$\nearrow$ gap $\rightarrow$ $\nearrow$ q/fil $\rightarrow$ $\nearrow$ rayonnement réemis à l'extérieur et capté par le tube d'entrée
éviter les courants d'influence	Rayonnement capté par l'alimentation DC de l'ESP	Placer un écran à la masse autour de l'alimentation	Il faut agencer l'espace pour avoir l'écrantage tout en maintenant l'accès au contrôle de l'alimentation	$\nearrow$ gap $\rightarrow$ $\nearrow$ q/fil $\rightarrow$ le blindage principale de l'alimentation ne suffit plus

7.3. Caractéristique I(V) des ESP de mesure d'ions mesure avec le réacteur1

0,5 L.min⁻¹

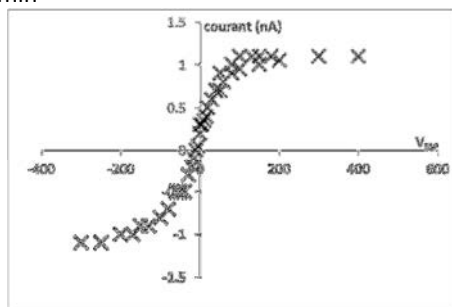


4 L.min⁻¹

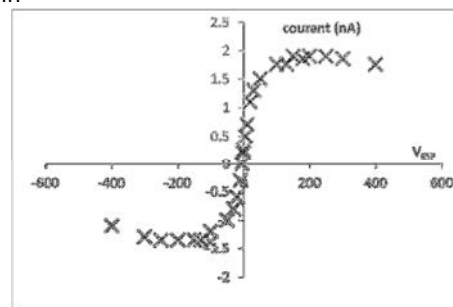


mesure avec le réacteur 2

0,5 L.min⁻¹



4 L.min⁻¹



7.4. Pénétration des particules dans l'ESP pour produire un aérosol non chargé

Un ESP est également utilisé pour filtrer les aérosols chargés afin d'obtenir un aérosol sans charge. La pénétration d'aérosol selon la tension dans cet ESP pour un débit de 0,3 L.min⁻¹ est présentée sur fig. 7

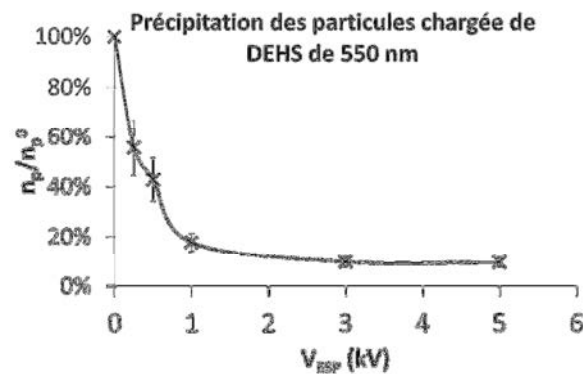


fig. 7 : pénétration des aérosols dans l'ESP aérosol

À tension d'ESP croissante, la pénétration diminue jusqu'à un plateau avec une pénétration totale de 10%. Cette fraction correspond à la collection de l'ensemble des particules chargées de l'aérosol en sortie de SLG. Pour assurer une précipitation totale des particules chargées, nous travaillons à une tension de 5 kV.

Annexe 8 : Nébuliseur

Ce générateur d'aérosol test fonctionne par nébulisation d'une solution. Un débit d'air comprimé, dont la pression est fixée à 2.5 Bar (le débit est fixé par la pression et par l'orifice critique à l'entrée de l'appareil), vient pressuriser une bouteille contenant la solution à pulvériser. La pression fait monter le liquide dans un tuyau en haut duquel un ménisque de liquide se forme. Le liquide est alors soufflé par le débit d'air comprimé, produisant un nuage de gouttes. Une partie des gouttes produites (aérosols) sort du générateur et une autre retombe dans la bouteille. La fig. 7 illustre le fonctionnement du nébuliseur. Ce générateur forme un aérosol unimodal ($dp=0.3\mu m$) de forte concentration ($>10^7$ part/cm³ pour un débit de 2.66 L/min).

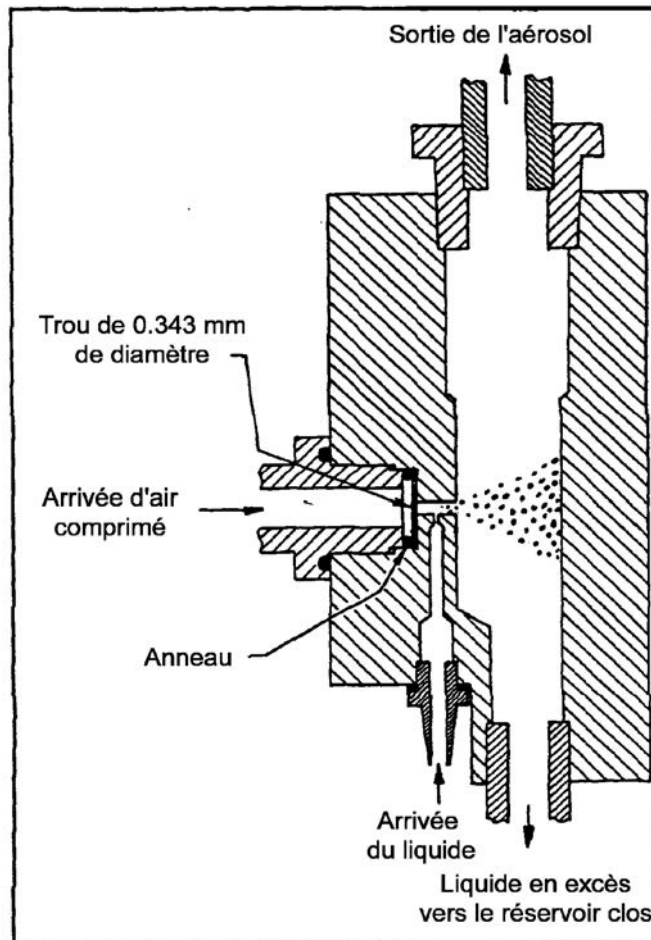


fig. 8 : Schéma de fonctionnement du Nébuliseur.

Annexe 9 : SLG

Le générateur SLG à condensation permet de générer un aérosol monodisperse dans une large gamme de taille (0,4 à 10 μm) et de concentration (jusqu'à 4.10^6 cm^{-3}). Le principe de la génération est basé sur le contrôle de la condensation hétérogène de la vapeur sur les noyaux de sel.

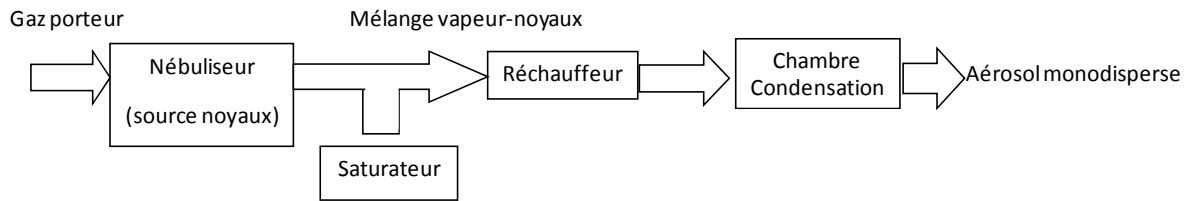


Diagramme de la condensation hétérogène

La taille de l'aérosol produit dépend du rapport de concentration de la vapeur et de la concentration des noyaux de condensation :

$$d_m^3 \approx \frac{C_v}{C_N} \approx \frac{\frac{P_{sat}(T_{sat})}{T_{sat}}}{c_N}$$

La génération de l'aérosol se décompose en quatre étapes :

- Génération des noyaux de condensation : Un nébuliseur alimenté avec de l'air sec et filtré sous pression (2-10 bars) permet de produire un aérosol polydisperse (gouttelettes d'eau) par nébulisation d'une solution de NaCl. La fraction des gouttelettes de diamètre $>1 \mu\text{m}$ est impactée en sortie du nébuliseur. Seules les gouttelettes de diamètre plus petit sont alors sélectionnées. Un sécheur placé en sortie du nébuliseur permet d'évaporer l'eau contenue dans les gouttelettes. Un aérosol de cristaux de sel (10-100 nm) est alors formé et sert de noyaux de condensation. La taille de ces noyaux dépend alors de la concentration de la solution. La taille des noyaux a une influence importante sur la taille de l'aérosol produit après condensation : pour avoir une granulométrie de taille constante (pour les mêmes conditions de fonctionnement : température du saturateur, débit dans le saturateur, température du réchauffeur...) il est primordial d'avoir une concentration de la solution constante. La concentration de l'aérosol généré dépend de la concentration des noyaux (plus faible en raison des pertes).
- Production de vapeur : l'air sortant du sécheur et entraînant les noyaux de sel sont injectés dans le saturateur. Les vapeurs sont produites par bullage de l'air dans de l'huile (dans notre cas le DEHS) chauffé à la température T_{sat} . La taille de l'aérosol dépend de la quantité de vapeur donc de la température T_{sat} . La pression de saturation s'écrit sous la forme $(A.e^{BT_{sat}})$. Le diamètre de l'aérosol est donc donné.

$$d_m^3 \approx \frac{A e^{BT_{sat}}}{T_{sat}}$$

A concentration de noyaux constante, plus la quantité de vapeur dans le mélange final est importante plus le diamètre de l'aérosol est grand.

- Homogénéisation des vapeurs condensées : L'aérosol entrant dans le réchauffeur est composé de noyaux de condensation des gouttes de vapeurs condensées issues du saturateur et des gouttes de liquide produites par éclatement des bulles dans l'évaporateur. En sortie du saturateur l'aérosol est donc largement polydisperse. Ce mélange est donc chauffé à une température $T_{réch}=300^\circ\text{C}$ supérieure à celle du saturateur ce qui permet d'évaporer tout le liquide restant.
- Condensation hétérogène de la vapeur sur les noyaux : en sortie du réchauffeur, un tube en verre sert à condenser les vapeurs sortant du réchauffeur sur les noyaux de condensation. Grâce au réchauffeur qui permet l'homogénéisation des vapeurs, l'aérosol généré est monodisperse (écart type $< 1,2$).

Annexe 10 : Validation de la distribution gaussienne

Il ressort de la bibliographie deux formes de distribution : (i) La loi de Fuchs et (ii) La loi Gunn

La loi de Fuchs est basée sur l'hypothèse de l'état stationnaire : les équations différentielles décrivant la dynamique de charge sont posé et résolu dans l'hypothèse de l'état stationnaire

La loi de Gunn repose sur la loi de Boltzmann. La distribution est une fonction gaussienne pour laquelle, l'écart type est donné par loi de Boltzmann et la charge moyenne par une fonction de la taille et du rapport du produit densité-mobilité ($\langle q \rangle = f(nZ^+/nZ^-; d_{part})$)

La loi de Gunn représente une distribution gaussienne, la loi de Gunn ne s'applique que pour des diamètres supérieurs à 100 nm. Nous allons donc vérifier qu'une distribution gaussienne est applicable quel que soit le diamètre dans la gamme de travail $d_p \in [10; 1000]$ nm. La distribution gaussienne d'écrit :

$$f_q = \frac{n_q}{n_{tot}} = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} * e^{\left(-\frac{(q-\langle q \rangle)^2}{2\sigma^2}\right)}$$

Pour ajuster la gaussienne, il est possible d'ajuster un polynôme du second ordre sur le logarithme de la gaussienne :

$$\ln(f_q) = -\frac{1}{2} * \ln(2\pi\sigma^2) - \frac{(q-\langle q \rangle)^2}{2\sigma^2}$$

Soit la fonction $y=aq^2 + bq + c$

On à :

$$a = -\frac{1}{2\sigma^2}; b = \frac{\langle q \rangle}{\sigma^2}; c = -\left(\frac{\ln(2\pi\sigma^2)}{2} + \frac{\langle q \rangle^2}{2\sigma^2}\right)$$

La distribution de charge étant par définition normalisé, l'application d'une méthode de détermination de la distribution de charge sur une distribution théorique doit donner exactement la même valeur quel que soit le mode. Sur fig. 9, la distribution reconstruite et la distribution source sont présentés pour 3 tailles : (a) 5 nm ; (b) 50 nm et (c) 500 nm

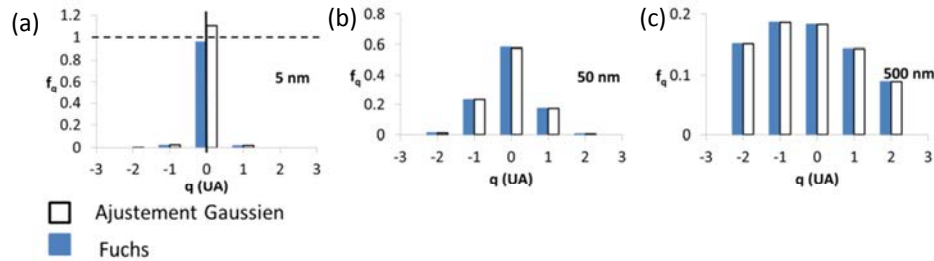


fig. 9 : distribution de charge obtenu par ajustement gaussien sur la loi de Fuchs comparé à la distribution de Fuchs d'origine pour d_{part} = (a) 5 ; (b) 50 et (c) 500 nm

Pour un diamètre de 5 nm, l'écart sur les modes monochargé est supérieur à 10 %. De plus La fraction de neutre obtenue est supérieure à 1. Ces valeurs résultent du faible niveau de charge des particules. Dans ces conditions, l'approximation qui consiste à substituer la somme par une intégrale est fautive. Par conséquent, la méthode de détermination des distributions de charge n'est pas applicable pour les faibles diamètres (<20 nm).

Pour les distributions à 50 et à 500 nm, il y a un bon accord entre la distribution obtenue après traitement et la distribution source. Ainsi, pour des particules de diamètre supérieur à 20 nm, la méthode appliquée permet bien de déterminer la distribution de charge.

L'écart sur le mode monochargé pour des diamètres compris entre 20 et 50 nm s'explique par la différence d'écart type et de charge moyenne entre la loi de Gunn et la gaussienne recalculée. En effet l'erreur fait sur l'écart type augmente quand le diamètre diminue et passe de moins de 1% à 100 nm jusqu'à 23 % pour 20 nm.

Annexe 11 : Calculs simplifiés des pertes d'ions

L'objectif de ce paragraphe est de donner les tendances de décroissance des densités d'ions selon les différents mécanismes de perte afin d'identifier les mécanismes dominants selon le volume considéré

11.1. Recombinaison

a) Théorie

Equation :

$$\frac{dn^{\pm}}{dt} = -\alpha n^{+} n^{-}$$

On en déduit le temps caractéristique par analyse dimensionnelle (exemple sur n^{+}) :

$$\frac{n^{+}}{t} \sim \alpha_r n^{+} n^{-} \Rightarrow t_{\text{recombinaison}} = \frac{1}{\alpha_r n^{+}}$$

Si on fait l'hypothèse que : $n^{+} = n^{-} = n$ et que le paramètre α_r ne varie pas au cours du temps l'équation différentielle s'écrit

$$\frac{dn}{dt} = -\alpha n^2$$

Par séparation des variables :

$$\int_{n_0}^n \frac{dn}{n^2} = \int_0^t -\alpha dt \Rightarrow \left[-\frac{1}{n} \right]_{n_0}^n = -\alpha t$$

D'où :

$$\frac{1}{n_0} - \frac{1}{n} = -\alpha t \Rightarrow \frac{1}{n} - \frac{1}{n_0} = \alpha t \Rightarrow \frac{1}{n} = \alpha t + \frac{1}{n_0} \Rightarrow \frac{1}{n} = \frac{1 + n_0 \alpha t}{n_0}$$

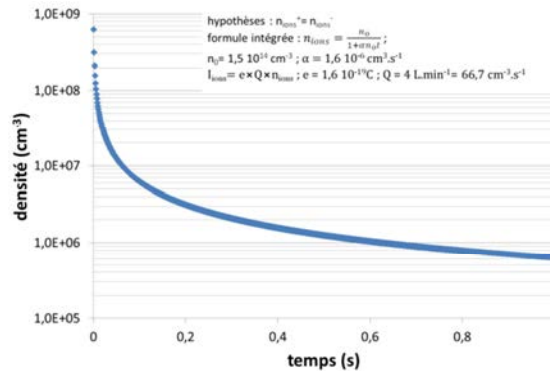
Soit la formule intégrée de la décroissance par recombinaison :

$$n = \frac{n_0}{1 + n_0 \alpha t}$$

b) Application à un cas particulier : $n(t)$ et $I(t)$

$\alpha = 1,6 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ (Bricard, 1977)

$n_0 = 1,5 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ (Par la formule $n = \frac{I}{eQ}$ dans les conditions expérimentales : $I_{\text{décharge}} = 1,65 \text{ mA}$ et $Q = 4 \text{ L/min}$)

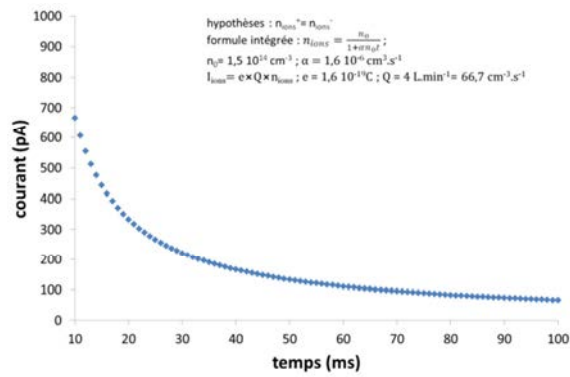


- Décroissance :

- $n_{\text{ions}} < 10^9 \text{ cm}^{-3}$ après 1 ms ($n_{\text{ions}} \tau \sim 10^6 \text{ s} \cdot \text{cm}^{-3}$)
- $n_{\text{ions}} < 10^8 \text{ cm}^{-3}$ après 6 ms ($1 \text{ ms} < t < 6 \text{ ms}$: $n_{\text{ions}} \tau \sim 5 \cdot 10^5 \text{ s} \cdot \text{cm}^{-3}$)
- $n_{\text{ions}} < 10^7 \text{ cm}^{-3}$ après 62 ms ($6 \text{ ms} < t < 62 \text{ ms}$: $n_{\text{ions}} \tau \sim 5 \cdot 10^5 \text{ s} \cdot \text{cm}^{-3}$)
- $n_{\text{ions}} < 10^6 \text{ cm}^{-3}$ après 625 ms ($62 \text{ ms} < t < 625 \text{ ms}$: $n_{\text{ions}} \tau \sim 5 \cdot 10^5 \text{ s} \cdot \text{cm}^{-3}$)
- $n_{\text{ions}} \tau$ de charge de charge d'un aérosol dans un nuage d'ions sans production est compris entre 10^6 et $5 \cdot 10^6 \text{ s} \cdot \text{cm}^{-3}$ i.e. inférieur au minimum requis dans la littérature

Comme les mesures sont des courants, la comparaison des pertes s'effectue sur la variation théorique du courant $I(t)$

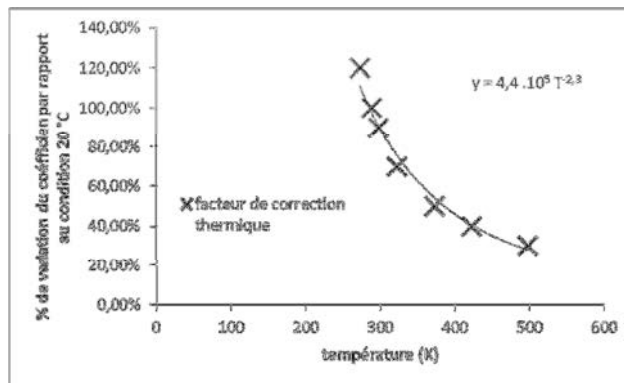
Les mesures sont effectuées pour des temps de transit entre 15 ms et 100 ms pour un débit de 4 L/min. l'échelle temporelle pour une observation des courbes est choisie en représentation linéaire.



Ci-dessus : la courbe de référence pour comparaison avec les conditions expérimentales : variation du courant d'ions de 650 pA pour 10 ms à 100 pA pour 100 ms

c) Effet de la température sur la recombinaison

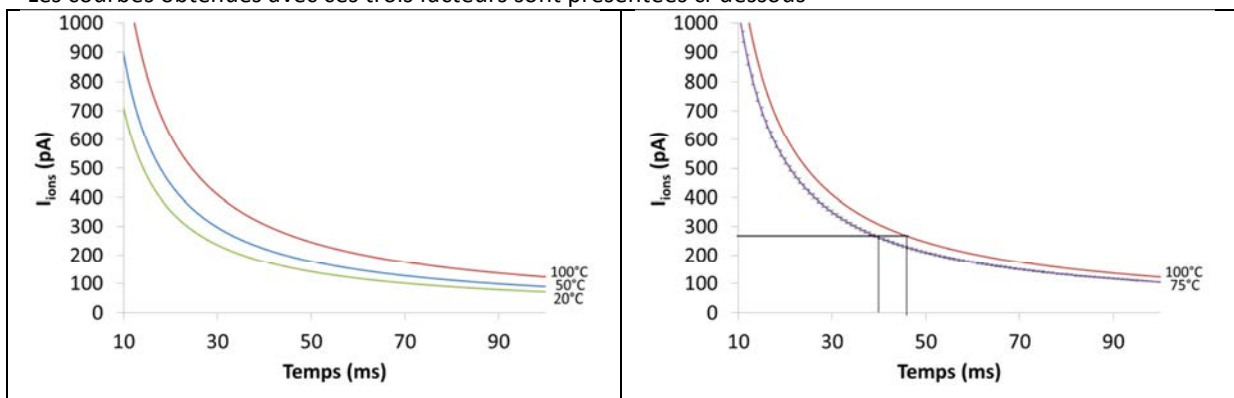
La température diminue le coefficient de recombinaison : la variation du facteur de recombinaison est donnée dans Phillips, 1910 :



Le coefficient de recombinaison est déterminé par le produit entre la valeur du coefficient prise à 20 °C et le facteur de correction thermique. Ce dernier peut être approximé par une loi de puissance
 Les valeurs de coefficient pour 20°C, 50°C et 100°C sont données dans le tableau suivant :

T (°C)	α ($10^{-6} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)
20	1,6
50	1,2
100	0,87

Les courbes obtenues avec ces trois facteurs sont présentées ci-dessous



Pour un temps de parcours constant, le courant d'ion augmente à température croissante. Par ailleurs, nous pouvons remarquer que le courant à 75 °C et 40 ms est proche du courant à 100°C et 45 ms

d) Effet de la densité initiale

Le second paramètre critique est la densité initiale :

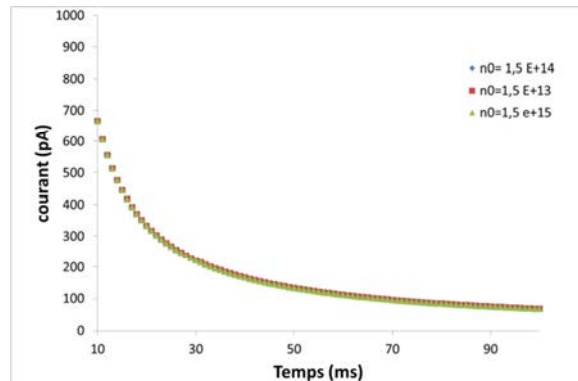
Les deux hypothèses suivantes sont étudiées :

- les ions sont répartis homogènement dès la sortie de la décharge
- les ions sont répartis homogènement plus tard (exemple en post-réacteur)

dans le cas où les ions sont homogènes en sortie de décharge : densité initiale = $I_{\text{décharge}}/eQ$

Choix :

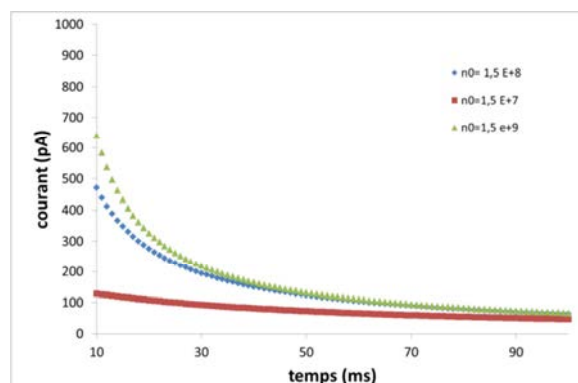
$n_0 \text{ (cm}^{-3}\text{)}$	
$1,5 \cdot 10^{14}$	Référence
$1,5 \cdot 10^{15}$	$\times 10$
$1,5 \cdot 10^{13}$	/10



Il n'y a pas d'effet notable du courant d'ions en post-décharge sous l'effet d'une variation de densité.

Dans le cas d'une homogénéisation en densité plus faible : exemple en post-réacteur (après 1 ms) on obtient :

$n_0 \text{ (cm}^{-3}\text{)}$	
$1,5 \cdot 10^8$	Référence
$1,5 \cdot 10^9$	$\times 10$
$1,5 \cdot 10^7$	/10



Effet de la densité initiale sur le courant d'ions mesuré en sortie : $n_0 \nearrow \rightarrow I \nearrow$

Pour des temps suffisamment longs (>90 ms): plus d'écart notable.

11.2. Diffusion

a) Théorie :

$$\frac{dn}{dt} = -\text{div}(n\vec{v}) \text{ et } \vec{v} = -D \left(\frac{\text{grad}(T)}{T} + \frac{\text{grad}(n)}{n} \right)$$

On obtient :

$$\frac{dn}{dt} = \frac{k_B}{m} \left(\text{div} \left(n \frac{\text{grad}(T)}{v} \right) + \text{div} \left(T \frac{\text{grad}(n)}{v} \right) \right)$$

Par analyse dimensionnelle :

$$\frac{n}{t} = \frac{k_B}{m} \left(\frac{1}{d} \left(\frac{nT}{d v} \right) + \frac{1}{d} \left(T \frac{n}{d v} \right) \right)$$

D'où le temps caractéristique de diffusion :

$$t_{\text{diff}} = \frac{d^2}{D_{\text{ions}}} \quad 9-1$$

avec t_{diff} (s) le temps caractéristique de diffusion ; d (m) dimension caractéristique du tube (diamètre) et D_{ions} ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) le coefficient de diffusion

il est plus simple de parler en terme de pénétration :

Formule empirique de la pénétration dans un tube (Hinds, 1982):

soit le paramètre adimensionnel $\mu = \frac{DL}{Q}$; avec D le coefficient de diffusion ; L la longueur du tube ; Q le débit de gaz

$$\text{si } \mu < 0,007 : Pn = \frac{n}{n_0} = 1 - 5,50\mu^{\frac{2}{3}} + 3,77\mu$$

$$\text{si } \mu > 0,007 : Pn = \frac{n}{n_0} = 0,819 \exp(-11,5\mu) + 0,0975 \exp(-70,1\mu) + 0,0325 \exp(-179\mu)$$

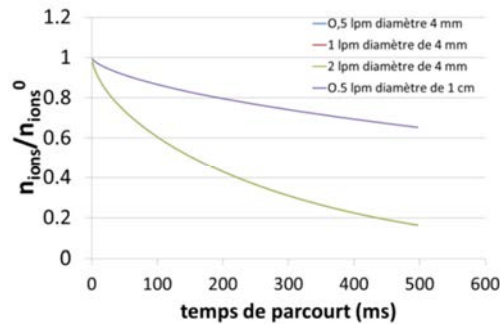
Ici, je fais l'hypothèse que le transport s'effectue dans un tube cylindrique de diamètre $d_{\text{tube}} = 4 \text{ mm}$.

Le paramètre μ est déterminé via le temps de parcours :

$$L = \frac{4Qt}{\pi d^2} \Rightarrow \mu = \frac{DL}{Q} = \frac{4Dt}{\pi d^2}$$

Le coefficient de diffusion est calculé à partir de la relation d'Einstein entre la mobilité des charges et le coefficient de diffusion.

- Sur les ions positifs ; $Z^+ = 1,4 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \Rightarrow D^+ = 3,54 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
- Sur les ions négatifs ; $Z^- = 1,7 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \Rightarrow D^- = 4,3 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$

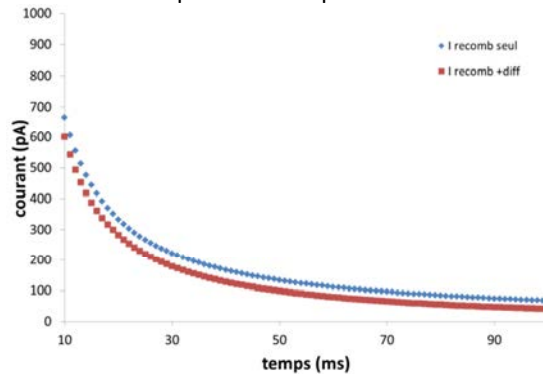


Il est possible de combiner la recombinaison et la diffusion sous la forme :

$$n(t) = n^{\text{recombinaison}}(t) \times Pn(t)$$

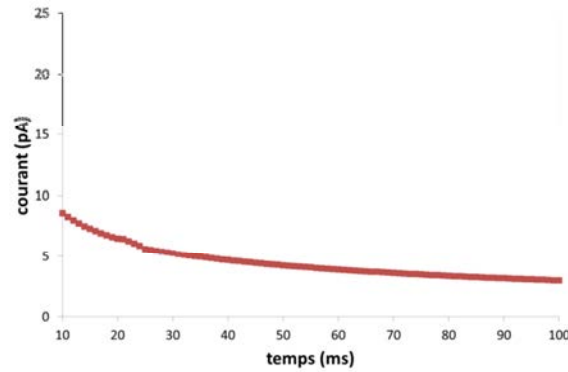
b) Application à un cas particulier : $I(t)$ comparer avec et sans la diffusion

Sur la figure ci-dessous sont tracés les courants d'ions en fonctions du temps pour la recombinaison seule et pour la recombinaison couplée à la diffusion pour les ions positifs



- Courant diminue à cause de la diffusion de 3 % à 1 ms à 90 % pour 500 ms ($50\% \text{ } t \gtrsim 100 \text{ ms}$).

Les pertes par diffusion sur les + et les – sont différentes : $I_{net} = f(t)$:



- Le courant net est positif
- Le courant net représente 0 à 10% du courant unipolaire

Exemples :

- I_+ (10 ms)=600 pA , $I_{net} = 10$ pA : 1,7 %
- I_+ (40 ms)=128 pA , $I_{net} = 4,7$ pA : 3,7 %
- I_+ (100 ms)=40 pA , $I_{net} = 3$ pA : 7,5 %

11.3. Perte électrostatique

Inclure un faible écart de densité entre ions positifs et négatifs (qui induit les pertes électrostatiques) rend la formule intégrée de la recombinaison fautive et il est nécessaire d'utiliser une méthode de calcul numérique. Pour cette raison, je n'ai considéré ici que les pertes électrostatiques seules.

$$\frac{dn}{dt} = -\text{div}(n\vec{v}) \text{ et } \vec{v} = -Z\vec{E}$$

D'où :

$$\frac{dn}{dt} = -\text{div}(nZ\vec{E})$$

Par analyse dimensionnelle on obtient :

$$\frac{n}{t} \sim \frac{(nZE)}{d}$$

Ainsi on obtient le temps caractéristique :

$$t_{elec} = \frac{d}{Z_{ions} E_{pertes}}$$

2 cas :

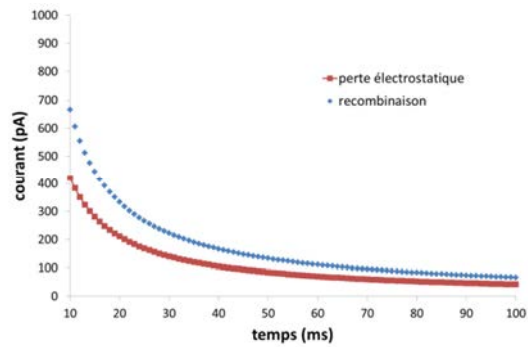
- Nuage purement unipolaire ou très inhomogène
- Nuage purement homogène $n_i^+ \sim n_i^-$

Théorie : formule intégrée : Whitby :

$$n = \frac{n_0}{1 + n_0 \frac{eZ}{\epsilon_0} t} = \frac{n_0}{1 + \beta n_0 t}$$

Dans le cas $n_i^+ \sim n_i^-$ homogène, il n'y a pas de perte électrostatique.

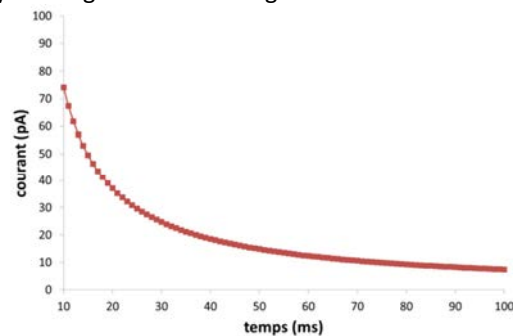
Cas d'un nuage purement homogène positif : les + dans le gaz et les – en surface



- Les pertes électrostatiques sous hypothèse qu'elle ne découle que de la charge d'espace sont supérieures à la recombinaison homogène

Ecart entre ions négatif et ions positif : I_{net} moyen :

Hypothèse : les nuages se comportent comme des nuages d'ions séparés sans interaction, et l'on suppose que le I_{net} mesuré est le courant moyen intégré sur ces 2 nuages



- Courant net de l'ordre de la dizaine de pA
- Le courant net représente 15 à 20% du courant unipolaire

Exemples :

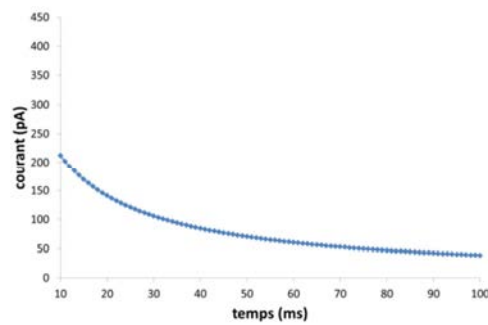
I_+ (10 ms)=420 pA , $I_{\text{net}} = 74$ pA : 18 %

I_+ (40 ms)=105 pA , $I_{\text{net}} = 18,5$ pA : 18 %

I_+ (100 ms)=42 pA , $I_{\text{net}} = 7,2$ pA : 17 %

-

Test : hypothèse : sortie de réacteur $I_{\text{net}} = 18\%$ d' I_+

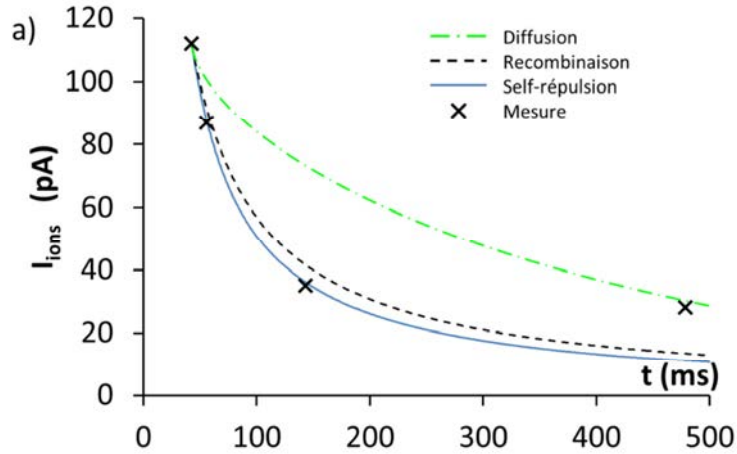


- Ordre de grandeur : 50 à 200pA → 30 à 60 % des courants unipolaires

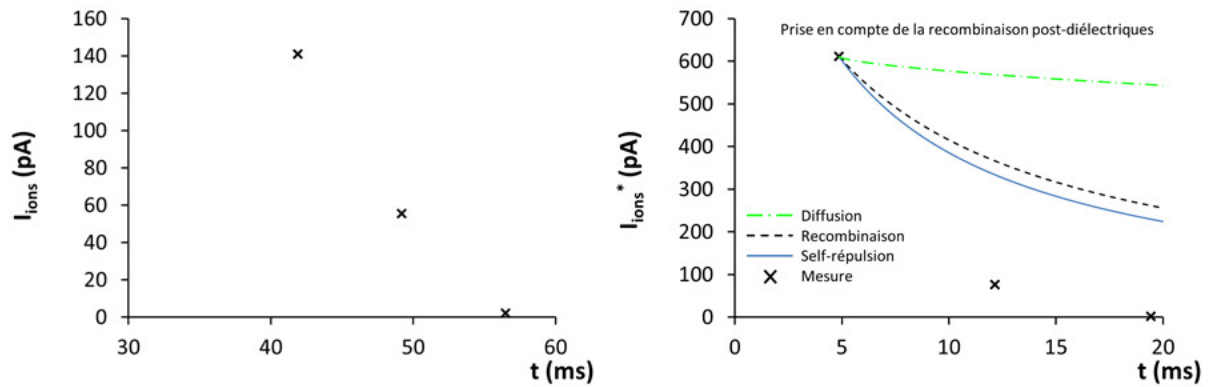
11.4. Bilan

Ci-dessous, la comparaison des courants d'ions positifs mesurés en post-DBD selon le temps de transit avec les calculs de pertes présentés ci-dessus pour un temps de transit contrôlé par :

1) le débit de gaz à géométrie fixe (cf. Figure V-8a)



2) la variation de la longueur de l'espace inter-diélectriques (cf. Figure V-7). Sont présentées sur la figure (a) les valeurs brutes mesurées et (b) les valeurs extrapolées en sortie de diélectriques en prenant (en compte les pertes par recombinaison entre la sortie des diélectriques et la mesure dans un temps constant de 38 ms) et les pertes théoriques dans les diélectriques en partant du premier point de mesure.



Ces comparaisons entre mesure et calcul sont discutées au § V.5.

Annexe 12 : Écarts de granulométrie induits par les distributions de charge

Ce paragraphe vise à quantifier par le calcul les conséquences sur la granulométrie reconstruite d'un écart de distribution de charge (entre les distributions réelles de l'aérosol par diamètre et celles utilisées pour inverser les données mobilités-diamètres). En effet, dans le paragraphe VI.3.4, l'algorithme d'inversion de données basé sur les distributions de charges de Wiedensohler sera conservé pour reconstruire les granulométries des aérosols mesurées avec le neutraliseur post-DBD (malgré une charge moyenne en post-neutraliseur DBD différente de la loi de Wiedensohler).

Le calcul est composé de trois étapes :

- Définition d'un aérosol présentant une distribution de taille log-normale.
- Calcul des distributions de mobilité de l'aérosol défini ci-dessus à l'aide des lois de distribution de charge (Boltzmann et Wiedensohler).
- Inversion de la distribution de mobilité en une distribution granulométrique à l'aide de la loi de charge de Wiedensohler utilisée dans les granulomètres.

La fig. 10 représente les granulométries obtenues avec une loi d'inversion basée sur une distribution de charge de Wiedensohler appliquée à un même aérosol monodispersé de 588 nm et d'écart-type géométrique de 1,2 qui est chargé soit selon la loi de Wiedensohler (centré sur -0,7 charges) soit selon la loi de Boltzmann (charge moyenne nulle).

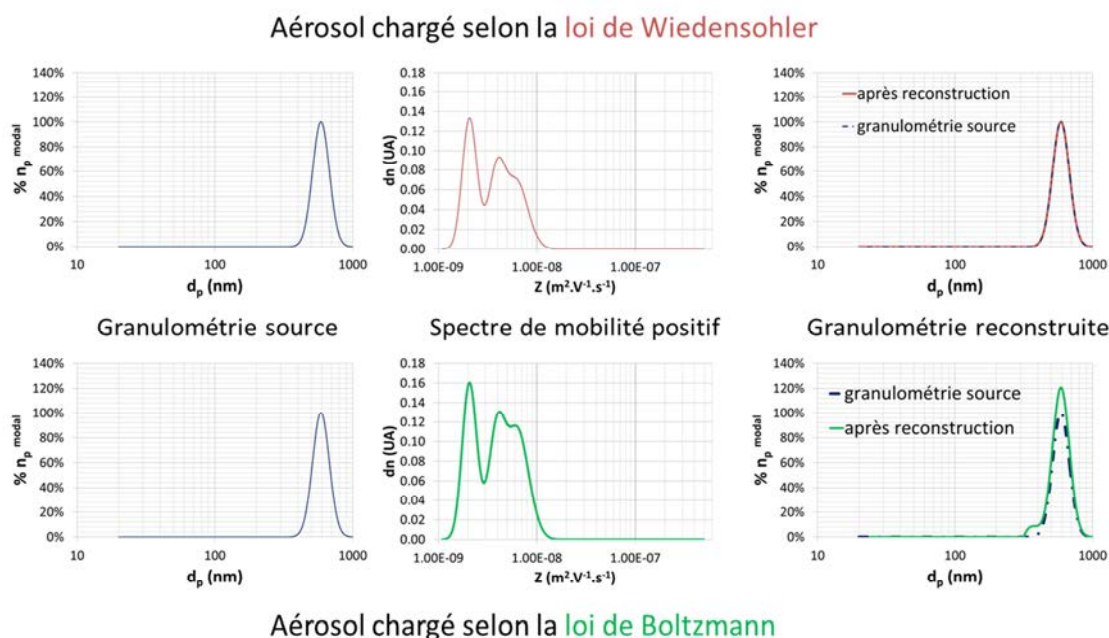


fig. 10: effet de la charge moyenne sur la distribution de taille reconstruite

La granulométrie obtenue avec un aérosol chargé suivant la loi de charge de Wiedensohler est identique à la granulométrie source, ce qui valide notre calcul. La granulométrie obtenue avec un aérosol chargé suivant la loi de Boltzmann présente le même mode mais comporte deux différences par rapport à la granulométrie source : la hauteur du mode principal est supérieure à la hauteur du mode de la granulométrie source et un épaulement pour les diamètres inférieurs. Pour ce test, l'écart sur la hauteur de mode est de l'ordre de 20%. La hauteur de l'épaulement n'excède pas 10 % de la valeur du mode et peut donc être négligé.

Dans un second temps, le calcul est testé pour deux aérosols uni-modaux (fig. 11) :

- un aérosol de diamètre modal 50 nm et d'écart type géométrique de 1,7 ;
- un aérosol de diamètre modal 300 nm et d'écart type géométrique de 1,48.

Ces distributions granulométriques simulent les distributions présentées dans le §VI.3.4.1 décrivant les mesures d'aérosols uni-modaux. Les aérosols sont chargés selon la loi de Boltzmann et l'inversion de donnée est basée sur la loi de Wiedensohler.

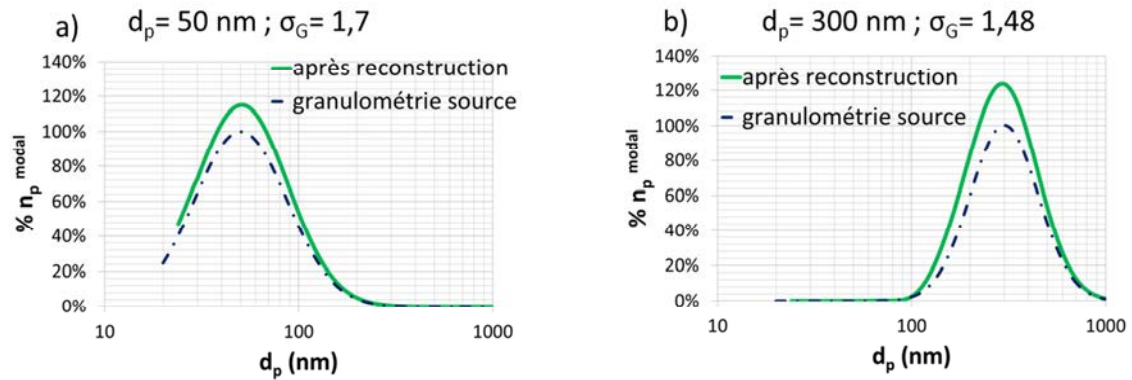


fig. 11: granulométrie d'aérosol unimodal : a) $d_p = 50 \text{ nm}$; $\sigma_G = 1,7$ et b) $d_p = 300 \text{ nm}$; $\sigma_G = 1,48$ chargés selon la loi de Boltzmann avec inversion de donnée basée sur la loi de Wiedensohler

Comme dans le cas d'aérosols monodispersés, le décalage de la charge moyenne vers des valeurs positives par rapport à la charge moyenne prévue par Wiedensohler conduit à une augmentation de la hauteur du mode. Dans le cas de l'aérosol unimodal, il n'y a plus d'épaulement sur la distribution de taille (comme pour les cas d'aérosols monodispersés), mais la granulométrie présente un décalage vers les diamètres plus fins. Toutefois, l'écart entre les diamètres modaux d'origine et calculé est inférieur à 2% entre un aérosol chargé selon la loi de Boltzmann et selon la loi de Wiedensohler.

En conclusion, les granulométries obtenues avec une charge moyenne d'aérosol supérieure plus élevée pour le mode principal. Les écarts de distribution de charge entraînent un défaut de correction des modes multichargés de la distribution de mobilité qui se traduit par la présence d'un épaulement pour un aérosol monodispersé et par un décalage vers les diamètres plus fins pour un aérosol unimodal. L'écart de diamètre qui en découle, dans le cas d'un aérosol unimodal, reste inférieur à 2%.

Liste des communications

Ces travaux de thèses ont donné lieu aux différentes communications données ci-dessous :

ARTICLES DANS DES REVUES INTERNATIONALES (AVEC COMITE DE LECTURE) :

R. Mathon, N. Jidenko and J.P. Borra : « Ozone-free post-DBD aerosol bipolar diffusion charger: evaluation as neutralizer for SMPS size distribution measurements » *Aerosol science and technology* (soumis)

PARTICIPATION A DES CONFÉRENCES (AVEC COMITE DE LECTURE)

R. Mathon, N. Jidenko and J.-P. Borra : « Similar DMA aerosol size measurements with Krypton and post-DBD neutralizers » POSTER Aerosol technology 2015, P12

R. Mathon, N. Jidenko and J.-P. Borra : « Caractérisation d'un neutraliseur en post décharge a barrière diélectrique » Congès Français des aérosols 2015 (6 pages)

R. Mathon, N. Jidenko and J.-P. Borra: « Bipolar ions extraction from dielectric barrier discharge » 20th international conference on gas discharges and their application, pp 255-258

R. Mathon, N. Jidenko and J.-P. Borra : « Caractérisation d'un neutraliseur en post décharge a barrière diélectrique » Congès Français des aérosols 2014 (6 pages)

COMMUNICATIONS AVEC LE PARTENAIRE INDUSTRIEL DE L'ÉTUDE

J.-P. Borra, R. Mathon and N. Jidenko : Palas meeting, Karlsruhe, 24 March 2015

J.-P. Borra, R. Mathon and N. Jidenko : «Optimization of aerosol particles diffusion charging using DBD ionization. » First intermediate report

J.-P. Borra, R. Mathon and N. Jidenko : Palas meeting, Gif-sur-Yvette, 26 november 2013

COMMUNICATIONS SANS COMITE DE LECTURE :

R. Mathon, N. Jidenko and J.-P. Borra : « Neutralisation d'aérosol par Décharge à Barrières Diélectriques » Journée du LPGP 2015, ORSAY.

R. Mathon, N. Jidenko and J.-P. Borra : « Concentration d'ions en sortie de décharge à barrière diélectrique », POSTER EDOM 2014,

R. Mathon, N. Jidenko and J.-P. Borra : « Décharges à Barrières Diélectriques à pression atmosphérique pour la neutralisation d'aérosols » Journée de l'EDOM 2014

COMMUNICATIONS INTERNES :

R. Mathon, : « Résumé des résultats sur les courant d'ions » avril 2014

R. Mathon, : « Résumé des résultats d'avril 2012 à juin 2013 », Juillet 2013

R. Mathon, : « problématique de l'étude », Juillet 2013

R. Mathon, : « Caractérisation électrique de DBD dans l'air ambiant sans flux », Avril 2013

DÉCHARGES À BARRIÈRES DIÉLECTRIQUES À PRESSION ATMOSPHÉRIQUE POUR LA CHARGE BIPOLAIRE D'AÉROSOL

Mots clés : Décharge à Barrières Diélectriques, Aérosol, chargeur d'aérosol, Charge bipolaire
Plasma froid, charge par diffusion

La mesure de distribution de taille d'un aérosol (particules solides ou liquides en suspension dans un gaz) par analyse de mobilité électrique nécessite de neutraliser l'aérosol. La neutralisation consiste à conférer une distribution de charge centrée sur zéro obtenue par la diffusion sur l'aérosol d'ions bipolaires. Nous avons démontré la faisabilité d'un chargeur bipolaire post-Décharge à Barrières Diélectriques (DBD) pour remplacer les neutraliseurs radioactifs, généralement utilisées pour la production d'ions bipolaires et soumis à des contraintes législatives. La caractérisation électrique des DBD en géométrie « fil-fil » selon la distance inter-électrodes, la tension et le débit a permis de mettre en évidence trois types d'auto-organisations des filaments selon la tension et d'évaluer le courant de décharge, c'est-à-dire la production par la décharge d'espèces chargées par unité de temps. Dans la géométrie et les conditions de fonctionnement choisies, des méthodes de mesure des flux d'ions en post-décharge ont alors été développées. Nous avons ainsi confirmé que la fraction d'ions extraits de l'espace inter-électrodes résulte d'une compétition électro-hydrodynamique qui dépend de l'auto-organisation des filaments. En effet, les densités d'ions positifs et négatifs en post-DBD, ainsi que le rapport entre ces densités, critiques pour la charge d'aérosols, sont contrôlés par les champs électriques et le temps de transit des ions en post-décharge. Dans le chargeur post-DBD, les densités d'ions sont décroissantes. Toutefois, cette décroissance n'affecte pas les distributions de charges des aérosols qui sont constantes pour chaque taille quelle que soit la concentration d'aérosol. Dans ces conditions, les granulométries mesurées en post-neutraliseurs radioactif et DBD sont comparées afin de prouver que le neutraliseur post-DBD est viable pour la granulométrie des aérosols submicroniques.

ATMOSPHERIC PRESSURE DIELECTRIC BARRIER DISCHARGE FOR AEROSOL BIPOLAR CHARGING

Keywords : Dielectric barrier discharge, aerosol, aerosol charger, atmospheric pressure
electrical discharge, nonequilibrium plasma diffusion charging

The measurement of the size distribution of an aerosol (solid or liquid particles in suspension in a gas) by electrical mobility analyses requires the neutralization of the aerosol. Neutralization consists in imparting a charge distribution with a mean charge of 0 by the diffusion of bipolar ions on aerosol. We prove the feasibility of a post- Dielectric Barrier Discharge (DBD) bipolar charger as an alternative to radioactive neutralizer subjected to legislative constraints. The electrical characterization of a wire-to-wire DBD versus the gap, the voltage and the flow-rate highlights 3 kinds of self-organizations of filaments versus voltage. Moreover, discharge current which represents the charged species production per unit of time is evaluated. In the chosen geometry and operating conditions, a post-discharge ions flux measurement method was developed. We confirm that an electro-hydrodynamic competition controls the extraction of ions from the gap. In fact, electric fields and transit time control positive and negative ions densities and the ratio between them which are critical for aerosol charging. For the post-DBD charger, ions densities decrease in the charging zone. However, this decrease does not affect the aerosol charge distribution for each particle size with concentration. In these conditions, the post-radioactive neutralizer and post-DBD neutralizer aerosol size measurements are compared in order to prove that the post-DBD neutralizer is available for submicronic aerosols sizing.

