

# Contribution à l'étude et à l'optimisation d'une torche à plasma à arc non transféré

Yves Marboutin

### ▶ To cite this version:

Yves Marboutin. Contribution à l'étude et à l'optimisation d'une torche à plasma à arc non transféré. Plasmas. Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II, 2012. Français. NNT : 2012CLF22256 . tel-01936340

## HAL Id: tel-01936340 https://theses.hal.science/tel-01936340

Submitted on 27 Nov 2018

**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.

Numéro d'ordre : D. U. 2256

#### MINISTÈRE de l'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEUR et de la RECHERCHE UNIVERSITÉ BLAISE PASCAL - CLERMONT-FERRAND II (U. F. R. Sciences et Technologies)

#### ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES POUR L'INGÉNIEUR

#### MANUSCRIT DE THÈSE

présenté pour obtenir le grade de

DOCTEUR D'UNIVERISTÉ (Spécialité : Électrotechnique)

#### PAR

#### Monsieur Yves MARBOUTIN

#### CONTRIBUTION À L'ÉTUDE ET À L'OPTIMISATION D'UNE TORCHE À PLASMA À ARC NON TRANSFÉRÉ

Soutenue publiquement le 10 Juillet 2012, devant la commission d'examen

Président du jury : M. DUDECK Michel Rapporteur : M. COUDERT Jean-François Rapporteur : M. HONG Dupin Directeur de thèse : M. ANDRÉ Pascal Examinateur : M. MENECIER Sébastien Examinateur : M. VACHER Damien Invité : M. VINSON Jean-Marc

## Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Pascal André, directeur du LAEPT, pour son accueil. Il m'a permis de réaliser cette thèse sur un sujet intéressant et prometteur. Je le remercie également pour sa participation au jury.

Je tiens à remercier Jean-Marc Vinson pour le soutien qu'il a apporté au projet.

Je remercie également les rapporteurs de m'avoir fait l'honneur d'évaluer le travail effectué lors de ma thèse.

Je n'oublie pas l'ensemble des membres du laboratoire, pour leur accueil durant ces trois années. Je me dois également d'ajouter mes collègues Pascal Aygalinc, Thierry Suaton et Alain Fleuret de l'IUT d'Annecy pour leur aide et leur soutien précédent l'échéance.

Je tiens également à remercier François Chagny, qui s'est occupé de moi à mon arrivée au laboratoire et avec qui j'ai partagé mes premières années de thèse.

Un grand merci à Cyrille Achard et Thierry Latchimy, technicien et ingénieur au laboratoire, pour leur aide sans faille tout au long de ma thèse. Je remercie également Régine Vieville pour son soutien administratif et moral.

Merci à Thomas Parisot, ATER deux années au LAEPT avec qui j'ai partagé mon bureau, évidemment le siège de nombreuses et intéressantes discussions.

Pour finir, je tiens à remercier tout particulièrement les deux acolytes du LAEPT, j'ai nommé MM. Menecier et Vacher, pour leurs soutien et encouragements (pas toujours faciles à discerner!) durant ces trois années. Votre détermination dans l'aboutissement de ce projet m'a été d'une grande aide. Sans parler de vos compétences, vous m'avez apporté durant ces trois années bien plus que des relations professionnelles... Merci à vous!

## Table des matières

1	Introduction						
2	Plas	sma et	rayonnement				
	2.1	Propri	étés des plasmas				
	2.2	Diagno	ostics des plasmas par spectrométrie d'émission optique				
		2.2.1	Généralités sur le rayonnement				
		2.2.2	Phénomènes d'élargissement des raies spectrales				
		2.2.3	Détermination de la température par la méthode de l'intensité abso-				
			lue des raies spectrales				
		2.2.4	Détermination de la densité électronique				
			2.2.4.1 Modélisation d'une raie atomique				
			2.2.4.2 Modèles pour la détermination de la densité électronique .				
3	Disp	oositif e	expérimental				
	3.1	Torche	e à plasma				
		3.1.1	Principe				
		3.1.2	Torche à plasma LAEPT				
			3.1.2.1 Forme et matériaux des électrodes				
			3.1.2.2 Stabilisation de l'arc				
		3.1.3	Alimentation électrique				
		3.1.4	Refroidissement et génération des gaz				
	3.2	2 Dispositif de mesures					
		3.2.1	Acquisitions spectrales				
			3.2.1.1 Spectromètre				
			3.2.1.2 Étalonnage				
		3.2.2	Contrôles sous Labview				
	3.3	Condit	tions expérimentales				
4	Cara	actérisa	ition de la torche à plasma vapeur				
	4.1	Comp	osition du plasma				
	4.2	Estima	ation de la température du plasma argon/vapeur				
		4.2.1	Conductivité électrique				
		4.2.2	Enthalpie massique				
		4.2.3	Mesures spectrométriques				
			4.2.3.1 Profil d'intensité intégrée et étalonnée				

	4.2.3.2 Profil de température	75							
4.3	Estimation de la densité électronique	83							
4.4	.4 Équilibre chimique								
	4.4.1 Vérification de l'équilibre chimique.	86							
	4.4.2 Généralités sur les écoulements	87							
	4.4.3 Application au mélange gazeux argon/vapeur	88							
4.5	Perspectives	90							
Conclusion									

### References

100

## Chapitre 1

## Introduction

Le Laboratoire Arc Électrique et Plasmas Thermiques développe différents sujets de recherche, notamment des études sur les torches à plasma d'arc non transféré. Ce projet a vu le jour dans le cadre de la production d'hydrogène par thermolyse plasma. Il consiste en la décomposition chimique de molécules par la chaleur. Donc, à partir d'un plasma constitué de vapeur d'eau, il est possible de dissociser la molécule  $H_2O$  en H et O.

L'hydrogène est considéré comme un excellent vecteur énergétique car il présente de multiples avantages :

- il est peu polluant;
- son pouvoir calorifique est trois fois supérieur à ceux des carburants classiques;
- il peut être stocké;
- son utilisation est très souple.

Ces deux derniers critères sont des atouts très recherchés pour la production d'énergie électrique. Celle ci est aisément modulable, mais en revanche, elle est très difficile à stocker, en termes d'efficacité énergétique et de coût. Localement, la production d'électricité à partir d'hydrogène, grâce à une pile à combustible par exemple, pourrait servir à la stabilisation du réseau électrique. Le couplage d'énergie renouvelable sur le réseau électrique le soumet à des fluctuations directement liées au caractère difficilement prévisible et décorrélé de la production par rapport à la consommation. En plus de la stabilisation du réseau électrique, l'hydrogène permet également l'alimentation de sites isolés. Il est également très intéressant dans les applications mobiles.

L'énergie de l'hydrogène peut être récupérée par combustion directe ou avec des piles à combustibles pour être transformé en électricité. Autre avantage, il constitue l'élément le plus présent sur notre planète, mais sous forme liée à la molécule d'eau. L'enjeu est donc de l'extraire de cette molécule. Il existe plusieurs points d'approche dans la filière hydrogène constitués de la production, du stockage, du transport et de la distribution. Le thème de recherche du LAEPT se situe dans la partie production.

Il existe différentes technologies permettant la production d'hydrogène et pour répondre à une production de masse nécessaire à son utilisation comme vecteur énergétique. Son coût de production doit être faible afin de le rendre compétitif et son moyen de production doit être non polluant pour ne pas perdre cet avantage.

Actuellement l'hydrogène est peu utilisé au niveau énergétique, sa principale utilisation étant l'industrie chimique. Il est produit à 95 % à partir d'énergie fossile par reformage. Cette méthode consiste à casser les molécules d'hydrocarbure et à libérer ainsi l'hydrogène. L'inconvénient de cette méthode, outre l'emploi d'énergie fossile est de générer du  $CO_2$ . Ces inconvénients deviennent rédhibitoires pour une forte production d'hydrogène en vue d'être utilisé comme vecteur d'énergie. De plus, une augmentation de 60% de la production actuelle serait nécessaire.

D'autres moyens de production [CEA 05] existent comme l'électrolyse qui sous l'action d'un courant électrique permet de dissocier la molécule  $H_2O$  en oxygène et hydrogène. L'électrolyse haute température permet d'atteindre de meilleurs rendements que l'électrolyse simple. Des études sont en cours en couplant ce moyen de production aux futures centrales nucléaires haute température.

La gazéification de la biomasse permet de produire de l'hydrogène. Il suffit de séparer l'hydrogène du monoxyde de carbone.

Une autre méthode consiste à la décomposition de la molécule  $H_2O$  par cycle thermochimique.

Sous l'effet de la chaleur, la molécule  $H_2O$  est également dissociée : il s'agit de la thermolyse de l'eau. L'apport de chaleur peut être réalisé par une torche à plasma. C'est en 2004 que cette thématique de recherche est apparue au LAEPT portée par le Professeur Pascal ANDRÉ en collaboration avec le CEA de Cadarache dont le chargé de mission est J.M. VINSON. L'idée repose sur une comparaison énergétique : l'énergie globale consommée pour la dissociation de la molécule d'eau représente 480 MJ pour récupérer un kg de  $H_2$ . Par exemple, la production d' $H_2$  par électrolyse consomme 205 MJ. Or la recombinaison de  $H_2$  avec  $O_2$  est accompagnée d'un dégagement de chaleur qui, si son énergie est récupérée en totalité, permettrait d'atteindre une énergie de dissociation nécessaire de 3,4 MJ pour 1 kg de  $H_2$ .

La première étape fut la validation théorique de la viabilité d'un tel procédé dans le contexte de production énergétique. Cette étude a débuté avec la thèse de M. Chagny en 2005, porteur du projet au sein du laboratoire. À cette époque, une étude de marché financée par un Fond régional pour l'Innovation et réalisée par la société *OptiCroissance* a placé à un niveau prometteur ce procédé industriel. Un deuxième Fond régional pour l'Innovation (CEA, FEDER, région Auvergne) a permis au responsable du projet de poursuivre cette étude.

À cause de verrous technologiques, la première partie de l'étude se déroula sur un plasma constitué d'argon et d'air.

Mon arrivée au laboratoire en 2008 correspond à la mise en place d'expérimentation sur un plasma formé d'argon – air. La suite des travaux sur ce projet correspond à la caractérisation d'un gaz plasmagène constitué de vapeur d'eau et d'argon. De fortes modifications de l'espace expérimental ont été nécessaires afin de s'adapter à un mélange gazeux explosif et instable. Avec l'aide de M. Achard, technicien, M. Latchimy, ingénieur d'étude, M. Chagny et M. Parisot, ATER au laboratoire, ces lourdes évolutions matérielles en vue d'assurer la sécurité ont pu être réalisées, comme la mise en place d'une enceinte et de détection de gaz explosif, ou encore la mise en place de la partie commande et acquisition sous *Labview*. Les mesures et exploitations spectrométriques sur ce nouveau plasma vapeur – argon ont été effectuées avec MM. Vacher et Menecier, Maîtres de Conférences au laboratoire.

Le premier chapitre est consacré à la présentation des notions théoriques nécessaires à l'exploitation des diverses expérimentations réalisées. En premier lieu, l'étude du plasma a été réalisée dans des conditions d'équilibres chimique et thermique. En partant de cette hypothèse, les compétences du LAEPT permettent de caractériser théoriquement le plasma formé de vapeur d'eau.

Le changement de composition du gaz plasmagène a nécessité des aménagements de l'expérimentation et de nombreuses phases de réglages. Le deuxième chapitre décrit l'ensemble du matériel utilisé lors des expérimentations exploitées dans le troisième chapitre.

Le dernier chapitre voit la caractérisation du plasma constitué de vapeur et d'argon. Cette caractérisation passe par la détermination de différents paramètres tels que la conductivité électrique, l'enthalpie massique, la température ou encore la densité électronique. L'obtention de ces paramètres est réalisée par comparaison entre les mesures expérimentales et le calcul théorique, dans le cas d'un plasma à l'équilibre thermique et chimique. Pour cela, deux approches différentes sont présentées permettant de conclure sur la validité de l'équilibre chimique et thermique du plasma.

Enfin, la présentation des perspectives termine ce manuscrit.

## Chapitre 2

## Plasma et rayonnement

Dans ce chapitre, les éléments théoriques nécessaires à l'exploitation des essais réalisés lors de ce travail de thèse sont présentés. Ces rappels s'articulent autour de deux points : caractérisation et diagnostics des plasmas.

### 2.1 Propriétés des plasmas

La matière peut se présenter dans quatre états différents; solide, liquide, gaz et plasma Le plasma se définit comme un gaz ionisé constitué d'atomes, de molécules, d'ions et d'électrons, le tout étant supposé électriquement neutre. Selon le domaine de pression et de température, les plasmas peuvent être classés selon trois types :

- Plasma froid : à faible pression et souvent hors équilibre thermique
- Plasma thermique : proche de la pression atmosphérique et à température modérée
- Plasma chaud : totalement ionisé et à température élevée, de l'ordre de  $10^5$  K

Dans le cadre de cette étude, le plasma généré par le plasmatron se classe dans les plasmas de type thermique, caractérisés par un fonctionnement proche de la pression atmosphérique  $(10^4 - 10^6 \text{ Pa})$  et à une température comprise entre 5000 et 25000 K [Fauchais 96].

Par définition, un plasma est dit à l'état d'équilibre thermodynamique si les deux conditions d'équilibre, chimique et thermique sont satisfaites.

Les grandeurs définissant son état, telles que la température et la concentration, doivent avoir les caractéristiques suivantes :

- L'équilibre chimique signifie que toute réaction chimique est compensée par la réaction inverse : la concentration des espèces ne varie pas dans le temps
- L'équilibre thermique signifie que toutes les températures du plasma (définies ciaprés) sont identiques et constantes

Le plasma peut être caractérisé à l'état microscopique par le biais de variables macroscopiques (température) en utilisant les lois statistiques. Ainsi, plusieurs types d'équilibre peuvent être atteints en considérant des températures différentes résultant de fonctions de distribution particulières :

– Une distribution maxwellienne des vitesses de chaque espèce du plasma définissant une température cinétique (ou de translation). Les échanges d'énergies cinétiques étant proportionnels au rapport des masses des espèces, il va pouvoir etre défini, dans le cas d'un plasma, une température cinétique pour les électrons  $(T_e)$  et une température cinétique pour les espèces lourdes  $(T_h)$ :

$$T_e = \frac{\overline{m_e v_e^2}}{3k}, \quad T_h = \frac{\overline{m_h v_h^2}}{3k}$$
(2.1)

avec  $m_e$  et  $m_h$  respectivement la masse d'un électron et d'une particule lourde,  $v_e$  et  $v_h$  leur vitesse.

L'équilibre de translation est réalisé lorsque  $T_e = T_h$ .

- Une distribution de Boltzmann pour le peuplement des niveaux internes d'un atome définissant une température d'excitation atomique  $(T_{exc})$ :

$$n_{j,u} = n_j \frac{g_{j,u}}{Z_j(T_{exc})} \exp\left(-\frac{E_u}{kT_{exc}}\right)$$
(2.2)

avec  $n_j$  la densité de l'espèce j au niveau d'énergie  $E_u$ ,  $g_j$  la dégénérescence du niveau j et  $Z_j(T_{exc})$ , la fonction de partition à la température d'excitation.

Dans le cas des molécules interviennent les températures d'excitation diatomique  $(T_{exc\ diat})$ , de rotation  $(T_{rot})$  et de vibration  $(T_{vib})$ . L'équilibre des modes internes est réalisé lorsque toutes ces températures sont égales  $T_{exc} = T_{exc\ diat} = T_{rot} = T_{vib}$ .

- L'équilibre des réactions d'ionisation est donné par les lois d'action de masse pour les gaz moléculaires. Cette loi introduit la notion de constante d'équilibre  $K^o(T)$ , qui dépend des activités  $a_{i,eq}$  des produits et réactifs ainsi que de leurs coefficients stœchiométriques  $\nu_i$ .
- Une distribution spectrale du rayonnement qui suit la loi de Planck définissant une température de radiation  $(T_{rad})$ .

$$K^{o}(T) = \prod_{i} a_{i,eq}^{\nu_{i}} \tag{2.3}$$

L'équilibre d'ionisation est atteint lorsque les processus d'ionisation d'une espèce sont contrebalancés à chaque instant par les processus de recombinaison entre électrons et ions. Pour les gaz monoatomiques, l'équilibre des réactions d'ionisation est donnée par la loi de Saha-Eggert, corrigé par Griem [Griem 74] :

$$\frac{n_e n_i}{n_a} = 2 \, \frac{Z_i(T_e)}{Z_a(T_e)} \frac{(2\pi m_e k_B T_e)^{3/2}}{h^3} \exp\left(-\frac{E_i - \Delta E_i}{k_B T_e}\right) \tag{2.4}$$

avec  $n_e$ ,  $n_i$  et  $n_a$  définissant respectivement la densité électronique, de l'ion et de l'atome,  $Z_i$  et  $Z_a$  les fonctions de partitions de l'ion et de l'atome,  $E_i$  le potentiel d'ionisation de l'atome et  $\Delta E_i$  l'abaissement du potentiel d'ionisation.

La loi de Saha n'est donc utilisable que dans le cas de gaz monoatomique. Pour les gaz diatomiques, il convient d'utiliser la **loi de Guldberg-Waage** et pour les gaz moléculaires, la **loi d'action de masse**.

Le plasma est dit en Equilibre Thermodynamique Complet (ETC) lorsque toutes les fonctions de distribution sont définies par une température unique T. Ainsi, à l'ETC, toutes les températures définies précédemment sont identiques. Dans la pratique, l'ETC n'est que très rarement rencontré et on parle plutôt d'Equilibre Thermodynamique Local (ETL) qui correspond au cas de l'ETC à l'exclusion de la vérification de la loi de Planck.

## 2.2 Diagnostics des plasmas par spectrométrie d'émission optique

Pour diagnostiquer les plasmas, la spectroscopie optique d'émission est très utilisée pour plusieurs raisons. Tout d'abord, il s'agit d'un outil de diagnostic non intrusif, c'est à dire qu'il n'interagit pas avec le plasma. Les spectres acquis sont également insensibles aux perturbations électromagnétiques accompagnant le fonctionnement de la torche à plasma. La mesure peut également être en temps réel et ainsi donner une information immédiate. De plus l'appareillage à mettre en place est relativement simple.

De nombreux travaux traitent de l'exploitation de spectres d'émission et donnent accès à une large littérature, notamment [Griem 97] qui décrit les aspects théoriques et pratiques de la spectroscopie optique d'émission et [Fantz 06], article dans lequel des références sont données. Ainsi, les méthodes de détermination de deux paramètres importants dans la caractérisation d'un plasma, que sont la température et la densité électronique, sont exposées par la suite. Auparavant, il s'avère nécessaire de faire un bref rappel sur la notion d'intensité lumineuse.

#### 2.2.1 Généralités sur le rayonnement

L'intensité totale rayonnée I par un élément de surface  $\Delta A$  est l'énergie rayonnée  $\Delta E$ dans l'intervalle  $[\lambda, \lambda + \delta \lambda]$ , par unité de temps à l'intérieur d'un angle solide  $\Delta \Omega$  de direction normale  $\vec{n}$  telle que [Richter 68] :

$$I = \left(\frac{\Delta E}{\Delta t \Delta A \Delta \Omega}\right)_{\Delta t, \Delta A, \Delta \Omega \to 0} \tag{2.5}$$

en  $W.sr^{-1}.m^{-2}.$ 

A partir de cette équation, on peut définir l'intensité spectrale  $I_{\lambda}$  telle que :

$$I_{\lambda} = \left(\frac{\Delta E}{\Delta t \Delta A \Delta \Omega \Delta \lambda}\right)_{\Delta t, \Delta A, \Delta \Omega, \Delta \lambda \to 0}$$
(2.6)

en  $W.sr^{-1}.m^{-2}.nm^{-1}.$ 

Un plasma est constitué d'éléments lourds, atomes, ions, et légers, les électrons. L'émission dans un plasma provient principalement du processus suivant : les particules constituant le plasma, atomes, molécules, ions, considérées comme les particules lourdes sont excitées du niveau inférieur l au niveau supérieur u par collision avec les éléments légers, beaucoup plus mobiles, que sont les électrons. Les particules lourdes sont désexcitées et retournent au niveau l, engendrant l'émission spontanée d'un photon suivant la probabilité de transition  $A_{ul}$ , représentant le nombre de transitions permises depuis l'état u à l'état lpar seconde.

L'intensité d'émission intégrée (ou coefficient d'émission), qui s'exprime en W.sr<sup>-1</sup>.m<sup>-3</sup>, pour une raie spectrale monoatomique correspondant à la transition d'un état supérieur uà un état inférieur l s'écrit de la manière suivante :

$$\epsilon_{l\lambda} = n_{j,u} A_{j,ul} \frac{h\nu_{ul}}{4\pi}$$
(2.7)

avec :  $n_{j,u}$  la densité de particules excitées au niveau d'énergie  $E_u$ .

En considérant la distribution de Boltzmann (équation 2.8), le coefficient d'émission peut s'écrire comme suit :

$$\epsilon_{l\lambda} = \frac{1}{4\pi} \frac{hc}{\lambda_{j,ul}} A_{j,ul} n_j \frac{g_{j,u}}{Z_j(T_{exc})} \exp\left(-\frac{E_{j,u}}{kT_{exc}}\right)$$
(2.8)

L'onde lumineuse n'est pas parfaitement monochromatique (forme de Dirac) car elle subit divers élargissement spectraux. Il convient alors de définir ce que représente un profil de raie (figure 2.1).



Figure 2.1 : Représentation d'un profil de raie expérimental

- $-I_0$  représente le fond continu;
- $-I_{max}$  le pic d'intensité;
- $-\Delta\lambda$  la largeur à mi-hauteur du profil (Full Width at Half Maximum FWHM);
- $P(\lambda)$  le profil de distribution de l'intensité;
- $-\lambda_{obs}$  la longueur d'onde observée qui en pratique peut être décalée de la longueur d'onde centrale.

#### 2.2.2 Phénomènes d'élargissement des raies spectrales

Dans ce paragraphe, tous les élargissements sont donnés en Å.

Une raie observée en spectroscopie peut être déformée, déplacée à causes de nombreux phénomènes physiques. Dans ce chapitre, on montre comment la mesure des élargissements d'une raie atomique peut servir à la déduction de paramètres importants du plasma étudiée, notamment la densité électronique.

L'élargissement d'une raie spectrale, outre celui inhérent à la fonction d'appareil du dispositif analytique, a pour origine plusieurs mécanismes physiques :

#### – Élargissement naturel [Laux 03]

Il est dû au principe d'incertitude d'Heisenberg qui s'applique sur les niveaux d'énergies. Il en résulte une distribution lorentzienne des énergies de transitions. Laux et al. montre que cette contribution entraine un élargissement de la raie  $H_{\beta}$  (FWHM) de :

$$\Delta \lambda_{nat} = 3,1 \ 10^{-4} \tag{2.9}$$

#### – Élargissement collisionnel [Laux 03]

Les atomes ou particules émetteurs qui se trouvent dans un état excité peuvent collisionner avec, des atomes de même nature, de nature différente, des ions et des électrons. Les collisions entrainent des modifications des durées de vie dans les états excités, se traduisant par des élargissements des raies de transition. Ces élargissements de type lorentzien dépendent donc de la pression du gaz ou du plasma et du type de collisions.

#### – Élargissement de résonance [Laux 03]

Cet élargissement de type lorentzien survient seulement entre espèces identiques et se limite à des lignes avec le niveau supérieur ou inférieur ayant une transition dipolaire électrique (ligne de résonance) à l'état fondamental.

#### – Élargissement de van der Waals

Cet élargissement de type lorentzien est causé par des collisions avec des particules neutres qui n'ont pas de transition résonante avec la particule rayonnante.

#### – Élargissement Stark

L'élargissement stark  $\Delta \lambda_{stark}$ , de type lorentzien, est dû au champ électrique créé par les ions et électrons environnants. En pratique, ce sont les électrons qui sont responsables de la majeure partie de l'élargissement.

#### – Élargissement Doppler [Laux 03]

Cet élargissement de type gaussien résulte des vitesses d'agitation thermique des espèces rayonnantes. En considérant que le champ de vitesse de l'atome émetteur de masse molaire M suit une distribution maxwellienne avec une température caractéristique T, l'élargissement Doppler de la raie centrée autour de la longueur d'onde  $\lambda_0$ est :

$$\Delta \lambda_{doppler} = 7,16 \ 10^{-7} \ \lambda_0 \sqrt{\frac{T}{M}} \tag{2.10}$$

#### – Élargissement dû à la fonction d'appareil (Gaussien)

Le dispositif expérimental de spectroscopie contribue à un élargissement gaussien de largeur à mi hauteur appelée fonction d'appareil et notée par la suite  $\Delta \lambda_{app}$ .

### 2.2.3 Détermination de la température par la méthode de l'intensité absolue des raies spectrales

Afin de déterminer la température en un point du plasma, nous devons connaître le coefficient d'émission  $\epsilon_{l\lambda}$ . Or la mesure par spectrométrie optique d'émission nous donne une intensité intégrée le long d'une corde, le plasma étant assimilé à un cylindre de rayon R.

La méthode d'inversion d'Abel permet d'obtenir le coefficient d'émission au coeur du plasma, grandeur locale, à partir des mesures spectroscopiques [Deutsch 83, Andanson 78].

#### Inversion d'Abel



Figure 2.2 : Schéma représentant le plasma et la visée optique

On peut voir sur cette figure que l'acquisition optique intègre une corde du plasma (révolution cylindrique).

Sur la figure suivante, une coupe du plasma montre le coefficient d'émission  $\epsilon(r)$  que l'on cherche à obtenir.



Figure 2.3 : Vue en coupe du plasma représenté par un cylindre

Si le plasma est supposé optiquement mince, l'intensité mesurée I(y) s'exprime suivant la relation suivante :

$$I(y) = \int_{-x_1}^{x_1} \epsilon_{l\lambda}(r) dx = 2 \int_{0}^{x_1} \epsilon_{l\lambda}(r) dx$$
(2.11)

en posant  $x^2 + y^2 = r^2$ , on obtient :

$$I(y) = 2 \int_{r}^{R} \frac{\epsilon_{l\lambda}(r)rdr}{\sqrt{r^2 - y^2}}$$

$$(2.12)$$

De l'équation 2.12 on peut en déduire le coefficient d'émission :

$$\epsilon_{l\lambda}(r) = -\frac{1}{\pi} \int_{r}^{R} \frac{dI(y)}{dy} dy \qquad (2.13)$$

Une méthode de résolution numérique consiste à approximer l'intensité I(y) par un polynôme de degré 6 puis à résoudre par la méthode d'intégration de Gauss-Legendre et ainsi obtenir  $\epsilon_{l\lambda}$ .

La méthode employée ici pour l'exploitation des résultats expérimentaux est la **méthode** géométrique.

Une section de rayon R normale à l'axe de symétrie du plasma est divisée en anneaux concentriques. De plus, la section est partagée en bande de visée (1, 2, 3, 4 et 5 dans cet

#### 2.2 Diagnostics des plasmas par spectrométrie d'émission optique

exemple) dont la largeur correspond à la largeur de la visée du système optique. L'intersection des anneaux et des bandes de visées forme des portions d'anneaux, hachurées et notées A, B, C, D et E.



Figure 2.4 : Principe de l'inversion d'Abel géométrique

La visée 1 permet de déterminer l'intensité par unité de surface. L'intensité locale de la zone B est obtenue en retranchant à l'intensité totale de la visée 2, la part de l'intensité qui se rapporte aux portions extérieures de la visée B et ainsi de suite jusqu'au centre du plasma.

On peut alors établir une récurrence. Il est évident que, l'aspect local de la mesure dépend de sa résolution. Expérimentalement, elle dépend de la fibre employée pour les mesures.

#### Détermination de la température

Connaissant le coefficient d'émission, la température peut être déterminée à partir de la loi de Boltzmann (2.8):

$$T = -\frac{E_{j,u}}{k_B \ln\left(\frac{\epsilon_{l\lambda}}{CA_{j,ul}}\right)}$$
(2.14)

où  $C = \frac{1}{4\pi} \frac{hc}{\lambda_{j,ul}} \frac{n_j g_{j,u}}{Z_j}.$ 

C est obtenu en utilisant un code de calcul de composition disponible au LAEPT donnant la concentration des espèces chimiques présentes dans le plasma [Andre 99]. L'incertitude associée à T s'écrit de la manière suivante [Taylor 94] :

$$u_c(T) = \left| T \frac{-1}{\ln\left(\frac{\epsilon_{l\lambda}}{CA_{j,ul}}\right)} \right| \sqrt{\left(\frac{u(\epsilon_{l\lambda})}{\epsilon_{l\lambda}}\right)^2 + \left(\frac{u(A_{j,ul})}{A_{j,ul}}\right)^2}$$
(2.15)

Une incertitude élargie  $U_c(T)$  pour ra être utilisée en fonction d'un intervalle de confiance choisi :

$$U_c(T) = k \times u_c(T) \tag{2.16}$$

Cette méthode de détermination de la température par le biais de l'intensité absolue (coefficient d'émission) nécessite donc, en plus de l'inversion d'Abel qui permet de remonter, à partir de spectres intégrés, à des valeurs locales de l'intensité lumineuse, un étalonnage rigoureux en intensité. De plus, elle implique de connaître la densité de  $n_j$  et de calculer la fonction de partition  $Z_j$ , et ceci pour les différentes espèces choisies.

#### 2.2.4 Détermination de la densité électronique

De nombreuses études ont été menées sur la détermination de la densité électronique à partir de l'élargissement Stark sur la raie  $H_{\beta}$  de l'hydrogène. Cette raie a l'avantage d'être très peu perturbées par les phénomènes d'autoabsorption. Elle est également valable pour les plasmas à l'équilibre thermodynamique local ou non. Ainsi, dans le cadre de cette étude, la méthodologie utilisée pour déterminer  $n_e$  est orientée uniquement sur la considération de la raie  $H_{\beta}$ , raie qui sera naturellement présente dans un spectre de plasma vapeur.

#### 2.2.4.1 Modélisation d'une raie atomique

Nous avons vu précédemment les principales causes d'élargissement d'une raie spectrale. La convolution de tous ces processus d'élargissement définis par des profils lorentzien et gaussien est appelée **profil de Voigt**. Ce profil n'étant pas intégrable analytiquement, on peut avoir recours à des méthodes approchées comme par exemple la modélisation du profil par un pseudo-Voigt de la forme :

$$I(\lambda) = S\left(\frac{\eta}{\sigma\sqrt{2\pi}}e^{-\frac{-\lambda-\lambda_0}{2\sigma^2}} + (1-\eta)\frac{\gamma}{2\pi\left(\left(\frac{\gamma}{2}\right)^2 + (\lambda-\lambda_0)^2\right)}\right)$$
(2.17)

Avec  $\sigma$  l'écart type de la partie gaussienne et  $\gamma$  la largeur à mi hauteur de la partie lorentzienne.

#### 2.2 Diagnostics des plasmas par spectrométrie d'émission optique

Une fois la raie expérimentale ajustée avec un tel profil, la largeur à mi hauteur  $\Delta \lambda_{voigt}$  est mesurée.

On utilise alors la formule (2.18) qui donne, avec une très bonne approximation, les composantes gaussiennes et lorentziennes dans l'élargissement de la raie modélisée par ce pseudo-Voigt [Torres 06, Miller 87].

$$\Delta\lambda_{voigt} \approx \left[ \left( \frac{\Delta\lambda_{lorentz}}{2} \right)^2 + \Delta\lambda_{gauss}^2 \right]^{\frac{1}{2}} + \frac{\Delta\lambda_{lorentz}}{2}$$
(2.18)

 $\Delta \lambda_{gauss}$  peut se déterminer à partir de la somme quadratique des élargissements Doppler et de la fonction d'appareil :

$$\Delta \lambda_{gauss}^2 = \Delta \lambda_{doppler}^2 + \Delta \lambda_{app}^2 \tag{2.19}$$

Ce calcul nécessite a priori la connaissance du profil de température. Si ce n'est le cas, il est possible d'étudier la contribution de l'effet Doppler pour une large gamme de température. Il peut etre conclu dans la majorité des cas et pour des températures autour de 1eV et des densités électroniques supérieures à  $10^{15}$  cm<sup>-3</sup> que la contribution de l'effet Doppler est négligeable [Laux 03].

 $\Delta \lambda_{lorentz}$  peut se calculer par un algorithme itératif de recherche de zéro. Sachant que les différentes largeurs à mi hauteur des lorentziennes s'additionnent [Torres 06], l'élargissement dû uniquement à la pression des électrons (Effet Stark) peut être sorti :

$$\Delta\lambda_{lorentz} = \Delta\lambda_{nat} + \Delta\lambda_{res} + \Delta\lambda_{vdw} + \Delta\lambda_{stark}$$
(2.20)

Selon les cas, plusieurs contributions sont négligeables et il peut etre avancé que  $\Delta \lambda_{lorentz} \approx \Delta \lambda_{stark}$ . L'élargissement Stark est alors obtenu en déterminant la valeur de la contribution lorentzienne et différents modèles de la littérature permettent par la suite de calculer la densité électronique.

#### 2.2.4.2 Modèles pour la détermination de la densité électronique

Il existe plusieurs théories permettant de relier l'élargissement Stark à la densité électronique du milieu, les plus utilisés étant :

- l'approximation des collisions et du champ quasi-statique;
- la théorie semi-classique;
- la théorie unifiée;
- le microchamp modèle;
- le modèle de Gigosos et Cardeñoso.

Seuls les modèles utilisés dans ce travail sont présentés par la suite. Tous les élargissements sont définis comme la largeur totale à mi-hauteur (en Å, les densités électroniques sont exprimées en  $\text{cm}^{-3}$ ).

**2.2.4.2.1 Modèle de Griem [Griem 74]** Griem, dans son approche, considère deux phénomènes distincts de contribution à l'élargissement Stark, basé sur la grande différence de vitesse entre électrons et lourds dans un plasma. Cette approche est connue sous le nom d'Approximation d'impact et quasi-statique.

1. Les collisions électrons-lourd émetteur (ion ou atome)

Griem considére dans ce cas, que la vitesse élevée des électrons permet un grand nombre de collisions entre les électrons et l'atome (ou ion) émetteur excité avant que ce dernier ne se relaxe. Ainsi une approche statistique est possible, c'est la **théorie des collisions individuelles**. La théorie montre que l'élargissement calculé s'applique au centre de la raie [Griem 74, Sahal-Bréchot 69].

2. Les perturbations ions-lourd émetteur (ion ou atome)

Contrairement au point précédent, le temps d'interaction collisionelle entre ion et atome ou ion émetteur peut être considéré très grand par rapport à la durée de vie de la transition. L'effet des ions sur la particule émettrice peut être considéré alors comme celui d'un champ électrique statique. Cette approximation prédit un élargissement de la raie considérée au niveau de ces ailes.

La théorie de Griem permet de déterminer la densité électronique du milieu en fonction de l'élargissement stark mesuré. Ainsi pour la raie  $H_\beta$ :

$$n_e = 10^{16} \left(\frac{\Delta \lambda_{stark}}{9,4666}\right)^{1,49} \tag{2.21}$$

**2.2.4.2.2 Modèle de Gigosos [Gigosos 03]** Gigosos et al considèrent un plasma à l'équilibre thermodynamique. Ils considèrent l'atome ou ion émetteur au centre d'une sphère globalement électriquement neutre (donc de rayon au moins égal à la longueur de Debye). Des ions et électrons aléatoirement distribués dans cette sphère se déplacent linéairement et à vitesse constante. Les auteurs calculent alors sur un laps de temps défini, les perturbations du champ électrique. Cette approche permet de déterminer les densités électroniques des milieux en fonction de l'élargissement Stark, et pour la raie  $H_{\beta}$ :

$$n_e = \left(\frac{\Delta\lambda_{stark}}{48}\right)^{1,4681} \ 10^{17} \tag{2.22}$$

#### 2.2 Diagnostics des plasmas par spectrométrie d'émission optique

Les généralités sur les plasmas permettent de situer les hypothèses prises dans la suite de l'étude : les équilibres thermique et chimique. La fin du manuscrit voit une validation de ces hypothèses. Le chapitre suivant présente le dispositif expérimental, notamment le spectromètre qui a constitué le principal outil de diagnostic dans notre investigation. Ce premier chapitre se devait donc de présenter la détermination de la température à partir de l'intensité absolue et la densité électronique.

Le deuxième chapitre est entièrement consacré à la présentation de l'expérimentation, tant du point de vue matériel que des conditions dans lesquelles les expérimentations ont été réalisées.

# Chapitre 3 Dispositif expérimental

L'organisation de ce chapitre est définie par le dispositif expérimental lui-même. Le cœur du système est évidemment la torche à plasma, dont son principe de fonctionnement est présenté ainsi que les spécificités propres de celle développée au LAEPT.

La deuxième partie de ce chapitre s'intéresse aux différents systèmes de mesures utilisés pour caractériser le plasma. Le spectromètre, qui est le principal outil de diagnostic des mesures mais aussi les systèmes permettant les mesures des différentes grandeurs électriques, du débit des gaz plasmagènes, débit et température des fluides de refroidissement, des différentes températures prélevées sur le plasmatron comme la température du bâti ou la température de la pièce d'injection des gaz plasmagènes.

Enfin, la dernière partie de ce chapitre expose les conditions expérimentales des mesures réalisées (présentées au Chapitre 4) et les problématiques rencontrées.

## 3.1 Torche à plasma

Une torche à plasma ne pouvant fonctionner seul, il est important de la situer dans son environnement. Son fonctionnement nécessite un apport en énergie, un système de refroidissement et une injection de gaz plasmagènes, comme représentés schématiquement sur la figure 3.1.



Figure 3.1 : Schéma de principe de l'ensemble torche à plasma

La torche à plasma représente l'élément central de l'expérimentation. Le but ici n'est pas de donner une liste exhaustive des différents types de torches existantes, mais de donner les caractéristiques essentielles afin de bien appréhender les spécificités de la torche développée au LAEPT.

### 3.1.1 Principe

Les torches à plasma à arc électrique fonctionnent suivant le même principe : la formation d'un arc électrique entre deux électrodes et l'adjonction d'un gaz plasmagène créent le plasma.

Deux méthodes principales permettent d'amorcer un arc électrique. Tout d'abord, un arc électrique peut être obtenu en appliquant une différence de potentiel supérieure à la tension disruptive ou tension de claquage. Cette tension est principalement fonction de la nature du gaz, de la distance entre les électrodes et de la pression, mais aussi de la forme des électrodes, un effet de pointe diminue la tension de claquage. L'avantage de cette méthode est qu'elle ne nécessite aucune pièce en mouvement. Un autre procédé consiste en l'écartement d'électrodes parcourues par un courant électrique. La continuité du courant impose que ce dernier ne subisse aucune variation brutale, comme tendrait à le faire l'ouverture du contact en forçant l'annulation du courant. Or un arc électrique se forme assurant ainsi la continuité de courant. L'avantage de cette méthode réside dans le fait qu'il n'y a pas besoin

#### 3.1 Torche à plasma

de créer une surtension de quelques dizaines de kilovolts. C'est cette dernière solution qui a été retenue lors de la conception de la torche à plasma LAEPT. La séparation des contacts est faite par vérin.

La définition d'un arc électrique est une décharge électrique auto-entretenue entre deux électrodes : l'anode et la cathode. La zone située entre les deux électrodes est appelée colonne d'arc.

Dans un arc électrique, la densité de courant est très grande, de l'ordre de 100 A.cm<sup>-2</sup> [Abbaoui 09]. Cette densité de courant a une valeur beaucoup plus élevée au niveau des électrodes, de l'ordre de 10<sup>6</sup> A.cm<sup>-2</sup>. Le flux de chaleur à l'interface de la cathode ou de l'anode, dépendant de la conductivité électrique et thermique, a en général une valeur très importante, de l'ordre de  $5 \times 10^{11}$  W.m<sup>-2</sup> pour la cathode alors qu'à l'anode le flux de chaleur vaut  $5 \times 10^9$  W.m<sup>-2</sup> d'après [Abbaoui 09]. Ce flux de chaleur est à évacuer afin d'éviter une érosion trop importante des électrodes. On voit ici apparaître l'importance du choix du matériau mais aussi la nécessité de refroidir les électrodes.

L'allure de la différence de potentiel entre les électrodes présente de fortes variations de potentiel proche des électrodes : ce sont les chutes de tension anodique  $(U_a)$  et cathodique  $(U_c)$ .

La différence de potentiel en fonction de la distance inter-électrode est représentée sur la figure 3.2, où apparait également la forme de l'arc correspondante, justifiant l'élévation de la densité de courant au niveau des électrodes.



Figure 3.2 : Chutes de tension aux bornes de l'arc électrique

Pour arriver à cet état, il faut d'abord amorcer l'arc électrique. Cet étape consiste en

l'arrachement d'électrons libres de la cathode. Le moyen employé pour l'amorçage de la torche LAEPT est donc l'amorçage par séparation de contact. Cette technique consiste à établir un contact entre l'anode et la cathode et à faire circuler un courant électrique, ici continu. Le point de contact a en général une faible section, ce qui a pour conséquence de resserrer les lignes de courant. Il en résulte un échauffement local très important dû à la dissipation thermique par effet Joule.

Cet échauffement est une méthode permettant une émission thermoïonique au niveau de la cathode : la chaleur apporte une énergie suffisante pour libèrer des électrons sous le phénomène de la vibration des atomes due à l'agitation thermique. De plus, lors de l'écartement des électrodes, des particules métalliques peuvent être arrachées des électrodes et ionisées.

Dans une torche à arc, du gaz dit plasmagène, est injecté. Le champ électrique existant entre les électrodes entraine les particules chargées à une vitesse appelée vitesse d'agitation thermique. La masse des électrons étant très inférieure à celle des ions, ce sont les électrons qui présentent la plus grande mobilité. Il y a donc collision entre les électrons et les particules lourdes (ions, atomes, molécules). Ces dernières peuvent être excitées temporairement et lors de la désexcitation, des photons sont émis. La distribution en longueur d'onde de ces photons sont caractéristiques de la composition chimique du plasma.

### 3.1.2 Torche à plasma LAEPT

Il existe plusieurs types de torches à plasma généralement caractérisées par leurs électrodes [Fauchais 96]. La torche développée au LAEPT est une torche à arc non transféré et à cathode chaude.

#### Cathode chaude

Cathode chaude signifie que l'arc est accroché en un seul point de la cathode, ceci par opposition aux cathodes froides où l'arc n'a pas de point d'accroche préférentiel. Dans ce cas, l'immobilité de l'arc entraîne une très forte température localement et nécessite alors un refroidissement efficace et le choix d'un matériau pertinent dont les différents critères seront explicités.

#### Arc non transféré

Les torches sont à arc transféré ou non transféré en fonction de l'anode. Si l'anode fait partie intégrante de la torche à plasma, elle sera qualifiée de **torche à arc non transféré**. Si un matériau métallique externe au dispositif est utilisé comme une électrode pour le retour du courant, la torche est une **torche à arc transféré** (cf figure 3.3). Ce dernier type de torche est notamment utilisé pour la découpe de plaque de métal, la pièce à traiter devant être conductrice d'électricité.

#### 3.1 Torche à plasma



Figure 3.3 : Torche à arc non transféré et à arc transféré

La torche à plasma à courant continu LAEPT utilisée pour les expérimentations est de type à **cathode chaude** et à **arc non transféré**.

Bien que le choix de ce type de torche impose les bases de la conception, il existe encore diverses solutions dans la réalisation pratique d'un tel outil, notamment dans le choix des matériaux, la forme des électrodes, mais aussi les méthodes utilisées pour stabiliser l'arc ([Zhukov 99]).

Cette partie s'articule donc autour de deux choix de conception faits au LAEPT : les électrodes (**forme** et **matériaux** des électrodes) et la **stabilisation de l'arc** (par la forme de l'anode, la mise en place d'un aimant et le moyen d'injection du gaz plasmagène).

Sur la figure 3.4 sont représentés les différents éléments importants caractérisant la torche à plasma LAEPT.



Figure 3.4 : Schéma de principe de la torche à plasma

#### 3.1.2.1 Forme et matériaux des électrodes

#### - Cathode

**Géométrie :** le rôle de la cathode est d'assurer l'émission d'électrons et constitue un des points d'attache de l'arc. Dans les torches à cathode chaude, le point d'attache reste fixe ou se déplace lentement. La densité de courant au niveau de la cathode dépend de la nature du gaz plasmagène et du matériau utilisé pour la cathode (dans notre cas,  $j \approx 10^3$  à  $10^4 \text{ A.m}^{-2}$ ).

Lors de l'émission thermoïonique, la température de surface de la cathode atteint une température supérieure à 3500 K [Kassabji 81]. Le risque d'une érosion trop importante est limité notamment par la forme de la cathode. Il existe beaucoup de formes différentes et celle retenue lors de la conception est une cathode plate avec un insert au sommet comme le montre la figure 3.5.



Figure 3.5 : Différentes formes de cathode chaude avec insert

Cette forme de cathode a l'avantage de supporter de forts courants (plusieurs milliers d'ampères) et d'avoir une faible érosion. Ce type de cathode est généralement utilisé pour des puissances supérieures à 150 kW ou en présence de gaz oxydant.

**Matériaux** : Le matériau choisi doit être résistant à un environnement très contraignant, en respectant plusieurs critères :

- Résistance à la température du matériau caractérisée notamment par sa température de vaporisation;
- Réaction du matériau en **atmosphère oxydante**;
- Capacité du matériau à libérer des électrons (capacité thermoïonique);
- Rareté/coût du matériau.

Une température de vaporisation élevée est souvent accompagnée d'une mauvaise conductivité thermique et donc d'une mauvaise évacuation de la chaleur. Ceci engendre une usure importante de la pièce. Au lieu de faire un compromis, la solution d'utiliser deux matériaux est souvent retenue. Le matériau réfractaire est inséré dans un matériau dont la conductivité thermique est bonne ce qui permet d'assurer le refroidissement de la cathode tout en conservant une bonne émission thermoïonique. Le cuivre remplit très bien la fonction de l'évacuation de la chaleur avec une conductivité thermique d'environ 400 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> à température ambiante. De plus, sa facilité d'usinage conforte ce choix.

La capacité du matériau à avoir une bonne émission thermoïonique est l'autre critère très important. La relation de Richardson-Dushman permet d'exprimer l'équilibre de la densité de courant sur une surface plate [Fauchais 96] :

$$j = A_R T^2 \exp(-W/T) \tag{3.1}$$

avec  $A_R$  une constante valant environ  $6.10^5 \text{ A.m}^{-2} \text{.K}^{-2}$ , *j* la densité de courant en  $\text{A.m}^{-2}$ , *T* la température du matériau en K et *W* le travail en eV représentant l'énergie minimum à fournir pour arracher un électron du métal. Dans le tableau 3.1, des données sur les

Tableau 3.1:	Propriétés de divers métaux [Kassabji 81], [Smirnov 01]			
Matériau	$A_R (A.cm^{-2}.K^{-2})$	W (eV)	$T_v$ (K)	$j_v (A.cm^{-2})$
Cu	60	4,57	2868	4,6
$\operatorname{Hf}$	14	$3,\!53$	5470	$2,4 \times 10^{5}$
W	75	$^{4,5}$	5740	$2,8 \times 10^{5}$
W - $ThO_2$	15	$2,\!6$	6173	$\approx 10^4 \ (^*)$
Zr	330	4,12	4650	$2,4 \times 10^5$

matériaux les plus utilisés pour la réalisation d'électrode sont présentées.

(\*) :  $j_v$  pour le tungstène thorié n'est pas donnée pour la température de vaporisation [Kassabji 81].

 $T_v$  est la température de vaporisation et  $j_v$  est la densité de courant du matériau à la température de vaporisation.

D'après ces données, on peut noter que la densité de courant est assez similaire pour l'hafnium, le tungstène et le zirconium. La température de vaporisation est aussi très supérieure à celle du cuivre. En revanche, on peut noter une assez grande dispersion pour l'énergie nécessaire à l'arrachement d'un électron, l'hafnium ayant la plus faible.

La capacité d'un matériau à l'émission thermoïonique ne suffit pas pour choisir un matériau. Le gaz utilisé dans nos expériences est de la vapeur d'eau, gaz oxydant. Des matériaux comme le tungstène thorié ou le cuivre sont à bannir. Par exemple, le cuivre en atmosphère oxydante crée CuO et Cu<sub>2</sub>O, qui sont sous forme gazeuse. La conséquence est une ablation importante du métal par transport des molécules sous forme gazeuse, modifiant ainsi la longueur inter électrode et allant jusqu'à la disparition complète de la cathode. De plus, l'oxydation entraine des points chauds dus à une augmentation de la résistivité électrique. En revanche, les oxydes et dioxydes d'hafnium ou de zirconium sont principalement sous forme solide. Ceci est d'autant plus vrai pour le dioxyde d'hafnium, qui à 3000 K n'est présent quaisment que sous forme solide. La conséquence est que ces dioxydes solides se comportent comme une couche protectrice lorsqu'ils sont amenés à haute température. L'érosion de ces matériaux est alors très faible.

La cathode est de **forme plate**, avec un **insert en hafnium** qui assure une bonne émission thermoïonique tout en étant refractaire à une atmosphère oxydante, **placé dans du cuivre** garantissant un refroidissement efficace.



Figure 3.6 : Cathode en cuivre avec insert en hafnium

#### - Anode :

Pour l'anode, les critères de choix d'un matériau sont différents de ceux de la cathode. Tout d'abord, le flux de chaleur au niveau de l'anode est beaucoup plus faible qu'a la cathode (de l'ordre de  $5 \times 10^9$  W.m<sup>-2</sup> pour l'anode et de  $5 \times 10^{11}$  W.m<sup>-2</sup> pour la cathode). Il en résulte un échauffement moindre. De plus, les torches à arc non transféré ont souvent un point d'accroche de l'arc sur l'anode variable en fonction du temps.

**Géométrie :** Le point d'accroche de l'arc sur l'anode est en rotation, donc la forme principale de l'anode est cylindrique. Mais la forme est surtout conditionnée par une autre contrainte de conception : la stabilisation de l'arc dont les principes sont exposés dans le paragraphe suivant.

**Matériau :** Comme il a été explicité précédemment, la contrainte thermique sur l'anode est plus faible que pour la cathode. Sa forme cylindrique supprime l'effet de pointe qui est présent sur la cathode. Puis, le flux de chaleur est de l'ordre de  $5 \times 10^9$  W.m<sup>-2</sup>, soit cent fois moins que celui de la cathode. La rotation du point d'accroche de l'arc réduit considérablement l'échauffement au niveau du pied d'arc.

#### – Bilan

Malgré le refroidissement et le choix judicieux des matériaux, les électrodes sont des pièces d'usure. Moyennant un démontage de la torche, ces pièces sont conçues afin de pouvoir être remplacées sans nécessiter un réusinage complet de la torche.

Des mesures d'usure ont été réalisées pour une atmosphère oxydante, le gaz plasmagène étant constitué d'un mélange d'argon et d'air. Le courant électrique de fonctionnement était  $I_{arc} = 85$  A pour une puissance électrique fournie d'environ 17 kW.

Dans ces conditions expérimentales, la mesure de l'usure moyenne des électrodes en  $g.min^{-1}$  est résumée dans le tableau suivant. Elle est également exprimée en kg.C<sup>-1</sup> qui permet de le comparer avec des valeurs existantes dans la littérature, regroupées notamment par [Zhukov 99].

Tableau 5.2: Usure des electrodes							
électrodes	usure $(g.min^{-1})$	usure (kg. $C^{-1}$ )					
cathode	$4,02.10^{-4}$	$7,88.10^{-11}$					
anode	$1,02.10^{-3}$	$1,99.10^{-10}$					

 Tableau 3.2: Usure des électrodes

D'après [Zhukov 99], l'usure pour une cathode avec un insert en hafnium dans un plasma d'air est compris entre  $10^{-11}$  et  $10^{-10}$  kg.C<sup>-1</sup> et, pour l'anode en cuivre, il est situé entre  $10^{-9}$  et  $10^{-8}$  kg.C<sup>-1</sup>.

On peut alors être assuré de la bonne conception de la torche en terme d'usure, les valeurs mesurées étant un facteur dix en dessous des valeurs habituelles. Mais ce n'est évidemment pas le seul critère à prendre en compte dans la conception d'une torche à plasma. Un des critères très important pour les expérimentations que l'on a réalisées par la suite est la stabilisation de l'arc. En effet, la différence de potentiel entre les électrodes est quasi proportionnelle à la longueur de l'arc, aux chutes de tension anodique et cathodique près. En stabilisant l'arc, sous entendu, en limitant les variations de sa longueur, on peut donc, à défaut de garantir une différence de potentiel parfaitement constante au cours du temps, imposer de faibles variations à celle-ci. Ceci a notamment pour conséquence directe de limiter les variations de puissance électrique consommée par la torche à plasma. On peut d'ores et déjà noter un point intéressant ici pour le choix de l'alimentation électrique. Pour alimenter à puissance constante la torche à plasma, le système doit être asservie en courant, les variations de tension étant limitées par la conception de la torche.

#### 3.1.2.2 Stabilisation de l'arc

La stabilisation de l'arc est nécessaire pour assurer un fonctionnement reproductible et répétable de la torche à plasma. L'objectif est de contraindre l'arc dans une position stable. Les perturbations influençant la longueur de l'arc ont principalement deux origines : les forces aérodynamiques créées par l'injection des gaz et les forces électrodynamiques. Toute instabilité doit être soldée par un retour à la position initiale de l'arc et ainsi créer un état d'équilibre.

Il existe plusieurs moyens de stabiliser un arc. Ici, seuls les procédés mis en place sur la

#### 3.1 Torche à plasma

torche à plasma LAEPT sont présentés : stabilisation par la géométrie de l'anode, la mise en place d'un aimant et l'injection des gaz en vortex.

#### Épaulement anode :

La longueur de l'arc électrique ne reste pas constante. Lorsque l'arc s'allonge, il atteint une longueur limite pour laquelle l'arc s'éteint. Il se réamorce en changeant de point d'accroche avec une longueur plus faible qu'auparavant. On parle de phénomène de *restrike* ou réamorçage.

Stabiliser l'arc passe donc par la limitation de la variation de sa longueur.

La solution de jouer sur la géométrie de l'anode est très efficace. Sur la figure 3.7 est présentée une vue en coupe de l'anode suivant son axe de révolution.



Figure 3.7 : Vue en coupe longitudinale de l'anode

Cette solution consiste en une variation du diamètre de l'anode : tout d'abord, le rayon vaut  $r_1$  puis s'agrandit brutalement sous forme d'un épaulement pour atteindre le rayon  $r_2$ . La conséquence immédiate pour les fluides de ce changement brutal de géométrie est la création d'une zone de turbulence très importante au niveau de l'épaulement (comparativement au cas sans variation de diamètre qui est quasi-laminaire). Il est cependant très difficile de mesurer les caractéristiques des flux à ce niveau. On peut toutefois noter la présence de deux régimes d'écoulement, un régime stationnaire et un régime turbulent. En fonction de la vitesse d'écoulement des gaz et des rayons  $r_1$  et  $r_2$ , la longueur moyenne de l'arc est fixée.

La zone de turbulence est notamment caractérisée par une longueur  $Z_A$  qui limite le point d'accroche de l'arc sur l'anode. En effet, l'arc ne peut pas s'accrocher à moins d'une distance  $Z_A$  de l'épaulement.

D'après [Zhukov 07] et les caractéristiques géométriques de la torche à plasma du LAEPT, le rapport  $Z_A/\Delta h$  est compris entre :

$$6,8 \le \frac{Z_A}{\Delta h} \le 7,6 \tag{3.2}$$

Avec  $\Delta h = 2,5 \text{ mm}, Z_A \text{ est compris entre }:$ 

$$1,7 \le Z_A \le 1,9 \text{ cm}$$
 (3.3)

Le dimensionnement de cette longueur  $Z_A$  permet donc de contrôler la position d'accroche de l'arc.



Figure 3.8 : Photo de l'anode

#### Aimant :

Le plasma est un milieu conducteur d'électricité. Si un champ magnétique est ajouté, une interaction est créée entre les particules chargées et le champ magnétique par l'intermédiaire des forces de Lorentz. L'intégration donne la force de Laplace suivant la relation 3.4.

$$\vec{dF} = I.\vec{dl} \wedge \vec{B} \tag{3.4}$$

avec  $d\vec{F}$  le vecteur force, I l'intensité du courant parcourant l'arc électrique en A,  $d\vec{l}$  un élément de longueur et  $\vec{B}$  le vecteur d'induction magnétique.

Une force dite de Laplace est appliquée à l'élément de longueur  $d\hat{l}$ . Pour la torche LAEPT, l'aimant a une géométrie en forme d'anneau, avec, en son centre, un champ magnétique suivant l'axe de révolution de l'aimant, et est placé autour de l'anode comme représenté sur la figure 3.9.



Figure 3.9 : Position de l'aimant autour de la torche

L'aimant utilisé lors des expérimentations est un aimant permanent en terre rare (Nd-Fe-B) avec les caractéristiques suivantes :

- Induction rémanente :  $1,37 < B_R < 1,42$  T
- Champ coercitif :  $860 < H_C < 995 \text{ kA.m}^{-1}$
- Produit énergétique :  $358 < (B \times H)_{max} < 382 \text{ kJ.m}^{-3}$
- Température de Curie : 80 °C

Il est à noter que la valeur de la température de Curie est très faible; la dépasser ferait perdre au matériau ces caractéristiques magnétiques, et notamment son champ d'induction magnétique deviendrait nul. L'aimant est donc placé autour d'une pièce refroidie qui lui permet de conserver ses caractéristiques dans l'environnement de température.

L'induction rémanente correspond au champ magnétique que l'aimant peut délivrer dans un matériau magnétique. Dans notre cas, l'aimant est placé autour d'une partie métallique en cuivre diamagnétique, cela revient à considérer l'aimant dans l'air. Donc, pour connaître la valeur du champ magnétique présent lors des expérimentations, le champ magnétique a été mesuré. Il est tracé sur la figure 3.10 en coupe et seulement pour un rayon (le champ magnétique présentant une symétrie de révolution).


Figure 3.10 : Champ magnétique

Les lignes de champ magnétique à l'intérieur de la torche sont colinéaires à l'axe de révolution du système. Ainsi, la force de Laplace appliquée à l'élément de longueur  $\vec{dl}$  de la partie horizontale de l'arc, entraîne l'arc électrique en rotation. Le champ magnétique fixe la vitesse de déplacement de l'arc et donc sa vitesse de rotation.



Figure 3.11 : Force de Laplace appliquée à l'arc électrique

La vitesse de déplacement de l'arc au niveau de l'anode est constante. Elle est le résultat d'un équilibre entre les forces magnétiques et les forces de traînée sur l'arc.

Cette vitesse peut être calculée suivant la relation établie par [Guile 68] :

$$v = 4.6 \times B^{0.6} \times I^{0.4} \times d^{-0.4} \times \rho^{-0.5}$$
(3.5)

avec v la vitesse en m.s<sup>-1</sup>, B l'induction magnétique en T, I l'intensité du courant en A, d la distance entre les électrodes en m et  $\rho$  la masse volumique en kg.m<sup>-3</sup>.

- Application numérique sur le calcul de la vitesse du pied d'arc

La mesure donne un champ magnétique moyen à l'intérieur de l'anneau magnétique  $B_{moy} \approx 100 \text{ mT.}$ 

Le courant électrique vaut I = 170 A.

La longueur de l'arc est comprise entre 91, 5 et 99, 5 mm.

L'évolution de la masse volumique du mélange vapeur argon utilisé est représentée sur la figure 3.12.



Figure 3.12 : Évolution de la masse volumique pour un gaz plasmagène vapeur/argon  $(1, 37 \text{ g.s}^{-1} / 2, 08 \text{ g.s}^{-1})$  en fonction de la température

La masse volumique est inversement proportionnelle à la température et varie peu pour les températures supérieures à 5000 K. On verra par la suite que la température en sortie de torche se situe aux alentours de 8500 K, ce qui conduit à une valeur de masse volumique proche de  $22, 5 \times 10^{-3}$  kg.m<sup>-3</sup>.

L'application numérique donne la valeur de la vitesse de déplacement de l'arc au niveau de l'anode aux alentours de  $60 \text{ m.s}^{-1}$ .

Cette vitesse de déplacement de l'arc électrique permet notamment de limiter l'érosion de l'anode. Des mesures d'usure de l'anode ont été réalisées avec et sans aimant, pour un courant électrique de 85 A, un gaz plasmagène constitué d'air et d'argon et une puissance électrique appliquée de 17 kW.

sans aimant	avec aimant
$2,28.10^{-3}$ g.min <sup>-1</sup>	$1,02.10^{-3} \text{ g.min}^{-1}$
$4,46.10^{-10} \text{ kg}.\text{C}^{-1}$	$1,99.10^{-10} \text{ kg}.\text{C}^{-1}$

Tableau 3.3: Usure de l'anode sans et avec aimant

À la lecture de ces résultats apparait un facteur deux sur le taux d'usure de l'anode avec et sans aimant, multipliant ainsi par deux la durée de vie de l'anode.

### Injection gaz en vortex :

L'intérêt d'injecter le gaz plasmagène en vortex est qu'il permet de centrer l'arc sur l'insert en hafnium. Comme on l'a vu précédemment dans le choix des matériaux de la cathode, celle-ci est constituée de deux matériaux. Le matériau réfractaire (hafnium) est inseré dans un matériau avec une bonne conductivité thermique (cuivre). Il faut absolument que l'accroche de l'arc soit centrée sur l'extrémité de l'insert en hafnium et non sur le cuivre.

Ainsi, l'émission des électrons est faite à partir de l'insert en hafnium qui doit servir d'électrode et le gaz oxydant injecté n'entre pas en contact avec la partie en cuivre, très sensible à l'oxydation. Le phénomène de constriction est accentué par la forme conique du bâti.

Les principes présentés, nous allons voir comment ceci a été mis en place en pratique sur la torche à plasma LAEPT. La figure 3.13 présente une vue en coupe de la torche ayant servi aux mesures.

#### 3.1 Torche à plasma



Figure 3.13 : Vue en coupe de la torche à plasma

Les points à noter sont l'épaulement de l'anode, représenté en bleu foncé sur le schéma. Les gaz plasmagènes sont injectés par le bas de l'image. La zone de turbulence se trouve juste après l'épaulement. L'anode est démontable car il s'agit d'une pièce d'usure. L'anode est également située très proche d'un refroidissement apparaissant en bleu clair sur la figure. Enfin, autour du refroidissement de l'anode se trouve l'aimant. Le circuit de gaz est constitué de six injections (colorées en violet) qui permettent d'obtenir le vortex et d'assurer la position de l'arc par constriction.

On peut également noter le bâti conique et son circuit de refroidissement de forme hélicoïdale.



Figure 3.14 : Pièce d'injection des gaz

Figure 3.15 : Refroidissement du bâti

## 3.1.3 Alimentation électrique

La torche à plasma nécessite une alimentation en énergie afin de créer et maintenir le plasma. C'est une alimentation électrique, vecteur énergétique aisément modulable, qui joue ce rôle. Pour les torches de type cathode chaude, il faut une alimentation de type continu, l'émission thermoïonique provenant toujours de la même électrode.

Une torche à plasma à arc non transféré est une charge particulière en génie électrique : elle impose des fluctuations de tension (phénomène de *restrike*). Le cahier des charges d'une alimentation pour une torche à arc est de fournir un courant constant, quelles que soient les fluctuations de tension. Ces fluctuations dépendent de plusieurs paramètres du système, comme la vitesse d'injection des gaz, mais elles imposent la dynamique de l'alimentation électrique.

Le modèle de l'alimentation BKT 500-200 est conçu par *Midec Power*. Ses caractéristiques nominales sont un courant de 200 A, une tension de 500 V pour une puissance nominale de 100 kW.

#### 3.1 Torche à plasma



Figure 3.16 : Alimentation électrique de la torche à arc non transféré du LAEPT

Afin d'avoir une puissance de 100 kW, l'alimentation est elle-même alimentée en alternatif triphasé. L'alimentation réalise une conversion AC/DC grâce à un pont double triphasé tout thyristor, dont la convention pour la tension inverse anode-cathode et le courant est choisie comme représentée sur la Figure 3.17.



Figure 3.17 : Représentation schématique d'un thyristor

Les thyristors réalisent le redressement. Ce sont des interrupteurs de puissance commandable à l'amorçage via la gâchette. Une fois les conditions d'amorçage atteintes (le courant de gâchette supérieur à zéro  $I_G > 0$  et tension inverse positive  $V_{AK} > 0$ ), le thyristor se comporte comme une diode. Le blocage se fait de manière spontanée, c'est à dire lorsque le courant traversant le thyristor devient inférieur au courant de maintien  $I_H$  ( $I_{AK} < I_H$ ) et que sa tension inverse est négative ( $V_{AK} < 0$ ). La gâchette constitue donc l'entrée de réglage qui permet d'agir sur le système en vue de réaliser un asservissement du courant électrique.

La commande de la gâchette est calée sur le passage par zéro des tensions composées. Par rapport à un convertisseur alternatif-continu à transistors, l'inconvénient est une dynamique beaucoup plus lente imposée par le passage par zéro des tensions du réseau triphasé (600 Hz). En revanche, l'avantage est une faible émission harmonique sur le réseau. En effet les commutations rapides et brutales des alimentations à découpage génèrent de fortes perturbations. Les instruments de mesure sont victimes de ces rayonnements. Ce critère a été considéré comme primordial pour le choix de l'alimentation.

Avec l'alimentation choisie, il n'est donc pas possible de contrôler la tension. Ce sont l'extinction et l'amorçage de l'arc qui font varier la tension selon une amplitude et une fréquence de ces variations dépendant de plusieurs facteurs, dont le débit du gaz plasmagène injecté et la valeur du courant électrique imposé. Des mesures ont permis de montrer que l'amplitude pouvait varier de  $\pm 25\%$  par rapport à la valeur moyenne et la fréquence dépasser 10 kHz.

Une inductance est alors ajoutée en série à la sortie du pont de Graëtz. Son rôle est de lisser les fluctuations de courant et permet, si l'on considère le plasma comme une source de tension, de respecter la règle d'association des sources, qui consiste à alterner le type de source.



Figure 3.18 : Schéma de la partie puissance de l'alimentation électrique

#### 3.1 Torche à plasma

Sur le schéma constructeur présenté figure 3.18, on peut voir les différentes parties de l'alimentation : l'entrée du système connectée au réseau triphasé via les organes de commande (interrupteurs et contacteurs tripolaires) et de protections (relais thermiques) et le filtre RFI d'antiparasitage qui évite une pollution en amont du réseau, le transformateur étoile-triangle dont le secondaire est connecté au pont double triphasé tout thysristor protégé par fusible, et enfin le filtre de sortie L-C. Il apparait également la partie commande qui ne sera pas détaillée ici, mais qui permet de réaliser un asservissement en tension ou en courant.

Du circuit initial présenté figure 3.18, le condensateur en parallèle sur la sortie a été enlevé. Sa capacité est trop élevée pour permettre une dynamique suffisante de l'alimentation qui ne peut suivre les variations de tensions imposées par le *restrike* de l'arc électrique.

## 3.1.4 Refroidissement et génération des gaz

## Refroidissement

Les différentes parties de la torche à refroidir sont l'anode, la cathode, mais également le bâti. Un refroidisseur conçu par MTA est capable de dissiper une puissance de 15 kW.



Figure 3.19 : Photo du refroidisseur



Figure 3.20 : Photo de l'électrovanne

## Génération des gaz

Le gaz plasmagène utilisé lors des expérimentations est constitué d'un mélange de vapeur et d'argon. Ces gaz proviennent respectivement d'un générateur vapeur et d'une bouteille

d'argon industriel. Ils circulent dans deux circuits distincts ce qui permet de mesurer leurs débits respectifs. Le mélange s'effectue au niveau de la pièce nommée injection des gaz. Cette pièce a deux objectifs : le mélange des gaz et l'injection en vortex. L'entrée des gaz se fait par six conduits. En cas de mélange de gaz, trois sont utilisés pour un gaz, les trois autres pour le deuxième gaz, un conduit sur deux.

La torche est placée dans une enceinte où le taux d'oxygène ambiant ainsi que les taux de gaz à risques sont mesurés (CO,  $H_2$ ,  $NO_x$ , etc).



Figure 3.21 : Photographie de l'enceinte

On peut voir sur la figure 3.21 la torche dirigée vers le bas dans son enceinte. Ceci est justifié par la nécessité d'évacuer la condensation de la vapeur en cas de dysfonctionnement. L'évacuation des gaz est nécessaire afin d'assurer une pression constante dans l'enceinte. De plus, l'extraction des gaz permet le maintien de l'atmosphère de l'enceinte à une température constante. Une pompe réalise cette fonction au travers d'un ensemble de tuyaux dont les premiers mètres sont refroidis par eau pulvérisée.

L'**argon** utilisé pour les expérimentations est de l'argon en bouteille de type Arcal 1 de Air Liquide. La pureté globale est supérieure à 99,998 %. Les impuretés sont constituées de moins de 5 ppmv/v de H<sub>2</sub>O et O<sub>2</sub> et moins de 10 ppmv/v de N<sub>2</sub>. La pression est de 300 bars pour une capacité de 4,6 m<sup>3</sup>.

#### 3.1 Torche à plasma

Un régulateur de débit massique de marque *Brooks Instrument* de la série 7850S est utilisé pour contrôler le gaz plasmagène injecté dans la torche.





Figure 3.22 : Débitmètre Brooks 7850S Figure 3.23 : Générateur vapeur

Il s'agit d'un débitmètre thermique à capillaire. Le débit maximum atteint 22 kg.h<sup>-1</sup> et la précision relative est de  $\pm 0,7$  %. Ce débitmètre est étalonné pour l'argon, mais l'application d'un facteur correctif K permet de réguler le débit d'autres gaz :

$$K = \frac{C_{p \ gaz \ utilis\acute{e}}}{C_{p \ gaz \ \acute{e}talon}} \tag{3.6}$$

avec  $C_p$  la capacité thermique du gaz à pression constante.

La **vapeur** d'eau est produite par un générateur vapeur *Maxi* 24 de la marque *Aura*. Il est alimenté en 15 kVA et produit 20 kg.h<sup>-1</sup> (soit environ 5, 5 g.s<sup>-1</sup>) sous une pression de 4, 5 bar.

Un surchauffeur est ajouté afin d'obtenir de la vapeur sèche. Il permet d'élever la température de la vapeur à 300 °C jusqu'à un débit de 7 kg.h<sup>-1</sup> (soit environ 2 g.s<sup>-1</sup>). Ensuite, un filtre est mis en place afin d'enlever tout résidu métallique. À la suite de cela, le circuit vapeur atteint le point haut du montage. Le reste du circuit doit être installé avec une pente, afin de laisser s'écouler les condensats naturellement. Un régulateur de pression *PRV25S* d'*ADCA* permet un réglage de 0 à 4 bars.

Un séparateur S-16S d'ADCA permet de séparer la vapeur de l'eau liquide par centrifigation. Un purgeur thermostatique permet d'évacuer les condensats dès que leur température devient inférieure à celle de la vapeur. Ce système est basé sur un clapet qui se dilate sous l'effet de la température et obstrue ainsi l'évacuation et, lorsque la température diminue, le clapet se rétracte laissant les condensats s'échapper.



Figure 3.24 : Régulateur de pression



Figure 3.25 : Séparateur

Juste avant l'injection de la vapeur dans la torche à plasma, un purgeur à flotteur est inséré en fin de ligne. En effet, le gaz injecté dans la torche à plasma ne doit pas contenir d'eau liquide sous peine d'éteindre la torche à plasma de manière brutale.



Figure 3.26 : Purgeur à flotteur



Figure 3.27 : Débitmètre utilisé pour la vapeur

Un débitmètre massique de la série F050 conçu par *Emerson Micro Motion* permet de mesurer le débit jusqu'à 8160 kg.h<sup>-1</sup> sous une pression de 100 bars et une température de 250°C.

# 3.2 Dispositif de mesures

L'objectif de ce dispositif étant la récupération d'hydrogène à partir de vapeur d'eau par thermolyse plasma, la composition en hydrogène doit être mesurée. Grâce à un code de calcul interne au laboratoire, la composition du plasma en fonction de la température est connue à l'équilibre thermique et chimique.

Le but ici est de mesurer la température afin de remonter à la composition du plasma. Or la température ne pouvant être mesurée directement, sa détermination se fait à partir

#### 3.2 Dispositif de mesures

d'acquisitions spectrométriques, comme cela a été expliqué au chapitre 2.

Mais pour assurer le fonctionnement de la manipulation et exploiter les résultats, il est nécessaire d'avoir un dispositif de mesure complet. Outre l'utilisation du spectromètre, les grandeurs électriques, les débits de gaz plasmagène, les débits de refroidissements de l'eau ainsi que l'évolution de la température doivent être connus en temps réel autant pour le bon déroulement des expérimentations que pour l'exploitation des mesures.

Le schéma d'ensemble du dispositif expérimental est donné sur la figure 3.28. Il est constitué de la torche à plasma, du dispositif optique et du système d'acquisitions.



Figure 3.28 : Dispositif expérimental d'acquisitions spectrométriques

## 3.2.1 Acquisitions spectrales

Pour les raisons expliquées précédemment, le spectromètre d'émission est un outil non intrusif généralement utilisé dans l'étude des plasmas.

Le choix d'un spectromètre et sa configuration dépendent de ce que l'on souhaite mesurer. Le dispositif expérimental présent au laboratoire permet d'accéder à plusieurs raies spectrales dans le visible.

## 3.2.1.1 Spectromètre

Plusieurs choix sont possibles et portent sur les différents composants du spectromètre : les fentes d'entrée et de sortie et le réseau.

Nous avons utilisé un spectromètre Chromex 500 IS de longueur focale 500 mm possédant un montage de type Czerny–Turner.



Figure 3.29 : Photo du spectromètre Chromex 500 IS

Le schéma de principe du montage Czerny–Turner est présenté sur la figure 3.30 :



Figure 3.30 : Principe du montage type Czerny-Turner

La source lumineuse, dans notre cas le plasma, doit être conduite à l'entrée du monochromateur. La difficulté d'accès du plasma nous a conduit à placer une lentille reliée à

#### 3.2 Dispositif de mesures

une fibre optique elle-même couplée à la fente d'entrée. La largeur de la fente d'entrée influe beaucoup sur la quantité de lumière qui pénètre dans le spectromètre. Plus la fente est ouverte et plus l'intensité lumineuse est importante, mais plus la résolution spectrale diminue.

Les autres paramètres influant sur la résolution spectrale sont le nombre de traits par millimètre du réseau et la distance focale. La distance focale et le réseau définissent l'ouverture, et donc, le flux de lumière arrivant sur la fente de sortie.

La sortie est directement reliée à une matrice CCD (Charge-Coupled Device) qui joue le rôle de détecteur en convertissant les photons en électrons.

#### Caractéristiques du spectromètre utilisé en expérimentation

Tout d'abord, le réseau de diffraction est constitué d'une série de traits périodiques et parallèles sur une surface plane (n en traits.mm<sup>-1</sup>). Nous avons utilisé deux réseaux différents lors de nos expérimentations : un 600 traits.mm<sup>-1</sup> et un 1800 traits.mm<sup>-1</sup> qui permettent d'observer respectivement des plages spectrales d'environ 90 nm et 20 nm. D'après [Mermet 01], la longueur d'onde maximale d'un réseau se détermine avec la relation suivante :

$$\lambda_{max} = \frac{2}{kn} \tag{3.7}$$

avec k un entier positif représentant l'ordre.

La lentille est placée à 34 cm du plasma. De plus, des filtres sont placés dans le chemin optique car l'intensité des raies mesurées varie dans de fortes proportions, notamment en fonction de l'espèce visée ou de la position de la visée dans le plasma. Les transmissions des deux filtres utilisés valent respectivement 50% et 8,5% à 550 nm.

Deux largeurs de fentes d'entrée ont été utilisées lors des mesures : 20  $\mu$ m et 100  $\mu$ m. L'influence de la largeur de fente sur l'intensité mesurée a été quantifiée : il existe une relation affine entre ces deux grandeurs.

La matrice CCD est constituée de  $1242 \times 1152$  pixels. Les pixels sont carrés et ont une largeur de 22,5  $\mu$ m. Le détecteur est sensible depuis 200 nm jusqu'à 1100 nm.

Le contrôleur ST - 138 gère le traitement des signaux issus de la matrice CCD et le refroidissement à  $-40^{\circ}$ C. L'interface permettant le réglage des paramètres d'acquisition est réalisée par le logiciel WINSPEC.

La fonction d'appareil est assimilée à un profil gaussien.  $\lambda_{app}$  correspond à la largeur à mi hauteur et peut être calculée suivant la relation suivante :

$$\Delta \lambda_{app} = FWHM.f_p.D^{-1} \tag{3.8}$$

avec FWHM la largeur à mi hauteur en pixels,  $f_p$  la dimension d'un pixel en mm et  $D^{-1}$  la dispersion du réseau en nm.mm<sup>-1</sup>. La fonction d'appareil est alors obtenue en nm

Pour le réseau 1800 traits.mm<sup>-1</sup>, les valeurs de ces constantes sont :

- FWHM = 4 px-  $D^{-1} = 1,025 \text{ nm.mm}^{-1}$ -  $f_p = 22,5 \ \mu\text{m}$ 

En ajustant un profil gaussien sur la réponse spectrale du spectromètre sur une raie atomique connue (obtenue à partir du spectre d'une lampe étalon Hg–Cd), il est obtenu  $\lambda_{app} = 0,092$  nm.

## 3.2.1.2 Étalonnage

#### Étalonnage en intensité

Le spectre d'émission mesuré doit être corrigé en fonction de la réponse du système optique au complet : filtre, lentille, monochromateur ainsi que la matrice CCD. Pour cela, on utilise une lampe tungstène (*Osram Wi 14*) couvrant la plage de 300 à 800 nm. Cet étalonnage permet de remonter à la luminance  $I_{exp}$  en  $W.sr^{-1}.mm^{-1}.mm^{-2}$  de la mesure d'intensité  $I_{exp}$  selon la relation (3.9).

$$I_{exp}(W.sr^{-1}.nm^{-1}.m^{-2}) = \frac{L_{etal}(W.sr^{-1}.nm^{-1}.m^{-2})}{I_{etal(u.a.)}} I_{exp}(u.a.) \frac{t_{etal}}{t_{exp}}$$
(3.9)

avec  $L_{etal}$  et  $I_{etal}$  la luminance et l'intensité mesurée de la lampe étalon,  $t_{etal}$  et  $t_{exp}$  les temps d'acquisition de la lampe étalon et de la mesure.

L'étalonnage a également été réalisé pour les deux filtres utilisés et les deux largeurs de fente d'entrée quand cela était possible. En effet, la lampe est étalonnée pour un courant donné et placée dans les mêmes conditions de visées que lors de l'expérience.

#### Étalonnage en longueur d'onde

L'étalonnage en longueur d'onde a pour principal objectif de recaler en longueur d'onde les spectres mesurés. En effet, la dispersion linéaire représente la bande spectrale obtenue en sortie dans le plan focal. Cette bande varie avec la longueur d'onde. Elle dépend aussi du réseau utilisé.

De plus, le réseau est déplacé à l'aide d'un moteur et d'engrenage présentant un jeu mécanique. Ceci se traduit en pratique par un déplacement en longueur d'onde.

L'étalonnage en longueur d'onde se fait avec une lampe ayant un spectre de raies, par exemple la lampe Hg - Cd possédant un spectre bien connu et dans le domaine de longueur d'onde des mesures. De plus le spectre de raies permet de déterminer la résolution spectrale du dispositif. Sur la figure 3.31, on peut voir le spectre de la lampe Hg - Cd de 360 à 600 nm :



Figure 3.31 : Spectre de la lampe Hg - Cd

Dans le contexte expérimental, l'étalonnage n'est pas nécessaire pour évaluer l'élargissement d'une raie et les longueurs d'onde visées sont aisément identifiables. Celui-ci a toutefois permis de vérifier la fonction d'appareil calculée précédemment.

L'importance d'obtenir des mesures précises dont l'erreur est connue est indispensable pour l'exploitation des visées spectrométriques. Ces visées ont pour objectif une détermination expérimentale de la température et de la densité électronique en procédant comme décrit au Chapitre 2.

## 3.2.2 Contrôles sous Labview

Ce paragraphe voit la présentation du système de contrôle-commande. L'environnement Labview de National Instruments a notamment été choisi pour sa souplesse d'utilisation, tant en terme d'évolution du nombre ou du type d'entrée sortie que pour ses possibilités de configuration. En effet, au fil des expérimentations, de nouvelles contraintes sont apparues dans la commande du système, ce qui fait de l'environnement Labview un très bon outil de prototypage. Au terme du développement, le système devrait être piloté par un automate assurant les fonctions de contrôle-commande d'un système industriel. L'acquisition de différentes grandeurs physiques du système permet de donner l'état du système en temps réel et d'enregistrer ces mesures en vue d'une exploitation ultérieure.

Les grandeurs permettent de se placer dans les conditions expérimentales souhaitées. En effet, de nombreux essais ont été réalisés afin d'obtenir un fonctionnement stable et répétable. Les conditions expériementales décrites à la fin de ce chapitre correspondent au cas le plus satisfaisant.

Donc, les grandeurs mesurées donnent une information en temps réel de l'état du système. Ceci permet un contrôle des grandeurs critiques comme peuvent l'être les différentes températures (par exemple, le refroidissement réalisé par circulation d'eau ne doit jamais dépasser la température d'évaporation sous peine de ne plus refroidir le système et de l'endommager de manière irréversible).

Enfin, l'acquisition des différentes grandeurs analogiques énumérées ci-après et représentées sur le schéma synoptique 3.32 sont nécessaires à l'exploitation des mesures.

## • Grandeurs électriques

- Courant électrique
- Tension
- Puissance électrique
- Températures
  - Corps de la torche (température de surface extérieure du bâti)
  - Eau de refroidissement anode (entrée et sortie)
  - Eau de refroidissement cathode (entrée et sortie)
  - Vapeur en différents points du circuit
  - Ambiante (température de l'atmosphère de l'enceinte)
  - Des gaz dans l'aspiration
- Débits
  - Eau de refroidissement (anode et cathode)
  - Des gaz plasmagènes (argon et vapeur)
- Pressions
  - Eau refroidissement
  - Vapeur en amont et en aval du régulateur de pression

En plus de ces mesures, d'autres grandeurs donnant l'état du système ont été acquises comme la dérivée de la tension (caractéristique du dysfonctionnement), mais aussi des grandeurs booléennes comme l'état de la commande de l'alimentation électrique, la position du vérin servant à l'amorçage de l'arc électrique,...

## 3.2 Dispositif de mesures



Figure 3.32 : Synoptique de l'installation et des mesures

Le dispositif matériel utilisé pour l'acquisition de ces grandeurs est un module de chez *National Instruments*. Le modèle de la station d'acquisition est *CompactDAQ*.



Figure 3.33 : Centrale d'acquisition

Le chassis comporte plusieurs *slots* sur lesquels viennent se connecter différents modules d'entrée/sortie. Pour exploiter ces grandeurs dans une structure de commande dévéloppé sur *Labview*, la station possède un convertisseur analogique numérique. Un des avantages de cette station, outre sa grande modularité, est la possibilité de configurer différentes bases d'horloge, jusqu'à 80 MHz modifiable par quatre compteurs en interne, pour les différentes entrées sorties. Enfin, une communication USB 2.0 relie la station à l'ordinateur.

La taux d'échantillonnage maximum est de 6,4  $MS.s^{-1}$  (million d'échantillons par seconde). Le choix d'une fréquence d'échantillonnage faible s'est imposé en raison du volume important de données ainsi enregistrées, les expérimentations pouvant se dérouler sur plusieurs heures.

# 3.3 Conditions expérimentales

La torche à arc non-transféré utilisé est un prototype en développement. De nombreuses contraintes sont apparues lors de la mise en place du dispositif expérimental. Les contraintes propres au plasma de vapeur sont par exemple la puissance relativement élevée à fournir à la torche à plasma ou les fortes températures atteintes par le plasma. En plus d'un choix rigoureux et cohérent du matériel, évoluant avec les nouvelles problématiques rencontrées, cette étude a nécessité de multiples phases de réglages afin d'obtenir le fonctionnement le plus stable possible et répétable.

Le gaz plasmagène, constitué de vapeur d'eau, contient également de l'argon, choix motivé par plusieurs raisons. En premier lieu, la torche a été dimensionnée pour fonctionner avec un débit de vapeur aux alentours de 10  $g.s^{-1}$ , or le dispositif vapeur, comprenant le surchauffeur limite ce débit à environ 2  $g.s^{-1}$ . Le surchauffeur permet une élévation de la température de la vapeur afin de compenser les pertes de températures dans les canalisations alimentant la torche à plasma malgré l'isolation thermique mise en place. De plus, la vapeur est débitée avec d'importantes fluctuations. Il était donc indispensable d'ajouter un gaz n'interagissant pas dans les réactions chimiques liées à la vapeur. Ceci a permis d'obtenir un débit total de gaz plus constant mais aussi d'atteindre un débit proche du débit pour lequel la torche a été dimensionnée.

La présence d'argon dans le gaz plasmagène a permis d'avoir des données spectroscopiques supplémentaires, intéressantes dans l'interprétation des résultats expérimentaux. En effet, les espèces qui seront étudiées en spectroscopie optique sont les composés de la molécule H<sub>2</sub>O, l'hydrogène et l'oxygène. Nous verrons par la suite que les longueurs d'onde  $\lambda_{H_{\alpha}} = 656,279$  nm et  $\lambda_{O} = 777$  nm ont une raie d'argon proche, respectivement  $\lambda_{Ar} = 696,5431$  nm et  $\lambda_{Ar} = 763,5106$  nm. L'acquisition de la raie H<sub>\beta</sub> à la longueur d'onde  $\lambda_{H_{\beta}} = 486,136$  nm a en plus été réalisée. Ceci correspond donc a trois longueurs d'onde acquises, trente fois selon le rayon et pour cinq hauteurs différentes.

Le nombre important de visées, proche de cinq cents, entraine de longues périodes d'expérimentations de l'ordre de plusieurs heures. De plus, les raies visées ayant une forte disparité en intensité, la mise en place de filtres différents permettant d'exploiter le spectromètre dans son cadre de fonctionnement a été nécessaire. Ceci demande une intervention manuelle dans l'enceinte de la torche à plasma : la manipulation devait alors être arrêtée afin de mettre en place les filtres optiques en toute sécurité, puis redémarrée afin de retrouver le même point de fonctionnement.

#### 3.3 Conditions expérimentales

Ceci a été difficile à réaliser, car pour la même configuration des grandeurs de réglage et des paramètres d'entrée, le point de fonctionnement peut légèrement différer. Ceci s'explique notamment car la seule entrée de réglage dont dispose le système est la valeur du courant électrique. Celle-ci sert à atteindre la puissance de fonctionnement, mais limitée par l'alimentation électrique elle-même. Une fois les autres paramètres fixés comme les débits des gaz plasmagènes afin de travailler à débit massique constant, si le système n'atteint pas exactement les mêmes conditions, il ne reste aucun paramètre de réglage permettant de modifier le point de fonctionnement.

Une variation du point de fonctionnement se voit notamment sur la puissance électrique fournie à la torche à plasma. Le courant étant régulé à une valeur constante par l'alimentation, la différence sur la puissance provient alors de la longueur de l'arc. La longueur de l'arc est principalement fixée par les débits des gaz plasmagènes, les caractéristiques géométriques de la torche à plasma, la pression en sortie de la pièce d'injection des gaz... Donc, la régulation du débit des gaz plasmagènes apparait comme un critère primordial à la stabilité du système. C'est à ce niveau que la reproductibilité des expérimentations a été délicate à obtenir de manière drastique. La régulation du débit de l'argon est aisée à obtenir, en revanche, la génération de la vapeur engendre de fortes fluctuations, comme il est présenté dans la suite de ce chapitre. De plus, la vanne régulant la vapeur ne fonctionnant pas dans sa plage de fonctionnement nomimal ne facilite pas un réglage précis du débit vapeur.

Un nouveau générateur vapeur a été commandé au LAEPT, mais n'a pas été mis en place pour ces expérimentations. Toutefois, ces caractéristiques sont résumées dans le tableau 3.4.

Caractéristiques techniques	avec aimant	
Constructeur	Chaudières Barata	
Type	EH 50kW	
Puissance électrique installée	50  kW	
Production horaire de vapeur	$65-70~\mathrm{kg}$	
Capacité	96 L	
Pression maximale en service	14 bars	
Température maximale de service	$198^{\circ}\mathrm{C}$	
Température minimale de service	$10^{\circ}\mathrm{C}$	
Pression de service	4à $13$ bars	
Circuit de commande	2 pressostats	
Type de régulation	TOR (Tout Ou Rien)	
Catégorie de risque (directive 97/23/CE)	III	

Tableau 3.4: Caractéristiques techniques du générateur vapeur Chaudières Barata



Figure 3.34 : Générateur vapeur Chaudières Barata EH 50kW

## Point de fonctionnement

Le point de fonctionnement stable, prenant en compte l'échauffement critique de certaines pièces telles que la température du bati ou de l'atmosphère de l'enceinte, permet de réguler un courant électrique d'au moins  $I_{arc} = 170$  A. Au delà, le déclenchement des protections thermiques de l'alimentation électrique se produit, ce qui entraine l'ouverture du contacteur et l'arrêt de l'alimentation électrique.

La tension obtenue dépend de la longueur de l'arc. Dans cette série d'expérimentations, la tension  $V_{arc}$  atteint une valeur fluctuant autour de 160 V.

La puissance électrique  $P_{\acute{e}lec}$  fournie au plasmatron a donc une valeur proche de 27 kW.

On peut voir sur les figures 3.35 et 3.36 l'évolution des grandeurs électriques en fonction du temps.

Sur ces graphes, deux phases peuvent être clairement distinguées : le transitoire et le régime établi. Toutes les mesures spectrométriques ont été réalisées pendant la phase de régime établi.

On remarque également les fluctuations de l'amplitude de la tension. Celles ci sont directement corrélées avec les fluctuations de la pression de la vapeur générée comme montré sur les figures 3.37 et 3.38.

Le fait d'avoir dû interrompre la séance d'expérimentations justifie la présentation de ces deux graphes.

Sur les courbes de la figure 3.37, la pression de la vapeur varie, n'interférant pas ou très



aburga ab

Figure 3.35 : Évolution de la tension et du courant

2 28

2.26

22

0.2

0.15

0.1

0.05

2.22

2.24

Débit vapeur (g.s-1)

232 23





Figure 3.37 : Évolution du débit et de la pres-Figure 3.38 : Évolution du débit et de la pression relative pour le mélange 1 sion relative pour le mélange 2

peu avec le débit de vapeur. En revanche, sur la figure 3.38, la variation de la pression de la vapeur se retrouve davantage sur le débit. Pour cela, par la suite, deux cas seront systématiquement traités, correspondant à ces deux cas de figure.

Pour le débit massique de la vapeur, nous allons alors considérer deux cas représentants les valeurs moyennes des deux débits massiques de la vapeur résumés dans le tableau 3.5.

Tablea	u 3.5: Débits	massiques	$consid{\acute{e}r}\acute{es}$	pour la	vapeur
	mélange 1	$<\dot{m}_{vapeur}$	$_1 >= 1, 3'$	$7  {\rm g.s^{-1}}$	_
	mélange $2$	$< \dot{m}_{vapeur}$	$_2 >= 1,92$	$2 \text{ g.s}^{-1}$	_

Le débit d'argon est quant à lui parfaitement régulé à 75  $\text{L.min}^{-1}$  ce qui, dans nos conditions expérimentales, correspond à un débit massique de 2,08 g.s<sup>-1</sup>.

Après une première partie rappelant la théorie nécessaire à l'appréhension des résultats expérimentaux, ce troisième chapitre effectue la transition avec la pratique. L'évolution de l'ensemble de la manipulation, de la mise en place du cahier des charges à la réalisation de la version actuelle de la torche a déjà été rédigée lors des travaux de thèse de M. Chagny. Ici, seules la présentation du système de départ et son évolution ont été présentées. Les progrès accomplis sont suffisants pour réaliser une première série d'expérimentation à valeur scientifique, créant ainsi une base de données et mettant à jour les points à améliorer.

La description du dispositif expérimental donne aussi une image du travail accompli menant aux résultats expérimentaux présentés dans le chapitre 4. Il se décompose en plusieurs approches avec tout d'abord une approche assez simpliste du problème posé, basé sur les caractéristiques géométriques de la torche à plasma, donnant une estimation qui s'avérera assez pertinente. Ensuite vient l'exploitation des mesures spectrométriques, parfois redondantes afin de corroborer les résultats entre eux, pour la détermination de la température et de la densité électronique spatialement dans le jet plasma.

La densité électronique est l'autre caractéristique importante des plasmas thermiques. Elle sera déterminée au centre du jet plasma à partir de la raie  $H_{\beta}$  pour deux hauteurs. Plus en aval de la torche, l'intensité mesurée est trop faible pour être utilisable.

# Chapitre 4 Caractérisation de la torche à plasma vapeur

Une majeure partie de ce travail de thèse était d'optimiser une torche à arc non-transféré pour la production d'un plasma de vapeur d'eau en continu avec une usure limitée ainsi qu'une grande stabilité de fonctionnement. Les chapitres précédents montrent que cet objectif a été atteint. La seconde partie du travail expérimental consiste à caractériser la nature du plasma produit.

En premier lieu, les conditions expérimentales sont rappelées. Le point de départ de l'exploitation des résultats expérimentaux est la composition du plasma qui dépend naturellement de la température. D'après les conditions expérimentales, la composition du plasma est déterminée par un code de calcul interne au LAEPT développé par le Professeur P. André, basée sur la minimisation de l'enthalpie libre de Gibbs. Il donne l'évolution de la concentration des espèces en fonction de la température du plasma et permet par là même de calculer la conductivité électrique et l'enthalpie en fonction de la température.

En se basant sur les mesures expérimentales de grandeurs électriques et fluidiques et sur les propriétés de la torche à plasma ayant servi aux expérimentations, la conductivité électrique et l'enthalpie massique peuvent ainsi être calculées selon une autre approche. Une comparaison avec les résultats du code de calcul donnent une première estimation de la température.

Ensuite, les mesures spectrométriques sont traitées afin de remonter à des profils de températures du jet plasma (température en sortie de torche), c'est à dire, l'évolution de la température en fonction du rayon.

Grâce aux acquisitions spectrales de la raie  $H_{\beta}$ , il est possible d'estimer la densité électronique, qui, comparée avec les courbes de composition autorise une nouvelle estimation de la température.

Enfin, la validation de l'hypothèse d'équilibre du plasma est démontrée.

L'ensemble de ces résultats donne une caractérisation physico-chimique complète du plasma expérimental.

#### Rappel des grandeurs expérimentales

Les principales caractéristiques expérimentales sont résumées afin de rappeler dans quelles

conditions les résultats ont été obtenus.

Le tableau 4.1 récapitule les caractéristiques électriques du dispositif lors des essais.

Tableau 4.1 <i>:</i>	Caractéristiques électriques des essais		
	Courant	170 A	
	Tension	160 V	
	Puissance	27  kW	

Les débits massiques des gaz constituant le gaz plasmagène, ainsi que leurs proportions, sont rassemblés dans le tableau 4.2.

	mélange 1	mélange 2
$\dot{m}_{vapeur}$	$1,37 \text{ g.s}^{-1}$	$1,92 \text{ g.s}^{-1}$
$\dot{m}_{ m Ar}$	$2,08 \text{ g.s}^{-1}$	$2,08 \text{ g.s}^{-1}$
$\dot{m}_{total}$	$3,45 \text{ g.s}^{-1}$	$4,00 \text{ g.s}^{-1}$
$X_{vapeur}$	$39,71\%_m$	$48\%_m$
$X_{ m Ar}$	$60,29\%_{m}$	$52\%_m$

 Tableau 4.2: Caractéristiques des mélanges 1 et 2

# 4.1 Composition du plasma

La composition du plasma est une information importante. En effet, elle renseigne la concentration théorique des différentes espèces du plasma en fonction de la température. La pression considérée est la pression atmosphérique et les équilibres thermique et chimique sont considérés comme satisfaits. Les courbes de composition du plasma sont tracées pour les deux mélanges de vapeur et d'argon présentés précédemment dans le tableau 4.2.

Les espèces considérées sont : 12 espèces monoatomiques (Ar, Ar<sup>+</sup>, Ar<sup>++</sup>, Ar<sup>+++</sup>, H, H<sup>-</sup>, H<sup>+</sup>, O, O<sup>-</sup>, O<sup>+</sup>, O<sup>++</sup>, O<sup>+++</sup>), électrons (e<sup>-</sup>), 9 espèces diatomiques (H<sub>2</sub>, H<sub>2</sub><sup>-</sup>, H<sub>2</sub><sup>-</sup>, O<sub>2</sub>, O<sub>2</sub><sup>-</sup>, O<sub>2</sub><sup>+</sup>, OH, OH<sup>-</sup>, OH<sup>+</sup>) et 8 espèces poly-atomiques (H<sub>2</sub>O, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O<sup>+</sup>, H<sub>3</sub>O<sup>+</sup>, H<sub>3</sub><sup>+</sup>, HO<sub>2</sub>, HO<sub>2</sub><sup>-</sup>, O<sub>3</sub>).

Remarque : la concentration a été limitée à  $10^{19}$  m<sup>-3</sup> soit une amplitude de concentration

de  $10^6~{\rm m}^{-3}.$  En des sous de cette valeur, les espèces sont considérées comme largement minoritaires.



Figure 4.1 : Courbes de composition du mélange 1



Figure 4.2 : Courbes de composition du mélange 2

De faibles différences apparaissent entre les compositions des deux mélanges. On peut remarquer que la concentration de  $H_2O$  devient supérieure à celle de l'Ar dans le cas du mélange 2.

L'objectif étant de récupérer de l'hydrogène du plasma de vapeur d'eau, il est à noter que H atteint son maximum pour une température voisine de 4000 K. O suit la même tendance que H, à un facteur deux près (la présence de OH modifie le rapport à la stoechiometrie entre O et H).

Tout d'abord,  $H_2O$  se dissocie en  $H_2$ , O, puis H et O puis se recombine en  $O_2$ , OH et  $HO_2$ . Ensuite apparaissent les espèces ionisées  $H^+$ ,  $O^+$  et  $Ar^+$  ainsi que les électrons  $e^-$  à partir de 5000 K.

# 4.2 Estimation de la température du plasma argon/vapeur

La température est une information essentielle pour la caractérisation d'un plasma. Sa détermination permet notamment d'étudier le couplage entre l'énergie électrique et l'énergie stockée sous forme d'enthalpie dans le plasma. Dans ce chapitre, plusieurs méthodes de détermination de la température sont employées. Les deux premières méthodes sont basées sur l'évaluation de la conductivité électrique et l'enthalpie massique du plasma qui permettent de calculer ensuite la température moyenne du plasma. La dernière méthode est basée sur le traitement des spectres d'émission acquis sur plusieurs hauteurs et le long du rayon du jet plasma. Cette technique permet d'obtenir des profils radiaux en température.

## 4.2.1 Conductivité électrique

D'après [André 01], la conductivité électrique peut être déterminée à partir de calculs simplifiés basés sur la géométrie de la torche à plasma. Une comparaison avec la méthode complète de calcul justifie cette approximation. Dans ce qui suit, le calcul est effectué dans l'autre sens, il sert à déterminer une conductivité électrique à partir de la géométrie de la torche à plasma. Cette estimation de la température sera comparée à celle déterminée d'après les acquisitions spectrales.

D'après les grandeurs géométriques et la conception de la torche à plasma, la longueur de l'arc peut être bornée. Sa distance minimale d'accroche au dela de l'épaulement de l'anode est limitée selon l'encadrement 3.3. Si on suppose qu'il ne sort pas du plasmatron, on peut définir une longueur minimale de l'arc électrique. La figure 4.3 représente schématiquement les longueurs d'arc considérées.

## 4.2 Estimation de la température du plasma argon/vapeur



Figure 4.3 : Représentation schématique de la longueur d'arc

D'après la géométrie de la torche, la longueur de l'arc est donc comprise entre :

$$101 \text{ mm} \le L_{arc} \le 107 \text{ mm} \tag{4.1}$$

Mais il faut nuancer ce résultat. En effet, sans observation de l'arc électrique, il est très difficile de donner une longueur exacte. L'arc peut par exemple sortir de la torche ou ne pas être rectiligne mais onduler en raison d'une injection de gaz imparfaite ou encore dû à la condensation en paroi de la vapeur d'eau.

La longueur de l'arc est corrélée au champ électrique et à la conductivité électrique. En négligeant les chutes de tension anodique et cathodique, on peut exprimer le champ électrique E en V.m<sup>-1</sup> selon la relation [Fauchais 07] :

$$E \approx \frac{U}{L_{arc}} \tag{4.2}$$

avec U la tension aux bornes de l'arc en V et  $L_{arc}$  la longueur de l'arc en m. En supposant le courant électrique réparti de manière homogène, la densité de courant j en A.m<sup>-2</sup> est :

$$j = \frac{I}{S_{arc}} \tag{4.3}$$

avec I l'intensité du courant en A et  $S_{arc}$  la section de l'arc en  $m^2$ .

#### Section de l'arc électrique

L'estimation de la section de l'arc électrique est délicate. L'arc électrique est forcément concentré à l'intérieur de la torche. D'après la figure 4.3 le plus petit diamètre est celui de l'anode. Il fixe alors le diamètre maximum de l'arc. Dans cette configuration, le rayon maximal de l'arc vaut  $R_{arc} = 5$  mm.

Mais l'arc n'occupe pas la totalité de l'espace. Différents modèles existent pour définir le profil de conductivité électrique dans le canal, comme un modèle consistant à considérer la valeur moyenne de la conductivité électrique sur la totalité du rayon ou encore un modèle Dirac [EDF 84]. Le modèle canal est un compromis qui consiste à donner deux niveaux à la conductivité électrique. Elle atteint une valeur  $\sigma$  pour un rayon compris entre 0 et  $r_c$  et zéro ailleurs. La détermination de  $r_c$  repose sur la minimisation du champ électrique E déterminé à partir de  $\sigma$ . Cette méthode est basée sur le principe du minimum de Steenbeck. Il donne de très bons résultats mais doit être utilisé avec beaucoup de précautions. Le rayon  $r_c$  est habituellement assimilé au rayon maximal de l'anode divisé par deux.

Pour les calculs de la conductivité électrique (et de l'enthalpie massique par la suite), deux cas seront donc traités. Tout d'abord, le cas de la section maximale que peut atteindre l'arc. Ce cas peu réaliste permet de majorer la section de l'arc électrique et donc de majorer la conductivité électrique et l'enthalpie massique. Le second cas, plus réaliste, correspond au rayon de l'arc électrique égal au rayon maximal divisé par deux.

On obtient alors la relation suivante donnant une estimation de la conductivité électrique dépendant des grandeurs géométriques et électriques :

$$\sigma \approx \frac{L_{arc}}{S_{arc}} \times \frac{I}{U} \approx \frac{L_{arc}}{\pi (R_{arc})^2} \times \frac{I}{U}$$
(4.4)

En considérant les deux cas, la conductivité électrique est comprise entre ces deux valeurs :

- avec 
$$R_{arc} = R_{max}$$
:  $\sigma \approx 1400 \text{ S.m}^{-1}$ 

- avec 
$$R_{arc} = \frac{R_{max}}{2} : \sigma_{max} \approx 5600 \text{ S}^{-1}.\text{m}^{-1}$$

L'évolution de la conductivité électrique en fonction de la température diffère peu selon les deux mélanges étudiés.



Figure 4.4 : Conductivité électrique

La courbe en pointillés correspond à la conductivité électrique pour le mélange 1. À cette échelle, elle est confondue avec la courbe pleine représentant la conductivité électrique pour le mélange 2.

L'ajout des valeurs numériques calculées précédemment sur l'évolution de la conductivité électrique donne, par comparaison une plage de température comprise entre 9200 K et 12700 K.



Figure 4.5 : Comparaison entre la conductivité électrique calculée et celle estimée

La plage trouvée est étendue mais assure un encadrement de la température atteinte par

le système. De plus les températures trouvées sont plus élevées que celles déterminées à partir des mesures spectrométriques car ces températures sont à l'intérieur de la torche à plasma alors que les mesures spectrométriques informent sur la température en sortie de torche.

## 4.2.2 Enthalpie massique

L'enthalpie massique fait partie des grandeurs nécessaires pour la caractérisation de la torche à plasma. Un code de calcul interne au laboratoire permet de déterminer l'évolution de l'enthalpie massique en fonction du point de fonctionnement défini précédemment (courant - tension, débit gaz plasmagène, pression - température de fonctionnement).

Un bilan thermique permet de déterminer la puis sance du plasma. L'expression de  ${\cal P}_{plasma}$  s'écrit :

$$P_{plasma} = P_{\acute{e}lec} - P_{dissip\acute{e}e} \tag{4.5}$$

telle que :

$$P_{dissip\acute{e}e} = C_{eau} \times M_{vol.\ eau} \left( \dot{\rho}_{anode} (T_{S\ anode} - T_{E\ anode}) + \dot{\rho}_{cathode} (T_{S\ cathode} - T_{E\ cathode}) \right)$$

$$(4.6)$$

avec  $C_{eau}$  la capacité thermique massique de l'eau en J.kg<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>,  $M_{vol.\ eau}$  la masse volumique de l'eau en kg.m<sup>-3</sup>,  $\dot{\rho}$  le débit volumique en m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup> et  $T_E$  et  $T_S$ , respectivement les températures d'entrée et de sortie du refroidissement en K.

Les données expérimentales conduisent à une puissance dissipée par le refroidissement égale à  $P_{dissipée} \approx 8$  kW. La puissance plasma est égale à 19 kW. L'enthalpie massique se calcule suivant la relation 4.7 :

$$H = \frac{P_{plasma}}{\dot{m}} \frac{S_{max}}{S_{arc}} \tag{4.7}$$

avec  $S_{max}$  correspondant à la section maximale de rayon  $R_{max}$  et  $S_{arc}$  est la section de l'arc électrique calculée pour le rayon  $R_{arc}$ . Le rapport  $\frac{S_{max}}{S_{arc}}$  est un facteur correctif permettant de considérer le fait que l'intégralié du flux du gaz plasmagène ne traverse pas la section de l'arc.

Le premier calcul correspond au cas extrême où l'on considère que  $S_{arc} = S_{max}$ . Dans ce cas, l'enthalpie vaut  $5, 5 \times 10^6 \text{ J.kg}^{-1}$  et  $4, 7 \times 10^6 \text{ J.kg}^{-1}$  respectivement pour un débit massique totale de  $\dot{m} = 3, 45 \text{ g.s}^{-1}$  et  $\dot{m} = 4, 00 \text{ g.s}^{-1}$ .

#### 4.2 Estimation de la température du plasma argon/vapeur

Considérons le cas pris pour la conductivité électrique où la section de l'arc  $S_{arc}$  est égale à  $S_{max}/4$ .

L'enthalpie massique ainsi calculée vaut  $2, 2 \times 10^7$  J.kg<sup>-1</sup> et  $1, 9 \times 10^7$  J.kg<sup>-1</sup> respectivement pour un débit massique total de  $\dot{m} = 3,45$  g.s<sup>-1</sup> et  $\dot{m} = 4$  g.s<sup>-1</sup>.

Les résultats sont très différents. La comparaison avec l'évolution de l'enthalpie massique calculée théoriquement donne la température.

Ces calculs de puissance du plasma permettent de calculer une efficacité de couplage entre puissance électrique et plasma :

$$\eta = \frac{P_{plasma}}{P_{elec}} \tag{4.8}$$

La figure 4.6 compare l'enthalpie théorique du mélange plasmagène et l'enthalpie calculée à partir des caractéristiques de l'expérimentation et des grandeurs géométriques du plasmatron.



Figure 4.6 : Comparaison enthalpie massique

Cette comparaison permet ici encore d'estimer la température moyenne du plasma pour les deux sections d'arc considérées.

- avec  $R_{arc} = R_{max}$  : 3400 K  $\leq T \leq$  3500 K avec  $R_{arc} = \frac{R_{max}}{2}$  : 4800 K  $\leq T \leq$  8700 K

Les plages de températures obtenues sont très différentes. La plage de température obtenue dans le cas  $R_{arc} = R_{max}$  donne des résultats incohérents avec ceux obtenues à partir des acquistions spectrales. On peut donc affirmer que la section de l'arc n'est pas la section minimale de l'anode.

Ces calculs avaient montré une bonne cohérence dans les travaux de thèse de M. Chagny dans le cas d'un plasma d'air – argon. Avec un plasma constitué de vapeur, la condensation en paroi de la vapeur d'eau à l'intérieur de la torche a surement une influence. La section de l'arc est peut être encore plus faible que celle correspondant au rayon maximal de l'anode divisé par deux. De plus la condensation de la vapeur d'eau implique que le débit de vapeur mesuré avant l'entrée de la torche est différent de celui réellement présent dans le plasma. Malgré tout, les températures obtenues ici permettent de donner un échelle de température dans le cas d'un plasma constitué de vapeur et d'argon. L'influence des fluctuations de la pression de la vapeur en sortie de génératrice apparaissent encore dans ce cas.

En conclusion de cette partie, le calcul de grandeurs caractéristiques du système, comme la conductivité électrique et l'enthalpie massique du plasma, basé sur les caractéristiques physiques de la torche à plasma donne des renseignements sur l'état du plasma dans son ensemble. En ayant pour objectif l'obtention d'une température en sortie de torche, le calcul inverse donne des valeurs pour le dimensionnement de la torche à plasma.

Ces températures vont aussi pouvoir être comparées aux résultats obtenus par la suite.

## 4.2.3 Mesures spectrométriques

Les mesures spectrométriques effectuées ont pour objectif de caractériser de manière précise le panache plasma. Elles permettent notamment l'obtention des profils de température et de densité électronique.

Les espèces étudiées sont l'oxygène, l'hydrogène et l'argon. Les raie spectrales ayant fait l'objet d'un traitement sont présentées dans le tableau 4.3.

				*	
$\lambda$ (espèce)	$g_u$	$A_{ul}$	$E_l$	$E_u$	Précision NIST
$656,279 (H_{\alpha})$	6	$4,41 \times 10^{7}$	82259,158	97492,304	AA
$486,136~({\rm H}_{\beta})$	6	$2,0625\times 10^7$	82259,285	$102823,\!909$	AA
696,5431 (Ar)	3	$6,39 imes10^6$	93143,76	$107496,\!4166$	$\mathbf{C}$
706,7218 (Ar)	5	$3,80 \times 10^6$	93143,76	107289,7001	$\mathbf{C}$
763,5106 (Ar)	5	$2,45  imes 10^7$	93143,76	$106237,\!5518$	$\mathbf{C}$
777 (triplet O)	15	$3,40 \times 10^7$	73768,2	86629,3	AA

Tableau 4.3: Constantes spectroscopiques des espèces étudiées

Avec pour caractéristiques :

- $-\lambda$  : longueur d'onde en nm
- $-g_u$ : poids statistique du niveau haut
- $A_{ul}$ : probabilité de transition du niveau haut (u) vers le niveau bas (l) (s<sup>-1</sup>)
- $-E_l$ : énergie de niveau bas (l) en cm<sup>-1</sup>
- $E_u$ : énergie de niveau haut (u) en cm<sup>-1</sup>
- précision : AA = 1% et C = 25%

En fonction du réseau choisi, la plage de longueur d'onde visée varie. Le réseau 600 traits.mm<sup>-1</sup> offre une plage de longueur d'onde de l'ordre de 90 nm, alors que le réseau 1800 traits.mm<sup>-1</sup> offre une plage d'environ 25 nm. Le réseau 1800 traits.mm<sup>-1</sup> est utilisé pour la raie  $H_{\beta}$  car l'étude du profil nécessite une bonne résolution.

Les visées des différentes espèces du tableau 4.3 sont découpées en trois séries.

Les plages de visée choisies sont réalisées autour de longueur d'onde centrale.

– Longueur d'onde centrale à 485 nm pour la raie  $H_{\beta}$  de longueur d'onde  $\lambda_{H_{\beta}} = 486, 136 \text{ nm} - \text{réseau } 1800 \text{ traits.mm}^{-1}$ 



Figure 4.7 : Acquisition spectrale autour de 485 nm

– Longueur d'onde centrale à 680 nm pour les raies  $H_{\alpha}$  de longueur d'onde  $\lambda_{H_{\alpha}} = 656,279$  nm et les raies d'Ar de longueurs d'onde  $\lambda_{Ar} = 696,5431$  nm et  $\lambda_{Ar} = 706,7218$  nm – réseau 600 traits.mm<sup>-1</sup>



Figure 4.8 : Acquisition spectrale autour de 680 nm

– Longueur d'onde centrale à 750 nm pour les raies Ar de longueur d'onde  $\lambda_{Ar} = 763,5106$  nm et pour le triplet d'O à  $\lambda_O = 777$  nm – réseau 600 traits.mm<sup>-1</sup>



Figure 4.9 : Acquisition spectrale autour de 750 nm

#### 4.2 Estimation de la température du plasma argon/vapeur

Pour chaque plage de visée, plusieurs acquisitions ont été réalisées suivant le rayon et pour 5 hauteurs différentes afin de caractériser le jet plasma. Les hauteurs correspondant à Z = 0 mm, Z = 5 mm, Z = 10 mm, Z = 15 mm, Z = 20 mm ont été retenues d'après les expérimentations précédentes. Mais la hauteur Z = 20 mm ne donne pas de résultat satisfaisant car les raies spectrales sont noyées dans le bruit de mesure.

Pour chaque hauteur, une acquisition, dont la durée varie en fonction de la saturation rencontrée, est réalisée tous les millimètres suivant le rayon, pour une plage totale d'environ 30 mm. Le plasma comporte une symétrie de révolution. Pour cela, chaque spectre est recentré par rapport à son maximum d'intensité permettant ainsi l'application de l'inversion d'Abel. Sur les figures suivantes sont représentées ces acquisitions étalonnées en intensité et en longueur d'onde.

## 4.2.3.1 Profil d'intensité intégrée et étalonnée

Les figures suivantes représentent l'intensité intégrée et corrigée des spectres en fonction de la longueur d'onde et du rayon.



## - Hauteur Z = 0 mm et longueur d'onde centrale 485 nm

Figure 4.10 : Acquisitions spectrales autour de 485 nm pour Z = 0mm

Le spectre de la raie  $H_{\beta}$  varie en fonction du rayon. Cette évolution respecte la symétrie de révolution qu'implique la forme du jet plasma.


### – Hauteur Z = 0 mm et longueur d'onde centrale 680 nm

Figure 4.11 : Acquisitions spectrales autour de 680 nm pour Z = 0mm

Pour cet ensemble de spectres, la symétrie de révolution se retrouve. Les mesures sont étalonnées pour la plus forte intensité, c'est-à-dire la raie  $H_{\alpha}$  à la longueur d'onde  $\lambda_{H_{\alpha}} = 656, 279$  nm. La différence d'intensité avec les raies d'argon  $\lambda_{Ar} = 696, 5431$  nm et  $\lambda_{Ar} = 706, 7218$  nm implique un manque de précision sur celles-ci. L'avantage est que les les spectres ont été acquis au même instant. Ceci permet notamment de s'affranchir de variations d'intensités dues aux fluctuations. Ainsi la répartition spatiale des intensités peut être comparée.

### - Hauteur Z = 0 mm et longueur d'onde centrale 750 nm



Figure 4.12 : Acquisitions spectrales autour de 750 nm pour Z = 0mm

### 4.2 Estimation de la température du plasma argon/vapeur

On peut également remarquer la différence d'amplitude en terme d'intensité entre les raies d'oxygène à la longueur d'onde  $\lambda_O = 777$  nm et d'argon de longueur d'onde  $\lambda_{Ar} = 763,5106$  nm. On peut noter que les différentes espèces suivent la même tendance en fonction du rayon.

### – Hauteur Z = 5 mm et longueur d'onde centrale 485 nm



Figure 4.13 : Acquisitions spectrales autour de 485 nm pour Z = 5mm

Pour cette série d'acquisitions de la raie  $H_{\beta}$ , un bruit de fond important apparaît.

- Hauteur Z = 5 mm et longueur d'onde centrale 680 nm



Figure 4.14 : Acquisitions spectrales autour de 680 nm pour Z = 5mm

Avec l'éloignement des visées de la sortie de la torche, des fluctuations en intensité apparaissent. En effet, on ne retrouve pas l'intégration du signal sur la ligne de visée.

Toute intensité mesurée en périphérie du jet plasma se retrouve également au centre à cause de la symétrie de révolution du jet plasma. Il n'est donc pas possible que l'intensité ne soit pas maximum au centre de la visée.

Il ne peut pas y avoir de changement du sens de variation de l'intensité mesurée entre la périphérie et le centre. Les fluctuations restent cependant suffisamment faibles et permettent de déterminer un profil moyen. Ces acquisitions sont donc tout à fait exploitables.



### - Hauteur Z = 5 mm et longueur d'onde centrale 750 nm

Figure 4.15 : Acquisitions spectrales autour de 750 nm pour Z = 5mm

Cette visée radiale respecte la symétrie de révolution du jet plasma. Les spectres d'argon et d'oxygène suivent la même tendance.

À partir de la hauteur de 10 mm, la raie  $H_{\beta}$  a un niveau trop faible pour être exploitée.



### – Hauteur Z = 10 mm et longueur d'onde centrale 680 nm

Figure 4.16 : Acquisitions spectrales autour de 680 nm pour Z = 10mm

La figure 4.16 montre également des fluctuations de l'intensité du signal. Un profil moyen est toutefois définissable. En revanche, on voit de nouveau apparaître la raie d'hydrogène à 656,279 nm en s'éloignant de l'axe du jet plasma.

### - Hauteur Z = 10 mm et longueur d'onde centrale 750 nm



Figure 4.17 : Acquisitions spectrales autour de 750 nm pour Z = 10mm

Comme précédemment, des maxima d'intensité apparaissent et se retrouvent au dehors de l'axe du plasma. Une hypothèse peut être avancée pour justifier la forme de ces acquisitions : la fin du jet plasma présente une asymétrie. Cela signifie que le jet plasma peut présenter un défaut. Plus les visées sont effectuées loin de la sortie de la torche et plus la division du jet apparaît. Le jet n'est alors plus de révolution cylindrique.

– Hauteur Z = 15 mm et longueur d'onde centrale 680 nm



Figure 4.18 : Acquisitions spectrales autour de 680 nm pour Z = 15mm

Cette figure laisse apparaître une importante fluctuation. On voit très nettement que pour la visée effectuée à 1 mm l'intenstité varie presque du double du maximum obtenu au centre du jet plasma.

- Hauteur Z = 15 mm et longueur d'onde centrale 750 nm



Figure 4.19 : Acquisitions spectrales autour de 750 nm pour Z = 15mm

#### 4.2 Estimation de la température du plasma argon/vapeur

Enfin, le triplet d'oxygène à 777 nm a toujours un maximum au centre du jet plasma. Mais l'intensité de la raie ne s'annule pas en s'éloignant du centre du jet plasma. À seulement 15 mm de la sortie de la torche, l'oxygène se retrouve présent sur les 3 cm visés, contrairement à la raie  $H_{\alpha}$  qui elle présente toujours une forte variation centrée sur l'axe du jet plasma.

Il est à noter que les fluctuations inhérentes au système, présentent sur les acquisitions spectrales, prouvent que les mesures ne peuvent être extrêmement précises. L'inversion d'Abel effectuée par la suite donne de très bons résultats sur des signaux dont les lobes s'annulent. Dès qu'ils se retrouvent dans le niveau de bruit, le *fittage* effectué devient moins précis. Or l'inversion d'Abel est un calcul itératif qui débute justement avec des spectres de faible intensité par rapport au niveau de bruit. Cette erreur se retrouve sur l'ensemble de l'inversion d'Abel, d'autant plus négligeable que l'intensité à la fin du calcul de l'inversion d'Abel est importante.

Toutefois, en appliquant l'inversion d'Abel sur les courbes d'intensité intégrée et étalonnée, on peut déduire un profil de température en fonction du rayon par comparaison avec les calculs de compositions considérant l'équilibre chimique et thermique. Ces hypothèses doivent alors être vérifiées. Un moyen de le faire est la comparaison des intensités théoriques de chaque espèce avec les intensités mesurées après l'application de l'inversion d'Abel.

### Comparaison des intensités locales théoriques et expérimentales

Une espèce doit être choisi comme référence pour la comparaison : l'espèce majoritaire. Elle est celle qui est le plus rapidement à l'équilibre. En effet, son temps de réaction chimique est plus faible que celui des espèces minoritaires. Dans ce cas expérimental, l'hydrogène est majoritaire. Cette espèce suit donc la loi des gaz parfaits. La température déterminée à partir de l'hydrogène sera la plus juste. C'est donc naturellement cet espèce qui sera utilisée comme référence dans l'étude comparative des intensités théoriques et expérimentales.

Pour chaque hauteur et au centre du jet plasma, un coefficient est calculé afin de confondre l'intensité théorique de la raie  $H_{\alpha}$  avec son intensité mesurée, déterminée après inversion d'Abel. Ce coefficient est appliqué aux intensités expérimentales de l'argon et de l'oxygène qui vont alors être comparées aux intensités théoriques.

Les figures 4.20 et 4.21 représentent ces intensités pour les deux mélanges gazeux considérés.



Figure 4.20 : Intensité théorique et expérimentale comparées au centre pour Z = 0 mm, Z = 5 mm et Z = 10 mm (cas du mélange 1)

Pour le mélange 1, les intensités locales comparées correspondent. On peut donc conclure que pour le mélange 1, les espèces sont à l'équilibre.



Figure 4.21 : Intensité théorique et expérimentale comparées au centre pour Z = 0 mm, Z = 5 mm et Z = 10 mm (cas du mélange 2)

### 4.2 Estimation de la température du plasma argon/vapeur

La différence est un peu plus importante entre les intensités locales, mais reste très faible. La conclusion, à la vue de ces comparaisons, est que l'on peut considérer que l'équilibre thermique et chimique est atteint dès la sortie de la torche. Le profil de température du plasma peut donc être déduit des intensités expérimentales par comparaison avec la composition du plasma présentée 4.1.

### 4.2.3.2 Profil de température

Il s'agit des profils de températures déduits, par inversion d'Abel, des acquisitions spectrométriques selon le rayon de visée selon le principe exposé au Chapitre 2.

Les profils de température sont présentés en fonction de la hauteur de visée (Z = 0 mm, 5 mm et 10 mm) et en fonction de l'acquisition spectrale (soit autour de la fréquence centrale  $\lambda = 680$  nm soit  $\lambda = 750$  nm).

Dans chaque cas, la détermination du profil de température a été faite pour les deux mélanges gazeux considérés.

### Profil de température pour la hauteur correspondant à Z = 0 mm

– Acquisitions spectrales autour de la longueur d'onde centrale  $\lambda = 680$  nm





Figure 4.22 :  $H_{\beta}$  - 656 nm - mélange 1

Figure 4.23 :  $H_{\beta}$  - 656 nm - mélange 2





Figure 4.24 : Ar - 696 nm - mélange 1

Figure 4.25 : Ar - 696 nm - mélange 2



Figure 4.26 : Ar - 706 nm - mélange 1



Les profils de température donnent des plages de température cohérentes entre elles. Au centre du jet plasma, la température est comprise entre 8200 K et 9000 K.

– Acquisitions spectrales autour de la longueur d'onde centrale  $\lambda=750~\mathrm{nm}$ 



Figure 4.28 : Ar - 763 nm - mélange 1

Figure 4.29 : Ar - 763 nm - mélange 2

### 4.2 Estimation de la température du plasma argon/vapeur



Figure 4.30 : O - 777 nm - mélange 1



Les profils de température obtenues pour l'acquisition spectrale autour de la longueur d'onde centrale  $\lambda = 750$  nm conduisent à une température au centre du jet plasma autour de 8200 K. Elles sont dans l'ordre de grandeur des températures déterminées avec le calcul de la conductivité électrique et l'enthalpie massique.

### Profil de température pour la hauteur correspondant à Z = 5 mm

– Acquisitions spectrales autour de la longueur d'onde centrale  $\lambda = 680$  nm



Figure 4.32 :  $H_{\beta}$  - 656 nm - mélange 1

Figure 4.33 :  $H_{\beta}$  - 656 nm - mélange 2





Figure 4.34 : Ar - 696 nm - mélange 1







Figure 4.36 : Ar - 706 nm - mélange 1



La plage de température au centre du jet plasma est comprise entre 7100 K et 7400 K. – Acquisitions spectrales autour de la longueur d'onde centrale  $\lambda = 750$  nm



8500 Profil radial de température, longueur d'onde =763 5106bande d'incertitude å3k 8000 7500 7500 6600 5000 0.5 1 1.5 2 2.5 3 3.5 4 4.5 5 Rayon (mm)

Figure 4.38 : Ar - 763 nm - mélange 1

Figure 4.39 : Ar - 763 nm - mélange 2

### 4.2 Estimation de la température du plasma argon/vapeur



Figure 4.40 : O - 777 nm - mélange 1



Pour les acquisitions spectrales autour de la longueur d'onde centrale  $\lambda = 750$  nm donnent une plage de température au centre un peu plus élevée variant de 7100 K à 7700 K.

### Profil de température pour la hauteur correspondant à Z = 10mm

– Acquisitions spectrales autour de la longueur d'onde centrale  $\lambda=680~\mathrm{nm}$ 



Figure 4.42 : H - 656 nm - mélange 1

Figure 4.43 : H - 656 nm - mélange 2





Figure 4.44 : Ar - 696 nm - mélange 1





Figure 4.46 : Ar - 706 nm - mélange 1



À 10 mm de la sortie de la torche, la température au centre du jet plasma obtenue varie entre 7100 K à 7500 K. Ces températures sont assez proches de celles correspondantes à la hauteur 5 mm.

– Acquisitions spectrales autour de la longueur d'onde centrale $\lambda=750~\mathrm{nm}$ 



Figure 4.48 : Ar - 763 nm - mélange 1

Figure 4.49 : Ar - 763 nm - mélange 2

### 4.2 Estimation de la température du plasma argon/vapeur





Figure 4.50 : O - 777 nm - mélange 1

Figure 4.51 : O - 777 nm - mélange 2

La plage de température déterminée par les acquisitions spectrales de longueurs d'onde centrales plus élevées donne un encadrement de température entre 6600 K et 7000 K.

En plus de la valeur de la température, la forme de ces profils donne une information sur le modèle canal évoqué précédemment. En effet, sur les profils de température conçus à partir des acquisitions proches de la sortie de la torche, un point d'inflexion définit le profil du modèle canal. Il apparait aux alentours de 3 mm et correspond donc à environ la moitié du rayon minimal de l'anode. Ceci vient donc justifier le choix du calcul de la conductivité électrique et de l'enthalpie dans le cas d'un rayon moitié du rayon minimale de l'anode.

Les profils déterminés à des distances plus éloignées de la sortie de la torche sont moins propices à la détermination de ce point d'inflexion pour les raisons évoqués sur l'inversion d'Abel ne donnant pas de bons résultats sur des signaux de faibles niveaux.

On peut tracer l'évolution de la température au centre du panache plasma pour Z = 0 mm, Z = 5 mm et Z = 10 mm. On obtient alors, pour les deux mélanges :



Figure 4.52 : Évolution de la température suivant l'axe de révolution du plasma (mélange 1)



Figure 4.53 : Évolution de la température suivant l'axe de révolution du plasma (mélange 2)

Cette comparaison des températures au centre du jet plasma obtenues à partir des différentes longueurs d'onde montre plusieurs choses. Les températures coïncident entre elles. En effet, les températures obtenues lors d'acquisitions spectrales réalisées au même instant ( $H_{\alpha}$ , Ar(696 nm) et Ar(706 nm) puis Ar(763 nm) et O(777 nm)) ont leurs barres d'erreur qui se recouvrent. De plus, la tendance de l'évolution de la température en fonction de la hauteur des espèces précitées est la même.

### 4.3 Estimation de la densité électronique

La densité électronique est une grandeur importante pour la caractérisation du plasma vapeur argon. Par comparaison avec la concentration des électrons de la courbe de composition, la densité électronique permet de déterminer la température du jet plasma.

La densité électronique peut être obtenue à partir de la largeur à mi-hauteur sur un spectre non corrigé en amplitude. La courbe 4.54 décrit l'évolution de la densité électronique en fonction de l'élargissement Stark selon le modèle de Griem.



**Figure 4.54** : Évolution de la densité électronique en fonction de l'élargissement Stark de la raie  $H_{\beta}$ 

En effet, la correction en amplitude n'aura aucune influence sur la largeur à mi-hauteur. La correction en longueur d'onde peut apparaître nécessaire en première approche. Mais il s'avère qu'une erreur sur l'élargissement Stark n'implique qu'une très faible erreur sur l'ordre de grandeur de la densité électronique.

La sensibilité de la méthode est présentée Fig.4.55.



Figure 4.55 : Sensibilité de la densité électronique à une variation de largeur de l'élargissement Stark

La détermination de la densité électronique après correction et donc inversion d'Abel, donne des résultats peu concluant. En effet, l'inversion d'Abel s'applique quand il y a suffisament de signal, quand il est possible de réaliser un ajustement correct. En cas de signal dont l'intensité est proche du niveau de bruit, le *fittage* présente trop de solutions. Alors le *fittage* devient très étalé et donne beaucoup d'importance au lobe du profil (peu précis). Et cette erreur se retrouve tout de suite dans l'inversion d'Abel et se propage à tout le calcul.

Donc la méthode retenue est la détermination de la densité électronique à partir des spectres d'intensité de la raie  $H_{\beta}$  au centre du jet plasma, pour deux hauteurs : en sortie de torche puis 5 mm au dessus.

A partir du spectre de la raie  $H_{\beta}$ , une courbe fittée est calculée permettant de s'affranchir du bruit de mesure. Puis la largeur à mi-hauteur permet de déduire la densité électronique suivant les modèles présentés au chapitre 2. Les résultats sont donnés selon les modèles de Griem et Gigosos.

Pour la sortie de la torche, la figure suivante 4.56 montre le spectre de  $H_{\beta}$  et son ajustement par un profil de pseudo-Voigt.



Figure 4.56 : Raie  $H_{\beta}$  pour Z = 0 mm

La densité électronique pour l'élargissement à mi-hauteur du spectre vaut :

- pour le modèle de Griem :  $n_e = 1,81 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  pour le modèle de Gigosos :  $n_e = 1,66 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$

soit une densité électronique moyenne  $n_e = 1,73 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ .

Par comparaison avec la densité électronique des courbes de composition (Fig.4.1) la température obtenue est égale à environ 10000 K.

Le traitement du spectre de  $H_{\beta}$  à 5 mm donne les résultats suivants :



Figure 4.57 : Raie  $H_{\beta}$  pour Z = 5 mm

La densité électronique pour l'élargissement à mi-hauteur de cette courbe vaut :

– pour le modèle de Griem :  $n_e = 1,66 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 

– pour le modèle de Gigosos :  $n_e = 1,53 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 

soit une densité électronique moyenne  $n_e = 1,60 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ .

La température dans ce cas est là encore d'environ de 10000 K.

Les températures obtenues à travers différentes approches donnent des résultats assez similaires. Alors que le calcul de la conductivité électrique donne un fourchette de température assez large comprise entre 9200 K et 12700 K, mais cohérente, la comparaison de l'enthalpie massique semble la sous estimer avec des valeurs très étalées et comprises entre 3400 K et 8700 K en considérant les deux mélanges.

L'interprétation des mesures spectrométriques de l'espèce majoritaire  $H_{\alpha}$  donne un température aux alentours de 9000 K.

La détermination de ces grandeurs caractéristiques du plasma par comparaison entre théorie et expérimentale repose sur le fait que l'équilibre chimique est atteint. Dans le paragraphe 4.4 suivant, deux approches sont proposées afin de valider cette hypothèse.

## 4.4 Équilibre chimique

### 4.4.1 Vérification de l'équilibre chimique.

La détermination de la température et de la densité électronique est basée sur le fait que l'équilibre chimique est atteint. D'après [Vacher 08], nous allons vérifier si l'équilibre chimique est atteint à 1 cm de la sortie de la torche. La première étape de calcul est le temps de résidence. Le débit massique  $\dot{m}_{tot}$  est considéré constant (cf. tableau 4.2) et la masse volumique  $\rho$  des gaz plasmagènes est considéré à 373 K. La relation de continuité de masse conduit à écrire l'équation 4.9.

$$\dot{m}_{tot} = \rho S v \tag{4.9}$$

Avec S la section à travers le gaz s'écoule en m<sup>2</sup> et v la vitesse du flux en m.s<sup>-1</sup>.

La masse volumique est calculée à partir des masses volumiques de chaque espèce prenant en compte le pourcentage de chaque espèce dans la composition du gaz. La masse volumique du mélange vaut  $\rho_1 = 1.31$  kg.m<sup>-3</sup> dans le cas du mélange 1 et  $\rho_2 = 1.22$  kg.m<sup>-3</sup> pour le mélange 2.

La section considérée est celle de la sortie de la torche (cf. Fig 4.3 dont le calcul donne  $S = 1.77 \times 10^{-4} \text{ m}^{-2}$ ).

Pour le mélange 1, la vitesse d'écoulement vaut  $v_1 = 14,9 \text{ m.s}^{-1}$  et pour le mélange 2  $v_2 = 18,6 \text{ m.s}^{-1}$ .

En se plaçant à 1 cm de la sortie de la torche, on peut calculer le temps de résidence valant  $\Delta t_1 = 0,67$  ms pour le mélange 1 et  $\Delta t_2 = 0,54$  ms.

La loi de Fourier permet de déterminer le temps qu'il faut pour chauffer le gaz de 8000 K à 9000 K comme suit :

$$\Delta t = \frac{\lambda S \Delta T}{v \Phi} \tag{4.10}$$

Avec  $\lambda$  la conductivité thermique du mélange gazeux en W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> (pour le mélange 1  $\lambda = 2,23 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et pour le mélange 2  $\lambda = 2,10 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ), S la section en sortie de la torche considérée comme la section du flux gazeux,  $\Delta T$  la variation de température de 8000 K à 9000 K et  $\Phi$  le flux de chaleur transféré au plasma. En considérant un coefficient de couplage égal à 70%,  $\Phi \approx 0,70 \times P_{\acute{elec}}$  en W.

Mélange 1 : 
$$\Delta t_1 = 1, 4 \ \mu s$$
  
Mélange 2 :  $\Delta t_2 = 1, 1 \ \mu s$ 

Dans un plasma de vapeur et d'argon, l'équilibre chimique pour l'espèce majoritaire peut être considéré comme atteint très rapidement au bout d'un temps aux alentours de  $10^{-5}$  s. On peut donc considérer le plasma à l'équilibre, au moins pour les espèces majoritaires.

### 4.4.2 Généralités sur les écoulements

Pour connaître le type d'écoulement et le profil de vitesse d'écoulement du plasma en sortie de torche, il est utile d'utiliser plusieurs nombres adimensionnés, notamment les nombres de Reynolds Re et de Richardson Ri.

Le nombre adimensionné de Reynolds Re est le rapport entre la force d'inertie et les forces de viscosité, défini par :

$$Re = \frac{\rho_{inj} \ v_{inj} \ D}{\mu_{inj}} \tag{4.11}$$

avec  $\rho$  la masse volumique du gaz plasmagène injectée, dépendante de la température, D le diamètre de la buse de sortie et  $\mu$  la viscosité dynamique. L'indice *inj* indique que la valeur est associée à la sortie de la tuyère (z=0).

La valeur du nombre de Reynolds indique si l'écoulement est de type laminaire ou turbulent. Généralement la valeur 2300 est admise comme la limite entre les deux régimes, le régime laminaire correspondant aux valeurs inférieures de Re.

Le nombre de Richardson Ri indique si le gaz ou plasma injecté dans un milieu dont les caractéristiques sont précisées par l'indice  $\infty$  a une forme et un comportement de type panache ou jet :

$$Ri = \frac{(\rho_{\infty} - \rho_{inj}) \ g \ D}{\rho_{\infty} v_{inj}^2}$$

$$\tag{4.12}$$

Si Ri = 0, l'écoulement libre est de type "jet", guidé par la quantité de mouvement. Si Ri > 1, l'écoulement libre est de type "panache", guidé par la flottabilité, c'est à dire par leur propension à être soumis aux forces d'Archimède.

Le nombre de Richardson permet de calculer deux nouveaux nombres adimensionnés  $V_1$ et  $Z_1$  représentatifs respectivement de la vitesse du gaz le long de la ligne moyenne en fonction de la distance à la tuyère [Rodi 82, E. Deri 08] :

$$V_1 = \frac{v_{cl}}{v_{inj}} \Gamma^{-\frac{1}{4}} R i^{-\frac{1}{2}}$$
(4.13)

$$Z_1 = \frac{z}{D} \Gamma^{-\frac{1}{4}} R i^{\frac{1}{2}}$$
(4.14)

en notant  $\Gamma = \frac{\rho_{inj}}{\rho_{\infty}}$ .  $v_{cl}$  est la vitesse v(z) non adaptée aux conditions aux limites. Pour satisfaire les conditions limites, il faut la recaler par rapport à la vitesse d'injection  $v_{inj}$ .

En fonction du nombre de Richardson :

– pour les jets :

$$V_1 = \frac{6.2}{Z_1} v_{cl}(z) = \frac{6, 2D}{z} \Gamma^{1/2} v_{inj}$$
(4.15)

– pour un panache :

$$V_1 = \frac{3.5}{\sqrt[3]{Z_1}} v_{cl}(z) = 3.5 \sqrt[3]{\frac{\Gamma Ri D}{z}} v_{inj}$$
(4.16)

### 4.4.3 Application au mélange gazeux argon/vapeur

Une interface Matlab a été développée pour calculer le profil de vitesse du mélange gazeux à la sortie de la tuyère.

L'écoulement du jet de plasma se fait dans l'air. Il faut calculer le nombre de Richardson. La vitesse d'injection est calculée à partir du débit du mélange argon-vapeur connu d et de la section de sortie de la torche S=1,77 cm<sup>2</sup> selon :

$$v_{inj} = \frac{d}{S} \tag{4.17}$$

### 4.4 Équilibre chimique

Le gaz étant injectée dans l'air à température ambiante,  $\rho_{\infty} = \rho_{air}(295 \text{ K}) = 1,293 \text{ kg.m}^{-3}$ . La masse volumique  $\rho_{inj} = \rho_{qaz}$  dépend bien sur de sa composition.

La figure 4.58 montre le résultat obtenu avec l'interface Matlab en prenant un débit massique de vapeur/argon de 3,45  $g.s^{-1}$  (mélange 1).



Figure 4.58 : Interface Matlab pour les calculs d'écoulement

Les calculs montrent que l'écoulement du plasma est de type jet avec une vitesse de sortie d'environ 15 m.s<sup>-1</sup> et selon le profil présenté Figure 4.58. Le gaz est ensuite transformé en plasma via le transfert d'énergie dû à l'arc électrique. Les particules du plasma (ions, atomes, electrons, molécules) chauffées à environ 9000 K auront des vitesses individuelles nettement supérieures (de l'ordre de 1000-2000 m.s<sup>-1</sup>) mais selon une distribution spatiale isotrope. La vitesse moyenne du jet plasma peut être considérée comme la vitesse moyenne du jet de gaz injecté le long de la ligne moyenne (axe z).

Des calculs cinétiques ont été effectués pour un plasma d'air à partir d'un code développé au laboratoire, il ne permet pas actuellement de traiter le cas du mélange argon-vapeur. Cependant, pour un même débit massique de 3,615 g.s<sup>-1</sup>, ces calculs effectués entre deux températures de 9000 et 8000 K et présentés Figure 4.59 montrent que l'équilibre chimique est atteint au bout de  $T_{eq}=4 \ 10^{-4}$  s.

En supposant que l'ordre de grandeur est le même pour le plasma argon/vapeur, on peut



Figure 4.59 : Evolution de la concentration des espèces d'un plasma d'air en fonction du temps pour une transition en température de 9000 à 8000 K

estimer une longueur de mise à l'équilibre chimique du plasma  $z_{eq}$  tel que :

$$T_{eq} = \int_0^{z_{eq}} \frac{1}{v(z)} dz = \int_0^{z_{cl}} \frac{1}{v_{inj}} dz + \int_{z_{cl}}^{z_{eq}} \frac{z}{6, 2 v_{inj} \Gamma^{1/2} D} dz$$

avec  $z_{cl}$  la longueur pour laquelle  $v_{cl}(z) = v_{inj}$ . Il en résulte que :

$$z_{max} = \sqrt{12, 4 \Gamma^{1/2} D v_{inj} \left( T_{eq} - \frac{z_{cl}}{v_{inj}} \right) + z_{cl}^2}$$
(4.18)

Avec une vitesse d'injection identique d'environ 15 m.s<sup>-1</sup>, la longueur nécessaire pour une mise à l'équilibre chimique serait de l'ordre de 1 cm. L'équilibre chimique est alors atteint à une distance de 1 cm.

Ces deux approches différentes visant à valider l'hypothèse de l'équilibre chimique permettent de valider la détermination des températures par comparaison avec les courbes de composition.

### 4.5 Perspectives

La torche à plasma fonctionne de manière stable et répétable pendant plusieurs heures avec un plasma constitué de vapeur d'eau. Les fluctuations du débit massique de la vapeur d'eau prouve la capacité de la torche à plasma à fonctionner dans des conditions fluctuantes.

#### 4.5 Perspectives

Cependant ce point reste à améliorer en vue de mesures plus précises, la génération de la vapeur doit délivrer un débit massique constant. Comme il a été présenté précédemment, le laboratoire a fait l'acquisition d'un générateur vapeur industriel. Sa mise en place et son utilisation nécessite toutefois des précautions. Une formation est notamment nécessaire à son utilisation. Ce problème résolu permettra l'obtention d'un plasma parfaitement connu et lèvera l'incertitude apportée par la prise en compte de deux mélanges comme présenté dans ces travaux.

L'objectif premier étant la récupération d'hydrogène, il faut connaitre précisément la répartition spatiale des différentes espèces présentes dans le jet plasma. Pour la production d'hydrogène, l'idéal serait d'avoir une séparation naturelle entre l'oxygène et l'hydrogène. En effet, cela faciliterait la récupération de l'hydrogène. Avec le fort gradient de température présent selon le rayon du jet plasma, des phénomènes de diffusion sont présents et le plasma n'est plus à l'équilibre en s'éloignant de son axe de révolution. La répartition des espèces ne respecte plus l'équilibre chimique, ce qui peut représenter un avantage car le but recherché est une répartition inhomogène des espèces. Plus la répartition sera inhomogène et plus il sera aisé de repérer localement l'hydrogène, ceci permettant de placer le récupérateur.

De plus, l'utilisation de l'inversion d'Abel montre ici ces limites. En effet, pour des raisons déjà expliquées, les résultats obtenues par ce biais sont très sensibles aux imperfections. Cette méthode donne de bons résultats dans le cas de mesures peu bruitées, mais dans le cas inverse, l'erreur se propage aux valeurs centrales. Or ici, un des objectifs principaux est la détermination de la concentration des espèces spatialement.

L'idée de prélever au sein même du jet plasma un échatillon offrirait la possibilité de déterminer la véritable composition du plasma sans incertitude liée à l'inversion d'Abel. L'idéal serait donc d'avoir un récupérateur physiquement présent dans le jet plasma. Celui ci, couplé à une mesure par chromoatographie, donnerait la composition du plasma en un point précis du jet plasma.

Une étude a permis de montrer la faisabilité d'un tel procédé et a donné le débit d'eau nécessaire au refroidissement permettant la survie de la pièce. Un prototype de séparateur physique a donc été créé et testé. Il se présente grossièrement sous la forme d'un cylindre : le point de prélèvement visé est à l'intérieur du cylindre, le reste du jet plasma étant rejeté à l'extérieur. Durant mes travaux de recherche, la partie séparatrice, c'est-à-dire le sommet du cylindre, a été testée avec succés lors des essais sur le plasma d'air-argon. Elle est constituée d'un cylindre en cuivre refroidi par circulation d'eau. La viabilité est excellente, l'usure n'a pu être mesurée sur les essais réalisés d'une durée de trente minutes.

Outre l'intérêt de s'affranchir de l'inversion d'Abel, l'intérêt du récupérateur couplé à un chromatographe est la détermination quasiment en temps réel de la concentration des espèces. Ce retour direct permettrait un réglage optimal du point de fonctionnemet. Mais en phase de développement, le principal intérêt résiderait dans la caractérisation des différents paramètres de réglage dont disposent le procédé. La torche à plasma et le séparateur supportant un plasma constitué de gaz oxydants et une température élevée de manière continue et avec une génération de la vapeur constante, l'influence des différents paramètres pourra être établie. Il existe au moins deux paramètres de réglage dont les influences sur le plasma et sur la répartition des espèces doivent être quantifiées.

Le courant électrique influence directement la puissance fournie au plasma, la tension variant peu autour d'une valeur moyenne imposée par la géométrie même de la torche à plasma. En effet, d'après les courbes de composition, la concentration de l'hydrogène est maximale pour une température voisine de 4000 K. L'énergie nécessaire à la dissociation de la molécule d'eau peut alors être optimisée en cherchant un maximum d'hydrogène au centre du jet plasma par exemple.

Un autre paramètre à étudier est l'influence de la valeur du champ magnétique. Elle est délicate à déterminer en théorie et devrait être validée expérimentalement. Des essais avec et sans aimant ont été effectués avec M. Chagny. Les résultats sont indiscutables sur des considérations comme la fluctuation de la tension et l'usure des électrodes. Mais ces essais ne correspondent qu'à deux valeurs discrètes extrêmes. Le remplacement de l'aimant par une bobine parcourue par un courant électrique continu constant permettrait d'avoir un champ magnétique variable. La variation du courant continu aisément réalisable lors d'une expérimentation permettrait de quantifier l'impact du champ magnétique sur la répartition des espèces.

## Conclusion

L'aboutissement de ces trois années de travail est la réalisation d'un prototype de torche à plasma fonctionnant de manière continue avec un gaz plasmagène constitué de vapeur d'eau. Un tel résultat est le fruit d'un savoir faire propre au LAEPT engageant les compétences d'une équipe, tant d'un point de vue théorique qu'expérimental. Cette étape constitue une validation importante et indispensable dans le projet ambitieux visant à la production compétitive d'hydrogène par thermolyse plasma. La mise en place d'un dispositif expérimental viable pose la base à de futures évolutions de la torche à plasma productrice d'hydrogène.

Les nombreuses mesures réalisées donnent des informations importantes sur le plasma de vapeur d'eau, qui viennent s'ajouter aux données que nous avions obtenues lors de la thèse de M. Chagny sur un plasma mélangeant l'air et l'argon, ainsi qu'une série d'expérimentations sur un plasma constitué uniquement d'air.

Pour un mélange gazeux dont les proportions oscillent autour de 50% Ar – 50% vapeur d'eau, la température du jet plasma avoisine les 10000 K pour une puissance fournie proche de 30 kW. Pour cette température, les principales caractéristiques du plasma sont les suivantes :

- une conductivité électrique de  $2.2 \times 10^3$  S.m;
- une enthalpie massique de  $3 \times 10^7 \text{ J.kg}^{-1}$ ;
- une densité électronique moyenne  $n_e = 1,60 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ .

La base de données ainsi enrichie aide à la compréhension et à l'évolution des modèles théoriques.

La détermination de la température suivant plusieurs méthodes (relative ou absolue) donnent des résultats cohérents. À partir de la conductivité électrique, la température peut être obtenue dès la conception de la torche à plasma, donnant un outil pour le dimensionnement de torches à plasma d'arc non transféré. L'enthalpie massique, beaucoup plus sensible à la concentration des espèces, ne donne pas de résultat satisfaisant dans le cas de la vapeur d'eau, qui peut se condenser en paroi et présenter un débit réel très différent du débit mesuré.

Les visées spectrométriques représentant environ cinq cents mesures donnent avec la précision possible une estimation de la température, corroborée par la densité électronique du plasma indépendante des hypothèses d'équilibres thermique et chimique du plasma.

L'étude de la validité des hypothèses d'équilibre du plasma viennent valider la caracté-

risation du plasma de vapeur d'eau en justifiant les hypothèses sur lesquelles reposent les exploitations expérimentales. Ces données représentent un point de départ à de nouvelles séries d'expérimentations, poussant plus avant la finesse des résultats.

L'objectif de ce projet est la quantification de l'hydrogène récupéré en vue de valider expérimentalement un bilan énergétique favorable au développement de ce moyen de production à échelle industrielle. Plusieurs étapes restent à réaliser, notamment la première avec la mise en place du récupérateur physique couplé à un microchromatographe en phase gazeuse. Cette évolution permettra la réalisation d'un bilan énergétique, clé de voute de ce projet. L'optimisation de la torche à plasma et de son environnement, comme la récupération de la chaleur dégagée par la recombinaison de H<sub>2</sub> par l'intermédiaire d'un échangeur thermique, pour la production de vapeur d'eau par exemple, pourra débuter.

Si le bilan énergétique est favorable après optimisation du procédé, la prochaine étape est le calcul du coût de revient afin de vérifier la compétitivité de ce moyen de production face aux moyens existants.

# Table des figures

2.1	Représentation d'un profil de raie expérimental	9
2.2	Schéma représentant le plasma et la visée optique	11
2.3	Vue en coupe du plasma représenté par un cylindre	12
2.4	Principe de l'inversion d'Abel géométrique	13
3.1	Schéma de principe de l'ensemble torche à plasma	20
3.2	Chutes de tension aux bornes de l'arc électrique	21
3.3	Torche à arc non transféré et à arc transféré	23
3.4	Schéma de principe de la torche à plasma	24
3.5	Différentes formes de cathode chaude avec insert	25
3.6	Cathode en cuivre avec insert en hafnium	27
3.7	Vue en coupe longitudinale de l'anode	29
3.8	Photo de l'anode	30
3.9	Position de l'aimant autour de la torche	31
3.10	Champ magnétique	32
3.11	Force de Laplace appliquée à l'arc électrique	32
3.12	Évolution de la masse volumique pour un gaz plasmagène vapeur/argon $(1, 37 \text{ g.s}^{-1})$	
	$/2,08 \text{ g.s}^{-1}$ ) en fonction de la température $\ldots \ldots \ldots$	33
3.13	Vue en coupe de la torche à plasma	35
3.14	Pièce d'injection des gaz	36
3.15	Refroidissement du bâti	36
3.16	Alimentation électrique de la torche à arc non transféré du LAEPT	37
3.17	Représentation schématique d'un thyristor	37
3.18	Schéma de la partie puissance de l'alimentation électrique	38
3.19	Photo du refroidisseur	39
3.20	Photo de l'électrovanne	39
3.21	Photographie de l'enceinte	40
3.22	Débitmètre Brooks 7850S	41
3.23	Générateur vapeur	41
3.24	Régulateur de pression	42
3.25	Séparateur	42
3.26	Purgeur à flotteur	42
3.27	Débitmètre utilisé pour la vapeur	42
3.28	Dispositif expérimental d'acquisitions spectrométriques	43
3.29	Photo du spectromètre Chromex 500 IS	44

3.30	Principe du montage type Czerny-Turner
3.31	Spectre de la lampe Hg - Cd
3.32	Synoptique de l'installation et des mesures
3.33	Centrale d'acquisition
3.34	Générateur vapeur Chaudières Barata EH 50kW
3.35	Évolution de la tension et du courant
3.36	Évolution de la puissance
3.37	Évolution du débit et de la pression relative pour le mélange 1
3.38	Évolution du débit et de la pression relative pour le mélange 2
4.1	Courbes de composition du mélange 1
4.2	Courbes de composition du mélange 2
4.3	Représentation schématique de la longueur d'arc
4.4	Conductivité électrique
4.5	Comparaison entre la conductivité électrique calculée et celle estimée
4.6	Comparaison enthalpie massique
4.7	Acquisition spectrale autour de 485 nm
4.8	Acquisition spectrale autour de $680 \text{ nm}$
4.9	Acquisition spectrale autour de 750 nm $\ldots \ldots \ldots$
4.10	Acquisitions spectrales autour de 485 nm pour $Z = 0mm$
4.11	Acquisitions spectrales autour de 680 nm pour $Z = 0mm$
4.12	Acquisitions spectrales autour de 750 nm pour $Z = 0mm$
4.13	Acquisitions spectrales autour de 485 nm pour $Z = 5mm$
4.14	Acquisitions spectrales autour de 680 nm pour $Z = 5mm$
4.15	Acquisitions spectrales autour de 750 nm pour $Z = 5mm$
4.16	Acquisitions spectrales autour de 680 nm pour $Z = 10mm$
4.17	Acquisitions spectrales autour de 750 nm pour $Z = 10mm$
4.18	Acquisitions spectrales autour de 680 nm pour $Z = 15mm$
4.19	Acquisitions spectrales autour de 750 nm pour $Z = 15mm$
4.20	Intensité théorique et expérimentale comparées au centre pour $Z = 0 \text{ mm}, Z =$
	5  mm et  Z = 10  mm (cas du mélange 1)
4.21	Intensité théorique et expérimentale comparées au centre pour $Z = 0 \text{ mm}, Z =$
	$5 \text{ mm et } Z = 10 \text{ mm } (cas \ du \ melange \ 2) \dots $
4.22	$H_{\beta}$ - 656 nm - mélange 1
4.23	$H_{\beta}$ - 656 nm - mélange 2
4.24	$Ar - 696 \text{ nm} - m \ell lange 1 \dots $
4.25	$Ar - 696 \text{ nm} - m \ell lange 2 \dots $
4.26	$Ar - 706 \text{ nm} - m \ell lange 1 \dots$
4.27	$Ar - 706 \text{ nm} - m \ell lange 2 \dots$
4.28	$Ar - 763 \text{ nm} - m \ell lange 1 \dots$
4.29	$Ar - 763 \text{ nm} - m \ell lange 2 \dots$
4.30	$O - 777 \text{ nm} - m \epsilon lange 1 \dots$
4.31	$O - 777 \text{ nm} - m \epsilon lange 2 \dots $

4.32	$H_{\beta}$ - 656 nm - mélange 1	77	
4.33	$H_{\beta}$ - 656 nm - mélange 2	77	
4.34	<i>Ar - 696</i> nm <i>- mélange 1</i>	78	
4.35	<i>Ar - 696</i> nm <i>- mélange 2</i>	78	
4.36	<i>Ar - 706</i> nm <i>- mélange 1</i>	78	
4.37	<i>Ar - 706</i> nm <i>- mélange 2</i>	78	
4.38	<i>Ar</i> - 763 nm - <i>mélange</i> 1	78	
4.39	Ar - 763 nm - mélange 2	78	
4.40	<i>O</i> - 777 nm - <i>mélange</i> 1	79	
4.41	<i>O</i> - 777 nm - <i>mélange 2</i>	79	
4.42	<i>H</i> - 656 nm - mélange 1	79	
4.43	$H - 656 \text{ nm} - m \ell lange 2 \dots $	79	
4.44	$Ar - 696 \text{ nm} - m \ell lange 1 \dots $	80	
4.45	$Ar - 696 \text{ nm} - m \ell lange 2 \dots $	80	
4.46	Ar - 706 nm - mélange 1	80	
4.47	Ar - 706 nm - mélange 2	80	
4.48	Ar - 763 nm - mélange 1	80	
4.49	$Ar - 763 \text{ nm} - m \ell lange 2 \dots $	80	
4.50	<i>O</i> - 777 nm - <i>mélange</i> 1	81	
4.51	$O = 777 \text{ nm} - m \ell lange 2 \dots $	81	
4.52	$\acute{E}$ volution de la température suivant l'axe de révolution du plasma (mélange 1) .	82	
4.53	$\acute{E}$ volution de la température suivant l'axe de révolution du plasma (mélange 2) .	82	
4.54	Évolution de la densité électronique en fonction de l'élargissement Stark de la raie		
	$H_{eta}$	83	
4.55	Sensibilité de la densité électronique à une variation de largeur de l'élargissement		
	Stark	84	
4.56	Raie $H_{\beta}$ pour $Z = 0 mm \dots $	85	
4.57	Raie $H_{\beta}$ pour $Z = 5 mm$		
4.58	Interface Matlab pour les calculs d'écoulement		
4.59	Evolution de la concentration des espèces d'un plasma d'air en fonction du temps		
	pour une transition en température de 9000 à 8000 K $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	90	

# Liste des tableaux

3.1	Propriétés de divers métaux [Kassabji 81], [Smirnov 01]	26
3.2	Usure des électrodes	28
3.3	Usure de l'anode sans et avec aimant	34
3.4	Caractéristiques techniques du générateur vapeur Chaudières Barata	51
3.5	Débits massiques considérés pour la vapeur	53
4.1	Caractéristiques électriques des essais	56
4.2	Caractéristiques des mélanges 1 et 2	56
4.3	Constantes spectroscopiques des espèces étudiées	64

# References

[Abbaoui 09]	M. Abbaoui & A. Lefort. Arc root interaction with the electrode : a comparative study of 1D-2D axi symmetric simulations. J. Phys. D : Appl. Phys., 2009.
[Andanson 78]	<ul> <li>P. Andanson, B. Cheminat &amp; A. M. Halbique. Résolution de l'équation intégrale d'Abel : Application à la spectrométrie des plasmas. J. Phys.</li> <li>D : Appl. Phys., 1978.</li> </ul>
[Andre 99]	P. Andre, J. Aubreton, M.F. Elchinger, P. Fauchais & A. Lefort. <i>Plasma concentrations out of equilibrium : N2 (kinetic method and mass action law), Ar-CCl4 and Ar-H2-CCl4 (mass action law).</i> International Symp. On Heat and Mass Transfer under plasma conditions, 1999.
[André 01]	P. André & L. Brunet. Theoretical computation of the electrical conduc- tivity of thermal plasma – Application to plasma torch design of an electrothermal launcher. IEEE Transaction on Plasma Science, vol. 29, pages 19 – 28, 2001.
[CEA 05]	CEA. L'hydrogène, les nouvelles technologies de l'énergie. Les clefs du CEA, 2005.
[Deutsch 83]	M. Deutsch & I. Beniaminy. Inversions of Abel's integral equation for eperimental data. J. Appl. Phys., 1983.
[E. Deri 08]	R. Tomassian et. al E. Deri D. Abdo. <i>Mesures de la vitesse dans des jets et panaches axisymétriques en milieu libre et confiné</i> . Congrès francophone de techniques laser, CFTL 2008, Futuroscope, septembre 2008.
[EDF 84]	Club EDF. L'arc électrique et ses applications - tome 1 : étude physique de l'arc lectrique. Édition du centre national de la recherche scientifique, 1984.
[Fantz 06]	U. Fantz. <i>Basics of plasma spectroscopy</i> . Plasma Sources Sci. Technol., 2006.
[Fauchais 96]	P. Fauchais, J. F. Coudert & B. Pateyron. La production des plasmas thermiques. Rev. Gén. Therm, 1996.
[Fauchais 07]	P. Fauchais. <i>Plasmas thermiques : production</i> . Techniques de l'Ingé- nieur, vol. D2820, 2007.
[Gigosos 03]	M.A. Gigosos, M. Á. González & Valentín Carden oso. Computer simulated Balmer-alpha, -beta and -gamma Stark line profiles for non-equilibrium plasmas diagnostics. Spectrochimica Acta, 2003.

[Griem 74]	H. Griem. Spectral line broadening by plasmas. Academic Press New York, 1974.
[Griem 97]	H Griem. Principles of plasma spectroscopy. Cambridge University Press, 1997.
[Guile 68]	A. E. Guile & K. A. Naylor. Further correlation of experimental data for electric arcs in transverse magnetic field. Proc. IEEE, 1968.
[Kassabji 81]	F. Kassabji & P. Fauchais. <i>Les générateurs à plasma</i> . Revue Phys. Appl., 1981.
[Laux 03]	C O Laux, T G Spence, C H Kruger & R N Zare. <i>Optical diagnos-</i> <i>tics of atmospheric pressure air plasmas.</i> Plasma Sources Science and Technology, 2003.
[Mermet 01]	J-M. Mermet. Systèmes dispersifs en spectrométrie atomique. Techniques de l'ingénieur, 2001.
[Miller 87]	M. Miller, A. Montaser & D. W. Golightly. <i>Inductively Coupled Plasmas in Analytical Spectrometry</i> . VCH, 1987.
[Richter 68]	J. Richter. Plasmas diagnostics. Ed. Lochte-Holtgreven, 1968.
[Rodi 82]	W. Rodi. Turbulent buoyant jets and plumes. Pergamon Press, 1982.
[Sahal-Bréchot 69]	S. Sahal-Bréchot. Théorie de l'élargissement et du déplacement des raies spectrales sous l'effet des chocs avec les électrons et les ions dans l'approximation des impacts. Astron. & Astrophys., 1969.
[Smirnov 01]	B. M. Smirnov. Physics of ionized gazes. Russian Academy of Science, 2001.
[Taylor 94]	B.N. Taylor & C. E. Kuyatt. <i>Guidelines for evaluating and expressing the uncertainty of NIST measurements results.</i> NIST Technical Note, 1994.
[Torres 06]	J. Torres, M.J. van de Sande, J.J.A.M. van der Mullen, A. Gamero & A. Sola. Stark broadening for simultaneous diagnostics of the electron density and temperature in atmospheric microwave discharges. Spectrochimica Acta Part B, 2006.
[Vacher 08]	D. Vacher, M. Lino da Silva, P. André, G. Faure & M. Dudeck. Radia- tion from an equilibrium $CO_2-N_2$ plasma in the [250-850 nm] spectral region : 1. Experiment. Plasma Sources Science and Technology 17, 2008.
[Zhukov 99]	M. F. Zhukov & I. M. Zasypkin. Low temperature plasma 17 - electric arc generators of thermal plasma. Russian Academy of Science, 1999.
[Zhukov 07]	M. F. Zhukov & I. M. Zasypkin. Thermal plasma torches - design, characteristics, applications. Cambridge International Science Publishing Ltd, 2007.

### Résumé

Le contexte de cette thèse est la production du vecteur énergétique hydrogène par thermolyse de la vapeur d'eau consistant en la dissociation de la molécule  $H_2O$  en oxygène (O) et hydrogène (H). Le dispositif employé est une torche à plasma d'arc non transféré développée au LAEPT.

Après l'exposition de la théorie sur la physique des plasmas et la spectrométrie d'émission atomique nécessaire à l'exploitation des mesures, cette thèse présente l'évolution de la torche à plasma ainsi que son environnement nécessitée par la présence de gaz instables et explosifs. Les mesures des différentes grandeurs électriques, hydrauliques et spéctrométriques ont permis la détermination des caractéristiques physique et chimique d'un plasma formé d'un mélange de vapeur d'eau – d'argon. La détermination de grandeurs telles que la température du jet plasma, la conductivité électrique, l'enthalpie massique et la densité électronique, est basée sur la comparaison entre expérimentation et théorie.

### Abstract

The context of this thesis is the production of hydrogen as an energy vector by steam thermolysis consisting in the dissociation of  $H_2O$  molecule into oxygen (O) and hydrogen (H). The process used is a plasma torch device developed by the LAEPT.

After presenting the theory of plasma physics and atomic emission spectroscopy which will help to make the most of the measured realized, this thesis will show the evolution of the plasma torch device and the experimental environment required to work with explosive and unstable gases. Some measurements like electrical, hydraulic and spectroscopy magnitudes made it possible to determine the chemical and physical characteristics of a water vapor – argon plasma. A comparison between experiments and theoretical knowledge will enable to determine the temperature of a flow of plasma, electrical conductivity, enthalpy and the electronic density.

### Mot-clés

Production d'hydrogène – torche à plasma – vapeur d'eau - argon – thermolyse plasma – spectrométrie d'émission atomique – conductivité électrique – densité électronique – enthalpie

### **Keywords**

Hydrogen production – plasma torch device – water vapor - argon – thermolysis of plasma – atomic emission spectrometry – electrical Conductivity – electronic density – enthalpy