

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE



UNIVERSITE DJILLALI LIABES DE SIDI-BEL-ABBES

Faculté de Génie Electrique

Département d'Électrotechnique

Thèse présentée par :

CHEBBAH ABDELKADER

Pour l'obtention du diplôme de :

Doctorat 3^{ème} cycle en Électrotechnique

Option : Réseaux électriques

Intitulé de la thèse :

*Contribution à l'étude de la production de l'ozone par décharge
à barrière diélectrique surfacique et à électrodes planes.
Application au traitement des eaux polluées.*

Devant le jury composé de :

Président :	Dr. BRAHAMI Mostéfa	Professeur	UDL Sidi Bel Abbès
Directeur de thèse :	Dr. Hadjeri Samir	Professeur	UDL Sidi Bel Abbès
Co-Directeur de thèse :	Dr. Tilmatine Amar	Professeur	UDL Sidi Bel Abbès
Examineurs :	Dr. ZIDI Sid Ahmed	Professeur	UDL Sidi Bel Abbès
	Dr. HAMMADI Nacera	M.C.A	USTO-Oran

.Soutenue en: Juin 2018

Remerciements

Avant tout je tiens à rendre grâce à DIEU qui nous a octroyé la raison qui place l'être humain au sommet du piédestal et qui le prédispose à domestiquer la nature à travers la science.

Cette Thèse de doctorat a été préparée au sein de laboratoire de recherche APELEC en collaboration avec laboratoire ICEPS de l'université Djillali Liabès de Sidi-Bel-Abbès.

Malgré qu'un seul nom d'auteur figure sur la couverture d'un mémoire de thèse, il est important de préciser qu'une telle entreprise constitue surtout un effort collectif. C'est pourquoi je tiens à remercier de près ou de loin les personnes qui ont participé à l'avancement et aboutissement de ce travail.

Tout d'abord je remercie sincèrement le professeur **Samir HADJERI**, et le professeur **Amar TILMATINE** qui ont encadré et dirigé ce travail avec beaucoup de compétences et de sympathie. En tant qu'encadreurs, sont toujours montrés à l'écoute et très disponibles tout au long de la réalisation de cette thèse, ainsi pour l'inspiration, l'aide et le temps qu'ils ont bien voulu me consacrer et sans qui cette thèse n'aurait jamais vu le jour. Je tiens à les remercier pour la confiance qu'il m'a témoignée lors de l'attribution et du déroulement de cette thèse. Je les remercie aussi pour la méthodologie rigoureuse qu'ils m'ont transmise par leurs conseils. J'espère sincèrement pouvoir continuer cette collaboration dans le futur.

En outre, j'adresse mes remerciements les plus sincères au Professeur **BRAHAMI Mostéfa** pour avoir accepté de présider le jury, tout comme j'adresse ma profonde reconnaissance au Professeur **ZIDI Sid Ahmed** et Docteur **HAMMADI Nacera** pour avoir accepté d'examiner et d'évaluer ce modeste travail.

Mes remerciements à toute ma famille en particulier, je dois à mes parents, beaucoup de ce que je suis devenu. Je les remercie pour leur amour, leur soutien et leur confiance à travers les dernières 29 années. Mes parents ont toujours placé l'éducation comme la première priorité dans ma vie et m'ont incité à fixer des très hauts objectifs pour moi-même.

Liste des figures

Figure 1.1 : Schéma montre la différence entre gaz neutre et plasma.....	7
Figure 1.2 : Variation de la température électronique du gaz en fonction de la pression.....	8
Figure 1.3 : (a) Caractéristiques courant-tension de différents types de décharges dans les gaz.	22
Figure 1.4: Configuration similaire des décharges électriques par le principe Townsend.	24
Figure 1.5 : Courbe séparant les conditions en air résultant d'un claquage de Townsend (région inférieure) d'un claquage de type streamer (région supérieure).....	27
Figure 1.6 : Mécanisme de claquage de type streamer positif (CDS).....	28
Figure 1.7 : Représentation schématique du développement d'un streamer négatif	30
Figure 2.1: Principe de fonctionnement d'une DBD.....	33
Figure 2.2 : Différentes configurations de Décharges contrôlées par Barrières Diélectriques (DBD).....	34
Figure 2.3 : Configurations de décharges de surface	35
Figure 2.4 : Systèmes d'électrodes les plus couramment utilisés pour la production des décharge :.....	36
Figure 2.5 : Représentation d'une micro-décharge.	37
Figure 2.6 : Photo de la décharge luminescente générée entre deux électrodes planes.....	37
Figure 2.7 : Diagramme indiquant le principe général des DBDs et leurs applications.....	40
Figure 2.8 : Formation naturelle de l'ozone (cycle de Chapman).	43
Figure 2.9 : Destruction naturelle de l'ozone (cycle de Chapman).	43
Figure 2.10 : Structure de l'ozone.	46
Figure 2.11 : Ozone troposphérique (Mauvais ozone).	47
Figure 2.12 : Formation naturelle de l'ozone par décharge électrique.	48
Figure 2.13 : Formation naturelle de l'ozone par les rayons UV.	48
Figure 2.14 : Étapes de formation de l'ozone par décharge électrique.	49
Figure 2.15 : Étapes de formation de l'ozone par UV.....	50
Figure 2.16 : Comment agit l'ozone ?.....	51
Figure 2.17 : Lien de la molécule d'ozone.....	52
Figure 2.18 : Réaction d'oxydation de l'ozone avec les substances oxydables.	52
Figure 2.19 : Effet de l'ozone sur une bactérie.	53
Figure 3.1 : Représentation schématique du réacteur DBDS	60
Figure 3.2 : Schéma représentatif des électrodes de nouveau modèle de générateur d'ozone.	61
Figure 3.3 : Photographie de bouchon en téflon.	62
Figure 3.4 : Plaque de bakélite.....	63
Figure 3.5 : Coupe longitudinale du générateur d'ozone à DBD surfacique (DBDS).....	64
Figure 3.6 : Photographie du générateur DBDS sous tension.	64
Figure 3.7 : Coupe longitudinale du générateur d'ozone à DBD volumique (DBDV).....	65
Figure 3.8 : Photographie du réacteur d'ozone à DBD volumique.	65
Figure 3.9 : Photographie d'une électrode métallique interne en adhésif d'aluminium à l'intérieur de la barrière diélectrique en verre.	66
Figure 3.10 : Photographie de bouchon de centrage en téflon assurant une distance inter-électrode homogène. .	67
Figure 3.11 : Schéma de la cellule de décharge de réacteur cylindrique.....	67
Figure 3.12 : Schéma représentatif et photographie de générateur d'ozone volumique.....	68
Figure 3.13 : Concentrateur d'oxygène (NIDEK medical Nuvo lite Mark 5)	69
Figure 3.14 Analyseur d'ozone (2B Technologies 106-L).....	70
Figure 3.15 : Le montage expérimental utilisé.....	71
Figure 3.16 : Forme électrique du courant et de la tension Pour les deux réacteurs DBDS et DBDV (22.7 kHz) ..	72
Figure 3.17 : Variation de taux de production d'ozone en fonction de la longueur de décharge	73
Figure 3.18 : Variation du taux d'ozone en fonction du débit d'oxygène (V= 5 kV).....	74
Figure 3.19 : Variation du taux d'ozone en fonction de la tension appliquée (Débit O ₂ = 2 l/min).....	75
Figure 3.20 : Variation de la puissance absorbée en fonction de la tension appliquée, pour les deux modèles DBDS et DBDV	76
Figure 3.21 : Variation du taux d'ozone en fonction de la puissance, pour les deux modèles DBDS et DBDV ..	76
Figure 3.22 : Variation de la densité d'O ₃ en fonction de débit d'O ₂ , pour les deux modèles DBDS et DBDV ..	77
Figure 4.1 : Vue isométrique de réacteur simple	80
Figure 4.2 : Représentation schématique de réacteur DBD-simple	80
Figure 4.3 : Vue isométrique de réacteur décalée.	81

Figure 4.4 : Représentation schématique de réacteur DBDS décalée.	82
Figure 4.5 : Schéma du dispositif de mesure de tension, du courant et de la puissance dans le générateur d’ozone.	83
Figure 4.7 : Forme électriques du courant et de la tension dans une DBDS-simple.	84
Figure 4.8 : Signaux électrique du courant et de la tension enregistrés par le picoscope dans une DBD décalé. .	85
Figure 4.9 : La puissance sur PICOSCOPE.	86
Figure 4.10 : Variation de la puissance consommée par le générateur DBD-S et DBD-D aluminium en fonction de la tension appliquée.	87
Figure 4.11 : Variation de la puissance consommée par le générateur DBD-D cuivre et DBD-D aluminium en fonction de la tension appliquée.	87
Figure 4.12 : Schéma synoptique du dispositif utilisé pour la mesure de la concentration d’O ₃	88
Figure 4.13 : Variation du taux de production d’ozone pour différentes configurations en fonction de la tension appliquée.....	89
Figure 4.14 : Variation du taux de production d’ozone par le générateur DBD-D en cuivre et DBD-D en aluminium (configuration série) en fonction de la puissance consommée.	90
Figure 4.15 : Variation du rendement énergétique par le générateur DBDD cuivre et DBDD aluminium en fonction de la puissance consommée.....	91
Figure 4.16 : Variation du taux de production d’ozone en fonction du débit injecté.	92
Figure 4.17 : Variation du rendement énergétique du générateur DBD-D(Cu)en fonction du nombre de bandes.	93
Figure 4.18 : Disposition des expériences dans un plan composite centré à 03 facteurs.	98
Figure 4.19 : Coefficients des modèles obtenus.....	103
Figure 4.20 : Contours iso-réponses.....	104
Figure 4.21 : Résultats du programme d’optimisation de MODDE 5.0.	105
Figure 4.22 : Photographie du dispositif expérimental utilisé pour la décoloration.....	106
Figure 4.23 : Décoloration d’une eau infectée par un colorant alimentaire.	107
Figure 4.24 : Variation du pH et de la demande d’oxygène dans l’eau (DO ₂).....	107

Abréviations

Te : Température électronique.

Tg : température du gaz.

n : densité du plasma.

nc : Nombre de collision d'un électron.

v : Vitesse moyen d'un électron.

N : Densité d'atomes.

σ : la section efficace microscopique de collision.

λ : Distance moyenne parcourue par l'atome.

μ : La mobilité des particules.

E : Champ électrique.

W : La vitesse de dérive des particules.

Jdiffusion : Le flux de diffusion du gaz.

D : Coefficient de diffusion de gaz.

UV : Rayon ultraviolet.

COV : Composant organique volatile.

k : La constante de Boltzmann.

DBD : Décharge à barrière diélectrique.

DBDS : Décharge à barrière diélectrique surfacique.

DBDV : Décharge à barrière diélectrique volumique.

DBD-S : Décharge à barrière diélectrique surfacique à électrode simple.

DBD-D : Décharge à barrière diélectrique surfacique à électrode décalé.

DO₂ : Débit d'oxygène.

TO₃ : Taux d'ozone.

CtO₃ : Concentration d'ozone

Ph : Potentiel d'hydrogène.

Sommaire

Remerciments

Index des figures

Liste des abréviations

Table des matières

Introduction générale	4
1 CHAPITRE 1 : Plasma thermique et hors équilibre : état de l'art.....	6
1.1 Introduction	6
1.2 Définition d'un plasma.....	7
1.2.1 Plasmas thermiques	8
1.2.2 Plasmas hors équilibre	9
1.3 Grandeurs caractéristiques des plasmas hors équilibre.....	9
1.3.1 Collisions	10
1.3.1.1 Collisions élastiques.....	10
1.3.1.2 Collisions inélastiques.....	11
1.3.2 Section efficace et libre parcours moyen.....	11
1.3.3 Coefficients caractéristiques	12
1.3.3.1 Mobilité	12
1.3.3.2 Coefficients de diffusion.....	12
1.4 Principaux processus des collisionnels.....	13
1.4.1 Ionisation thermique.....	14
1.4.2 Ionisation par collisions.....	14
1.4.3 Ionisation par photon ou photo-ionisation	14
1.5 Applications industrielles des plasmas froids.....	15
1.5.1 Stérilisation médicale	15
1.5.2 Traitement des polluants gazeux	17
1.5.2.1 Traitement chimique de l'air	17
1.5.2.2 La photo catalyse.....	17
1.5.2.3 Le traitement plasma.....	18
1.5.3 Traitement de surface par plasma	18
1.5.4 Génération d'ozone.....	19
1.5.5 Destruction de l'ozone	20
1.6 Phénomènes disruptifs	21
1.6.1 Décharges dans les gaz.....	21
1.6.2 Claquage de type Townsend et décharge de Townsend.....	23
1.6.3 Claquage de type streamer et décharge filamentaire.....	26
1.6.3.1 Streamer positif.....	28
1.6.3.2 Streamer négatif.....	30
1.7 Conclusion.....	30

2	CHAPITRE 2 : Décharge à barrière diélectrique et généralité sur l’ozone.....	31
2	Décharge à barrière diélectrique	31
2.1	Historique	31
2.2	Définition et caractéristique d’une DBD.....	31
2.2.1	Principe de la DBD	32
2.2.2	Configurations typiques de la DBD.....	34
2.2.2.1	Configurations des DBDs volumiques.....	34
2.2.2.2	Configurations des DBDs surfaciques.....	35
2.2.2.3	Géométries courantes des DBDs.....	35
2.2.2.4	micro-décharges de la DBD	37
2.3	Décharges à barrière diélectrique dans les applications industrielles.....	38
2.4	matériaux diélectriques	40
2.5	Méthode pour éviter la transition à l’arc	41
2.5.1	diminuer le produit p x d (pression x distance).....	41
2.5.2	localiser la décharge.....	41
2.5.3	limiter le courant fourni par l’alimentation	41
2.5.4	insérer un diélectrique entre les deux électrodes	41
2.5.5	pré-ioniser le gaz et utiliser une source de tension impulsionnelle.....	41
2.6	Découverte de l’ozone et les premières mesures	42
2.6.1	Découverte de l’ozone	42
2.6.2	Cycle de Chapman	42
2.7	Définition de l’ozone.....	44
2.7.1	Caractéristiques de l’ozone	44
2.7.2	Données physico-chimiques sur l’ozone	45
2.7.2.1	Propriétés physiques	45
2.7.2.2	Structure de l’ozone	46
2.7.3	L’ozone : bon ou mauvais.....	46
2.7.3.1	Bon ozone.....	46
2.7.3.2	Ozone troposphérique (Mauvais ozone).....	47
2.8	Modes de production de l’ozone	47
2.8.1	Production naturelle	47
2.8.2	Formation de l’ozone par décharge électrique.....	49
2.8.3	Formation de l’ozone par rayons UV.....	50
2.8.4	Formation artificielle.....	51
2.9	Comment l’ozone agit-il ?	51
2.9.1	Réaction de l’ozone avec les substances oxydables.....	51
2.9.2	Effet de l’ozone sur les bactéries	53
2.9.2.1	Principe.....	54
2.9.2.2	Puissant oxydant et excellent désinfectant.....	54
2.10	Avantages et inconvénients de l’ozone.....	55
2.10.1	Avantages.....	55
2.10.2	Inconvénients.....	Erreur ! Signet non défini.
2.11	Applications de l’ozone	56
2.12	Conclusion.....	58

3	CHAPITRE 3 : Développement d'un nouveau modèle de générateur d'ozone en forme de serpent.	59
3.1	Introduction	59
3.2	Structure et dimensions du générateur d'ozone développé.	59
3.2.1	Conception des générateurs d'ozone à DBD surfacique et volumique	60
3.2.1.1	générateur à DBD surfacique	60
A.	Matériau des électrodes	61
B.	Entrée et sortie du gaz (Téflon)	61
C.	Barrière diélectrique	62
D.	Electrodes	63
3.2.1.2	Générateur à DBD volumique	65
E.	Matériau des électrodes	66
F.	Barrière diélectrique	66
G.	Bouchons de centrage (Téflon)	67
3.3	Choix du gaz d'alimentation du générateur d'ozone	69
3.4	Analyseur d'ozone.	69
3.5	Description du dispositif expérimental	70
3.5.1	Mesure des puissances consommées	72
3.5.2	Concentration d'ozone	73
3.6	RESULTATS ET DISCUSSION	73
3.7	Conclusion	78
4	CHAPITRE 4 : Procédé de génération d'ozone par réacteur surfacique à électrodes plane.	79
4	Introduction	79
4.1	Descriptions des réacteurs réalisés	79
4.1.1	Réacteur à configuration simple	79
4.1.2	Réacteur à configuration décalée	81
4.2	Caractérisation électrique des générateurs d'ozone.	82
4.2.1	Forme d'onde	84
4.2.2	Mesure de la puissance	85
4.3	Mesure des différentes concentrations d'ozone	88
4.3.1	Effet de la tension et la géométrie des réacteurs	89
4.3.2	Influence du matériau	90
4.3.3	Rendement énergétique	91
4.3.4	Influence du débit d'O ₂	92
4.3.5	Influence du nombre de fils	93
4.4	Optimisation du générateur d'ozone à DBD-D	94
4.4.1	Méthodologie des plans d'expérience	94
A.	Concepts fondamentaux : réponses, facteurs effets, interactions	94
B.	Etapas d'une étude par plans d'expériences	95
C.	Variabes codées	96
D.	Principaux avantages des plans d'expériences :	97
E.	Plan composite centré	97
F.	Qualité du modèle	99
G.	Logiciel MODDE 5.0	100

H. Résultat préliminaire.....	100
4.5 Décoloration de l'eau par le générateur d'ozone optimal.....	105
4.6 Conclusion.....	108
<i>Conclusion Générale</i>	<i>109</i>
<i>Bibliographie.</i>	



INTRODUCTION GENERALE

Introduction générale

Il n'est un secret pour personne que l'eau, au même titre que l'air, est une ressource indispensable à tout être vivant sur terre, constituant près de 70% de la masse d'un être humain. Elle entre dans différents usages, du plus élémentaire comme la consommation ou l'agriculture au plus avancé comme l'industrie chimique. Sa répartition étant non homogène à la surface du globe, cette ressource représente à la fois un enjeu politique, économique et stratégique. L'importance que revêt cette ressource fait que sa protection et sa conservation sont essentielles.

Les systèmes utilisés pour traiter l'eau aujourd'hui dans nos stations de traitement de l'eau présentent plusieurs aspects négatifs. Par exemple, l'utilisation du chlore n'est pas optimale. Ce désinfectant puissant laisse des traces non négligeables car il reste présent dans l'eau une fois traitée et a des impacts négatifs sur la faune et la flore aquatique, sur l'eau que nous consommons....

Des nouvelles techniques, performantes ont ainsi pu voir le jour, parmi lesquels la désinfection à l'ozone, procédé qui marque une nouvelle rupture technologique dans le domaine du traitement de l'eau. Le traitement à l'ozone apparaît comme un procédé alternatif et/ou complémentaire des techniques conventionnelles telles que la chloration.

Les décharges à barrière diélectrique DBD deviennent le moyen le plus efficace pour la production d'ozone, des nombreux recherches scientifiques s'intéressent de plus en plus aux technologies basées sur les plasmas réactifs hors équilibre générés par des décharges électriques dans l'air à la pression atmosphérique. En effet, ces technologies présentent divers avantages comparés à d'autres procédés plasma à plus basse pression ou de type thermique. Elles sont également moins consommatrices d'énergie électrique en comparaison d'un réacteur à plasma thermique.

L'objectif général de cette thèse est de développer un nouveau réacteur à DBD surfacique qui répond aux limitations actuelles des procédés « classiques » d'oxydation. Ce procédé est basé sur l'utilisation d'une décharge plasma à pression atmosphérique de forme géométrique en serpent.

Dans la première partie de ce manuscrit nous allons décrire le contexte de l'étude en présentant succinctement la physique des plasmas ainsi que les mécanismes possibles de production des plasmas étudiés. Les plasmas concernés par notre étude appartiennent à la

famille des plasmas hors équilibre thermodynamique, également appelés plasmas froids, pour lesquels les mécanismes de production peuvent être de deux types : des décharges de Townsend et des streamers.

Dans le second chapitre nous présenterons une littérature sur les décharges à barrière diélectrique afin de comprendre leur fonctionnement. En se basant sur certaines grandeurs électriques telles que la tension ou la fréquence, nous décrivons le mécanisme de déroulement des micro-décharges. Nous donnons les concepts fondamentaux des décharges à barrière diélectriques, leurs différentes configurations physiques possibles et voir son importante application, à savoir la production d'ozone, ensuite, Nous présentons le gaz d'ozone et ses diverses applications, en exposant toutes ses propriétés comme étant un produit industriel (avantages, production ainsi que la désinfection...). Le traitement par l'ozone offre des solutions écologiques et même économique dans plusieurs applications par rapport aux autres processus chimiques (chlore, l'esprit de cèle...).

Dans le troisième chapitre on va présenter l'efficacité d'un nouveau générateur d'ozone à DBD surfacique plane, en forme de Serpentin. En décrivant quantitativement l'influence des paramètres électriques sur son rendement, ainsi que l'effet de plusieurs facteurs qui influent sur le taux d'ozone généré toutes en comparaison avec un générateur d'ozone cylindrique à DBD volumique, qui est le modèle le plus répandu dans l'industrie.

Dans le quatrième chapitre nous proposons une suite de travail d'analyse et de développement pour les actionneurs plasma à décharge à barrière diélectrique surfacique, nous avons mis au point deux actionneurs l'un qu'on a appelé de configuration simple et un autre de configuration décalée.

Ce manuscrit s'achèvera enfin par une conclusion générale reprenant les principaux résultats et avancements de cette thèse et dégagera les perspectives futures à suivre afin d'optimiser au mieux les différents blocs (décharge, matériau, géométrie et configuration) de ce procédé de génération d'ozone.



CHAPITRE I

**Plasma thermique et hors équilibre :
état de l'art**

CHAPITRE 1 : Plasma thermique et hors équilibre : état de l'art

Dans ce chapitre, nous avons procédé à un état de l'art : définition du plasma thermique et hors équilibre, rappel des grandeurs, caractéristiques des plasmas hors-équilibre, énumération des applications industrielles des décharges haute pression (stérilisation médicale, traitement des polluants gazeux, traitement de surface, génération d'ozone), explication des différences physiques qui existent entre le claquage de type Townsend et le claquage de type streamer.

1.1 Introduction

Dans le domaine des plasmas, la pression atmosphérique est considérée comme une pression élevée pour laquelle le comportement d'une décharge électrique est très différent de celui observé pour des pressions de l'ordre du Torr [1].

En fait, plus que la pression, c'est le produit de la pression par la distance inter électrodes qui définit le mode de fonctionnement du plasma.

Pour des valeurs supérieures à 200 Torr.cm, le libre parcours moyen des électrons devient très faible comparé à la distance inter électrodes, ce qui :

- ❖ Rend négligeable la contribution des surfaces au développement de la décharge ;
- ❖ Permet une forte ionisation dans des petits volumes ;
- ❖ Favorise une thermalisation très rapide des électrons.

Ainsi, la décharge apparaît sous forme de canaux de décharge de faible diamètre, appelés micro décharges, qui conduisent très rapidement au développement d'un arc électrique.

Pour obtenir des décharges hors équilibre thermique dans lesquelles la température des électrons est de quelques dizaines de milliers de degrés Kelvin et celle du gaz proche de la température ambiante, il faut donc limiter la puissance dissipée dans le gaz.

De façon générale, le plasma ne peut rester hors équilibre que si la décharge est transitoire, c'est-à-dire interrompue avant que les électrons ne soient thermalisés.

L'objectif de ce premier chapitre est la présentation d'une synthèse bibliographique sur les plasmas et les décharges électriques dans les gaz en général. Ce chapitre est partagé en deux parties :

- ❖ Dans la première partie, nous présenterons quelques généralités sur les plasmas, nous rappellerons les différents paramètres mis en jeu dans les plasmas permettant leur classification, les différentes grandeurs les caractérisant et leurs différentes applications
- ❖ Dans la deuxième partie, nous présentons la décharge de Townsend et la décharge de type streamer.

Ce chapitre n'a pas l'intention d'être exhaustif, il se veut une aide pour aborder le domaine de la génération des plasmas hors équilibre. La question de la cinétique chimique n'est pas abordée. Une attention particulière est portée à ces décharges homogènes et à leur physique.

1.2 Définition d'un plasma

Le terme plasma introduit en physique en 1928 par le physicien Langmuir, désigne un gaz ionisé électriquement neutre. Un plasma est donc un milieu constitué d'un ensemble de particules neutres (atomes, molécules, radicaux), d'ions, d'électrons, de photons émis et absorbés. En réalité, plus de 99% de l'univers est sous forme de plasma. Chaque particule chargée dans un plasma interagit avec les autres grâce au long rayon d'action de la force électrique entre particules chargées (force coulombienne). Ces interactions créent un comportement collectif qui n'existe pas dans les gaz neutres et procurent au plasma des propriétés uniques (Figure 1.1) [2-6].

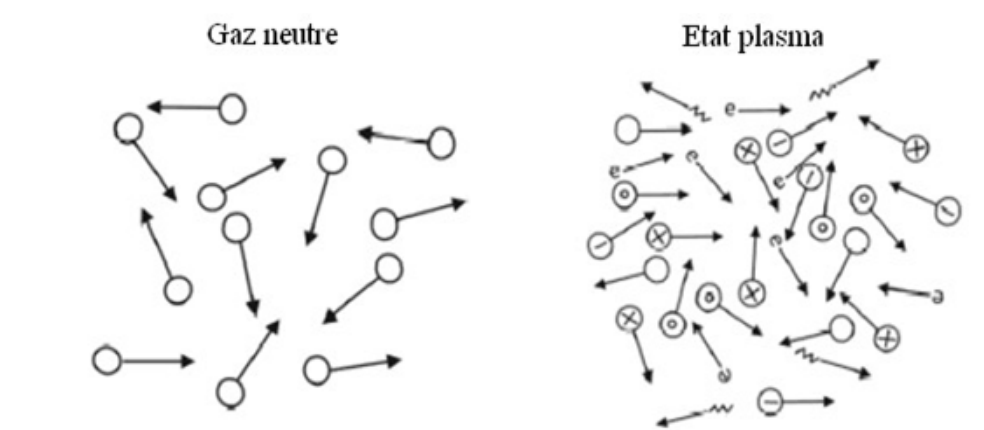


Figure 1.1 : Schéma montre la différence entre gaz neutre et plasma.

Ce quatrième état de la matière se trouve dans les nébuleuses, dans le nuage d'hydrogène composant le milieu interstellaire, dans les étoiles (cœur de l'étoile siège de réactions de fusion nucléaires), et dans l'environnement terrestre (ionosphère, magnétosphère, foudre).

Les plasmas sont aussi créés de façon artificielle, en laboratoire (décharges électriques qu'on traitera par la suite, tokamaks). Un tokamak est une chambre torique de confinement magnétique destinée à l'étude des plasmas et notamment pour étudier la possibilité de la production d'énergie par fusion nucléaire.

Les décharges électriques dans les tubes fluorescents et les plasmas de fusion dans les tokamaks en constituent deux exemples. Il existe de nombreux types de plasmas que l'on différencie selon certains critères.

Parmi ces critères, on peut utiliser l'état thermodynamique : on distingue les plasmas à l'équilibre thermodynamique local (plasmas thermiques ou plasmas chauds) des plasmas hors équilibre (plasmas non thermiques ou plasmas froids).

1.2.1 Plasmas thermiques

Les plasmas thermiques sont caractérisés par une densité d'énergie élevée et une température égale pour toutes les espèces (ions, électrons, neutres). Les plasmas naturels comme les étoiles, les aurores boréales, les flammes, les éclairs, sont en équilibre thermodynamique local ce qui n'est pas le cas pour la plupart des plasmas créés en laboratoire. On doit travailler à des pressions au-dessus de 10 Torr comme l'indique la figure (1.2).

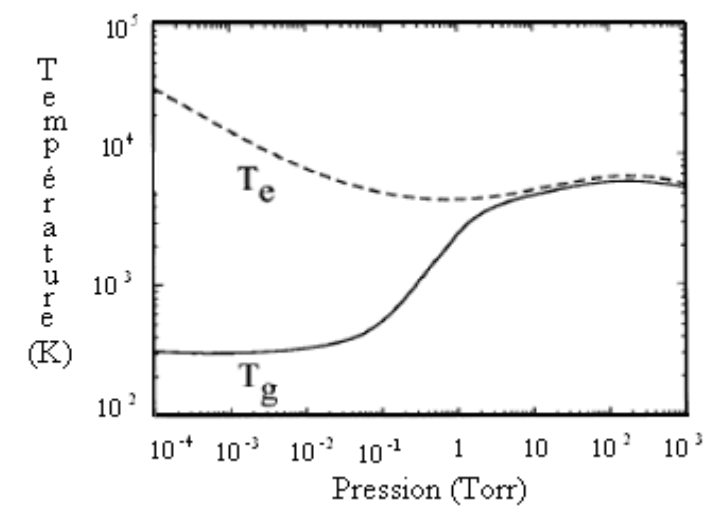


Figure 1.2 : Variation de la température électronique du gaz en fonction de la pression

(T_e = température électronique, T_g = température du gaz)

Les plasmas thermiques sont générés par des torches à plasmas ou des arcs. Si le gaz est à haute pression (voisine ou supérieure à la pression atmosphérique), il est assez fortement ionisé, bien qu'il subsiste des atomes et des molécules neutres, les collisions entre toutes les particules qui le composent sont nombreuses, ce qui tend à homogénéiser la température à un niveau de l'ordre de $5 \cdot 10^3$ à $5 \cdot 10^4$ degrés Kelvin.

Les plasmas thermiques dont la puissance varie de quelques kilowatts à quelques mégawatts, nécessitent la mise en jeu de courants importants [7-8].

1.2.2 Plasmas hors équilibre

Les plasmas hors équilibre sont généralement produits par décharge luminescente, décharge filamentaire ou courant inductif (capacitif). Leur température électronique (10^3 à 10^4 degrés Kelvin) est très supérieure à la température ambiante du gaz (inférieure ou égale à 500 degrés Kelvin) [3], [7-8].

Aucun équilibre thermique n'est réalisable et le milieu est faiblement ionisé. Le degré d'ionisation est défini par :

$$\alpha_{\text{ionisation}} = \frac{n}{n_0 + n} \quad (1.1)$$

où n est la densité du plasma. On a $n_e = n_i = n$ au niveau macroscopique, n_i est la densité des ions, n_e celle des électrons, n_0 celle des neutres.

Le degré d'ionisation est inférieur à 10^{-4} . La distance parcourue entre deux collisions est suffisamment importante pour que l'ionisation puisse se faire par collision directe.

Dans ce type de plasma, la majeure partie de l'énergie n'est pas convertie en chauffage du gaz mais en réactivité chimique pour produire des espèces métastables, dissociées et ionisées.

Les puissances typiquement mises en jeu pour obtenir un plasma hors équilibre vont de quelques watts à quelques kilowatts. Avant de discuter des différents types de décharges électriques (plasmas artificiels créés par l'homme).

1.3 Grandeurs caractéristiques des plasmas hors équilibre

Avant de discuter des différents types de décharges électriques (plasmas artificiels créés par l'homme), on va passer en revue les grandeurs caractéristiques des plasmas hors-équilibre (collisions, section efficace et libre parcours moyen, coefficients caractéristiques...).

1.3.1 Collisions

A l'équilibre, et en l'absence de forces extérieures, un gaz est constitué d'un ensemble de particules de différents types, atomes, molécules, ions, électrons uniformément répartis, dont les vitesses n'ont aucune direction privilégiée (distribution isotrope) [9].

En l'absence de champ électrique, les particules de gaz sont soumises à l'agitation thermique, et subissent une multitude de chocs. Ces chocs ont pour cause des agents extérieurs tels que la radioactivité terrestre et atmosphérique ainsi que les différents rayonnements cosmiques [6], [9-10].

Lorsque les particules initialement séparées par une distance (d) s'approchent les unes des autres, elles commencent à interagir et si après cette interaction, quelque changement mesurable se produit, on dit qu'une collision a eu lieu.

L'interaction entre les particules neutres est due à la déformation de leur nuage électronique, ce qui entraîne d'abord une force attractive, puis fortement répulsive du fait des noyaux positifs. Du fait de cette interaction, les particules sont déviées de leurs trajectoires initiales [3].

Pour les particules neutres, avec des forces d'interaction en (d^{-n}) avec $7 \leq n \leq 13$, la déviation se produit pendant un temps très court et la collision est pratiquement celle de deux boules de billard.

Par contre, pour les particules chargées, l'interaction est en (d^{-2}) , les particules se voient de très loin, la déviation de trajectoire dure un temps non négligeable par rapport à celui existant entre deux collisions.

Lors de la collision, les particules échangent de l'énergie cinétique et/ou potentielle. On classe les collisions en deux types :

1.3.1.1 Collisions élastiques

Lors de ces collisions, l'énergie cinétique de translation et la quantité de mouvement sont conservées. C'est le cas de presque tous les atomes dans un gaz pris dans des conditions de pression et température normales.

Il faut aussi remarquer que les particules lourdes échangent très facilement leur énergie par collision élastique alors que, lors de la collision d'un électron et d'une particule lourde, la fraction d'énergie est très faible. Un électron devra subir des milliers de collisions élastiques pour perdre son énergie.

Ces collisions ne modifient pas l'énergie interne des particules en question, mais sont responsables des phénomènes thermiques (conduction et diffusion de chaleur au sein du gaz) [6-5].

1.3.1.2 Collisions inélastiques

Ce sont des collisions où une partie de l'énergie cinétique est transformée en énergie interne. Les collisions inélastiques sont responsables de la fragmentation des molécules impactées ou de la modification de la distribution de l'énergie (modification de l'état vibrationnel, translation ou électronique).

Si son énergie cinétique est suffisante, un électron peut, lors d'une collision inélastique, ioniser ou exciter la molécule neutre rencontrée.

En présence d'un champ électrique, les molécules de gaz se mettent en mouvement dans la direction du champ. Leur vitesse varie en fonction de la distribution et l'intensité du champ, ainsi que d'autres paramètres tels que la pression, la température et l'humidité du gaz [6].

1.3.2 Section efficace et libre parcours moyen

Si l'on admet que l'électron se déplace à une vitesse moyenne v pendant le temps δt , alors il parcourt la distance $v \cdot \delta t$ et balaie un domaine d'espace de volume $\sigma v \delta t$ où σ possède les dimensions d'une surface et représente la section efficace microscopique de collision entre l'électron et une molécule [6],[11-13].

Le nombre de collisions est donc égal à $N\sigma v \delta t$, avec (N) est la densité d'atomes ou molécules neutres par unité de volume.

Le nombre de collisions n_c par unité de temps est donné par :

$$n_c = N\sigma v \quad (1.2)$$

La théorie concernant la section efficace microscopique de collision ne s'applique qu'aux particules neutres pour lesquelles les champs d'interaction n'interviennent qu'à de très faibles distances.

La notion de section efficace est plus difficile à appréhender pour des collisions entre particules chargées dont les interactions, de type coulombien ont des rayons d'interaction plus grands.

Il faut aussi noter que $N\sigma$ appelée section efficace macroscopique de collision est homogène à l'inverse d'une longueur. Cette longueur est dite libre parcours moyen ou distance moyenne parcourue par l'atome ou molécule entre deux chocs successifs [14] :

$$\lambda = \frac{1}{N\sigma} \quad (1.3)$$

où λ est le libre parcours moyen en (m), σ représente la section efficace de collision électron-neutre (de l'ordre de 10^{-12} à 10^{-11} m⁻²) et N la densité de neutres dans le gaz en (m⁻³)

Cette notion est intéressante car si l'électron accéléré par le champ électrique acquiert une énergie cinétique suffisante, il pourra alors ioniser ou exciter l'atome ou la molécule neutre rencontré.

1.3.3 Coefficients caractéristiques

1.3.3.1 Mobilité

En l'absence de forces extérieures, aucune direction n'est privilégiée et les particules ionisées ou neutres d'un gaz sont animées d'une vitesse moyenne qui est donnée par l'agitation thermique.

Si nous appliquons un champ électrique constant à cet ensemble de particules, celles-ci vont alors se déplacer collectivement dans la direction de la force induite par le champ électrique.

Ce déplacement collectif provient par l'émission de l'ion dans une direction quelconque après chaque collision, cet ion tend à être ramené par le champ électrique toujours dans la même direction.

La vitesse moyenne avec laquelle le centre de masse de cet ensemble de particules se déplace dans la direction du champ électrique E est appelée vitesse de dérive (notée W).

La mobilité μ des particules se déduit de la vitesse de dérive au moyen de la relation :

$$W = \mu E \quad (1.4)$$

Pour les champs électriques élevés (cas de la décharge que nous allons étudier), la faible masse des électrons les empêche de transmettre par collision l'énergie acquise sous l'effet du champ électrique. Il en résulte une mobilité beaucoup plus grande pour les électrons que pour les ions [6].

1.3.3.2 Coefficients de diffusion

A l'intérieur d'un gaz, ionisé ou non, les différences de concentration des particules d'une région de l'espace à l'autre créent un déplacement de ces particules des régions de haute concentration vers les régions de basse concentration. Le flux de diffusion $J_{\text{diffusion}}$ par unité de surface est proportionnel au gradient de densité suivant la relation :

$$J_{\text{diffusion}} = -D \nabla n \quad (1.5)$$

La constante de proportionnalité est le coefficient de diffusion. Nous avons donc [2] :

$$\frac{D}{\mu} = \frac{m}{3e} \langle v \rangle^2 \quad (1.6)$$

Où

$$\frac{D}{\mu} = \frac{kT}{e} \quad (1.7)$$

La relation (1.7) est dite relation d'Einstein. "m" est la masse de l'électron, "e" sa charge, "k" est la constante de Boltzmann et "T" la température en degrés Kelvin.

La définition précédente du coefficient de diffusion "D" suppose que le milieu diffuseur est isotrope. Dans ce cas, "D" est une grandeur scalaire.

Dans le cas d'un gaz contenant des particules chargées, le milieu est rarement isotrope et le coefficient de diffusion est un tenseur.

Ce tenseur se simplifie et devient diagonal lorsque, les forces appliquées étant d'origine électrique, les électrodes sont planes et parallèles.

Il existe alors, un coefficient de diffusion longitudinal "D_L", correspondant à la diffusion dans le sens du champ électrique, et un coefficient de diffusion transversal "D_T" correspondant à la diffusion dans la direction perpendiculaire (ce cas est pris en considération dans les modélisations bidimensionnelles).

Etudiés depuis plus d'un siècle sans pour autant être totalement compris, les plasmas froids ou hors équilibre du fait de leur facilité de mise en œuvre (facilité de manipulation et absence du besoin d'équipements coûteux nécessaires pour obtenir un vide poussé comme ce serait le cas si on travaillait à basse pression) et de leur robustesse, Ils ont conduit à de nombreuses applications.

Nous allons donc voir les principaux processus de l'ionisation mis en jeu.

1.4 Principaux processus des collisionnels

L'ionisation est un processus primordial de création d'électrons et d'ions positifs [15]. Les processus d'ionisation dans les plasmas hors équilibre peuvent se diviser en trois groupes

1/L'ionisation thermique

2/L'ionisation par collision

3/La photo-ionisation.

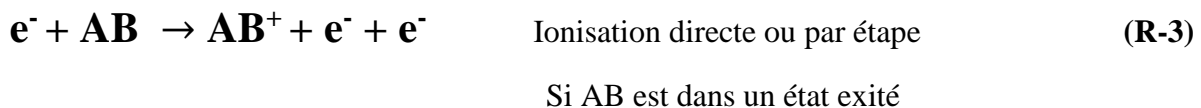
1.4.1 Ionisation thermique

Un gaz très chaud peut donc s'auto-ioniser. Si "B" est un état excité métastable, ce processus est facilité suivant la réaction (R-1) :



1.4.2 Ionisation par collisions

On a d'abord l'ionisation directe par impact électronique sur un atome ou une molécule à l'état fondamental ou excité (réactions (R-2) et (R-3)). Un électron peut ioniser une particule neutre à condition qu'il ait une énergie supérieure à l'énergie d'ionisation (seuil d'ionisation) de la particule neutre. Le seuil sera naturellement plus faible pour une ionisation par étape [15].



Nous avons aussi l'ionisation associative qui fait intervenir deux atomes ou molécules dont l'une est dans un état excité.



L'ionisation peut être également produite par les ions positifs, mais ce processus exige que la particule incidente ait un haut niveau énergétique de l'ordre de 100 à 200 eV [3].

1.4.3 Ionisation par photon ou photo-ionisation

La photo-ionisation correspond à l'absorption d'un photon UV. Un photon de fréquence \mathbf{u} suffisamment énergétique peut exciter ou même ioniser une particule neutre suivant le principe :



1.5 Applications industrielles des plasmas froids

La technologie plasma connaît à l'heure actuelle un grand progrès. Cette technologie est basée sur la dissociation des gaz, à température ambiante, par des électrons énergétiques pour produire des espèces (radicaux) chimiques actives qui sont très réactives à la fois dans le gaz et avec les surfaces exposées au gaz.

Les plasmas froids sont impliqués dans des applications industrielles qui n'ont cessé de se multiplier et de se diversifier, touchant notamment la micro optoélectronique, la métallurgie, la sidérurgie, l'automobile, l'aéronautique, l'emballage, l'industrie textile.

Les procédés plasmas sont également promis à jouer un rôle dans le domaine médical, que ce soit pour le dépôt de couches biocompatibles (pour les prothèses notamment) ou pour la stérilisation du matériel médical (tels que les endoscopes). Ils apparaissent également comme des candidats prometteurs pour la dépollution d'effluents gazeux (traitement des fumées d'usine, gaz d'échappement des automobiles) et le traitement de surface.

1.5.1 Stérilisation médicale

La stérilisation est l'opération qui consiste à éliminer ou tuer tous les micro-organismes portés par des milieux inertes contaminés. Elle est définie selon les normes européennes comme une probabilité théorique qu'un microorganisme viable soit présent sur l'objet stérilisé si la contamination initiale est de 10⁶ microorganismes [16].

Le mode de stérilisation de référence actuel est la stérilisation par la chaleur (sèche ou humide). Le traitement par la chaleur humide (autoclave) est le plus couramment utilisé et est celui préconisé dans les normes pour les objets non thermosensibles. Il s'agit de traiter les objets à des températures comprises entre 121 et 138 degrés Celsius, en présence de vapeur d'eau pour une répartition homogène de la chaleur, à une pression supérieure à 2 bars pendant environ 1 heure. Cette technique très sûre pose cependant un problème majeur : elle ne permet pas de stériliser les objets thermosensibles.

Dans ce cas, une autre voie possible est la stérilisation chimique. On utilise principalement l'oxyde d'éthylène comme agent stérilisant. Les inconvénients majeurs sont la très grande toxicité de ce gaz (risque pour le personnel) et de ce fait, la nécessité de rincer sur des temps longs, après traitement. La procédure de stérilisation dure environ 2 heures et est suivie d'une phase d'aération de 8 à 10 heures.

Les études sur la stérilisation par plasma ont débuté au cours des années 90. La recherche porte sur l'application des plasmas pour la stérilisation d'objets médicaux mais également pour la décontamination des produits alimentaires [17-22].

Bien que tous ces systèmes aient le même but, ils présentent des modes de fonctionnement très variés. On peut les classer par exemple selon ce qui suit :

- La pression à laquelle le traitement s'effectue : basse pression ou pression atmosphérique.
- Le positionnement des surfaces traitées par rapport à la décharge produite.
- Le gaz utilisé ou encore le type de décharge.

Le choix de la pression entraîne une cinétique spécifique des espèces actives responsables de l'effet biocide ; leur durée de vie est à priori plus longue à basse pression qu'à pression atmosphérique. Un tel choix conditionne également le dispositif expérimental, avec la nécessité éventuelle d'un système de pompage. Ceci est en général un handicap pour l'intégration du procédé dans l'industrie (traitements de surface en ligne par exemple). Dans ce cas, seul le travail à pression atmosphérique est envisageable.

Le positionnement des surfaces à traiter par rapport au plasma signifie que le milieu actif est constitué soit par la décharge, soit par la post-décharge.

Si on utilise le plasma lui-même, c'est la zone dite de décharge, si on utilise le flux gazeux émanant du plasma, c'est la zone de post-décharge qui ne contient pas de particules chargées ; elle est essentiellement composée d'atomes, de molécules et de radicaux dont certains sont dans un état excité. Les espèces actives ont des durées de vie comprises entre 10^{-3} et 10^{-1} secondes.

Lorsque les objets à décontaminer sont placés au sein même de la décharge, on obtient généralement de très bons résultats. L'inconvénient est qu'il est possible d'avoir une forte dégradation du matériau que l'on veut traiter compte tenu de la présence des ions et des électrons très énergétiques.

Il faut également surveiller l'éventuel échauffement des échantillons lorsqu'ils sont déposés à proximité de la cathode.

L'avantage du traitement en post-décharge est d'éviter ces effets (au niveau de cette zone, la température est inférieure à 50 degrés Celsius) et notamment d'être applicable à des matériaux thermosensibles.

La zone de post-décharge utilise des gaz non toxiques comme l'azote et l'oxygène. Son principe d'action et en particulier dans la phase gravure, laisse supposer une efficacité sur les agents transmissibles non conventionnels (prions). Cette dernière remarque justifie à elle seule l'intérêt porté à la stérilisation portée par plasma froid.

1.5.2 Traitement des polluants gazeux

Il existe de nombreuses techniques de désodorisation qui ne seront pas décrites ici. Celles-ci permettent de détruire les composés organiques volatiles (COV), odorants ou non, et/ou les microorganismes mais elles ne sont pas applicables dans l'automobile pour des raisons de taille ou de coût énergétique. On peut citer par exemple l'oxydation thermique ou la bio filtration.

1.5.2.1 Traitement chimique de l'air

Traiter l'air entrant dans l'habitacle serait une solution pour en faire un lieu sans odeur et en même temps sain, exempt de toute pollution. Les COV à éliminer peuvent soit provenir de l'extérieur soit être produits par les microorganismes. Le problème qui se pose rejoint celui de la dépollution atmosphérique, sujet d'étude actuel et fécond, proposant des procédés difficiles à appliquer à l'automobile en raison de leur encombrement ou de leur coût énergétique. On peut citer :

1.5.2.2 La photo catalyse

Elle fait partie des procédés de destruction chimique. Son fonctionnement nécessite une source de lumière UV (lampe spécifique ou rayons du soleil) et un support contenant un composé photo catalytique. Le matériau le plus couramment utilisé est le dioxyde de titane (TiO_2). Ce matériau possède une transition entre la bande de valence et la bande de conduction de 3.2 électronvolts : cette énergie, nécessaire au changement de bande d'un électron, est fournie par les rayonnements UV.

L'électron ainsi déplacé sur la bande de conduction va pouvoir être utilisé pour catalyser des réactions à la surface du matériau photo catalytique. Les réactions engendrées sont de type oxydo-réduction et permettent soit d'attaquer directement les COV ou les microorganismes adsorbés à la surface, soit de créer des molécules actives à partir des molécules du gaz vecteur utilisé.

La photo catalyse ne permet généralement pas une minéralisation complète des composés que l'on souhaite détruire (transformation en CO_2 et H_2O). Il faut alors envisager de la coupler à un autre système complémentaire ou de procéder à plusieurs passages du gaz à traiter dans une zone photo catalytique. A l'heure actuelle, la photo catalyse permet de traiter des gaz à faible débit et à faible concentration en polluants (temps de résidence très longs) au risque de voir apparaître des produits de dégradation secondaires que l'on ne maîtrise pas.

1.5.2.3 Le traitement plasma

Les milieux scientifiques et les secteurs industriels, s'intéressent depuis une dizaine d'années à la possibilité d'utiliser les plasmas froids pour la dépollution des effluents gazeux. L'idée de base est d'exploiter la réactivité chimique des radicaux et espèces engendrés au sein du plasma pour transformer les molécules polluantes en molécules inoffensives, la réaction se déroulant dans l'air à la pression ordinaire et sans pertes thermiques.

Les résidus obtenus peuvent en outre être parfois valorisables. Les polluants visés dans les développements actuels sont essentiellement les oxydes de soufre et d'azote (les COV ou composés organiques volatils) et les molécules malodorantes. La production de radicaux réactifs pour dépolluer des effluents gazeux est également possible avec la technologie des faisceaux d'électrons, qui connaît déjà de nombreuses applications industrielles dans le monde.

Il semble assez difficile aujourd'hui d'établir une comparaison entre les deux procédés. Le plasma froid est certainement sensiblement plus onéreux à mettre en œuvre, mais son développement beaucoup plus récent laisse encore de la place à des optimisations technico-économiques. En revanche, il bénéficie d'une grande souplesse d'utilisation et peut s'adapter à des débits de gaz très variable, puisqu'on envisage de l'utiliser aussi bien sur des cheminées de centrales que sur des pots d'échappement d'automobiles [15], [23-25].

1.5.3 Traitement de surface par plasma

La préparation des surfaces est une phase essentielle dans l'assemblage par collage. Elle a pour premier objectif d'éliminer les contaminants et les couches superficielles de faible cohésion (agents de démoulage des matières plastiques, composés de faible masse moléculaire ayant migré à la surface des polymères, oxydes fragiles, résidus de corrosion).

Des traitements plus poussés peuvent permettre de modifier la chimie de surface afin d'augmenter la tension superficielle ou de favoriser la création de liaisons chimiques avec l'adhésif. Diverses méthodes de traitement sont utilisées. Les traitements de surface du fait qu'ils sont respectueux de l'environnement, constituent une application importante des plasmas froids [26].

Au cours des vingt dernières années, les difficultés rencontrées pour contrôler le plasma et donc le traitement de surface à la pression atmosphérique ont amené les chercheurs à développer des procédés fonctionnant à basse pression.

En effet, lorsque la pression diminue, le libre parcours moyen des électrons augmente et des plasmas homogènes sont facilement réalisés. Ainsi, aujourd'hui, l'industrie de la micro-électronique utilise des procédés plasmas basse pression à toutes les étapes de fabrication des

circuits intégrés. Néanmoins, même s'il existe des solutions plasmas pour la plupart des besoins concernant les modifications de surface ou la réalisation des couches minces, leur transfert vers l'industrie en dehors de la micro-électronique est très limité.

Cette situation s'explique par un coût d'installation mais surtout de fonctionnement élevé et d'autant plus inacceptable que la production est réalisée en continu à des cadences rapides. En effet, un traitement à basse pression ne peut s'effectuer que lot par lot. L'inconvénient provient donc du traitement discontinu des pièces qui doivent être mises sous vide ainsi que de la taille des réacteurs qui limite la dimension des objets traités.

Même si des volumes de plusieurs mètres cubes sont envisageables avec des temps de chargement et de pompage de l'ordre de dizaines de minutes, le coût global de fonctionnement est souvent trop important pour que le processus soit rentable.

Néanmoins, l'étude des procédés plasmas se poursuit car ils sont une alternative possible aux traitements chimiques dont les effluents sont de plus en plus difficiles à recycler. Parmi les évolutions notables, figurent les procédés de traitement de surface par plasmas à pression atmosphérique.

1.5.4 Génération d'ozone

A cause de sa relativement courte durée de vie, l'ozone est toujours généré sur site grâce à un générateur d'ozone. A l'échelle industrielle, l'ozone est produit en utilisant des radiations ultraviolettes de courtes longueurs d'ondes émises par une lampe à vapeur de mercure, ou par le procédé de décharge à froid ou décharge couronne qui utilise un champ électrique élevé. La génération d'ozone par décharge couronne est plus courante de nos jours et a plus d'avantages. Les avantages de la méthode de décharge couronne sont : une plus grande durabilité de l'unité, une meilleure production d'ozone et un meilleur rapport coût/efficacité.

L'ozone bénéfique peut être produit artificiellement à travers l'emploi de trois types de générateurs [6].

- ✓ Générateur à rayons ultraviolets qui réplique le soleil : le générateur à rayons ultraviolets produit l'ozone à travers l'exposition d'un flux d'air à la lumière engendrée par les lampes à ultraviolet .
- ✓ Générateur avec décharge couronne à oxygène (CDOX) qui réplique les phénomènes électriques orageux : Ce générateur produit l'ozone à travers le passage d'oxygène déshumidifié et propre par l'intermédiaire d'un champ électrique très intense. Le point de rosée doit se situer à - 60 degrés Celsius pour éviter tout problème de corrosion à l'intérieur de l'ozoneur.

Lorsqu'une augmentation des quantités de vapeur d'eau est présente, de plus grandes quantités d'oxyde d'azote sont formées lorsque les déchargent se produisent. L'oxyde d'azote peut former l'acide nitrique (provoque la corrosion).

De plus, les radicaux hydroxydes sont formés et se combinent avec les radicaux d'oxygène et avec l'ozone. L'oxygène pur est fourni par un générateur d'oxygène ou par fois par des bouteilles d'oxygène. Les ozoneurs produisent de très grandes quantités d'ozone, mais ils nécessitent toujours et seulement de l'oxygène à l'état sec. L'ozone est produit à partir de l'oxygène en tant que résultat direct de la décharge électrique.

La décharge couronne (corona discharge) rompt la molécule stable d'oxygène et forme deux radicaux d'oxygène. Ces radicaux peuvent se combiner avec les molécules d'oxygène pour former l'ozone. L'emploi de l'oxygène seulement n'engendre pas de sous-produits dangereux. Pour éliminer l'ozone restant après utilisation, des destructeurs d'ozone sont utilisés.

1.5.5 Destruction de l'ozone

Le mécanisme du destructeur d'ozone peut être basé sur différents principes. Généralement, un catalyseur est utilisé, qui accélère la décomposition de l'ozone en oxygène (par exemple l'oxyde de magnésium).

Le générateur CDOX est jusqu'à dix fois plus puissant que le générateur UV mais il produit une quantité considérable de chaleur qui doit être dissipée. Il n'est employé que dans le domaine des traitements industriels de haut niveau et dans les villes pour rendre potable des millions de mètres cube à l'heure.

Les facteurs importants qui influencent la génération d'ozone sont : la concentration d'oxygène du gaz d'entrée, l'humidité et la pureté du gaz d'entrée, la température de l'eau de refroidissement et les paramètres électriques. Pour minimiser l'énergie qui est utilisée à un haut rendement d'ozone, il est important que ces facteurs soient optimaux ;

- ✚ Générateur avec décharge couronne à coefficient réduit (RCCD) qui réplique les phénomènes électriques orageux aussi : ce générateur produit l'ozone à travers le passage de l'air (ambient fourni par un compresseur) par l'intermédiaire d'un champ électrique très intense.

Lorsqu'on utilise de l'air, celui-ci doit au préalable subir un refroidissement dans un échangeur de température et une dessiccation poussée sur gel de silice ou d'alumine activée de façon à obtenir un point de rosée ne dépassant pas -60 degrés Celsius. Cet appareil est immunisé contre toute sous production de gaz nitrogènes dangereux.

Cette première partie est un bref rappel des notions de base de physique des plasmas et de leurs différentes applications. La deuxième partie du chapitre I traite les mécanismes de claquage du gaz et la théorie du streamer.

1.6 Phénomènes disruptifs

La disruption est caractérisée par la valeur de la tension appliquée aux électrodes à partir de laquelle le gaz isolant devient fortement conducteur [10], [12].

On sait que, par suite de la présence en permanence d'un petit nombre de particules chargées, un gaz possède toujours une certaine conductivité, même si l'intensité de celle-ci est très faible.

Toutefois, tant que la tension appliquée est faible, le courant obtenu est quasi négligeable et l'on ne peut, dans ce cas, parler de disruption. En fait, il n'y a vraiment disruption que si un grand nombre de particules chargées est créé dans le gaz par suite de l'ionisation et que si l'intensité du courant traversant l'espace inter-électrodes n'est alors limitée que par la seule impédance du générateur de courant.

Dans ces conditions, la décharge devient autonome et se maintient même en l'absence d'agents ionisants extérieurs. On conçoit qu'il existe une grande variété de phénomènes disruptifs, caractérisés par la nature et la pression du gaz, la géométrie des électrodes, les différentes variations spatiales ou temporelles de la tension appliquée, etc....

Nous allons présenter quelques-uns des différents types de claquage qui nous intéressent en nous efforçant de mettre en évidence leurs caractéristiques les plus marquantes.

1.6.1 Décharges dans les gaz

Cette section décrit les principales caractéristiques d'une décharge dans un gaz, objet de nombreuses études et publications [13], [36-37]. Elle va traiter plus particulièrement de la décharge filamentaire.

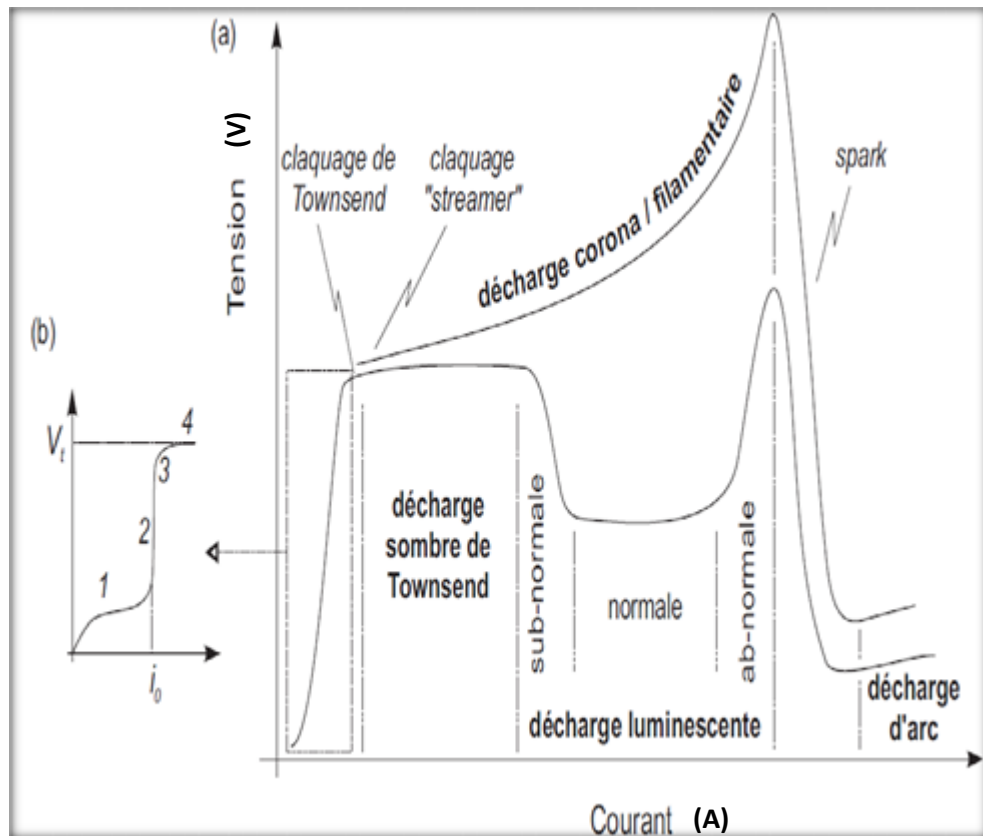


Figure 1.3 : (a) Caractéristiques courant-tension de différents types de décharges dans les gaz.

(b) zoom sur la caractéristique de la décharge non-entretenu.

En fonction de la pression, de la distance inter électrodes et du matériau des électrodes, différents types de décharges peuvent être distingués. Celles-ci sont classifiées par rapport à leurs caractéristiques courant-tension, comme présenté dans la figure (1.3.a)

La courbe supérieure correspond aux décharges observées à haute pression (autour de la pression atmosphérique) et la courbe inférieure aux décharges basse pression ($< 1\text{mbar}$). A haute pression, la décharge est donc de type filamentaire.

On distingue quatre catégories de décharges stables ou quasi-stables (figure (1.3.a)) :

- ✚ La décharge sombre de Townsend, caractérisée par un courant très faible (10^{-8} A).
- ✚ La décharge lumineuse (Glow), largement utilisée dans les procédés industriels, principalement à basse pression ($< \text{mbar}$) à faible courant ($\approx 10^{-2}\text{ A}$) et moyenne tension ($\approx 1\text{kV}$). C'est un plasma faiblement ionisé et hors équilibre. Comme pour la décharge de Townsend, les électrons sont émis par impacts ioniques à la cathode.

- ✚ La décharge couronne ou filamentaire que l'on rencontre généralement à la pression atmosphérique. Courant faible ($\approx 10^{-6}$ A), elle se développe localement sous un champ électrique non uniforme.
- ✚ La décharge d'arc, caractérisée par un fort courant (>100 A), une faible tension (< 100 V) et une émission lumineuse très intense. A la différence de la décharge luminescente, les électrons sont émis par un procédé thermoïonique dû au chauffage de la cathode. Le plasma d'arc haut pression peut être considéré comme étant à l'équilibre thermodynamique.

A l'enclenchement de ces décharges on distingue deux, voire trois types de claquage (figure (1.3.a)) : le claquage de type Townsend, le claquage de type streamer et le claquage de type spark (étincelle).

Quel que soit le type de claquage, l'origine - processus primaire - du procédé de claquage est une avalanche électronique. Elle se développe dans le gaz lorsqu'un champ électrique suffisamment intense est appliqué. La distinction entre le claquage de type Townsend et le claquage de type streamer vient des différents processus secondaires, issus de l'avalanche primaire, qui vont gouverner la décharge. On définit le claquage comme le seuil de tension au-delà duquel la décharge est autoentretenu par les processus secondaires.

1.6.2 Claquage de type Townsend et décharge de Townsend

Le processus de claquage à basse pression ou pour des faibles valeurs du produit pression- distance inter-électrodes (quelques torr.cm) est de type Townsend [36-38]. La courbe de la figure (1.3.b) présente une vue détaillée, avant le claquage, de la caractéristique courant-tension.

La figure 1.4 représente le circuit électrique utilisé pour la réalisation et l'étude des décharges électriques par Townsend. Le circuit est composé d'une source de tension (V), d'une résistance variable (R), qui permet de contrôler et de limiter le courant et de la chambre de décharge avec ses deux électrodes (Cathode- Anode)

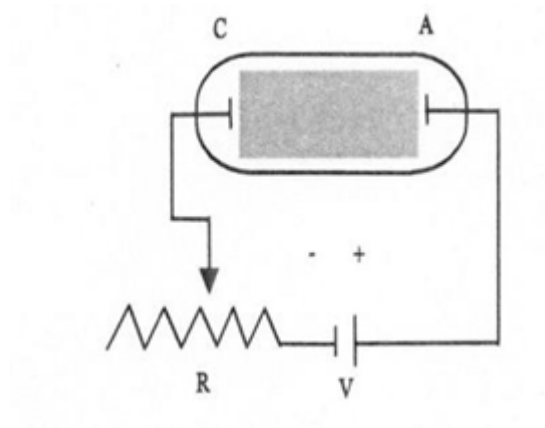


Figure 1.4: Configuration similaire des décharges électriques par le principe Townsend.

Si l'on considère deux électrodes planes séparées par une distance (d) (figure (1.4)) et que l'on applique une tension V à leurs bornes, il va se former un champ électrique considéré comme homogène de la forme $E = V/d$. Des électrons germes provenant de sources externes (rayons cosmiques, radioactivité naturelle ou source ionique artificielle) vont être accélérés et rejoignent l'anode si le champ est suffisamment intense et s'ils ne se sont pas attachés à une molécule électronégative.

En conséquence, le courant généré dans le circuit figure (1.4), en fonction du nombre d'espèces chargées ayant rejoint les électrodes, va croître, dans un premier temps, avec la tension appliquée V (étape 1 sur la figure (1.3.b)). A partir d'une certaine tension, presque toutes les espèces chargées (ions et électrons) rejoignent les électrodes. Le courant saturé (i_0 , figure(1.3.b)) et cesse de dépendre de la tension (étape 2, figure (1.3.b)).

Cette saturation est déterminée par le taux de charges créées par les sources externes. Si la tension augmente encore, le gaz s'ionise par impact électronique, amplifiant le courant dû aux sources externes. C'est l'avalanche électronique résultant de ces processus primaires.

Le courant est multiplié par un facteur $e^{\alpha d}$, qui correspond au nombre de paires d'ions produites par une avalanche électronique traversant l'espace inter-électrodes. α est le premier coefficient de Townsend ou coefficient d'ionisation : il définit le nombre d'électrons produits sur le chemin d'un électron parcourant (1 cm) dans le sens du champ électrique. La courbe verticale de saturation du courant s'adoucit (étape 3 figure (1.3.b)), mais le courant n'est toujours pas auto-entretenu.

Pour cela il faut augmenter encore la tension pour que les processus d'émission secondaire (photo-ionisation, bombardement ionique et métastables [37]) entrent en jeu : création d'électrons par les particules issues des processus primaires d'ionisation ou d'excitation par impact électronique.

Les processus d'émission secondaire sont d'autant plus efficaces, pour la multiplication des avalanches, s'ils se produisent à la cathode : les électrons sont ainsi accélérés sur tout l'espace inter électrodes jusqu'à l'anode, fournissant une ionisation plus importante qu'un électron provenant du milieu de l'espace inter-électrodes. En tenant compte de ce processus, l'amplification du courant peut s'écrire [39] :

$$\mathbf{i} = \mathbf{i}_0 \frac{e^{\alpha d}}{1 - \gamma(e^{\alpha d} - 1)} \quad (1.8)$$

Où ' γ ' est le second coefficient de Townsend, qui dépend du matériau de la cathode, du gaz et qui tient compte de la contribution des ions positifs, des photons et des espèces métastables.

Le claquage a lieu quand la tension aux bornes des électrodes atteint un seuil V_t (seuil de claquage, étape 4, (figure (1.3.b)), tel que l'amplification du courant entre les électrodes tende vers l'infini :

$$\gamma(e^{\alpha d} - 1) = \mu = 1 \quad (1.9)$$

Cette équation représente l'établissement d'un courant stable auto-entretenu sous un champ électrique homogène $E_t = V_t / d$. Le processus d'auto entretien dans l'espace inter-électrodes peut être décrit de la manière suivante : un électron émis par la cathode produit $(e^{\alpha d} - 1)$ ions qui, en interagissant avec la cathode, extraient ' γ ' électrons chacun (dans le cas d'une émission ion-électron).

Un électron primaire est remplacé par un électron secondaire. Cependant, le claquage ne peut être entretenu si la tension appliquée est exactement V_t , car cette tension permet uniquement d'entretenir la première reproduction d'électrons ($\mu = 1$).

Afin d'augmenter la quantité d'électrons germes à la cathode, il faut augmenter légèrement la tension appliquée ($V > V_t$) et ainsi accéder au régime d'auto entretien.

On introduit donc une légère surtension ($\Delta V = V - V_t > 0$). pour assurer un renouvellement étendu d'électrons ($\mu = 1$) [36].

Une fois la tension de claquage atteinte et la condition d'auto-entretien remplie, un premier type de décharge s'établit : la décharge sombre de Townsend. Pour l'établissement de ce type de décharge, la résistance du circuit doit être très grande afin de limiter le courant de décharge à une valeur suffisamment faible pour que la charge d'espace positive qui s'accumule entre les électrodes ne déforme pas le champ électrique appliqué.

Si le courant augmente, le champ devient spatialement inhomogène et la décharge de Townsend transite en décharge luminescente. Le champ de charges d'espace devenant plus important, la tension nécessaire pour maintenir la décharge diminue. Une chute cathodique se forme, caractérisée par une région de charges d'espace positive autour de la cathode avec des champs électriques élevés. Une colonne positive de plasma quasi-neutre se crée entre l'anode et la cathode.

Durant le processus de claquage, chaque avalanche s'étend généralement transversalement à cause de la diffusion des électrons. D'autre part, un processus ne débute pas nécessairement avec un seul électron, plusieurs peuvent être émis simultanément à des endroits différents.

Ainsi, le claquage de Townsend occupe le plus souvent tout le volume inter-électrodes par diffusion. Il en va de même pour les décharges, dites, de ce fait, homogènes résultantes : décharge de Townsend ou décharge luminescente. Ceci constitue une différence importante par rapport aux décharges filamenteuses, issues d'un claquage de type streamer, qui est très localisé, comme nous allons le voir dans le paragraphe qui suit.

1.6.3 Claquage de type streamer et décharge filamenteuse

La plupart des décharges que l'on rencontre à la pression atmosphérique (corona, arc) sont initiées par un claquage de type streamer.

Dans l'air, d'après le critère proposé en 1940 par Raether [38], lorsque le produit (pression*distance inter-électrodes) devient supérieur à 1000 Torr.cm, on peut s'attendre à un claquage de type streamer et à un claquage de type Townsend s'il est inférieur.

Une surtension trop importante donne aussi un claquage de type streamer. La courbe de la figure (1.5) propose une limite entre ces deux types de claquage dans l'air en fonction de la surtension appliquée et du produit ($p \times d$).

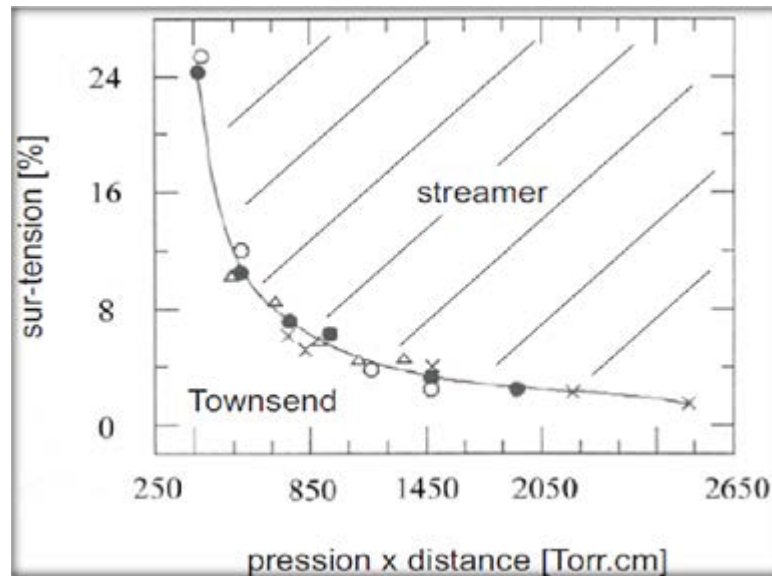


Figure 1.5 : Courbe séparant les conditions en air résultant d'un claquage de Townsend (région inférieure) d'un claquage de type streamer (région supérieure)

Dans les conditions données plus haut, le processus de claquage observé est trop rapide pour être expliqué par un mécanisme d'avalanches électroniques successives assistées par l'émission d'électrons secondaires à la cathode [40]. Cette émission secondaire due à l'impact des ions à la cathode n'est tout simplement pas possible car le temps de propagation de l'avalanche primaire est beaucoup plus rapide que le temps de transit des ions à la cathode.

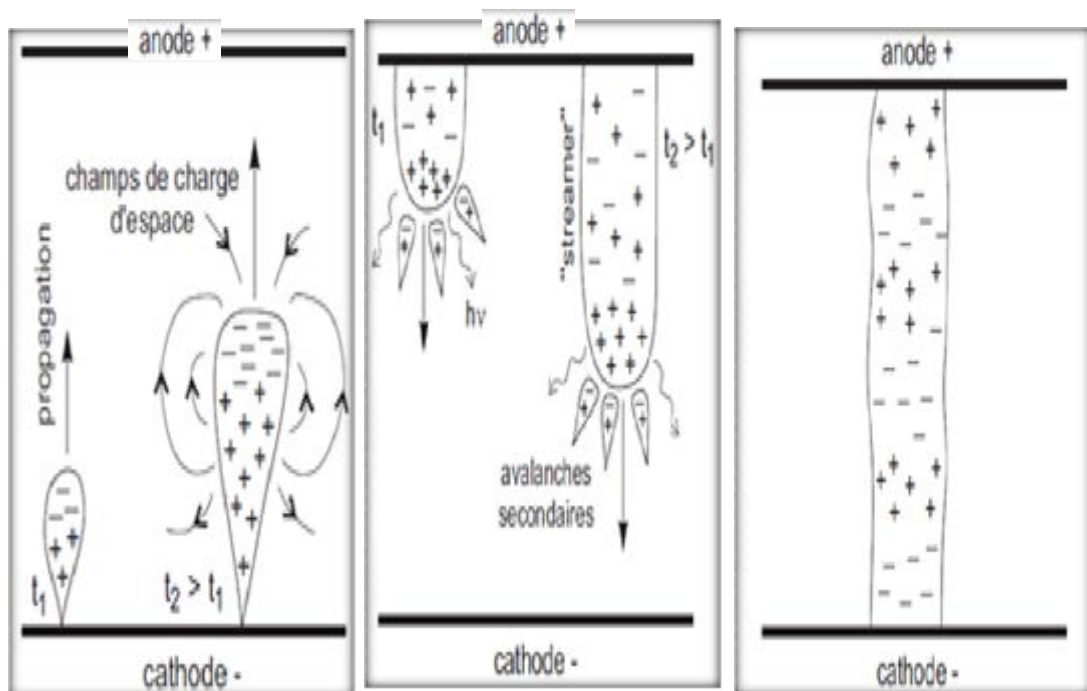
D'autre part, une des caractéristiques essentielles du claquage de Townsend est que le champ de charges d'espace d'une seule avalanche électronique ne modifie pas le champ électrique appliqué dans l'espace inter-électrodes.

Cependant, quand le nombre d'électrons dans l'avalanche dépasse un seuil critique $N_{cr} (\approx 10^8)$ avant d'atteindre l'anode, l'accumulation de charges d'espaces locales engendre un mécanisme de claquage complètement différent. Le critère de Meek [13] définit ce seuil :

$$e^{\alpha d} \leq N_{cr} \quad (1.10)$$

On parle alors de claquage de type streamer [26] ; ce claquage est beaucoup plus rapide que le claquage de Townsend (durée 10^{-9} s) et donne un fin canal de décharge constituant un filament.

1.6.3.1 Streamer positif



(a) : Avalanche électronique primaire. (b) : Propagation du streamer. (c) : Filament

Figure 1.6 : Mécanisme de claquage de type streamer positif (CDS)

Le mécanisme de claquage de type streamer positif se décompose en plusieurs phases (figure 1.6) :

- **Avalanche primaire**

Une avalanche intense se forme et croit très rapidement de la cathode vers l'anode (figure 1.6.a). Les charges d'espace forment une sorte de dipôle au sein même de l'avalanche : les électrons sont en tête d'avalanche alors que les ions positifs restent en queue.

Le champ de charges d'espace résultant va distordre localement le champ appliqué. Puis, la croissance rapide de l'avalanche et son amplification lui permettent d'atteindre une taille telle que le champ de ces charges d'espace va devenir aussi important que le champ appliqué. A ce moment, le nombre d'électrons atteint son seuil critique $N\alpha \approx 10^8$.

Ce champ s'additionne au champ appliqué et une zone faiblement ionisée peut alors se créer. Lorsque l'avalanche atteint l'anode, il ne reste plus que les charges d'espace positives de la queue de l'avalanche dans l'espace inter-électrodes. Le champ est formé par ces charges ioniques et leur image à l'anode.

Pour que l'avalanche primaire se transforme en streamer, il faut qu'elle atteigne un niveau d'amplification très élevé. Le champ de charge d'espace doit atteindre la valeur du champ appliqué, sinon il n'y aurait aucune raison que l'évolution normale de l'avalanche soit perturbée.

C'est ce point particulier qui permet de distinguer la transition de l'avalanche primaire vers le streamer et le claquage de type streamer de la multiplication des avalanches et du claquage de type Townsend.

- **Transition avalanche streamer et propagation**

Lorsque l'avalanche primaire rejoint l'anode, au moment où son amplification est maximum et où la zone faiblement ionisée se crée, le streamer va se former (figure 1.6.b) . Il va ensuite se propager et croître de l'anode vers la cathode. Cette croissance est causée par des avalanches secondaires qui se créent au voisinage de la tête du streamer.

Elles sont initiées par des électrons émis par photo-ionisation. Ces électrons sont rapidement attirés dans le streamer et se mélangent aux ions issus de l'avalanche primaire pour former un plasma quasi-neutre. Les ions de l'avalanche secondaire, se déplaçant bien plus lentement que les électrons, sont à leur tour intégrés à la tête du streamer. Ils forment la nouvelle tête, chargée positivement du streamer qui s'étend de cette manière. Ces charges attirent à leur tour les électrons issus d'une deuxième génération d'avalanche secondaire et ainsi de suite jusqu'à rejoindre la cathode.

Cette description correspond à la propagation d'un streamer positif (Cathode Directed Streamer ou CDS), comme on peut l'observer avec une distance inter électrodes faible et une surtension peu élevée.

- **Etablissement d'un canal de décharge**

Une fois que le streamer a rejoint la cathode, la phase de claquage est terminée et un filament, un mince canal de décharge partiellement ionisé, se forme (figure 1.6.c) . Nous devons donc distinguer la formation du streamer positif (CDS) du streamer négatif (ADS ou Anode Directed Streamer).

Le streamer positif se forme entre l'avalanche initiale et la cathode ; la propagation se fait dans le sens contraire au mouvement des électrons et avec une vitesse très supérieure à la vitesse de dérive des ions positifs.

1.6.3.2 Streamer négatif

Le streamer négatif (figure (1.7)) se forme entre l'avalanche initiale et l'anode ; le mécanisme de propagation est le même que celui qui vient d'être énoncé à la différence près que cette fois les électrons se propagent naturellement dans le sens de propagation du streamer. Les avalanches secondaires peuvent être alors créées en avant du front d'ionisation, elles seront ensuite rejointes et continueront à former la queue du streamer.

Il faut noter que dans ce cas, une propagation sans émission de photons est possible. Les électrons de la tête du streamer sont alors accélérés dans le très fort gradient de charge d'espace et vont ensuite être piégés électro statiquement par les ions positifs formant ainsi, comme précédemment, un canal de plasma quasi neutre, le canal du streamer [41].

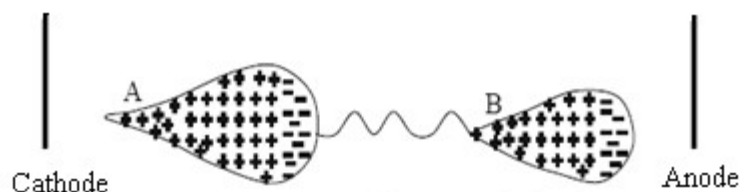


Figure 1.7 : Représentation schématique du développement d'un streamer négatif

1.7 Conclusion

Ce chapitre a fait l'objet d'une étude bibliographique sur les plasmas en général, pour bien situer en particulier les plasmas non-thermiques générés par les décharges électriques.

Au cours du deuxième chapitre, nous allons introduire le concept de décharge à barrière diélectrique et les éléments physiques qui la caractérisent.

Puisqu'il est possible de produire l'ozone dans certains gaz et plus spécialement dans l'air par les décharges électriques, nous allons faire le point sur ce dernier dans le chapitre suivant, nous allons présenter aussi des généralités sur les propriétés physicochimiques de l'ozone, les différentes méthodes de sa production et ses applications.



CHAPITRE II

Décharges à barrière diélectrique et généralité sur l'ozone

CHAPITRE 2 : Décharge à barrière diélectrique et généralité sur l'ozone

2 Décharge à barrière diélectrique

2.1 Historique

Les premières expérimentations connues sur ces décharges sont de W. Siemens en 1857. Les applications principales étaient la production d'ozone ou d'oxyde d'azote [42-43]. En 1932, décrit le caractère filamentaire de cette décharge dans l'air à travers les premiers clichés photographiques et mesures à l'oscilloscope réalisés sur les DBDs [44-45]. Dans les années soixante-dix, les premières simulations et recherches sur les DBDs permettent d'élargir le champ d'application de ces décharges à la modification de surface, à la déposition assistée par plasma, aux lasers puis, plus tard, aux écrans plats, aux traitements d'effluents gazeux. R. Bartnikas, en 1968, observait une décharge à barrière diélectrique dans un régime différent de régime filamentaire classique. Cette décharge a été nommée décharge homogène. Il faut attendre 1988 pour découvrir l'existence d'un régime de DBD homogène à la pression atmosphérique grâce aux recherches des japonais Kanazawa et al [44]. Depuis de nombreuses recherches ont été menées afin de comprendre les phénomènes physiques régissant les DBDs.

2.2 Définition et caractéristique d'une DBD

Une décharge à barrière diélectrique est un plasma froid hors équilibre généré à la pression atmosphérique entre deux électrodes recouvertes de diélectrique. Ce plasma faiblement ionisé ($n_e = 10^9 - 10^{11} \text{ cm}^{-3}$) est caractérisé par une température électronique de quelques électronvolts bien supérieure à celle des espèces neutres qui sont majoritaires [44-46].

Cette décharge se caractérise par la présence d'un composant diélectrique sur au moins une des deux électrodes (voire les deux) [47-48]. Différentes configurations d'électrodes, ayant toutes en commun l'insertion d'une couche diélectrique couvrant au moins l'une des deux électrodes sont proposées. Ces dispositifs sont nombreux et variés avec une géométrie homogène ou hétérogène.

La largeur de l'espace inter-électrode varie de 0,1 mm (voire moins) à plusieurs centimètres en fonction de l'application souhaitée.

Pour transporter un courant autre que capacitif dans l'espace de décharge, le champ électrique se doit être assez intense pour causer l'effondrement du gaz. Or, pour des valeurs

élevées de pression (et de distance inter-électrodes : loi de Paschen), l'augmentation du courant entre deux électrodes métalliques entraîne généralement le passage vers un régime d'arc, synonyme de plasma à haute température et de dommage à la surface. La présence d'un diélectrique entre les électrodes peut être considérée comme une capacitance en série avec l'espace de gaz. Le principal rôle de ce diélectrique est d'éviter le passage à l'arc lors de l'établissement de la décharge. Ceci résulte de l'accumulation de charges sur le matériau isolant. Ces charges de même polarité que l'électrode opposée provoquent une chute du champ et une extinction de la décharge. Le diélectrique étant un isolant sa constante diélectrique et son épaisseur, en combinaison avec la dérivée dans le temps de la tension appliquée dU/dt , détermine la quantité de courant qui peut passer à travers le diélectrique. Il ne laisse pas passer le courant DC. C'est pourquoi, lorsqu'on travaille avec de telles décharges, il est impératif qu'elles soient alimentées par une tension alternative. Dans ce cas, la présence des charges va accélérer la formation des streamers par augmentation du champ dans l'alternance suivante.

Des différences de potentiel de l'ordre de dizaines de kV sont nécessaires pour allumer les décharges dans un espace inter-électrodes de quelques millimètres. Puisque à haute fréquence, la limitation du courant par la barrière diélectrique devient de moins en moins efficace, la DBD est normalement utilisée entre des fréquences de 50 Hz à 10 MHz [42],[49].

La configuration géométrique des électrodes dans ce type de décharge volumique, qui est la plus utilisée, peut-être de nature plan-plan, pointe-plan, multi pointes-plan, lame-cylindre, fil-cylindre et cylindre-cylindre.

2.2.1 Principe de la DBD

Suite à l'application d'une tension suffisamment élevée sur les électrodes, le claquage du gaz conduit à la formation d'un canal conducteur appelé micro-décharge [50] comme indiqué sur la figure (2.1-a). cette micro-décharge peut-être représentée par le schéma équivalent de la figure (2.1-b). Le diélectrique en vis-à-vis de la micro-décharge se comporte comme l'isolant d'un condensateur, C1, dont les armatures sont d'un côté la décharge et de l'autre côté l'électrode. Notons que ce schéma équivalent n'a de sens que si l'on considère uniquement une seule micro-décharge ou une décharge homogène sur toute la surface des électrodes [45],[50].

Le passage du courant induit une accumulation de charges sur la surface du diélectrique solide en vis-à-vis du canal de décharge qui se traduit par une augmentation de la tension V_{ds} . Si l'augmentation de cette tension au fur et à mesure du développement de la décharge est plus

rapide que l'augmentation de la tension, V_a , elle cause une chute de la tension appliquée sur le gaz, V_g , ce qui conduit à l'extinction de la décharge.

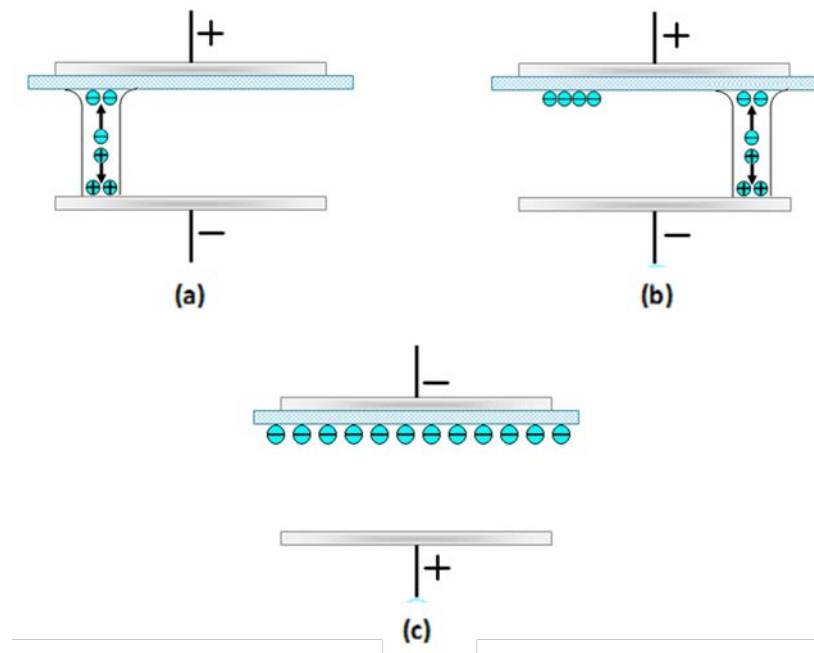


Figure 2.1: Principe de fonctionnement d'une DBD

- (a) Etablissement d'une première micro-décharge, (b) extinction de la première micro-décharge et amorçage d'une nouvelle, (c) changement de la polarité appliquée sur les électrodes.

Ainsi, la micro-décharge est bloquée bien avant d'avoir atteint un degré d'ionisation suffisant pour transiter en régime d'arc.

Tant que la tension appliquée augmente, des micro-décharges s'initient à de nouvelles positions car la présence de charges résiduelles sur le diélectrique diminue le champ électrique appliqué sur le gaz aux positions où des micro-décharges se sont déjà développées (figure 2.1-b). Au changement de polarité (figure 2.1-c), les charges précédemment déposées sur le diélectrique permettent un claquage du gaz sous un champ plus faible que lors de la première alternance : $V_g = V_a - V_{ds}$ (avec V_a et V_{ds} de signes contraires lors du changement de polarité).

La fonction première du diélectrique est de limiter la charge déposée sur les électrodes et par voie de fait le courant transitant dans le canal afin que la décharge ne devienne par un arc comme cela peut arriver entre deux électrodes métalliques à pression atmosphérique. De plus, l'utilisation du diélectrique a également pour conséquence de tendre vers une répartition plus uniforme des micro-décharges sur toute la surface des diélectriques [51].

2.2.2 Configurations typiques de la DBD

Selon la nature de décharge, on distingue deux configurations volumiques et surfaciques.

2.2.2.1 Configurations des DBDs volumiques

Il existe d'autres configurations couramment utilisées. En effet, le terme de DBD regroupe toutes les configurations de cellule de décharge pour lesquelles un courant transite entre deux électrodes métalliques séparées par un gaz et par au moins une couche d'un matériau isolant.

Suivant l'application visée, deux couches isolantes peuvent y être placées. Les configurations coplanaires et cylindriques typiques d'électrodes sont données dans la figure (2.2) [59].

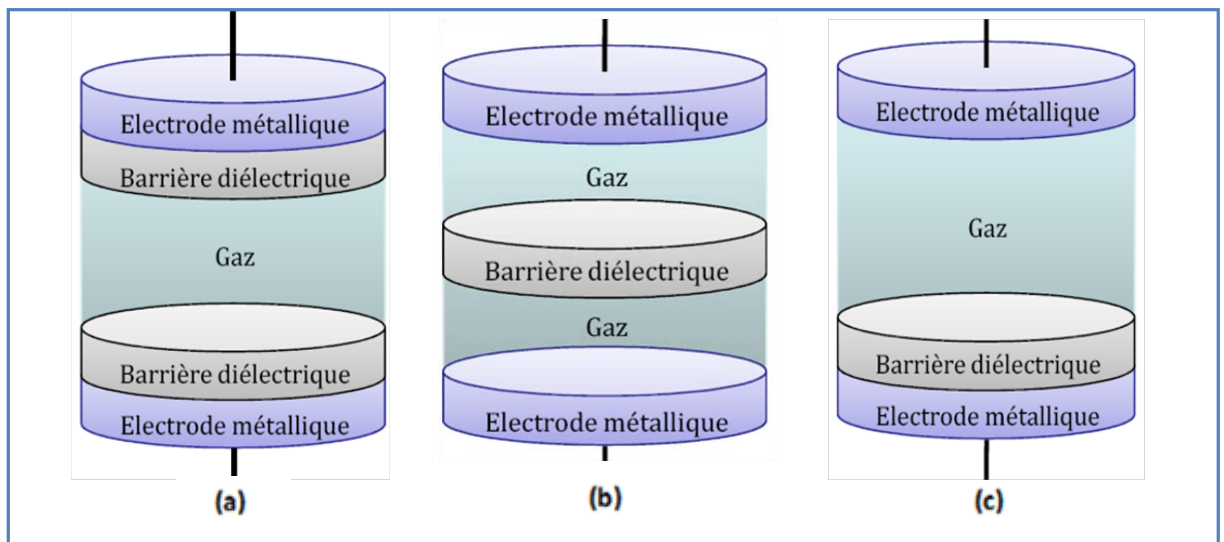


Figure 2.2 : Différentes configurations de Décharges contrôlées par Barrières Diélectriques (DBD).

Les configurations coplanaires sont plutôt utilisées pour les applications de traitements de surface tandis que les cylindriques sont plus adaptées aux traitements des gaz. L'arrangement plan-plan (a) et (c) de la Figure (2.2) présente l'avantage d'éviter tout contact entre le plasma et les électrodes métalliques, condition parfois utile lors de l'utilisation de plasma corrosif par exemple.

La configuration (b) permet l'obtention simultanée d'une décharge de part et d'autre du diélectrique, propriété intéressante si, par exemple, la barrière diélectrique est réalisée à l'aide du matériau à traiter. Dans ce cas, le matériau est traité sur les deux faces simultanément [52].

La configuration (c) regroupe les propriétés des deux types précédés ce qui donnent une forte décharge beaucoup plus et aussi bien uniforme que les deux autres.

2.2.2.2 Configurations des DBDs surfaciques

A la fin des années 90 aux Etats-Unis, le Pr Roth met au point une nouvelle configuration de DBD de surface et qu'il nomme « OAUGDP » (One Atmosphere Uniform Glow Discharge Plasma). Cette décharge est établie entre au moins deux électrodes placées de part et d'autre d'un diélectrique et est dite surfacique car il n'y a plus, comme précédemment, d'espace gazeux entre les électrodes (le diélectrique occupant tout l'espace inter-électrodes) (Figure 2.3) [53].

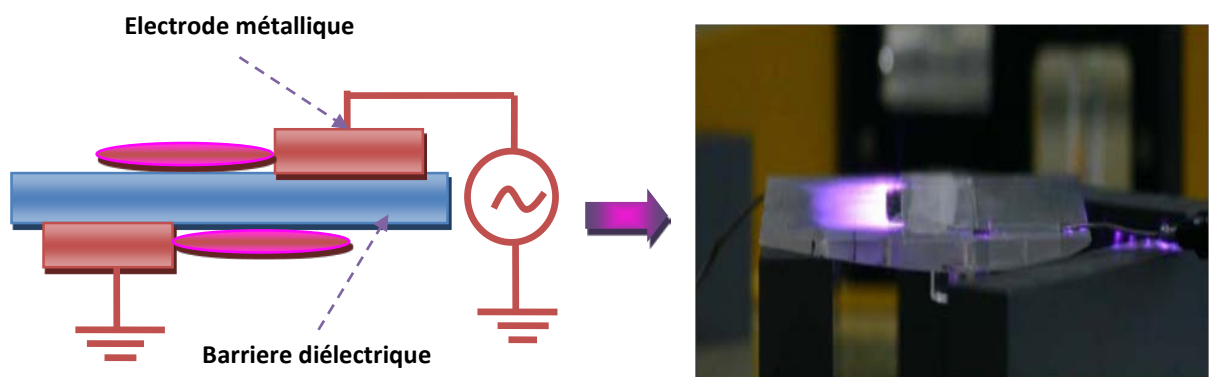


Figure 2.3 : Configurations de décharges de surface

2.2.2.3 Géométries courantes des DBDs

Des configurations typiques cylindriques ou planaire des électrodes des décharges à barrière diélectrique sont montrées sur la figure ci-dessous : les DBDs sont caractérisées par la présence d'une ou plusieurs couches de diélectrique dans le chemin du courant entre les électrodes métalliques, en plus du gap de décharge. Comme le montre la figure 2.4 [66], plusieurs types de configurations sont présentés [51-54] :

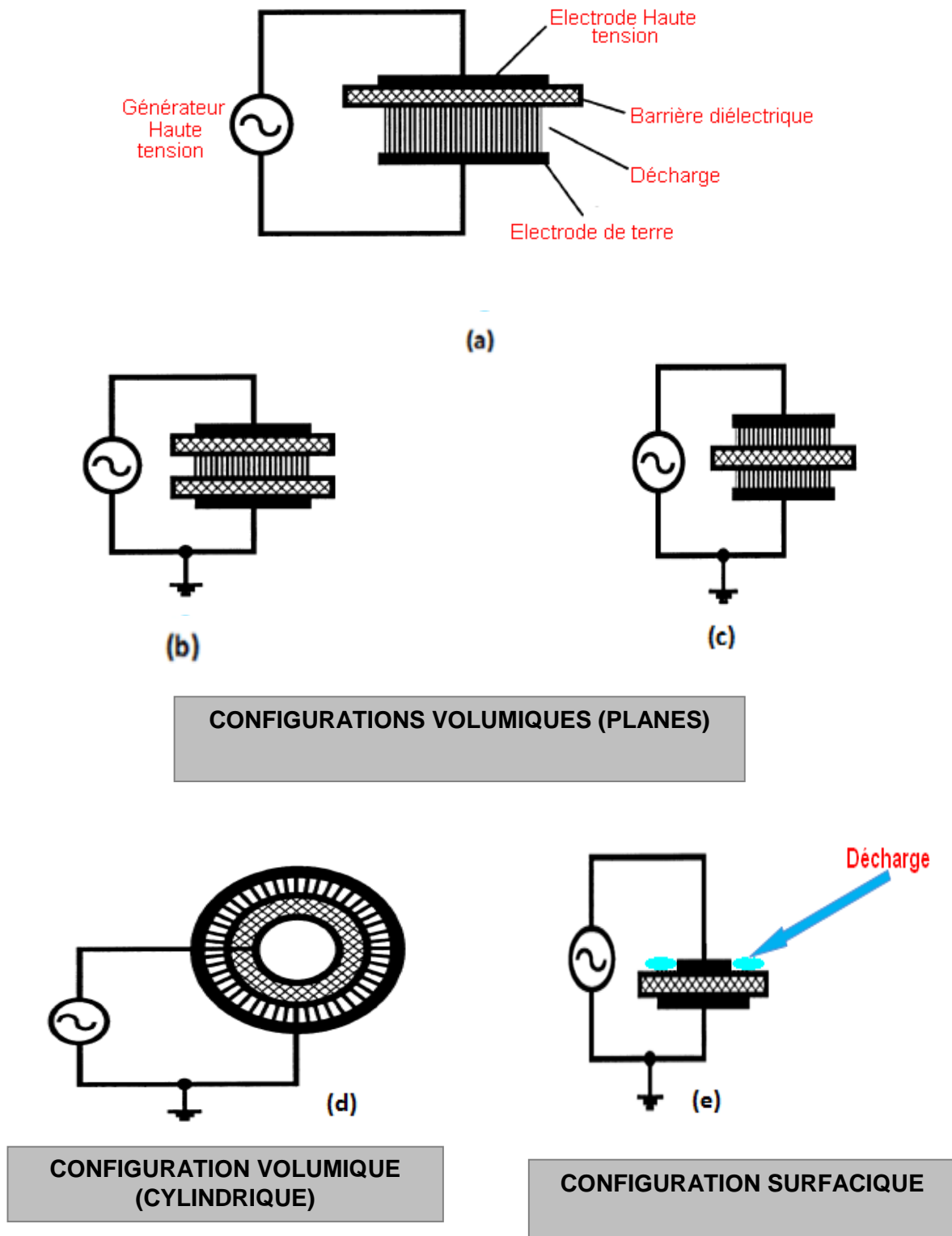


Figure 2.4 : Systèmes d’électrodes les plus couramment utilisés pour la production des décharge :

DBD volumique et surfacique.

- a) et d). DBD caractérisée par la présence du matériau diélectrique au contact d’une électrode,
- b). au contact des deux électrodes,
- c). au centre de la zone de décharge.
- e). DBD caractérisée par la présence du diélectrique de part et d’autre des deux électrodes.

2.2.2.4 micro-décharges de la DBD

En appliquant un champ électrique élève il y a amorçage d'un claquage dans l'intervalle d'espace entre deux électrodes. Tant que la tension appliquée augmente, les micro-décharges (Figure 2.5 et 2.6) [52] occupent des surfaces de plus en plus étendues sur le diélectrique. Ainsi, le diélectrique a un double objectif. Il limite la quantité de charge et l'énergie donnée à chaque micro-décharge et, en même temps, distribue les micro-décharges sur l'ensemble de la zone de l'électrode. La quantité de charge typique transportée par chaque micro-décharge est de l'ordre de 100 pC, et la quantité typique de l'énergie est de l'ordre de μJ . Par conséquent, la dissipation d'énergie par minute produite par une seule micro-décharge, représentant l'effet de chauffage local d'une impulsion de courant, est faible ; dans l'air en général elle est inférieure à 10 °C dans des intervalles de décharge faibles [55-56].

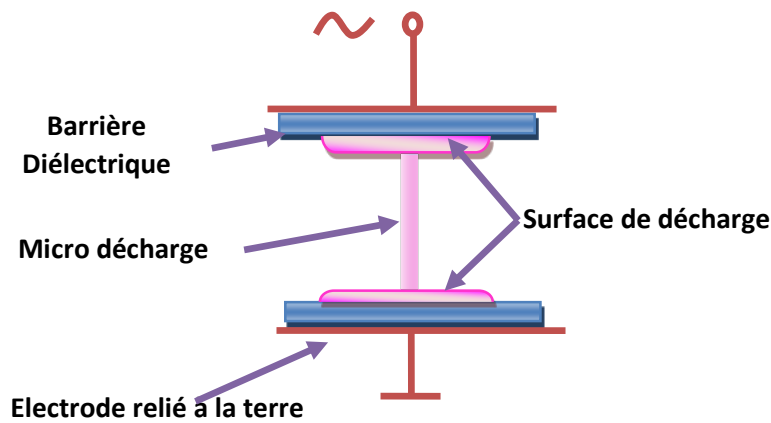


Figure 2.5 : Représentation d'une micro-décharge.

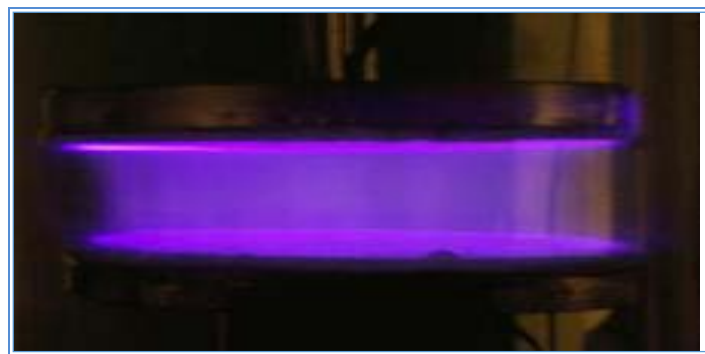


Figure 2.6 : Photo de la décharge lumineuse générée entre deux électrodes planes recouvertes par un diélectrique.

Les caractéristiques des micro-décharges sont données ci-dessous :

- Durée : 10^{-9} à 10^{-8} s
- Rayon du canal : 10^{-4} m
- Crête du courant : 0,1 A
- Densité de courant : 10^{-6} à 10^{-7} A/m²
- Charge totale : 10^{-10} à 10^{-9} C
- Densité d'électrons : 1020 à 1021 m³
- Energie d'électron moyenne : 1-10 eV
- Température du canal : proche de la température ambiante du gaz

La recherche sur les DBDs a mis l'accent sur l'adaptation et l'amélioration des caractéristiques des micro-décharges en faisant usage des propriétés de gaz spéciaux, en ajustant la pression et la température, et en optimisant la géométrie des électrodes, ainsi que les propriétés du diélectrique [55-56].

2.3 Décharges à barrière diélectrique dans les applications industrielles

Les premières expériences utilisant des décharges à barrières diélectriques à pression atmosphérique furent réalisées par Siemens, en 1857, qui obtint la première synthèse de l'ozone dans l'air à partir d'une DBD [57]. La production d'ozone fut l'objet de nombreuses recherches finalisées qui aboutirent à la réalisation de réacteurs industriels largement utilisés de nos jours. L'ozone est principalement utilisé dans le traitement de l'eau pour la rendre potable ainsi que dans l'industrie du papier ou en association avec de l'oxygène et de l'hydroxyde d'hydrogène, il permet de traiter la pâte à papier sans intervention de chlore.

Au cours de ces dernières décennies, les applications des décharges à barrières diélectriques ont été diversifiées. Selon l'objectif recherché soit la décharge filamentaire, soit la décharge luminescente est privilégiée. Il est apparu très tôt que ces décharges à barrières diélectriques constituaient un moyen privilégié afin de créer des excimères de gaz rares [45] [58]. En effet, en plus d'un fonctionnement à haute pression, une condition supplémentaire doit être réunie pour former les excimères. Des électrons très rapides (entre 8 et 20 eV) sont nécessaires pour former les états atomiques précurseurs de ces excimères. La DBD est un candidat idéal pour réaliser la lampe à excimères, car ce sont des décharges fonctionnant à haute pression, et dont les électrons très énergétiques évoluent dans un champ électrique élevé, proche de la tension d'amorçage.

Les applications développées utilisent le rayonnement ultraviolet lointain (U. V. L.) émis par ces milieux gazeux. Pour des pressions de quelques centaines de Torr, voire de plusieurs atmosphères, l'essentiel de la luminescence U. V. L. est constitué par le second continuum des gaz rares, situé respectivement à 172 nm, 145 nm et 130 nm pour le xénon, le krypton et l'argon. Ces lampes à excimères sont des sources intenses de rayonnement incohérent U. V et U. V. L., et sont dotées d'une bonne efficacité. Ces rayonnements, de faibles largeurs spectrales (environ 10 à 15 nm), sont émis dans des gammes de longueurs d'ondes intéressantes pour des applications industrielles qui sont principalement :

- Le dépôt des couches minces en micro-électronique,
- Le traitement de surface,
- La photo-oxydation du silicium à basse température,
- La photo-dégradation de micropolluants ou le traitement de l'eau et des gaz d'échappement.

Les écrans à plasmas utilisent le rayonnement des excimères pour exciter différents luminophores pour produire les trois couleurs fondamentales (rouge, vert et bleu). Une application visée pour un proche futur, concerne le pompage des lasers à excimères par des DBD afin de minimiser le coût du système laser.

Enfin, les décharges à barrières diélectriques intéressent également les « éclairagistes » qui, pour des considérations environnementales (l'économie d'énergie et l'élimination du mercure), souhaiteraient remplacer les lampes à décharge d'arc à mercure par des lampes à excimères.

La figure suivante résume le principe général des DBDs et énumère leurs applications majeures [59].

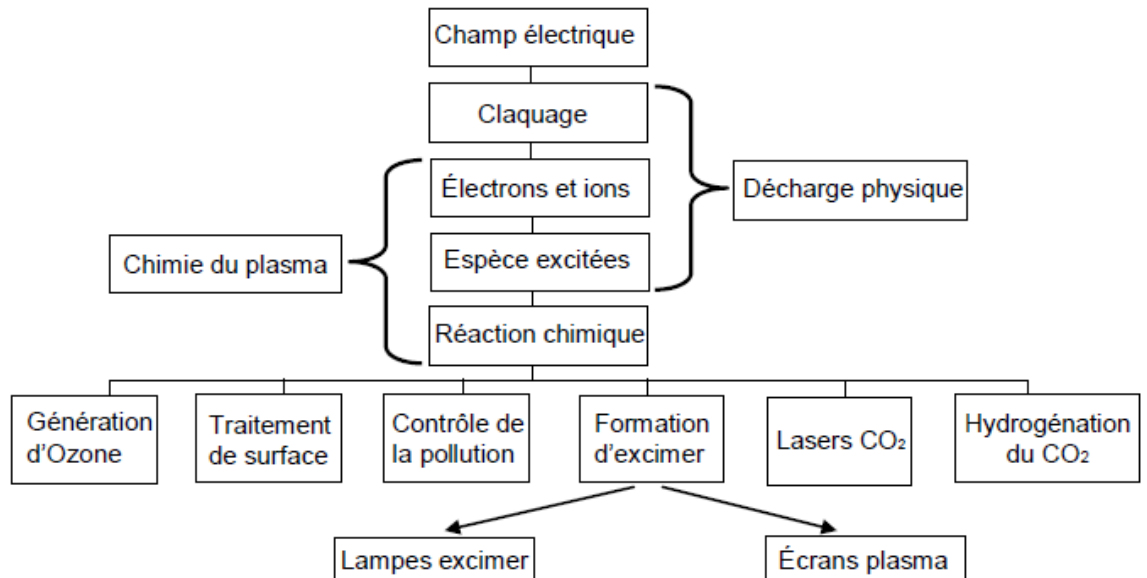


Figure 2.7 : Diagramme indiquant le principe général des DBDs et leurs applications.

2.4 matériaux diélectriques

Un matériau diélectrique est un milieu qui ne contient pas de charges électriques susceptibles de se déplacer de façon macroscopique. A ce titre, on l'appelle parfois isolant électrique.

Mais : les charges peuvent se déplacer localement et entraîner une variation des charges (polarisation).

Quelques milieux diélectriques solides usuels

- Le verre, utilisé pour faire des isolateurs de lignes haute tension
- La céramique, très utilisée pour les matériels HTB des postes électriques
- La plus part des plastiques
- Le Polypropylène, utilisé en particulier dans les condensateurs.

Un matériau diélectrique est caractérisé d'un point de vue électrique par son constant diélectrique (permittivité). Elle permet de décrire la facilité qu'a un diélectrique à se polariser.

La constante diélectrique ϵ (grandeur tensorielle) dépend de :

- De la fréquence :

À laquelle le champ électrique est appliqué. La variation du constant diélectrique complexe en fonction de la fréquence est directement reliée au mouvement d'oscillation des atomes et des électrons du diélectrique.

- De la température T :

Ceci est une conséquence du point précédent, car le mouvement de vibration des atomes dans un diélectrique dépend de la température [60].

2.5 Méthode pour éviter la transition à l'arc

Afin d'éviter la transition en régime d'arc, plusieurs solutions sont généralement employées à pression atmosphérique. Les principales consistent à :

2.5.1 diminuer le produit $p \times d$ (pression x distance)

Afin de se ramener à des valeurs similaires à celles obtenues à basse pression. En effet, nous avons vu précédemment que pour des valeurs du produit $p.d$ inférieures à quelques Torr.cm le claquage obtenu est de type Townsend et non plus de type streamer. Ainsi typiquement, il faut utiliser des distances inter-diélectriques de l'ordre de la centaine de μm .

2.5.2 localiser la décharge

En utilisant une répartition non uniforme du champ électrique afin d'éviter de court-circuiter les électrodes par un canal de décharge : il s'agit des décharges couronnes.

2.5.3 limiter le courant fourni par l'alimentation

En plaçant en série avec la cellule de décharge un ballast selfique qui limitera la vitesse de variation du courant ou bien un ballast résistif qui entraîne une chute de la tension appliquée sur le gaz lors de l'augmentation du courant de décharge.

2.5.4 insérer un diélectrique entre les deux électrodes

On parlera dans ce cas de décharge contrôlée par Barrière Diélectrique (DBD).

2.5.5 pré-ioniser le gaz et utiliser une source de tension impulsionnelle

Outre le fait d'éviter la transition à l'arc, cela permet surtout d'homogénéiser la décharge [61].

2.6 Découverte de l'ozone et les premières mesures

2.6.1 Découverte de l'ozone

Cela fait déjà assez longtemps que l'ozone est le sujet de recherches. En 1840, le chimiste Christian Friedrich Schönbein découvrit que ce gaz se formait pendant les décharges électriques, et le baptisa ozone (ce qui signifie sentir en grec). On découvrit rapidement que l'ozone était un composant de l'air. Schönbein lui-même développa les techniques de mesure de l'ozone, qui furent améliorées à l'observatoire Montsouris à Paris. Ces premières données de concentrations d'ozone, entre 1876 et 1910, sont aujourd'hui le témoin des teneurs en ozone de l'atmosphère avant la révolution industrielle [62-63].

En 1879, on découvrit que seule une très faible partie des UV-B du soleil atteignait la surface terrestre. L'année suivante, les scientifiques montrèrent que l'ozone absorbait énormément ces rayons et qu'il pouvait être responsable de la filtration de ces UV-B. Cependant la quantité d'ozone présente dans la basse troposphère était trop faible pour jouer ce rôle, et on supposa avec raison que l'ozone devait se trouver essentiellement dans la haute atmosphère.

Au début du 20^{ème} siècle, des travaux très importants ont été réalisés par Gordon Dobson. Ce chercheur a développé un spectromètre Dobson qui est utilisé depuis 1929 pour mesurer l'ozone dans toute l'atmosphère, et est utilisé de nos jours, même s'il est progressivement remplacé par des méthodes plus modernes [64].

2.6.2 Cycle de Chapman

En 1930, le britannique Sydney Chapman exposa ses théories sur la formation et la destruction chimique de l'ozone [64]. Ces hypothèses, qui se révélèrent correctes, sont appelées le cycle de Chapman ou les réactions de Chapman. L'atome d'oxygène et l'ozone se transforment alternativement l'un en l'autre. Les liaisons qui unissent les atomes au sein des molécules sont cassées à cause des rayons solaires. Pour briser la molécule d'O₂ il faut plus d'énergie solaire que pour briser la molécule d'ozone (dans le premier cas, il faut une longueur d'onde de 240 nm contre 320 nm dans le second cas). La formation (figure 2.8) et la destruction (figure 2.9) de l'ozone sont en équilibre et la réaction dont le bilan est nul est la suivante :



La quantité d’ozone résulte donc d’un équilibre entre formation et destruction naturelles [67].

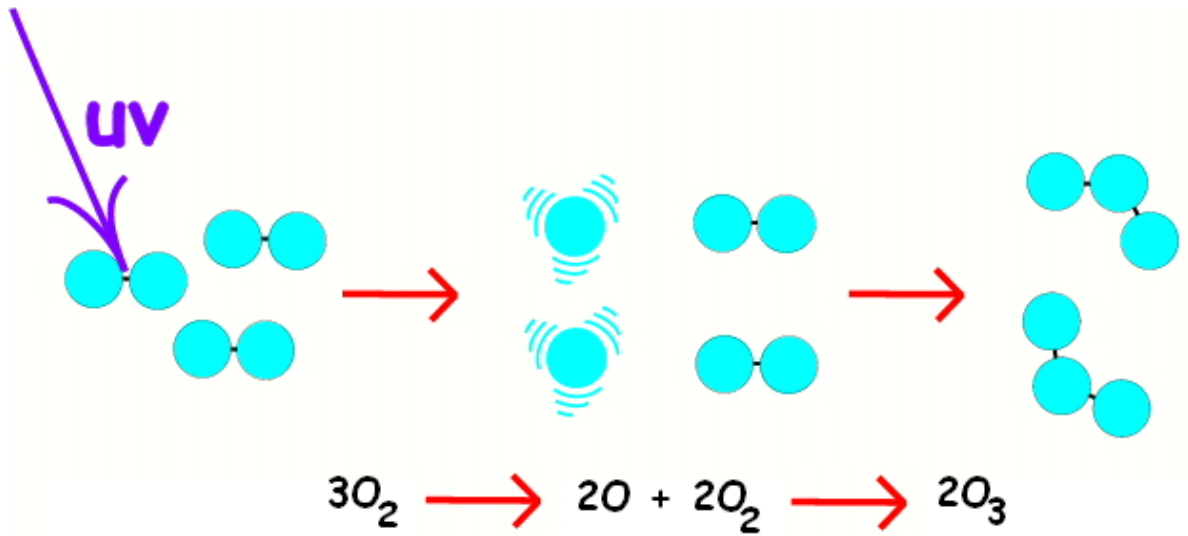


Figure 2.8 : Formation naturelle de l’ozone (cycle de Chapman).

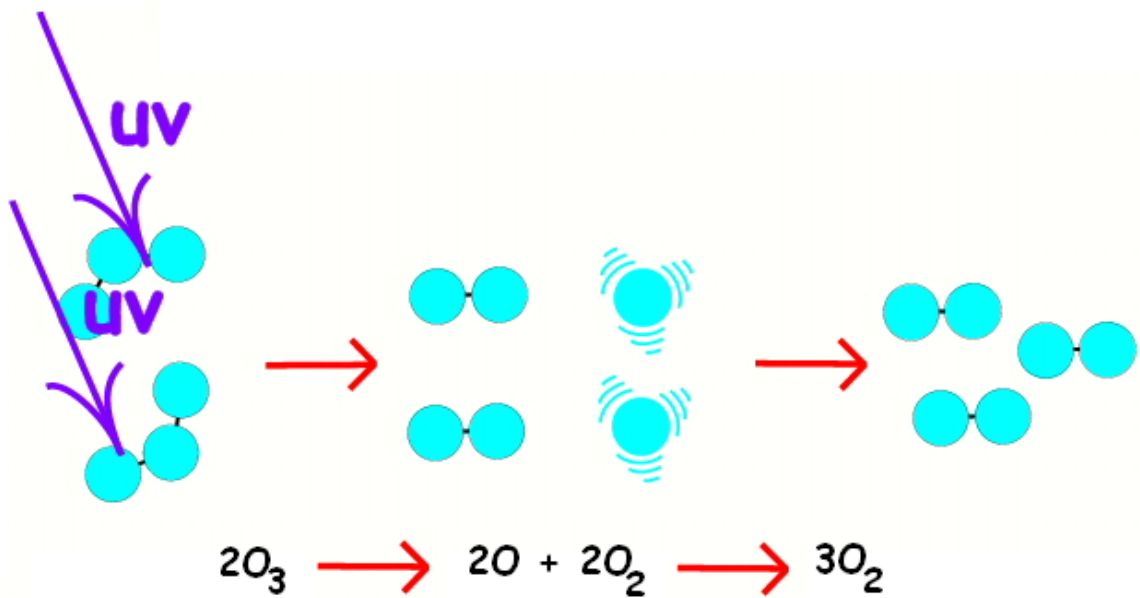


Figure 2.9 : Destruction naturelle de l’ozone (cycle de Chapman).

2.7 Définition de l'ozone

L'ozone est un gaz de couleur bleu pâle voisin de l'oxygène qui peut avoir sur les êtres vivants des conséquences bénéfiques ou dangereuses. Il est naturellement détruit et régénéré dans l'atmosphère suivant un processus faisant intervenir le rayonnement solaire ultraviolet et l'oxygène. Il est présent dans la haute atmosphère (stratosphère) sous la forme d'une couche d'une quarantaine de kilomètres d'épaisseur surmontant la troposphère. Cette couche, connue sous le nom de « couche d'ozone », fait l'objet d'une surveillance constante. Elle constitue en effet un écran aux rayonnements ultraviolets émis par le soleil, rayonnements dont les effets nocifs affectent non seulement l'être humain (cancers, cataractes, ulcères, maladies du sang, etc.) mais également d'autres êtres vivants [62-66].

Mais l'ozone est également présent dans la basse atmosphère grâce aux courants atmosphériques descendants en provenance de couche d'ozone. Lorsqu'il est inhalé, il provoque des irritations du nez et de la gorge. C'est donc un gaz toxique. L'accroissement de sa concentration dans l'air que nous respirons, notamment lors de situations météorologiques empêchant sa dispersion, représente un danger pour notre santé. Dans la basse atmosphère, l'ozone peut, entre autres, résulter de l'action sur l'air de décharges électriques (orages). Mais il provient surtout de la pollution urbaine émanant de certaines activités humaines. Il est essentiellement produit dans les régions tropicales et est transporté vers les hautes latitudes au cours de l'hiver par les grands courants aériens [66].

2.7.1 Caractéristiques de l'ozone

L'ozone (O_3) est une forme très instable et réactive de l'oxygène. C'est un gaz bleuté et odorant, qui se forme naturellement dans la stratosphère sous l'action du rayonnement ultraviolet, émis par le soleil, sur les molécules d'oxygène. Il est généré artificiellement par décharge électrique dans de l'air, de l'oxygène, ou un mélange des deux.

L'ozone est un oxydant très puissant utilisé notamment dans le traitement de l'eau. On parle alors d'ozonation. Celle-ci résulte de deux types d'oxydation bien distincts qu'il convient de définir. L'oxydation dite moléculaire est reliée directement à la molécule d'ozone O_3 . L'autre forme d'oxydation, dite radicalaire, est à relier à une forme non commune de l'ozone, où la molécule a perdu un électron apparié (normalement, les électrons sont présents par paires, mais dans le cycle de réactions en chaîne de l'ozone, des dissociations de paires d'électrons peuvent avoir lieu), conduisant à la formation du radical hydroxyle OH^* . L'ozone moléculaire est responsable des réactions dites directes, à actions spécifiques ; les radicaux, quant à eux, sont responsables des réactions dites indirectes, beaucoup plus rapides, mais nettement moins

ciblées que les premières, les radicaux oxydant un grand nombre de molécules. Il est à noter que certains composés tendent à stabiliser l'ozone dans l'eau, et donc à limiter la formation de ces radicaux. C'est notamment le cas des ions carbonates et bicarbonates.

L'ozone est peu soluble dans l'eau. Sa solubilité augmente avec la température de l'eau et avec sa concentration dans la phase gazeuse. Inflammable et explosif, l'ozone est aussi plus lourd que l'air (densité par rapport à l'air : 1,657) ; il peut donc s'accumuler près du sol. L'odeur piquante de l'ozone est détectée à un seuil de perception d'environ 0,01 ppm, et l'on considère qu'un taux de 0,25 ppm est préjudiciable à la santé. L'ozone étant un gaz instable, il est produit sur le lieu de son utilisation par décharge électrique dans un gaz contenant de l'oxygène. Il est généralement utilisé de l'air, qui doit être propre (pour éviter des problèmes de répartition de courant) et sec : son point de rosée devant se situer à - 60°C, afin d'éviter tout problème de corrosion à l'intérieur du générateur d'ozone [68].

2.7.2 Données physico-chimiques de l'ozone

2.7.2.1 Propriétés physiques

À température ambiante, l'ozone prend l'apparence d'un gaz incolore ou bleu pâle. Il se liquéfie à -111,9°C en prenant l'aspect d'un liquide bleu foncé et il se solidifie à -192,5°C en un solide de couleur pourpre. L'ozone est soluble dans l'eau à partir de 0°C et devient très oxydant. Combiné avec l'eau, il arrive à oxyder tous les métaux jusqu'à un degré maximum [69].

Les principales constantes physiques, thermodynamiques et toxicologiques de l'ozone sont reprises dans le Tableau 2.1.

Tableau 2.1 : Principales constantes physiques de l'ozone [62][69-70].

Masse molaire	47,9982 g/mol
Point de fusion	-192,7°C
Point d'ébullition	-111,9 °C (1 atm.)
Masse volumique (gaz) 0°C, 1 atm.	2,15 g/l
Enthalpie de formation	142,12 KJ/mol
Énergie de dissociation	-144,8 KJ/mol
Potentiel d'oxydation à 25°C	+2,076 V
Angle de liaison	116°

2.7.2.2 Structure de l'ozone

L'ozone se présente sous la forme d'un triangle isocèle d'un angle au sommet égal à $116^{\circ}45'$ et de deux liaisons interatomiques de $1,278 \cdot 10^{-10}$ m. La structure de l'ozone est comme suit (figure 2.10) [62],[69],[71]:

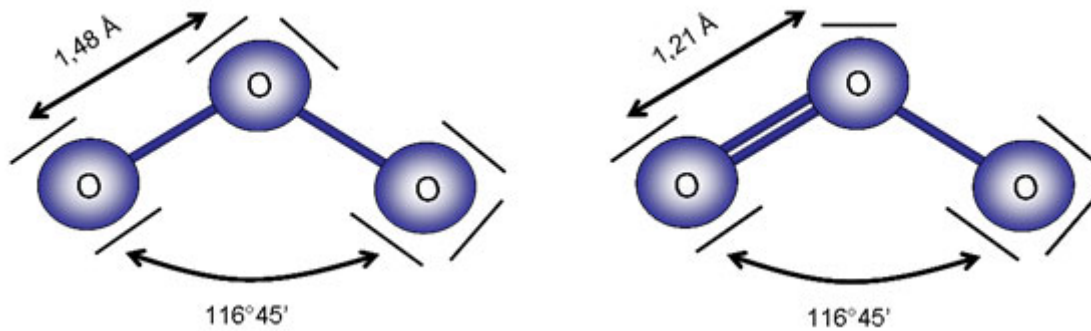


Figure 2.10 : Structure de l'ozone.

2.7.3 L'ozone : bon ou mauvais

L'ozone se produit aussi bien dans la haute atmosphère et au niveau du sol. Il peut être bon ou mauvais, selon l'endroit où il se trouve.

2.7.3.1 Bon ozone

L'ozone est en quelque sorte le grand frère de l'oxygène. Il se produit naturellement dans la haute atmosphère terrestre où il forme une couche protectrice qui nous protège des rayons ultraviolets nocifs. Les produits chimiques d'origine humaine sont connus pour détruire ce bénéfique ozone.

De nos jours, le bon ozone est généré in-situ avec des générateurs d'ozone [72]. Bien que l'ozone soit un composé puissant, son cycle de vie est très court. Lorsque celui-ci entre en contact avec des bactéries, virus ou odeurs, ceux-ci sont oxydés par un des 3 atomes d'oxygène qu'il possède. Le seul produit résultant de cette oxydation est... le dioxygène !

Outre cette efficacité redoutable, nous savons également que l'ozone est sain à utiliser. Ces expositions n'ont pas d'effets sur la santé humaine, excepté cette odeur relativement déplaisante d'air "sale". C'est cette odeur déplaisante qui permet de concevoir des moyens de productions sûrs [73].

2.7.3.2 Ozone troposphérique (Mauvais ozone)

Dans la basse atmosphère terrestre, près du niveau du sol, l'ozone se forme lorsque les polluants émis par les voitures, des centrales électriques, des chaudières industrielles, des raffineries, des usines chimiques et d'autres sources réagissent chimiquement en présence de la lumière solaire (figure 2.11) [74]. L'ozone au niveau du sol est un polluant atmosphérique nocif [72-73].

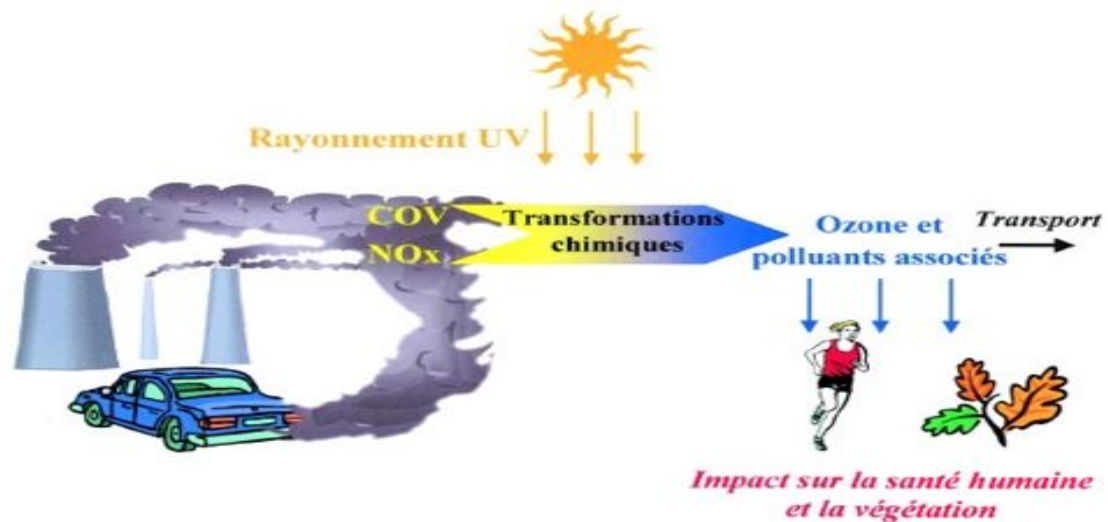


Figure 2.11 : Ozone troposphérique (Mauvais ozone).

2.8 Modes de production de l'ozone

2.8.1 Production naturelle

L'ozone, composé dérivé de l'oxygène, se trouve dans l'atmosphère en petites proportions. Sa formation naturelle est due à l'action des décharges électriques (figure 2.12) [63] se produisant dans l'atmosphère, ainsi que du fait des rayons ultra-violetts provenant du soleil (figure 2.13) [63], face à l'oxygène existant dans l'atmosphère.

Ces phénomènes atmosphériques sont chargés d'apporter de l'énergie nécessaire à la formation de l'ozone, d'après la réaction endothermique :



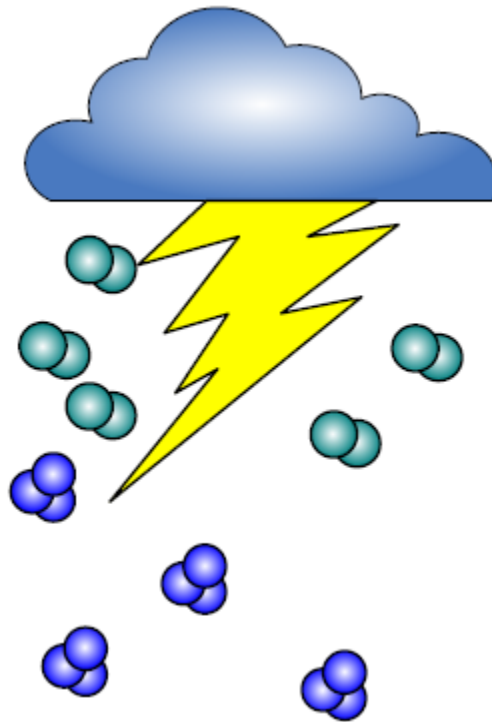


Figure 2.12 : Formation naturelle de l'ozone par décharge électrique.

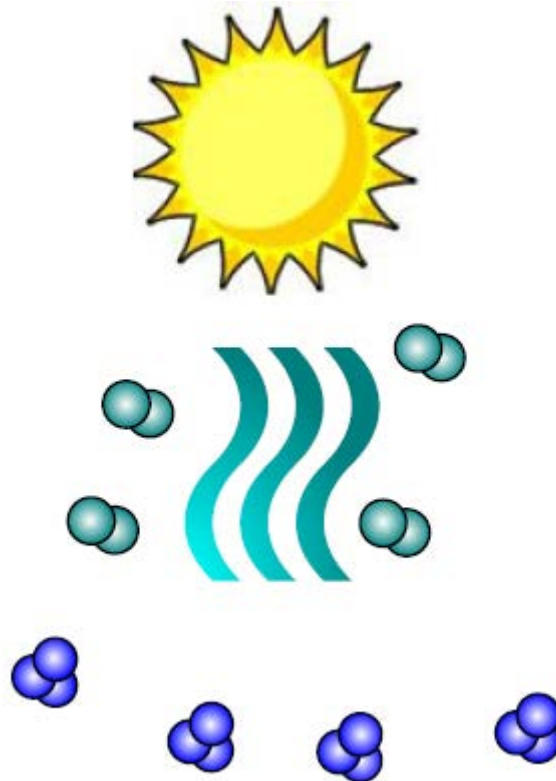


Figure 2.13 : Formation naturelle de l'ozone par les rayons UV.

L'ozone se trouve dans la nature en plus ou moins grande quantité, ceci dépend du degré de purification de l'environnement. C'est ainsi que nous pouvons sentir son odeur pénétrante dans les espaces libres, s'accroissant surtout après les orages violents. Dans l'atmosphère qui entoure les villes surtout dans les environnements confinés, l'absence d'ozone est presque totale. Ceci dit, l'ozone est un constituant vital de la haute atmosphère, ou une couche d'ozone appelée « OZONOSPHERE » agit comme un véritable filtre afin que les radiations ultraviolettes irradiées par le soleil atteignent la terre avec seulement le millionième de leur action, car dans le cas contraire ça serait fatal pour les êtres vivants sur la terre [72][75].

2.8.2 Formation de l'ozone par décharge électrique

La formation de l'ozone par décharge électrique passe par trois étapes (figure 2.14) [63],[76] :

- 1ère étape : Les molécules d'oxygène (O_2) sont scindées par une forte tension électrique résultant en deux individuels atomes d'oxygène (O).
- 2ème étape : Les deux atomes d'oxygène (O) s'unissent avec d'autres molécules d'oxygène (O_2) pour produire l'ozone (O_3).
- 3ème étape : Ainsi $O + O_2 = O_3$

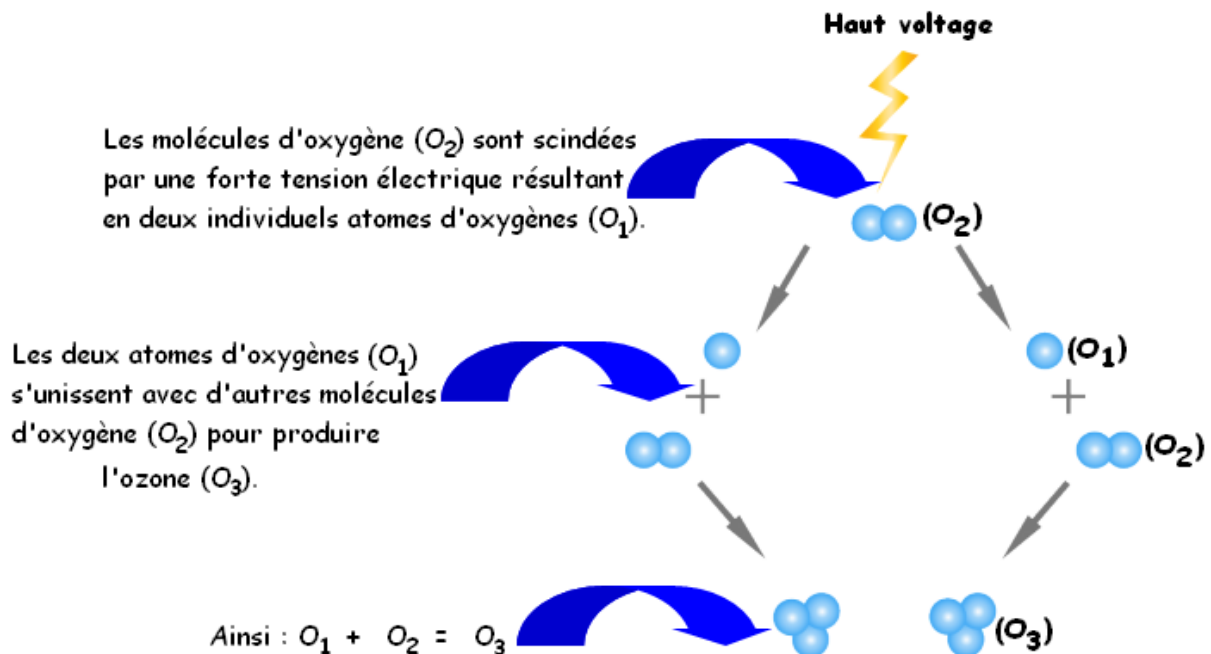


Figure 2.14 : Étapes de formation de l'ozone par décharge électrique.

Une très grande quantité d'ozone peut être créée avec l'éclairage de chaque foudre. L'ozone est responsable de "l'air frais" que nous respirons après un tonnerre d'orage.

2.8.3 Formation de l'ozone par rayons UV

La formation de l'ozone par les rayons UV passe par quatre étapes (figure 2.15) [30],[64]. :

- 1ère étape : Une radiation UV de haute énergie atteint une molécule O_2 .
- 2ème étape : Deux atomes d'oxygène sont alors libérés.
- 3ème étape : Ces radicaux oxygènes entrent en collision avec des molécules de dioxygène.
- 4ème étape : formant ainsi une molécule d'ozone.

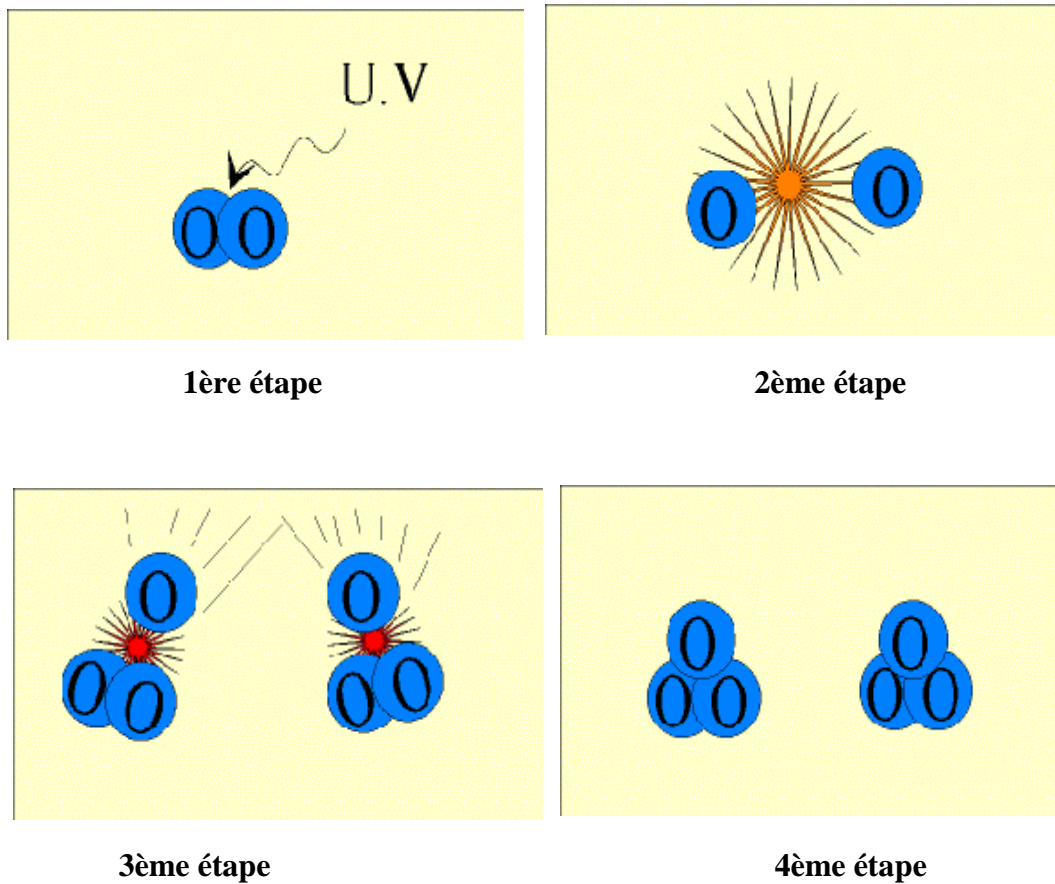


Figure 2.15 : Étapes de formation de l'ozone par UV

2.8.4 Formation artificielle

L'obtention de l'ozone peut être réalisée par des procédés physico-chimique, à savoir [72]

- ✿ Par des lampes ultra-violettes. Ce système est utilisé pour les applications qui demandent une basse concentration d'ozone.
- ✿ Par décharges électriques silencieuses (décharge DBD). Ce système est utilisé pour de fortes concentrations d'ozone.

2.9 Comment l'ozone agit-il ?

2.9.1 Réaction de l'ozone avec les substances oxydables

L'ozone réagit rapidement avec les micro-organismes, parvient en règle générale à diminuer la toxicité des composés dans l'eau et à augmenter leur biodégradabilité. En conséquence, l'ozonation principale est quasi-systématiquement couplée à une filtration biologique sur charbon actif en grains afin d'achever l'élimination des micropolluants tout en limitant la dose d'ozone appliquée. Celle-ci est en général de l'ordre de 0,5 à 1 g par g de carbone organique.

L'ozone agit de la manière suivante (figure 2.16) [77]:

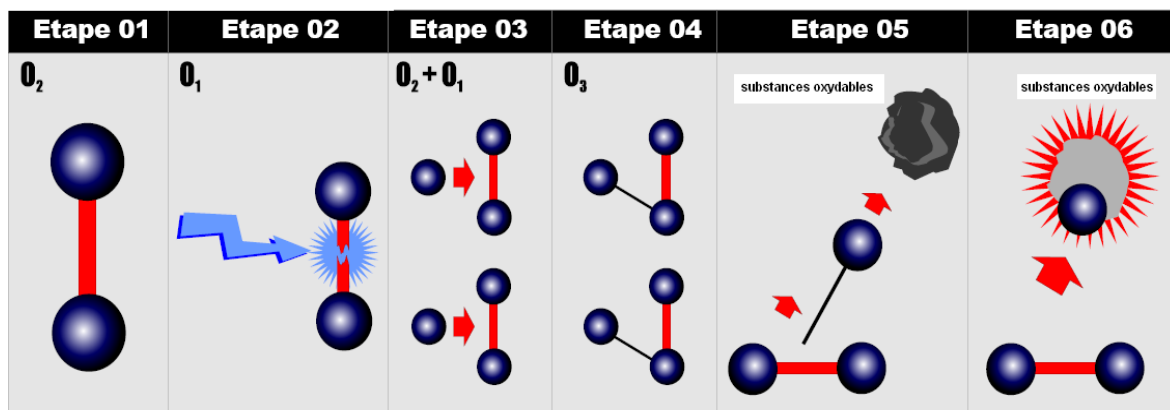


Figure 2.16 : Comment agit l'ozone ?.

Le faible lien de l'ozone tenu du troisième atome d'oxygène fait que la molécule soit instable et donc, très efficace comme le montre la figure (2.17). C'est le troisième atome d'oxygène de l'ozone qui est extrêmement réactif. Cet atome se fixe facilement à d'autres molécules.

La réaction d'oxydation se produit sur une collision entre la molécule d'ozone et la molécule d'une substance oxydable (c'est-à-dire bactéries, champignons, virus, fer & manganèse...). Au cours de cette réaction d'oxydation, les molécules organiques sont transformées et dissoutes (figure 2.17) [76].

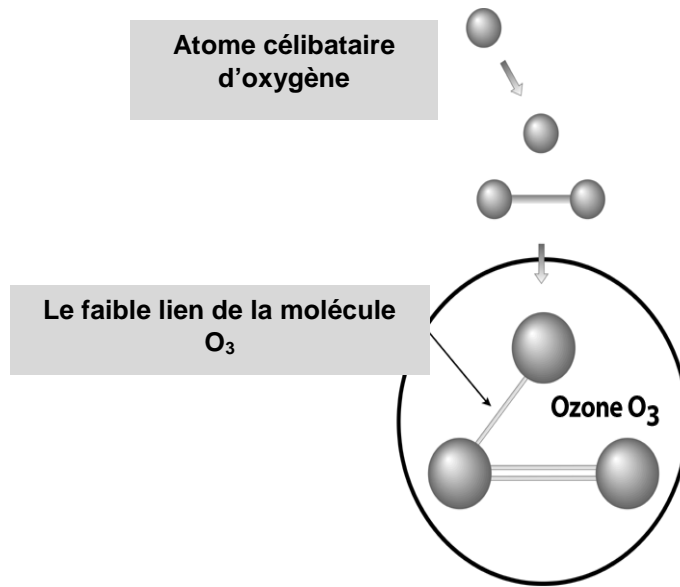


Figure 2.17 :Lien de la molécule d’ozone.

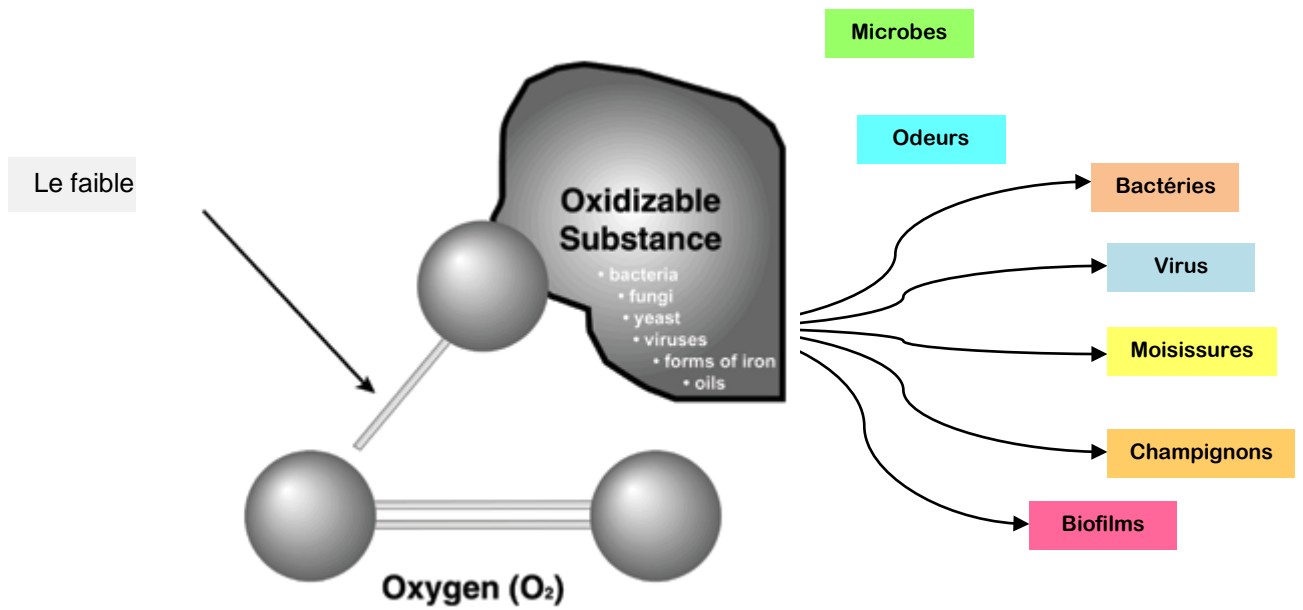


Figure 2.18 : Réaction d’oxydation de l’ozone avec les substances oxydables.

2.9.2 Effet de l'ozone sur les bactéries

L'ozone agit de la manière suivante, en contact avec une bactérie comme le montre la figure 2.18 [63] :

1. Une cellule saine bactérienne (figure 2. 19-1).
2. Zoom sur une molécule d'ozone qui entre en contact avec la paroi cellulaire. Cette dernière est vitale pour les bactéries car elle garantit le maintien de la forme de l'organisme de la bactérie (figure 2.19-2).
3. La molécule d'ozone étant en contact avec la paroi cellulaire, une réaction appelée "burst oxydative" se produit et crée littéralement un petit trou dans la paroi cellulaire.
4. Un trou nouvellement créé dans la paroi cellulaire de la bactérie a brisé, à son tour, la paroi.
5. La bactérie commence à perdre sa forme en même temps que la molécule d'ozone continue de créer d'autres trous dans la paroi cellulaire.
6. Après des milliers de collisions ozone-paroi cellulaire et au bout de quelques secondes, la paroi bactérienne ne peut plus maintenir sa forme et la cellule meurt.

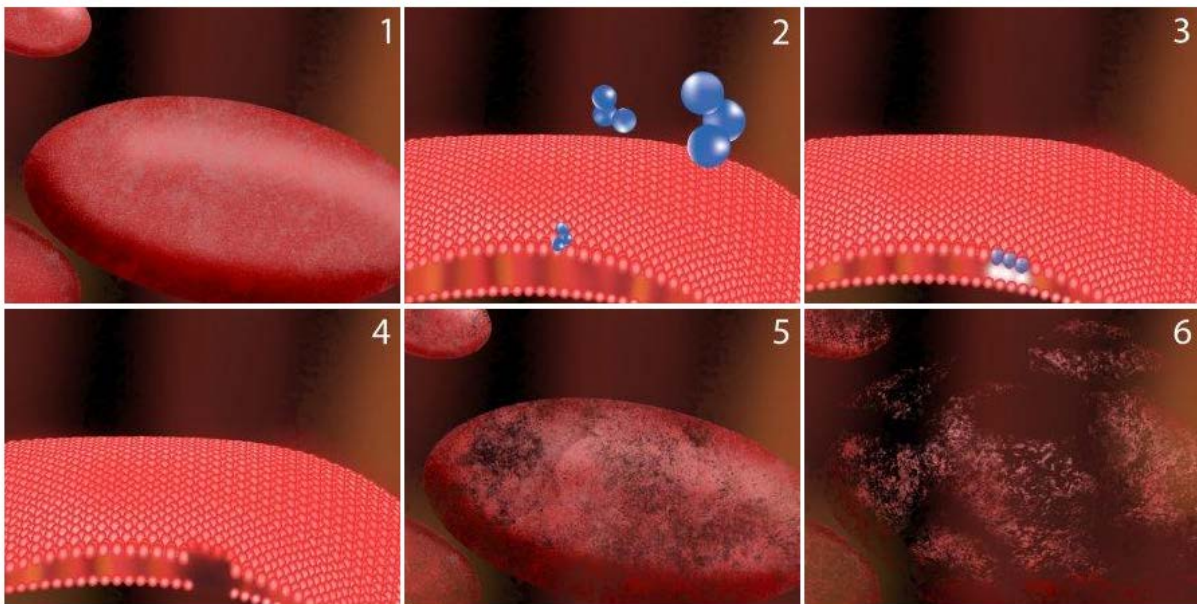


Figure 2.19 : Effet de l'ozone sur une bactérie.

2.9.2.1 Principe

L'ozone réalise son action destructrice de trois manières [72] :

- ✓ Action oxydante dans laquelle intervient un seul atome d'oxygène (potentiel d'oxydation $E_0 = 1,5 \text{ V}$)
- ✓ Par ozonolyse, avec formation d'ozonures (HO_3). Dans ce cas, c'est la molécule entière d'ozone qui intervient sur les substances organiques. Ces ozonures sont très instables et sont détruits en des composés différents à celui de la molécule organique qui est intervenue dans sa formation.
- ✓ En catalysant l'effet oxydant de l'oxygène qui n'est pas intervenu dans la formation d'ozone. Dans ce cas, l'oxygène joue le rôle le plus important.

2.9.2.2 Puissant oxydant et excellent désinfectant

L'ozone est un composé naturel qui a des propriétés d'oxydation très puissantes. Il oxyde et inactive toutes les substances organiques, les pesticides et les organismes pathogènes (virus, bactéries, protozoaires, etc.). De même, il va oxyder des éléments physico-chimiques désagréables qui laissent des traces tels que le fer, le manganèse, le soufre (odeur d'œuf pourri), les arrière goûts qui peuvent être causés par des algues, champignons et moisissures, certains types de tannins qui donnent une couleur ressemblant à celle du thé.

Contrairement aux autres désinfectants, tel le chlore, l'ozone disparaît sans laisser de trace après son utilisation. En effet, l'ozone est composé d'oxygène pur qui se recompose en dioxygène quelques temps après sa fabrication.

Dans le domaine de l'eau potable, la purification de l'eau par l'ozone est un procédé qui représente un avantage en particulier, dans le contexte environnemental actuel qui soutient le développement et fait la promotion de technologies non-polluantes ; il permet d'abaisser et même d'éliminer complètement les « trihalométhanes ». Il s'agit d'un sous-produit de la chloration de l'eau. En effet, lorsque le chlore est ajouté à l'eau brute pour éliminer les bactéries, il arrive qu'il y ait réaction avec les micro-organismes présents dans l'eau pour produire différents sous-produits, dont les THM « trihalométhanes ».

Et que dire dans le domaine des piscines qui sont fréquentées par de nombreuses personnes à travers le monde, pour y nager ou pour s'y délasser. Cependant, l'atmosphère chlorée des piscines pourrait être responsable de problèmes de santé. En effet, la majorité des piscines sont désinfectées par des produits à base de chlore menant à la formation de dérivés potentiellement toxiques. Des études ont récemment attiré l'attention sur les risques pour la santé liés à la fréquentation des piscines. Il a entre autres été suggéré que l'exposition croissante

et plus précoce des enfants aux produits de chloration des piscines pourrait, en association avec d'autres facteurs, être impliquée dans l'incidence croissante de l'asthme et des allergies. La croyance que l'environnement d'une piscine ne présente pas de risques pour la santé de ceux qui la fréquentent est profondément ancrée dans les esprits et le manque de considération à l'égard du problème potentiel de toxicité de ces produits issus de la chloration de l'eau est reflétée par les règlements de la plupart des pays, axés sur la qualité micro biologique de l'eau des piscines, ignorant en grande partie la qualité de l'air.

2.10 Avantages et inconvénients de l'ozone

L'ozone est un produit chimique utile en raison de sa capacité d'oxyder et de stériliser. Il a, cependant, des caractéristiques qui le rendent inapproprié pour certaines applications. Voici une liste des avantages et des inconvénients de l'ozone [78-79].

2.10.1 Avantages

Ces désavantages sont compensés par une série d'avantages qui rendent l'ozone très intéressant dans nombre d'applications industrielles :

- En comparaison, l'efficacité de la désinfection de l'ozone est 2500 fois plus efficace que l'hypochlorite (CHL) et 5000 fois plus que les Chloramines (NH_2CL), il détruit les bactéries, les virus, et les moisissures.
- L'ozone ne laisse pas de résidus chimiques ni d'odeurs dans l'eau.
- L'ozone ne brûle pas les yeux, ne les rougit pas comme les autres produits chimiques ont tendance à le faire.
- L'ozone n'irrite pas la peau et ne la dessèche pas.
- L'ozone est sécurisant car il ne peut exploser et n'est pas combustible.
- L'utilisation de l'ozone limite au maximum l'achat des produits chimiques oxydants.
- Quand le système est installé, il fait un apport constant d'ozone dans l'eau.
- Parce que l'ozone réagit très vite, il est possible que certaines substances persistent.
- L'utilisation de chlore ou de brome avec l'ozonateur réduit cette possibilité.
- Pas de dérivés dangereux, contrairement au chlore.
- Ne reste pas dans l'eau, redevient de l'oxygène : il est donc utilisable par exemple pour le traitement d'eau ultra-pure, ce qui n'est pas le cas du chlore.
- Pas de stockage de produits dangereux.
- Oxydation très complète.
- Se décompose ou s'enlève facilement.

2.10.2 Inconvénients

- Investissement plus élevé : l'expression usine à gaz est certainement appropriée dans le cas de l'ozonisation, puisque ce gaz est produit sur place : il en résulte que le coût d'exploitation est réduit par rapport à des systèmes où l'on doit acheter le désinfectant, par contre l'installation est inévitablement plus coûteuse.
- Système plus complexe : l'ozone doit être produit, puis dissous dans l'eau, le gaz résiduel doit être extrait de l'eau, etc. le système résultant est inévitablement plus complexe à installer et à utiliser qu'une pompe à injection de chlore, par exemple.
- Il n'y a pas de membranes résistantes à l'ozone : cela pose un problème à certaines industries particulières, comme l'agro-alimentaire, qui veulent en général désinfecter l'ensemble de la chaîne de traitement : si un osmoseur est prévu, cela est possible avec le chlore en choisissant une membrane en acétate de cellulose par exemple, alors que c'est effectivement impossible avec l'ozone.
- Consommation en énergie plus élevée, puisque l'ozone est produit par décharge électrique.

2.11 Applications de l'ozone

Grâce à ses excellentes qualités de désinfection et d'oxydation, l'ozone est énormément utilisé pour le traitement de l'eau potable. L'ozone peut être utilisé pour différents objectifs dans les systèmes de traitement, tels que pour une pré-oxydation, une oxydation intermédiaire ou une désinfection finale. Généralement, il est recommandé d'utiliser l'ozone pour la pré-oxydation, avant un filtre à sable ou un filtre à charbon actif. Après l'ozonisation, ces filtres peuvent éliminer la matière organique restante (important pour une désinfection finale).

Les applications de l'ozone sont multiples, citons [63],[72],[78],[80]:

① **Eaux résiduaires :**

- Domestiques / Municipales
- Pâte et papier
- Mines
- Pharmaceutique
- Cuir
- Pétrole / pétrochimique
- Electro-plaquage
- Précipitation des métaux lourds.

② **Industrie / Agriculture :**

- Tours de refroidissement
- Eau d'échange de chaleur
- Eau de refroidissement
- Eau potable
- Recyclage des liquides de découpage
- Désinfection de grange (air, eau)
- Hydroponique
- Effluents d'animaux
- Traitement "water dripping"

③ **Industrie agro-alimentaire :**

- Tours de stockage de grains
- Eau embouteillée
- Entrepôts de fruits et légumes
- Entreposage de viandes
- Lavage d'œufs
- Désinfection des abattoirs
- Hydroponique
- Lavage de fruits et légumes
- Stérilisation des contenus bière/vin

④ **Autres :**

- Odeurs
- Semi-conducteurs
- Buanderies
- Aquaculture
- Blanchissement
- Recyclage de caoutchouc
- Désulfuration
- Stérilisation médicale
- Stérilisation d'hôpitaux
- Traitement thérapeutique

2.12 Conclusion

Les DBDs et leur utilisation pour la production d'ozone constituent des objets d'étude très polyvalents. Dans ce chapitre nous avons introduit le concept de décharge à barrière diélectrique et les éléments physiques qui la caractérisent. Les grandeurs électriques importantes ont été présentées. Ainsi, nous avons présenté de manière bibliographique les propriétés de l'ozone comme un produit industriel (avantages, inconvénients, production ainsi que la désinfection...) qui présentent des solutions écologiques et même économiques dans plusieurs applications par rapport aux autres processus chimiques (chlore, l'esprit de cèle...).

Dans le chapitre suivant, l'attention sera concentrée sur le développement d'un nouveau générateur d'ozone à DBD surfacique à haute concentration



CHAPITRE III

**Développement d'un nouveau modèle
de générateur d'ozone en forme de
serpentin**

CHAPITRE 3 : Développement d'un nouveau modèle de générateur d'ozone en forme de serpent

3.1 Introduction

De nombreux travaux sur la production d'ozone au moyen de décharges électriques sont souvent consacrés à l'amélioration de l'efficacité de la production dans la phase gazeuse. Plusieurs tentatives visent à accroître l'efficacité de la production d'ozone avec des procédés de décharge électrique. Les réacteurs DBD ont été largement étudiés pour optimiser le taux de la génération d'ozone et le rendement énergétique, en fonction de plusieurs paramètres tels que le niveau de la haute tension appliquée, le débit d'oxygène, la fréquence de la tension et d'autres facteurs [47].

L'objectif de ce travail est d'analyser l'efficacité d'un nouveau générateur d'ozone à DBD surfacique plane, en forme de Serpentin. La particularité de ce réacteur est de permettre à l'oxygène de circuler à travers une DBD surfacique en forme de serpent, sur une longueur totale de 116 cm. Au fur et à mesure de sa progression, un taux de plus en plus élevé d'O₂ est converti en O₃.

Le taux de production et l'efficacité énergétique sont comparés avec un générateur d'ozone cylindrique à DBD volumique, qui est le modèle le plus répandu dans l'industrie.

3.2 Structure et dimensions du générateur d'ozone développé

Ce travail concerne le développement d'un nouveau modèle en cours de brevetage, dans lequel le gaz circule dans un canal en forme de serpent. Le serpent est formé de 10 canaux parallèles, qui sont des rainures de profondeur 3 mm usinées dans une plaque en Bakélite d'épaisseur 5 mm, Une bande adhésive en aluminium collée en dessous de la plaque est reliée à la terre, tandis que des bandes étroites de largeur 1 mm du même matériau sont collées au fond de chaque canal et jouent le rôle d'électrodes haute tension. Chaque canal de largeur 1 cm, de profondeur 3 mm et de longueur 10 cm est le siège d'une DBD surfacique.

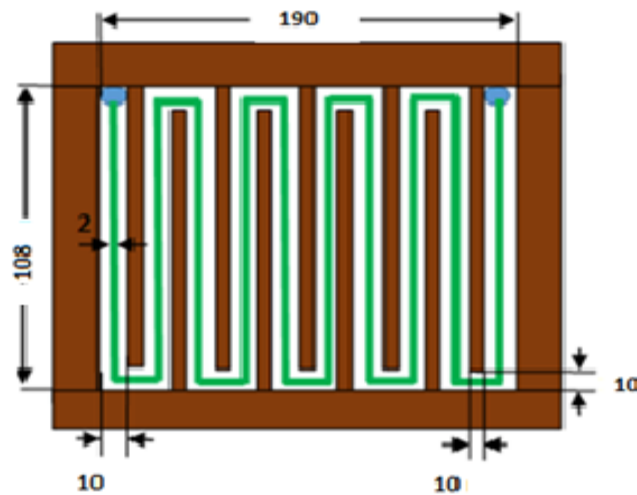
Une analyse détaillée de comparaison des deux modèles, volumique et surfacique, dans les mêmes conditions est présentée dans ce chapitre.

3.2.1 Conception des générateurs d'ozone à DBD surfacique et volumique

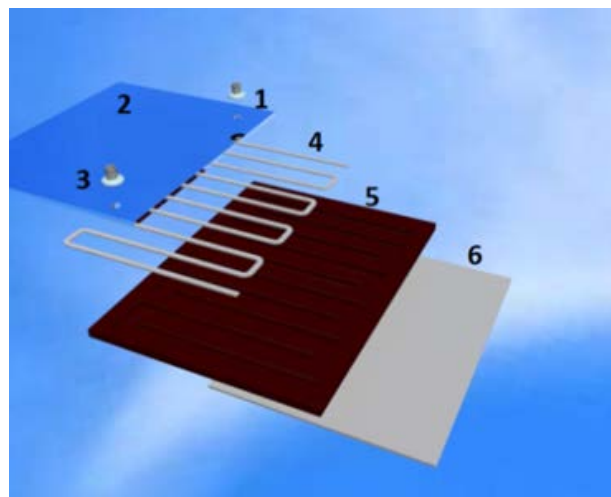
Deux modèles de réacteurs pour la génération d'ozone ont été analysés, à savoir le modèle plan en forme de Serpentin à DBD surfacique (DBDS) et le modèle classique cylindrique à DBD volumique (DBDV).

3.2.1.1 générateur à DBD surfacique

Le modèle DBDS qui est une nouvelle configuration en forme de « Serpentin », en cours de brevetage, comprend principalement une plaque en Bakélite de dimensions 200x180x4 mm³, sur laquelle une rainure en forme de « Serpentin » comprenant 10 canaux identiques de longueur 100 mm, de largeur 10 mm et de profondeur 3 mm a été usinée (figure.3.1).



a) Dimensions du modèle DBDS.



b) Vue éclatée

Figure 3.1 : Représentation schématique du réacteur DBDS

- (1) Entrée d'oxygène, (2) Plaque en verre, (3) Sortie de l'ozone, (4) Electrode HT (adhésif d'aluminium)
 (5) Barrière diélectrique en bakélite, (6) Electrode plane reliée à la terre.

A. Matériau des électrodes

Pour nos travaux, nous avons utilisé des électrodes usinées dans du bakélite en utilisant l'adhésif aluminium comme électrode.

- Electrode HT : Pour le choix du matériau de l'électrode HT, nous avons utilisé pour le modèle DBDS une bande en adhésif (aluminium).
- Electrode reliée à la terre : Nous avons aussi choisi de l'adhésif (aluminium) pour le réacteur à DBD surfacique (figure.3.2).
-

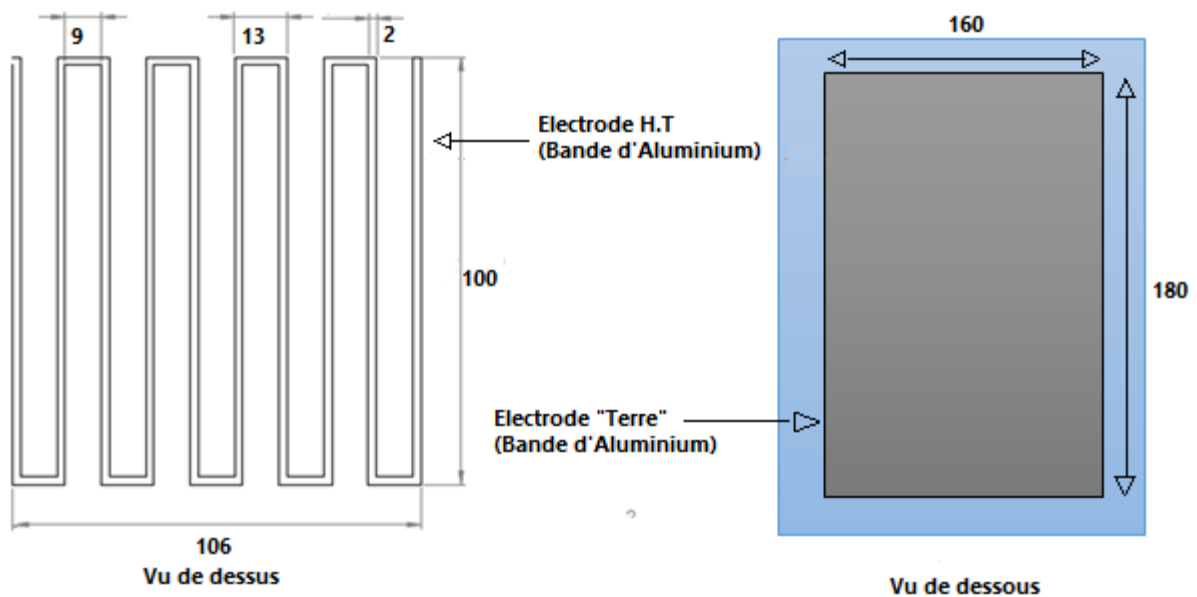


Figure 3.2 : Schéma représentatif des électrodes de nouveau modèle de générateur d'ozone.

B. Entrée et sortie du gaz (Téflon)

Plusieurs réacteurs ont été réalisés au niveau de notre laboratoire avec des inconvénients au niveau de l'emplacement des ouvertures d'entrée et de sortie du gaz. Le réacteur que nous avons étudié comprend deux bouchons en téflon placés aux extrémités du générateur.

Nous avons préféré de placer l'entrée et la sorties des gaz sur les bouchons de téflon grâce à sa bonne isolation thermique (figure3.3). En effet le téflon n'est pas un conducteur thermique contrairement à l'acier.



Figure 3.3 : Photographie de bouchon en téflon.

C. Barrière diélectrique

Le rôle du diélectrique est multiple : sa constante diélectrique conditionne le comportement électrique du réacteur en modifiant, par exemple, la tension de claquage de la décharge, le courant moyen ou la puissance consommée. La nature chimique du diélectrique, sa structure, et sa surface spécifique peuvent, quand à elles, avoir une grande influence sur les propriétés catalytiques de ce support.

La température du diélectrique, qui contrôle sa réactivité de surface, est enfin affectée par le comportement électrique du système. Nous voyons donc la complexité du choix du diélectrique puisqu'il influence, par ses paramètres interdépendants, le comportement du réacteur à tous les niveaux (électrique, catalytique ou thermique).

Bakélite

Parmi les différents matériaux diélectriques utilisés nous avons opté pour le modèle surfacique la bakélite (figure 3.4). Le rôle de la bakélite est de stabiliser la décharge sur toute sa surface, avec limitation de courant et empêchement de l'arc électrique. En plus elle résiste à la température élevée et surtout elle résiste à l'effet corrosif de l'ozone [59].

Inventée en 1909 par le chimiste belgo-américain Léo Baekeland, elle a été la première matière plastique synthétique. La bakélite est un excellent isolant électrique, qui a été rapidement adopté par l'industrie de construction électrique vu ses caractéristiques citées ci-après [81].

- ✓ Faible poids spécifique.
- ✓ Forte résistance à l'usure (faible coefficient de frottement)
- ✓ Amortissement des vibrations (matériaux silencieux)
- ✓ Bonne résistance aux hydrocarbures, solvants et eau
- ✓ Bonne tenue en température : 120° C en continu
- ✓ Très faible reprise d'humidité
- ✓ Usinage facile
- ✓ Très bonne Isolant électrique
- ✓ Bonne stabilité.

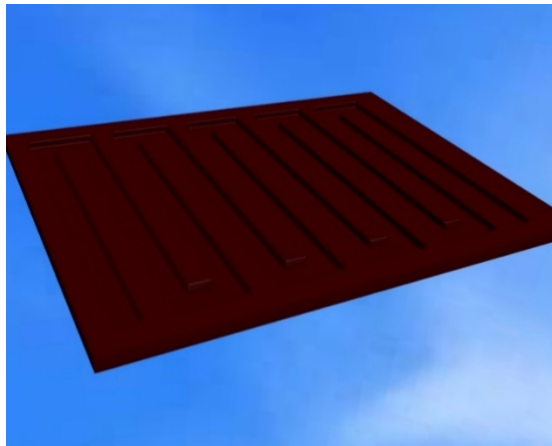


Figure 3.4 : Plaque de bakélite

D. Electrodes

L'électrode haute tension est une bande en adhésif aluminium d'épaisseur 0,1 mm et de largeur 2 mm, en forme de serpentin également, collée à l'intérieur de la rainure le long du serpentin.

L'électrode reliée à la terre est une bande rectangulaire en adhésif aluminium de dimensions 180x160 mm², collée sur l'autre face de la plaque en Bakélite. Les deux électrodes sont ainsi placées de part et d'autre de la plaque en Bakélite, séparées par une barrière diélectrique d'épaisseur 1 mm, Une fois la tension appliquée, une DBD surfacique apparait sur les bords de l'électrode HT.

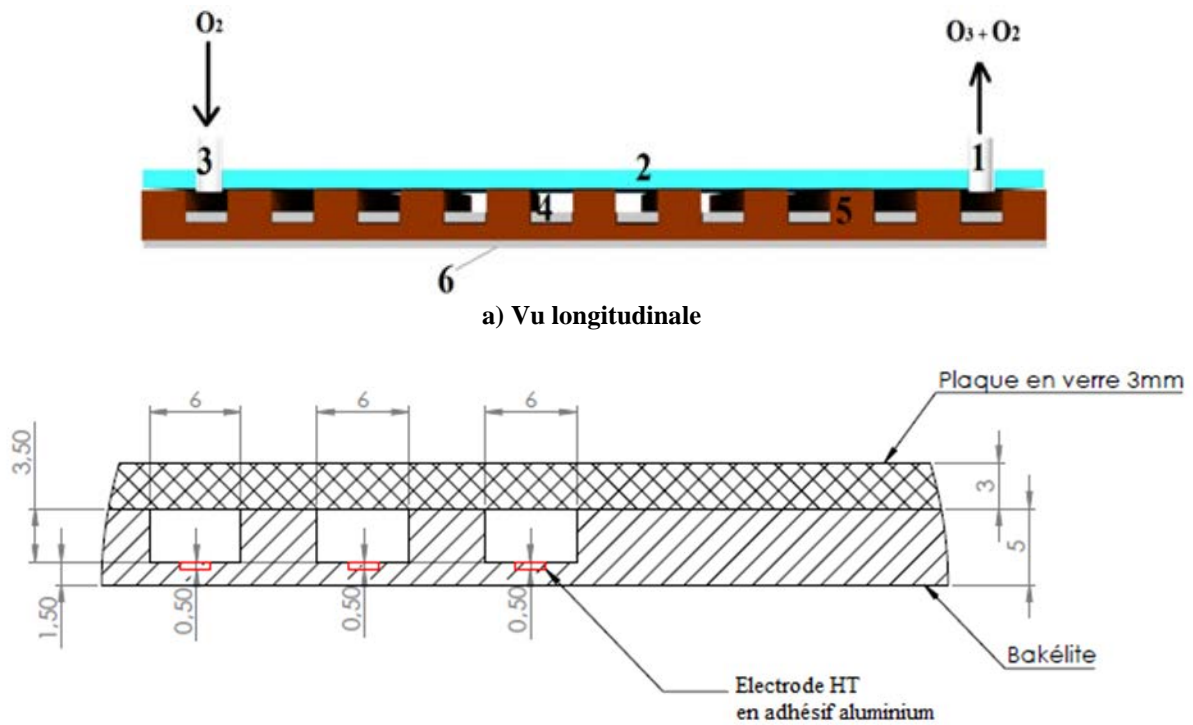


Figure 3.5 : Coupe longitudinale du générateur d'ozone à DBD surfacique (DBDS)

(1) Sortie d'ozone et oxygène, (2) plaque en verre, (3) Entrée d'oxygène (adhésif d'aluminium), (4) Borne haute tension (adhésif d'aluminium), (5) Barrière diélectrique (bakélit), (6) Electrode plane externe (adhésif d'aluminium).

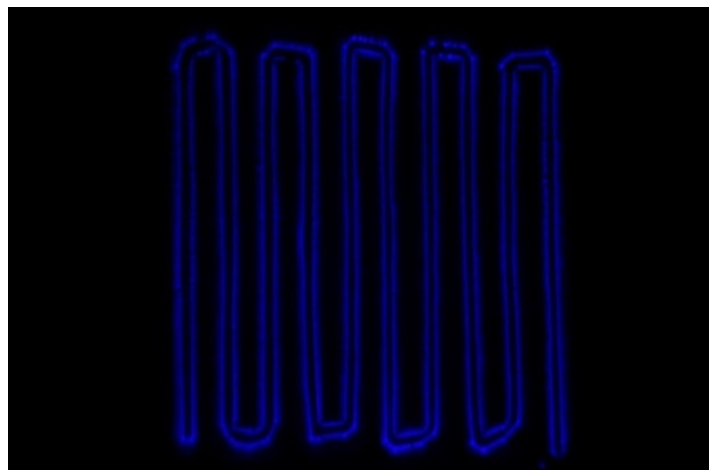


Figure 3.6 : Photographie du générateur DBDS sous tension.

3.2.1.2 Générateur à DBD volumique

Ce type de réacteur est similaire dans sa géométrie à celui réalisé dans d'autres travaux effectués au laboratoire [6]. Nous avons opté pour la configuration cylindrique qui possède l'avantage d'offrir une surface de décharge importante.

Par conséquent elle permet de produire plus d'ozone, ainsi qu'une très bonne flexibilité pour l'écoulement du gaz (oxygène et ozone). Dans ce genre de réacteur le plasma est créé au niveau du volume de décharge compris dans l'intervalle inter-électrodes [59].

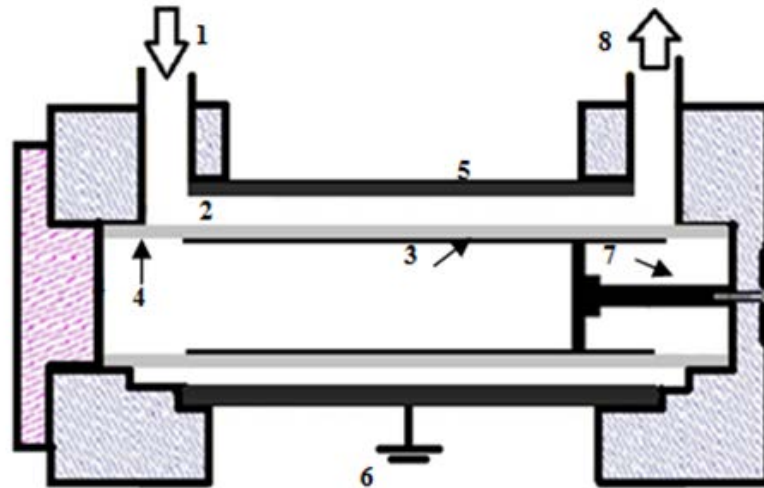


Figure 3.7 : Coupe longitudinale du générateur d'ozone à DBD volumique (DBDV)

- (1) Entrée d'oxygène, (2) Intervalle de décharge, (3) Electrode cylindrique interne (adhésif d'aluminium). (4) Barrière diélectrique (verre), (5) Electrode cylindrique externe, (6) Mise à la terre, (7) Borne haute tension, (8) Sortie d'ozone.

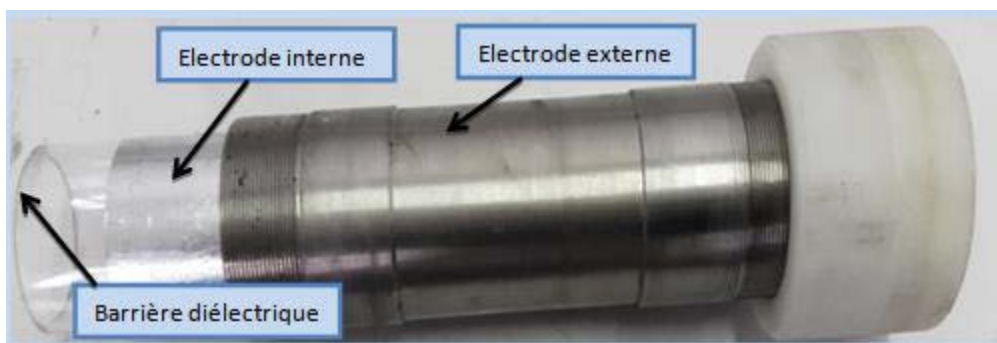


Figure 3.8 : Photographie du réacteur d'ozone à DBD volumique.

E. Matériau des électrodes

Le générateur DBDV est constitué de deux électrodes métalliques de formes cylindriques :

- Electrode métallique externe : Pour le choix du matériau de l'électrode cylindrique externe, nous avons opté pour l'acier inoxydable car il possède des propriétés physiques (masse assez faible) et chimique (résiste à la corrosion) excellentes en comparaison avec d'autres matériaux. L'électrode externe reliée à la masse est de 250 mm de longueur avec un diamètre intérieur qui vaut 46 mm.
- Electrode interne : Cette électrode est en adhésif d'aluminium d'une longueur de 160 mm, est connectée à la haute tension. Ce choix est effectué pour faciliter l'insertion de cette dernière à la surface intérieure de la barrière diélectrique.

F. Barrière diélectrique

L'effet des diélectriques est de répartir les charges accumulées uniformément sur leur surface. Au lieu d'avoir une décharge très énergétique et localisée, on aura une décharge stable et répartie sur la surface totale des électrodes cachées par les diélectriques.

Une élévation de température contribue à diminuer la durée de vie d'un isolant et par conséquent une diminution de la résistance d'isolement (les isolants ont généralement un coefficient de température négatif), diminution de la rigidité diélectrique, oxydation et ramollissement pouvant atteindre la fusion [66].

Parmi les matériaux diélectriques utilisés nous avons choisi le verre (figure.3.9) [59] vu sa résistance à la température élevée et à l'effet corrosif de l'ozone. Ce tube cylindrique en verre de 2.5 mm d'épaisseur et 250 mm de longueur et de diamètre interne de 39 mm, conduit à un intervalle de décharge de 1 mm, Cette barrière permet de stabiliser la décharge sur toute sa surface, avec limitation de courant et empêchement de l'arc électrique.



Figure 3.9 : Photographie d'une électrode métallique interne en adhésif d'aluminium à l'intérieur de la barrière diélectrique en verre.

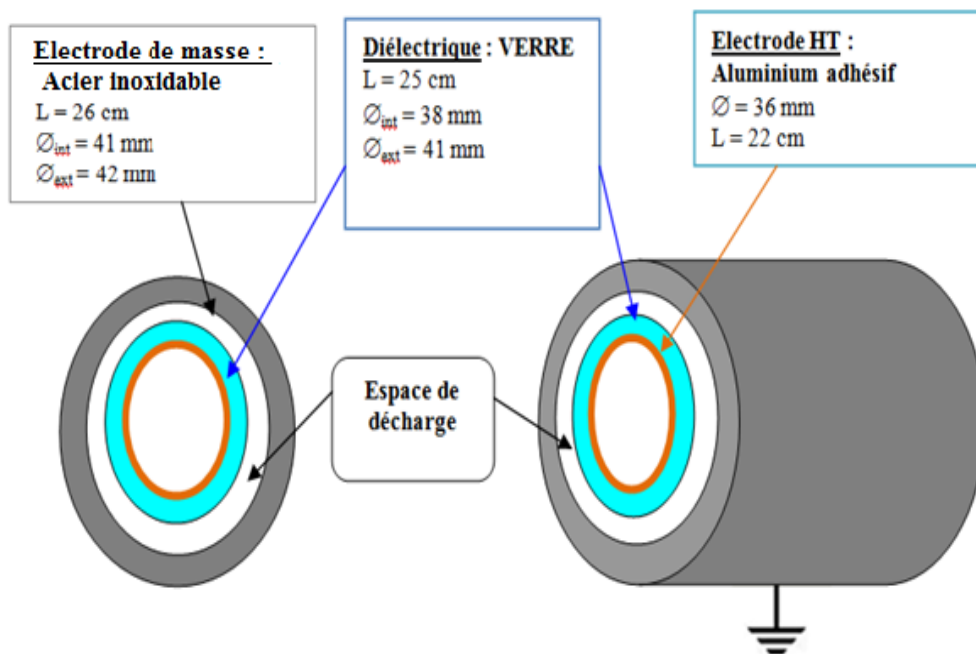
G. Bouchons de centrage (Téflon)

Afin de garder la symétrie entre la barrière diélectrique et l'électrode masse, autrement dit : maintenir le même intervalle de décharge à l'intérieur du générateur, des bouchons en téflon fileté ont été montés au bout des deux côtés du générateur. En plus, ils ont pour rôle la stabilisation de la décharge le long de l'intervalle de décharge. Les deux bouchons sont munis d'ouvertures d'entrée et de sortie de gaz afin de séparer les électrodes de l'écoulement du gaz d'ozone (figure.3.10) [59].



Figure 3.10 : Photographie de bouchon de centrage en téflon assurant une distance inter-électrode homogène.

Les figures (3.11 et 3.12) [66] représentent un schéma de la cellule de décharge du réacteur avec ses dimensions, et schéma explicatif comprenant la photographie de générateur d'ozone cylindrique.



A : Coupe transversale

B : Vue de profil

Figure 3.11 : Schéma de la cellule de décharge de réacteur cylindrique.

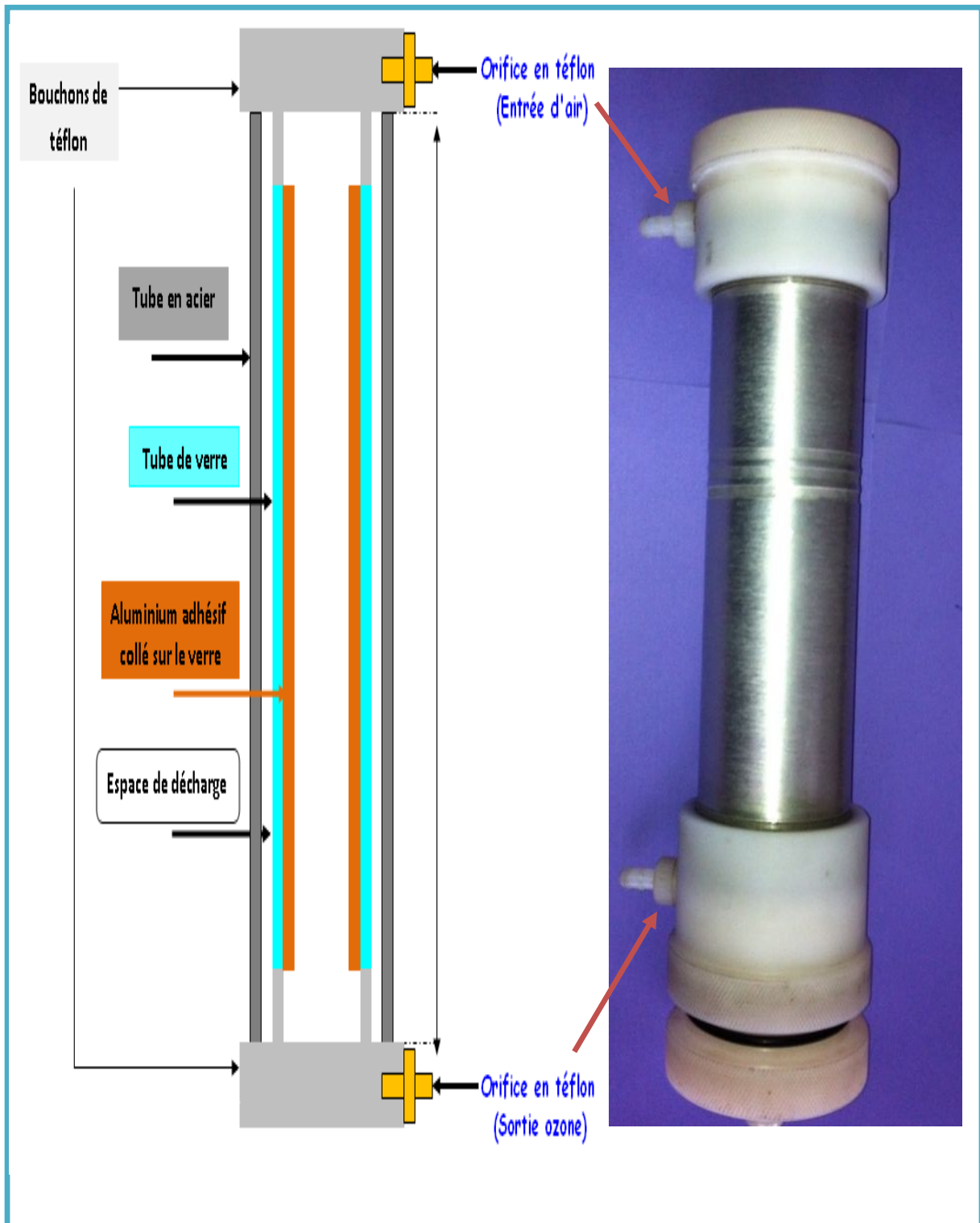


Figure 3.12 : Schéma représentatif et photographie de générateur d'ozone volumique.

3.3 Choix du gaz d'alimentation du générateur d'ozone

D'après Plusieurs travaux similaires précédemment réalisés au laboratoire qui prouvent que le concentrateur d'oxygène (oxygène pur) est le bon choix par rapport aux deux autres sources (Air ambiant, Air déshumidifié), ce qui conduit à utiliser ce dernier (oxygène pur) comme une source du gaz pour toutes les expériences qui vont suivre[66].

- Oxygène de haute pureté (90%) : est produit à l'aide d'un concentrateur d'oxygène (NIDEK medical Nuvo lite Mark 5) (Figure3.13), qui élimine l'azote, le dioxyde de carbone, la vapeur d'eau et les hydrocarbures à partir de l'air.



Figure 3.13 : Concentrateur d'oxygène (NIDEK medical Nuvo lite Mark 5)

3.4 Analyseur d'ozone.

Le modèle 2B Technologies 106-L. Ozone Monitor est conçu pour des mesures de l'ozone dans l'air sur une large plage dynamique s'étendant de quelques particules par milliard en volume (ppb) à une limite supérieure de 100 particules par million (ppm) sur la base de la technique bien établie d'absorption de la lumière ultraviolette à 254 nm [80].

La figure 3.14 montre une photographie de l'appareil utilisé dans les mesures.



Figure 3.14 Analyseur d'ozone (2B Technologies 106-L).

3.5 Description du dispositif expérimental

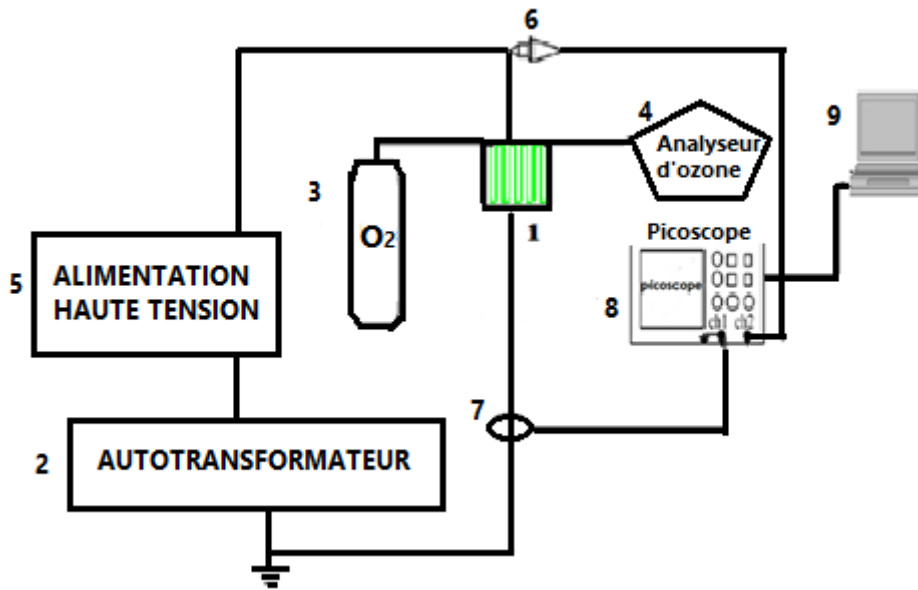
L'alimentation électrique de haute tension utilisée est de type à commutation. Une tension AC 220 V est abaissée à l'aide d'un transformateur abaisseur et redressée en une tension continue d'environ 72 V. Un interrupteur commandé IGBT (Insulated Gate Bipolar Transistor) a été utilisé comme interrupteur électronique et commandé par un oscillateur pour générer un courant à haute fréquence.

Un transformateur à ferrite a été utilisé pour transformer la basse tension haute fréquence en une haute tension, une tension de 1-10 kV à une fréquence de 0-30 kHz a été obtenue. Dans ce travail, la fréquence de résonance produisant la DBD est de 20 kHz [30].

La tension (V) délivrée par cette alimentation appliquée au générateur d'ozone est visualisée par « un Picoscope 6 » numérique, en utilisant une sonde à haute tension de rapport 1 :1000 (PVM-1 North Star), tandis que le courant (I) a été mesuré avec un capteur de courant à effet hall (Pearson current monitor, model 410). Les signaux sont stockés et transférés à un ordinateur pour calculer la puissance consommée dans le réacteur, en calculant la valeur moyenne du produit $V * I$ sur 1 million de points de mesure enregistrés.

La concentration d'ozone produit par le réacteur est mesurée à l'aide du moniteur d'ozone (Ozone-solution-106H) après l'injection de l'oxygène par un concentrateur d'oxygène à débit variable 0-5 l/min (NIDEK médical Nuvo Lite Mark 5) (Figure 3.13).

Toutes les expériences ont été réalisées dans des conditions climatiques stables de température (20-25°C) et d'humidité (60 à 70 %).



a) Schéma descriptif du montage.



b) Photographie du dispositif expérimental.

Figure 3.15 : Le montage expérimental utilisé

1. Générateur d'ozone, 2. Alimentation haute tension, 3. Concentrateur d'oxygène, 4. Moniteur d'ozone, 5. Autotransformateur pour contrôler la HT, 6. Sonde de mesure HT, 7. Capteur de courant, 8. Picoscope numérique, 9. Ordinateur.

3.5.1 Mesure des courants et des tensions.

La figure (3.16) illustre la forme de la tension et du courant de décharge pour les deux générateurs cités DBDS et DBDV respectivement.

En ce qui concerne la configuration volumique, on constate bien que l'amplitude du courant de décharge est plus significative que celui de la décharge surfacique. Cependant une plus grande densité des micro-décharges uniformes est visualisée au niveau de la DBD surfacique.

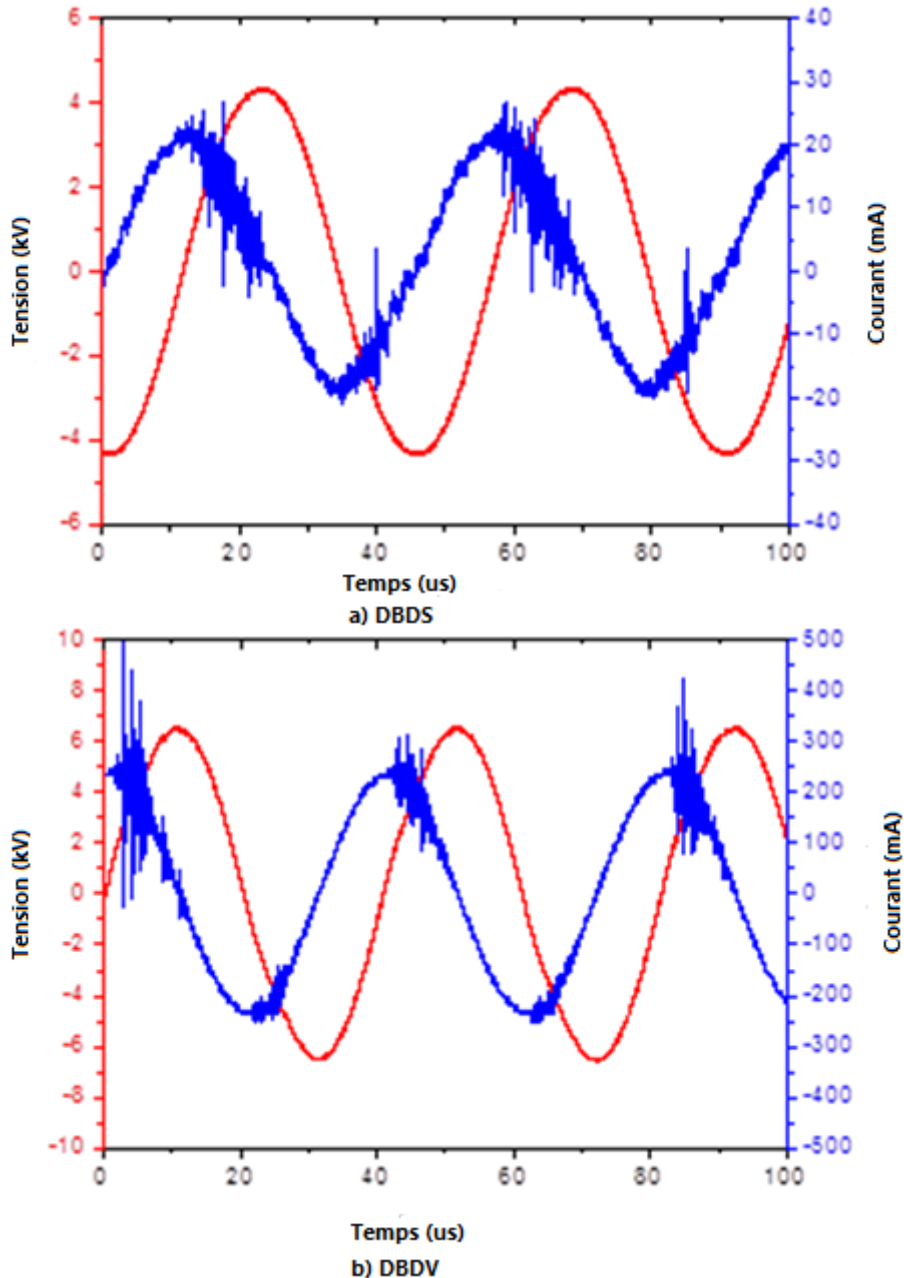


Figure 3.16 : Signaux électriques du courant et de la tension Pour les deux réacteurs DBDS et DBDV ($f = 22.7$ kHz)

3.5.2 Concentration d'ozone

Toutes les expériences ont été réalisées dans des conditions climatiques stables de température (20-25°C) et d'humidité (60 à 70 %).

Les résultats obtenus sont exprimés par le taux d'ozone τ produit par le réacteur en (g/h), en utilisant l'équation (3.1) ci-dessous :

$$\tau_{O_3} \text{ (g/h)} = [Ct_{O_3} \text{ (g/l)} * DO_2 \text{ (l/min)} * 60] \quad (3.1)$$

Avec Ct_{O_3} : Concentration d'ozone mesurée par le moniteur (g/l)

DO_2 : Débit d'oxygène mesuré avec un débitmètre (l/min)

3.6 Resultats et discussion.

Dans un premier temps, le taux de production d'ozone produit τ_{O_3} a été mesuré en fonction du nombre de canaux du réacteur en Serpentin. Etant donné qu'un canal équivaut à une longueur de 100 mm, le nombre de canaux a été varié en augmentant ou en diminuant simplement la longueur de l'électrode plane reliée à la terre. Ainsi, d'après la figure 3.17, qui représente la variation de τ_{O_3} en fonction de la longueur de la décharge, et comme on s'y attendait, l'efficacité de génération d'ozone augmente avec la longueur du Serpentin. Par conséquent, on peut opter de cette façon pour une géométrie optimale qui ne dépend que de la longueur du Serpentin en fonction de la puissance de l'alimentation haute tension.

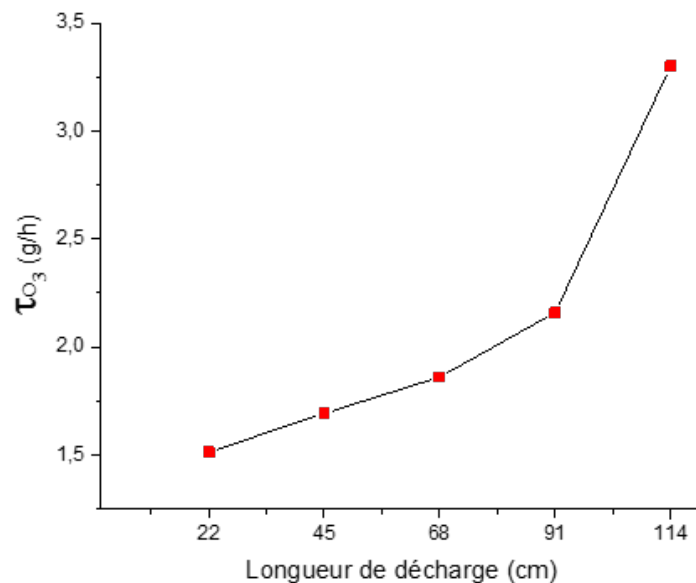


Figure 3.17 : Variation de taux de production d'ozone en fonction de la longueur de décharge

Les figures (3.18) et (3.19) représentent la variation du taux d'ozone en fonction du débit d'oxygène et de la tension appliquée, et ce pour les deux modèles DBDS et DBDV.

Les résultats montrent clairement la supériorité du modèle DBDS en termes de taux de production d'ozone τ_{O_3} , vu que des valeurs de taux supérieures dans un rapport jusqu'à 3,5 fois sont obtenues comparativement au modèle DBDV.

Pour le réacteur surfacique, l'avantage réside dans la forme en serpent qui force le gaz à séjourner beaucoup plus longtemps dans la décharge lors de son écoulement, ce qui conduit à l'augmentation de la concentration d'ozone au fur et à mesure qu'il circule dans le réacteur.

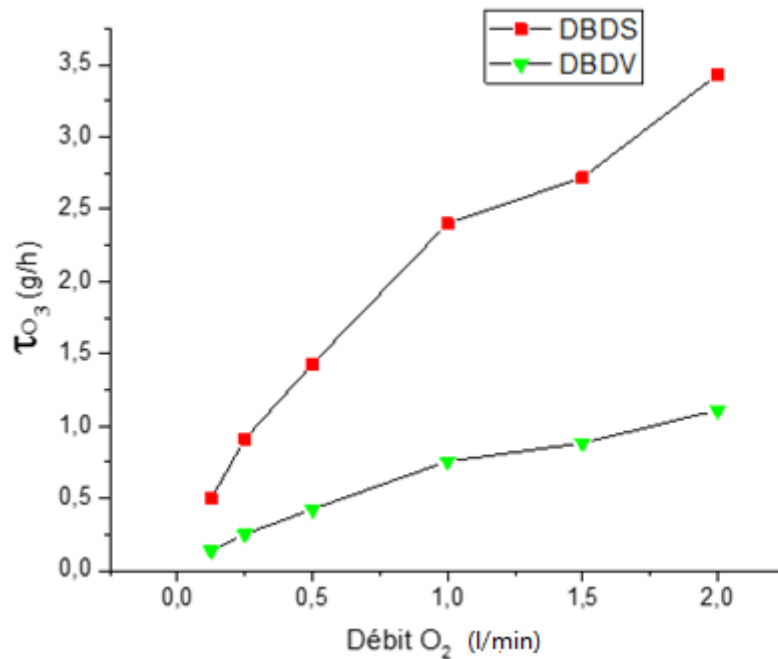


Figure 3.18 : Variation du taux d'ozone en fonction du débit d'oxygène (V= 5 kV)

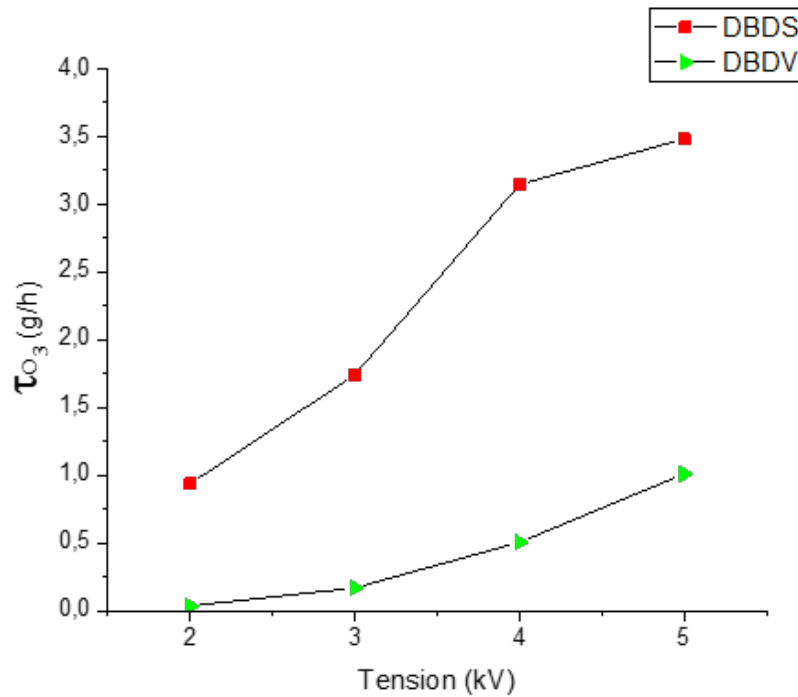


Figure 3.19 : Variation du taux d'ozone en fonction de la tension appliquée (Débit $O_2= 2$ l/min).

La comparaison de la puissance consommée par chaque réacteur est montrée par les résultats représentés à la figure.3.20, illustrant la variation de la puissance consommée en fonction de la tension, et à la figure.3.21 représentant la variation du taux d'ozone en fonction de la puissance consommée.

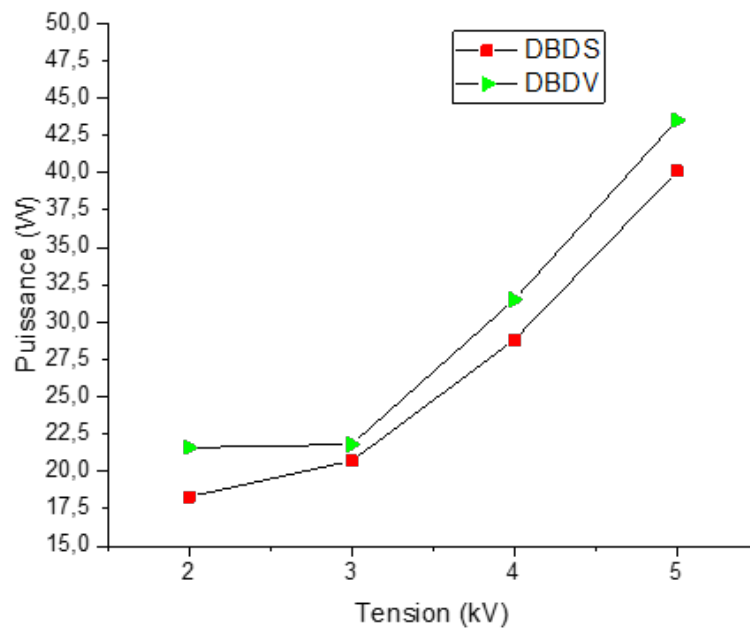


Figure 3.20 : Variation de la puissance absorbée en fonction de la tension appliquée, pour les deux modèles DBDS et DBDV

Une fois encore, ces résultats confirment définitivement la supériorité du modèle en Serpentin sur le modèle cylindrique. Pour une même puissance de 40 W par exemple, le modèle DBDS produit 3,5 fois plus d'ozone que le modèle à décharge volumique(figure.3.21).

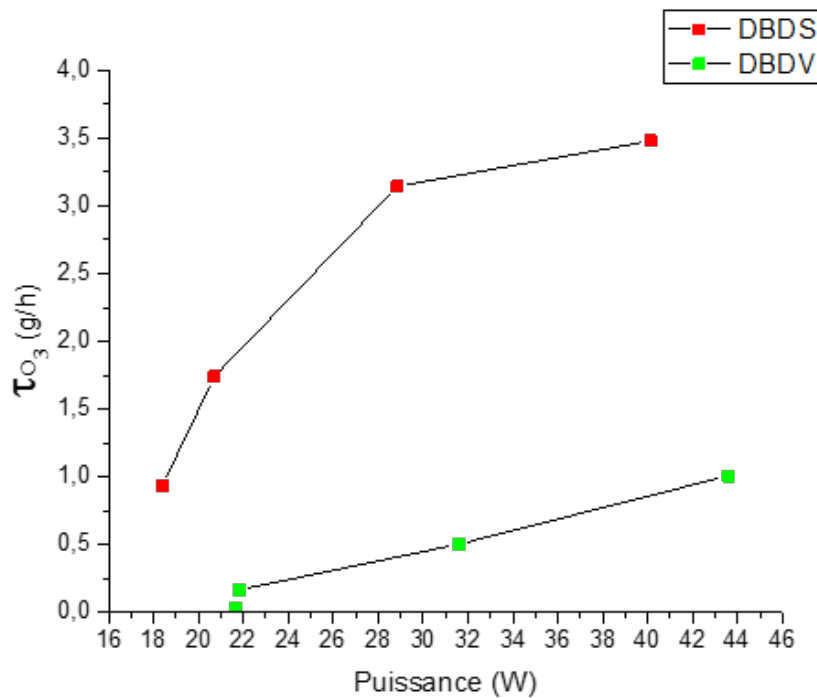


Figure 3.21 : Variation du taux d'ozone en fonction de la puissance, pour les deux modèles DBDS et DBDV

En outre, une comparaison basée sur la variation de la densité de l'ozone en fonction du débit d'oxygène injecté est représentée dans la figure (3.22). On indique ci-dessous les paramètres et les valeurs optimales obtenus durant les expériences des deux réacteurs.

Vitesse moyenne du gaz dans les canaux est donnée par

$$V_{DBDS} = \frac{Q}{A} = 0,11 \text{ m/s} \quad \text{avec} \quad \begin{cases} Q: \text{débit de gaz injecté} (Q = 2 \text{ l/min} = 3,33 \cdot 10^{-5} \text{ m}^3 / \text{s}) \\ A: \text{la section traversée par le gaz} (A = 3 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2) \end{cases}$$

Le volume de gaz pour les deux types de réacteurs est :

$$V_{DBDS} = D \cdot W \cdot L_1 = 34.86 \text{ cm}^3$$

$$\begin{cases} D = 3 \text{ mm} : \text{profondeur du canal de décharge} \\ W = 10 \text{ mm} : \text{largeur du canal de décharge} \\ L_1 = 1162 \text{ mm} : \text{la longueur totale du canal de décharge} \end{cases}$$

$$V_{DBDV} = \pi \cdot b^2 \cdot L_2 - \pi \cdot a^2 \cdot L_2 = 22.62 \text{ cm}^3$$

$$\begin{cases} a = 22 \text{ mm} : \text{rayon extérieur du tube de verre} \\ b = 23 \text{ mm} : \text{rayon interne de l'électrode métallique} \\ L_2 = 160 \text{ mm} : \text{longueur de l'électrode à l'intérieur du tube de verre} \end{cases}$$

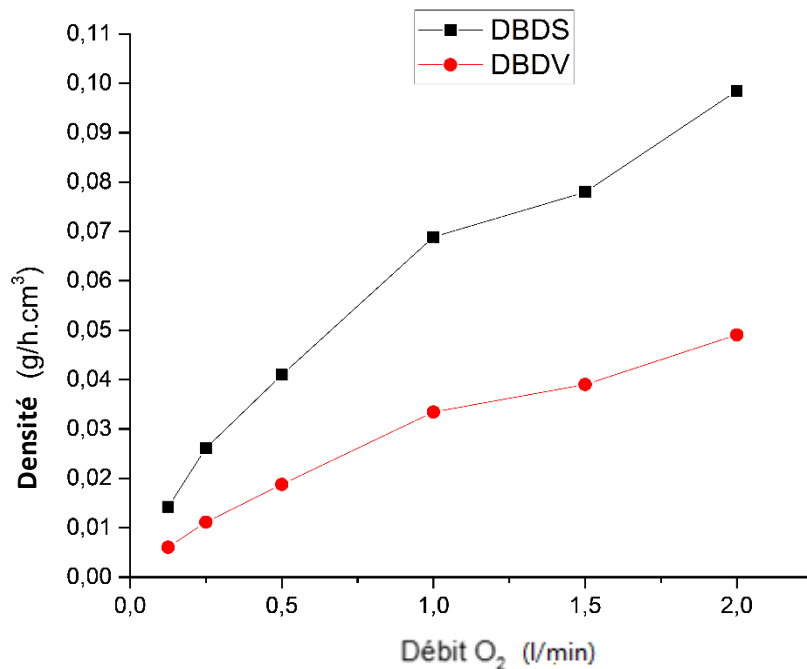


Figure 3.22 : Variation de la densité d'ozone en fonction de débit d'O₂, pour les deux modèles DBDS et DBDV

La différence dans les deux modèles s'explique principalement par le fait que la densité de gaz dans le modèle DBDS est plus élevée par rapport DBDV, pour le même débit d'oxygène injecté, ce qui exprime une quantité assez importante est exposé aux micro-décharges dans le modèle surfacique et que l'oxygène prend le chemin serpentin pour une durée plus longue, entraînant une augmentation significative du taux d'ozone contre le générateur à DBDV.

3.7 Conclusion

Un nouveau modèle de générateur d'ozone est proposé dans ce chapitre. La principale caractéristique de ce réacteur est que l'oxygène circule à travers un serpentin constitué de plusieurs canaux parallèles d'une longueur totale supérieure à 100 cm, alors qu'une quantité d'O₂ de plus en plus grande est convertie en O₃.

En plus de sa simplicité de construction, les résultats obtenus ont montré que le modèle "serpentin" à DBD surfacique génère un taux d'ozone plus élevé que le générateur à DBD volumique avec moins d'énergie.

A partir des expériences réalisées, il est possible de conclure que le réacteur à DBD surfacique a donné des meilleurs résultats en termes de taux de génération d'ozone ainsi que la puissance consommée. En outre, les résultats obtenus ont permis de vérifier que l'efficacité énergétique du réacteur surfacique est beaucoup plus élevée par rapport au réacteur volumique dans un rapport de 2,5 à 3,5.

La décharge à barrière diélectrique volumique est la méthode la plus utilisée dans la technologie de l'ozone, mais l'utilisation des générateurs à DBD surfacique dans l'industrie reste très limitée à cause de la nature de l'électrode externe qui doit être un adhésif ruban métallique ou une électrode maillée au lieu d'une électrode métallique, ce qui conduit à une certaine fragilité du générateur surfacique qui demande plus de soins dans son utilisation.



CHAPITRE IV

Procédé de génération d'ozone par réacteur surfacique à électrodes planes.

CHAPITRE 4 : Procédé de génération d'ozone par réacteur surfacique à électrodes plane.

4 Introduction

Afin d'optimiser les actionneurs plasma à décharge à barrière diélectrique surfacique, nous avons mis au point deux actionneurs l'un qu'on a appelé de configuration à DBDS simple et un autre de configuration à DBD avec électrodes décalées. L'objectif étant de mettre en évidence leurs caractéristiques géométriques pour en choisir le meilleur d'entre eux et l'optimiser.

Ce chapitre est organisé en deux parties la première est dédiée à la réalisation et à l'optimisation du générateur d'ozone, tandis que la deuxième est consacré à l'utilisation de l'actionneur optimal dans une application de traitement d'eau colorée.

4.1 Descriptions des réacteurs réalisés

4.1.1 Réacteur à configuration simple

Le réacteur à DBDS simple est de forme plane, dont l'électrode haute tension interne est une bande adhésive conductrice, avec 180 mm de longueur et 50 mm de largeur, dont six rectangles vides où chacun a une longueur de 150 mm et 5 mm de largeur séparés les uns par rapport aux autres par un espace de 3 mm, le tout collée sur une plaque diélectrique en Bakélite ; celle-ci, agissant comme une barrière diélectrique d'une épaisseur de 2 mm et a une longueur de 220 mm, largeur de 185 mm. L'électrode masse est aussi une bande adhésive pleine de 180 mm de longueur et de 50 mm de largeur.

Afin d'avoir une mesure optimale de la concentration d'ozone, nous avons ajouté un couvercle en plexiglas à l'actionneur dans le côté de l'électrode haute tension muni de deux orifices un pour l'entrée de l'oxygène et l'autre pour la sortie de l'ozone produit.

(Voir figure 4.1 et figure 4.2)[69].

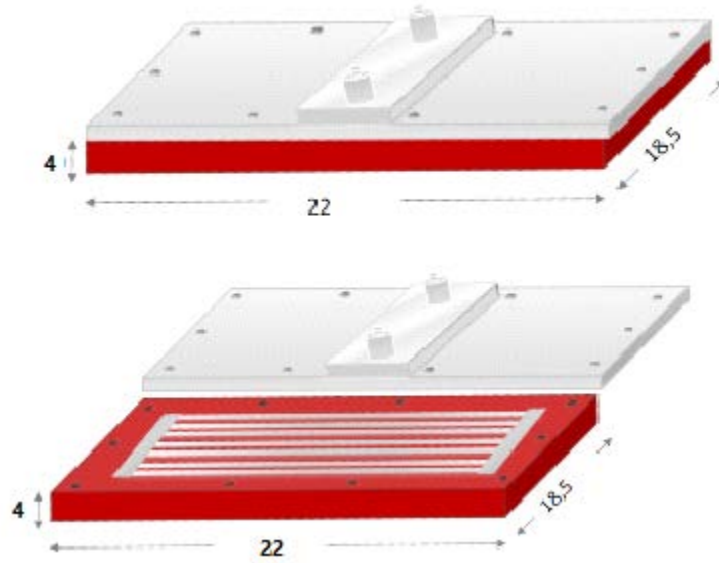


Figure 4.1 : Vue isométrique de réacteur simple .

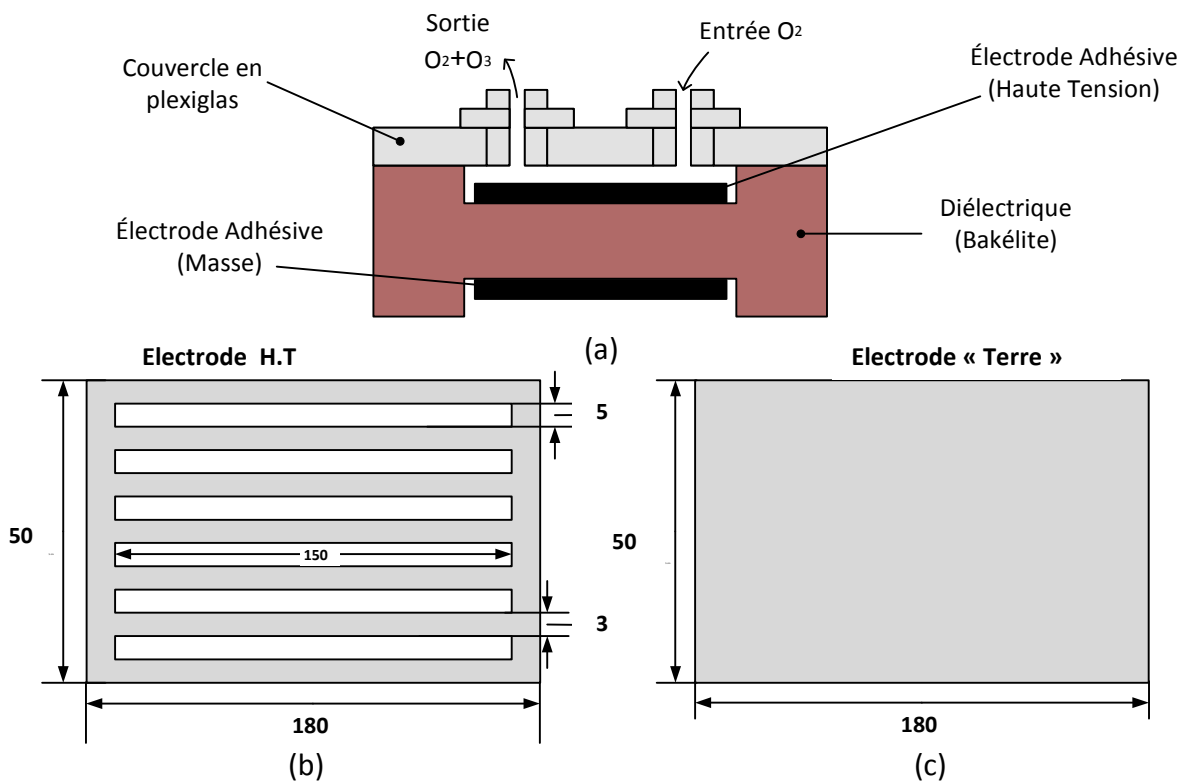


Figure 4.2 : Représentation schématique de réacteur DBD-simple .

- (a) Vue en coupe de l’actionneur
- (b) Dimensions de la forme géométrique de l’électrode HT,
- (c) Dimensions de la Forme géométrique de l’électrode de masse.

4.1.2 Réacteur à configuration décalée

Cette configuration est similaire à la première en termes de l'électrode haute tension et la barrière diélectrique avec une électrode masse en bande adhésive de même dimension que celle de la haute tension sauf que les rectangles vides sont décalés par-rapport à ceux de la bande HT.

En vue d'avoir une mesure optimale de la concentration d'ozone, nous avons ajouté deux couvercles en plexiglas à l'actionneur dans les deux côtés chaqu'un d'eux muni de deux orifices un pour l'entrée de l'oxygène et un autre pour la sortie de l'ozone produit.

Dans ce cas l'oxygène peut circuler dans les deux côtés de la barrière diélectrique en rencontrant les deux décharges produites simultanément dans le réacteur.

(figure 4.3 et figure 4.4)[69].

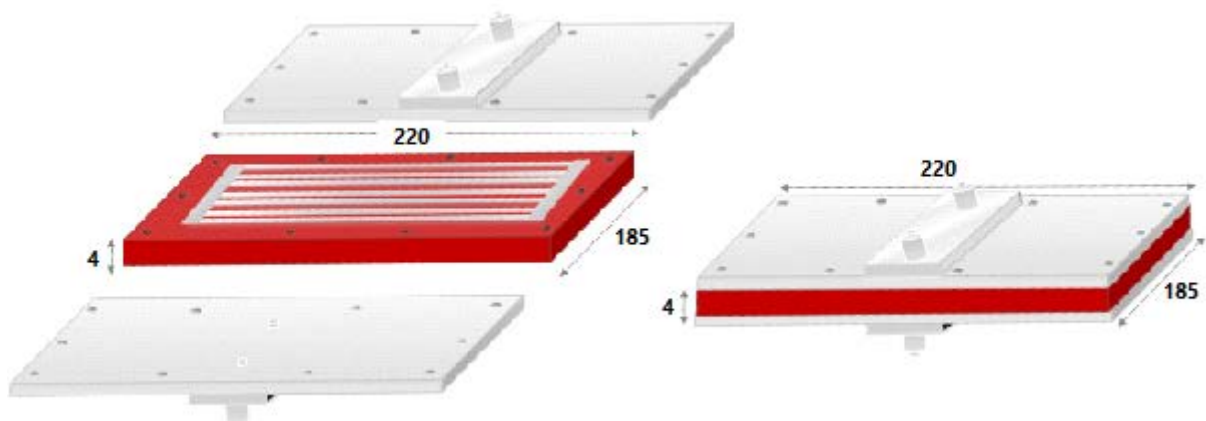


Figure 4.3 : Vue isométrique de réacteur décalée.

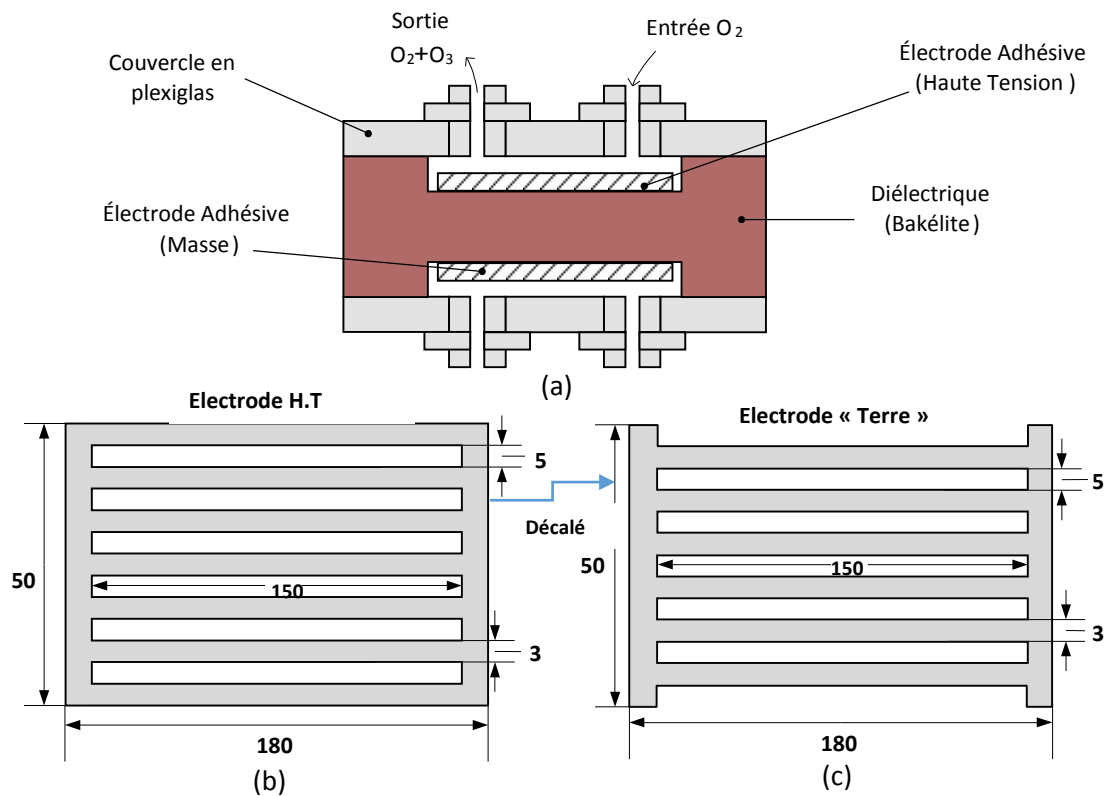


Figure 4.4 : Représentation schématique de réacteur DBDS décalée.

(a) Vue en coupe de l’actionneur (b) Dimensions de la forme géométrique de l’électrode HT, (c) Dimensions de la Forme géométrique de l’électrode de masse.

4.2 Caractérisation électrique des générateurs d’ozone

La tension V appliquée et l’image du courant I ont été mesurées avec la plateforme PicoScope en utilisant une sonde à haute tension de marque NORTH STAR model PMV-1 1000/1 et un capteur de courant de marque PEARSON ELECTRONICS model 410 (10/1) (figure 4.5 et figure 4.6)[69].

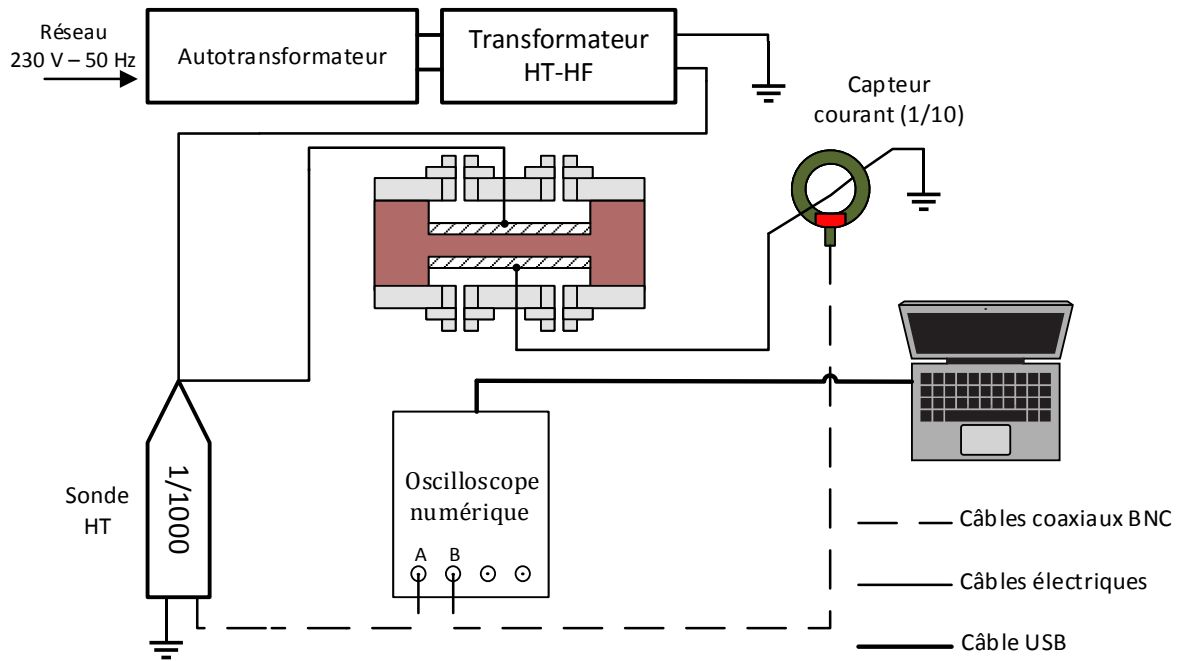


Figure 4.5 : Schéma du dispositif de mesure de tension, du courant et de la puissance dans le générateur d'ozone.

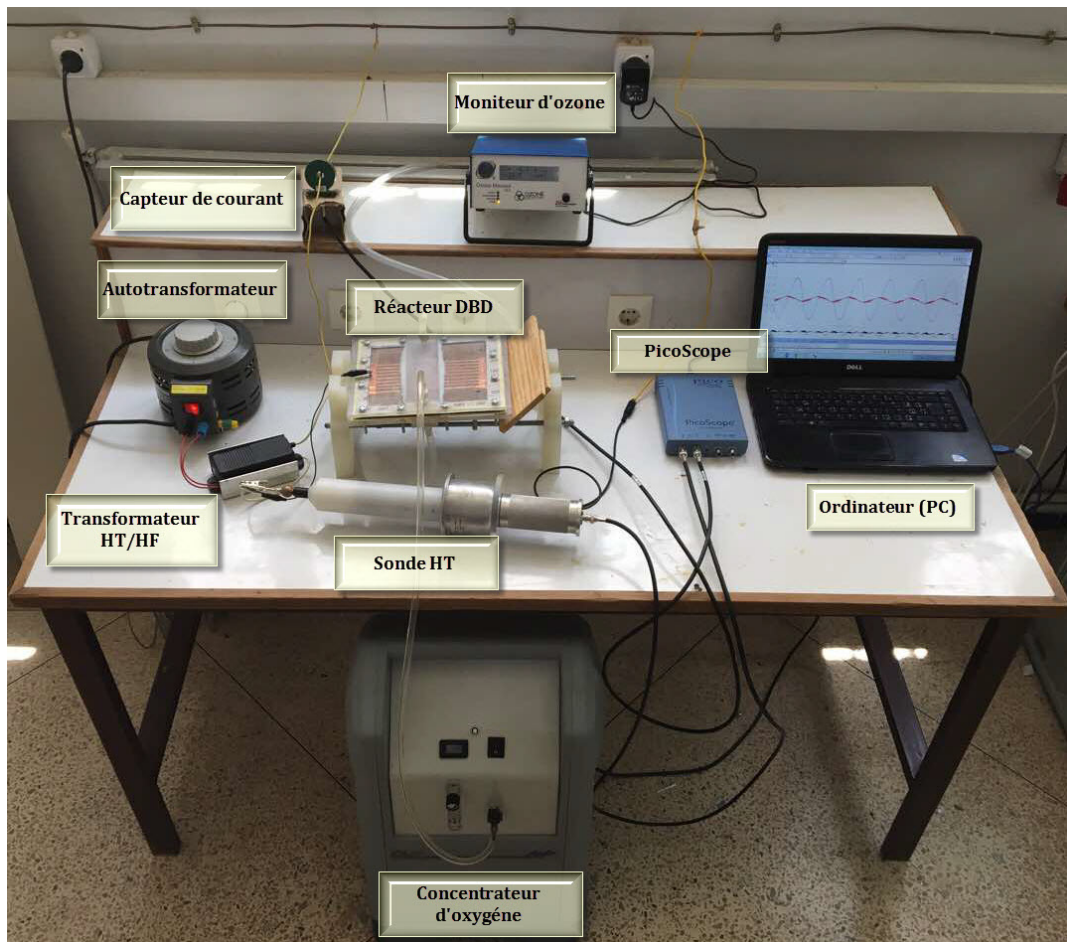


Figure 4.6 : Photographie du dispositif expérimentale pour la caractérisation électrique.

4.2.1 Forme d'onde

Les figures 4.7 et 4.8 illustrent la forme de la tension et du courant de décharge pour les deux générateurs, réacteur simple et réacteur à électrodes décalés respectivement.

Pour les deux configurations, on constate bien que l'amplitude du courant dans la configuration à DBDS-simple est supérieure par rapport à celle à DBDS-décalée. Cependant une plus grande densité des micro-décharges uniformes est visualisée au niveau de la configuration à électrodes décalés .

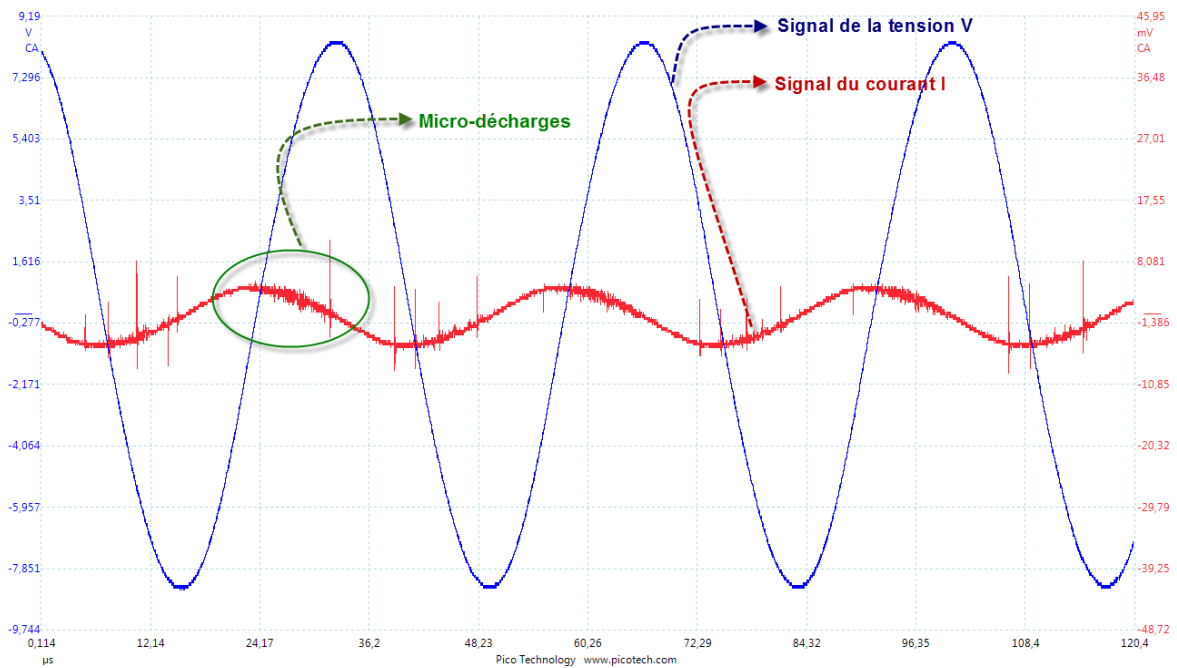


Figure 4.7 : Forme électriques du courant et de la tension dans une DBDS-simple.

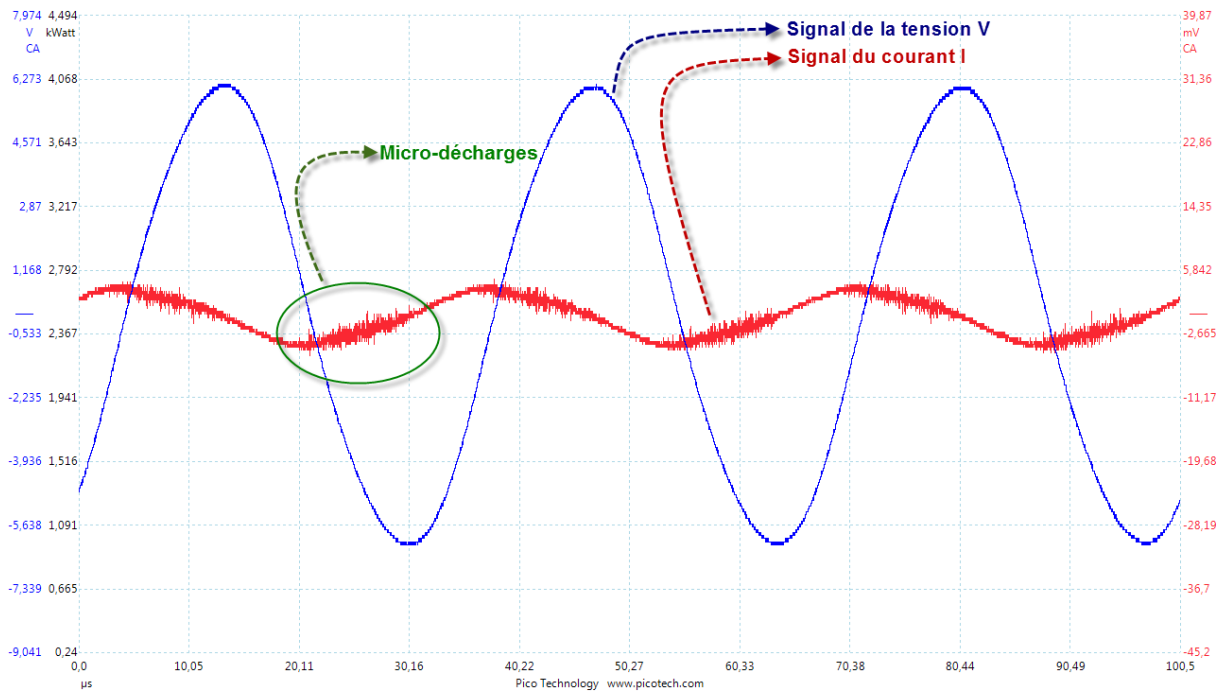


Figure 4.8 : Signaux électrique du courant et de la tension enregistrés par le picoscope dans une DBD décalé.

4.2.2 Mesure de la puissance

La détermination de la puissance consommée par les différentes configurations de générateurs d'ozone utilisés est indispensable afin de savoir laquelle de ces configurations demande moins de puissance autrement dit les classer selon leur rendement énergétique.

La mesure de la puissance est obtenue en effectuant le produit de la tension d'alimentation par le courant de décharge [27].

Lorsque le signal est périodique, la puissance est donnée par la relation suivante :

$$P = \left(\frac{1}{T}\right) \int_0^T U(t) \cdot I(t) \cdot dt \quad (4.1)$$

La puissance peut s'exprimer de la façon suivante :

$$P(W) = \frac{1}{T} \int_0^T \alpha \cdot [\text{voix de la tension}] \cdot \beta \cdot [\text{voix du courant}] \cdot dt \quad (4.2)$$

Avec : α : coefficient de la sonde haute tension qui est égale à 1000.

β : coefficient du capteur de courant qui est égale à 10.

Comme notre PICOSCOPE dispose de fonctions intégrées (canaux mathématiques), nous pouvons obtenir directement l’affichage d’une puissance moyenne cumul de 50 000 points, en calculant la valeur de la moyenne statistique du produit $V * I$ sur 50 000 points.

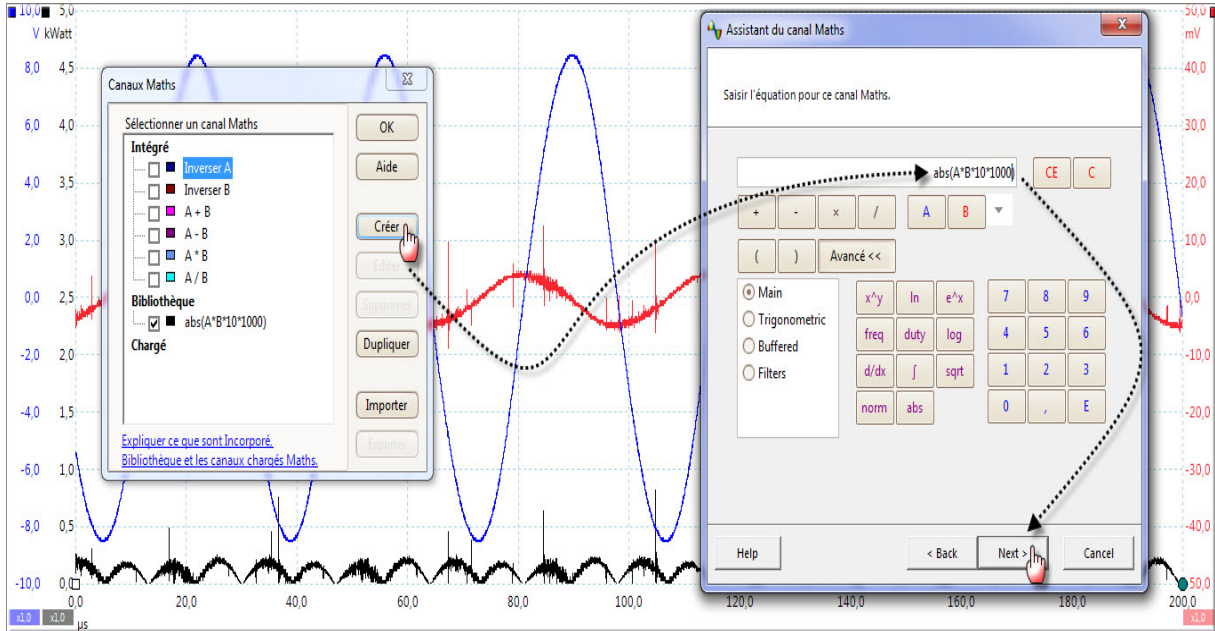


Figure 4.9 : La puissance sur PICOSCOPE.

Les figures 4.10 et 4.11 illustre la variation de la puissance consommée en fonction de la tension appliquée pour les générateurs d’ozone DBD-S, DBD-D, DBD-D (Al), DBD-D (Cu).

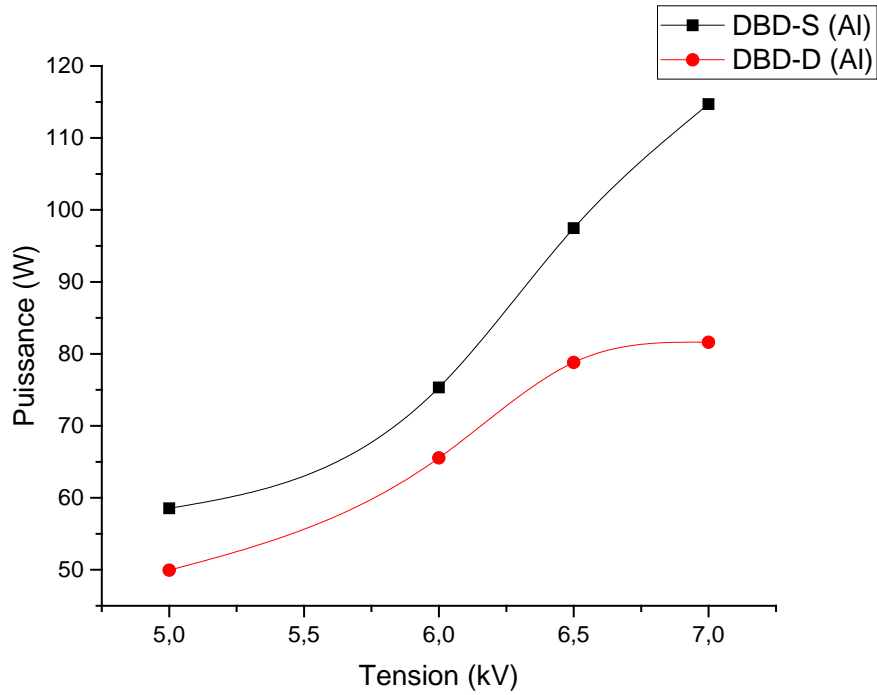


Figure 4.10 : Variation de la puissance consommée par le générateur DBD-S et DBD-D aluminium en fonction de la tension appliquée.

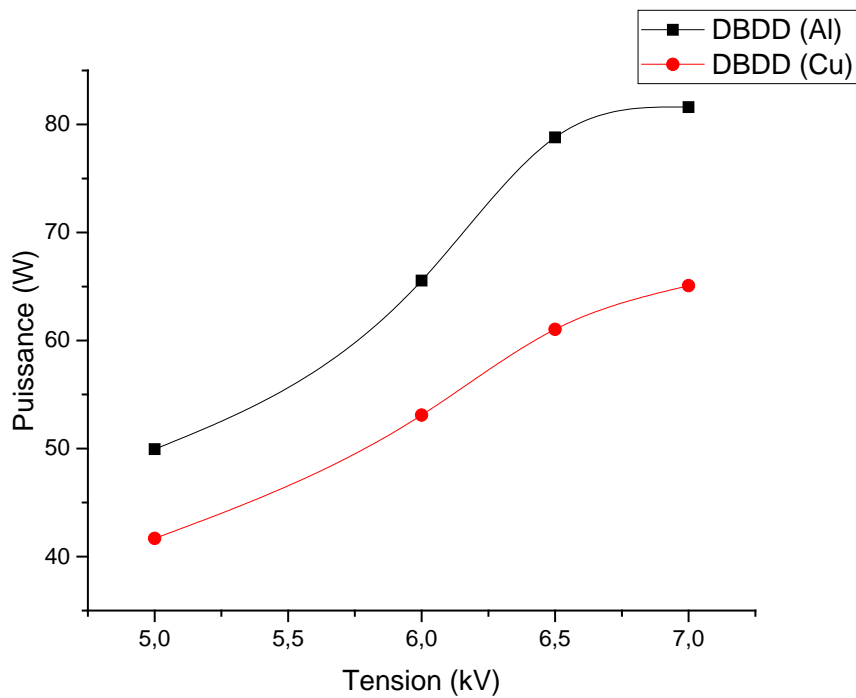


Figure 4.11 : Variation de la puissance consommée par le générateur DBD-D cuivre et DBD-D aluminium en fonction de la tension appliquée.

La puissance consommée par les générateurs est proportionnelle à la tension appliquée. Étonnamment, nous remarquons que la configuration à électrodes décalés DBD-D consomme moins de puissance par rapport à la configuration simple DBD-S (figure 4.10), cela est dû à l'amplitude élevée du courant dans cette dernière. En plus, nous constatons que la configuration à électrodes décalés en cuivre DBD-D (Cu) consomme moins de puissance que la configuration à électrodes décalés en aluminium DBD-D (Al), cette diminution revient à la conductivité qui est élevée dans le cas du cuivre par exemple, pour une tension de 6,5 kV la configuration DBD-D (Cu) consomme environ 60W, autrement, la configuration DBD-D (Al) consomme plus de puissance 78 W environ.

4.3 Mesure des différentes concentrations d'ozone

Dans cette section, nous analysons expérimentalement l'influence de la tension appliquée V (kV) et du débit d'oxygène injecté DO_2 (l/min) sur la concentration d'ozone obtenue Cto_3 .

La concentration d'ozone Cto_3 est mesurée par un moniteur d'ozone de marque 106 H en g/m^3 . Le résultat obtenu nous permet de calculer le taux de production d'ozone τ (g/h) de la façon suivante.

$$\tau_{O_3} \text{ (g/h)} = DO_2 \times Cto_3 \times \frac{60}{1000} \quad (4.3)$$

La Figure 4.12 représente un schéma synoptique du dispositif utilisé.

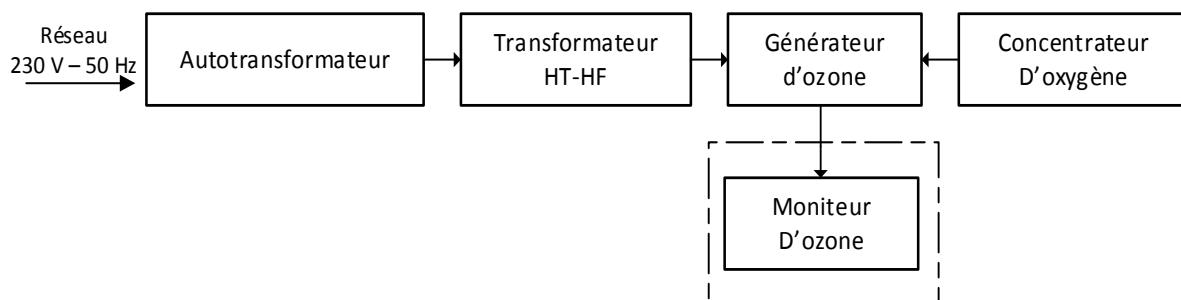


Figure 4.12 : Schéma synoptique du dispositif utilisé pour la mesure de la concentration d'O₃.

4.3.1 Effet de la tension et la géométrie des réacteurs

Pour analyser le procédé de génération d'ozone, nous optons pour plusieurs géométries des électrodes afin de les classer et choisir une géométrie adéquate. Deux circuits d'oxygène pour la configuration à électrodes décalés DBD-D ont été employés, série DBD-D-S et parallèle DBDD-P.

La valeur du débit d'oxygène injecté est de 0,5 l/min pour les deux configurations DBD-S et DBD-D-S et 1 l/min pour la configuration DBD-D-P.

Pour les premières expériences préliminaires l'électrode HT utilisé est en aluminium sous forme de 6 filaments.

La figure 4.13 représente la variation du taux d'ozone en fonction de la tension pour les trois géométries utilisées DBD-S, DBD-D-S et DBD-D-P.

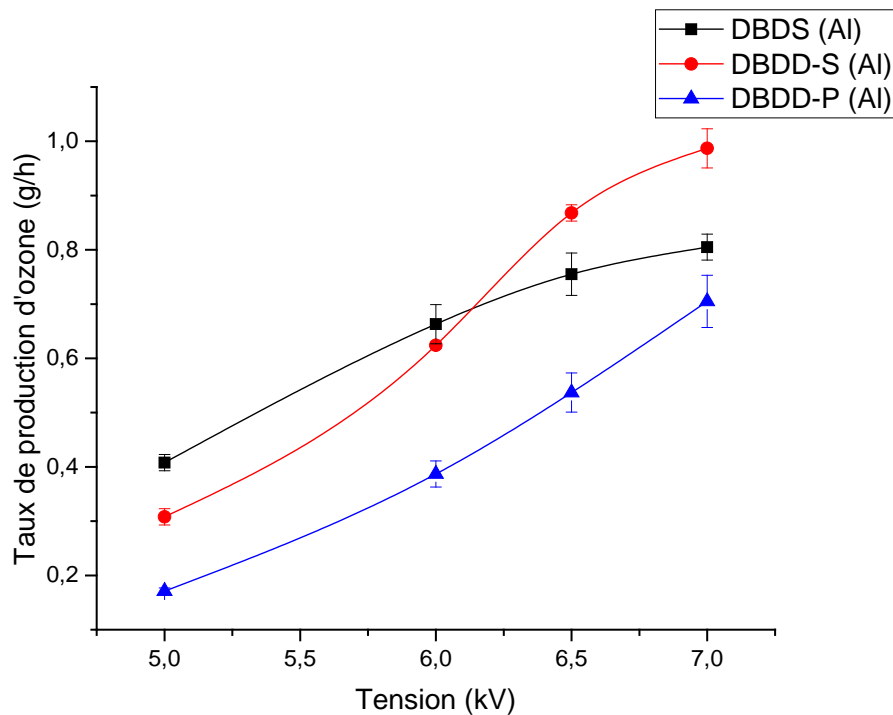


Figure 4.13 : Variation du taux de production d'ozone pour différentes configurations en fonction de la tension appliquée.

D'après la figure précédente, nous constatons que la meilleure concentration d'ozone est obtenue par la configuration DBD-D-S, cela est dû à la densité très élevée des micro-décharges dans cette géométrie. Par exemple, pour une tension de 6,5kV, la configuration DBD-D-S a un taux d'ozone d'environ 0,87g/h tandis que pour les DBD-S et DBD-D-P le taux d'ozone est de 0,75 g/h et 0,5 g/h respectivement.

En plus nous remarquons bien que l'augmentation de la tension engendre une élévation de la quantité d'ozone produite, pour la simple raison qui consiste à augmenter le nombre des micro-décharges et par conséquent le nombre des molécules d'ozone en élevant la tension.

4.3.2 Influence du matériau

Dans cette partie, nous avons utilisé deux générateurs d'ozone, le premier dont les électrodes sont décalées en aluminium et le deuxième, les électrodes sont en cuivre.

La Figure 4.14 représente la variation du taux de production d'ozone en fonction de la puissance consommée par les deux générateurs DBD-D (Al) et DBD-D (Cu).

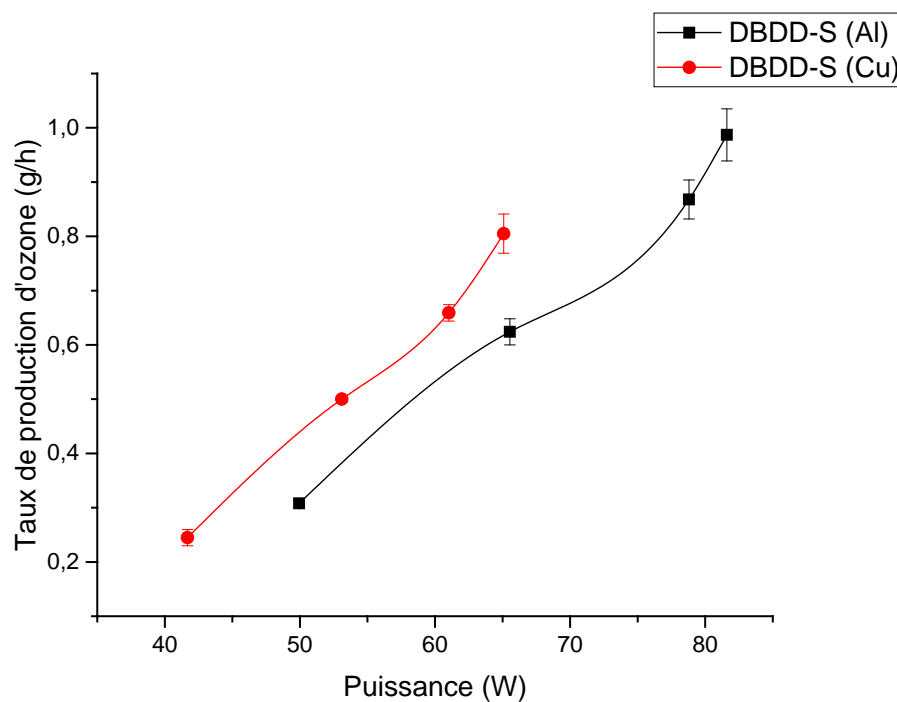


Figure 4.14 : Variation du taux de production d'ozone par le générateur DBD-D en cuivre et DBD-D en aluminium (configuration série) en fonction de la puissance consommée.

D'après la figure précédente, on constate que le générateur à électrodes aluminium DBDD (Al) consomme plus de puissance avec un taux d'ozone légèrement plus élevé que le générateur à électrodes cuivre DBDD (Cu). Par exemple, pour un taux d'ozone d'environ 0,65 g/h, le DBDD (Al) consomme environ 70 W de puissance, tandis que le DBDD (Cu) consomme que 60 W.

4.3.3 Rendement énergétique

Afin de comparer les deux générateurs utilisés précédemment, nous avons effectué un calcul de rendement énergétique afin de choisir le meilleur d'entre eux.

$$\eta \text{ (g/kwh)} = \frac{\tau \text{ (g/h)}}{P \text{ (kw)}} \quad (4.4)$$

La Figure 4.15 représente la variation du rendement énergétique de DBDD (Al) et DBDD (Cu) en fonction de la puissance consommée par ces deux générateurs.

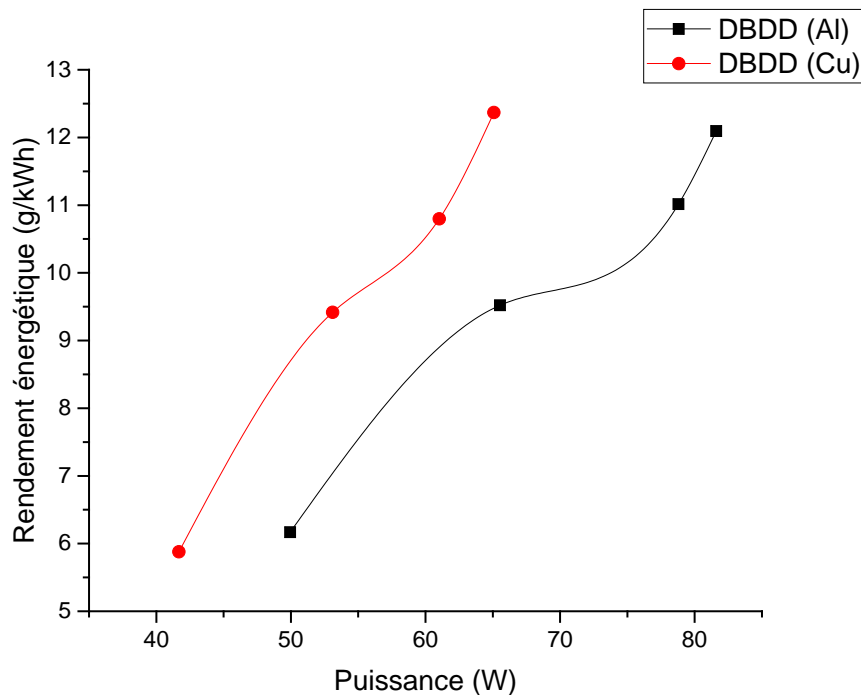


Figure 4.15 : Variation du rendement énergétique par le générateur DBDD cuivre et DBDD aluminium en fonction de la puissance consommée.

Les résultats de la figure 4.15 démontrent que le générateur à électrodes décalés en cuivre DBDD (Cu) possède une meilleure efficacité énergétique par rapport au générateur à électrodes décalés en aluminium DBDD (Al). A titre d'exemple pour une puissance de 60 W consommée un rendement de 10 g/kWh environ trouvé pour le cuivre, tandis qu'il ne dépasse pas les 7 g/kWh pour l'aluminium

4.3.4 Influence du débit d'O₂

La figure 4.16 représente la variation du taux d'ozone en fonction du débit d'oxygène injecté pour le générateur à DBD-D-S (Cu).

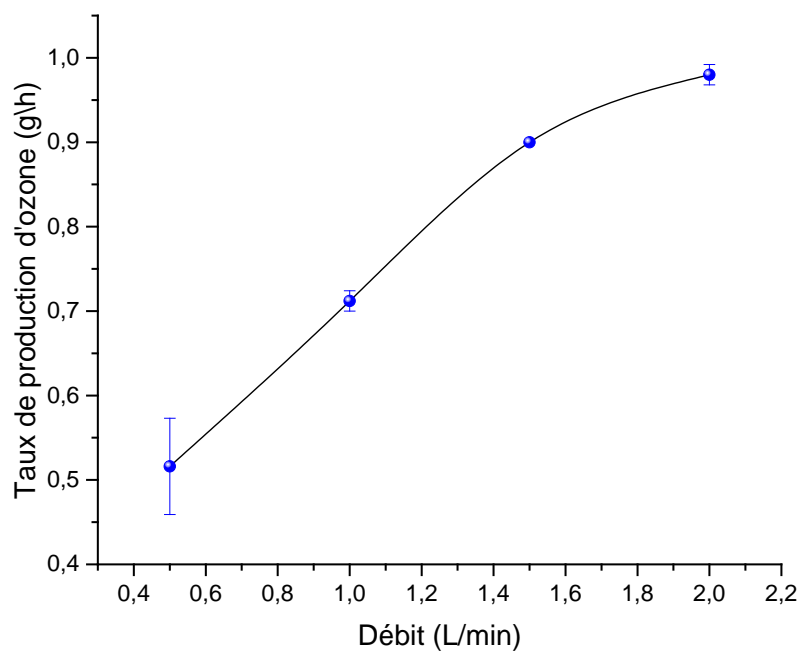


Figure 4.16 : Variation du taux de production d'ozone en fonction du débit injecté.

La figure précédente montre que, en augmentant le débit d'oxygène injecté, on obtient des valeurs de taux d'ozone élevé, cela est dû à l'augmentation des molécules d'oxygène qui vont se transformer par la suite en molécules d'ozone en rencontrant la décharge électrique.

4.3.5 Influence du nombre de fils

La Figure 4.17 représente la variation du rendement énergétique (g/kWh) en fonction du nombre de fils utilisé dans la configuration à électrodes décalés en cuivre DBD-D-S (Cu).

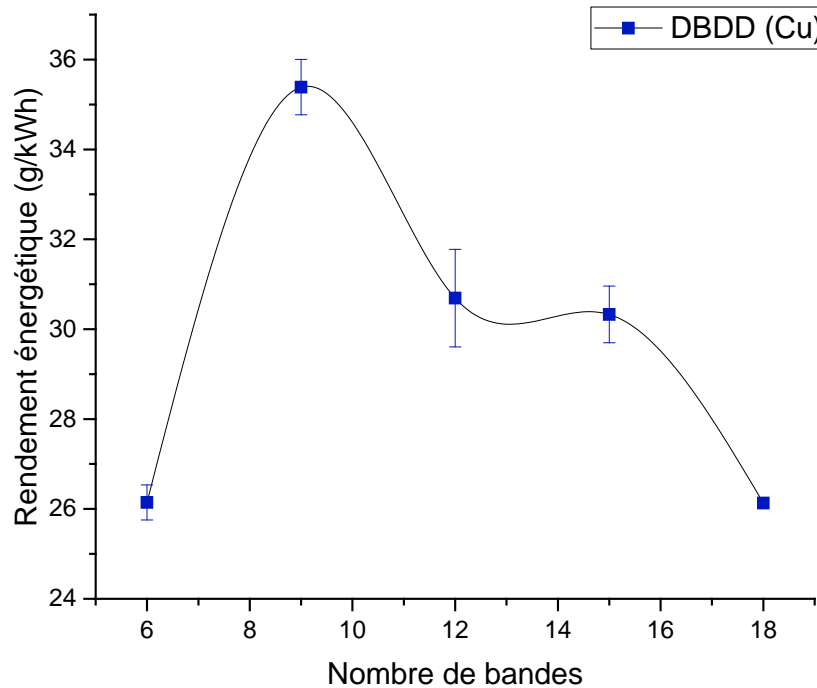


Figure 4.17 : Variation du rendement énergétique du générateur DBD-D (Cu) en fonction du nombre de bandes.

D'après les résultats trouvés dans cette série d'expériences, il est constatable que, la configuration à électrodes décalés à 9 fils a un rendement énergétique plus élevé que les autres configurations dont l'efficacité énergétique augmente en élevant la surface de décharge puis il commence à se diminuer, cette diminution nous conduit à conclure que la puissance consommé pour une surface de décharge importante prédomine sur la concentration d'ozone produite.

4.4 Optimisation du générateur d'ozone à DBD-D

4.4.1 Méthodologie des plans d'expérience

A. Concepts fondamentaux : réponses, facteurs effets, interactions

Les scientifiques sont souvent amenés à comprendre comment réagit un système en fonction des facteurs susceptibles de le modifier. Pour visualiser cette évolution, il mesure une réponse et essaye ensuite d'établir des relations de cause à effet entre les réponses et les facteurs [28].

Parmi les facteurs on distinguera :

- Les facteurs contrôlables qui dépendent directement du choix du technicien (pression, température, matériau ...).
- Les facteurs non contrôlables qui varient indépendamment du choix du technicien (conditions climatiques, environnement d'utilisation...).

Un facteur est une grandeur le plus souvent mesurable, la réponse est la grandeur mesurée à chaque essai ; le plan vise à déterminer quels facteurs l'influencent ou quelle est son évolution en fonction de ceux-ci.

Une notion importante est celle d'interaction entre deux facteurs d'entrée. On parle d'interaction entre deux facteurs A et B quand l'effet du facteur A sur la réponse va dépendre de la valeur du facteur B.

Les phénomènes étudiés sont mis sous la forme mathématique suivante :

$$Y = f(U_{ij}) \quad (4.5)$$

Où Y , la réponse à laquelle s'intéresse l'expérimentateur,

U_{ij} , les facteurs qui influencent un phénomène.

f est une fonction mathématique qui prédit les variations de la réponse selon les différentes valeurs données aux U_{ij} : en principe il s'agit d'un polynôme du premier ou deuxième degré dans le cas des plans d'expériences.

Lorsque l'on étudie un facteur U_{ij} , on définit toujours, en fonction des besoins de l'étude, une valeur inférieure et une valeur supérieure. Les variations du facteur sont donc limitées par deux bornes qui sont appelées niveau bas et niveau haut. On désigne le niveau bas (codé -1) par le signe (-) et le niveau haut (codé +1) par le signe (+).

B. Etapes d'une étude par plans d'expériences

a) Détermination de la réponse et des facteurs d'étude

L'étude doit avant tout avoir un but précis : minimiser un coût de fabrication, chercher les paramètres influents :

- Choix de la réponse la plus judicieuse
- Moyens de mesure adaptés
- Facteurs potentiellement influents
- Choix du domaine d'étude de ces facteurs
- Eventuelles interactions à rechercher

b) Choix d'un modèle

Les plans d'expériences dits factoriels utilisent tous le modèle mathématique suivant qui relie la réponse y aux facteurs x . Ce modèle théorique est postulé a priori. Il s'agit d'un modèle polynomial.

$$y = a_0 + \sum a_i x_i + \sum a_{ij} x_i x_j + \sum a_{ijl} x_i x_j x_l + \dots + \sum a_{ij\dots k} x_i x_j \dots x_k \quad (4.6)$$

Où :

- y est la réponse ou la grandeur d'intérêt. Elle est mesurée au cours de l'expérimentation et elle est obtenue avec une précision donnée.
- x_i Représente le niveau attribué au facteur i par l'expérimentateur pour réaliser un essai. Cette valeur est parfaitement connue. On suppose même que ce niveau est déterminé sans erreur (hypothèse classique de la régression).
- a_0, a_i, a_{ij}, a_2 sont les coefficients du modèle mathématique adopté à priori. Ils ne sont pas connus et doivent être calculés à partir des résultats des expériences.

L'intérêt de modéliser la réponse par un polynôme est de pouvoir calculer ensuite toutes les réponses du domaine d'étude sans être obligé de faire les expériences. Ce modèle est appelé "modèle postulé" ou "modèle à priori".

c) Choix des expériences à réaliser

La méthode des plans d'expérience peut être sommairement comparée à la méthodologie traditionnelle dite de "variation facteur par facteur". Pour étudier l'influence de deux facteurs sur une réponse, on peut adopter deux stratégies expérimentales pour la conception des essais.

Selon la méthode traditionnelle, on bloque le facteur A au centre du domaine de variation et on fait varier le facteur B aux deux extrémités de son domaine : on obtient les mesures M_1 et M_2 . Avec le facteur A on réalise la même opération pour obtenir les points M_3 et M_4 . Dans cette méthode, l'effet de B sera mesuré à partir des mesures M_1 et M_2 et celui d'A à partir des mesures M_3 et M_4 . Donc pour chaque facteur la moitié des mesures seulement est utilisée pour rendre compte d'un effet. La méthode des plans d'expériences consistera à réaliser 4 essais aux extrémités du domaine expérimental. L'effet de A apparaît comme la différence entre la moyenne $(Y_2+Y_4)/2$ et la moyenne $(Y_1+Y_3)/2$. Le même raisonnement s'applique pour l'effet de B.

d) Réalisation des essais

Un soin tout particulier doit être apporté à l'exécution des essais. Si on ne réalise pas personnellement les essais, il faut notamment vérifier que les facteurs contrôlables mais non étudiés soient bien fixés à des valeurs précises.

e) Interprétation des résultats des essais

Comme première approche, le plan d'expérience peut être conçu comme un moyen de savoir quels sont les facteurs ou les interactions qui ont une influence statistiquement significative sur la réponse étudiée.

C. Variables codées

Pour pouvoir comparer entre eux les "poids" des paramètres, on préfère ne pas utiliser les valeurs des variables naturelles U_{ij} qui dépendent des unités utilisées. Pour surmonter cette difficulté, on utilise les valeurs des variables codées X_{ij} dont l'origine correspond au centre du domaine expérimental. Les valeurs des variables codées sont définies de la manière suivante :

$$X_{ij} = (U_{ij} - U_{0j}) / \Delta U_j \quad (4.7)$$

Avec X_{ij} : valeur de la variable codée j pour l'expérience i ;

U_{ij} : valeur de la variable naturelle j à l'expérience i ;

U_{0j} : valeur de la variable naturelle au centre du domaine ;

ΔU_j : pas de variation de la variable naturelle j (moitié de l'écart entre la valeur maximum et la valeur minimum de la variable).

Trouver des modèles mathématiques de bonne qualité avec un minimum d'efforts dépend de la façon dont les intervalles des facteurs sont sélectionnés. Cette méthode peut être utilisée comme suit :

- Sélection des facteurs les plus intéressants et influents.
- Détermination des valeurs maximales, minimales et centrales de chaque facteur.
- Réalisation d'une matrice d'expériences avec tous les états possibles et les réponses correspondantes.

D. Principaux avantages des plans d'expériences :

Les principaux avantages de cette méthode sont :

- Diminution du nombre d'essais.
- Possibilité d'étudier un grand nombre de facteurs.
- Détection des interactions entre facteurs.
- Modélisation des réponses étudiées.
- Précision optimum des résultats.

La méthode des plans d'expériences permet une interprétation rapide en fournissant un modèle expérimental précis du système étudié.

E. Plan composite centré

Le plan composite centré (Central Composite Design) fait partie des plans d'expériences pour l'étude des surfaces de réponses (figure 4.18). Leur usage est particulièrement destiné aux problèmes d'optimisation, quand la stratégie expérimentale conduit à construire et interpréter un modèle empirique, pour la recherche d'une solution dans le domaine expérimental.

La première partie de l'étude est un plan factoriel complet ou fractionnaire complétée par des points au centre pour vérifier la validité du modèle du premier degré. Si les tests de validation sont positifs l'étude s'achève le plus souvent, mais s'ils sont négatifs on entreprend des essais supplémentaires pour établir un modèle du second degré.

La seconde partie consiste à l'étude des essais supplémentaires, ces nouveaux essais sont représentés par des points d'expériences situés sur les axes de coordonnées et par de nouveaux points centraux. Les points situés sur les axes de coordonnées sont appelés les points en étoile.

Les plans composites présentent donc trois parties :

- Plan factoriel : c'est un plan factoriel complet ou fractionnaire à deux niveaux par facteurs : les points expérimentaux sont aux sommets du domaine cubique d'étude.
- Plan en étoile : les points du plan en étoile sont sur les axes et ils sont en général tous situés à la même distance du centre du domaine d'étude.
- Points expérimentaux situés au centre du domaine d'étude et cela aussi bien pour les plans factoriels que pour les plans en étoile (composite).

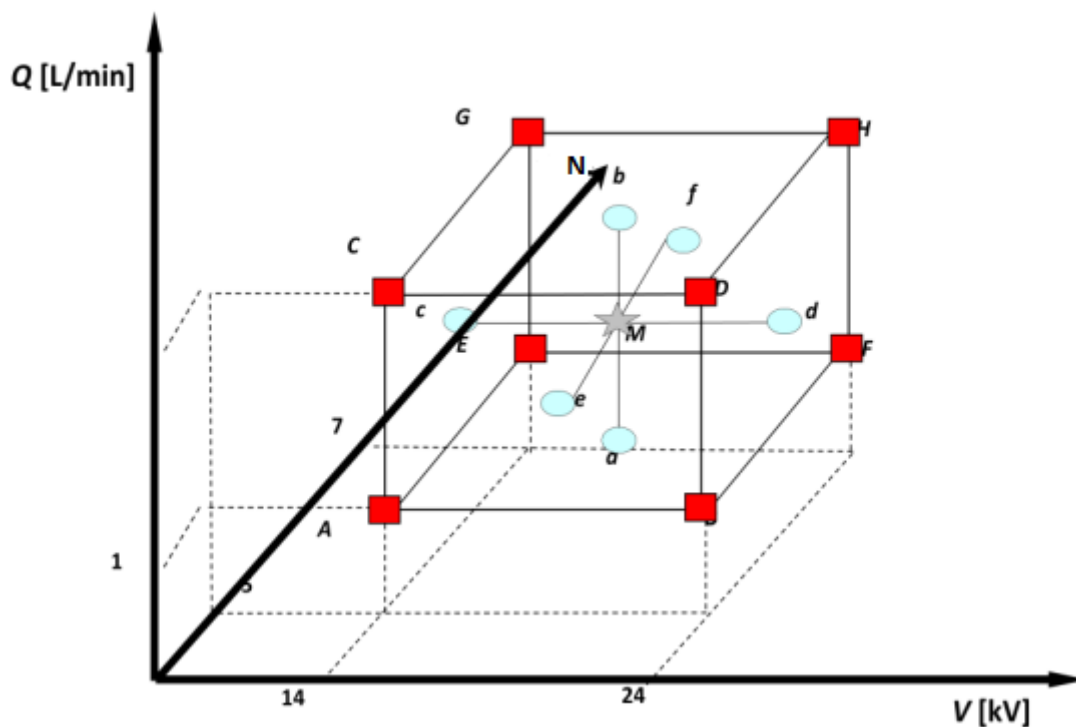


Figure 4.18 : Disposition des expériences dans un plan composite centré à 03 facteurs.

Le nombre total d'essais n à réaliser est la somme de ce qui suit :

- Essais du plan factoriel, soit n_f ;
- Essais du plan en étoile, soit n_a ;
- Essais au centre, soit n_0

Le nombre n des essais d'un plan composites est donné par la relation suivante :

$$n = n_f + n_a + n_0 \quad (4.8)$$

Lorsque le domaine expérimental est défini à partir des variations de k facteurs, le nombre de traitement expérimentaux proposées par un plan composite centré est donc égal à :

$$n = 2^k + 2 \cdot k + n_0 \quad (4.9)$$

Avec :

2^k : Nombre d'essais correspondant au plan factoriel.

$2 \cdot k$: Nombre d'essais du plan en étoile.

n_0 : Nombre d'essais au centre.

L'intérêt des plans composites réside dans le fait qu'ils prennent facilement la suite d'un premier plan factoriel dont les résultats sont inexplicables par un modèle du premier degré. Il suffit d'effectuer les expériences correspondantes aux points en étoile et de faire les calculs sur l'ensemble de toutes les expériences. Les plans composites sont parfaitement adaptés à l'acquisition progressive des résultats.

F. Qualité du modèle

a) Qualité descriptive du modèle

Appelé la qualité de l'ajustement, traduit la contribution du modèle dans la restitution de la variation de la réponse observée. Par définition, le coefficient de détermination appartient à l'intervalle suivant :

$$0 \leq R^2 \leq 1 \quad (4.10)$$

Où 1 indique un modèle parfait et 0 indique aucun modèle.

b) Qualité prédictive du modèle :

Le modèle obtenu peut servir à prédire la valeur de la réponse non encore réalisés. Cette approche est très courante dans un problème d'optimisation. Au même titre que l'on a défini précédemment la qualité descriptive d'un modèle à partir du coefficient de détermination, il est possible de définir maintenant la qualité prédictive Q^2 . Par définition, le coefficient Q^2 appartient à l'intervalle suivant :

$$-\infty \leq Q^2 \leq 1 \quad (4.11)$$

Plus la valeur du coefficient Q^2 est proche de 1, plus la qualité prédictive du modèle est importante. Les deux paramètres doivent être élevés, et de préférence non séparés par plus de 0,2 à 0,3.

G. Logiciel MODDE 5.0

La haute qualité, l'efficacité sont les caractéristiques d'une organisation qui garantit le succès. Les plans d'expériences sont les meilleurs outils pour atteindre ces objectifs.

MODDE est un logiciel fonctionnant sous Windows permettant de définir des plans d'expériences, de les analyser et de les optimiser, le tout dans un unique produit convivial. Le logiciel est conçu pour les techniciens et les ingénieurs de tous les secteurs de l'industrie.

Il permet de bâtir et d'analyser des plans de criblage, en surface de réponse, Taguchi, de mélanges, D-optimaux, des plans multi variés « Onion Designs » ainsi que des plans comportant à la fois des composants et des facteurs de procédés. Pour estimer les modèles, il utilise soit la méthode des moindres carrés usuelle (MLR) soit la méthode des moindres carrés partiels (PLS). Cela permet notamment d'ajuster un modèle reliant les variations de toutes les réponses aux facteurs en prenant en compte la structure de covariances. Nous avons utilisé ce logiciel sous Windows pour la création et l'évaluation de modèles expérimentaux. Le programme aide l'utilisateur à l'interprétation des résultats et la prévision des réponses. Il calcule les coefficients du modèle mathématique et identifie les meilleures adaptations des facteurs permettant d'optimiser le processus.

H. Résultat préliminaire

Après avoir opté pour la configuration à électrodes décalés en cuivre DBDD-S (Cu) qui a offert un meilleur rendement énergétique en termes de production d'ozone, dans cette partie n modéliser ce générateur d'ozone en fonction de paramètres électrique et géométrique, afin d'identifier le point de fonctionnement optimal de ce générateur d'ozone en utilisant la méthodologie des plans d'expériences (plan composite à faces centrées CCF).

Les facteurs d'entrée sont ; la tension V, le débit Q, le nombre de fils N. Les réponses obtenues sont ; la puissance P et le taux d'ozone.

L'identification des valeurs optimales de dimensions ont été déterminées en utilisant un plan double composite à faces centrées (CCF) avec 3 facteurs ; Il se compose de 8 expériences situées au sommet du cube (points carrés A, B ... H), 6 expériences situés dans les centres des faces du cube (points ronds a, b ... f) et 3 expériences identiques dans le point central M (point étoile). Ainsi, un plan d'expériences CCF avec 3 facteurs comprend (2x17) expériences.

Il faut noter que chaque essai est répété *deux fois* afin de calculer la valeur moyenne. Les deux niveaux "max" et "min" sont les limites établies dans la section précédente pour chacune des trois variables.

Les coordonnées du point central (N_c , V_c , et Q_c) étant calculées comme suit :

$$N_c = \frac{N_{max} + N_{min}}{2} = \frac{9 + 15}{2} = 12 \text{ fils} \quad (4.12)$$

$$V_c = \frac{V_{max} + V_{min}}{2} = \frac{2 + 4}{2} = 3 \text{ kV} \quad (4.13)$$

$$Q_c = \frac{Q_{max} + Q_{min}}{2} = \frac{1 + 2}{2} = 1,5 \text{ l/min} \quad (4.14)$$

Les résultats des expériences sont donnés dans le **Tableau 4.1** En plus de la puissance consommée (W), le taux d'ozone a été également considéré comme une réponse significative.

Tableau 4.1 : Les résultats des expériences proposés par le plan d'expérience.

Exp N°	Tension (kV)	Débit (L/min)	Nombre de fils	P (W)	Taux d'ozone (g/h)	Efficacité (g/kWh)
1	2	1	9	11,71	0,426	36,3792
2	4	1	9	35,67	1,746	48,9487
3	2	2	9	11,71	0,624	53,2878
4	4	2	9	35,67	2,64	74,0118
5	2	1	15	12,16	0,162	13,3224
6	4	1	15	25,44	0,906	35,6132
7	2	2	15	12,16	0,204	16,7763
8	4	2	15	25,44	1,2	47,1698
9	2	1,5	12	11,28	0,216	19,1489
10	4	1,5	12	33	1,233	37,3636
11	3	1	12	14,06	0,582	41,394
12	3	2	12	14,06	0,696	49,5021
13	3	1,5	9	18,37	1,161	63,2009
14	3	1,5	15	17,76	0,495	27,8716
15	3	1,5	12	14,06	0,612	43,5277
16	3	1,5	12	14,06	0,675	48,0085
17	3	1,5	12	14,06	0,675	48,0085

Les modèles mathématiques du taux d'ozone τ , la puissance consommée P par le réacteur DBDD-S (Cu), en négligeant les effets non significatifs, proposés par MODDE 5.0 sont montrés par les équations suivantes [63] :

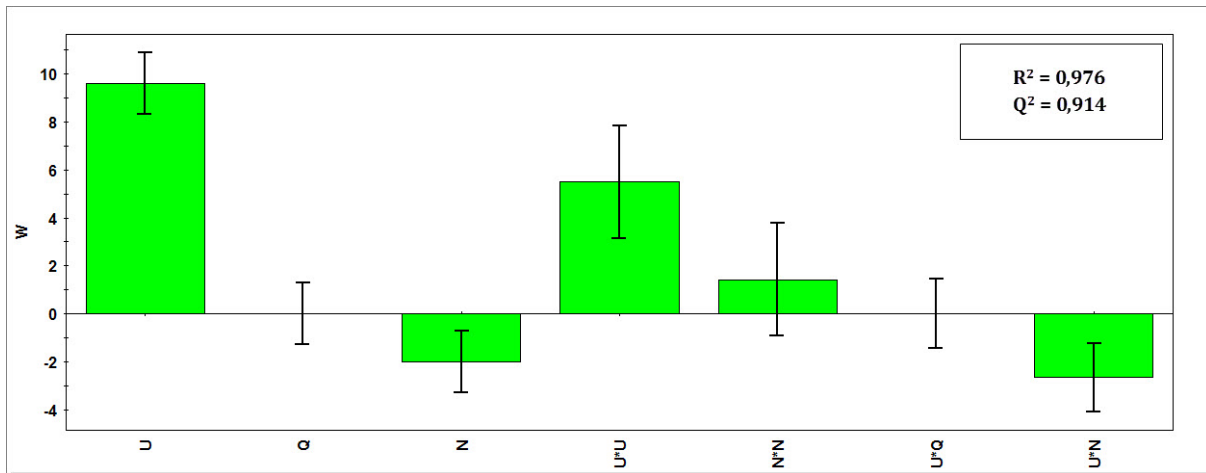
$$\tau = 0,63 + 0,6U^* + 0,15Q^* - 0,36N + 0,22N^{*2} + 0,11U^*Q^* - 0,19U^*N^* \quad (4.15)$$

$$P = 14,79 + 9,62U^* - 2,017N^* + 5,49U^{*2} - 2,67U^*N^* \quad (4.16)$$

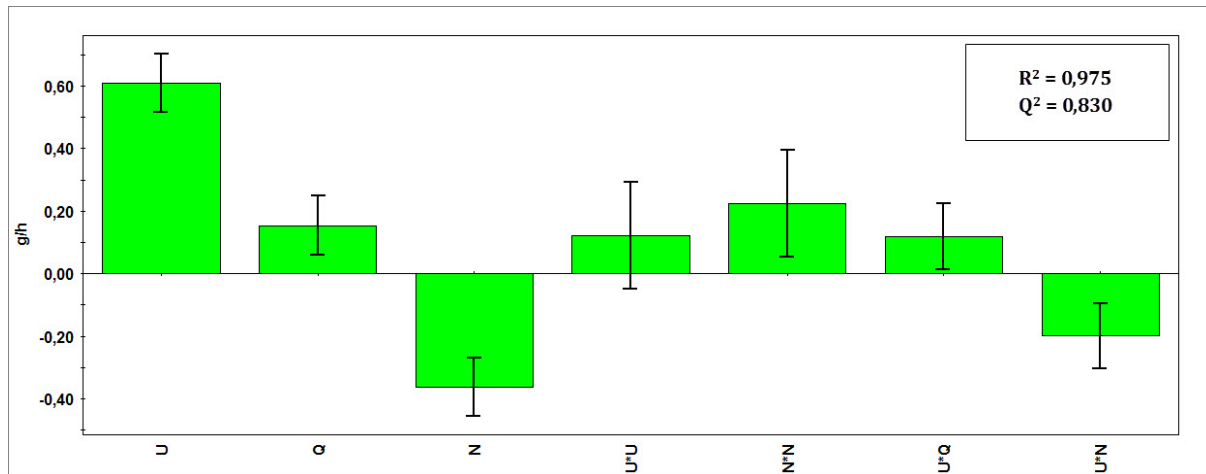
Le programme calcule deux importants critères statistiques qui permettent de valider ou non le modèle mathématique, symbolisé par R^2 et Q^2 . Le premier est appelé la qualité de l'ajustement, et est une mesure de la façon dont le modèle peut être adapté à des données brutes, il varie entre 0 et 1 , où 1 indique un modèle parfait et 0 indique aucun modèle. Le deuxième critère est appelé la qualité de prédiction, et estime la puissance

Comme les critères statistiques de validation sont proches de l'unité, $R^2 = 0,976$ et $Q^2 = 0,914$ pour la puissance P et $R^2 = 0,975$ et $Q^2 = 0,830$ pour le taux d'ozone τ , les deux modèles ont été validés et ont été utilisés pour optimiser les facteurs d'entrée afin de trouver un meilleur rendement énergétique.

L'influence des différents facteurs sur les deux réponses sont données par la figure 4.19.



(a)



(b)

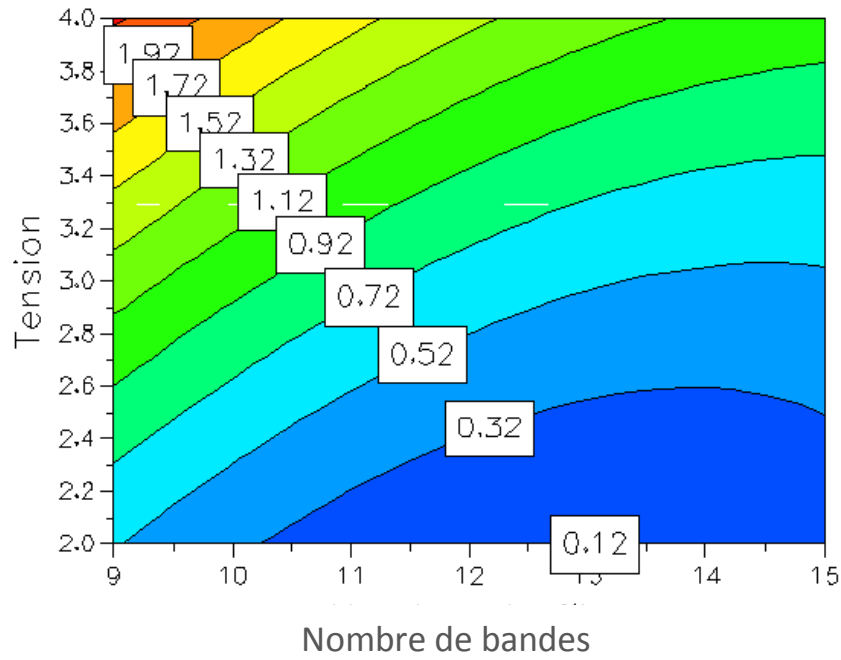
(a) Puissance consommée et (b) Taux d'ozone.

Figure 4.19 : Coefficients des modèles obtenus.

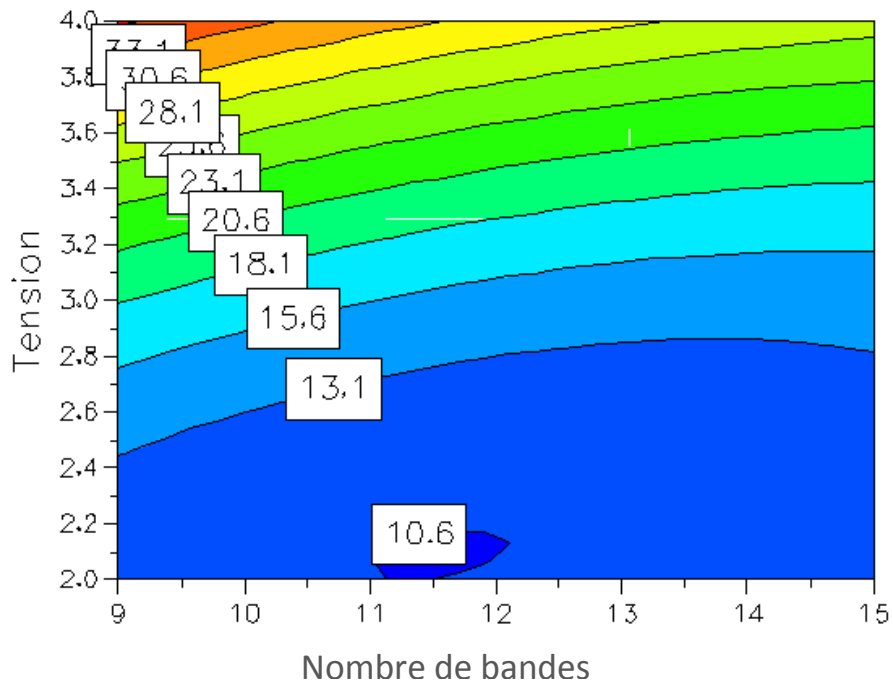
D'après les résultats obtenus par MODDE 5.0, on constate que les effets de la tension, du débit et du nombre de fils sont significatifs pour le taux d'ozone. Par contre, seuls les facteurs tension et nombre de fils influent sur la puissance consommée. Les deux histogrammes montrent que la puissance consommée est proportionnelle à la tension et du nombre de fils.

Le taux d'ozone vari avec les trois facteurs à savoir la tension, le débit d'oxygène ainsi que le nombre de fils. Les tracés de contours sont représentés à la figure 4.20. Ces courbes illustrent que le taux d'ozone est très influencé par les facteurs tension et nombre de fils.

On peut constater aussi que la diminution du nombre de fils est accompagnée par une élévation de taux d'ozone, contrairement à la puissance qui subit une augmentation.



(a)



(b)

(a) Taux d'ozone et (b) Puissance consommée.

Figure 4.20 : Contours iso-réponses

Le logiciel utilisé nous offre la possibilité de trouver la solution optimale en maximisant le taux d'ozone et en minimisant la puissance consommée simultanément.

La figure 4.21 nous montre les facteurs à utiliser pour avoir un bon rendement énergétique (puissance minimale et une production d'ozone maximale), autrement dit, pour une tension d'environ 3,35kV et un débit de 2 l/min avec 9 fils de longueur de 15 cm de cuivre, nous obtenons une efficacité énergétique de 72,62 g/kWh.

	Response	Criteria	Weight	Min	Target	Max
1	P	Minimize	1		9,40377	11,9381
2	Taux d'ozone	Maximize	1	2,31117	2,53898	
3	Efficacité	Exclude				

	1	2	3	4	5	6	7	8
	Tension	Débit	Nombre de fils	P	Taux d'ozone	Efficacité	iter	log(D)
1	2,1617	2	9,0004	11,7887	0,6844	54,3303	2916	1,5261
2	3,9185	2	9,0021	34,1498	2,33	70,3895	5000	1,6821
3	2,1634	2	9,0063	11,7892	0,6844	54,3262	3818	1,5261
4	3,3528	2	9	23,2528	1,7191	72,6247	5000	1,3306
5	2,1502	2	9	11,7544	0,6762	54,0066	3551	1,5297
6	2,1625	2	9	11,7918	0,6851	54,3592	3818	1,5258
7	2,1617	2	9,0004	11,7887	0,6844	54,3303	2916	1,5261
8	3,92	2	9	34,1885	2,3324	70,3905	4695	1,6833

Figure 4.21 : Résultats du programme d'optimisation de MODDE 5.0.

4.5 Décoloration de l'eau par le générateur d'ozone optimal

Afin de tester l'efficacité du générateur à dimension optimale, une partie expérimentale regroupant un ensemble d'expériences de décoloration d'eau est mise en place, en effectuant des mesures de taux de décoloration, le pH, la demande d'oxygène (DO_2) de l'eau avant et après traitement.

La demande d'oxygène dans l'eau DO_2 représente quant à elle quasiment tout ce qui est susceptible de consommer de l'oxygène dans l'eau. L'expérience a été faite en utilisant 5 litres d'eau de robinet circulant dans un circuit fermé.

La Figure 4.22 représente une photographie du dispositif de décoloration utilisé.

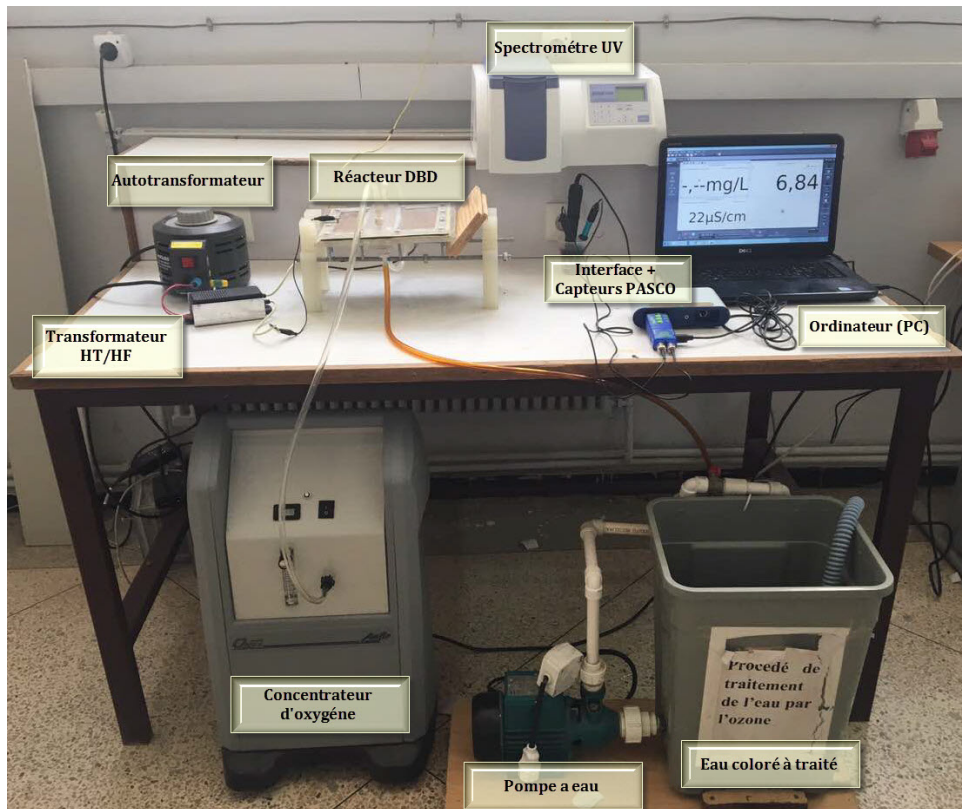


Figure 4.22 : Photographie du dispositif expérimental utilisé pour la décoloration.

L'analyse de la décoloration est faite avec l'eau contaminée par un colorant alimentaire. Nous avons essayé le procédé d'ozonation sur 5 l d'un mélange d'eau de robinet avec un colorant alimentaire rouge. Nous mettons le procédé en marche et prélevons un échantillon de l'eau avant le traitement ensuite, après des intervalles de 30 s de traitement pour une période totale de 5 minutes.

Les résultats obtenus sont présentés dans les figures 4.23 et 4.24.

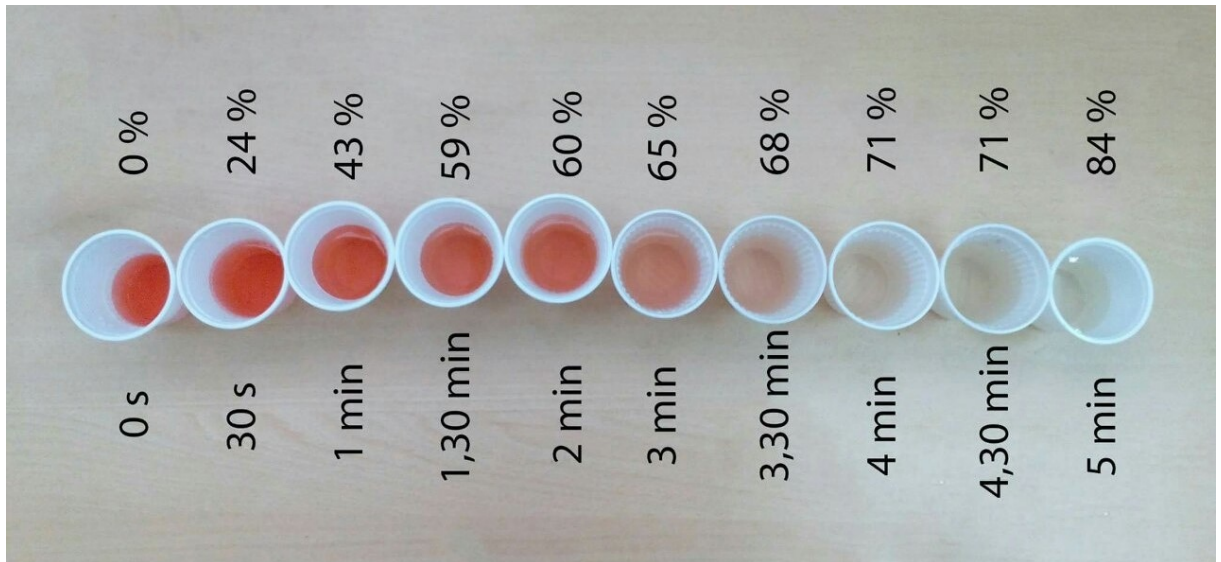


Figure 4.23 : Décoloration d'une eau infectée par un colorant alimentaire.

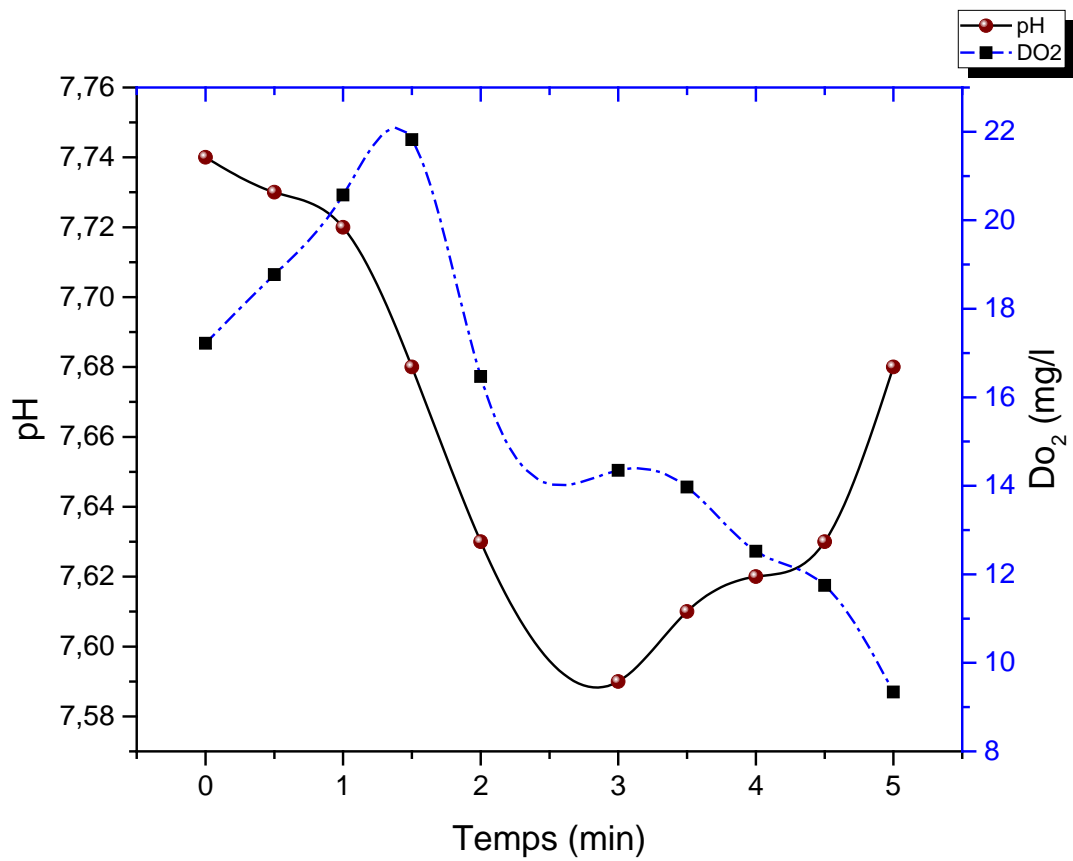


Figure 4.24 : Variation du pH et de la demande d'oxygène dans l'eau (DO2) en fonction du temps.

D'après les figures précédentes on constate que, la décoloration est bien visible de l'eau après la troisième minute, ainsi qu'une disparition constatable de la couleur après 5 mn de traitement. Le pH diminue fortement après 3min de traitement, or la demande d'oxygène dans l'eau augmente avant qu'elle diminue après 1min 30s de traitement.

4.6 Conclusion

D'après les expériences effectuées, il est recommandé d'utiliser le générateur DBDD à 9 fils afin d'avoir des résultats satisfaisants en termes de taux d'ozone et une réduction de la puissance consommée.

L'application utilisée dans ce chapitre montre que l'ozone est une solution efficace pour le traitement d'eau infectée. Ces résultats désignent que le degré élevé de contamination de l'eau (couleur) nécessite un temps de contact adéquat qui doit être respecté afin d'avoir un traitement plus satisfaisant.



CONCLUSION GENERALE

Conclusion Générale

La thématique du traitement d'eau par le réacteur à plasma s'inscrit à la frontière de deux disciplines différentes : la physique des plasmas et l'électrostatique et ses applications. Dans le cadre de cette thèse, le travail est plutôt sur la caractérisation d'un réacteur à plasma pour produire de l'ozone que sur l'analyse de l'eau. Grâce aux travaux précédents réalisés au niveau de laboratoire, on a contribué au développement d'un réacteur à plasma. Le travail de cette thèse consiste en plusieurs aspects : réalisation de plusieurs générateurs d'ozone sur plusieurs étapes pour aboutir à un modèle beaucoup plus efficace, une analyse comparative entre deux modèles de réacteurs, utilisation de plusieurs instruments, caractérisation des cellules de traitements par une mesure électrique.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons étudié la mise en place de plusieurs types de générateurs d'ozone selon leurs modes de décharge (surfactive, volumique), dans le but d'améliorer l'efficacité et le rendement de génération d'ozone.

En premier lieu, un nouveau générateur d'ozone à DBD surfactive plane, en forme de serpentin qui a une particularité de faire passer l'oxygène à travers une DBD surfactive en forme de canal. Ce dernier a été soumis sous différents tests d'évaluation, tous en comparaison avec un générateur volumique (cylindrique). Ces deux types de DBD différents dans la géométrie des électrodes ont été comparés tout au long de cette étude, d'un point de vue électrique et en termes de génération d'ozone. Les principaux résultats déduits de cette étude se résument dans les points suivants :

- ✓ L'étude électrique a montré qu'on obtient deux décharges quasi-similaires à partir des deux configurations étudiées. Cependant, la configuration surfactive présente une densité plus élevée des micro-décharges en comparaison avec la configuration volumique qui est caractérisée par une amplitude de courant plus grande. En plus, l'augmentation de la tension appliquée a pour conséquence d'augmenter la puissance consommée par les deux modèles des générateurs, surtout pour la configuration volumique.

- ✓ En termes de production d’ozone et dans les mêmes conditions expérimentales, il a été constaté que pour les deux modèles l’élévation de la tension a pour effet d’accroître la quantité d’ozone, mais d’un autre côté cette augmentation provoque la diminution de l’efficacité énergétique, ainsi que le rendement.

La méthodologie des plans d'expériences est un outil puissant pour l'identification du point optimal d'un processus de traitement de l'eau par l'ozone. Grâce à la sélection appropriée des conditions de fonctionnement, le procédé peut être rendu moins sensible aux variations, en évitant ainsi les éventualités coûteuses de mauvais traitement. Comme l'efficacité de la génération d'ozone est liée aux dimensions géométriques du générateur, Une procédure expérimentale basée sur les techniques de surface de réponse a été proposée pour la détermination des dimensions optimales du générateur. Les résultats obtenus ont montré que l'intervalle de la décharge DBD doit être aussi petit que possible, tandis que la longueur des électrodes doit être optimisée pour un rendement optimal.

Après avoir optimisé le procédé de génération d’ozone, nous avons travaillé dans la dernière partie de cette thèse sur le modèle surfacique afin d’optimiser les actionneurs plasma à décharge à barrière diélectrique surfacique, nous avons mis aux point deux actionneurs l’un qu’on a appelé de configuration à DBDS simple et un autre de configuration à DBD décalée. Les résultats montrent que l’utilisation de générateur à DBD décalée avec un nombre bien précis de fils tous dépend les paramètres et les configurations voulues à atteindre, un bon rendement en termes de taux d’ozone et une réduction de la puissance consommée.

La différence dans les deux modèles (surfacique et volumique) s'explique principalement par le fait que l'oxygène reste dans le chemin serpentin pour une durée plus longue, entraînant une augmentation significative du taux d'ozone pour le même volume de gaz.

L'avantage spécifique de ce générateur d'ozone à forme serpentin par rapport à la technologie industrielle existante est que plusieurs unités peuvent être dans un espace réduit tel qu'un conteneur en forme de cube. Par conséquent, un taux d'ozone plus élevé devrait être obtenu lors de l'assemblage de plusieurs cellules parallèles de ce type.

Perspectives

Dans le cadre de ces travaux, nous avons mis au point plusieurs générateurs d'ozone dont les propriétés des matériaux et les constituants peuvent influencer ses performances. Il serait alors intéressant d'étudier l'influence de ces matériaux sur le rendement énergétique.

L'étude électrique effectuée sur les réacteurs d'ozone peut être améliorée en introduisant des alimentations beaucoup plus stables où il serait intéressant d'étudier l'influence des formes d'onde pour les tensions d'alimentation.

Concernant le traitement des eaux par le procédé d'ozonation, et pour atteindre les normes en vigueur, nous envisageons de réaliser un SKID comprenant plusieurs générateurs d'ozone pour augmenter la quantité d'ozone produite.



RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Référence Bibliographique

- [1] : **MASSINES F.**
« PLASMAS FROIDS, PUBLICATION DE L'UNIVERSITE DE ST ETIENNE, 2009 ».
- [2] : **DELCROIX J.L., BERS A.**
« PHYSIQUE DES PLASMAS, INTER EDITIONS / CNRS, EDITIONS PARIS, 1994. »
- [3] : **FAUCHAIS P.**
« GAZ IONISES ET PLASMAS, TECHNIQUE DE L'INGENIEUR, AF3560, PAGE 1- 27. »
- [4] : **HELD B.**
« PHYSIQUE DES PLASMAS FROIDS, COLLECTION PHYSIQUE FONDAMENTALE ET APPLIQUEE MASSON, PARIS, 1994.
- [5] : **RAISER Y. P.**
« GAS DISCHARGE PHYSICS", SPRINGER VERLAG, 1991.
- [6] : **FLITTI A.**
« MODELISATION NUMERIQUE 1.5D ET 2D DE LA PROPAGATION D'UNE DECHARGE FILAMENTAIRE HAUTE PRESSION", THESE DE DOCTORAT EN SCIENCES DE FACULTE DE GENIE ELECTRIQUE, DEPARTEMENT D'ELECTROTECHNIQUE, UNIVERSITE DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE MOHAMMED BOUDIAF ORAN, JANVIER 2008. »
- [7] : **AISSAOUI A.**
« MODELISATION DES DECHARGES LUMINESCENTES RADIO FREQUENCE", THESE DE MAGISTER DE LA FACULTE DE GENIE ELECTRIQUE, DEPARTEMENT D'ELECTROTECHNIQUE, UNIVERSITE DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE MOHAMMED BOUDIAF ORAN, JUIN 2000. »
- [8] : **SALANNE J. P.**
« CONTROLE DU POINT DE FONCTIONNEMENT DES DECHARGES PAR L'INTERMEDIAIRE DE LEUR ALIMENTATION", THESE DE DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE TOULOUSE, 18 NOVEMBRE 2005. »
- [9] : **LEROY G., GARY C., HUTZLER B., LALOT JET DUBANTON C.,**
« LES PROPRIETES DIELECTRIQUES DE L'AIR ET LES TRES HAUTES TENSIONS ", EDITIONS EYROLLES, 1984. »
- [10] : **BOURAK Y.,**
« DETERMINATION DES CONDITIONS D'IONISATION CARACTERISANT LE SEUIL DE CLAQUAGE DE L'AIR PAR LA LOGIQUE FLOUE", THESE DE MAGISTER EN ELECTROTECHNIQUE, FACULTE DES SCIENCES DE L'INGENIEUR, DEPARTEMENT D'ELECTROTECHNIQUE, UNIVERSITE DE BATNA, DECEMBRE 2005. »
- [11] : **ARIANER J.**
« LES PROCESSUS D'IONISATION", COURS, UNIVERSITE PARIS SUD, 2004. »

- [12] : **SEGUR P.,**
« GAZ ISOLANTS "TECHNIQUE DE L'INGENIEUR, D 2530, PAGE 1-10, D2531, PAGE 1-23. »
- [13] : **MEEK J. M., CRAGGS J. D.,**
"ELECTRICAL BREAKDOWN OF GASES", WILEY, INTERSCIENCE PUBLICATION, 1977."
- [14] : **DHIU B., GUTHMANN C., LEDERER D. ET ROULET B.,**
« ELEMENTS DE PHYSIQUE STATISTIQUE", EDITIONS HERMANN, PARIS 1989. »
- [15] : **DUCASSE O.,**
« MODELISATION ELECTRODYNAMIQUE D'UN REACTEUR PLASMA HORS EQUILIBRE DE DEPOLLUTION DES GAZ", THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE PAUL SABATIER, 2006. »
- [16] : **LARBRE J.,**
« DECONTAMINATION DE SURFACE PAR UN PROCEDURE PLASMA FROID A PRESSION ATMOSPHERIQUE", THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE PARIS SUD, 26 JUIN 2006. »
- [17] : **DESTREZ P.,**
« LA STERILISATION PAR PLASMAS FROIDS", REVUE INTERMEDICA, ABSYS SA, 21-24, PAGE 6-7, MAI 2002. »
- [18] : **DOUMENE S.,**
« DESINFECTION ET STERILISATION DES INSTRUMENTS MEDICAUX", CRCI/ ARIST, CHAMPAGNE ARDENNE, PAGE 1-2, 2004. »
- [19] : **MOISAN M., BARBEAU J., CREVIER M. C., LEDUC A., PELLETIER J., PHILIP N. ET SAOUDI B.,**
"ROLE ET EFFET DES PHOTONS UV DANS L'INACTIVATION DES SPORES PAR UN PLASMA A PRESSION REDUITE", LA LETTRE TRAITEMENT DE SURFACE PAR PLASMAS IONS N° 9, PAGE 12- 26, 2002.
- [20] : **ODIC E., GOLDMANN M., POINTU A. M. ET GANCIU M.,**
"STERILISATION PAR DECHARGE A LA PRESSION ATMOSPHERIQUE", LA LETTRE TRAITEMENT DE SURFACE PAR PLASMAS IONS N°9, PAGE 10-26, 2002.
- [21] : **RICARD A., SIXOU M.,**
"APPORT DES TECHNOLOGIES PLASMA DANS LA STERILISATION MEDICALE", FACULTE DE CHIRURGIE DENTAIRE, LA REVUE TRIMESTRIELLE DU RESEAU ECRIN N°55, PAGE 20-21, 2002.
- [22] : **TRAVERS S. C.,**
"NOUVELLES TECHNIQUES DE STERILISATION", LA LETTRE TRAITEMENT DE SURFACE PAR PLASMAS IONS N°9, PAGE 8-26, SEPTEMBRE 2002.
- [23] : **CORMIER J. M.,**
"TRAITEMENT D'EFFLUENTS GAZEUX PAR PLASMAS NON THERMIQUES", A LA POINTE DE L'INSTRUMENTATION ET DE LA TECHNOLOGIE, PAGE 1-6, 2002.

- [24] : **CORMIER J. M.,**
« DEPOLLUTION D'EFFLUENTS GAZEUX PAR PLASMA », [HTTP://WWW.LPGP.U-PSUD.FR/OPERATIONS/EFFLUENT/INDEX.HTM](http://www.lpgp.u-psud.fr/operations/effluent/index.htm) LPGP, PAGE 1-6, 2002. »
- [25] : **MASUDA S.,**
"DESTRUCTION OF GASEOUS POLLUTANTS AND AIR TOXICS BY SURFACE DISCHARGE INDUCED PLASMA CHEMICAL PROCESS (SPCP) AND PULSE CORONA INDUCED PLASMA CHEMICAL PROCESS (PPCP) ", NATO ASI SERIES, VOL. G34-B, PAGE 199-209,1993.
- [26] : **MASSINES F.,**
"GAS DISCHARGES AND THEIR APPLICATIONS (GD 92) ", SWANSEA, W. T. WILLIAMS ED., VOL II, PAGE 730-733, SEPTEMBRE 92.
- [27] : **MASSINES F.,**
"GAS DISCHARGES AND THEIR APPLICATIONS (GD 92) ", SWANSEA, W. T. WILLIAMS ED., VOL II, PAGE 318, SEPTEMBRE 1992.
- [28] : **MASSINES F.,**
"RESEAU PLASMAS FROIDS", MAI 2002.
- [29] : **MASSINES F.,**
"TRAITEMENT DE MATERIAUX POLYMERES PAR PLASMA DE POST DECHARGE, APPLICATION AU COLLAGE", LA LETTRE TRAITEMENT DE SURFACE PAR PLASMAS IONS N°10, PAGE 15-26, OCTOBRE 2003.
- [30] : **MASSINES F.**
« PROCEDES DE TRAITEMENT DE SURFACE PAR DECHARGE HORS EQUILIBRE A LA PRESSION ATMOSPHERIQUE", LA LETTRE TRAITEMENT DE SURFACE PAR PLASMAS IONS N°10, PAGE 26-36, OCTOBRE 2003. »
- [31] : **POSPISIL M., VIDEN I., SIMEK M. ET PEKAREK S.**
« APPLICATION OF PLASMA TECHNIQUE FOR EXHAUST AFTER TREATMENT", 9 TH INTERNATIONAL SYMPOSIUM, TRANSPORT AND AIR POLLUTION, AVIGNON, PAGE 523-528, 2000.»
- [32] : **SINDZINGRE T.**
« TRAITEMENT DE SURFACE PAR PLASMA ATMOSPHERIQUE VERS DE NOUVELLES POSSIBILITES EN MILIEU INDUSTRIEL PRESSION ATMOSPHERIQUE ", LA LETTRE TRAITEMENT DE SURFACE PAR PLASMAS IONS N° 10, PAGE 24-36, OCTOBRE 2003. »
- [33] : **BRAN A.,**
« OPTIMISATION OF OZONE PRODUCTION VIA CORONA DISCHARGE", CHEE 4006, INDIVIDUAL INQUIRING, PAGE 1-56, 2001.
- [34] : **MAINO A.,**
« LA NOUVELLE GENERATION DE GENERATEURS D'OZONE ", INO3 MAX. »
- [35] : **GENERATEURS D'OZONE**
« SERIE CMG, CMGL, CMGK, INNOVATEC", GERATETECHNIK, GMBH, PAGE 1-12. »

- [36] : **MEEK J. M., CRAGGS J. D.**
"GAS DISCHARGES PHYSICS ", EDITED BY S FLUGGE, SPRINGER VERLAG BERLIN, 1991."
- [37] : **LOEB L.B.,**
« ELECTRICAL BREAKDOWN OF GASES WITH STEADY OR DIRECT CURRENT IMPULSE POTENTIAL", IN ENCYCLOPEDIA OF PHYSICS, VOLUME XXII: GAS DISCHARGES II, EDITED BY S FLUGGE, SPRINGER VERLAG BERLIN, 1991.
- [38] : **RAETHER H.,**
« ZUM AUFBAU VON GAZENTLADUNGEN", REV. MOD. PHYS., 28 (47-48), PAGE 729-752, 1940. »
- [39] : **TOWNSEND J. S.,**
"ELECTRICITY IN GASES", CLARENDON PRESS, OXFORD, 1915."
- [40] : **ROGOWSKI W.,**
"STOBSPANNUNG UND DURCHSHLAG BEI GAZEN", ARCH ELEKTROTECH, 20(1), PAGE 99-106, 1928"
- [41] : **BESSIERES D.,**
« MODELISATION DES DECHARGES ELECTRIQUES FILAMENTAIRES", THESE DE DOCTORAT EN ELECTROTECHNIQUE, UNIVERSITE DE PAU ET DES PAYS DE L'ADOUR, DECEMBRE 2006. »
- [42] : **C. S. BOURNET,**
"DESIGN ET REALISATION D'UN REACTEUR PLASMA A PRESSION ATMOSPHERIQUE POUR DES TRAITEMENTS DE SURFACE DANS LE DOMAINE DES BIOMATERIAUX", MEMOIRE DE MAITRE ÈS SCIENCE DE L'UNIVERSITE LAVAL DE QUEBEC, 2007.
- [43] : **C. NOËL,**
"PLASMA MICRO-ONDES D'ARGON A LA PRESSION ATMOSPHERIQUE : DIAGNOSTICS ET APPLICATIONS AU NETTOYAGE DES SURFACES", THESE DE DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE, 2009.
- [44] : **A. SUBLET,**
"CARACTERISATION DE DECHARGES A BARRIERES DIELECTRIQUES ATMOSPHERIQUES ET SUB-ATMOSPHERIQUES ET APPLICATION A LA DEPOSITION DE COUCHES D'OXYDE DE SILICIUM", THESE DE DOCTORAT ÈS SCIENCES DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE FEDERALE DE LAUSANNE, 2007.
- [45] : **M. A. DJIBRILLAH,**
"ÉLÉMENTS DE CONCEPTION D'UN GENERATEUR ELECTRIQUE POUR L'ALIMENTATION D'UN DISPOSITIF A DECHARGE A BARRIERE DIELECTRIQUE", THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE TOULOUSE, 2011.
- [46] : **Y. LAGMICH,**
"DIAGNOSTIC ET MODELISATION D'UNE DECHARGE A BARRIERE DIELECTRIQUE POUR LE CONTROLE D'ÉCOULEMENT", THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE TOULOUSE III-PAUL SABATIER, 2007.

- [47] : **A. ABAHAZEM,**
"ÉTUDES EXPERIMENTALES DES DECHARGES COURONNES POUR LA DE POLLUTION DES GAZ", THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE TOULOUSE III-PAUL SABATIER, 2009.
- [48] : **G. JABBOUR,**
"ÉTUDE DES EXCIMERES DE KRYPTON ET DE XENON PAR TALIF. APPLICATIONS AUX DECHARGES A BARRIERE DIELECTRIQUE DANS LE KRYPTON", THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE TOULOUSE III-PAUL SABATIER, 2009.
- [49] : **A. VINCENT,**
"CONCEPTION ET SIMULATION D'UN REACTEUR FIL-CYLINDRE A DECHARGE COURONNE AVEC BARRIERE DIELECTRIQUE ADAPTE AU TRAITEMENT DES OXYDES D'AZOTE DANS DES EFFLUENTS MARQUES PAR ISOTOPE", THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE PARIS VI, PIERRE ET MARIE CURIE, 2002.
- [50] : **N. NAUDE,**
"ÉTUDE ELECTRIQUE DE LA PHYSIQUE D'UNE DECHARGE DE TOWNSEND A LA PRESSION ATMOSPHERIQUE ET DE SON INTERACTION AVEC UN GENERATEUR : MODELE ET EXPERIENCE", THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE TOULOUSE III-PAUL SABATIER, 2005.
- [51] : **C. LARRICQ-FOURCADE DIT LERIDE,**
"ÉTUDE DE LA PULVERISATION ASSISTEE EN AIR D'UNE NAPPE LIQUIDE ET INFLUENCE D'UN VENT IONIQUE SUR LES INSTABILITES HYDRODYNAMIQUES", THESE DE DOCTORAT DE L'ÉCOLE NATIONALE SUPERIEURE DE L'AERONAUTIQUE ET DE L'ESPACE, 2006.
- [52] : **LAROSSI, M., ALEXEFF, I., RICHARDSON, J. P., & DYER, F. F.**
« THE RESISTIVE BARRIER DISCHARGE. » PLASMA SCIENCE, IEEE TRANSACTIONS ON, 30(1), 158-159(2002).
- [53] : **CEDRIC LARRICQ-FOURCADE DIT LERIDE**
« ÉTUDE DE LA PULVERISATION ASSISTEE EN AIR D'UNE NAPPE LIQUIDE ET INFLUENCE D'UN VENT IONIQUE SUR LES INSTABILITES HYDRODYNAMIQUES » THESE DE DOCTORAT, L'ÉCOLE NATIONALE SUPERIEURE DE L'AERONAUTIQUE ET DE L'ESPACE, DECEMBRE 2006.
- [54] : **J. LARBRE,**
"DECONTAMINATION DE SURFACE PAR UN PROCEDE PLASMA A PRESSION ATMOSPHERIQUE", THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE PARIS SUD XI, 2006.
- [55] : **WANG, C., AND HE, X.**
"EFFECT OF ATMOSPHERIC PRESSURE DIELECTRIC BARRIER DISCHARGE AIR PLASMA ON ELECTRODE SURFACE." APPLIED SURFACE SCIENCE, 253(2), 926-929(2006)."
- [56] : **VALENTIN I. GIBALOV & GERHARD J. PIETSCH**
"ON THE PERFORMANCE OF OZONE GENERATORS WORKING WITH DIELECTRIC BARRIER DISCHARGES" JOURNAL: OZONE: SCIENCE & ENGINEERING, VOLUME 28, ISSUE 2, MAY 2006, PAGES 119-124

- [57] : **N. MERBAHI,**
« LUMINESCENCE DE L' ARGON ET DU XENON DANS LES DECHARGES A BARRIERES DIELECTRIQUES MONO-FILAMENTAORES. ANALYSES ELECTRIQUE ET CINETIQUE", THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE PAUL SABATIER DE TOULOUSE, 2004. »
- [58] : **R. DIEZ MEDINA,**
« ALIMENTATION DE PUISSANCE D'UNE LAMPE EXIPLEXE A DECHARGE A BARRIERE DIELECTRIQUE, EN VUE DU CONTROLE DU RAYONNEMENT", THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE TOULOUSE, 2008. »
- [59] : **S.Nemmich,**
« Modélisation expérimentale et optimisation du procédé de génération d'ozone par décharge à barrière diélectrique pour traitement de l'eau», thèse de doctorat, université de Sidi Bel Abbes 2015.
- [60] : **CLAIRE TENDERO**
« TORCHE PLASMA MICRO-ONDE A LA PRESSION ATMOSPHERIQUE : APPLICATION AU TRAITEMENT DE SURFACES METALLIQUES » THESE DE DOCTORAT, UNIVERSITE DE LIMOGES, OCTOBRE 2005. »
- [61] : **U. KOGELSCHATZ**
« DIELECTRIC-BARRIER DISCHARGES: THEIR HISTORY, DISCHARGE PHYSICS, AND INDUSTRIAL APPLICATIONS » PLASMA CHEMISTRY AND PLASMA PROCESSING, VOL. 23, NO. 1, MARCH 2003.
- [62] : **LENNTECH,**
"WATER TREATMENT SOLUTIONS", [HTTP://WWW.LENNTECH.FR](http://www.lenntech.fr)"
- [63] : **OZONE SOLUTIONS, INC.,**
« <http://ozonesupplies.com> »/
- [64] : **LA CHIMIE DE L'OZONE STRATOSPHERIQUE,**
http://www.atmosphere.mpg.de/enid/2_ozone/-zone_stratosph_risque_28r.html
- [65] : **OZONEX,**
[HTTP://WWW.OZONEX.FR](http://www.ozonex.fr).
- [66] : **N. Hammadi,**
« Contribution à l'étude de la dépollution de l'eau et la désinfection de l'air par décharge à barrière diélectrique », thèse de doctorat, université de Sidi Bel Abbes **2013.**
- [67] : **A. YOUSEF,**
"OZONE INACTIVATION OF MICROORGANISMS: KINETICS AND MECHANISMS", OZONE-V CONFERENCE, CALIFORNIA, 2007."
- [68] : **MEMOTEC N°29,**
L'UTILISATION DE L'OZONE POUR LE TRAITEMENT DE L'EAU DESTINE A LA CONSOMMATION HUMAINE", [HTTP://WWW.GLS.FR](http://www.gls.fr)

- [69] : **S.Boumendil et D.Tedjini**,
« Etude et réalisation d'un actionneur plasma surfacique doubles faces pour la génération d'ozone », mémoire de master, université de Sidi Bel Abbes 2017.
- [70] : **PROPRIETES DE L'OZONE**,
HTTP://WWW.CA.AIRLIQUIDE.COM/FR/
- [71] : **S. CARRUTHENS**,
"INTRODUCTION TO OZONE GENERATION".
- [72]: **O3ZOMAX**,
HTTP://WWW.EPA.GOV
- [73] : **OZONE**,
HTTP://WWW.AIRNOW.GOV
- [74] : **APPA NORD – PAS DE CALAIS -**,
HTTP://WWW.APPANPC.FR
- [75] : **S. WAYNE**,
"PRINCIPLES OF OZONE GENERATION", WATERTEC ENGINEERING PTY LTD.
- [76] : **OZONE 101**,
"INTRODUCTION TO OZONE", HTTP://WWW.DELOZONE.COM
- [77] : **OZY-3**,
HTTP://WWW.KAL-TECH.CO.UK/OZONE-GENERATOR.HTML
- [78] : **ENVIRONMENTAL TECHNOLOGY INITIATIVE ETI**,
"OZONE DISINFECTION", 1998, HTTP://WWW.NSFC.WVU.EDU
- [79] : **EPA GUIDANCE MANUAL**
ALTERNATIVE DISINFECTANTS AND OXIDANTS -, "OZONE", 1999.
- [80] : **LES APPLICATIONS – LES SPECIALISTES DE L'EAU ET DE L'OZONE -**,
HTTP://F:\APPAREIL-OZONE\OZONE_CH
- [81] : <http://www.gralon.net/articles/materiel-et-consommables/materiels-industriels/article-la-bakelite---une-invention-revolutionnaire-3407.htm>
- [82] : **D Le Breton - 2011 –**
« ANTHROPOLOGIE DU CORPS ET MODERNITE -Presses universitaires de France »
- [83] : **A.JADAS-HECART**
« MODELISATION DE LA DEMANDE EN CHLORE D'UNE EAU TRAITEE THE CHLORINE DEMAND OF A TREATED WATER » WATER RESEARCH VOLUME 26, ISSUE 8, AUGUST 1992, PAGES 1073-1084.

Résumé

« Contribution à l'étude de la production de l'ozone par décharge à barrière diélectrique à électrodes planes. »

Les décharges à barrière diélectrique ont de nombreuses applications, dont les plus courantes sont l'éclairage et certains écrans de télévision. Mais, nous le retrouvons dans de nombreux autres domaines tels que la stérilisation, la dépollution, la gravure, la découpe et la génération d'ozone. Les générateurs d'ozone utilisés dans l'industrie pour le traitement de l'eau sont actuellement tous basés sur la décharge à barrière diélectrique (DBDV) volumique. Peu d'études ont été dédiées à la génération d'ozone par DBDS surfacique. L'objectif de ce travail est de développer un nouveau modèle « surfacique », modéliser et optimiser le rendement en termes de taux de production d'ozone et efficacité énergétique. Avec une évaluation comparative par rapport un générateur d'ozone à DBD volumique.

Mots-clés : décharge à barrière diélectrique, générateur d'ozone, décharge surfacique, décharge volumique.

Abstract

“Contribution to the study of the production of ozone by dielectric barrier discharge with planar electrodes.”

Dielectric barrier discharges have many applications, the most common being lighting and some television screens. However, we find it in many other areas such as sterilization, decontamination, engraving, and cutting and ozone generation. Most of the ozone generators used in industry for water treatment use a volumetric dielectric barrier discharge (DBDV). A few studies dedicated to the generation of ozone by surface DBDS. The objective of this work is to develop a new "surface" model, to model and optimize the yield in terms of ozone production rate and energy efficiency. With a comparative evaluation to the volumetric dielectric barrier, discharge (DBDV).

Keywords: dielectric barrier discharge, ozone generator, surface discharge, volumetric discharge.

ملخص

“المساهمة في دراسة إنتاج الأوزون بواسطة تفريغ الحاجز العازل مع أقطب مستوية”

إن التفريغ الكهربائي مع حاجز عازل له عدة تطبيقات كثيرة، نذكر منها الإضاءة وبعض شاشات التلفزيون، والتعقيم والتطهير والحفر والقطع وتوليد الأوزون. معظم الأجهزة المستعملة في توليد غاز الأوزون والمنتشرة في المجال الصناعي تلك التي تتبنى خاصية التفريغ الحجمي. لذلك قمنا في هذه الورقة بدراسة وتطوير جهاز توليد غاز الأوزون من خلال توظيف خاصية التفريغ السطحي. حيث كان الهدف الرئيسي الذي ركزنا عليه في هذه المذكرة هو الوصول إلى نموذج تجريبي أعلى كفاءة من النوع الحجمي. أين تمحور جل العمل حول تقييم النجاعة والكفاءة الطاقوية والإنتاجية لهذا النموذج وتحسين الأداء من حيث المرود، مقارنة بالنوع الكثير الانتشار ذو التفريغ الحجمي.

كلمات البحث: التفريغ الكهربائي مع حاجز عازل، مولد الأوزون، وتصميم التجارب ومعالجة المياه