

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



UNIVERSITE DJILALI LIABES DE SIDI-BEL-ABBES  
FACULTE DE GENIE ELECTRIQUE  
DEPARTEMENT D'ELECTROTECHNIQUE



Thèse présentée par :

**DRAOU Abdelkader**

Pour l'obtention du diplôme de :

**DOCTORAT en sciences**

Spécialité : Electrotechnique

Option : Haute tension

Intitulé de la thèse :

Réalisation d'un procédé mobile pour traitement d'eau par  
ozone généré par DBD

Devant la commission d'examen constituée de :

Pr. Bendaoud Abdelber	Professeur	(U.D.L Sidi Bel-Abbes)	Président
Pr. Benmimoun Youcef	Professeur	(Univ. mascara)	Encadreur
Pr. Tilmatine Amar	Professeur	(U.D.L Sidi Bel-Abbes)	Co-encadreur
Pr. Hadi Hocine	Professeur	USTOran	Examineur
Dr. Boukhoulida Mohamed Fodil	MCA	(U.D.L Sidi Bel-Abbes)	Examineur
Dr. Hammadi Nacéra	MCA	USTOran	Examineur
Dr. Nassour Kamel	MCA	(U.D.L Sidi Bel-Abbes)	Invité

*Soutenu en :* 2019

# Remerciements

# Remerciements

Cette thèse de doctorat a été préparée au sein du laboratoire de recherche APELEC de l'université de Sidi-Bel-Abbès. Malgré l'existence d'un seul nom sur la couverture de thèse, il est important de noter que ce travail est le résultat d'un effort collectif.

Je tiens à remercier l'ensemble du personnel du laboratoire en question, qui ont mis à ma disposition tout le matériel nécessaire pour l'aboutissement à ce travail modeste.

Et en particulier mon remerciement sincère aux professeurs Youcef BENMIMOUN et Amar TILMATINE, qui ont su encadrer et diriger ce travail avec beaucoup de compétence et de sympathie.

Je tiens à remercier également, tous les chercheurs et techniciens du laboratoire, spécialement Said NEMMICH, Kamel NASSOUR et Djillali MOKADDAM pour leur soutien, leur disponibilité et leur sympathie.

# Dédicaces

# Dédicaces

Je dois remercier ce qui est cher à moi à savoir mon regretté père et ma mère pour tous leurs sacrifices pour mon éducation.

Ainsi que ma femme et mes enfants et tous mes frères et sœurs de leurs apports moraux et pour leur appui inconditionnel qu'ils m'ont apporté pour ma réussite.

# Sommaire

# Sommaire

Introduction générale.....	1
<b>Chapitre 1. Décharge à barrière diélectrique et ses applications</b>	
I.1. Introduction .....	3
I.2. Décharges électriques dans les gaz .....0.....	4
I.2.1. Définition.....	4
I.2.2. Régimes de décharge dans un gaz.....	4
I.2.2.1. Régime d'ionisation .....	5
I.2.2.2. Régime de saturation.....	5
I.2.2.3. Régime de Townsend .....	5
I.2.2.4. Décharge luminescente .....	6
I.2.2.5. Décharge d'arc électrique .....	6
I.3. Critère de claquage, auto-entretien.....	6
I.3.1. Mécanisme de claquage type Townsend.....	6
I.3.2. Mécanisme de claquage type streamer et décharge Filamentaire.....	7
I.3.2.1. Avalanche primaire .....	9
I.3.2.2. Transition avalanche – streamer et propagation .....	10
I.3.2.3. Etablissement d'un canal de décharge.....	10
I.3.2.4 Influence de la pression .....	10
I.3.2.5 Courbe de Paschen .....	11
I.4. Notions de base sur les plasmas et leurs applications.....	12
I.4.1. Milieu ionisé.....	12
I.4.2. Plasma.....	12
I.4.3. Procédé de transformation d'un gaz en plasma.....	13
I.4.3.1. Elévation de la température .....	13
I.4.3.2. Elévation du Champ électrique.....	13
I.4.4. Paramètres physiques d'un plasma .....	13
I.4.5. Caractéristiques d'un plasma .....	14
I.5. Décharge couronne.....	15

I.6. Décharge à barrière diélectrique D.B.D.....	15
I.6.1 Principe de fonctionnement des réacteurs DBD.....	16
I.6.2. Différence entre Décharge à barrière diélectrique et décharge couronne.....	19
I.7. Type de décharge à barrière diélectrique .....	20
I.7.1. Décharge à barrière diélectrique surfacique.....	20
I.7.2 Décharges à barrière diélectrique volumique.....	20
I.8. Application des décharges à barrière diélectrique.....	22
I.8.1 Traitement de surface.....	23
I.8.2. Eclairage et écran à plasma.....	24
I.8.2.1. Excilampes.....	24
I.8.2.2. Excimères .....	25
I.8.2.3. Exciplexe.....	25
I.8.2.4. Géométrie des Excilampes.....	25
I.9. Conclusion.....	26

## **Chapitre 2. L’ozone et ses applications**

2.1. Généralités.....	27
2.2. Production d’ozone par DBD.....	28
2.3. Caractéristiques de l’ozone.....	29
2.4. Choix des agents de désinfection.....	32
2.5. Choix des critères de désinfection.....	32
2.6. Applications traitement d’ozone dans l’eau et l’air.....	32
2.7. Différents procédés de génération d’ozone.....	34
2.8. Mécanisme de formation de l’ozone.....	37
2.9. Etapes de formation de l’ozone et son rôle de désinfectant.....	38
2.10. Matériaux résistants à l’ozone .....	39
2.11. Méthodes physiques et leurs applications contre les contaminations.....	40
2.12. Applications de l’ozone.....	45
2.13. Pourquoi les générateurs d’ozone ?.....	46
2.14. Désinfection .....	47
2.15. Action de l’ozone.....	47
2.16. Conclusion.....	47

### **Chapitre 3. Etude expérimentale d'une nouvelle configuration de générateur d'ozone**

3.1. Introduction.....	49
3.2. Mesure de l'efficacité d'un générateur d'ozone.....	50
3.2.1. Production d'ozone en (g/h).....	50
3.2.2. Concentration d'ozone en (g/m <sup>3</sup> ) .....	51
3.2.3. Effet de la fréquence sur la génération d'ozone.....	51
3.3. Description des générateurs d'ozone réalisés .....	52
3.3.1. Générateur d'ozone à D.B.D volumique (DBDV).....	52
3.3.2 Générateur d'ozone à D.B.D modifiée.....	53
3.4. Description du dispositif expérimental.....	57
3.5. Résultats et discussion .....	59
3.6. Analyse numérique du champ électrique.....	65
3.7. Réalisation d'un skid mobile avec la configuration à DBD modifiée.....	66
3.8. Conclusion.....	67

### **Chapitre 4. Etude et réalisation d'un skid mobile de traitement de l'eau par l'ozone**

4.1. Introduction.....	69
4.2. Différentes parties d'une installation d'ozonation .....	70
4.2.1. Dispositifs d'injection de l'ozone dans l'eau.....	70
4.2.2. Efficacité de transfert de masse (ETM) .....	72
4.3. Réalisation du skid mobile pour le traitement des eaux .....	72
4.3.1 Description du skid mobile.....	73
4.3.2. Procédé de traitement de l'eau par l'ozone.....	74
4.3.3. Configurations optimales .....	74
a/Assemblage en série.....	74
b/Assemblage en parallèle.....	75
c/Assemblage mixte des générateurs (série-parallèle).....	78
4.4. Analyses physico-chimiques.....	81
4.5. Conclusion.....	83
Conclusion générale.....	84

---

# Abréviations

# Abréviations

**DBD** : Décharge à barrière diélectrique.

**DBDV** : Décharge à barrière diélectrique volumique.

**DBDM** : Décharge à barrière diélectrique modifiée.

**DCO** : Demande chimique en oxygène.

**DBO5** : Demande biochimique en oxygène en cinq jours.

**MES** : Matières en suspension.

**TSS** : Total des solides en suspension.

**PH** : Potentiel d'hydrogène.

# Introduction générale

## Introduction générale

Depuis quelques décennies, de nombreux travaux de recherche ont été réalisés dans le domaine lié aux technologies basées sur les plasmas réactifs hors équilibre générés par des décharges électriques dans l'air à la pression atmosphérique. Il est prouvé que ces techniques présentent de nombreux avantages par rapport à d'autres procédés plasma de type thermique. Elles sont également moins consommatrices d'énergie électrique en comparaison d'un réacteur à plasma thermique.

Les résultats de recherche relatifs aux dispositifs plasma à décharge à barrière diélectrique (DBD) et leur développement dans l'industrie en particulier, comme les écrans plasma, traitement des eaux, les ont rendus populaires ; pourtant les premières expériences sur ce type particulier de décharges datent de plus d'un siècle avec les travaux de *Siemens*.

L'eau non traitée ou polluée est responsable de maladies graves chez l'homme, bien souvent mortelles dans les pays en voie de développement. L'eau véhicule des virus, des bactéries, des parasites, des micro-organismes végétaux ou animaux, qui peuvent provoquer des maladies graves, voire mortelles pour l'être humain. Ces maladies liées à l'eau insalubre sont appelées maladies hydriques. La rivière El-Mekerra est devenue un collecteur naturel des eaux usées urbaines et industrielles non traitées. Cette eau polluée constitue pour les agriculteurs une source sûre et riche en nutriments, ce qui leur permet de pallier au coût des engrais et à l'irrigation, cela malgré les inconvénients que représente cette pratique dont les plus graves sont relatifs aux risques pour la santé humaine (liés aux germes pathogènes, aux métaux lourds et aux produits chimiques contenus dans ces eaux).

Les systèmes utilisés pour traiter l'eau aujourd'hui dans nos stations d'épuration 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...

Une eau pure met l'accent aujourd'hui sur le traitement de l'eau par l'ozone ou système d'ozonation. Une technique encore peu répandue de par les coûts qu'elle engendre mais qui présente des avantages non négligeables sur notre environnement ainsi que sur la qualité de l'eau provenant du réseau public.

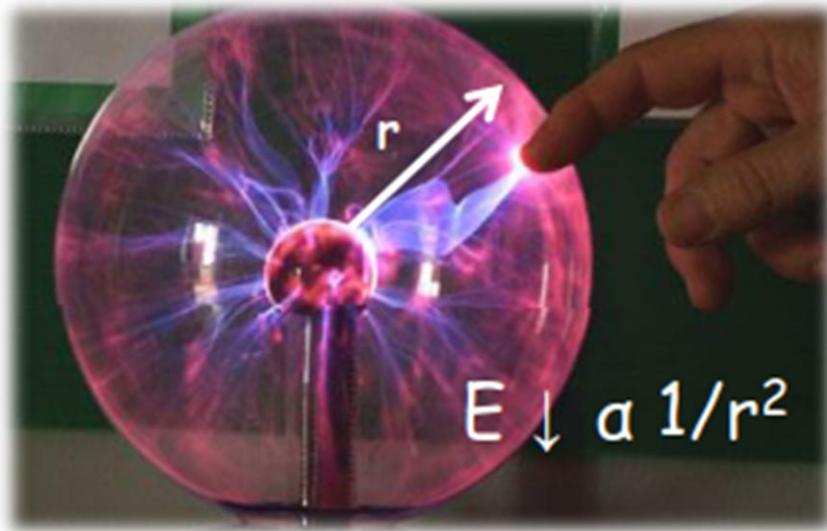
Dans le cadre de cette thèse, nous nous sommes intéressés pour l'étude des réacteurs plasmas générés par décharge à barrière diélectrique en raison de leurs aptitudes à traiter les petits volumes gazeux avec des intervalles inter électrodes de quelques mm contrairement au cas des réacteurs-couronne.

Le manuscrit est organisé de la manière suivante : Le *premier chapitre* est consacré à l'état de l'art sur les DBD, a pour objet d'apporter au lecteur les connaissances de base pour la compréhension de la suite des travaux. Nous présentons les différents phénomènes qui se produisent au sein d'une décharge électrique dans un gaz. Les différents régimes de fonctionnement sont cités sans oublier la classification des plasmas. Un accent particulier est mis sur les dispositifs à décharges à barrière diélectrique, aux sujets auxquelles nous insistons sur les applications industrielles et sur le processus de génération d'ozone utilisés dans le traitement des eaux.

Dans le *second chapitre*, 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...).

Nous présentons ensuite, au *troisième chapitre* une optimisation du générateur à décharge volumique avec une nouvelle configuration que nous avons appelée à DBD modifiée. Il s'agit d'un réacteur à DBD volumique classique à l'intérieur duquel est inséré un grillage métallique. Cette nouvelle configuration transforme la DBD en une décharge volumique et surfacique en même temps.

Le *quatrième chapitre* de ce manuscrit sera consacré à la réalisation d'un skid mobile comprenant 8 générateurs d'ozone avec la nouvelle configuration à DBD modifiée. Différentes configurations du branchement des 8 générateurs, en série, en parallèle et en mixte ont été analysées.



# Chapitre 1

## Décharge à barrière diélectrique (DBD) et ses applications

# 1

## *Décharge à barrière diélectrique (DBD) et ses applications*

### **1.1. Introduction :**

Ce chapitre vise à présenter une brève synthèse bibliographique sur les différentes décharges électriques (DBD) dans les gaz. Pour cela, nous commencerons par décrire les différents régimes de décharges électriques, la classification des plasmas et le domaine d'application de la DBD avant de nous focaliser sur les configurations des DBD surfaciques et volumiques. C'est cette dernière configuration volumique qui fait l'objet de ces travaux de thèse.

#### ➤ **Phénomènes d'ionisation**

Tous les gaz sont isolants, leur constante diélectrique est  $\epsilon_0$ . L'atome est neutre à l'état fondamental, Un gaz isolant peut devenir conducteur s'il est soumis à un champ électrique supérieur au champ critique, le passage de l'état isolant à l'état conducteur est une décharge électrique. Pour l'application du plasma froid, dont lequel le gaz (particules lourdes du mélange) reste froid tandis que les électrons sont beaucoup plus énergétiques vont provoquer par collisions l'excitation, la dissociation, l'ionisation des particules lourdes et modifiant la nature du gaz en créant des espèces excitées et des espèces réactives, radicaux et produits de dissociations.

#### ➤ **Pouvoir de pointe**

L'effet de pointe, aussi appelé pouvoir des pointes, est un phénomène physique expliquant l'influence d'un objet métallique pointu sur le champ électrique environnant. On obtient ainsi un champ électrique dont la valeur tend vers l'infini au voisinage de la pointe. Ce champ électrique très important va contribuer à l'ionisation de l'air.

Le champ est directement proportionnel à la densité surfacique de charge :

$$\sigma_S = \frac{q}{S} \quad (1-1)$$

Où :

$\sigma_S$  : densité surfacique de la charge

$q$  : charge totale

$S$  : surface portant la charge

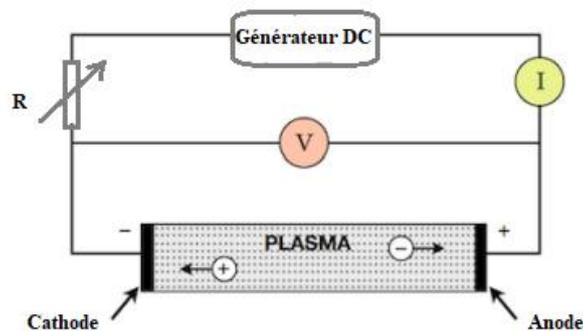
Dans le cas d'une pointe :

$S \approx 0 \longrightarrow \sigma_S$  est très grande de même, pour le champ électrique  $E$ .

## 1.2. Décharges électriques dans les gaz

### 1.2.1. Définition

Une décharge électrique est un canal conducteur se formant, sous certaines conditions, entre deux électrodes, à travers un milieu normalement isolant. Divers phénomènes se produisent entre deux électrodes séparées par un intervalle de gaz et soumises à une différence de potentiel figure (I.1).



**Figure I.1.**: Dispositif expérimental formé deux électrodes séparées par un gaz

### 1.2.2. Régimes de décharge dans un gaz

Un gaz soumis à une décharge de laboratoire, peut se trouver dans différents régimes de fonctionnement. Afin d'identifier ces régimes, nous considérons une décharge de type continu: nous connectons à une source de tension continue, deux électrodes (anode et cathode) séparées par le gaz (à basse pression et confiné) qui sera ionisé.

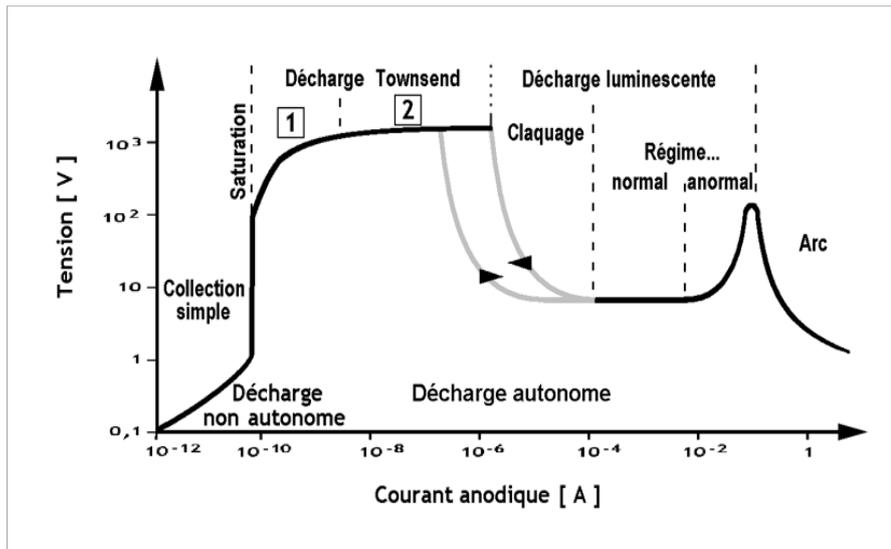


Figure 1.2. Caractéristique courant-tension des différents types de décharges dans les gaz

Les décharges obtenues dans le dispositif de Townsend peuvent être analysées en examinant la courbe caractéristique (Figure I.2) qui leur sont associée. Différents régimes de décharges peuvent être obtenus dans ce type de systèmes.

### I.2.2.1. Régime d'ionisation

Il correspond à une décharge non autonome sans multiplication électronique. Ce régime est caractérisé par une très faible valeur de tension gaz, l'émission des électrons est provoquée par apport d'énergie thermique (cathode chauffée) ou par irradiation naturelle (rayons cosmiques ou rayons UV) et ceci en l'absence d'agent ionisant extérieur.

### I.2.2.2. Régime de saturation

Décharge non autonome avec multiplication électronique. Dans ce régime les ions et les électrons produits dans le régime précédent disparaissent dans le volume de décharge, car ils sont collectés par la cathode et l'anode respectivement, les électrons n'ayant pas assez d'énergie pour créer de nouvelles ionisations.

### I.2.2.3. Régime de Townsend

Dans ce cas, les électrons se trouvent dans le volume de décharge acquièrent suffisamment d'énergie grâce au champ électrique et créent de nouvelles ionisations. La multiplication des électrons est principalement conduite :

- Par l'ionisation par impact d'électrons sur les molécules neutres du gaz.
- Par l'augmentation du flux d'électrons extraits par bombardement ionique de la cathode.

Ces nouvelles ionisations conduisent à un accroissement exponentiel du courant en fonction de la tension .

#### **I.2.2.4. Décharge luminescente**

C'est une décharge autonome (se maintient sans agent ionisant extérieur), dans laquelle la plupart des porteurs de charge sont des électrons produits par émission électronique secondaire. L'émission électronique primaire consiste en une émission thermoélectronique, une photoémission ou une émission par effet de champ. L'émission électronique secondaire consiste en une émission électronique due au bombardement de la surface émettrice par des ions.

#### **I.2.2.5. Décharge d'arc électrique**

C'est une décharge électrique autonome transportant un fort courant sous une faible différence de potentiel. A la différence de la décharge luminescente, les électrons sont émis par un procédé thermo-ionique dû au chauffage de la cathode.

### **1.3. Critère de claquage, auto-entretien**

Les mécanismes décrits dans ce paragraphe sont relatifs au claquage d'un gaz dans les conditions simples d'application d'une tension continue entre deux électrodes, dans un gaz à pression donnée.

On distingue trois types de claquage :

- Claquage type Townsend
- Claquage type streamer
- Claquage type étincelle

Les principaux mécanismes conduisant au claquage et à la formation d'un plasma sont le claquage du type Townsend et du type streamer

La distinction entre le claquage de Townsend et le claquage de streamer vient des différents processus secondaires.

#### **I.3.1. Mécanisme de claquage type Townsend**

Les mécanismes de claquage du type Townsend peuvent être résumés brièvement comme suit, figure I.3. :

- Multiplication électronique en volume (avalanches électroniques)
- Emission secondaire à la cathode (les ions créés en volume par ionisation dérivent vers la cathode sous l'effet du champ appliqué et peuvent produire par bombardement de la cathode des électrons secondaires)

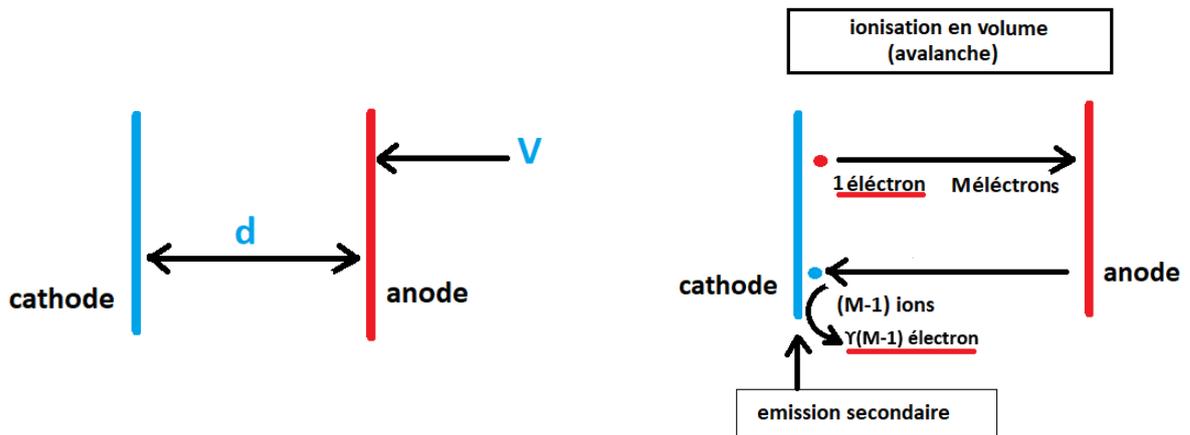


Figure 1.3. Avalanche électronique

On définit :

$\alpha$  : multiplication électronique. C'est le nombre d'électron arrivant à l'anode par un électron émis par la cathode.

$\gamma$  : coefficient d'émission secondaire comme le nombre d'électron émis à la cathode par ion incident. Pour qu'un électron émis par la cathode soit en moyenne par un nouvel électron il faut que les  $(\alpha - 1)$  ions résultant de l'avalanche initiés par un électron créent un nouvel électron.

Par conséquent il faut que :

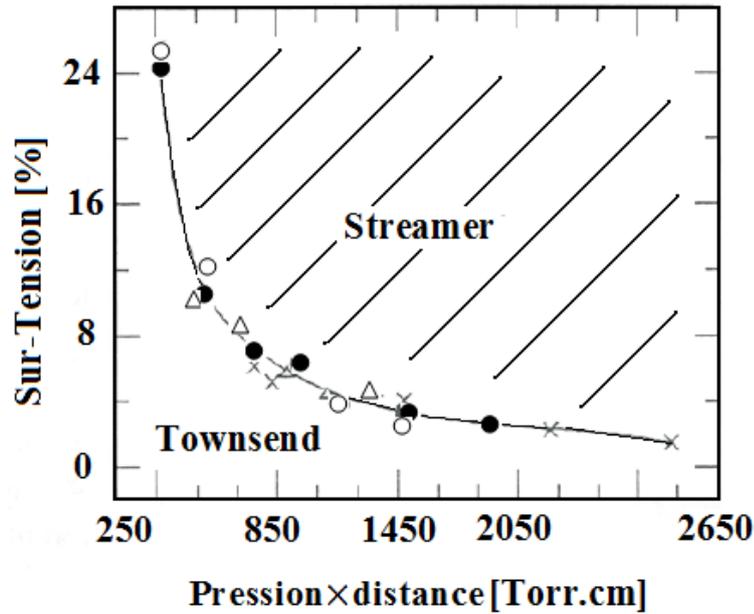
$$\gamma (\alpha - 1) = 1$$

Avec :

$\alpha = 1 + 1/\gamma$  : condition d'auto-entretien satisfaite le long de la caractéristique courant-tension

### 1.3.2. Mécanisme de claquage type streamer et décharge filamentaire

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, lorsque le produit « pression  $\times$  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 sur-tension trop importante résulte aussi en un claquage de type « streamer ». La courbe de la figure I.4 propose une limite entre ces deux types de claquage dans l'air par exemple, représente la sur-tension appliquée en fonction du produit P.d.



**Figure I.4 :** Courbe séparant les conditions en air d'un claquage de Townsend (région inférieure) d'un claquage de type streamer (région supérieure)

Dans ces conditions ( $P \cdot d > 1000$  torr.cm ou sur-tension élevés), 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 [ $R^*$ ]. 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  $N_{cr}$  ( $\sim 108$ ) avant d'atteindre l'anode, l'accumulation de charges d'espaces locales engendre un mécanisme de claquage complètement différent. Le critère de Meek définit ce seuil:

$$\exp(\alpha \cdot d) \leq N_{cr} \quad (I-1)$$

Avec  $\alpha$ , 1<sup>er</sup> coefficient d'ionisation de Townsend et  $d$ , distance inter-électrodes.

On parle alors de claquage de type streamer [5]. Ce claquage est beaucoup plus rapide ( $\sim 10^{-9}$  s) que le claquage de Townsend et résulte en un fin canal de décharge, constituant un filament. Le mécanisme de claquage de type « streamer » se décompose en plusieurs phases (Figure I.5) [10]:

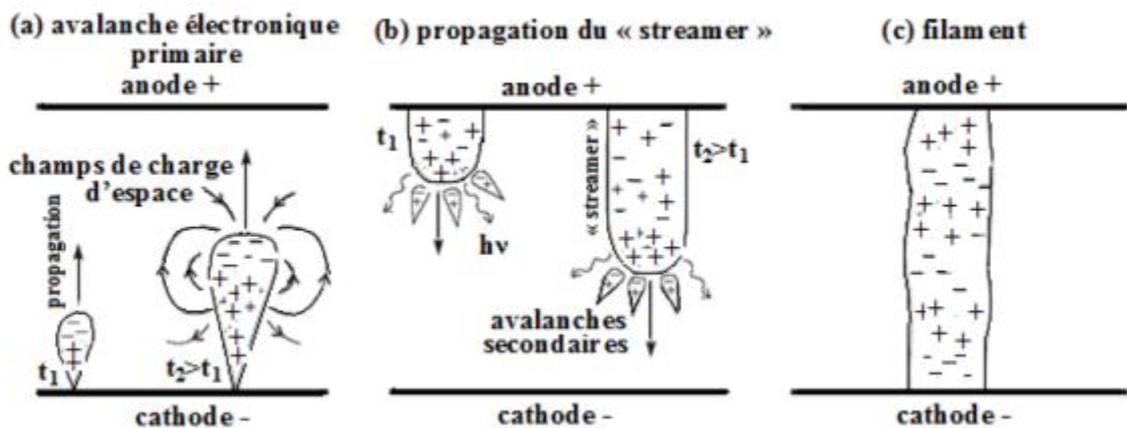


Figure I.5: Mécanisme de claquage de type streamer.

Propagation de : (a) l'avalanche primaire ; (b) du streamer (c) filament [08]

### I.3.2.1. Avalanche primaire : (Figure 1.5.a)

Une avalanche intense se forme et croît très rapidement de la cathode vers l'anode, 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 permet d'atteindre une taille telle que le champ de ces charges d'espace va devenir aussi important que le champ appliqué, à ce moment, le nombre d'électrons atteint son seuil critique. Ce champ s'additionne au champ appliqué et une zone faiblement ionisée peut alors se créer [2].

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. Pour que l'avalanche primaire se transforme en streamer, il faut qu'elle atteigne un niveau d'amplification très élevé, et le champ de charges d'espace doit atteindre la valeur du champ appliqué. C'est ce point qui permet de distinguer la transition de l'avalanche primaire vers le streamer et distinguer le claquage de type streamer du claquage de type Townsend.

### **I.3.2.2. Transition avalanche – streamer et propagation :** (Figure 1.5.b)

Lorsque l'avalanche primaire rejoint l'anode, au moment où son amplification est maximum le streamer va se former. 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. Les ions de l'avalanche secondaire, se déplaçant plus lentement que les électrons, sont à leur tour intégrés à la tête du streamer en formant une nouvelle tête, chargée positivement. Ces charges attirent à leur tour les électrons issus d'une deuxième génération d'avalanche secondaire jusqu'à rejoindre la cathode [2].

Cette description correspond à la propagation d'un streamer positif observé, avec une distance inter-électrodes faible et une surtension peu élevée, c'est le cas pour les décharges DBD. Lorsque la distance inter-électrodes est grande et que la surtension appliquée est importante, un streamer négatif peut se propager. Dans ce cas, le champ de charge d'espace de l'avalanche primaire peut être suffisamment grand pour initier un streamer avant d'atteindre l'anode et la transition avalanche - streamer a lieu dans l'espace inter-électrodes.

### **I.3.2.3. Etablissement d'un canal de décharge :** (Figure 1.5.c)

Une fois que le streamer a rejoint l'anode, la phase de claquage est terminée et un filament, mince canal de décharge partiellement ionisé, se forme. Dans une décharge DBD, la présence du diélectrique empêche la transition du filament à l'arc (canal hautement ionisé) et limite sa durée de vie à une dizaine de nanosecondes. Une décharge filamentaire est par définition composée d'une multitude de filaments, initiés par un claquage de type streamer, apparaissant de manière aléatoire et indépendante dans l'espace inter-électrodes. Suivant la densité d'avalanches primaires simultanées, ce type de claquage peut aussi conduire à une décharge homogène dite « par couplage de streamer » [12].

### **I.3.2.4 Influence de la pression**

Durant l'avalanche électronique les électrons rapides sont absorbés par l'anode, tandis que les ions positifs moins rapides forment dans le gaz une charge d'espace. La taille de la charge d'espace dépend de la pression du gaz.

### **I.3.2.5 Courbe de Paschen**

La loi de Paschen donne l'expression de la tension de claquage pour un gaz donné elle est seulement une fonction du produit pression gaz et de la distance inter-électrode (Figure 1.6).

$$V_b = \frac{B \cdot p \cdot d}{\ln \left( \frac{A \cdot p \cdot d}{\ln \left( 1 + \frac{1}{\gamma} \right)} \right)} \quad (1.2)$$

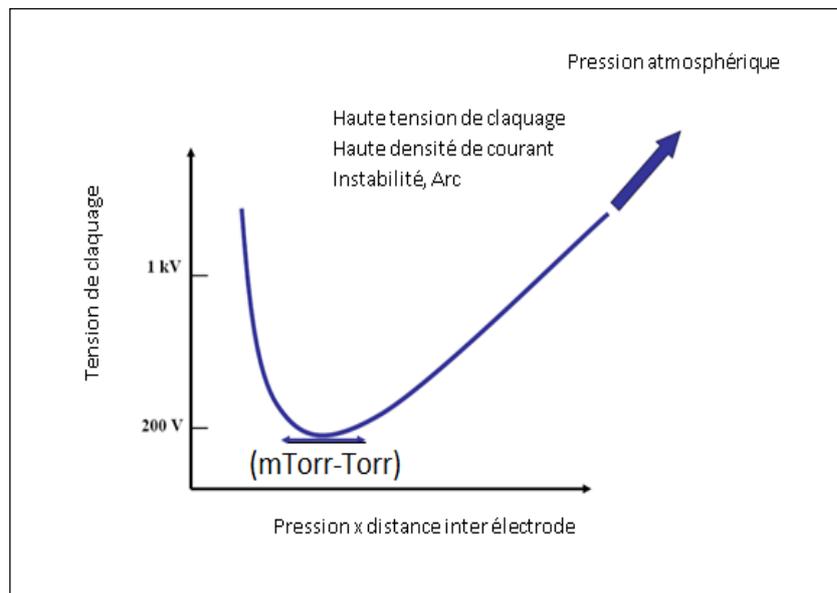
Où

$V_b$  : tension claquage ;

$p$  : pression gaz ;

$d$  : distance inter-électrode ;

A et B : Constantes phénoménologiques du coefficient de première ionisation de Townsend .



**Figure 1.6 :** Forme type de la courbe de rupture de Paschen

Le Tableau I-1. nous donne les tensions minimales et les produits minimaux ( $p*d$ ) pour différents gaz.

**Tableau I-1:** Tension minimale de claquage  $V_{b\ min}$  et  $(pd)_{\min}$  pour différents gaz

Gaz	$Pd_{\min}$ (torr.cm)	$V_{b\min}$ (V)
Air	0.55	352
Azote	0.65	240
Hydrogène	1.05	230
Oxygène	0.7	450
Hexafluore de soufre	0.26	507
Dioxyde de carbone	0.57	420
Néon	4.0	245
Hélium	4.0	155

## 1.4. Notions de base sur les plasmas et leurs applications

### I.4.1. Milieu ionisé

Il contient des espèces chargées (électrons, ions), photons des neutres (atomes, molécules) ou excités, ainsi que des fragments de molécules dissociés appelés radicaux. La densité d'électrons  $n_e$ , la densité d'ions positifs  $n_p$  et la densité de neutre  $N$ .

### I.4.2. Plasma

Il constitue le quatrième état de la matière solide, liquide, gaz (Figure 1.7) . En théorie un plasma est un gaz totalement ou partiellement ionisé dans lequel on a macroscopiquement la neutralité électrique. A la température ambiante, les gaz ne sont pas ionisés excepté quelques électrons à cause des rayons cosmiques ou dû à la radioactivité naturelle.

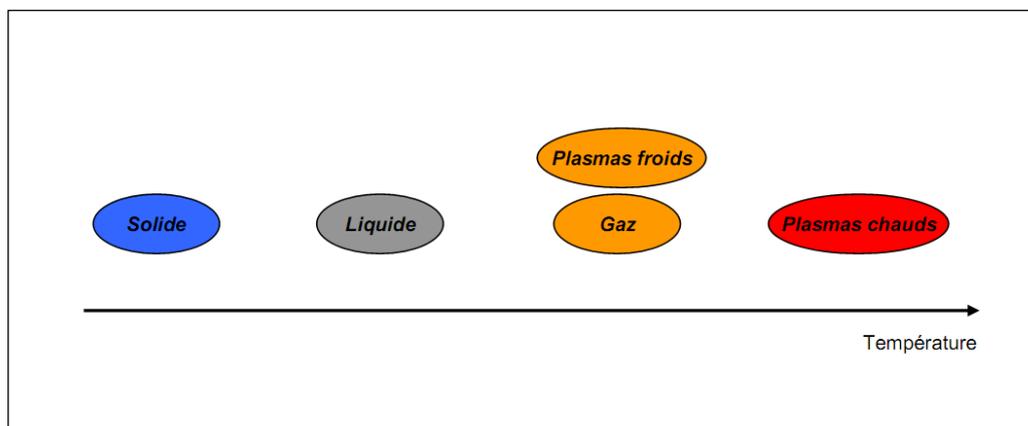


Figure 1.7 : Évolution de l'état de la matière avec la température

### I.4.3. Procédé de transformation d'un gaz en plasma

#### I.4.3.1. Elévation de température

C'est le premier moyen de créer un plasma, car elle consiste à augmenter suffisamment la température du gaz, certaines molécules acquièrent une énergie d'agitation thermique suffisante pour que sous l'effet des collisions une partie de leurs électrons soient arrachée. Les molécules s'ionisent mutuellement lors des collisions. En chauffant le gaz jusqu'à ( $10^4 - 10^5$  K) pour créer l'ionisation, on obtient un milieu à l'équilibre thermodynamique ; c.à.d. toutes les particules (électrons, ions, neutres) ont la même température.

### I.4.3.2. Elévation du champ électrique

Est le deuxième moyen pour créer un plasma, Il consiste à élever le champ électrique dans le gaz. On peut communiquer de l'énergie à un gaz, par exemple en lui appliquant un champ électrique ( $F=q.E$ ). Si l'amplitude du champ électrique  $E$  est suffisante alors on a un phénomène d'ionisation, avalanche électronique, gaz ionisé. Le plasma est qualifié de non thermique si l'énergie de préférence est communiquée aux électrons sans que le milieu gazeux subisse une élévation de température notable dans ce cas l'équilibre thermodynamique n'est pas réalisé et on peut associer une température à chaque espèce. Dans ce cas le plasma est hors équilibre thermodynamique, la température électronique ( $T_e$ ) est très grande comparé à la température du gaz ( $T_g$ ). On obtient un plasma froid partiellement ionisé.

### I.4.4. Paramètres physiques des plasmas

Tous les plasmas n'ont pas les mêmes caractéristiques et peuvent être ainsi classifié en fonction des paramètres suivants :

- Densité électronique ( $n$ ) : est le nombre d'électrons libres par unité de volume ( $\text{cm}^{-3}$ )
- Degré d'ionisation ( $\delta$ ) : représente le rapport du nombre d'électrons libres( $n$ ) sur le nombre de particules totales( $N$ )

$$\delta = \frac{n}{n+N} \quad (1-3)$$

Avec :

$n$  : densité du plasma ( $n = n_e = n_p$ )

$n_e$  : nombre d'électrons libres par unité de volume

$n_p$  : nombre d'ions positifs par unité de volume

$N$  : nombre de neutres par unité de volume

- Température électronique ( $T_e$ ) : exprimée à la température absolue en (K), ou en énergie électronique ( $kT_e$ )
- Libre parcours moyen( $\lambda$ ) : correspond à la distance moyenne parcourue par une particule chargée entre deux collisions.il dépend de la vitesse des particules et la probabilité de collision.
- Longueur de Debye ( $\lambda_D$ ) : définit la longueur à partir de laquelle le champ électrique coulombien issue d'une particule chargée est neutralisée par un ensemble de

particules de signes opposés dans le volume environnant. Elle est donnée par la relation suivante

$$\lambda = \left( \frac{2\varepsilon_0 K T_e}{n_e e^2} \right)^{1/2} \quad (1 - 4)$$

avec :

$\varepsilon_0$  : permittivité du vide ( $8,84.10^{-12}$  F.m<sup>-1</sup>)

$k$  : constante de Boltzmann ( $1,3806.10^{-23}$  j.K<sup>-1</sup> .molécule<sup>-1</sup>)

$n_e$  : densité électronique (cm<sup>-3</sup>)

$T_e$  : température électronique (K).

Le tableau I-2 donne les différents types de collisions électron-molécule

**Tableau I-2.** Collisions induites par un électron dans un plasma de décharge

Nom de la collision électronique	Réaction
Ionisation	$e + A \longrightarrow A^+ + 2e$
Excitation	$e + A \longrightarrow e + A^* \longrightarrow e + A + h\nu$
Collision élastique	$e + A \longrightarrow e + A$
Recombinaison	$e + A^+ + B \longrightarrow A + B$

### 1.4.5. Caractéristiques d'un plasma

Un plasma contient des électrons, des ions (positifs ou négatifs) des espèces neutres dans l'état fondamental ou dans des états excités (Figure 1.8).

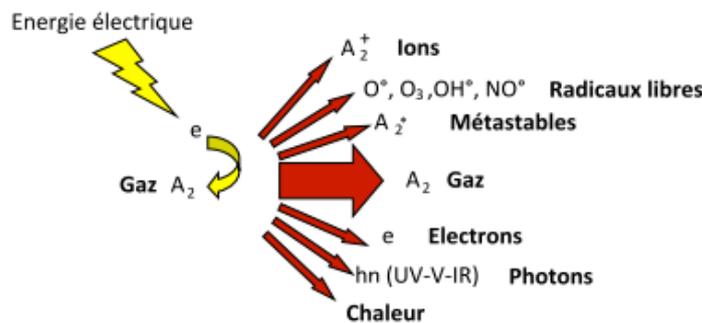
L'état plasma diffère de l'état du gaz initial, les électrons ou les ions, en faisant des collisions avec les neutres peuvent les exciter, les dissocier, créer des radicaux et donc initier une chimie inexistante dans le gaz initial, par exemple l'ozone. Le plasma est une source de lumière en raison de la désexcitation des atomes ou molécules excités par collisions électroniques. Les photons émis et la couleur du plasma dépend du gaz initial. Un plasma est caractérisé par les densités des espèces en présence (électrons, ions, neutres sur des états excités ou non) et par leurs températures.

La température est liée à l'agitation thermique des particules. Dans le plasma froid hors équilibre thermodynamique, la température électronique  $T_e$  est très grande comparée à la

température du gaz  $T_g$ . Dans ces conditions, le plasma est faiblement ionisé (corona, D.B.D...) le degré d'ionisation  $\delta$  reste inférieur à  $10^{-4}$ . Par contre le plasma thermique est proche de l'équilibre thermodynamique, ce qui se traduit par une température électronique  $T_e$  proche de la température du gaz  $T_g$  (arc, flamme...). La génération d'un plasma froid, à pression atmosphérique est obtenue en contrôlant le courant donc en évitant la transition.

## Le plasma : un convertisseur d'énergie

L'énergie électrique est injectée dans le plasma...



...elle est convertie en un milieu hautement réactif

**Figure 1.8 :** Caractéristiques d'un plasma

### 1.5. Décharge couronne

Elle est obtenue par deux électrodes asymétriques, afin d'obtenir un champ électrique beaucoup plus important au voisinage de l'une des deux électrodes. Les processus d'ionisation sont alors initiés dans la région où le champ électrique est le plus intense, la création du canal ionisé (streamer) est identique à celle observée dans une D.B.D, mais l'extinction de la décharge se produit dans la zone où le champ électrique est trop faible.

### 1.6. Décharge à barrières diélectriques D.B.D

La DBD est une décharge obtenue entre deux électrodes où au moins une est couverte d'un diélectrique. La décharge ne peut être continue, elle est impulsionnelle et le courant est limité par la présence du diélectrique.

Une décharge à barrière diélectrique est une source de plasma froid hors équilibre générée à la pression atmosphérique entre deux électrodes ou au moins une couverte par un diélectrique. Elle est qualifiée de non thermique si l'énergie est préférentiellement communiquée aux électrons sans que le milieu gazeux, dans lequel apparaît la décharge, subisse une élévation de température notable. Dans ce cas, l'équilibre thermodynamique n'est pas

réalisé et on peut associer une température à chaque espèce. Ce plasma froid est obtenu par le contrôle de la puissance injectée dans le milieu, cela peut se faire, soit en limitant l'amplitude du courant, soit en contrôlant la durée d'injection de l'énergie.

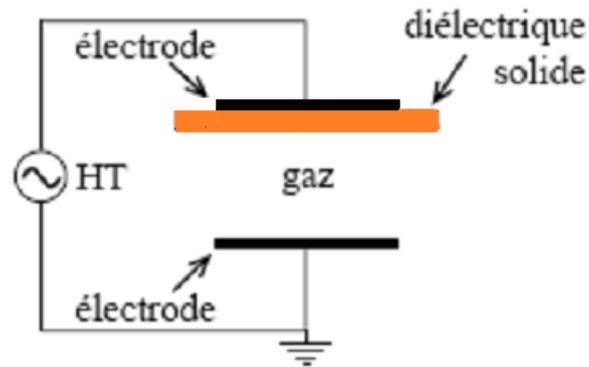
Les techniques les plus connues sont les suivantes :

- Décharges radio-fréquences et micro-ondes ;
- Réacteurs à faisceaux d'électrons
- Décharges glissantes de type glidarc ;
- Décharges à effet couronne
- Décharges à barrière diélectrique.

Le diélectrique joue le rôle d'un condensateur en série avec le plasma ayant pour rôle d'éviter le passage au régime d'arc, assure un fonctionnement transitoire de la décharge et une répartition uniforme des micro-décharges. En appliquant à un intervalle gazeux un champ électrique suffisamment important les processus d'avalanches électronique interviennent, conduisant à la création d'un milieu partiellement ionisé. Le système DBD permet de favoriser la conversion de l'énergie électrique en énergie chimique. Qui intervienne dans la phase streamer suite aux collisions électroniques, après l'extinction du streamer et la recombinaison des charges, on a les différentes espèces créées (molécules, et radicaux).

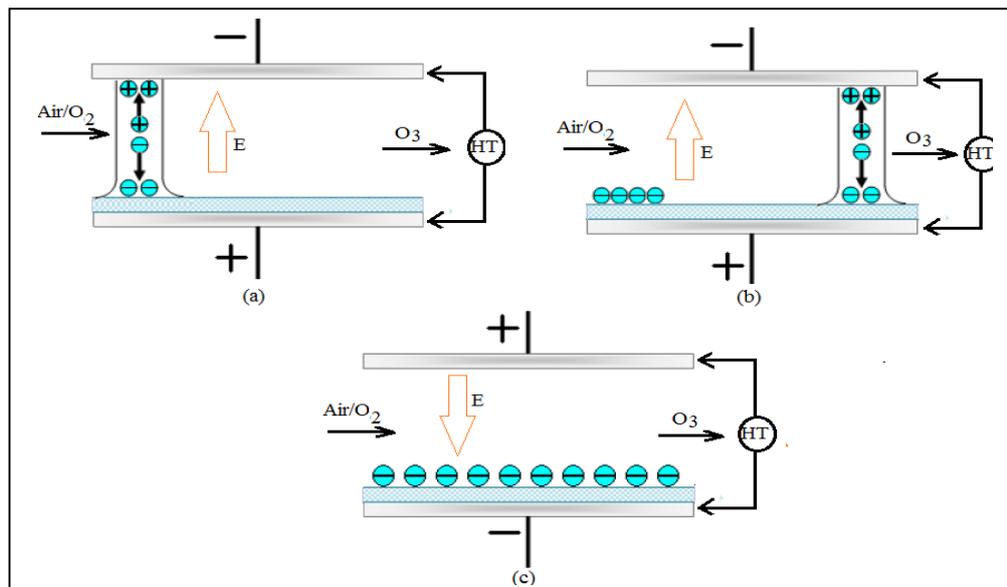
### **I.6.1 Principe de fonctionnement des réacteurs DBD**

Contrairement aux décharges classiques où le plasma est créé à travers le gaz entre deux électrodes, les réacteurs DBD présentent la particularité d'avoir une (ou les deux) électrode recouverte d'un diélectrique (Figure 1.9). Ces réacteurs sont d'une mise en œuvre assez aisée et s'avèrent robustes. Plusieurs configurations cylindriques et planes. Un des grands avantages des DBD par rapport à beaucoup d'autres types de décharges est de pouvoir influencer assez facilement l'énergie moyenne des électrons en jouant sur certains paramètres physiques aisément modifiables. Le paramètre le plus sensible est le produit ( $n*d$ ) de la densité de neutres par l'espace inter électrode. Ce dernier fixe le domaine de valeurs du champ réduit et donc le niveau d'excitation du milieu. Il est ainsi possible de favoriser soit l'excitation vibrationnelle, soit la dissociation, soit l'ionisation. La nature, l'aspect de surface et l'épaisseur du diélectrique jouent aussi un rôle important dans la nature du plasma créé.



**Figure 1.9 :** Configuration classique d'une décharge à barrière diélectrique (D.B.D)

L'ensemble du plasma se compose d'une multitude de micro décharges (ou streamers) d'une durée de vie très brève (Figure 1.12), d'un diamètre de l'ordre de  $100\mu\text{m}$ , répartis aléatoirement dans tout le volume utile du réacteur. A pression atmosphérique, la densité électronique dans la micro-colonne de courant est de l'ordre de  $10^{14}$  à  $10^{15}\text{cm}^{-3}$ . Au cours de l'établissement de la micro-décharge, le diélectrique se polarise progressivement, la charge de surface réduit le champ moyen et le courant à l'intérieur de la micro-décharge diminue puis s'annule, la micro-décharge s'éteint. C'est pendant cette étape que l'essentiel de l'énergie est transférée au plasma. Sa durée a été estimée à la dizaine de nanosecondes.



**Figure 1.12 :** (a) Etablissement d'une première micro-décharge (b) Extinction de la première micro-décharge et amorçage d'une nouvelle (c) Changement de polarité appliquée sur les électrodes

Si la haute tension est maintenue aux bornes des électrodes d'autres micro-décharges peuvent se développer. Elles se formeront préférentiellement sur d'autres sites en raison de la présence d'une charge de surface résiduelle au niveau du pied de la micro-décharge précédente. Le diélectrique joue deux rôles complémentaires ; d'une part, il distribue les micro-décharges sur toute la surface du diélectrique et d'autre part, il limite la quantité de charges au niveau de chaque micro-décharge et évite ainsi le passage à l'arc. Les caractéristiques du plasma dépendent fortement du type de gaz, de pression, de la distance inter-électrode, des propriétés du diélectrique etc..

La figure 1.13 présente un schéma équivalent de la micro-décharge.

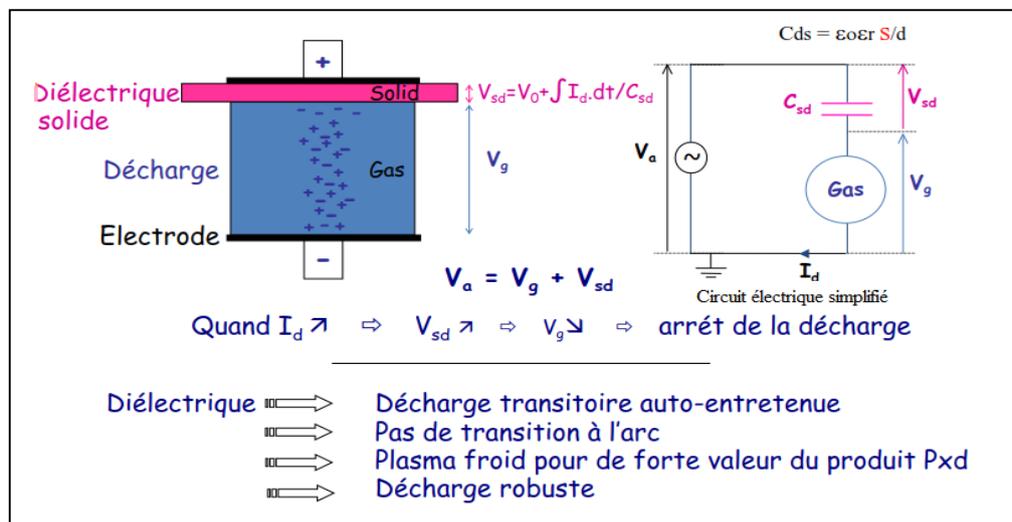


Figure 1.13 : Schéma équivalent de la micro-décharge

Il est très intéressant de connaître les caractéristiques moyennes rencontrées dans la majorité des applications des micro-décharges. Ainsi, les caractéristiques des micro-décharges sont données ci-dessous (Figure 1.14).

- 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/m<sup>2</sup>
- Charge totale :  $10^{-10}$  à  $10^{-9}$  C
- Densité d'électrons :  $10^{20}$  à  $10^{21}$  m<sup>3</sup>
- Énergie d'électron moyenne : 1-10 eV
- Température du canal : proche de la température ambiante du gaz.

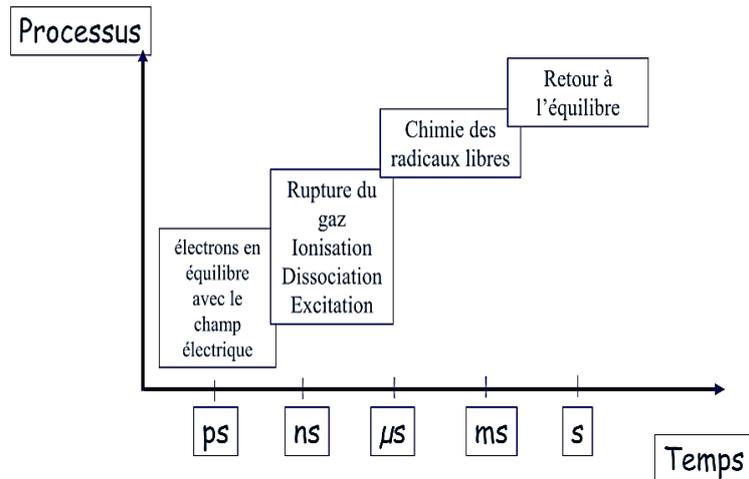


Figure 1.14 : Temps caractéristiques des micro-décharges (D.B.D)

### 1.6.2. Différence entre décharge à barrière diélectrique et décharge couronne

La différence réside dans l'extinction de la décharge. En effet une décharge couronne est réalisée avec deux électrodes asymétriques afin d'obtenir un champ électrique important au voisinage de l'une des deux électrodes (Figure 1.15). Les processus d'ionisation sont alors initiés dans la région où le champ électrique est le plus intense. La création du canal ionisé (streamer) est identique à celui observé dans une D.B.D mais l'extinction de la décharge se produit dans la zone où le champ électrique est trop faible pour maintenir l'ionisation. Dans une décharge couronne, la création importante de charge d'espace peut conduire à la formation d'arcs électriques, ce qui limite l'utilisation de ce type de décharge. Afin d'éviter le passage à l'arc, on recouvre une des électrodes avec un matériau isolant ou diélectrique, on parle alors d'une décharge à barrière diélectrique (D.B.D).

L'utilisation d'une barrière diélectrique va offrir des possibilités d'utilisation beaucoup plus larges que pour une simple décharge couronne. On utilise ce type de décharge le plus souvent en configuration plan-plan ou cylindrique selon l'application de façon à augmenter le nombre de streamers dans l'espace inter-électrodes et donc d'accroître le volume global du plasma.

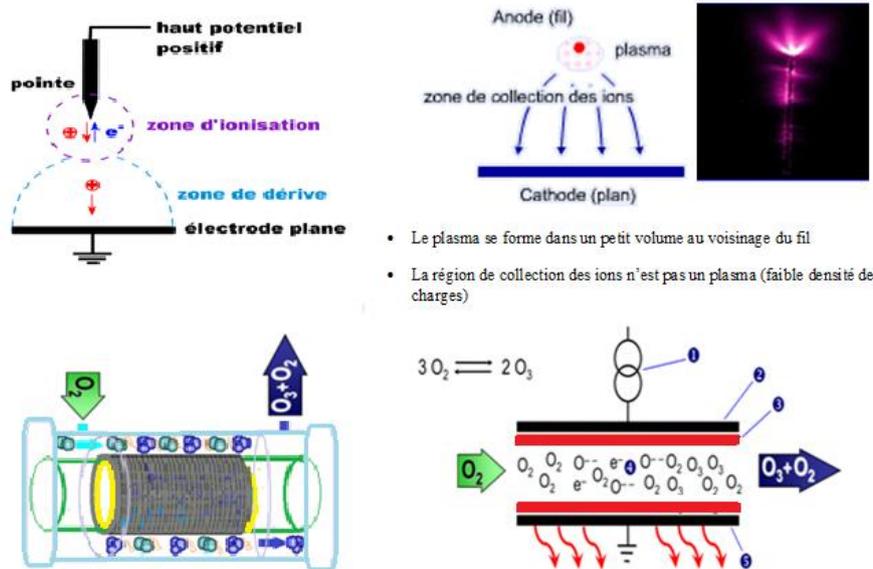


Figure 1.15. Différentes formes de décharges

## 1.7. Types de décharge à barrière diélectrique

Les décharges fonctionnant en présence d'un diélectrique s'établissent en général selon un mode de décharge filamentaire ou micro-décharge. Parfois, dans des conditions très particulières, la décharge s'établit de façon homogène. L'utilisation d'un isolant permet également de générer des décharges soit **en volume** soit **de surface**. (Figure 1.16).

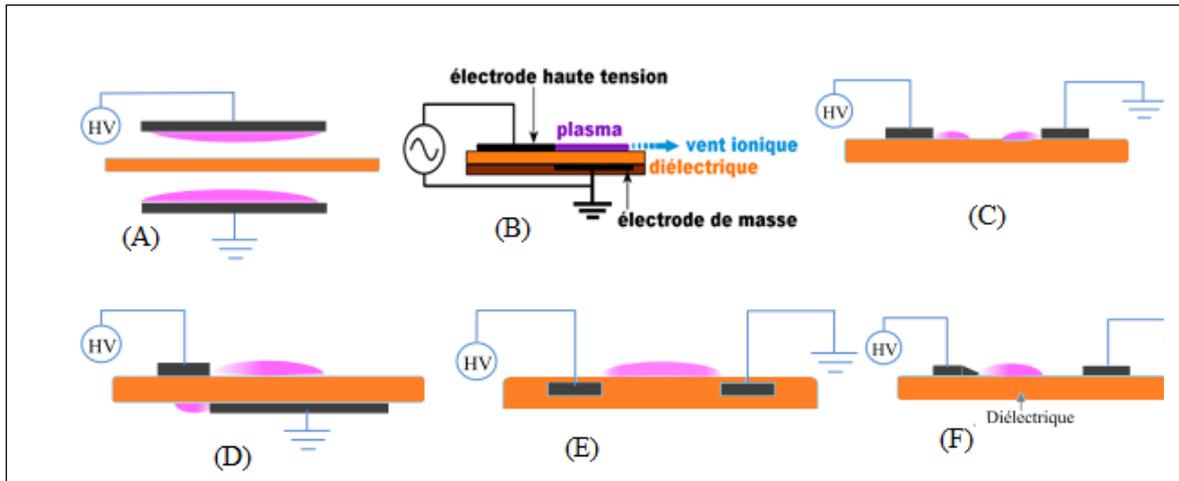
### 1.7.1 Décharge à barrière diélectrique surfacique

La proximité des électrodes permet d'abaisser considérablement la tension d'amorçage du plasma. C'est cette configuration qui confère à ce type de décharge un intérêt tout particulier pour le contrôle d'écoulement. L'orientation du champ électrique va permettre aux particules chargées de se déplacer parallèlement à la surface du diélectrique. Grâce au mouvement de ces particules, un écoulement d'air de quelque  $\text{m.s}^{-1}$  va être induit tangentiellement à la surface du diélectrique : cet écoulement est appelé vent ionique.

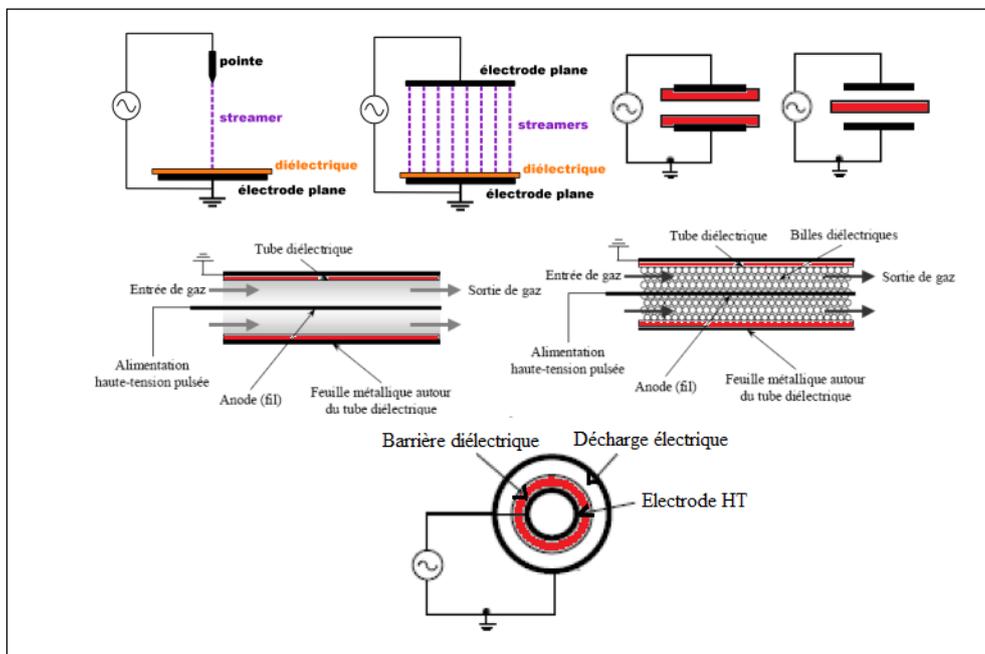
### 1.7.2 Décharge à barrière diélectrique volumique

On qualifie la DBD volumique de décharge silencieuse car son niveau sonore est beaucoup plus faible que dans le cas où des arcs électriques sont produits. Le diélectrique se comporte comme un condensateur monté en série avec le plasma, entraînant ainsi la formation d'un grand nombre de micro-décharges (Figure 1.17). Chacune d'entre elles correspond à la propagation d'un streamer dans l'espace inter-électrode. Chaque micro-décharge induit un pic de courant dans ce cas de figure, ce qui donne un caractère impulsionnel au courant de décharge. Eliasson et Kogelschatz [17] mentionnent dans leur étude que les caractéristiques des décharges

silencieuses dépendent de la nature et de la pression du gaz utilisé. Dans certaines conditions, on qualifie la DBD volumique de décharge lumineuse homogène car les micro-décharges y sont très rares et les filaments de plasma ne sont plus visibles à l'œil nu. Dans ce cas de figure l'évolution du courant n'est plus impulsionnel mais périodique (Massines et al. [18]). Roth [19] rapporte dans son ouvrage que ce type de décharge peut être créée avec seulement quelques kV d'amplitude à des fréquences de l'ordre du kHz, pour un espace inter-électrodes allant de 0,5 à 3 cm.



**Figure 1.16.** Configuration de DBD de type plan-plan volumique(A), plan-plan(B), plan-plan surfacique(C), plan-plan surfacique (D), plan-plan surfacique avec encapsulation (E), pointe-plan (F)



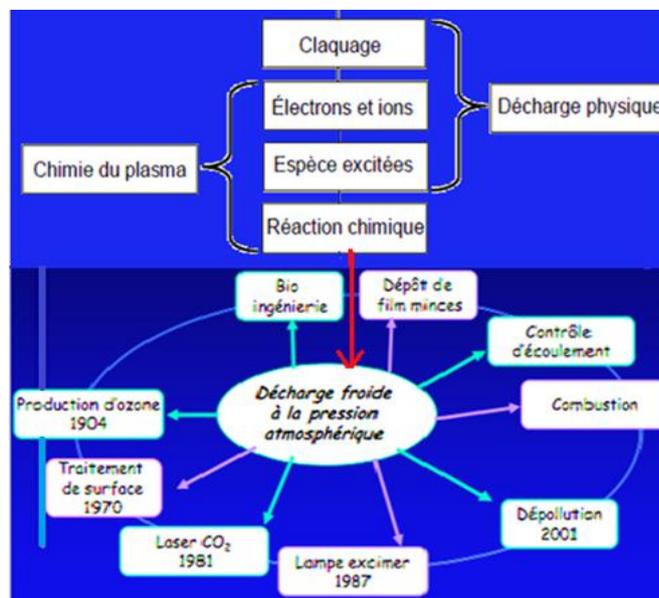
**Figure 1.17.** Différentes configurations des DBD planes cylindrique, fil- cylindre avec barrière diélectrique à bille diélectrique [52, 23]

Les travaux de Massines et al. [18], Yokoyama et al. [20] ou de Kogelschats et al. [14] permettront au lecteur d'obtenir de plus amples informations sur la théorie des DBD, tout comme ceux de Raizer [15] permettent de bien appréhender les mécanismes de propagation des streamers.

Les configurations coplanaires sont plutôt utilisés pour les applications de traitements de surface tandis que les cylindriques sont plus adaptées aux traitements de gaz. L'arrangement plan-plan avec deux diélectriques est utile lors de l'utilisation de plasma corrosif. Pour un diélectrique au milieu, cette dernière est réalisée à l'aide du matériau à traiter. D'autres sont à décharge couronne de type fil-cylindre avec barrière diélectrique, tandis que d'autres configurations utilisent des billes de diélectrique qui ont souvent des propriétés catalytiques : on obtient alors des décharges de surfaces.

### I.8. Applications des décharges à barrière diélectrique

Toutes les applications utilisant les D.B.D s'appuient en général sur des processus similaires. En effet, on peut communiquer de l'énergie à un gaz, par exemple en lui appliquant un champ électrique ( $F=q \cdot E$ ). Si l'amplitude du champ électrique  $E$  est suffisante alors elle initie la décharge dans laquelle se forment des particules chargées, des espèces excitées et des radicaux libres.



**Figure 1.18** : Domaine d'application de la décharge à barrière diélectrique (D.B.D) [14]

Les réactions issues de la présence de ces espèces instables conduisent à des changements chimiques dans la composition du gaz ou sur les objets placés au contact de ce gaz. La figure

1.20 résume le principe général des D.B.D et énumère leurs applications. Parmi ces applications une d'entre elle est détaillée car elle entre dans l'application de notre projet à savoir l'ozone.

### I.8.1 Traitement de surface

L'utilisation des DBD pour les traitements de surface couvre un large spectre, qui regroupe l'activation de surface, les dépôts de couches minces, la gravure ou le nettoyage, et la stérilisation. L'une des propriétés principales des DBD réside dans le fait qu'elle fonctionne en régime filamentaire ou homogène .la propriété continue lui confère un traitement uniforme.

Nous pouvons en citer les applications suivantes (Figure 1.19) :

- Activation de surface : les procédés ayant pour objectif de modifier, l'énergie ou la réactivité de surface d'un matériau sans pour autant rajouter de matière (Figure 1.20).
- Dépôt de couches minces : consiste à déposer une très fine couche, à la surface d'un matériau (substrat) afin de lui conférer une ou plusieurs propriétés spécifiques. Par exemple le durcissement pour des applications mécanique, l'anti-réflexivité dans le domaine optique, l'isolation dans le cas électrique
- Gravure et nettoyage : Le nettoyage consiste à enlever une couche de contamination ou des additifs de faible poids moléculaire qui ont migré en surface du matériau alors que la gravure c'est une ablation volontaire d'une partie du matériau.

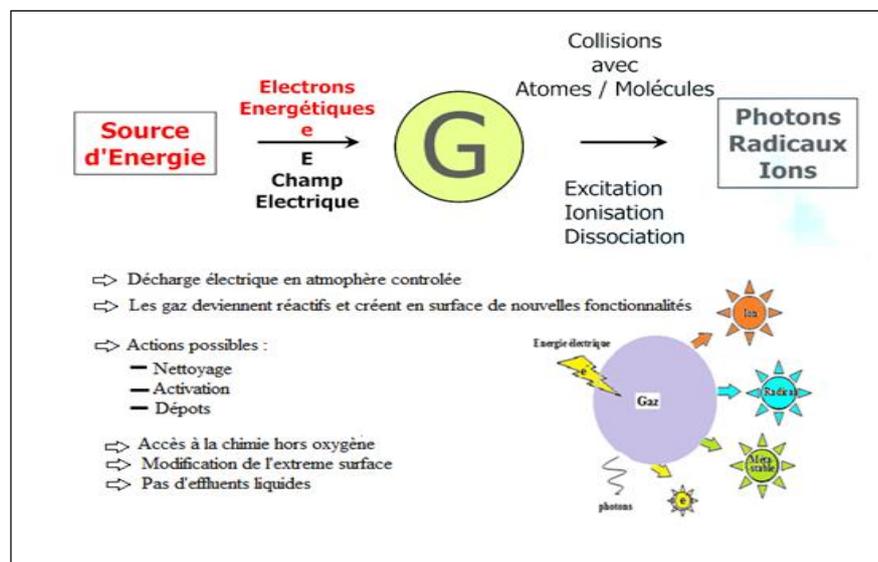


Figure 1. 19 : Applications du plasma froid [53, 54]

- Stérilisation : consiste à la décontamination d'un matériau ou un aliment. Les espèces actives utilisées pour la stérilisation sont principalement les photons UV émis par le plasma peuvent pénétrer profondément dans le matériau et les radicaux réagissent avec la surface.
- Traitement de l'eau par l'ozone qui est un désinfectant puissant

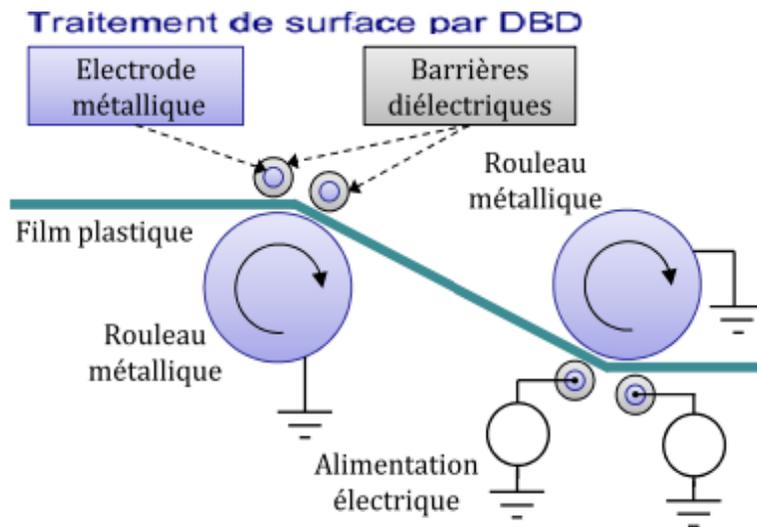


Figure 1.20 : Traitement de surface par D.B.D

## I.8.2. Eclairage et écrans à plasma :

### I.8.2.1. Excilampes

Une application spécifique des DBD concerne les dispositifs destinés à produire un rayonnement UV, créé par des excimères ou des exciplexes. Parmi les applications les plus courantes de ces lampes, basées sur l'utilisation du rayonnement UV produit, nous trouvons : les traitements dermatologiques, la stérilisation de l'eau et les procédés pour la microélectronique [56]. On cite les avantages des lampes à espèce excitée de production d'UV par rapport aux techniques classiques

- Elles n'utilisent pas le mercure dans le mélange gazeux, évitant des conséquences graves pour la santé et l'environnement.
- Elles n'ont pas besoin d'un système de chauffage du gaz (mercure) et peuvent être employées dans des applications à basse température (régime luminescent au lieu du régime d'arc).

- Leur spectre d'émission peut être réglé avec le mélange gazeux, avec multiples choix, et avec une largeur de raie de l'ordre de la dizaine de nanomètres.

### I.8.2.2. Excimères

Un excimère est une molécule excitée et instable formée par deux atomes d'un gaz rare. Cette molécule libère une énergie en forme de photon, lors de son retour à l'état fondamental (deux atomes), avec une longueur d'onde ( $\lambda$ ) qui dépend du gaz.

### I.8.2.3. Exciplexes

Les exciplexes sont formées d'une molécule excitée instable, constituée par un atome d'un gaz rare et un halogène. Le processus de génération de la lumière est similaire à celui d'un excimère, la production du rayonnement UV dans une lampe à DBD repose sur l'émission de photons par dissociation d'excimères ou d'exciplexes.

### I.8.2.4. Géométrie des excilampes

Les excilampes utilisées exclusivement dans la génération des UV (Figure 1.21), ont normalement une géométrie coaxiale, avec le mélange gazeux enfermé entre les deux barrières diélectriques. Parmi les configurations, on peut citer les DBD planaires ou celles avec un seul diélectrique (Figure 1.22). Le rayonnement UV est ici utilisé pour exciter le phosphore et produire un rayonnement visible.

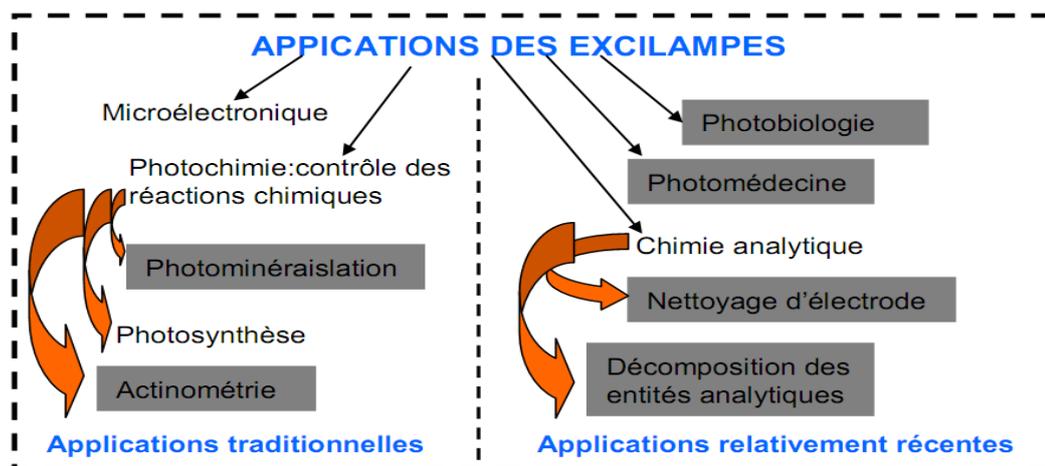
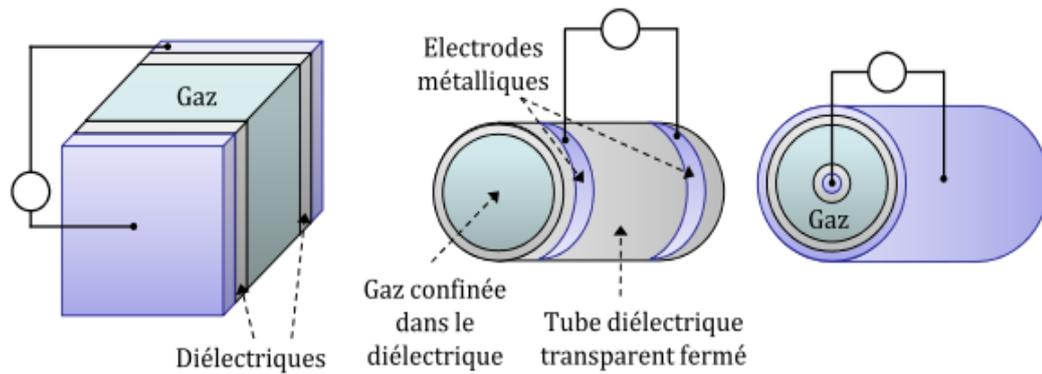


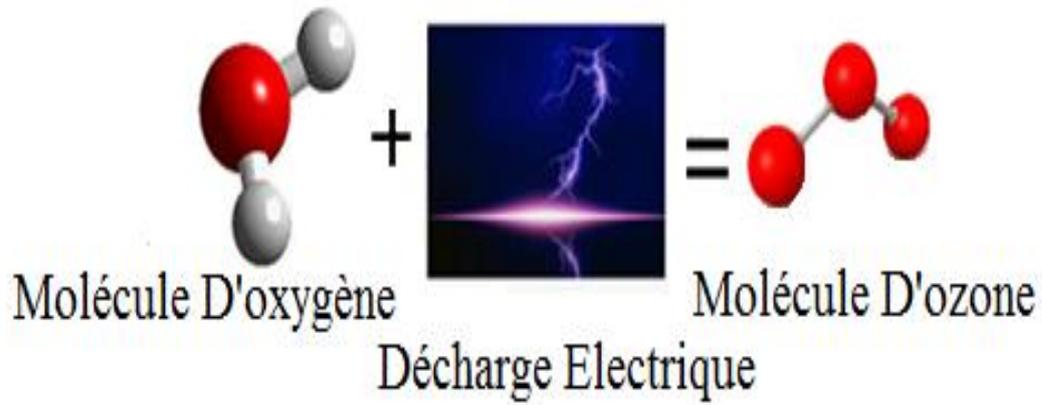
Figure 1.21 : Domaine d'applications des excilampes [47]



**Figure 1.22 :** Différentes configurations des excilampes pour le rayonnement UV, de gauche à droite, configuration planaire, un cylindre diélectrique et géométrie coaxiale [56]

### 1.9. Conclusion

Dans ce premier chapitre, nous avons exposé brièvement les concepts de base des décharges électriques, à savoir les différents régimes de décharges électriques dans les gaz, la classification des plasmas et le domaine d'application de la décharge à barrière diélectrique (DBD). Nous avons présenté une explication sur le principe de fonctionnement d'une DBD et l'application importante de la production d'ozone, à partir de l'oxygène pure. Le chapitre suivant sera consacré à décrire les applications les plus importantes de l'ozone généré par DBD.



## Chapitre 2

### L'Ozone et ses applications

# 2

## L'ozone et ses applications

### 2.1. Généralités

Après que l'ozone était identifié en 1839 comme un nouveau composé chimique, Werner Siemens, en 1857, a proposé une méthode efficace pour la production d'ozone en faisant passer l'air ou l'oxygène à travers une décharge à courant alternatif délimité par au moins une barrière diélectrique. la décharge a un aspect filamentaire (micro-décharge= filament). Le nombre de micro-décharge par unité de surface des électrodes et le temps dépendent de la puissance. Leur intensité (densité d'énergie, charge transférée), est déterminée par l'intervalle inter-électrode, la pression et des propriétés du diélectrique [57].

**Remarque :** environ 80% à 95% de l'énergie sera convertie en chaleur, et doit être éliminée par l'électrode reliée à la terre, généralement par le biais d'une eau de refroidissement.

#### a. Réaction cinétique de l'ozone.

Le contrôle des conditions du plasma à l'intérieur de la colonne de la micro-décharge est d'une importance capitale pour optimiser la cinétique des réactions de formation de l'ozone. Pour une composition de gaz et une densité de puissance déterminées, cela peut être réalisé en ajustant les paramètres de la pression, et ou intervalle, ainsi que les propriétés de la barrière diélectrique (permittivité, épaisseur) et le circuit d'alimentation. Les conditions du plasma dans la micro-décharge doivent être optimisées pour l'excitation et la dissociation des molécules d'oxygène et d'azote. Dans un premier temps, une grande partie de l'énergie acquise par les électrons sous l'action du champ électrique est utilisée pour l'excitation atomique et moléculaire. Ensuite, se produit la dissociation des particules.

Le temps nécessaire pour la formation d'ozone à partir de l'oxygène à pression atmosphérique est de quelques microsecondes.

Les réactions indésirables de disparition de l'ozone (dissociation des molécules d'ozone) fixent une limite supérieure sur la concentration de l'ozone. L'optimisation des propriétés de la

micro-décharge du processus de la formation d'ozone doit trouver un compromis avec les pertes d'énergie excessives

### **b. Aspects techniques de la production industrielle d'ozone :**

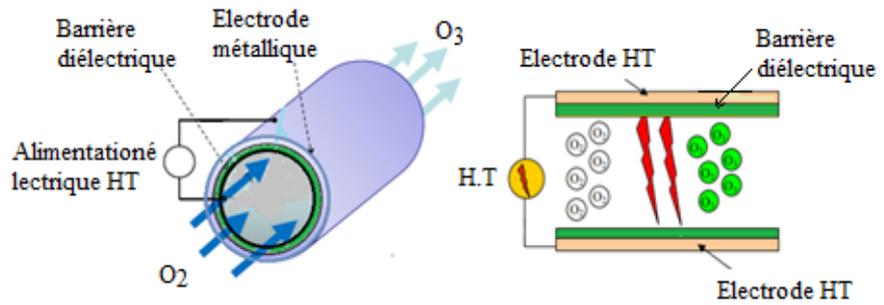
Les premières grandes installations d'ozone utilisant l'ozone pour la désinfection de l'eau potable ont été construites en 1897 à Paris, 1904 à Nice et 1910 à Saint-Petersbourg. L'énergie de la décharge transforme l'air, ou plutôt l'oxygène de l'air, en ozone. Des plaques diélectriques ou des tubes diélectriques en verre ont été utilisés. Plus récemment, la production industrielle d'ozone a profité considérablement d'une meilleure compréhension des processus de formations par DBD, y compris les moyens d'adapter les propriétés des micro-décharges. En outre le remplacement la fréquence du réseau par des fréquences élevées, ayant pour avantage d'utilisation des tensions inférieures pour une puissance déterminée. Cela a conduit à la réduction de la couche diélectrique. En outre, la densité de puissance a été sensiblement augmentée. Par conséquent, des taux de productions d'ozones beaucoup plus élevés sont atteints avec des concentrations encore plus grandes.

La plupart des techniques de générateurs d'ozone cylindriques utilisent des tubes à décharge d'environ 20-50mm de diamètre et de 1-3m de longueur. Le matériau diélectrique favori a longtemps été le verre borosilicaté. Dans de nombreuses techniques de générateurs d'ozone des tubes en verre Pyrex(Duran), fermés d'un côté, sont montés à l'intérieur de tubes en acier inoxydable de diamètre légèrement plus large, l'intervalle inter-électrodes étant de l'ordre de 0.5-1 mm.

Les tolérances géométriques des tubes d'acier et de verre ainsi que les procédures de montage des tubes en verre sont très importantes et à prendre avec soin. Des écarts d'intervalle par rapport à la conception ont une influence importante sur les propriétés de la micro-décharge. Les revêtements métalliques, par exemple, films d'aluminium minces, à l'intérieur des tubes de verre servent comme des électrodes à haute tension, qui sont mises en contact avec la HT par des brosses en métal (figure 2.1)

### **2.2. Production d'ozone par DBD**

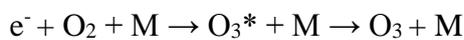
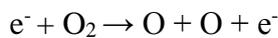
L'ozone est généré quand des molécules d'oxygènes sont exposées à une énergie puissante. Soumis à une décharge électrique l'oxygène est converti en molécule d'ozone. C'est ce troisième atome additionnel qui fait de la molécule d'ozone un oxydant puissant. La désinfection est assurée lorsque cet atome est libéré.



**Figure 2.1.** Représentation schématique d'un générateur d'ozone à D.B.D volumique

### Equation de formation d'ozone :

Dissociation de  $O_2$  suivie de formation d'ozone



$M = O, O_2, O_3, N_2 \dots$

### 2.3. Caractéristiques de l'ozone

L'ozone est un purificateur que l'on retrouve dans la nature. C'est un gaz bleuté et odorant, forme très instable et réactive de l'oxygène. Qui se forme naturellement dans la stratosphère sous l'action du rayonnement (U.V), par la foudre, ou lors d'orage, sur les molécules d'oxygène. La formation de l'ozone se fait en brisant la molécule d'oxygène dans l'air  $O_2$ , qui devient nombre impair, instable et qui cherche à se recombinaison en  $O_3$

- Gaz :  $O_2 + O \xrightarrow{\text{énergie}} O_3$
- Demi-vie : 30mn
- Ozone plus lourd que l'air (densité par rapport l'air : 1,657)
- 1886 : premier essais pour désinfection
- 1907 : Nice, eau de la municipalité

**Tableau 2.1.** Caractéristique de l'ozone [60]

Propriété	Ozone
Formule moléculaire	$O_3$
Masse moléculaire	47.998g/mol
Apparence	Gaz bleu pale
Densité à $0^\circ C$ et 1013 mbar	$2.14 kg O_3/m^3$
Densité relative	$1.7 kg/m^3$

Solubilité à 20°C	570 mg/l
Température critique	-12.1°C
Pression critique	5460 kPa
Point de fusion	-197.2°C
Point d'ébullition	-119.5°C
Energie	142.3kJ/mol (34.15 kcal/mol)

**Tableau 2.2.** Potentiels redox des produits oxydants employés dans l'industrie Oxydant (réactif) potentiel (redox) (V) à 25°C [61]

Espèce	Formule	Potentiel d'oxydation	Notes
Fluor	F	3.03	explosif dans l'eau
Radical Hydroxyle	OH <sup>-</sup>	2.80	- demi-vie très courte (nanosecondes) - peut être créé à l'aide d'ozone, de peroxyde d'hydrogène et de lumière UV
Oxygène Atomique	O	2.42	- se combine rapidement avec lui-même pour former O <sub>2</sub> , ou se combine avec une molécule de O <sub>2</sub> pour former O <sub>3</sub> - peut être créé via une décharge corona et une génération d'ozone UV
Ozone	O <sub>3</sub>	2.07	- excellent oxydant dans l'eau ou l'air - retourne à l'oxygène - idéal pour les réactions de synthèse chimique et d'ozonolyse
Peroxyde d'hydrogène	H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	1.78	application liquide seulement
Radical Perhydroxyle		1.70	
Permanganate		1.68	
Dioxyde de Chlore	ClO <sub>2</sub>	1.57	- utilisé principalement pour le blanchiment du bois de pâte
Acide Hypochloreux	HOCl	1.49	- ingrédient principal dans les nettoyants pour cuvettes de toilette - peut dégager du chlore gazeux toxique
Chlore	Cl <sub>2</sub>	1.36	- très toxique et toxique - odeur désagréable
Brome	Br	1.09	
Iode	I <sub>2</sub>	0.54	

**Remarque :**

Le potentiel d'oxydation indique la mesure d'un oxydant et sa capacité d'oxyder le matériel organique et inorganique. Plus la valeur du redox est positive plus l'action de désinfection par l'oxydant est efficace. Le taux potentiel de réduction de l'ozone est 2.07 ce qui fait un oxydant de choix pour la neutralisation des bactéries, virus et pathogènes.

**2.3.1. Instabilité de l'ozone****Tableau 2.3.** Instabilité de l'ozone

	<b>Demi-vie</b>
Gaz	20 min
Eau, pH=6	20 min
Eau, pH=7	15 min
Eau, pH=8	5min (instable)

**Remarque:**

-Demi-vie : période pendant laquelle la concentration d'ozone diminue de moitié, à cause de la présence de bactéries et autres contaminants dans l'air.

- Dégradation naturelle, due à l'instabilité chimique du composé.

Les réactions d'oxydations avec les odeurs créent également des composés dégradant l'ozone- l'efficacité de l'ozone décroît rapidement à des valeurs de pH et de température élevées. Ainsi, à la température constante, après 15minutes de contact « eau – ozone», il reste 80% de résiduel à pH=7 mais seulement 8% à pH=8.

Selon le tableau ci-dessous, le facteur qui influence le plus la demi-vie de l'ozone est la température. De plus l'ozone est moins soluble dans l'eau et moins stable lorsque la température augmente.

**Tableau 2.4.** Demi-vie d'ozone en fonction de la température et à la pression atmosphérique dans l'air sec et dans l'eau (pH=7) [64]

Air		Dissous dans l'eau (pH 7)	
Température (°C)	Demi-vie	Température (°C)	Demi-vie
-50	3 mois	15	30 min
-35	18 jours	20	20 min
-25	8 jours	25	15 min
20	3 jours	30	12 min
120	1,5 heure	35	8 min
250	1,5 secondes	-	-

#### 2.4. Choix des agents de désinfection

Il existe quelques méthodes de désinfection autres que celle utilisant l'ozone le tableau ci-dessous nous présente ces méthodes et leurs avantages et inconvénients par rapport à l'ozone.

**Tableau 2.5.** Applications potentielles des principaux désinfectants

Désinfectant	Unités	Désactivation		
		2-log	3-log	4-log
Chlore	mg.min/l	3	4	6
Chloramine <sup>2</sup>	mg.min/l	643	1,067	1,491
Dioxyde de Chlore <sup>3</sup>	mg.min/l	4,2	12,8	25,1
Ozone	mg.min/l	0,5	0,8	1,0
UV	mW.s/cm <sup>2</sup>	21	36	non disponible

#### 2.5. Applications du traitement d'ozone dans l'eau et l'air

Les applications de l'ozone dans l'industrie alimentaire sont principalement liées à la décontamination des surfaces et au traitement de l'eau. L'ozone est utilisé pour inactiver la microflore de contaminants sur la viande, le poisson, les fruits, les légumes et les aliments secs.

**Tableau 2.6.** Applications de l'ozone dans l'eau

<b>Application</b>	<b>Concentration O<sub>3</sub> (ppm)</b>	<b>Temps de contact (mn)</b>
Eau osmose inverse	0.3-0.5	4-5
Eau potable	1.0 -2.0	5-10
Piscine	0.3 – 0.7	1
Lavage de fruits de mer	0.1 – 0.15	1-2
Lavage de fruits, légumes	0.2 -0.4	1-5
Hydroponique	0.1-0.2	2-5
Tours de refroidissement	0.2-0.5	2
Lavage pré-chirurgie	3-5	3-5

L'ozone est un agent antimicrobien puissant pouvant être utilisé dans l'industrie alimentaire. La haute réactivité, la pénétrabilité et la décomposition spontanée en un produit non toxique l'oxygène font de l'ozone un désinfectant viable pour assurer la sécurité microbiologique des produits alimentaires.

**Tableau 2.7.** Application l'ozone dans l'air [67]

<b>Contaminant</b>	<b>Applications</b>	<b>Concentration O<sub>3</sub></b>
Bactérie :RhisoctaniaSolani- PhitophthoraSolani	Viande	0.1 ppm
Ethylene	Fruits	0.05 ppm
Spores	Fromage	0.02 ppm
Salmonella	Œufs	0.1 ppm
Moisi	Amidon, farine, paille, graine	0.05 ppm
Graisses	Coton, laine	0.05 ppm

**Tableau 2.8.** Avantages et inconvénients des différentes techniques de désinfections

CRITÈRES	OZONE	CHLORE	U.V	μFILTRATION
<b>Grandeur de l'installation</b>	Grande	Grande	Petite-grande	Très petite
<b>Investissement</b>	Important	Important	Moyen	Faible
<b>Entretien</b>	Faible	faible	Moyen	Important
<b>Utilisation</b>	Complexe	complexe	Simple	Simple
<b>Rémanence</b>	Moyenne	forte	Faible	Moyenne
<b>Goût/odeur</b>	Nul	caractéristique	Nul	Nul
<b>Efficacité germicide</b>	Très bonne	bonne	Bonne	Bonne
<b>Inefficace contre</b>	aucun	Virus* protozoaires	Algues Moisissures**	Virus

**Remarque :**

L'ozone est un désinfectant très efficace par rapport au chlore, ne peut pas être stocké, il est produit et utilisé sur place. L'ozone dans sa phase gazeuse est un excellent désodorisant efficace dans de multiples environnements, et élimine les virus, bactéries. Dans le traitement de l'eau potable, et des eaux usées. L'ozone est non rémanent suite à sa durée de vie très courte qui est de l'ordre de 30 mn.

L'ozone a la capacité prouvée de convertir des matières organiques en matières biodégradables. En conséquence en combinant l'oxydation, le pouvoir oxydant de l'ozone avec le traitement biologique ultérieur, on peut produire de l'eau potable à partir d'eaux usées, d'une façon performante et plus économique que les autres procédés utilisés.

**2.7. Différents procédés artificiels de génération d'ozone**

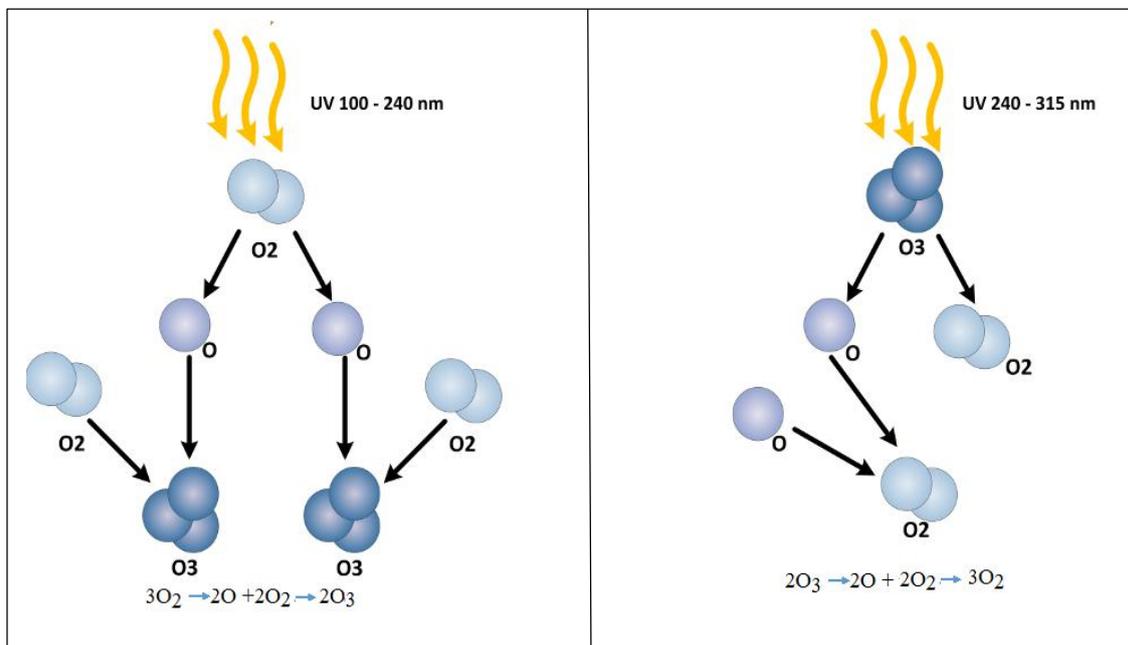
Il existe trois procédés de génération d'ozone adaptés à un usage technique [66]

- 1/ la génération d'ozone par rayonnement UV
- 2/ la génération d'ozone par électrolyse.
- 3/ la génération d'ozone par décharge électrique.

### ➤ Génération d'ozone par rayonnement UV

L'ozone se génère par photodissociation de l'oxygène, c'est un gaz qui se trouve dans la stratosphère (ayant le rôle de couche protectrice de la planète contre les effets des rayons UV) ou dans la troposphère (comme polluant secondaire résultant de processus de photo-oxydation des NOx et des COV). L'ozone est une molécule peu stable, faiblement liée et susceptible de réagir de manière exothermique avec toutes sortes d'espèces chimiques [90].

La création de l'ozone par photodissociation de l'oxygène est le principal processus de formation de l'ozone stratosphérique, connue sous le nom couche d'ozone (mécanisme de Chapman)



**Figure 2.2.** Formation naturelle de l'ozone      **Figure 2.3.** Destruction naturelle de l'ozone [90]

En haute altitude, l'action des rayons UV émis par le soleil sur les molécules d'oxygène, convertit l'énergie thermique (radiante) injectée dans l'air en énergie chimique (l'ozone), par un mécanisme de formation de l'ozone par photodissociation de l'oxygène (Figures 2.2-2.3).

L'ozone peut être généré par les rayons UV naturellement ou artificiellement :

➤ **Rayons naturels UV :**

L'ozone est généré naturellement soit par les rayons UV naturels soit par les rayons UV de la foudre.

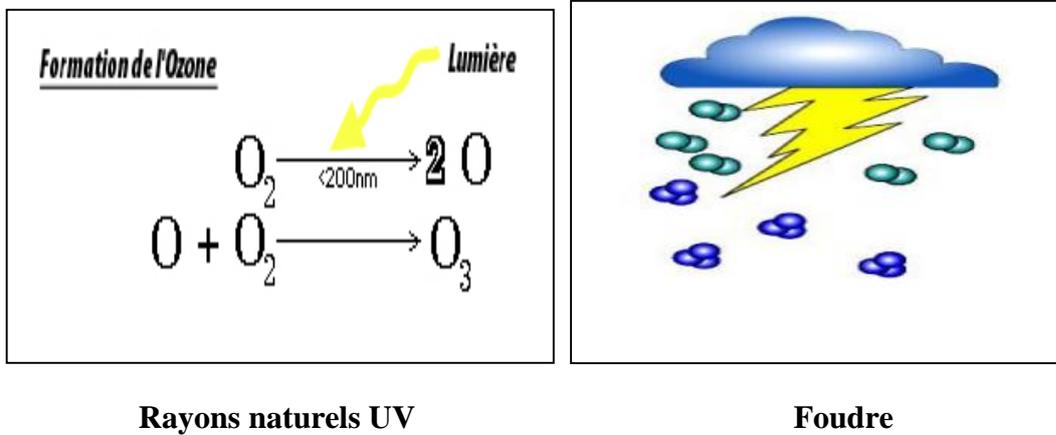


Figure 2.4. Génération d'ozone par moyens naturels

➤ **Rayons artificiels lampe UV :**

Les rayons UV dont la longueur d'onde (140 à 190 nm) produits par lampes à UV transforme l'oxygène en molécule d'ozone [72].

Les rayons ultraviolets qui sont utilisés pour la photogénération d'ozone. Le mécanisme de production d'ozone par voie photochimique est similaire à ce qui se déroule dans la stratosphère, c'est-à-dire que les atomes d'oxygène, formés suite à la photodissociation de l'oxygène moléculaire par rayonnement UV de faible longueur d'onde ( $\lambda \leq 240$  nm), réagissent avec des molécules d'oxygène pour former de l'ozone.

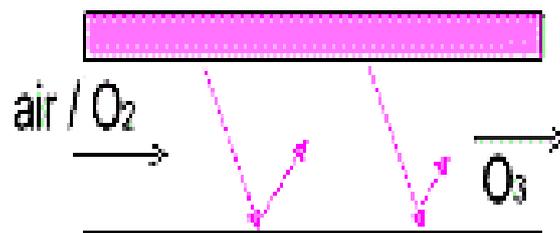


Figure 2.5. Génération d'ozone par rayons UV [72]

**IMPORTANT :**

le PH mesure la concentration en ion  $H^+$  et qualifie le degré d'acidité ou de basicité, pour l'eau doit être compris entre 7 et 7,4.

➤ **Génération artificielle d'ozone**

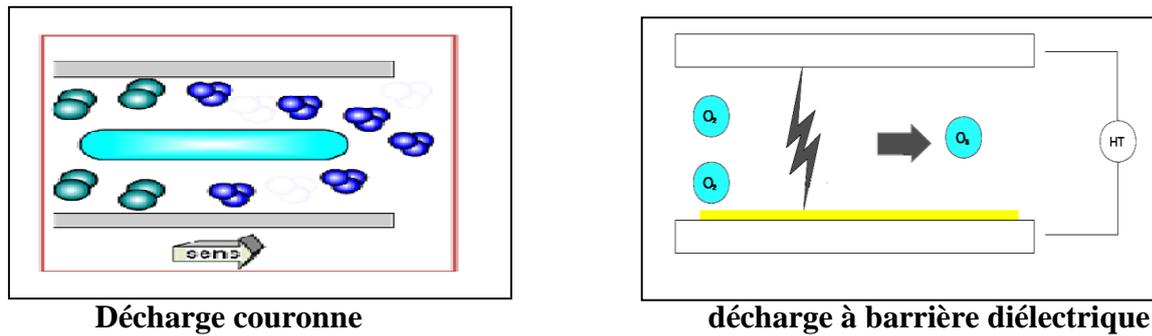


Figure 2.6. Production artificielle d'ozone (couronne, DBD)

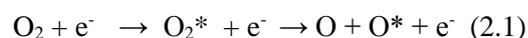
En appliquant à un intervalle gazeux un champ électrique suffisamment important, les processus d'avalanche électronique interviennent, conduisant à la création d'un milieu ionisé. L'énergie injectée dans le gaz est alors convertie : en énergie électrique : dérive et collection d'ions aux électrodes thermique : échauffement local du gaz-chimique : production d'espèces réactives primaires, par phénomène d'ionisation, dissociation, excitation, attachement électronique, recombinaison... conduisant à des espèces gazeuses stables. Pour les différentes applications on utilise un plasma froid selon certaines configurations permet de favoriser la conversion de l'énergie électrique en énergie chimique au détriment du thermique. L'ozone est utilisé pour différentes applications industrielles.

## 2.8. Mécanisme de formation de l'ozone

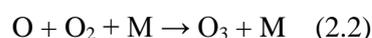
L'ozone est produit industriellement soit à partir de l'oxygène pur soit à partir de l'air sec [73]

➤ **Dans l'oxygène pur (O<sub>2</sub>)**

I. Schématiquement, l'ozone est produit en deux étapes. Dans un premier temps la dissociation des molécules d'oxygène par impacts avec les électrons suffisamment énergétiques de la décharge génère des atomes d'oxygène. Ce mécanisme procède par l'intermédiaire d'états excités de O<sub>2</sub>. les atomes d'oxygène sont produits dans l'état fondamental O et dans un état excité O\*. les atomes d'oxygène excités O\* sont très rapidement convertis en O par désexcitation collisionnelle.



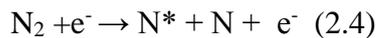
L'ozone est ensuite formé par association d'un atome et d'une molécule d'oxygène par la réaction à trois corps



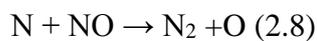
où M est le partenaire de collision (M=O<sub>2</sub>,O, O<sub>3</sub>)

➤ **Dans l'air sec contient (80% N<sub>2</sub>, 20%O<sub>2</sub>)**

L'azote ne doit pas être considéré seulement comme un gaz (neutre) vis-à-vis de la formation de l'ozone, il participe activement à la production d'oxygène atomique, première étape dans la formation de l'ozone. Comme on l'a vu précédemment pour l'oxygène.les électrons énergétiques de la décharge vont exciter et dissocier les molécules d'azote :



Ces deux dernières espèces (N<sub>2</sub><sup>\*</sup>, N<sup>\*</sup>) vont interagir fortement avec les molécules d'oxygène pour produire par l'intermédiaire de différents mécanismes de grandes quantités d'atomes d'oxygène :



L'ozone est ensuite formé à partir du mécanisme de la réaction(2). En raison de la réactivité de l'azote, la production d'ozone à partir d'air sec est environ la moitié (et non 20%) de celle obtenue à partir de l'oxygène pur.

**Remarque:** L'oxygène joue un rôle capital dans tous les mécanismes de la vie [03]. L'air naturel à proximité du sol présente la composition moyenne approximative suivante (Tableau 2.8).

**Tableau 2.8.** Composition moyenne de l'air naturel

<b>Oxygène (O<sub>2</sub>)</b>	environ 21%
<b>Azote (N<sub>2</sub>)</b>	environ 78%
<b>Gaz divers (CO<sub>2</sub>, hydrogène, gaz rares)</b>	environ 1%

L'ozone est produit à partir de l'oxygène. Comme l'air que nous respirons est d'environ 20% d'oxygène et que le reste est composé majoritairement d'azote, cela limitant la quantité d'ozone produite. L'utilisation d'un concentrateur d'oxygène permet de produire jusqu'à 95% de pureté d'air. Qui élimine l'azote, le dioxyde de carbone ainsi la production d'ozone est propulsée de plus de 4,5 fois. Pour des applications nécessitant de moins grandes quantités d'ozone, l'utilisation d'un accessoire d'air est nécessaire pour enlever l'humidité contenu dans l'air, cela empêche la formation d'acide nitrite qui, une fois asséchés, salissent les cellules d'ozones.

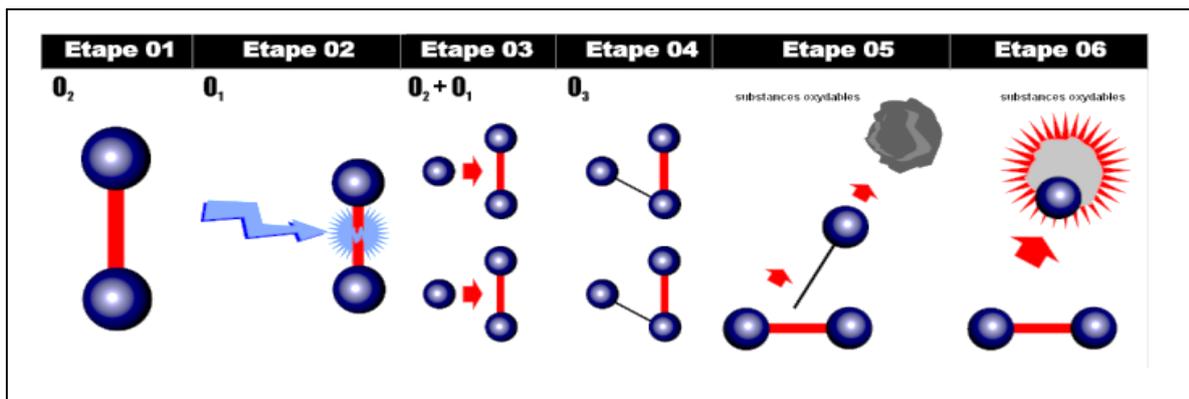


Figure 2.7. Différents étapes de formation d'ozone [75, 76, 77]

- 1/ la molécule d'oxygène comprend deux atomes d'oxygène ( $O_2$ )
- 2/ la haute tension brise la liaison de la molécule d'oxygène
- 3/ les atomes d'oxygènes libérés (O) s'unissent aux molécules ( $O_2$ )
- 4/ on obtient la molécule d'ozone qui comprend trois atomes d'oxygènes
- 5/ la molécule d'ozone étant instable, libère un atome (O)
- 6 /résultat, l'atome d'oxygène libéré participe à l'oxydation

## 2.10. Matériaux résistants à l'ozone

Vu que l'ozone est très agressif, il y a une liste de matériaux résistants à l'ozone, en phase gazeuse et en phase liquide [78].

Tableau 2.9. Matériaux résistant à l'ozone

<b>Matériaux résistants à l'ozone en Phase gazeuse.</b>	<b>Verre, Téflon (PTFE, PVDF, PFA), Acier inox 316L Silicone, Titane, Polyuréthane, Polycarbonate</b>
<b>Matériaux résistants à l'ozone en Phase liquide.</b>	Verre, Téflon (PTFE, PVDF, PFA), Acier inox 316L , PVC, Plexiglas, Béton, Silicone, Aluminium, Polysulfure
<b>matériaux résistants pour les joints d'étanchéité</b>	Téflon (PTFE, PVDF, PFA), Kynar, viton, Kalrez,etc.
<b>Matières non résistantes à l'ozone gazeux ou dissous dans l'eau</b>	Polypropylène, Acier, Zinc, Fer, Cuivre et autres métaux oxydables, Nylon, Magnésium, Néoprène, Polyamide

### 2.11. Méthodes physiques et leurs applications contre les contaminations

Il existe plusieurs méthodes physiques appliquées contre les contaminants (Fig.2.8).

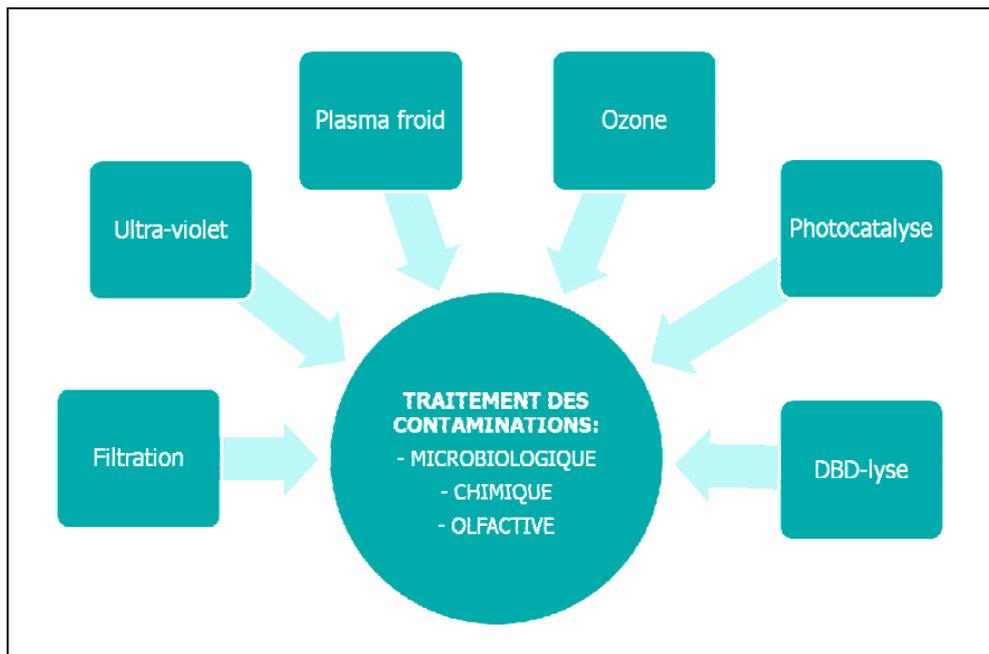
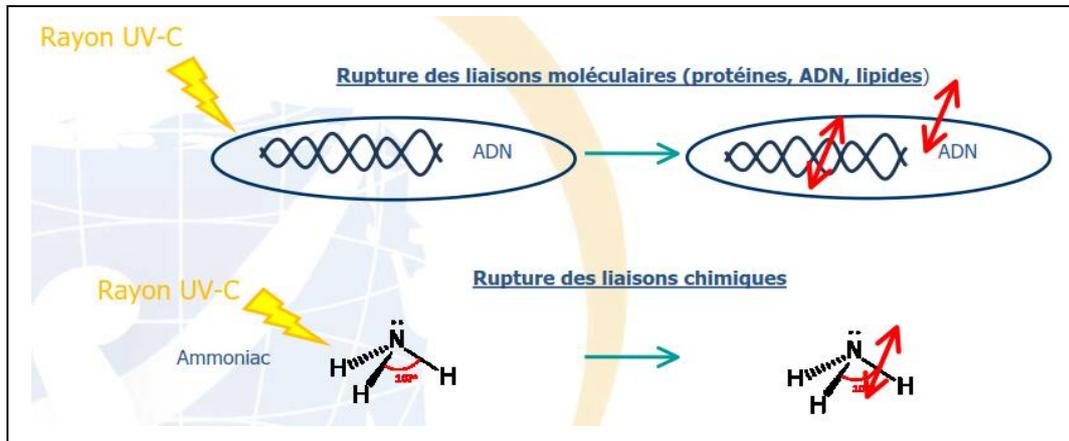


Figure 2.8. Traitement des eaux par ozone [79]

➤ **Ultraviolet (UV) :**

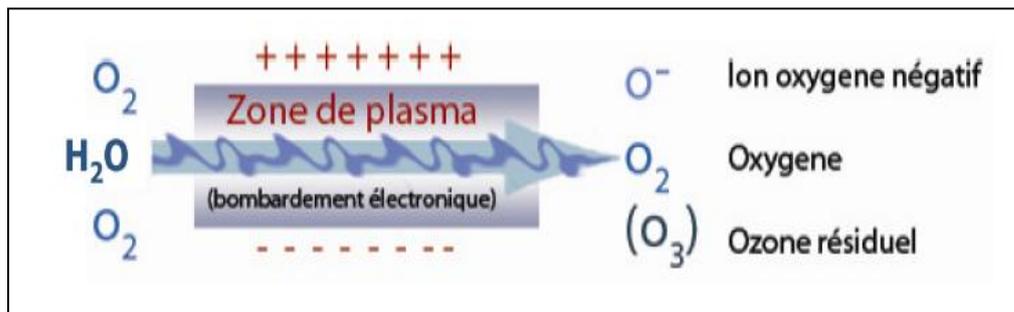
Les rayons UV agissent sur les liaisons moléculaires, comme montre à la Fig.2.9.



**Figure 2.9.** Action des rayons UV sur les liaisons moléculaire et chimiques [79]

L'énergie apportée par le rayonnement UV permet de modifier l'ADN des cellules pour seulement en stopper la reproduction. On parle de rupture des liaisons moléculaires ou des liaisons chimiques et si cette énergie est suffisante, de les détruire.

➤ **Plasma froid**



**Figure 2.10.** L'effet du plasma. [79]

L'ionisation de l'oxygène de l'air ambiant se produit dans un réacteur afin d'obtenir des ions à fort pouvoir oxydant (Fig.2.10).

➤ **Générateur d'ozone :**

Une décharge silencieuse produit efficacement un grand volume d'ozone. Il se produit continuellement sans étincelles lorsqu'une haute tension alternative est appliquée entre deux électrodes placées parallèlement l'une de l'autre à travers un matériau diélectrique. Lorsque l'air sec ou l'oxygène circule entre les électrodes, des atomes d'oxygène (O) sont ionisés et de l'ozone (O<sub>3</sub>) est formé par recombinaison d'atomes d'oxygène ionisé (O) et de molécules d'oxygène non ionisé (O<sub>2</sub>).

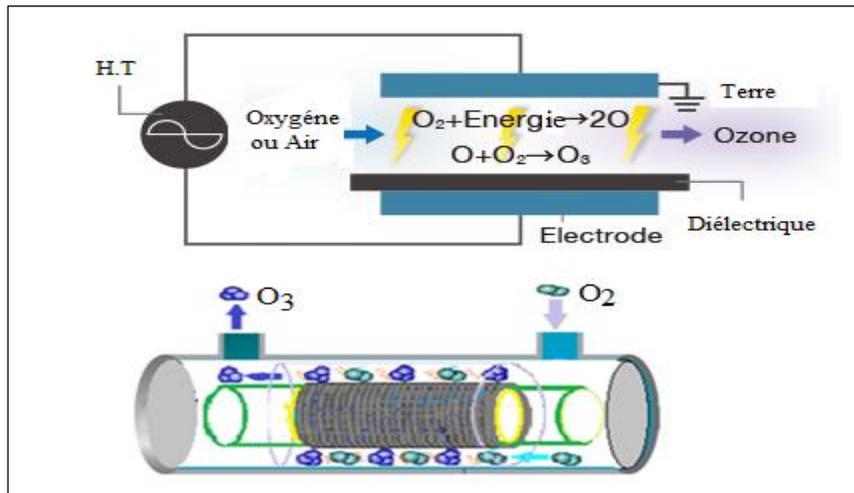


Figure 2.11. Générateur d'ozone par décharge électrique. [79]

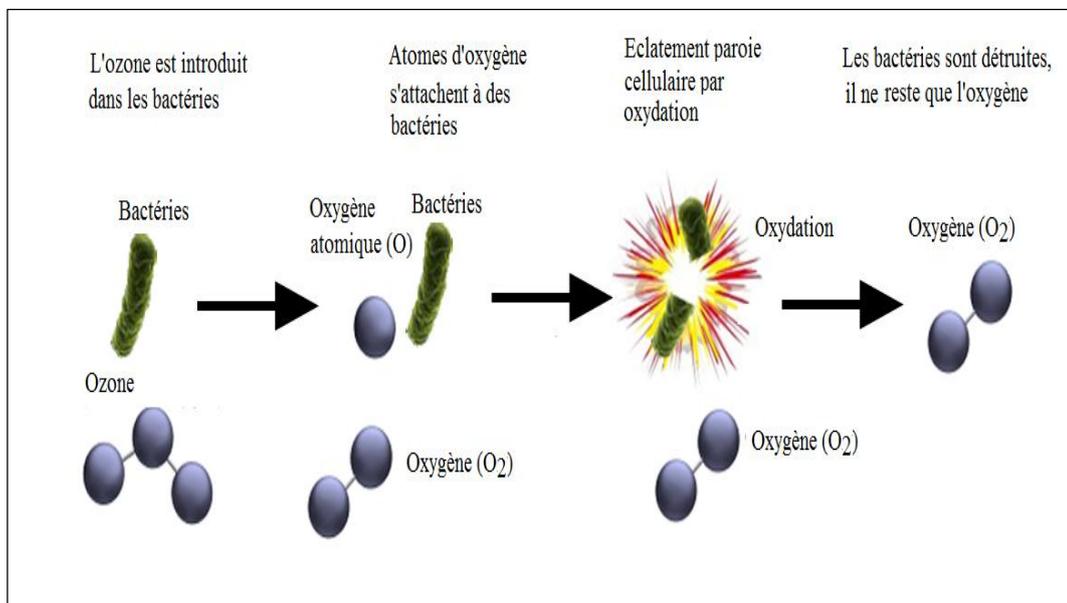


Figure 2.12. Effet d'ozone sur les bactéries. [79]

➤ **Principe de la photo-catalyse :**

Le traitement solaire comme alternative à la désinfection par chloration de l'eau potable. La démarche est basée sur l'étude de l'effet du rayonnement solaire sur des micro-organismes et des polluants organiques tests en présence de photo-catalyseurs comme le  $\text{TiO}_2$ . Utilise un catalyseur et une lampe UV. L'oxygène et l'eau forment des radicaux libres  $\text{O}_2^\ominus$  et  $\text{OH}^\ominus$  en présence d'un catalyseur soumis aux rayons UV. Ces radicaux libres ont un pouvoir oxydant supérieur aux ions. Le traitement n'est efficace qu'au contact du catalyseur dont les particules polluantes sont adsorbées à la surface du catalyseur.

➤ **Décontamination/purification de l'air :**

Ce procédé se déroule de la façon suivante :

- UV-C + catalyseur semi-conducteur (oxyde de Titane)

↓ Humidité de l'air

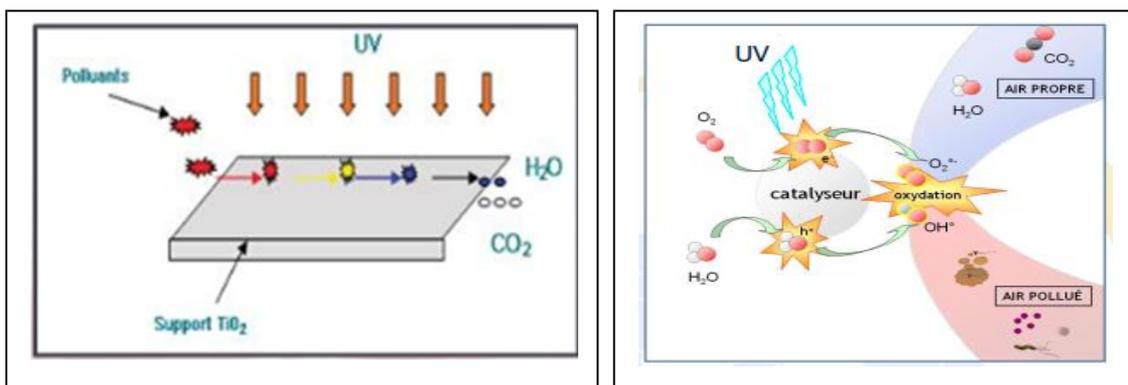
-Radicaux réactifs et oxydants ( $\text{OH}^\circ$ )

↓

Destruction des composés organiques adsorbés à la surface du catalyseur

↓

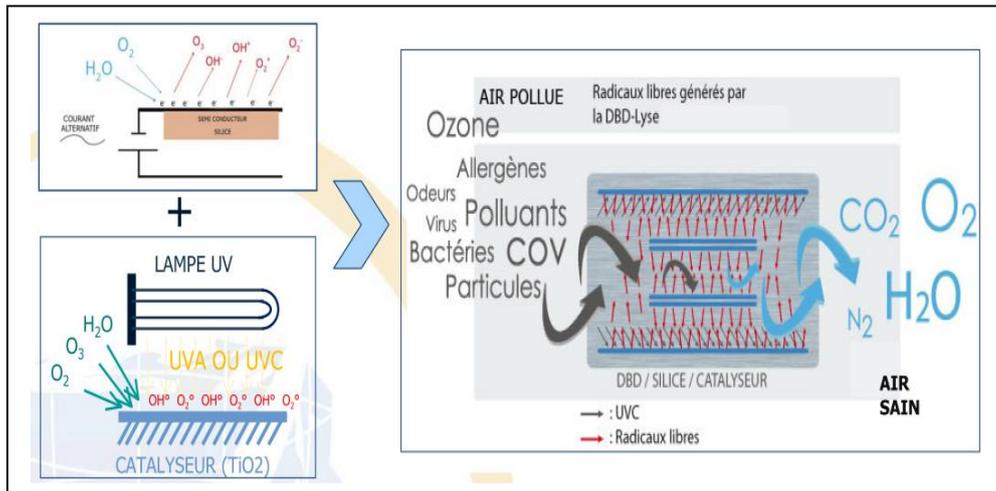
$\text{CO}_2$  et  $\text{H}_2\text{O}$



**Figure 2.13.** Traitement solaire en présence de photo-catalyse [79]

➤ **Traitement par DBD :**

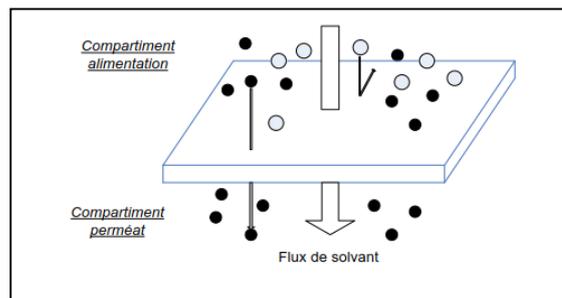
Le procédé DBD permet de découper toutes les molécules des agents contaminants (virus, bactéries, germes, moisissures, allergènes, COV, odeurs) par un procédé physico-chimique (DBD), dans une chambre de traitement (réacteur) avant de les minéraliser (recomposition en molécules stables existantes déjà dans l'air, azote, oxygène, eau, ...) pour reformer l'air original.



**Figure 2.14.** Traitement par DBD [79]

➤ **Filtration membranaire :**

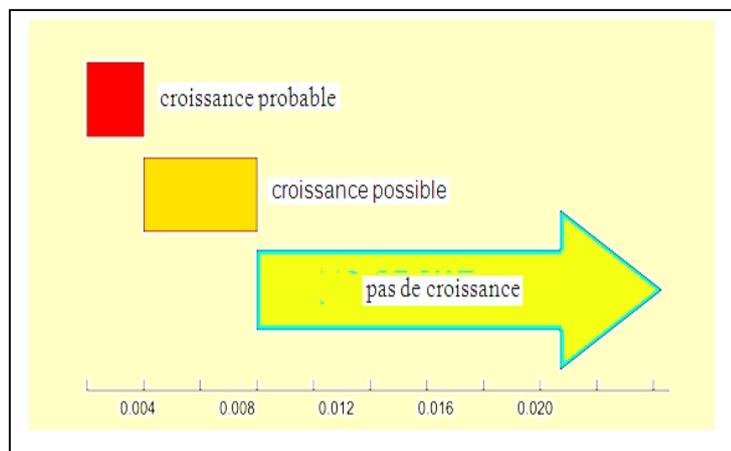
En opposant une barrière physique au passage des micro-organismes. Dans ce procédé, les polluants sont piégés par des membranes semi-perméables dont les diamètres des pores sont inférieurs à celui des molécules à éliminer [94].



**Figure 2.15.** Principe de la filtration membranaire frontale

• **Croissance microbienne en fonction de la concentration d’ozone :**

La croissance microbienne en fonction de la concentration d’ozone est montrée à la Fig.2.16.



**Figure 2.16.** Croissance microbienne en fonction de la concentration d’ozone [81]

## 2.12. Applications de l'ozone

Il y a de nombreuses applications de l'ozone.

- **Blanchisserie** : l'ozone est utilisé essentiellement pour le lavage de linge blanc dans les installations commerciales.
- **Industrie agro-alimentaire** : l'ozonisation de chambres froides le lavage de produit alimentaire à l'eau ozonée.
- **Application direct de l'ozone pour le stockage des produits agro-alimentaires** :
  - Extension de la durée maximum de stockage (conservation)
  - Contrôle de germes pathogènes (désinfections)
  - Ralentissement du processus de maturation des fruits et des légumes
- **Contrôle de germes pathogènes** :

La réduction du nombre pathogène est généralement en fonction du produit de la concentration  $C$  (mg/l ou ppm) par le temps (mn). Les germes sont comptés en terme UFC (unité formant colonie). Cette réduction est logarithmique. L'application constante de l'ozone n'élimine pas totalement les UFC mais les réduit continuellement leurs niveaux.

**Remarque** : Le traitement par l'ozone pourrait être dans l'aire ou l'eau, mais la valeur  $K$  dépend du milieu porteur (air ou eau)

- **Traitement d'aliments dans l'air ambiant** :

Les concentrations d'ozone typiques sont de l'ordre de 2 à 7 ppm. Pour des concentrations inférieur à 0,1, il pourrait stimuler la croissance bactérienne, et pour des valeurs supérieur 7 peut abîmer les fruits. La période de traitement pour des niveaux d'une réduction importante de germes pathogènes (virus, bactéries,..) varie de quelques heures à quelques jours. Par contre les champignons et moisissures exigent des concentrations d'ozones plus élevées pour des périodes de temps plus longues.

- **Ethylène et maturation de fruits et légumes** :

La maturation de fruits et de légumes et l'éclosion de fleurs seront retardés dans une atmosphère contenant de l'ozone. L'agent de maturation pour toute vie de plante est l'éthylène, un simple composé organique volatile (COV) produit par toutes les plantes et l'éthylène est oxydé et devient du dioxyde de carbone et de l'eau lorsqu'il réagit avec l'ozone. Après cette réaction, il y aura donc moins d'éthylène et d'ozone., ce qui entraîne le ralentissement de la maturation.

➤ **Traitement d'aliment dans l'eau :**

Une différence de base concernant les applications de l'ozone dans l'eau pour le traitement de produits agro-alimentaires est que le temps de contact de l'ozone avec le produit doit être très court en quelques mn. Pour Des concentrations d'ozones dans l'eau de 1-10ppm.

➤ **Micro-électronique :**

Les wafers destinés à la fabrication de circuits intégrés sont lavés avec de l'eau ozonée avec pour objectif l'élimination de traces éventuelles de matière organique.

➤ **Papeterie:**

L'ozone est employé comme blanchissant alternatif au chlore, et pour le traitement des eaux usées de papeterie. Nettoyage des conduites : l'eau ozonée est moyen simple à mettre en œuvre pour la destruction de biofilms dans des conduites.

➤ **Traitement de l'eau :**

L'ozone est un gaz de couleur bleutée qui varie selon sa concentration. Il est très réactif avec les molécules qui l'entourent et peut produire des explosions. Sa concentration au niveau du sol est de 0,005 ppm (parties par million) à 0,05 ppm. Il présente une odeur âcre, perceptible dès une concentration de 0,01 ppm. Lorsqu'il est mélangé à d'autres gaz, cette odeur perceptible disparaît. L'ozone présente de nombreuses applications dans le milieu professionnel. Il sert à la désinfection des eaux d'égouts et de piscine, au blanchiment des fibres textiles ou de pâte à papier, à la conservation de denrées alimentaires et à la stérilisation du matériel médical. Les salariés exposés sont ceux qui travaillent dans les imprimeries lasers, qui effectuent des soudures à l'arc ou qui utilisent des ultra-violets pour sécher des vernis.

### **2.13. Pourquoi les générateurs d'ozone ?**

La raison principale est qu'il ne peut pas être stocké et, doit donc être produit et utilisé sur place. L'ozone dans sa phase gazeuse est un excellent désodorisant efficace dans de multiples environnements, et contre de nombreuses mauvaises odeurs.

Dans le traitement de l'eau potable, et des eaux usées, l'ozone a la capacité prouvée de convertir des matières organiques en matières biodégradables. En conséquence, combinant l'oxydation le pouvoir oxydant de l'ozone avec le traitement biologique ultérieur, on peut produire de l'eau potable à partir d'eaux usées, d'une façon performante et plus économique que les autres procédés utilisés.

### 2.14. Désinfection

Les hauts niveaux d'ozone tuent des mites de poussière, coches, fourmis, cancrelats et même des punaises ! A la différence des pesticides, l'ozone se transforme en oxygène après qu'il ait fait son effet.

Éliminer le « tabac froid » et les odeurs. Les fumeurs ont besoin de l'ozone ! La fumée pénètre dans toutes les surfaces et supports, et les ruine. L'ozone oxyde ces substances polluantes et les élimine.

En principe l'ozone n'est rien d'autre que de l'oxygène auquel on ajoute un atome supplémentaire au moyen d'une décharge électrique à haute tension.

### 2.15. Actions de l'ozone

Dès qu'une molécule d'ozone entre en contact avec une matière oxydable, l'atome d'oxygène supplémentaire sera directement transféré à cette matière et s'y liera le plus rapidement possible. Cette oxydation (combustion par le radical d'oxygène) peut avoir lieu avec toute sorte de matière, visible et invisible, telles que virus, moisissure, bactérie et toutes sortes de micro-organismes. Du fait que l'atome supplémentaire d'oxygène se lie à la matière à oxyder, il ne restera plus de la molécule d'ozone qu'une molécule d'oxygène pur.

L'ozone est l'oxydant et le désinfectant disponible le plus fort pour le traitement de solutions aqueuses et des mélanges gazeux.

Bien que l'ozone soit seulement partiellement soluble dans l'eau, c'est suffisamment soluble et stable pour que son oxydation ou ses propriétés désinfectantes soient très efficaces. Après que l'ozone oxyde et désinfecte, il se décompose dans l'oxygène. Bien que l'ozone soit l'oxydant le plus fort disponible dans le commerce, il est très sûr de manipulation.

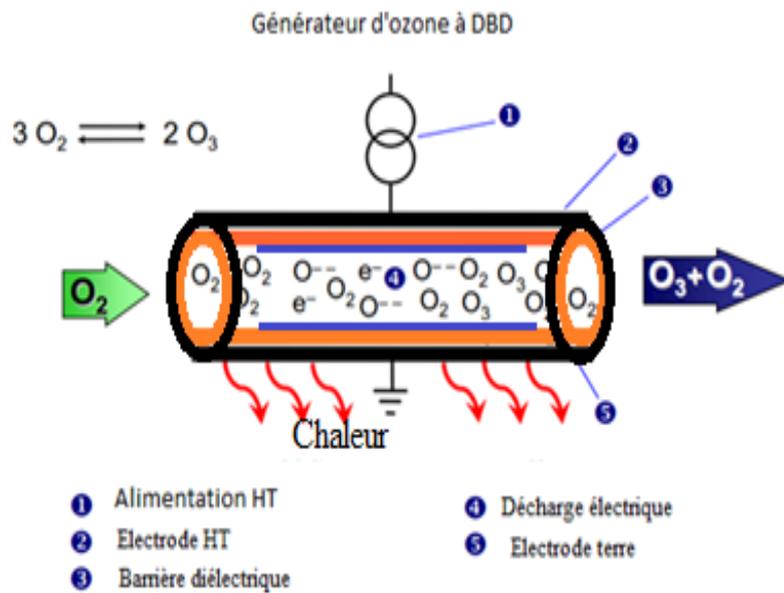
### 2.16. Conclusion

Dans ce présent chapitre nous avons présenté l'ozone et ses applications. Il est produit industriellement soit à partir de l'oxygène pur ou l'air sec par décharges à barrière diélectrique, rayons UV, décharges couronne. Et énuméré les propriétés de l'ozone pour le contrôle et le traitement des rejets, présente un intérêt important pour la dépollution. Notre travail se concentre sur le traitement de l'eau par l'ozone qui est un désinfectant très puissant. Élimination des bactéries, virus et autres matières organiques. L'ozone permet de désactiver les bactéries, virus, et autres matières organiques.

La désinfection par l'ozone est produite par la rupture des parois des cellules. L'ozone est un gaz ainsi qu'un bactéricide extrêmement efficace et entièrement naturel. Cette méthode est plus efficace que celle du chlore. Nous avons exposé les propriétés de l'ozone comme un excellent produit très efficace dans de nombreuses applications, les avantages et les inconvénients des différentes techniques de désinfection. L'ozone présente des solutions écologiques et économiques par rapport aux processus chimiques. Dans le prochain chapitre nous avons présenté notre générateur volumique modifié qui est une amélioration du dispositif. Dans le but d'augmenter le rendement énergétique En décrivant les paramètres qui le constitue.

# CHAPITRE 3

## Etude expérimentale d'une nouvelle configuration de générateur d'ozone



# 3

## **Etude expérimentale d'une nouvelle configuration de générateurs d'ozone**

### **3.1. Introduction**

Dans ce chapitre nous avons présenté en premier les paramètres de performances d'un générateur d'ozone. Ensuite, nous avons décrit les différents composants qui constituent la DBD volumique modifiée. Ce chapitre est principalement dédié à un travail expérimental proprement dit, à savoir le développement d'un générateur d'ozone à DBD modifiée.

La décharge à barrière diélectrique (DBD) est largement utilisée dans les applications industrielles à grande échelle, pour la production d'ozone, et pour plusieurs autres procédés industriels tels que le traitement de surface et les applications biomédicales [1-7]. La DBD volumique est la configuration primaire généralement utilisée pour la génération d'ozone. Actuellement, les générateurs d'ozone à DBD volumique sont principalement utilisés pour le traitement de l'eau, mais les générateurs d'ozone à DBD surfacique sont rarement fabriqués et utilisés dans l'industrie [8-13]. Par ailleurs, plusieurs études ont utilisé des DBD de surface et de volume pour la production d'ozone [14-25]. Un ozoneur à décharge électrique, dans lequel les décharges volumiques et les décharges surfacique peuvent se produire simultanément, a été proposé par Nomoto et al. [26]. Cet ozoneur à DBD modifiée s'est avéré être meilleur que les modèles de décharges surfacique et volumique, en termes d'efficacité énergétique. Le générateur développé dans cette référence est cylindrique, dont l'électrode métallique interne est une bobine en contact avec la paroi interne du tube en verre. De plus l'électrode extérieure mise à la terre fabriquée avec du laiton et séparé du tube de verre avec un intervalle de 1mm. Dans cette étude, la fréquence de travail est égale à 60 Hz.

Par ailleurs, K.Nassour et al. ont montré qu'un générateur d'ozone cylindrique avec une électrode interne maillé en acier inoxydable fournit une efficacité énergétique élevée. Ils ont trouvé que le modèle de décharge surfacique fournit un taux de production d'ozone beaucoup plus élevé qu'un model similaire cylindrique à décharge volumique.

En outre, Chen et al. ont développé un générateur d'ozone en utilisant une tige en acier inoxydable mise à la terre comme électrode interne, placée à l'intérieur d'un tube de verre [82]. Une mince feuille de cuivre a été enroulée autour du tube de verre et a été utilisée comme électrode externe. Le réacteur a été fabriqué en introduisant un matériau diélectrique granulaire à l'intérieur du tube de verre. L'énergie produite par le générateur est plus élevée que celle fournie par la configuration DBD volumique.

L'objectif de ce chapitre est la description d'une nouvelle géométrie de générateur à DBD surfacique. L'étude est une analyse paramétrique expérimentale d'une configuration à DBD cylindrique en insérant dans l'intervalle inter-électrodes un grillage en acier inoxydable dans l'espace de décharge de l'ozoneur. Le réacteur à DBD modifiée est similaire au réacteur à DBD classique à l'exception qu'un grillage en acier inoxydable qui est inséré dans l'espace de décharge, en contact étroit avec le tube de verre et l'électrode reliée à la terre, où le plasma est généré. En plus, vu les problèmes liés au traitement de l'eau [29], un skid mobile comprenant huit générateurs a été réalisé avec la configuration proposée pour le traitement des eaux usées.

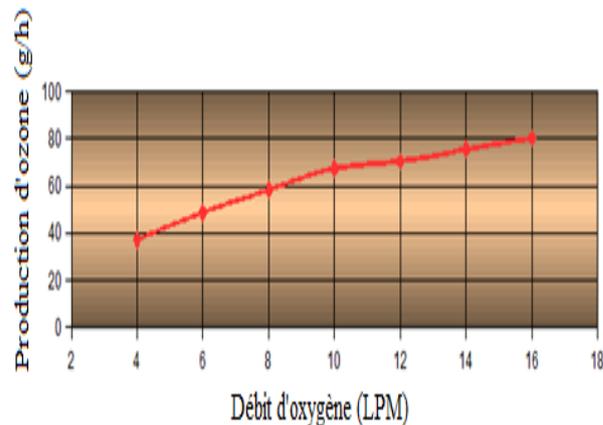
### 3.2. Mesure de l'efficacité des générateurs d'ozone

La concentration d'ozone résulte d'une mesure directe par le moniteur d'ozone (2B-106H). D'un autre côté, on doit mesurer les grandeurs suivantes :

- le taux de production d'ozone (taux  $O_3$ ) qui est une donnée importante qui permet d'estimer la capacité de production d'ozone d'une installation en fonction de temps.
- L'efficacité énergétique de l'ozoneur correspond au rapport entre la capacité de production des molécules d'ozone et la puissance consommée. Pour un meilleur rendement, la production doit être maximale en minimisant la consommation d'énergie.

#### 3.2.1. Production d'ozone en (g/h)

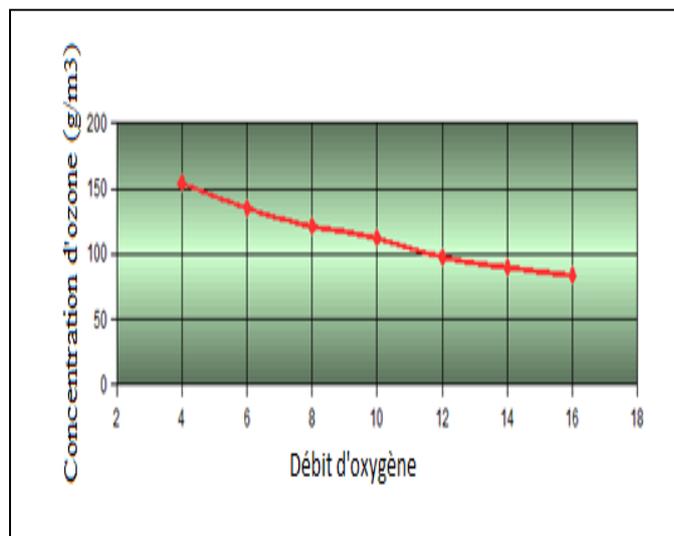
La concentration d'ozone s'exprime en g/l. A mesure que le débit de gaz d'alimentation à travers le générateur d'ozone augmente, la production d'ozone en (g/h) augmente normalement (Figure3.1)



**Figure 3.1 :** Variation de la production d'ozone en fonction du débit d'oxygène [84]

### 3.2.2. Concentration d'ozone en ( $\text{g}/\text{m}^3$ )

Lorsque le débit de gaz d'alimentation augmente à travers le générateur d'ozone, sa concentration en ozone diminue normalement (Figure 3.2). Ceci est dû à la diminution du temps du séjour de l'oxygène qui diminue en augmentant le débit et donc la vitesse d'écoulement du gaz.



**Figure 3.2 :** Variation de la concentration d'ozone en fonction du débit d'oxygène [84]

### 3.2.3. Effet de la fréquence sur la génération d'ozone

La concentration d'ozone produite est directement liée à la fréquence des décharges électriques entre électrodes. Ainsi, on distingue les générateurs d'ozone à fréquence standard (50Hz) et les générateurs à fréquence moyenne (200 – 400 Hz). Les générateurs à fréquence moyenne sont les plus courants notamment dans le traitement de l'eau, ils peuvent atteindre 4 à 6 % d'ozone à partir d'air (6 à 12 % avec un concentrateur d'oxygène) contre 1,5 à 2,5 % (3 à 4 % à partir d'oxygène) d'ozone par rapport aux générateurs à fréquence standard.

**Remarque :**

Les concentrateurs d'oxygène concentrent l'oxygène de haute pureté de l'air ambiant en purgeant l'azote de l'air.

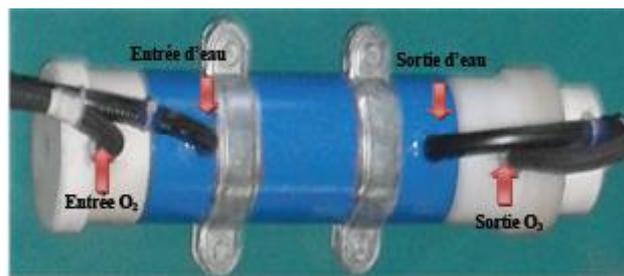
**3.3. Description des générateurs d'ozone utilisés**

Deux générateurs d'ozone différents ont été conçus et réalisés : un générateur à DBD volumique et un autre générateur à DBD modifiée.

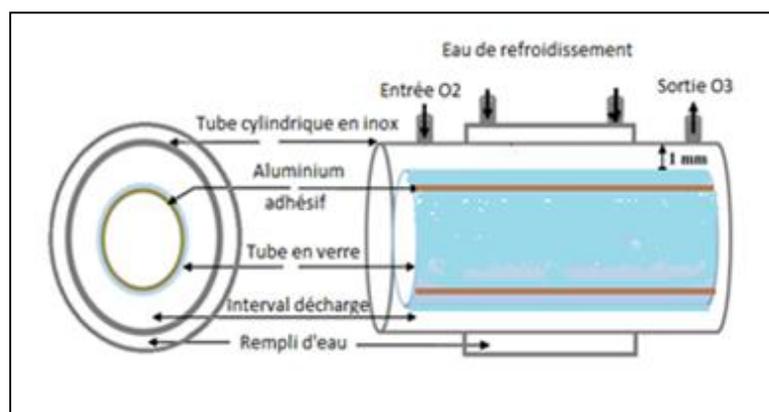
**3.3.1. Générateur d'ozone à D.B.D volumique (DBDV)**

Nous avons opté pour un type du réacteur similaire dans sa géométrie à celui réalisé par Nemmich et Nassour [85]. Nous avons choisi la configuration cylindrique, car elle présente une surface de décharge importante par rapport aux formes planes et une bonne flexibilité de l'écoulement du gaz (oxygène, ozone) qui permet une production d'ozone importante.

Ce réacteur comporte deux électrodes métalliques. L'électrode externe est un tube en inox relié à la terre, et l'autre électrode est une gaine en adhésif aluminium insérée à l'intérieur du tube en verre, celui-ci joue le rôle d'une barrière diélectrique. L'électrode interne est reliée à la haute tension. Le réacteur à DBD volumique comporte les éléments suivants :



a)

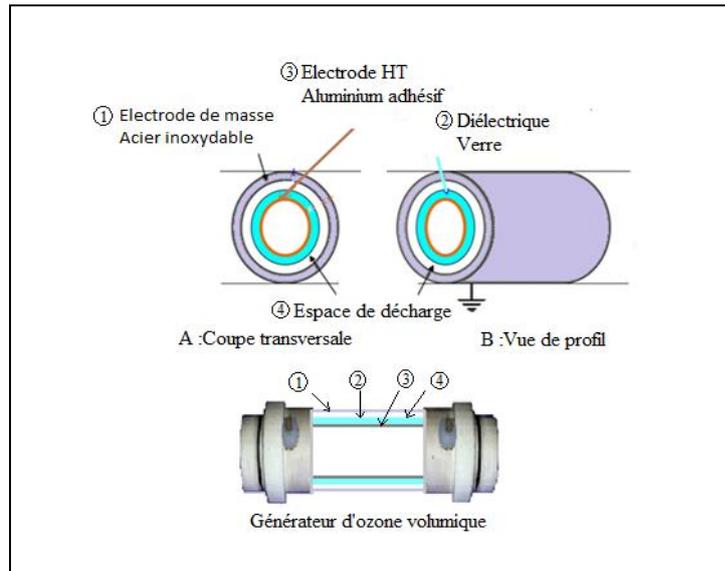


b)

**Figure 3.4 :** Générateur d'ozone à D.B.D volumique. a) Photo du générateur b) Description schématique

- Tube cylindrique en inox de diamètre intérieur 52 mm
- Tube en verre de diamètre extérieur 50 mm, d'épaisseur du diélectrique 2,5mm.

- Gaine adhésive en aluminium, de forme cylindrique tapissée sur la paroi interne du tube en verre.

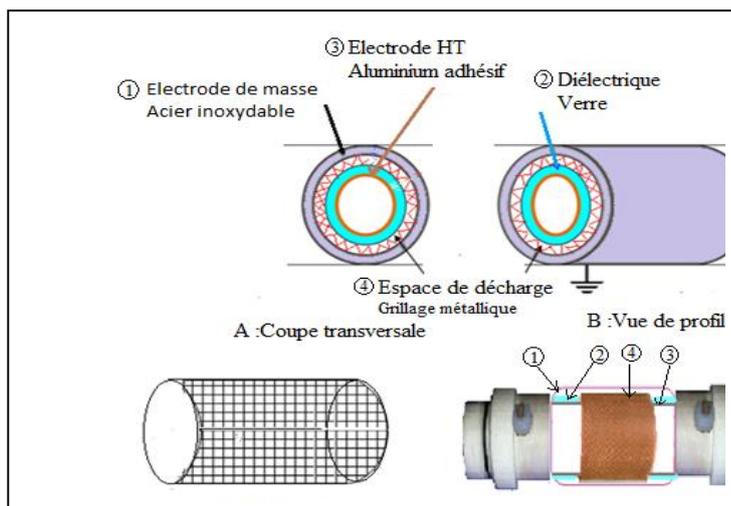


**Figure 3.5 :** Représentation d'un générateur d'ozone à D.B.D volumique avec les dimensions

1. Tube en inox ( $L=200$  mm,  $\varphi_{\text{int}}=52$  mm,  $\varphi_{\text{ext}}=54$  mm) ;
2. Tube en verre ( $L=250$  mm,  $\varphi_{\text{int}}=45$  mm,  $\varphi_{\text{ext}}=50$  mm,  $e=2,5$  mm) ;
3. Electrode interne HT ( $L=150$  mm,  $\varphi=43$  mm) ;
4. Espace inter-électrode (1 mm).

### 3.3.2 Générateur d'ozone à D.B.D modifiée

La différence entre le générateur à DBD volumique et le générateur à DBD modifiée réside dans l'installation d'un grillage métallique, de forme cylindrique dans l'espace inter-électrode pour la configuration à décharge modifiée (Figure 3.6).

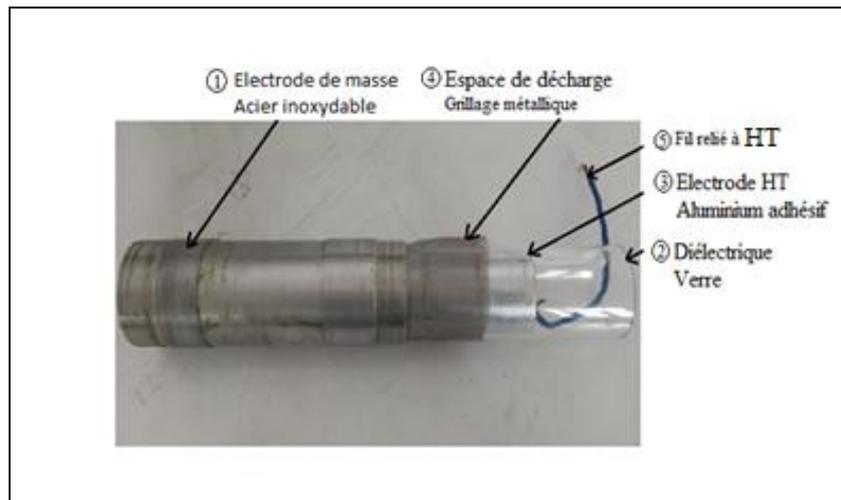


**Figure 3.6 :** Représentation schématique d'un générateur d'ozone à D.B.D volumique modifiée

Ce type de réacteur présente la même structure que le générateur d'ozone volumique auquel on a inséré un grillage métallique, de forme cylindrique dans l'espace inter-électrode de la décharge. Cette nouvelle configuration comprend les éléments suivants :

**a) Electrode externe :**

L'électrode interne est un tube cylindrique en acier inoxydable, excellent en comparaison à d'autres matériaux, ayant la propriété physique d'une masse assez faible et surtout chimique résistant à la corrosion. L'électrode externe est reliée à la terre.

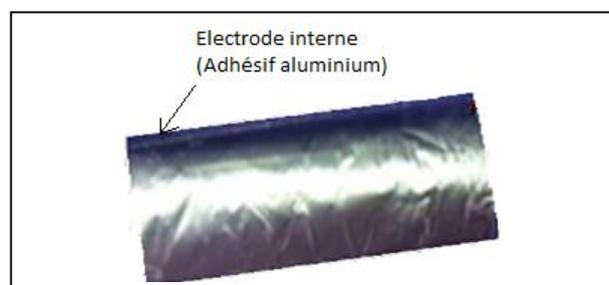


**Figure 3.7 :** Photographie éclatée du réacteur d'ozone à DBD modifiée

1. Electrode externe (tube en inox), 2.Barrière diélectrique (tube en verre),3. Electrode interne (adhésif aluminium),4.Grillage en inox (DBD modifiée)

**b) Électrode interne :**

Cette électrode est constituée d'un adhésif aluminium, de forme cylindrique collée à la surface de la paroi interne du tube en verre, qui constitue la barrière diélectrique. Elle est connectée à la haute tension (Figure 3.8).



**Figure 3.8 :** Photographie de l'électrode interne (aluminium adhésif)

### c) Barrière diélectrique :

Le rôle du matériau 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, quant 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).

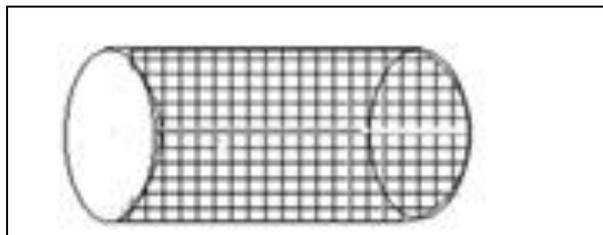


**Figure 3.9 :** Photographie de la barrière diélectrique en verre sur la qu'elle est collée l'adhésif aluminium sur la paroi interne

Parmi les différents matériaux diélectriques utilisés nous avons opté pour le verre, il permet de stabiliser la décharge sur toute sa surface, avec limitation de courant et empêchement de l'arc électrique. En plus il résiste à la température élevée et surtout résiste à l'effet corrosif de l'ozone.

### d) Grillage métallique en inox :

Le grillage métallique en inox est constitué de mailles qui renforcent le champ électrique en entrainant la formation d'une décharge surfacique et volumique (Figure 3.10).



**Figure 3.10 :** Grillage métallique inoxydable

### e) Bouchons de centrage en téflon :

Cet accessoire permet de garder l'intervalle inter-électrode symétrique, c.à.d. garder un espace de décharge constant et régulier pour produire une décharge uniforme sur toute la surface. Les bouchons de centrage sont munis d'ouvertures d'entrée de l'oxygène et de sortie du gaz ozoné. Les deux bouchons sont montés aux extrémités des deux côtés du générateur par filetage. De plus, ils ont pour rôle de stabilisateur de la décharge le long de l'intervalle de décharge (Figure 3.11).



Figure 3.11. Photographie du bouchon de centrage en téflon

### f) Dispositif de refroidissement :

Au cours des expériences avec ces générateurs d'ozone, nous avons constaté un échauffement du dispositif du a l'élévation de la température, suite à la décharge électrique et la dissociation de l'ozone, ce qui nous a conduit à l'installation d'un dispositif de refroidissement avec circulation d'eau. Ce système est constitué par un cylindre en acier inoxydable qui se trouve au-dessus du réacteur d'ozone (Figure 3.12).

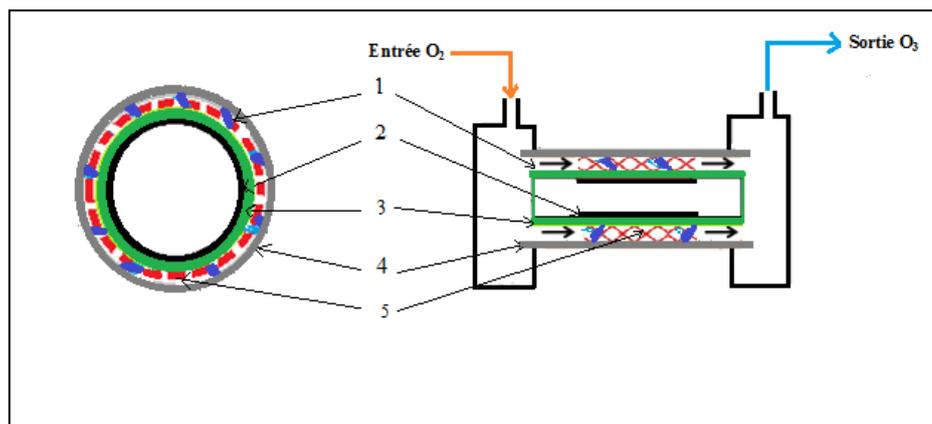


Figure 3.12. Système de refroidissement du générateur d'ozone à DBD modifiée

- (1) intervalle de décharge, (2) électrode HT, (3) tube en verre, (4) électrode de mise à la terre, et (5) grillage métallique en acier inoxydable

**Remarque :** Les différents composants qui constituent le générateur d'ozone à DBD volumique ou à DBD modifiée sont les mêmes à l'exception de la configuration nouvelle où nous avons installé un grillage métallique en inox supplémentaire, ayant la forme cylindrique placé dans l'espace inter-électrode.

### 3.4. Description du dispositif expérimental

Le montage expérimental utilisé pour la caractérisation électrique est montré à la figure 3.13. La figure 3.14 représente une photographie du dispositif expérimental utilisé. Un transformateur de haute tension à haute fréquence commandé par une alimentation variable basse tension de 0 à 250 VAC qui fournit une haute tension réglable de 1 à 7 kV a été utilisé pour alimenter les générateurs d'ozone.

La tension appliquée  $V$  a été mesurée à l'aide d'une sonde haute tension (Tektronix P6015A) et d'un oscilloscope numérique (Picoscope 6-26403A, 350 MHz) connecté à un ordinateur, tandis que le courant a été mesuré en utilisant un capteur de courant haute fréquence (moniteur de courant Pearson 410, 20MHz).

Les formes d'onde de courant et de tension sont enregistrées sur deux canaux différents du picoscope sur plusieurs périodes. Un condensateur  $C=22\text{nF}$  a été placé entre l'électrode métallique et la terre pour mesurer les charges transportées. Par la suite, la puissance est évaluée en utilisant la figure de Lissajous en traçant la charge électrique et la tension appliquée sur les axes X et Y, respectivement [33]. De plus, la concentration en  $\text{O}_3$  a été mesurée (en  $\text{g/m}^3$ ) à la sortie de l'ozoneur en utilisant un analyseur d'ozone (moniteur d'ozone 106-H) pour comparer les rendements des deux générateurs. Ces générateurs d'ozone sont alimentés en oxygène de pureté 95% par un débit variable du concentrateur (1-10 l/mn). Le taux de production d'ozone a ensuite été exprimé en grammes par heure en utilisant la relation suivante :

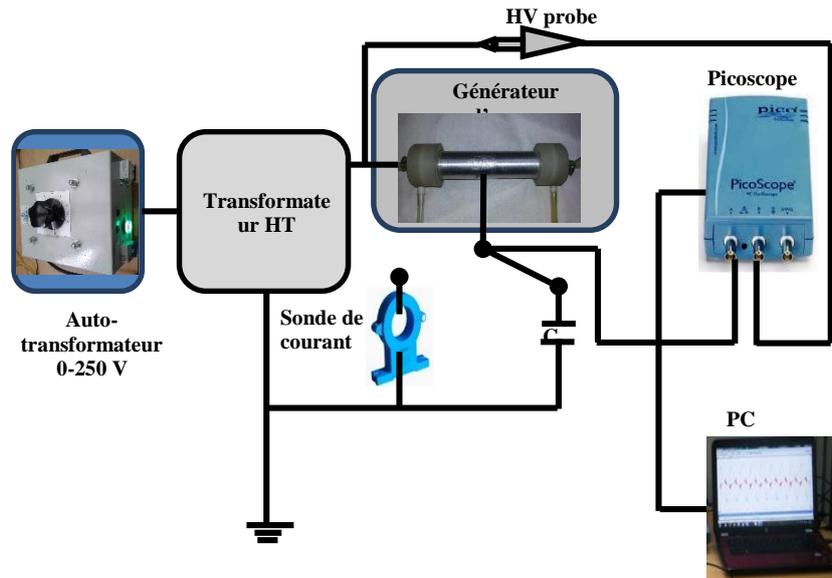


Figure 3.13 : Montage expérimental utilisé pour la caractérisation électrique

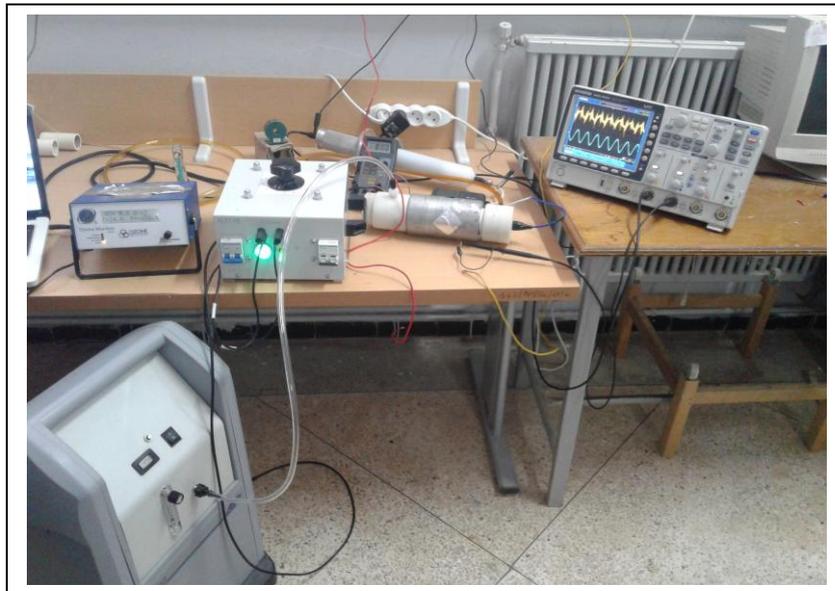


Figure 3.14 : Photographie du dispositif expérimental utilisé

$$Y (g/h) = C_{O_3} (g/l) \cdot Q (l/h) \quad (3.1)$$

Où :

Y est le taux de production d'ozone en (g/h)

$C_{O_3}$  est la concentration d'ozone en (g/l),

Q est le débit d'oxygène en (l/h).

L'énergie consommée pendant un cycle, qui est égale à la surface enveloppée dans la figure de Lissajous, est calculée comme suit :

$$W = \oint V.C. dV_C = \oint V. dq \quad (3.2)$$

Où  $q$  est la charge transmise par le réacteur (C) et  $V$  est la tension appliquée en (V).

La puissance  $P$  consommée parla DBD est ensuite déduite en multipliant la surface de Lissajous correspondant à l'énergie  $W$  par la fréquence  $f$ .

$$P = W.f \quad (3.3)$$

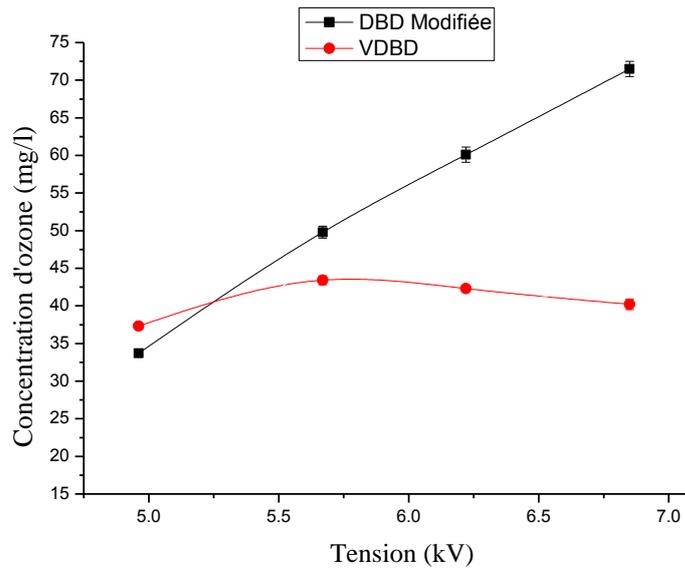
Pour chaque expérience, le générateur d'ozone a été placé dans un petit récipient métallique rempli d'eau et a fonctionné pendant au moins 1mn. Toutes les expériences ont été conduites dans les mêmes conditions de température standard (19-23°C) et d'humidité (50%-65%). Chaque expérience a été répétée deux fois et la valeur moyenne a été prise en compte pour le traçage des courbes.

### 3.5. Résultats et discussion

La figure 3.15 montre la variation de la concentration d'ozone  $C_{O_3}$  en fonction de la tension appliquée  $V$ , pour les deux configurations « DBD modifiée » et « DBD volumique (DBDV) ». La figure démontre que l'augmentation de la valeur de  $C_{O_3}$  pour une tension appliquée de la configuration « DBD modifié » est beaucoup plus élevée que pour une même tension appliquée au réacteur DBD de volume.

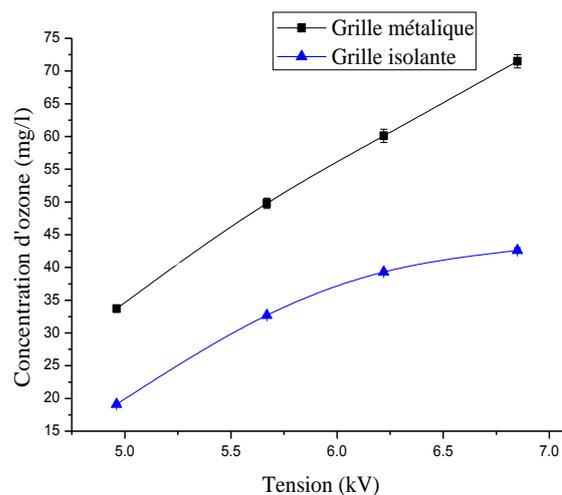
Pour le générateur à DBDV, au-delà de  $V=5,7$  kV, la concentration  $C_{O_3}$  reste presque constante puis elle commence à se diminuer parce que la production d'ozone qui s'accompagne avec l'augmentation de la température est due à l'énergie supplémentaire transformée en chaleur, entraînant une décomposition rapide et une réduction de la concentration d'ozone. Cependant, pour le modèle à « DBD modifie », l'augmentation de l'énergie est utilisée pour générer un plasma plus grand par rapport au cas volumique à cause du au maillage du grillage métallique.

De plus, grâce à l'effet de pointe, la présence du maillage provoque une augmentation du champ électrique, générant ainsi une plus grande quantité de plasma.



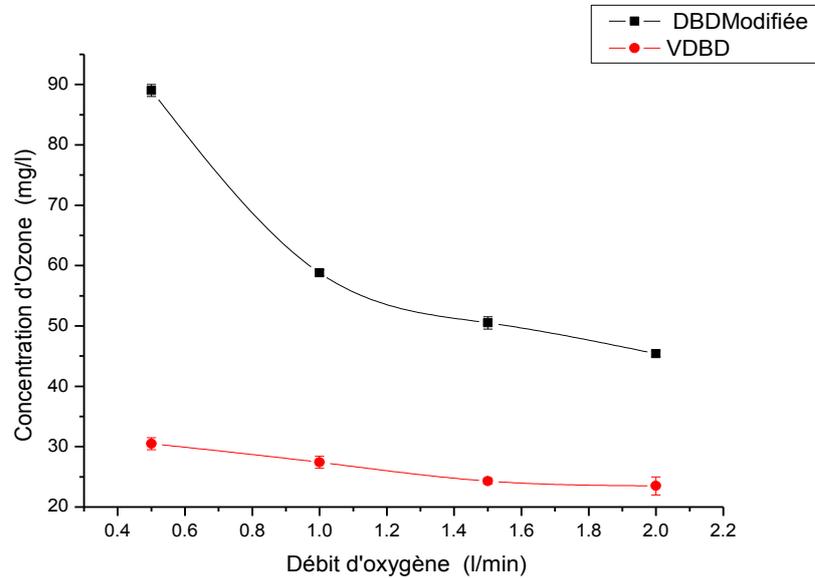
**Figure 3.15 :** Variation de la concentration d'ozone  $C_{O_3}$  en fonction de la tension  $V$  pour les configurations « DBD modifiée » et « DBD volumique (DBDV) »

Par ailleurs, notons que l'augmentation de la concentration d'ozone n'est pas due à la diminution du volume gazeux à cause de la présence du maillage métallique. Ce fait est suggéré par les résultats reportés sur la Figure 3.16 qui sont obtenus en insérant un maillage diélectrique similaire. Les résultats obtenus démontrent que la concentration d'ozone est principalement causée par le plasma de surface et non pas par la diminution du volume de gaz dans l'intervalle inter-électrodes.

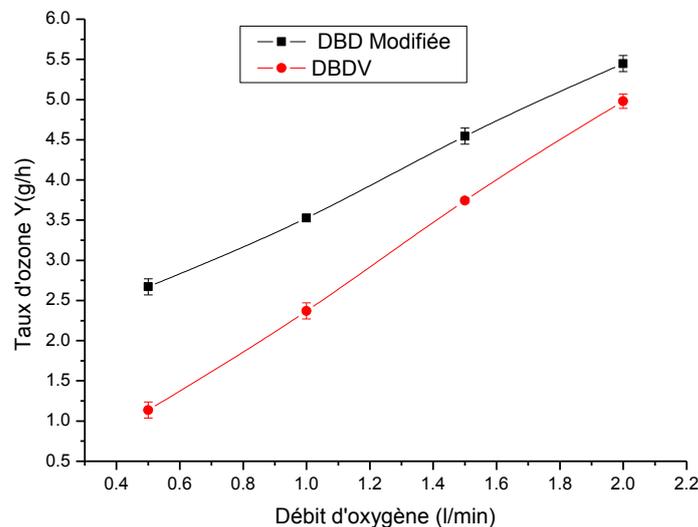


**Figure 3.16 :** Variation de la concentration d'ozone en fonction de la tension appliquée pour le modèle « DBD modifiée » en utilisant un grillage métallique et un grillage isolant ( $Q=1$  l/mn)

De plus, les variations de la concentration d'ozone  $Co_3$  (Figure 3.17) et le taux de production d'ozone  $Y$  (Figure 3.18) en fonction du débit d'oxygène  $Q$  indiquent que le modèle « DBD modifiée » est nettement supérieur, en particulier pour les faibles valeurs du débit d'oxygène. En effet, le volume de gaz diminue en raison de l'insertion du grillage métallique.



**Figure 3.17 :** Variation de la concentration d'ozone  $Co_3$  en fonction du débit  $Q$  d'oxygène  $O_2$  pour les modèles DBDV et DBD modifiée ( $V = 7$  kV)

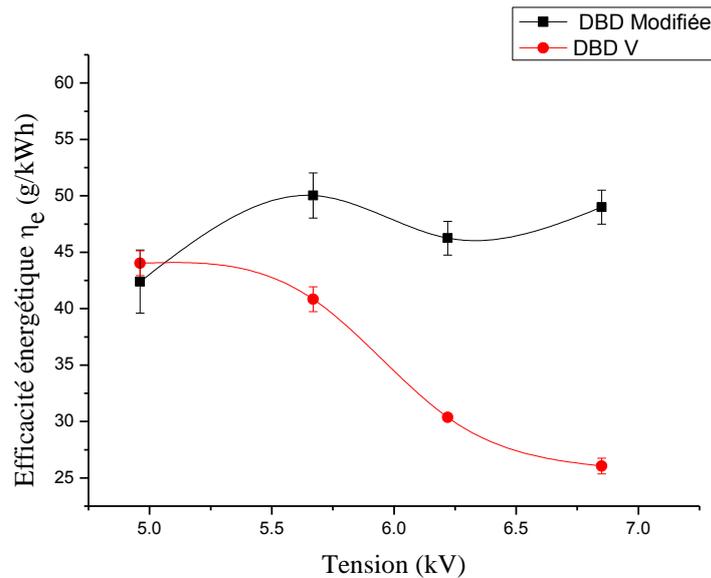


**Figure 3.18 :** Variation du taux d'ozone  $Y$  (g/h) en fonction débit  $Q$  d'oxygène  $O_2$  pour les modèles DBDV et DBD modifiée ( $V = 7$  kV)

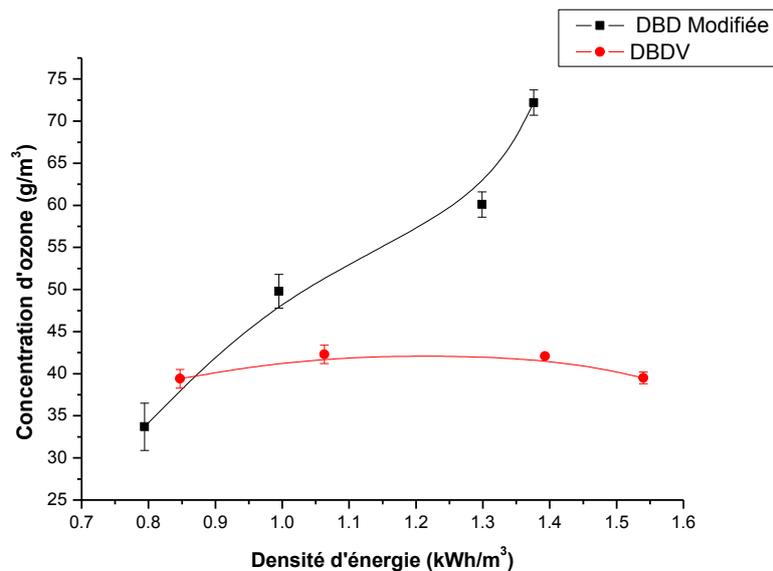
Par ailleurs, les deux modèles ont également été comparés en termes d'efficacité de production d'ozone. La figure 3.19 représente la variation du rendement électrique  $\eta_e$  (g/kWh) en fonction de la tension appliquée  $V$ , tandis que la figure 3.18 représente l'évolution de la

concentration d'ozone en fonction de la densité d'énergie ( $\text{kWh/m}^3$ ). La supériorité du modèle « DBD modifiée » a été définitivement confirmée par les résultats représentés sur la figure 3.20 et la figure 3.21.

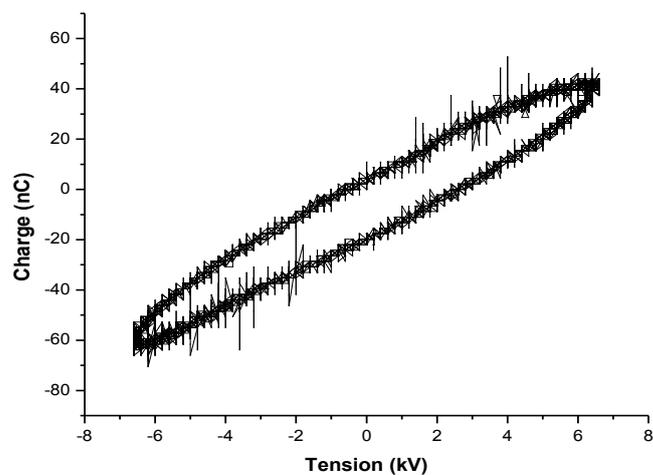
D'un autre côté, les courbes de Lissajous tracées ont été sur la Figure 3.19. pour les deux modèles à une tension  $V=7$  kV montrent que la puissance consommée par le modèle « DBD modifiée » ( $P = 82,36$  W) est supérieure à celle consommée par l'ozoneur DBDV ( $P = 66.44$  W).



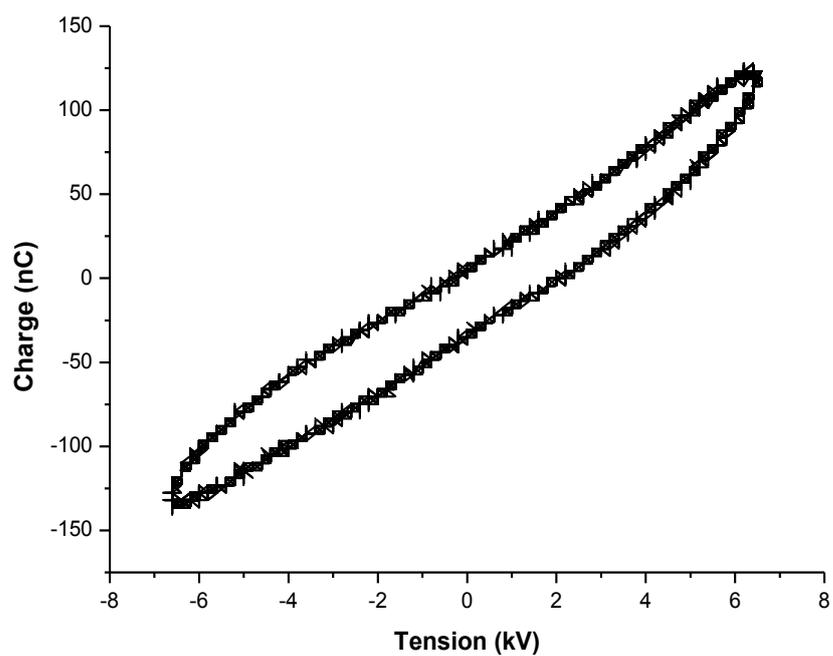
**Figure 3.19 :** Variation du rendement électrique  $\eta_e$  (g/kWh) en fonction de la tension  $V$  pour les modèles DBDV et DBD modifiée ( $Q = 1$  l/min)



**Figure 3.20 :** Variation de la concentration d'ozone en fonction de la densité d'énergie pour les modèles DBDV et DBD modifiée ( $V = 7$  kV)



(a)

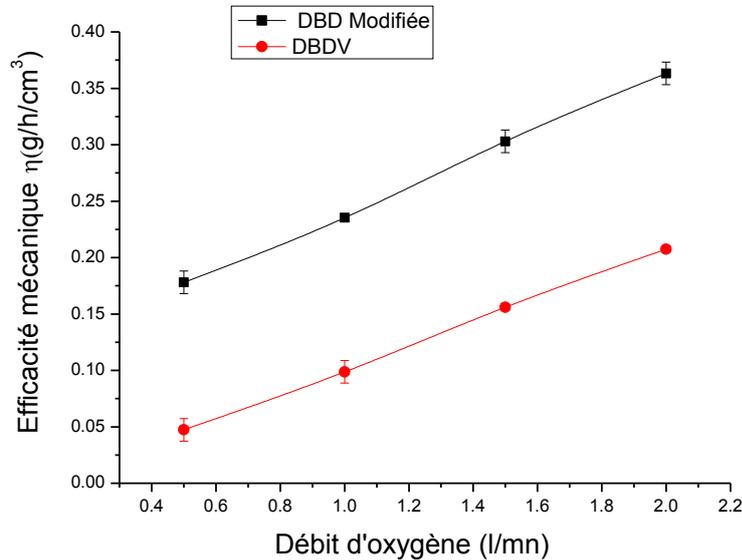


(b)

**Figure 3.21** : Courbes de Lissajous tracées pour les deux configurations

a) Modèle DBDV et b) Modèle « DBD modifiée »

De plus, la variation du rendement mécanique  $\eta_m$  (g/h/cm<sup>3</sup>) en fonction du débit d'oxygène Q a été représentée sur la figure 3.22. Cette étude a été effectuée pour comparer les deux configurations considérées car le volume de gaz et le débit d'oxygène sont différents.



**Figure 3.22 :** Variation de l'efficacité mécanique  $\eta_m$  (g/h/cm<sup>3</sup>) en fonction du débit d'O<sub>2</sub> pour les modèles DBDV et « DBD modifiée » (V = 7kV)

Notons que l'efficacité électrique est obtenue en divisant le taux de production d'ozone Y (g/h) par la puissance électrique consommée correspondante (kW), tandis que le rendement mécanique  $\eta_m$  est calculé en divisant Y (g/h) par les volumes de gaz respectifs.

Les volumes des deux modèles ont été estimés comme suit:

$$v_1 = \pi h \left[ \left( \frac{d_2}{2} \right)^2 - \left( \frac{d_1}{2} \right)^2 \right] = 150 \pi \left[ \left( \frac{52}{2} \right)^2 - \left( \frac{50}{2} \right)^2 \right] = 24 \text{ cm}^3.$$

$$v_2 = N \times e = 11978 \times 0.75 = 9 \text{ cm}^3.$$

$$v_3 = v_1 - v_2 = 24 - 9 \text{ cm}^3 = 15 \text{ cm}^3.$$

Ici,  $v_1$  est le volume de gaz sans le grillage métallique (DBDV),  $v_2$  est le volume du grillage métallique,  $v_3$  est le volume de gaz avec le grillage métallique (DBD modifiée),  $h$  est la longueur de l'électrode HT ( $h = 150$  mm),  $d_2$  diamètre intérieur de l'électrode reliée à la terre ( $d_2 = 52$  mm),  $d_1$  le diamètre extérieur du tube de verre ( $d_1 = 50$  mm),  $N$  est le nombre total des mailles ( $N = 11978$ ), et «  $e$  » est l'épaisseur de la maille métallique ( $e = 0,75$  mm).

Par ailleurs, une différence importante existe entre les deux configurations en termes des valeurs de la capacité électrique  $C$  et de la tension d'amorçage de la DBDV<sub>c</sub> qui sont différentes, comme le montre le tableau 3.1.

**Tableau 3.1.** Valeurs de la capacité, de la tension de claquage et de la fréquence de résonance pour les deux modèles

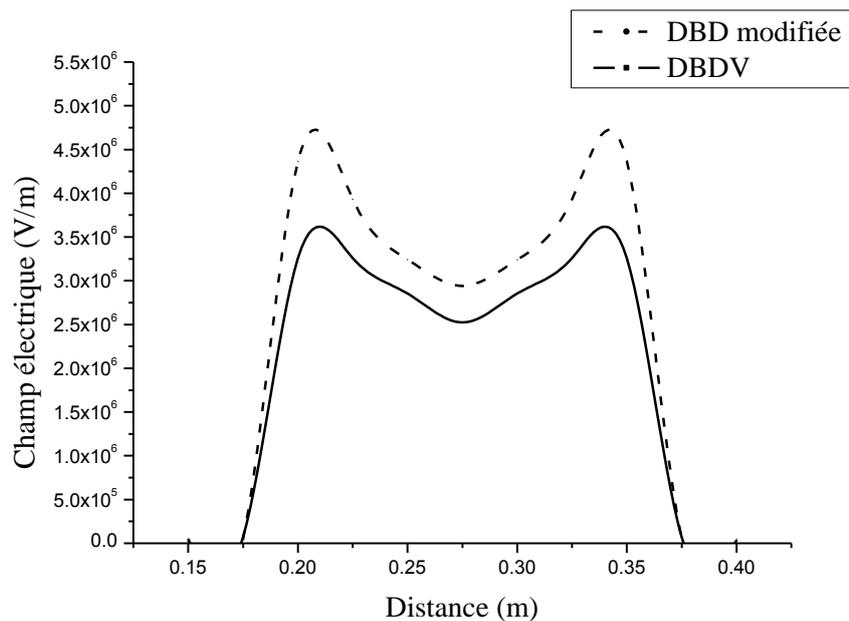
<b>Modèle</b>	<b>Capacité C(pF)</b>	<b>Tension V<sub>c</sub>(kV)</b>	<b>Fréquence de résonance f<sub>r</sub>(kHz)</b>
DBDV	122,5	4,0	33,0
DBD Modifiée	213,0	5,0	26,3

De plus, la fréquence de résonance ( $f_r$ ) est différente entre les deux configurations car l'alimentation électrique du générateur d'ozone fonctionne suivant le principe de la résonance électrique entre l'inductance du transformateur haute tension et la capacité du générateur d'ozone. Sur la base des résultats du réacteur « DBD modifiée » indiqués dans le tableau 3.3, la valeur de la capacité  $C$  de la configuration « DBD modifiée » qui correspond à une petite impédance électrique est plus élevée ( $C=213$  pF) et la valeur de la tension d'amorçage  $V_c$  est inférieure, par rapport aux valeurs du modèle DBDV. Par conséquent, cela explique l'efficacité de production d'ozone du réacteur « DBD modifiée » qui est supérieure à celui du modèle DBDV.

### 3.6. Analyse numérique du champ électrique

L'analyse numérique du champ électrique dans l'intervalle de plasma pour chaque configuration DBD a été réalisée à l'aide d'un logiciel dédié au calcul du champ électrique (Charge Simulation Program (CSP)). Le CSP s'est déjà avéré efficace dans l'analyse du champ électrique [34-35]. Le programme est fourni avec une saisie de données interactive, des fonctions de vérification d'erreurs et des capacités avancées de post-traitement.

Le champ électrique a été estimé à 0,15 mm au-dessus du tube de verre pour les deux configurations. La figure 3.23 montre la répartition longitudinale du champ électrique. Les résultats obtenus après analyse de la figure suggèrent que le champ électrique du réacteur modifié est significativement plus élevé que celui du réacteur volumique sans grillage métallique. Les valeurs maximales du champ électrique sont respectivement d'environ  $3,625 \times 10^6$  V/m et  $4,75 \times 10^6$  V/m pour les modèles DBDV et DBD Modifiée. Les pics observés sont situés juste aux extrémités de l'électrode HT.



**Figure 3.23 :** Distribution longitudinale du champ électrique dans l'entrefer du plasma à 0,15 mm au-dessus du tube de verre, pour les deux configurations ( $V = 7$  kV)

Par conséquent, la différence entre les deux modèles est principalement due à la présence des mailles du grillage métallique qui renforce le champ électrique en raison du petit diamètre de la maille.

### 3.7. Réalisation d'un skid mobile avec la configuration à DBD modifiée

Après l'étude effectuée sur les deux configurations, notre choix s'est porté sur le réacteur à DBD volumique modifiée, suite à ses performances élevées en termes de concentration d'ozone, de taux d'ozone et d'efficacité énergétique (Figure 3.24). Par conséquent, un skid mobile comprenant huit générateurs de ce type, munis d'un système de refroidissement assuré par circulation d'eau, a été développé (Figure 3.25). Les générateurs sont montés dans une cuve métallique parallélépipédique rempli d'eau, circulant dans un système à boucle fermée.

Le skid a été utilisé pour le traitement des eaux usées de la ville de Sidi-Bel-Abbes. L'ozone a été injecté dans l'eau en circulation à travers un injecteur Venturi. Les résultats obtenus après une analyse physicochimique sont résumés et indiqués dans le chapitre suivant.

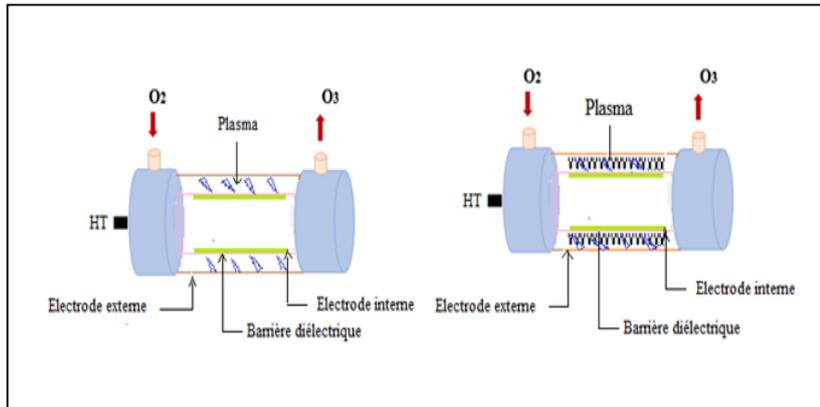


Figure 3.24 : Générateurs d'ozone (a) volumique, (b) à DBD modifiée



Figure 3.25 : Skid comprenant huit générateurs à DBD modifiée

placés dans une cuve métallique remplie d'eau

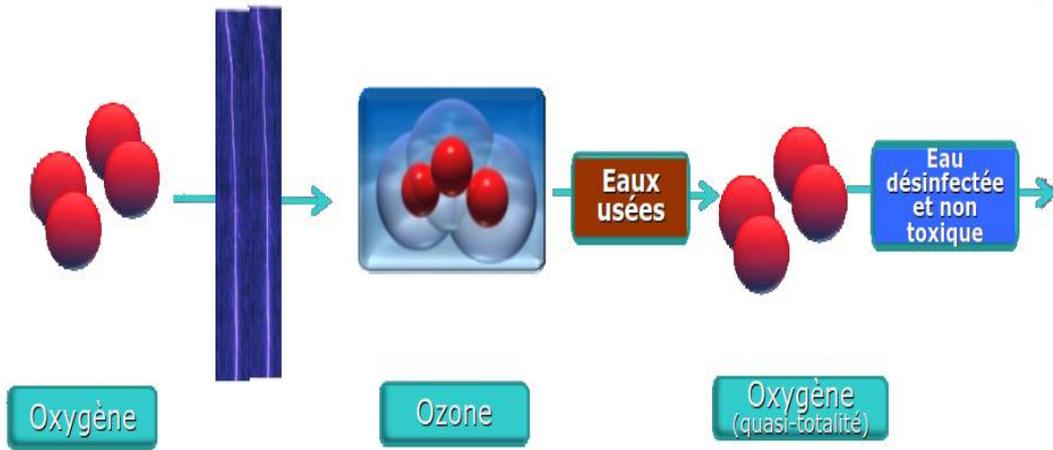
1 : Cuve métallique remplie d'eau pour le refroidissement- 2 : Tube en verre (barrière diélectrique)– 3 : Câble haute tension- 4 : Tube en inox – 5 : Grillage métallique en inox – 6 : Adhésif aluminium

### 3.8 Conclusion

L'étude expérimentale présentée dans ce chapitre suggère que le taux de production d'ozone peut être considérablement amélioré en insérant un grillage en acier inoxydable dans l'espace inter-électrodes d'un générateur d'ozone cylindrique. Bien que la méthode DBD volumique soit principalement utilisée dans la technologie de génération d'ozone, le réacteur à DBD modifiée dans lequel une décharge surfacique et volumique se produisent simultanément, a fourni des résultats supérieurs en termes de taux de production d'ozone et d'efficacité énergétique.

De plus, l'utilisation d'un grillage en acier inoxydable n'augmentera pas le coût du générateur d'ozone, ce qui pourrait motiver l'utilisation de générateurs à DBD modifiée dans l'industrie. En outre, un skid mobile a été réalisé comprenant huit générateurs d'ozone identiques à DBD modifiée a été réalisé.

L'étude comparative expérimentale entre les deux générateurs d'ozone à D.B.D volumique et à DBD modifiée (insertion d'un grillage métallique de forme cylindrique) nous a permis de tirer les conclusions satisfaisantes. Dans les mêmes conditions de fonctionnement, la concentration d'ozone et le rendement énergétique sont supérieures dans la configuration à DBD modifiée.



## CHAPITRE 4

Etude et réalisation d'un skid mobile

# 4

## *Etude et réalisation d'un skid mobile*

### **4.1. Introduction**

Le développement considérable des activités industrielles permettant de répondre aux besoins de notre société s'accompagne inévitablement d'un accroissement important des rejets de polluants qui sont néfaste pour le bien être de notre société. La dépollution des eaux usées et l'assainissement des eaux potables sont aujourd'hui une préoccupation majeure, comme c'est le cas de notre pays, pour la préservation de la qualité de notre environnement ainsi que la santé public. Parmi les nombreuses techniques dans le traitement des eaux polluées, pour l'élimination des matières solides, de l'huile, des graisses, des composés organiques biodégradables ou non biodégradables, des molécules toxiques ...

Dans de ce chapitre, nous avons pris en considération les travaux du chapitre précédent pour le choix du type de générateur d'ozone, qui présente les bonnes performances en termes de concentration, taux d'ozone et efficacité énergétique. Le SKID mobile comprend huit générateurs d'ozone à DBD modifiée montés dans une cuve métallique parallélépipédique remplie d'eau circulant dans un système à boucle fermée.

Dans notre travail, le traitement se fait par l'ozone, car c'est un oxydant puissant largement utilisé et il n'est pas rémanent dans l'eau. Les applications courantes sont le traitement des eaux usées à l'ozonation (désinfection des eaux,

élimination de la couleur, réduction des boues, élimination des odeurs, dégradation des substances toxiques)

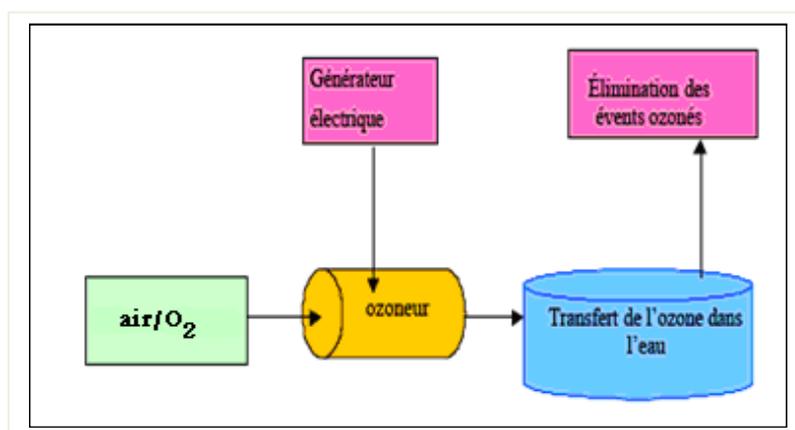
Nous avons étudié expérimentalement quelques configurations du SKID mobile (série, parallèle et mixte) pour le traitement des eaux usées en faisant des prélèvements d'analyses bactériologiques et physico-chimiques avant et après traitement.

#### 4.2. Différentes parties d'une installation d'ozonation :

Une installation d'ozonation comprend quatre parties différentes (Figure 4.1) :

- Admission du gaz (oxygène).
- Générateur électrique d'ozone appelé ozoneur.
- Transfert de l'ozone dans l'eau par : colonne de contact, injecteur venturi ou par contact direct.
- Système de récupération et traitement des gaz ozonés dégagés.

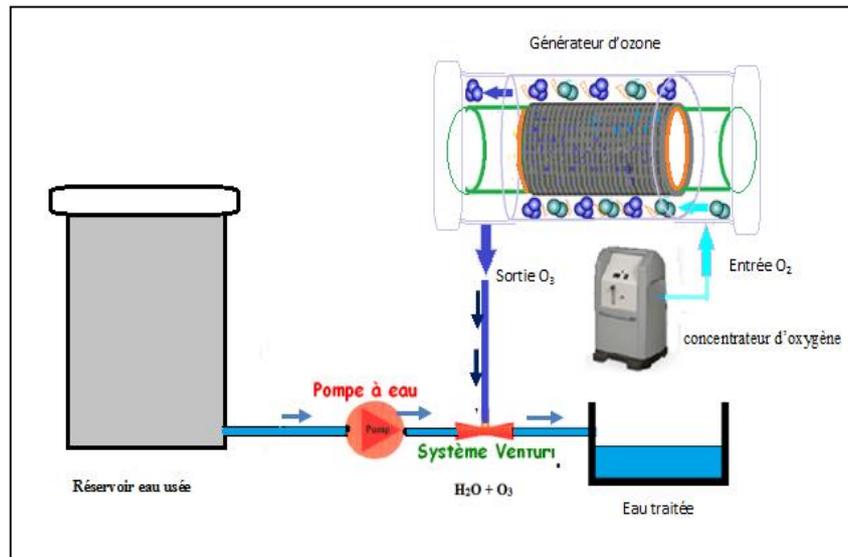
En général, après un traitement de l'eau par l'ozone, on ajoute une petite dose de chlore suite à ses qualités rémanentes pour protéger l'eau dans le réseau de distribution, où il existe des sources de contamination. On arrive à diminuer les désavantages liés au chlore (mauvais gout, présence de dérivés chlorés).



**Figure 4.1** : Configuration d'une installation de traitement de l'eau par l'ozone

##### 4.2.1. Dispositifs d'injection de l'ozone dans l'eau

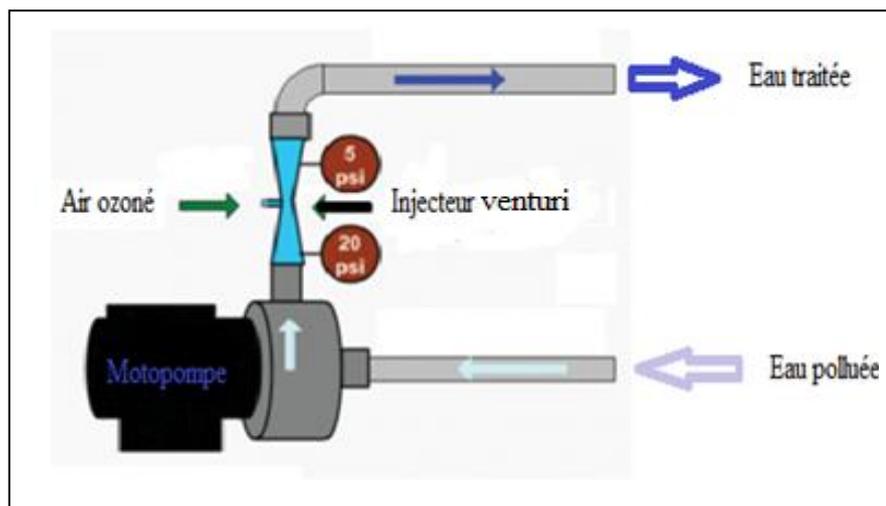
L'ozone est transféré dans l'eau selon deux méthodes principales à savoir la dissolution à bulles et les injecteurs Venturi (Figure 4.2). Les objectifs des deux méthodes sont les mêmes : dissoudre l'ozone dans l'eau.



**Figure 4.2 :** Schéma descriptif du dispositif de traitement de l'eau par l'ozone avec un injecteur Venturi

**a) Effet Venturi :**

Ce système crée une dépression au niveau du point d'aspiration de l'injecteur. Cet effet apparaît lorsqu'une différence de pression suffisante existe entre l'entrée et la sortie de l'injecteur. L'air ozoné est aspiré et dispersé en de fines bulles dans l'eau, ce qui permet la dépollution de l'eau.



**Figure 4.3 :** Effet venturi

### b) Colonne de contact :

Le système fonctionne selon le principe de diffusion de bulles du mélange « ozone-air » dans un flux d'eau par des éléments poreux (Figure 4.4), le transfert de masse de l'ozone s'opère lors de la montée des bulles vers la surface. L'eau polluée coule à contre-courant des bulles d'air ozoné qui s'élèvent dans le liquide.

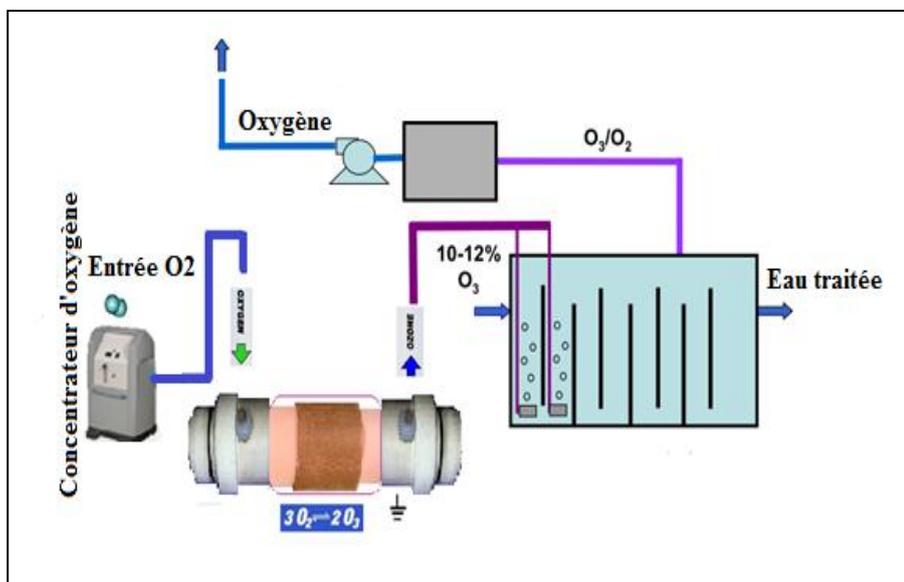


Figure 4.4 : Schéma explicatif du dispositif de traitement de l'eau par l'ozone par colonne de contact

#### 4.2.2. Efficacité de transfert de masse (ETM)

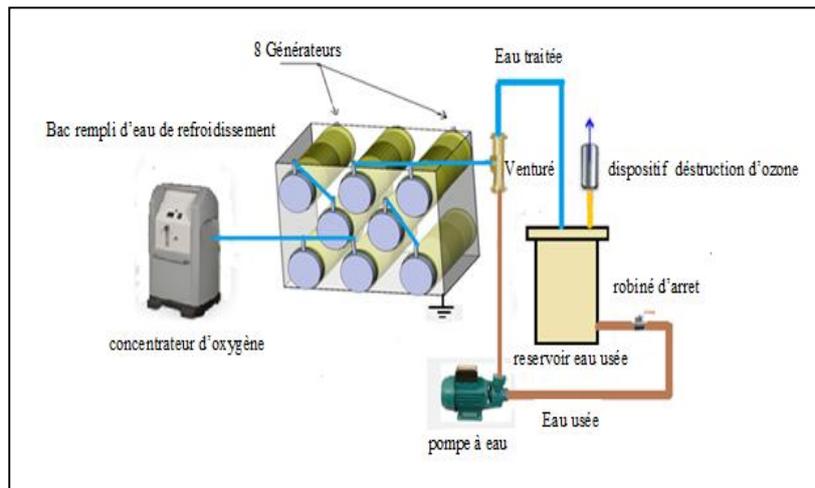
L'efficacité de transfert de masse est exprimée comme suit :

$$ETM = \text{Masse d'ozone dissoute dans l'eau} / \text{Masse d'ozone dans le flux gazeux}$$

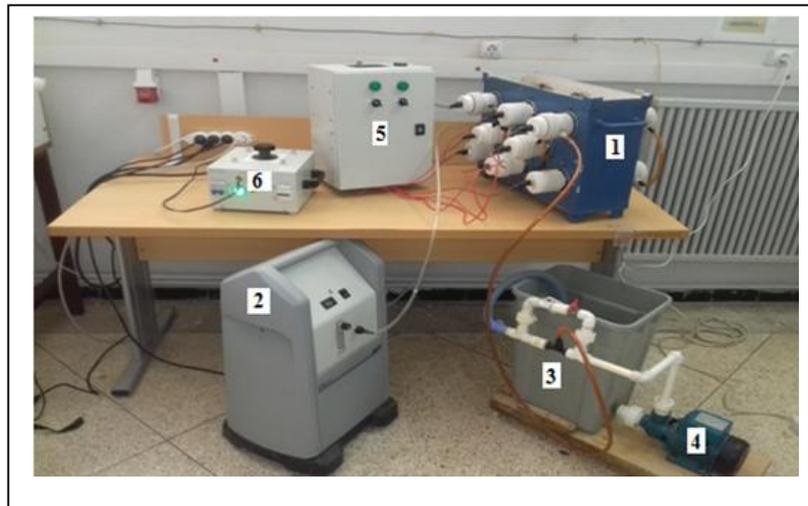
La valeur de (ETM) augmente avec la hauteur de la colonne, donc le débit d'ozone à produire est plus faible. Pour une hauteur économique optimale qui est environ de 4,5 à 4,7 m, dans ce cas l'efficacité est de 70% de dissolution d'ozone.

#### 4.3. Réalisation du skid mobile pour le traitement des eaux

Le modèle réalisé comporte huit (08) générateurs d'ozone à DBD modifiée, pour une application à échelle semi-industrielle [69]. En général, l'ozone est produit industriellement soit à partir de l'oxygène pur (bouteille d'oxygène ou concentrateur d'oxygène) ou à partir de l'air sec (20% O<sub>2</sub> et 80% N<sub>2</sub>). Une photo du dispositif expérimental utilisant le skid est illustrée à la figure 4.5.



(a)



(b)

**Figure 4.5 :** Dispositif expérimental utilisé

(a) Schéma synoptique du dispositif expérimental de traitement de l'eau par l'ozone

b) Photographie du dispositif expérimental de traitement

(1) SKID, (2) Concentrateur d'oxygène, (3) Bac d'eau usée, (4) Pompe à eau, (5) armoire électrique des transformateurs de HT, (6) Autotransformateur

### 4.3.1. Description du skid mobile

Le dispositif réalisé comporte les éléments suivants :

- Une alimentation alternative variable (0-250 V)
- Huit générateurs d'ozones à DBD modifiée
- Huit transformateurs de haute tension, qui délivre chacun une tension variable de 1 kV à 7 kV, l'ensemble est installé dans une armoire avec un dispositif de protection,

- Un concentrateur d'oxygène alimentant les huit générateurs d'ozone.
- Un système d'injecteur venturi
- un réservoir contenant l'eau à traiter
- Un bac rempli d'eau pour le refroidissement des générateurs d'ozone.

Le procédé de traitement de l'eau par l'ozone dans notre cas fonctionne en un circuit fermé, l'eau usée est aspirée par la pompe, elle est mise en circulation et revient ensuite dans le même réservoir. La pompe aspire l'eau avec un débit de l'ordre de 10 l/mn, cette aspiration entraîne l'action de l'effet venturi, permettant le mélange eau ozone pour la désinfection de l'eau.

#### **4.3.2. Procédé de traitement de l'eau par l'ozone**

L'eau contaminée à traiter est mise en mouvement grâce à une pompe à eau. L'ozone est généré par l'ensemble des huit générateurs qui constituent le skid mobile, placés dans une cuve remplie d'eau en mouvement, pour assurer le refroidissement de ces générateurs. Nous avons opté pour trois configurations différentes :

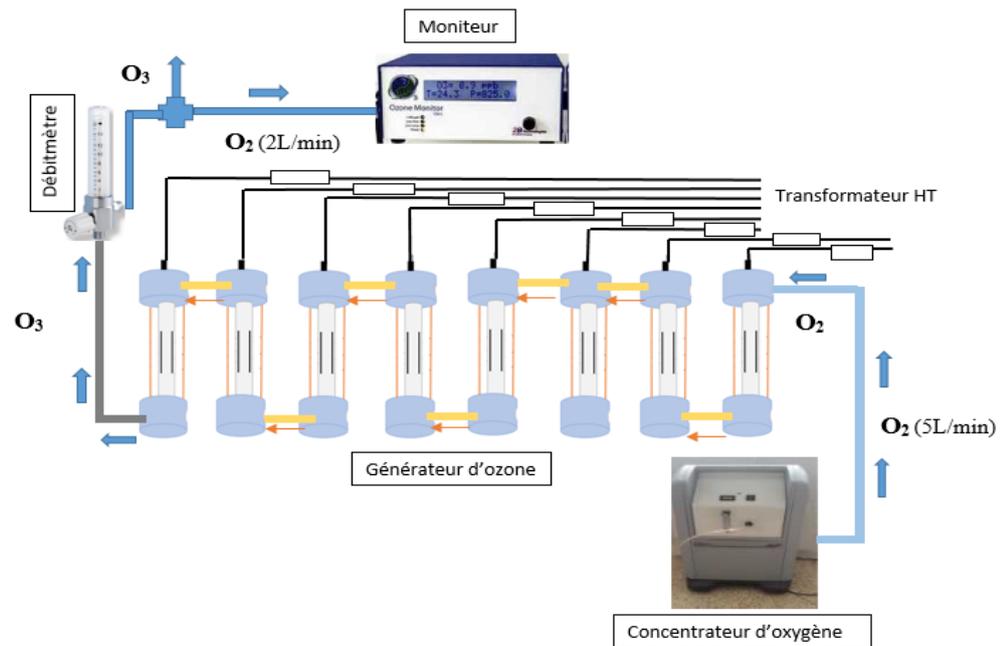
- 1<sup>ère</sup> configuration : les 8 générateurs d'ozone sont alimentés en série.
- 2<sup>ème</sup> configuration : les 8 générateurs d'ozone sont alimentés en parallèle.
- 3<sup>ème</sup> configuration : le skid comprend deux branches de 4 générateurs en série, qui sont alimentées en parallèle.

L'air ozoné est aspiré et dispersé en de fines bulles dans l'eau par un système à injection Venturi.

#### **4.3.3. Configurations optimales**

##### **a/ Assemblage en série :**

La Figure 4.6 illustre le dispositif expérimental utilisé pour la mesure de la concentration d'ozone pour la configuration en série. Pour la mesure de la concentration d'ozone pour cette configuration, on utilise un concentrateur d'oxygène avec un débit fixe de 5 l/min. Dans les conditions de température et d'humidité ambiantes, le moniteur d'ozone ne supporte pas plus que 2 l/min, pour cela un débitmètre est installé pour mesurer le débit d'ozone.



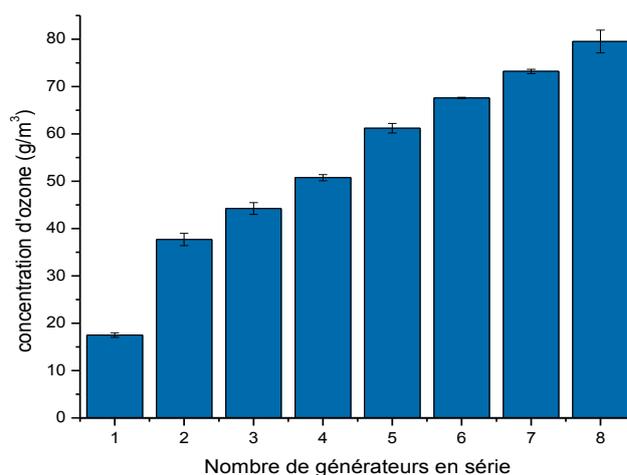
**Figure 4.6** : Schéma descriptif du dispositif expérimental

(Configuration série :  $V=7,5$  kV,  $Q_{O_2}=5$  l/min)

Les manipulations sont répétées deux à trois fois afin de prendre la valeur moyenne pour chaque expérience.

La figure 4.7 représente la variation de la concentration d'ozone en fonction du nombre de générateurs placés en série, variant de 1 à 8.

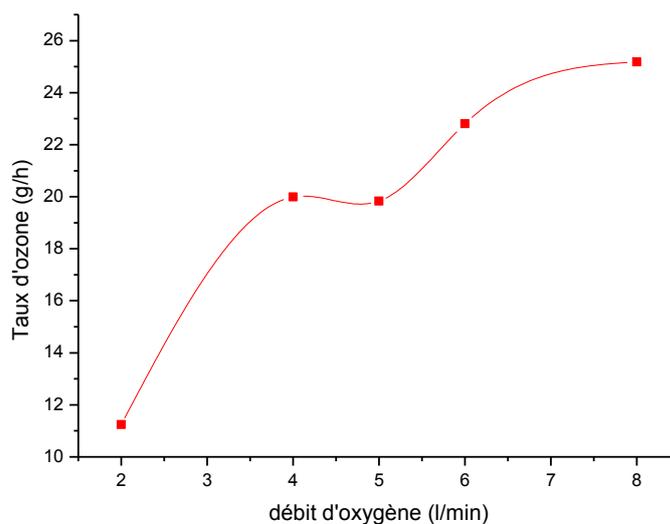
Nous constatons que la concentration d'ozone augmente en multipliant le nombre de générateurs d'ozone. Cette augmentation n'est pas proportionnelle en passant de  $20 \text{ g/m}^3$  pour un seul réacteur arrivant juste à  $80 \text{ g/m}^3$  pour la totalité des générateurs, cela est dû à la chute de pression dans les différents ozoneurs en particulier ceux situés en fin de chaîne. Au delà de 4 générateurs en série, il n'est donc pas intéressant d'ajouter d'autres générateurs car la concentration n'augmente pas de beaucoup.



**Figure 4.7 :** Concentration d'ozone produite en fonction du nombre de générateur en série

( $V=7,5\text{kV}$ ,  $Q_{O_2}= 5 \text{ l/min}$ )

D'un autre côté, la Figure 4.8 montre que l'augmentation du débit d'oxygène fait augmenter la concentration d'ozone et cela est dû à l'augmentation du nombre de molécule d'oxygène soumis aux décharges électrique pour se transformer en ozone. Par ailleurs, au delà d'une certaine valeur environ égale à 5 l/min, le taux d'ozone produit n'augmente pas aussi rapidement. En effet, plus le débit est élevé plus la vitesse d'écoulement augmente ce qui cause une durée de séjour du gaz plus courte.

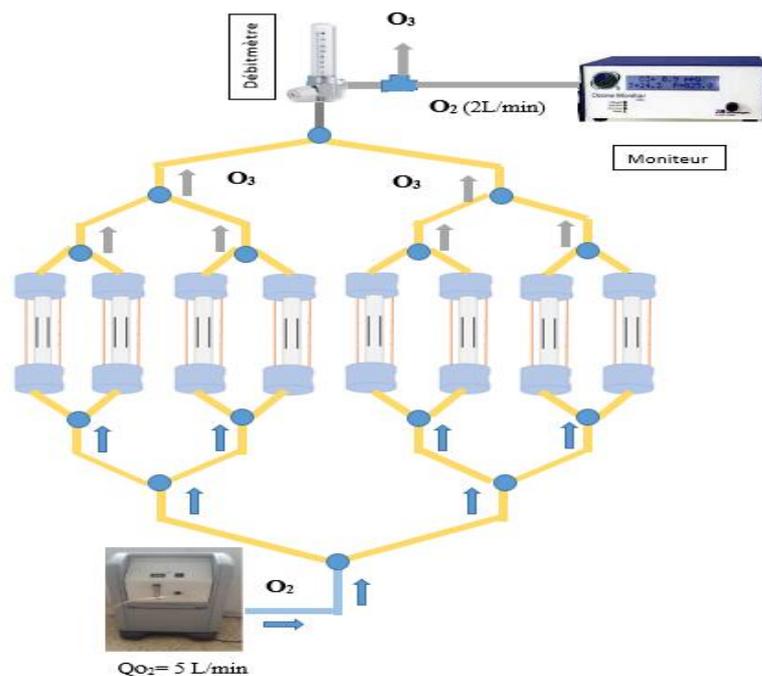


**Figure 4.8 :** Variation du taux d'ozone en fonction du débit d'oxygène pour la configuration en série

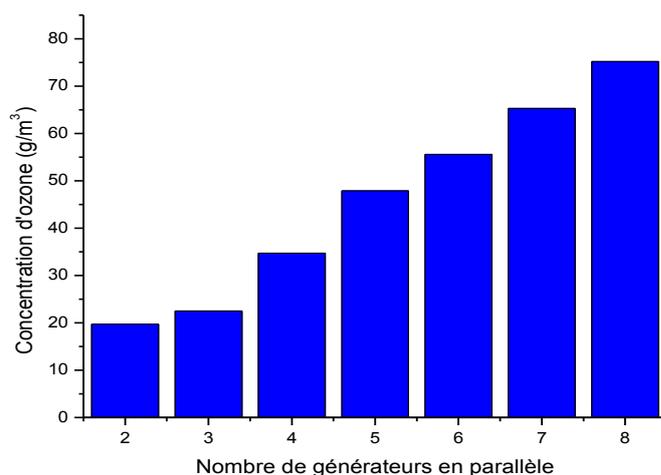
**b/ Assemblage en parallèle :**

La Figure 4.9 montre le dispositif expérimental utilisé pour la mesure de la concentration d'ozone pour la configuration en parallèle. Pour la mesure de la concentration d'ozone pour cette configuration on utilise une source d'oxygène avec un débit fixe de 5 l/min.

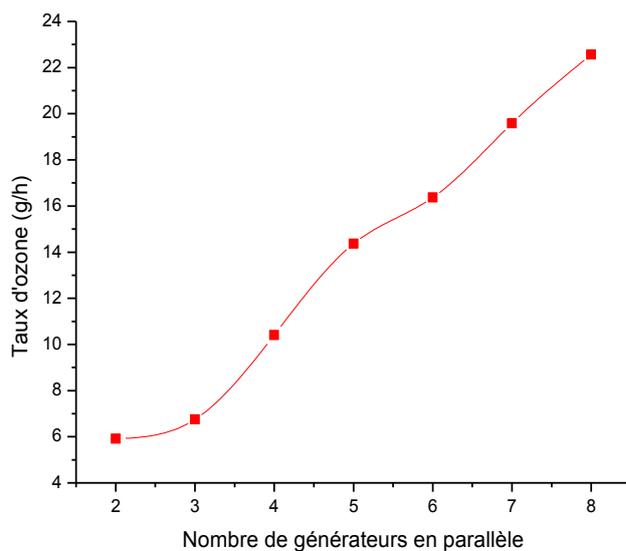
Les expériences ont été effectuées pour analyser l'influence du nombre de générateurs utilisés et le débit d'oxygène. Les résultats obtenus montrant la variation de la concentration d'ozone et du taux d'ozone produit par cet assemblage sont représentés aux figures 4.10 et 4.11 respectivement. Ces résultats montrent que l'augmentation du nombre de générateurs d'ozone augmente la production d'ozone et sa concentration. Par ailleurs, l'augmentation de débit d'oxygène permet d'augmenter le nombre de molécules d'oxygène dans l'intervalle de décharge pour se transformer en ozone.



**Figure 4.9 :** Schéma descriptif du dispositif expérimental de mesure de la concentration d'ozone en configuration parallèle



**Figure 4.10 :** Variation de la concentration d'ozone produite en fonction du nombre de générateurs placés en parallèle ( $V=7,5kV$ ,  $Q_{O_2}= 5$  l/min)



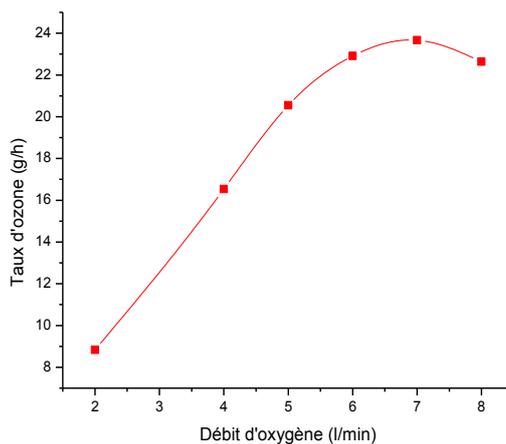
**Figure 4.11 :** Variation du taux d'ozone en fonction du nombre de générateurs placés en parallèle

#### **c/Assemblage mixte des générateurs (série-parallèle) :**

La Figure 4.12 montre le dispositif expérimental utilisé pour la mesure de la concentration d'ozone pour la configuration mixte. Dans cette configuration, nous optons pour deux branches comprenant chacune quatre générateurs en série et qui sont montés en parallèle. Nous maintenons toujours la valeur de 5 l/min comme débit d'oxygène.



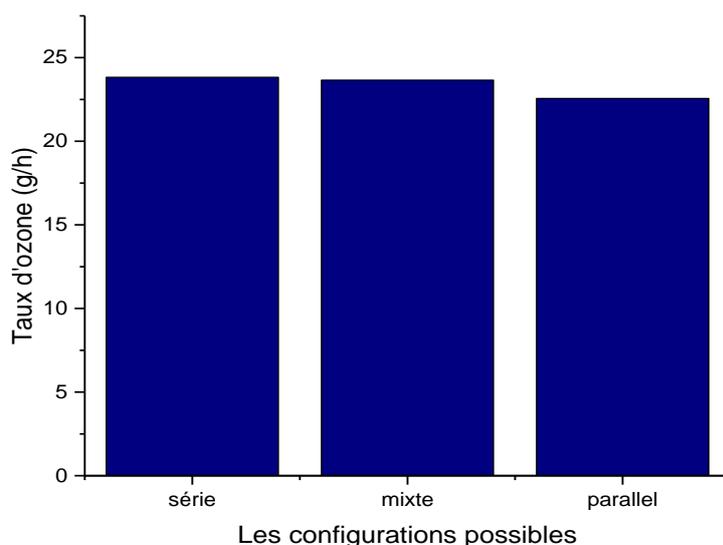
Nous remarquons que la concentration d'ozone augmente en fonction de la tension appliquée, cette augmentation devient faible en allant vers les hautes tensions. En fait, l'ozone est produit par le plasma qui est généré par DBD, et celui-ci est produit par une alimentation de haute tension qui fonctionne à la résonance. Par conséquent, au-delà d'une certaine valeur de la tension égale à 6 kV dans notre cas, il est inutile d'augmenter la valeur car le surplus sera traduit en perte d'échauffement.



**Figure 4.14 :** Variation du taux d'ozone en fonction du débit d'oxygène en configuration mixte

En augmentant le débit d'oxygène, le taux d'ozonation augmente jusqu'à la valeur de 7 l/min où il commence à diminuer à cause du surplus des molécules d'oxygène qui ne sont pas transformées en ozone. En effet, plus grande est la quantité d'oxygène plus petite sera la concentration d'ozone.

La figure 4.15 illustre un histogramme de comparaison entre les trois configurations analysées ci-dessus, en maintenant un débit fixe de 5 l/min et une tension maximale égale à 7 kV. Nous remarquons que les configurations série et mixte ont mené pratiquement au même taux d'ozone qui vaut 23 g/h avec une légère supériorité par rapport à l'assemblage parallèle des générateurs.



**Figure 4.15 :** Comparaison des valeurs du taux d'ozone pour les trois configurations possibles du SKID

#### 4.4. Analyses physico-chimiques

Dans cette section, nous désirons vérifier l'efficacité du procédé d'ozonation sur les eaux urbaines déversées dans la station d'épuration (STEP) d'Ain Hout (Wilaya de Tlemcen). Elle est destinée au traitement des eaux urbaines des 14500 habitants de la localité. Le traitement a été effectuée en faisant circuler une quantité de 5l d'eau usée avec injection de l'ozone par système Venturi, comme montré à la figure 4.5, et ce pour une durée de traitement de 30 minutes.

En effet l'analyse physico-chimique de l'eau informe sur la localisation et l'évaluation d'un niveau de pollution, en fonction d'un ensemble de plusieurs paramètres. Basée sur des valeurs de références qui sont les normes OMS (Organisation Mondiale de la Santé), elle s'évalue à l'aide de plusieurs paramètres :

- Qualité physique : matière en suspension, turbidité, transparence, température, conductivité ;
- Qualité chimique : pH, sels minéraux, matière organique (Demande Biologique en Oxygène en 5 jours, Carbone Organique Dissous),oxygène dissous ;

Les paramètres suivants ont été analysés :

- La demande chimique en oxygène (DCO) qui représente la quantité d'oxygène nécessaire pour oxyder toute la matière organique dans les eaux usées.

- La demande biochimique en oxygène (DBO) pour quantifier la fraction biodégradable des polluants carbonisés et organiques dans les eaux usées.
- La turbidité qui quantifie la présence de microorganismes.
- La conductivité est un indicateur de la concentration des ions électrolytes dissous dans l'eau et des matières en suspension totales (TSS). La conductivité et la turbidité ont été mesurées à l'aide d'un conductimètre (type Hanna, HI 8033) et d'un turbidimètre (type LP2000), respectivement.

Le tableau 4.4 illustre les principaux indicateurs de la qualité de l'eau dans notre cas.

**Tableau 4.4.** Résultats de l'analyse physico-chimique des eaux usées

Paramètres	Eaux usées brutes	Après traitement	Normes OMS
DCO	940 ( ±55.5) (mg/l)	210.29 ( ±23.3) (mg/l)	90
DBO	397 ( ±23.3) (mg/l)	65.7 ( ±17.3) (mg/l)	30
Turbidité	477 ( ±29.3) (NTU)	14.59 ( ±2.3) (NTU)	/
Conductivité	1639 ( ±64.3) (µs/cm)	1037 ( ±74.3) (µs/cm)	1200
TSS	950.5 ( ±88.3) (mg/l)	42.4 ( ±9.3) (mg/l)	20

#### **Taux de variations des différents paramètres principaux :**

La valeurs de la concentration de la DBO<sub>5</sub> passe de 397 à 65.7mg/l après une demi-heure de traitement, soit un taux de diminution de 83%. Ces résultats nous ont permis de montrer l'augmentation de la biodégradabilité de la matière organique, mais cette concentration résiduelle en DBO<sub>5</sub> reste plus élevée que les normes algériennes limitées à l'eau d'irrigation (30 mg/l).

Par ailleurs, nous constatons aussi une réduction importante de la DCO de 77% avec les ozoniseurs. Nous notons aussi que la valeur de la DCO après ozonation (210,29 mg/l) reste supérieure aux normes algériennes de rejet limitées à l'eau d'irrigation (90 mg/l).

Cependant, nous pouvons diminuer encore cette valeur en augmentant la durée de traitement ou bien le nombre de générateurs.

La présence de matières en suspension est due à la nature urbaine des eaux usées, après ozonation, ce paramètre a subi une diminution de près de 97% en passant de 477mg/l à 14,59mg/l. Pour le total des solides en suspension (TSS), la valeur passe de 950,5 à 42.4 mg/l après traitement, ce paramètre a subi une diminution de près de 95%.

#### **4.5 Conclusion**

Ce chapitre a été consacré à l'analyse expérimentale d'un skid comprenant huit générateurs d'ozone placés dans une cuve métallique remplie d'eau pour assurer le refroidissement. Ce dispositif est réalisé en utilisant une nouvelle configuration de générateur d'ozone à DBD modifiée par l'insertion d'un grillage métallique dans l'intervalle inter-électrodes. Les résultats obtenus sont satisfaisants, l'analyse physicochimique des eaux usées urbaines a en effet montré l'efficacité d'un tel dispositif.

# Conclusion générale

## Conclusion générale

Le travail réalisé dans le cadre de cette thèse s'insère parmi les activités de base de notre laboratoire APELEC dans le domaine de la recherche appliquée. Le domaine du traitement d'eau par DBD généré par plasma intègre aussi bien la physique des plasmas et l'électronique de puissance. Dans le cadre de ce travail, le travail concerne plutôt le développement d'une nouvelle configuration de générateur d'ozone et son utilisation comme élément de base pour la réalisation d'un skid mobile.

Cette thèse consistait à évaluer le potentiel de l'ozone généré par plasmas à pression atmosphérique pour la dépollution de l'eau pour déterminer s'ils pourraient devenir une alternative pour les systèmes plasma dans ce domaine. La revue bibliographique nous a montré la complexité des mécanismes présidant à la création des décharges de type DBD. C'est dans ce cadre, très large, que s'inscrit notre contribution visant à apporter les éléments nouveaux, expérimentaux et théoriques, susceptibles d'enrichir notre compréhension de la physique des DBDs. Pour ce faire, nous avons conçu un dispositif expérimental, composé d'une cellule à DBD modifiée permettant de créer et d'entretenir une décharge à la pression atmosphérique, et utilisant essentiellement l'air.

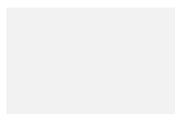
L'étude expérimentale présentée dans cette thèse a montré que le taux de production d'ozone peut être considérablement amélioré en insérant un grillage en acier inoxydable dans l'espace inter-électrodes d'un générateur d'ozone cylindrique. Bien que la méthode DBD volumique soit principalement utilisée dans la technologie de génération d'ozone, le réacteur à DBD modifiée dans lequel une décharge surfacique et volumique se produit simultanément, a fourni des résultats supérieurs en termes de taux de production d'ozone et d'efficacité énergétique.

L'étude comparative expérimentale entre les deux générateurs d'ozone à D.B.D volumique et à DBD modifiée (insertion d'un grillage métallique de forme cylindrique) nous a permis de tirer les conclusions satisfaisantes. Dans les mêmes conditions de fonctionnement, la concentration d'ozone et le rendement énergétique sont supérieures dans la configuration à DBD modifiée.

En plus, un skid comprenant 8 générateurs d'ozone placés dans une cuve métallique remplie d'eau pour assurer le refroidissement a été réalisé et testé. Ce dispositif est réalisé en utilisant la nouvelle configuration de générateur d'ozone à DBD modifiée par l'insertion d'un grillage métallique dans l'intervalle inter-électrodes. Les résultats obtenus sont satisfaisants, l'analyse physicochimique des eaux usées urbaines a en effet montré l'efficacité d'un tel dispositif.

Comme perspectives, nous proposons de réaliser une grande installation prototype industrielle pour le traitement instantané des eaux usées. Cela nécessite l'étude pour déterminer le nombre de générateurs d'ozone en fonction de la sévérité de pollution de ces eaux.

# Références bibliographiques



## REFERENCES

- [1] Lim, M. T., Zulkifli, A. Z. S., Jayapalan, K. K., & Oihong, C. H. I. N., Development of a dimensionless parameter for characterization of dielectric barrier discharge devices with respect to geometrical features. *Plasma Science and Technology*, 19(9), 095402. **2017**
- [2] Lele, W. A. N. G., Huang, X., Junfeng, C. H. E. N., Shengming, W. A. N. G., Zhaoyang, H. U., & Minghai, L. I. U.. Simulated and experimental studies on the array dielectric barrier discharge of water electrodes. *Plasma Science and Technology*, 19(3), 035402. **2017**
- [3] Rosendo, P. E., Lopez-Fernandez, J. A., Mercado-Cabrera, A., Jaramillo-Sierra, B., López-Callejas, R., Rodriguez-Mendez, B., ... & Munoz-Castro, A. E. Atmospheric-pressure dielectric barrier discharge generation by a full-bridge flying capacitor multilevel inverter. *Plasma Science and Technology*, 19(7), 075401. **2017**
- [4] Hao, Y. U. A. N., Wenchun, W. A. N. G., Dezheng, Y. A. N. G., Zilu, Z. H. A. O., Zhang, L., & Sen, W. A. N. G. Atmospheric air dielectric barrier discharge excited by nanosecond pulse and AC used for improving the hydrophilicity of aramid fibers. *Plasma Science and Technology*, 19(12), 125401. (**2017**).
- [5] Xu, X.. Dielectric barrier discharge—properties and applications. *Thin solid films*, 390(1), 237-242. **2001**
- [6] Blaich, L., Friedrich, M. and A. H. Shadiakhy. “Development of Ozone Technology and Application”, Proceedings of the 14th Ozone World Congress. Dearborn, Michigan, USA 1, 203 (199). **1999**
- [7] Kogelschatz, U., Eliasson, B., and W. Egli. From ozone generators to flat television screens: history and future potential of dielectric-barrier discharges. *Pure and Applied Chemistry*, 71(10), 1819-1828. **1999**
- [8] Jodzis, S., and W. Patkowski.. “Kinetic and energetic analysis of the ozone synthesis process in oxygen-fed DBD reactor. Effect of power density, gap volume and residence time.” *Ozone: Science & Engineering*, 38(2), 86-99. **2016**
- [9] Gottschalk, C., Libra, J. A., & Saupe, A. Ozonation of water and waste water: A practical guide to understanding ozone and its applications. John Wiley & Sons. **2009**

- [10] Shehata, S., Badr, S., & Wahba, S.. Drinking water treatment options for eliminating freshwater algae. *International journal of environmental studies*, 59(6), 679-688. **2002**
- [11] Nemnich, S., Tilmatine, A., Dey, Z., Hammadi, N., Nassour, K., and S. Messal.. “Optimal sizing of a DBD ozone generator using response surface modeling.” *Ozone: Science and Engineering*, 37(1), 3-8. 2015
- [12] W.G.V. Balchin. Water- a world problem, *International Journal of Environmental Studies*, Volume 25, 1985 - Issue 3. 2015
- [13] Yao, S., Wu, Z., Han, J., Tang, X., Jiang, B., Lu, H. and S. Kodama.. “Study of ozone generation in an atmospheric dielectric barrier discharge reactor.” *Journal of Electrostatics*, 75, 35-42. 2015
- [14] Jodzis, S. . Application of technical kinetics for macroscopic analysis of ozone synthesis process. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 50(10), 6053-6060. 2011
- [15] Hong, D., Rabat, H., Bauchire, J. M., and M. B. Chang. “Measurement of ozone production in non-thermal plasma actuator using surface dielectric barrier discharge”. *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, 34(4), 887-897. 2014.
- [16] Nassour, K., Brahami, M., Nemnich, S., Hammadi, N., Zouzou, N., and A. Tilmatine.. “Comparative experimental study between surface and volume DBD ozone generator.” *Ozone: Science & Engineering*, 38(1), 70-76. 2016
- [17] Chebbah, A., Hadjeri, S., Nemnich, S., Nassour, K., Zouzou, N., and A. Tilmatine. “Development and Experimental Analysis of a New “Serpentine-Shape” Surface-DBD Ozone Generator—Comparison with a Cylindrical Volume-DBD Ozone Generator.” *Ozone: Science & Engineering*, 39(3), 209-216. 2017.
- [18] Magureanu, M., Piroi, D., Mandache, N. B., Pârvulescu, V. I., Pârvulescu, V., Cojocaru, B., and C. Hardacre.. « In situ study of ozone and hybrid plasma Ag–Al catalysts for the oxidation of toluene: evidence of the nature of the active sites.” *Applied Catalysis B: Environmental*, 104(1), 84-90. 2011
- [19] Huang, W., Ren, T., and W. Xia.. “Ozone generation by hybrid discharge combined with catalysis.” *Ozone: Science and Engineering*, 29(2), 107-112. 2007

- [20] Pekárek, S.. “Experimental study of surface dielectric barrier discharge in air and its ozone production.” *Journal of Physics D: Applied Physics*, 45(7), 075201. 2012
- [21] Williamson, J. M., Trump, D. D., Bletzinger, P., and B. N. Ganguly. “Comparison of high-voltage ac and pulsed operation of a surface dielectric barrier discharge.” *Journal of Physics D: Applied Physics*, 39(20), 4400. 2006.
- [22] Jodzis, S.. Effective ozone generation in oxygen using a mesh electrode in an ozonizer with variable linear velocity. *Ozone: Science & Engineering*, 34(5), 378-386. (2012)
- [23] Jodzis, S., Smolinski, T., and P. Sowka. “Ozone synthesis under surface discharges in oxygen: application of a concentric actuator.” *IEEE Transactions on Plasma Science*, 39(4), 1055-1060. 2011.
- [24] Mastanaiah, N., Banerjee, P., Johnson, J. A., and S. Roy.. “Examining the role of ozone in surface plasma sterilization using dielectric barrier discharge (DBD) plasma.” *Plasma Processes and Polymers*, 10(12), 1120-1133. 2013
- [25] Brahami, MN; Hadjeri, S; Nemmiche, S; Brahami, M; Tilmatine, A; Experimental investigation of a PV solar generator for supplying water treatment process, *International Journal of Environmental Studies*, 1-15, Taylor & Francis.
- [26] Nomoto, Y., Ohkubo, T., Kanazawa, S., and T. Adachi. 1995. “Improvement of ozone yield by a silent-surface hybrid discharge ozonizer.” *IEEE Transactions on Industry Applications*, 31(6), 1458-1462. 2014
- [27] Nassour, K., Brahami, M., Nemmich, S., Hammadi, N., Zouzou, N., and A.Tilmatine. “New Hybrid Surface–Volume Dielectric Barrier Discharge Reactor for Ozone Generation.” *IEEE Transactions on Industry Applications*, 53(3), 2477-2484. 2017.
- [28] Liang Chen, H., Ming Lee, H., & Been Chang, M. Enhancement of energy yield for ozone production via packed-bed reactors. *Ozone: Science and Engineering*, 28(2), 111-118. (2006).
- [29] Brett-Crowther, M.R., Water, society and the future. *International Journal of Environmental Studies*, 65, Special Issue: Nitrogen deposition, 467-475. 2008
- [30] Nishiyama, H., Takana, H., Niikura, S., Shimizu, H., Furukawa, D., Nakajima, T., and Y. Nakano.. “Characteristics of ozone jet generated by dielectric-barrier

- discharge. “ IEEE transactions on plasma science, 36(4), 1328-1329. 2008
- [31] Chang, M. B., and S. J. Wu. Experimental study on ozone synthesis via dielectric barrier discharges. *Ozone: Science & Engineering*, 19(3), 241-254. 1997
- [32] Gibalov, V. I., and G. J. Pietsch. “On the performance of ozone generators working with dielectric barrier discharges.” *Ozone: Science and Engineering*, 28(2), 2006.
- [33] Hołub, M.. “On the measurement of plasma power in atmospheric pressure DBD plasma reactors.” *International Journal of Applied Electromagnetics and Mechanics*, 39(1-4), 81-87. 2012
- [34] Dascalescu, L.. “Numerical Analysis of the Electric Field of Roll-Type Electrostatic Separators.” *Journal of Electrostatics* 29 (3):255–67. 1993
- [35] Levin, P. L., A. J. Hansen, D. Beatovic, H. Gan, and J. H. Petrangelo. “A Unified Boundary-Element Finite- Element Package.” *IEEE Transactions on Electrical Insulation* 28 (2):161–7. 1993.
- [36] N. Gherardi and F. Massines, « Mechanisms Controlling the Transition from Glow Silent Discharge to Streamer Discharge in Nitrogen », *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 29(3), 536-544. (2001)
- [37] Bachir Bordji; «Etude et conception d’un banc de décharge à barrière diélectrique (DBD). Application au traitement de la surface d’un film de Polypropylène », Mémoire de magister en physique de Université d’Oum El-Bouaghi, Algérie ,(2009)
- [38] Fatiha Ghaleb ; «Calcul de la courbe Paschen et la tension de claquage pour les décharges à gaz rares», Thèse de doctorat en physique de U.S.T.Oran, Algérie,(2013).
- [39] J. M. Meek and J. D. Craggs, *Electrical breakdown of gases*, clarendon press, Oxford (1953).
- [40] J. M. Meek and J. D. Craggs, *Gas discharge physics*, edited by S. Flugge, Springer Verlag, Berlin (1991).
- [41] A. Sublet « Caractérisation de décharges à barrières diélectriques atmosphériques et sub-atmosphériques et application à la déposition de Couches d'oxyde de silicium », Thèse de doctorat de L’école polytechnique fédérale de Lausanne, (2007)
- [42] Jose L. Lopez. Saint Pierre « Décharge à barrière diélectrique, ozone. Génération et ses applications .In stitut d’été sur les plasmas complexes ». Collège Université

Département des sciences appliquées et de la technologie Division de physique (Jersey City, New Jersey (Etats-Unis) 2008

[43] Mahamat Abakar DJIBRILLAH. « Eléments de conception d'un générateur électrique pour l'alimentation d'un dispositif à décharge à barrière diélectrique » Institut National Polytechnique de Toulouse. 2011

[44] Nicolas Ghéradis. Université de Toulouse « Les décharges froides à la pression atmosphérique pour le dépôt de couches minces fonctionnelles »

[45] Pierre Audier, étude d'une décharge à barrière diélectrique surfacique : Application au contrôle d'écoulement autour d'un profil d'aile de type NACA0012. Université d'Orléans, 2012

[46] Kossi Djidula Bayoda. Propriétés électriques, optiques et mécaniques d'une décharge de surface à barrière diélectrique nanoseconde pulsée. Application à la mesure de vitesse pariétale et au contrôle des écoulements aérodynamiques. Université de Poitiers 2006

[47] A. Khacef, « réduction de la pollution par plasma-catalyse : cas des composés organiques volatiles(COV) et des oxydes d'azote (NOx) », Orléans 2009.

[48] A. Khacef, « Réduction de la pollution par plasma-catalyse : cas des composés organiques volatiles(COV) et des oxydes d'azote (NOx) », Orléans 2009.

[49] Z A du Verdalai « Traitements Plasma à Pression Atmosphérique (APP) »-13790 PEYNIER- France. WWW, CPI-plasma. Com. 2015.

[50] Thanh Doanh, Etude d'une décharge à barrière diélectrique établie dans un mélange gaz rare halogène. Université Toulouse III-Paul Sabatier 2011

[51] Rafael Diez Medina. Alimentation de puissance d'une lampe exciplexe à décharge à barrière diélectrique, en vue du contrôle du rayonnement Université de Toulouse, 2008

[52] E. Kuffel, W. S. Zaengl and J. Kuffel, "High voltage engineering fundamentals", Second edition, pp.298-290, 2000.

[53] S. Kanazawa, M. Kogoma, T. Moriwaki, S. Okazaki, « Stable glow plasma at atmospheric pressure », J. Phys. D: Appl. Phys. 21, 838 (1988)

- [54] 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.
- [55] M.Magureanu ,N.B.Mandache, « Investigation of a pulsed positive corona in multipointe –to-plane configuration », International Conference on phenomena in ionized Gases Held in Greifswald, Germany,2003.
- [56] Bruno Langlais, David A. Reckhow, Deborah R. Brink, «Ozone in Water Treatment», Lewis Publishers, 1991.
- [57] Laure Seydoux-Steinfort-LCB « Maitrise des contaminations par méthodes physique. SecurFood » 2012.
- [58] Enrico Riboni « Les méthodes de désinfection de l'eau» cours, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne 1997.
- [59] Melanie Nicolas« Ozone Et Qualité De L'air Intérieur : Interactions avec les produits de construction et de décoration »Thèse De Doctorat, Université Paris 7, Octobre 2006
- [60] Conception et simulation d'un réacteur fil-cylindre à décharge couronne avec barrière diélectrique adapté au traitement des oxydes d'azote dans des effluents marqués par un isotope Présentée par Axel Vincent Université Paris VI
- [61] 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.
- [62] Destruction of gaseous pollutants and air toxics by surface discharge induced plasma chemical process (SPCP) and pulse corona induced plasma chemical process (PPCP), S. Masuda, NATO ASI Series, 1993, vol. G34-B, pp. 199-209
- [63] L.R. Grabowski, Pulsed corona in air for water treatment, PhD Thesis, Technische Universiteit Eindhoven, Netherlands, 2006
- [64] Mohamed Chérif Bouzidi « Etude d'une décharge à barrière diélectrique (DBD) homogène dans l'azote à pression atmosphérique effet mémoire et optimisation du transfert de puissance » Université Toulouse 3 Paul Sabatier 2013

[65] Amine Charfi « Etude d'un procédé membranaire de traitement des eaux usées : effet des paramètres biotiques et abiotiques sur le colmatage de la membrane » Université de Carthage. 2014.

[66] Draou, A., Nemnich, S., Nassour, K., Benmimoun, Y., & Tilmatine, A. (2019). Experimental analysis of a novel ozone generator configuration for use in water treatment applications. *International Journal of Environmental Studies*, 76(2), 338-350.