



UNIVERSITE DJILLALI LIABES DE SIDI-BEL-ABBES
Faculté de Génie Electrique
Département d'Electrotechnique

Thèse présentée par :

NASSOUR kamel

Pour l'obtention du diplôme de :

DOCTORAT en sciences

Spécialité : Electrotechnique

Option : Haute Tension

Intitulé de la thèse :

**Optimisation du procédé de génération
d'ozone par décharge à barrière diélectrique
mixte « surfacique-volumique » pour le
traitement d'eau**

Devant la commission d'examen constituée de :

Dr. Hadjeri Samir	Professeur (U.D.L. Sidi Bel-Abbés)	Président
Dr. Brahami Mostefa	Professeur (U.D.L. Sidi Bel-Abbés)	Directeur de thèse
Dr. Tilmatine Amar	Professeur (U.D.L. Sidi Bel-Abbés)	Co-directeur de thèse
Dr. Yanallah Khelifa	Professeur (Université Tiaret)	Examineur
Dr. Rizouga Mohamed	Professeur (U.S.T.MB. Oran)	Examineur
Dr. Zelmat Mohamed Elmouloud	MCA (U.S.T.MB. Oran)	Examineur

Soutenu le : Décembre 2016

Dédicace

- Pour l'esprit de mon père, à ma mère,
 - A ma femme et mon fils Mohammed Anes,
 - A mes frères et sœurs,
 - A toutes ma famille et mes ami(e)s,
A tous ceux qui me sont chers.

Remerciement

Cette Thèse de doctorat a été préparée au sein de laboratoires de recherche APELEC et ICEPS de l'université de Sidi-Bel-Abbès.

Un seul nom figure sur la couverture de cette thèse, malgré ça, il est important de préciser que ce résultat est le fruit d'un effort collectif. C'est pourquoi je tiens à remercier de près ou de loin les personnes qui ont participé à l'avancement et aboutissement de ce travail.

Tout d'abord je remercie sincèrement les professeurs **Amar TILMATINE et Mostéfa BRAHAMI** qui ont su encadré et dirigé ce travail avec beaucoup d'intentions et de compétences et surtout ils ont veillé à la disponibilité de beaucoup de moyens morales et matériels. Je tiens à les remercier pour la confiance qu'ils m'ont témoignée lors de l'attribution et du déroulement de cette thèse. J'espère sincèrement pouvoir continuer cette collaboration dans le futur.

J'adresse tous mes remerciements au Dr **HADJERI samir** Professeur à l'université de Sidi-Bel-Abbès pour m'avoir fait l'honneur de présider mon jury de cette thèse et d'évaluer ce travail. Mes remerciements s'adressent également au Dr **Mohamed RIZOUGA** Professeur à l'université d'Oran pour avoir manifesté un grand intérêt pour le sujet en acceptant d'être membres du jury. Je remercie également le Dr **YANALLAH Khelifa** Professeur à l'université de Tiaret, d'avoir accepté de participer au jury de cette thèse ainsi que pour les nombreux conseils, les nombreux échanges scientifiques et techniques que nous avons eus.

.Je remercie également Dr **ZELMAT Mohammed El Mouloud**, maitre de conférences à l'université d'Oran, d'avoir accepté de participer au jury de cette thèse.

Je remercie également le responsable de la station d'épuration des eaux usée d'**Ain Tolba** de la wilaya d'Ain Temouchent pour leur soutien, ainsi qu'à l'ingénieur Senouci du laboratoire de microbiologie.

Je porte mes remerciements, aux responsables et travailleurs de l'unité nationale de l'industrie textile de **Sebdou**, Wilaya de **Tlemcen** pour leur disponibilité et leur aide.

Finalement, je tiens également à remercier tous les professeurs et les doctorants de laboratoires APELEC, IRECOM et ICEPS pour leur soutien, leur disponibilité et leur sympathie, et spécialement mon collègue **Said Nemnich**.

Abréviation

DBD : Décharge à barrière diélectrique.

DBDS : Décharge à barrière diélectrique surfacique.

DBDV : Décharge à barrière diélectrique volumique.

DBDH : Décharge à barrière diélectrique hybride.

DCO : Demande chimique en oxygène

DBO5 : Demande biochimique en oxygène en cinq jours.

MES : Matière en suspension

MVS : Matière volatile en suspension

NGL : Azote global

STEP : Station d'épuration des eaux.

OMS : Organisation mondiale de la santé

SDT : Solides dissoutes totaux.

SR-0 : Sans système de refroidissement.

SR-1 : Système de refroidissement à air ambiant

SR-2 : Système de refroidissement à eau stagnée

SR-3 : Système de refroidissement à eau en mouvement

Ph : Potentiel d'hydrogène.

NTU : Unité de turbidité néphlométrique.

Abs : Absorbance.

Sommaire

Introduction générale	1
Chapitre 1 : Décharges à barrière diélectrique (DBD) pour la production d’ozone: Etat de l’art	3
1.1 Introduction	3
1.2 Décharges électriques dans le gaz	3
1.2.1 Régime d’ionisation (zone I)	4
1.2.2 Régime de saturation (zone II)	4
1.2.3 Régime de Townsend (zone III)	5
1.2.4 Régime de décharge subnormale (zone IV)	5
1.2.5 Régime de décharge normale (zone V)	5
1.2.6 Régime de décharge anormale (zone VI)	6
1.2.7 Régime d’arc non thermique (zone VII)	6
1.2.8 Régime d’arc thermique (zone VIII)	6
1.3 Généralités sur les plasmas	6
1.3.1 Définition	6
1.3.2 Caractéristiques et classification	7
1.3.3 Processus physico-chimique interne	9
1.4 Caractéristiques des décharges électriques dans le gaz	11
1.4.1 Avalanche électronique	11
1.4.2 Charge d’espace	12
1.5 Mécanisme de décharge des isolants gazeux	13
1.5.1 Influence de la pression	13
1.5.1.1 Loi de Paschen	13
1.6 Décharge couronne	15
1.6.1 Géométrie de la décharge	16
1.6.2 Décharge couronne en polarité positive	16
1.6.3 Décharge couronne en polarité négative	17

1.7 Décharge à barrière diélectrique DBD	18
1.7 .1 Historique de la DBD	18
1.7.2 Définition de la DBD.....	18
1.7.3 Principe de fonctionnement de la DBD	19
1.7.4 Types des DBDs	20
1.7.5 Applications des DBDs	22
1.8 Ozone et ses applications	26
1.8 .1 Définition	26
1.8.2 Caractéristiques de l’ozone.....	27
1.8.3 Avantages et inconvénients de l’ozone	28
1.8.4 Production d’ozone	28
1.8.5 Applications d’ozone	29
1.8.6 Ozone et désinfection des eaux	32
1.9 Conclusion	34
Chapitre 2 : Etude comparative entre générateurs d’ozone à DBD volumique et surfacique	35
2.1 Introduction	35
2.2 Conception des générateurs d’ozone à DBD surfacique et volumique	36
2.2.1 Générateur à DBD volumique	36
2.2.2 Générateur à DBD surfacique.....	39
2.3 Exploitation du générateur d’ozone dans un circuit de traitement d’eaux	42
2.4 Caractéristiques électriques des générateurs d’ozone	44
2.4.1 Courant électrique de décharge	44
2.4.2 Mesure de puissances consommée	45
2.5 Résultats et discussions	46
2.5.1 Effet de la tension sur la puissance consommée	46
2.5.2 Effet de la tension et du débit sur la concentration d’ozone	47
2.5.2.1 Effet de la tension	47
2.5.2.2 Effet du débit	48
2.5.3 Simulation numérique du champ électrique au niveau des générateurs d’ozone	49
2.5.4 Influence de la géométrie de l’électrode terre pour le modèle à DBD surfacique	50

2.5.5 Efficacité énergétique pour différents réacteurs	52
2.6 Conclusion	53
Chapitre 3 : Optimisation des paramètres du générateur d’ozone à DBD surfacique ...	54
3.1 Introduction	54
3.2 Conception de différents réacteurs d’ozone à DBD surfacique	55
3.2.1 Influence du volume d’écoulement du gaz	55
3.3 Description du dispositif expérimental de décoloration des eaux.....	57
3.3.1 Influence de la tension	58
3.3.2 Effet du débit d’oxygène	59
3.3.3 Influence de la longueur d’électrode	61
3.3.4 Mesure de la puissance consommée.....	61
3.4 Optimisation du générateur d’ozone à DBDS4	63
3.4.1 Rappels sur la méthode des plans d’expériences	63
3.4.1.1 Concepts fondamentaux : réponses, facteurs, interactions	63
3.4.1.2 Etapes d’une étude par plans d’expériences	64
3.4.1.3 Variables codées	66
3.4.1.4 Principaux avantages de plans d’expériences	66
3.4.2 Plan composite centré.....	66
3.4.3 Qualité du modèle.....	68
3.4.4 Logiciel MODDE 5.0	69
3.4.5 Résultats et discussion	69
3.4.5.1 Expériences de criblage	69
3.4.5.2 Identification du point maximal	69
3.5 Décoloration des eaux par le générateur d’ozone optimisé	75
3.5.1 Décoloration de l’eau contaminée par colorant alimentaire	75
3.5.2 Décoloration de l’eau contaminée par colorant textile	76
3.5.3 Décoloration de l’eau issue de l’industrie textile	76
3.6 Conclusion	77

Chapitre 4 : Développement et étude d'un générateur d'ozone hybride à DBD mixte (surfaccique-volumique) 78

4.1 Introduction	78
4.2 Structure et géométrie des différents modèles de générateurs d'ozone	79
4.2.1 Générateur d'ozone à DBD volumique	79
4.2.2 Générateur d'ozone à DBD surfaccique	79
4.2.3 Générateur d'ozone à DBD mixte volumique surfaccique (hybride)	79
4.3 Etude des caractéristiques électriques des différents réacteurs d'ozone	81
4.3.1 Moyens expérimentaux et techniques de mesure	82
4.3.2 Calcul de la puissance consommée	83
4.4 Concentration d'ozone pour les trois modèles de générateurs d'ozone	88
4.4.1 Influence de la trajectoire du gaz sur la concentration d'ozone dans le générateur hybride.....	89
4.4.2 Comparaison entre performances du générateur hybride et celles des générateurs surfacciques et volumiques	90
4.4.3 Etude comparative de la décharge surfaccique dans le réacteur hybride et surfaccique ..	90
4.4.4 Etude comparative de la décharge volumique dans le réacteur hybride et volumique ..	91
4.4.5 Effet du débit sur la concentration d'ozone pour différents réacteurs	92
4.5 Taux d'ozone des trois réacteurs	93
4.6 Efficacité énergétique des réacteurs	94
4.7 Conclusion	96

Chapitre 5 : Traitement d'eaux usées industrielles et domestiques par ozonation 97

5.1 Introduction	97
5.2 Réalisation des différents systèmes de refroidissement	98
5.2.1 Configuration SR-1	98
5.2.2 Configuration SR-2.....	99
5.2.3 Configuration SR-3.....	99
5.2.4 Influence de la température sur la concentration d'ozone	100
5.3 Traitement d'eaux usées	103
5.4 Principaux indicateurs de la qualité d'eaux usées	103

5.5 Méthodes de traitement d'eaux usées	104
5.5.1 Méthodes physiques (prétraitement)	104
5.5.2 Procédés biologiques	105
5.5.3 Procédés chimiques (désinfection)	105
5.6 Description du dispositif expérimental d'ozonation	108
5.7 Traitement des rejets de textile par ozonation	108
5.7.1 Processus de l'industrie de textile	108
5.7.2 Caractéristiques des eaux de textile à traiter	109
5.7.3 Impact d'ozone sur la qualité d'effluent	110
5.8 Impact d'ozone sur une eau infectée par plusieurs colorants	114
5.8.1 Généralités sur les colorants	114
5.8.2 Classification des colorants	114
5.8.3 Préparation de la solution mère	117
5.8.2 Mise en marche du dispositif de décoloration	118
5.9 Traitement d'eaux urbaines	119
5.10 Conclusion	121
Conclusion générale	123

Annexes

Références Bibliographiques

Introduction générale

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Depuis quelques années, la communauté scientifique s'intéresse de plus en plus aux technologies basées sur les plasmas réactifs hors équilibre générés par des décharges électriques dans l'air à la pression atmosphérique. En effet, ces technologies présentent divers avantages comparés à d'autres procédés plasma à plus basse pression ou de type thermique. Elles sont également moins consommatrices d'énergie électrique en comparaison d'un réacteur à plasma thermique.

Les développements récents des dispositifs plasma à décharge à barrière diélectrique et leur vulgarisation auprès du grand public, par exemple sur les écrans plasmas, traitement des eaux les ont rendus populaires, et pourtant les premières expériences sur ce type particulier de décharges datent de plus d'un siècle avec les travaux de *Siemens*.

Les maladies infectieuses sont dues à une qualité médiocre de l'eau, de l'assainissement et à des problèmes d'hygiène, elles ont longtemps constituées, une part importante des causes de mortalité. Elles continuent d'être aujourd'hui, dans les pays en voie de développement, un terrible fléau en faisant plus de 3 millions de morts par an et sont responsables de la mort d'un enfant sur deux. Les maladies comme le choléra, la fièvre typhoïde, l'hépatite infectieuse, la poliomyélite sont les plus graves.

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

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 intéresserons principalement à la conception de quelques générateurs d'ozone de forme cylindrique coaxiale en introduisant plusieurs types de décharges à savoir : volumique, surfacique et hybride (surfacique et volumique à la fois) et optimiser leur rendement énergétique en fonction de plusieurs facteurs géométriques, électriques et d'autres pour le gaz d'alimentation de ces générateurs.

Nous avons opté d'appliquer cette technique d'ozonation, en premier lieu sur les eaux industrielles en traitant les *effluents de textile* de l'unité de **Sebdou** de la wilaya de **Tlemcen**. En deuxième temps la technique d'ozonation est appliquée sur les eaux domestiques urbaines qui alimentent la station d'épuration d'**Ain Tolba** de la wilaya d'**Ain Temouchent**.

Le manuscrit est organisé de la manière suivante : Le *premier chapitre* consacré à l'état de l'art, a pour objet d'apporter au lecteur les éléments 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 la suite de ce 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...). Dans la dernière partie nous optons pour une comparaison entre différentes méthode de traitement des eaux et les avantage que présente l'ozone dans ce domaine.

Le *second chapitre*, est consacré à une étude expérimentale comparative entre les deux générateurs d'ozone à DBD surfacique et volumique en termes de génération d'ozone, puissance consommée et volume de circulation du gaz.

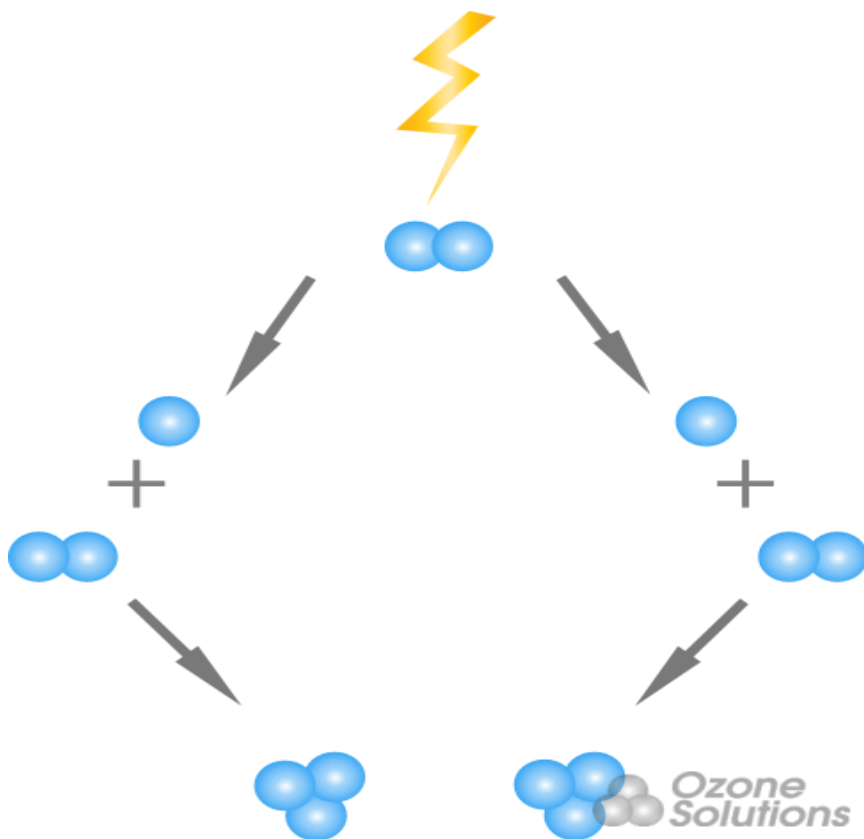
Nous présentons ensuite, au *troisième chapitre* une optimisation du générateur à décharge surfacique basée sur des expériences préliminaires, ainsi que la méthode des plans d'expériences *MPE* pour chercher une configuration optimale qui produit le maximum d'ozone avec une consommation de puissance réduite.

Dans le *quatrième chapitre*, nous proposons un nouveau générateur à décharge mixte, dont l'existence de la décharge surfacique et volumique simultanément où nous évaluons la concentration d'ozone et la puissance consommée. Ce générateur sera comparé avec les autres cités auparavant.

La dernière partie de ce manuscrit sera consacrée à l'implantation du procédé d'ozonation avec un système de refroidissement adéquat dans un circuit de traitement des différentes types d'eaux usées, à savoir domestiques et industrielles. Cette étude est basée sur l'analyse physicochimique de l'eau avant et après traitement, en faisant la comparaison avec les normes nationales en vigueur.

Chapitre 1

Décharges à barrière diélectrique (DBD) pour la production d'ozone: Etat de l'art



1

DÉCHARGES À BARRIÈRE DIÉLECTRIQUE (DBD) POUR LA PRODUCTION D’OZONE: ETAT DE L’ART

1.1. Introduction

Ce chapitre est consacré à l’état de l’art pour la compréhension des différentes notions concernant les phénomènes de décharges qui se produisent dans le gaz à partir d’un dispositif de décharge contrôlé par barrière diélectrique.

Nous entamons cette partie par l’illustration des différents régimes de décharge qui peuvent se manifester dans un gaz afin d’introduire aux plasmas et leurs classification en fonction des températures.

Nous détaillons ensuite les Décharges à Barrière Diélectrique (*DBDs*), ainsi que les domaines d’applications dans lequel ce dispositif est adapté.

Certaines applications des *DBDs*, aussi bien dans l’industrie que dans la vie quotidienne sont présentées. Le traitement des eaux par ozonation produite par la décharge à barrière diélectrique, qui constitue le support de nos expérimentations, est présenté en détail.

1.2. Décharges électriques dans les gaz

Les premiers travaux menés sur les mécanismes d’initiation de décharge dans le gaz sont dus à Townsend. Ils sont focalisés sur l’étude de décharges obtenues entre deux électrodes planes soumises à une tension continue et disposées dans une enceinte sous une pression réduite. Le dispositif de Townsend, schématisé sur la [figure 1.1](#), a donné naissance à une des décharges les plus étudiées sur le plan académique : la décharge continue basse pression. C’est un exemple bien connu pour présenter certains phénomènes qui jouent un rôle clé dans l’établissement et le maintien des décharges électriques à basse et haute pression.

Une différence de potentiel continue V est appliquée aux bornes d’un tube à travers une résistance variable R . En agissant sur les valeurs de R et V , le courant i traversant le gaz varie en allant des valeurs très faibles, de l’ordre de 10^{-18} A, arrivant à quelques centaines de milliampères [\[1-3\]](#).

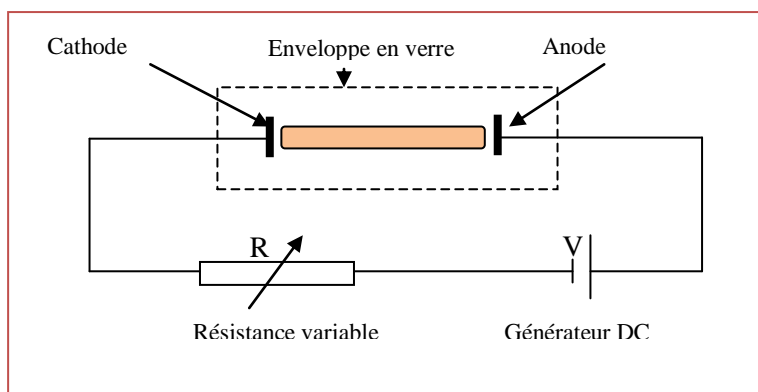


Figure 1.1. Dispositif expérimental de Townsend [2]

La caractéristique courant-tension de la décharge produite par le dispositif ci-dessus est obtenue en faisant augmenter la tension appliquée à l’intervalle gazeux. Différents régimes de décharge sont alors distingués (figure 1.2). La courbe permet de constater quatre régimes.

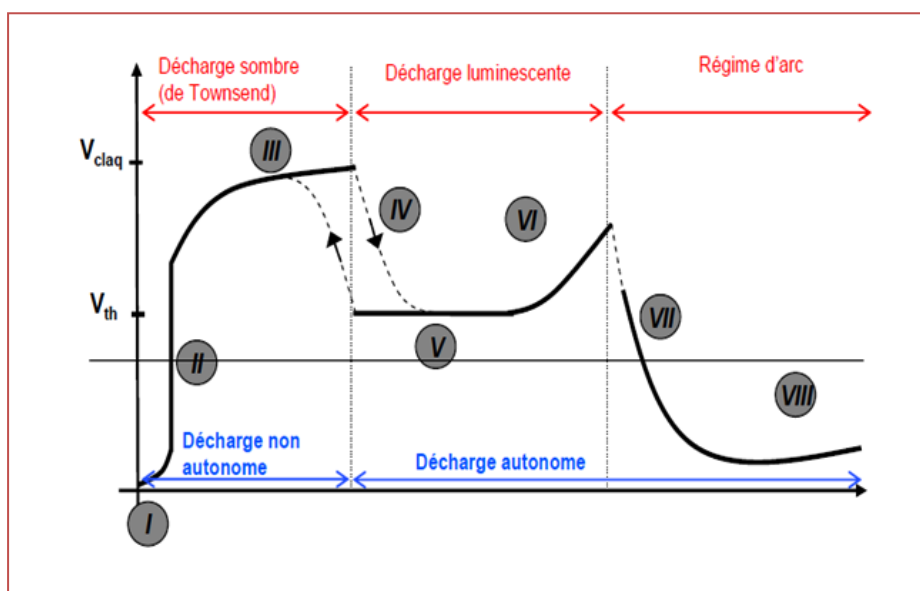


Figure 1.2. Caractéristique courant-tension et différents types de décharges dans les gaz [2]

1.2.1. Régime d’ionisation de fond (Zone I)

Ce régime est caractérisé par une très faible valeur de tension gaz, dont l’anode collecte les électrons libres. Ces électrons libres et ions sont créés par des rayons cosmiques et autres formes de rayonnement d’ionisation de fond.

1.2.2. Régime de saturation (Zone II)

Dans ce régime les ions et 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 ne possèdent pas assez d’énergie pour créer de nouvelles ionisations.

1.2.3. Régime de Townsend (Zone III)

Dans cette étape, les électrons se trouvant dans le volume de décharge acquièrent suffisamment d'énergie, grâce au champ électrique, pour créer de nouvelles ionisations.

La multiplication des électrons est principalement gouvernée :

- par l'ionisation et l'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.

Les trois régimes de décharge qui viennent d'être présentés (zones I, II, III), sont dénommés « décharge sombre » car, exceptées les décharges corona, toutes ces décharges restent invisibles à l'œil nu.

1.2.4. Régime de transition entre le régime de Townsend et le régime luminescent-décharge subnormale (Zone IV)

L'augmentation du champ électrique engendre l'accélération de la vitesse du bombardement des ions sur la cathode. Ce mouvement génère des électrons supplémentaires qui à leur tour font augmenter le courant.

La tension de décharge chute, suite à l'augmentation de la quantité d'électrons, provoquant une transition discontinue vers le régime luminescent. Ce champ électrique peut être désigné comme le champ critique de claquage et qui conduit au « potentiel disruptif ».

1.2.5. Régime de décharge normale (Zone V)

Dans cette partie la tension aux bornes de la décharge est quasiment indépendante du courant. Ce sont des décharges auto-entretenues, caractérisées par des densités de courant encore relativement faibles (typiquement inférieures à 1 A/cm^2), pour des pressions de l'ordre de quelques millibars. La grande différence qu'elles présentent avec les décharges dites de Townsend réside dans le fait que c'est le champ de charge d'espace et non pas le champ Laplacien qui gouverne la dynamique des espèces chargées dans la décharge.

Ce champ de charge d'espace provient de la différence de mobilité entre électrons et ions : ceci induit une localisation du champ électrique lorsque la densité des porteurs devient suffisante. C'est notamment pour cette raison que ces décharges peuvent être maintenues à des tensions beaucoup plus faibles que les décharges de Townsend.

La densité de courant reste à peu près constante dans ce régime, ce qui signifie que la décharge n'occupe pas entièrement la surface des électrodes.

Ce régime de décharge présente un intérêt tout particulier, car on pourra moduler la valeur du courant sans pour autant qu'il y ait de variation de la tension. *C'est dans ce régime de décharge que fonctionnent les DBDs.*

1.2.6. Régime de décharge anormale (Zone VI)

Le courant continuant à augmenter, la partie de la cathode occupée par le plasma augmente, jusqu'à la couvrir entièrement (tant que la cathode n'est pas entièrement couverte, on est dans le *régime normal* (zone III).

Quand la cathode est entièrement couverte, le régime de décharge anormale caractérisé par un accroissement de la tension suivant le courant atteint.

1.2.7. Régime d'arc non thermique (Zone VII)

Avec l'augmentation de la densité de courant, la cathode chauffée jusqu'à l'incandescence, générant des électrons supplémentaires par effet thermoionique.

L'augmentation du nombre des électrons crée un phénomène d'avalanche qui fait chuter la tension de décharge, alors que le courant augmente jusqu'à des valeurs très élevées. On est dans un régime d'arc non thermique dans lequel les électrons, les ions et le gaz n'ont pas la même température.

1.2.8. Régime d'arc thermique (Zone VIII)

Ce dernier régime est caractérisé par une pente positive de la caractéristique et est appelé régime d'arc thermique. C'est un régime dans lequel le plasma est proche de l'équilibre thermodynamique et la température de toutes les espèces est quasi égale.

1.3. Généralités sur les plasmas

1.3.1. Définition

Plasma nom masculin, du grec plasma, formation: état dilué de la matière, analogue à un gaz, mais constitué de particules chargées, électrons et ions, en proportions telles que le milieu soit globalement neutre.

Le terme plasma a été introduit en 1928 par les physiciens américains *I. Langmuir* et *L. Tonks* pour désigner un gaz ionisé, c'est-à-dire constitué de particules chargées (ions et électrons). Ils auraient choisi ce terme par analogie avec le plasma sanguin, partie liquide du sang transportant cellules et hormones dans notre corps.

Le plasma est considéré comme le quatrième état de la matière faisant suite à l'état solide, liquide et gazeux. Dans un gaz, chaque atome présent est électriquement neutre, les charges positives (protons) du noyau sont compensées par le même nombre de charges négatives (Électrons) qui gravitent autour de lui. Si on fournit à ce gaz un apport énergétique suffisant, une partie des électrons va être arrachée aux atomes entraînant la perte de leur neutralité: c'est le phénomène d'ionisation (**figure.1.3**). Au commencement, l'état plasma désignait uniquement les gaz totalement ionisés et globalement neutres, par la suite cette définition a été étendue aux gaz dont une seule fraction aura été ionisée. L'apport énergétique nécessaire pour passer de l'état gazeux à l'état plasma peut provenir d'une source de chaleur, d'un champ électromagnétique très intense, d'un bombardement de particules ou encore d'un champ électrique de forte amplitude.

Les plasmas en équilibre thermodynamique sont désignés comme étant le quatrième état de la matière faisant suite dans l'échelle des températures aux trois états classiques: **solide, liquide et gaz**.

On peut séparer les plasmas en deux catégories: les plasmas naturels (étoiles, éclairs, aurores boréales, ionosphère...) et les plasmas artificiels (les écrans de télévision, les tubes fluorescents pour l'éclairage, la soudure à l'arc...) [4-5]

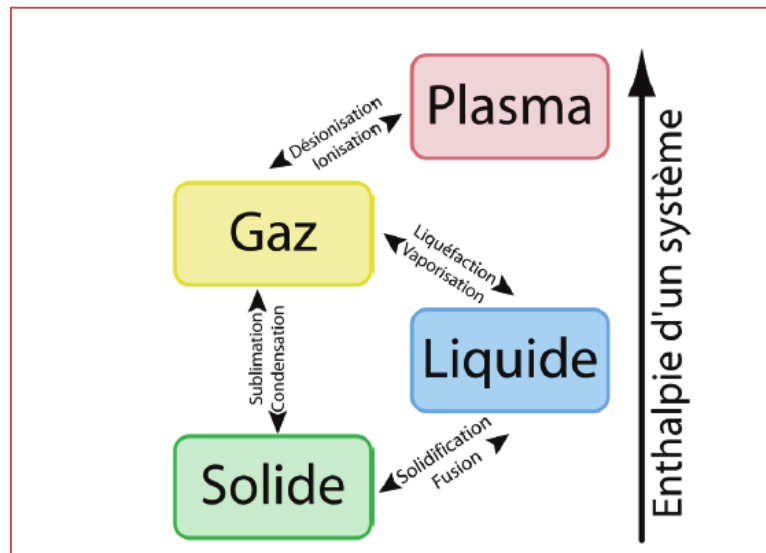


Figure 1.3. Evolution de l'état de la matière avec la température [4]

1.3.2. Caractéristiques et classification

L'évolution d'un plasma, parce qu'il est constitué de différentes particules en interaction, reste très complexe à étudier même de nos jours. Pour complètement décrire un plasma, il

faut étudier l'évolution de la densité, de la température et de la fonction de distribution en espace et en vitesse de chaque espèce. Il faut aussi prendre en compte les collisions pouvant se produire ainsi que les réactions chimiques. Même si théoriquement, les équations reliant toutes ces données sont majoritairement connues, il est extrêmement complexe de les résoudre malgré les moyens numériques actuels. Cependant, plusieurs modèles simplifiés ont été établis en classant les plasmas suivant plusieurs critères et en introduisant un certain nombre de paramètres :

- **Densité électronique** : représente le nombre d'électrons libres par unité de volume.
- **Degré d'ionisation** : est défini comme le rapport entre la densité électronique (nombre d'électrons libres dans un volume unitaire) et la somme de la densité électronique et de la densité du gaz (nombre d'atomes dans le même volume).

$$\tau_i = \frac{n_e}{n_e + N} \quad (1.1) \quad [1]$$

n_e : La densité électronique (nombre d'électrons libres dans un volume unitaire)

N : La densité du gaz (nombre d'atomes dans le même volume)

Si la fréquence de collision électron/neutre est supérieure à celle électron/électron ou électron/ion, on dit que le plasma est faiblement ionisé, son degré d'ionisation est alors inférieur à l'unité de plusieurs ordres de grandeur. Par contre, si la fréquence de collision électron/neutre devient inférieure aux deux autres, le plasma est dit fortement ionisé et son degré d'ionisation est proche de l'unité. Un gaz neutre a un degré d'ionisation nul.

Grâce à la grandeur τ_i , on peut classer les plasmas en deux grandes catégories : les plasmas chauds et plasmas froids.

- Si $\tau_i < 10^{-3} - 10^{-4}$, on définit ce plasma comme étant un plasma froid hors équilibre,

- Si $\tau_i > 10^{-3} - 10^{-4}$, le plasma est dit chaud en équilibre thermodynamique.

- **Libre parcours moyen** : λ correspond à la distance moyenne parcourue par une particule chargée entre deux collisions. il dépend de la vitesse des particules, ainsi que de la probabilité des collisions et il est défini par la relation suivante :

$$\lambda = \left(\frac{2\varepsilon_0 K T_e}{n_e e^2} \right)^{1/2} \quad (1.2) \quad [6]$$

Avec :

ε_0 : Permittivité du vide ($8,84 \cdot 10^{-12} \text{ F.m}^{-1}$)

k : constante de Boltzmann ($1,3806 \cdot 10^{-23} \text{ J.K}^{-1} \cdot \text{molécule}^{-1}$)

n_e : densité électronique (cm^3)

T_e : température électronique (K).

• **Température électronique** : T_e est la température électronique qui correspond à la température absolue en Kelvin (K) des électrons.

Lorsque la température des électrons (**1000 à 10000 K**) est très supérieure à la température des molécules du gaz (proche de la température ambiante), on parle de *plasma froid* ou de *plasma hors équilibre thermodynamique*. Ce sont des gaz faiblement ionisés. Dans cette étude, nous nous intéresserons exclusivement aux plasmas froids (**figure 1.4**). [1]-[5-7]

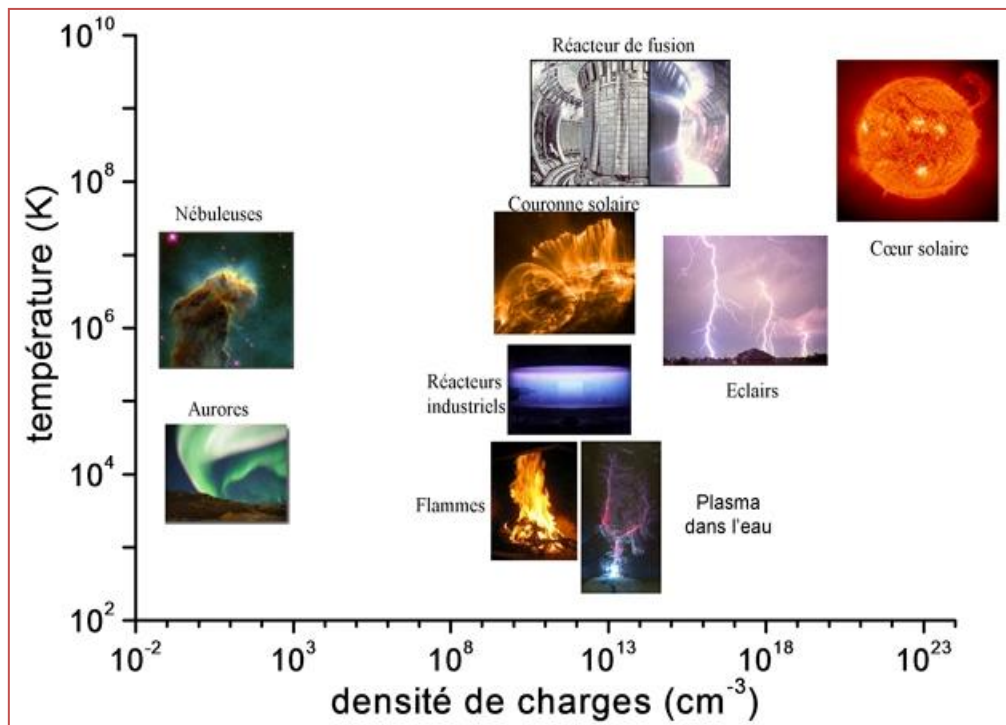


Figure 1.4. Classification des plasmas en fonction de leur densité et de leur température [7]

1.3.3. Processus physico-chimiques internes

Dans notre cas de décharge, le plasma est obtenu en soumettant l'air ou l'oxygène ambiant à un champ électrique de forte amplitude (application de la haute tension) pour augmenter l'énergie cinétique des particules pour provoquer leur ionisation. Les particules chargées, notamment les électrons, soumis à la force de Coulomb, vont entrer en collisions élastiques ou inélastiques avec les molécules environnantes pour générer d'autres ionisations.

Les collisions élastiques ne modifient pas la structure interne des atomes rentrés en collision, seule la vitesse des particules est affectée, en norme et en direction. Les collisions inélastiques vont induire un changement d'énergie interne des atomes conduisant à la formation d'espèces excitées ou ionisées.

C'est ce type de collision qui va être à l'origine des processus physico-chimiques au sein du plasma, modifiant ainsi ses propriétés macroscopiques. Parmi ces processus, on peut distinguer deux sortes de phénomènes :

Phénomènes ionisants

- L'excitation : lorsqu'un atome a acquis suffisamment d'énergie, un de ses électrons quitte l'état fondamental et l'atome passe à un état excité.
- L'ionisation : L'ionisation est l'action qui consiste à enlever ou ajouter des charges à un atome ou une molécule, l'atome ou la molécule perdant ou gagnant des charges n'est plus neutre électriquement. Il est alors appelé ion (**figure 1.5**).

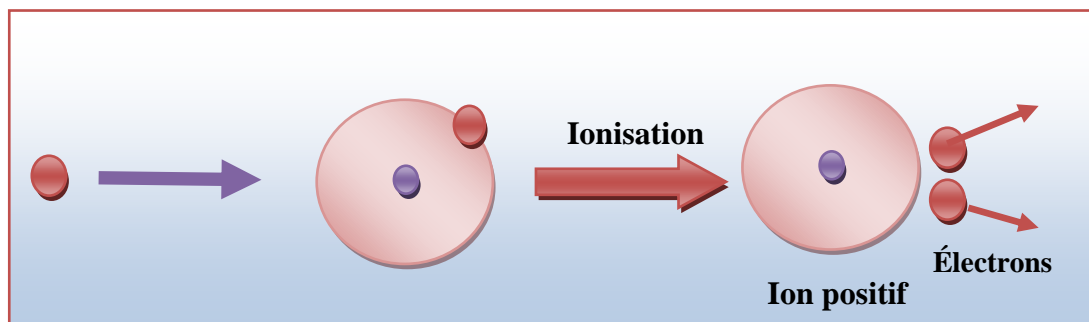


Figure 1.5. Phénomènes d'ionisation

Phénomènes déionisants

Recombinaison: Ce phénomène se produit lorsque deux charges opposées se recombinent pour former une particule neutre (**figure 1.6**) :

- Entre un ion positif et un électron $A^+ + 1e^- \rightarrow A + W_P$
- Entre deux ions opposés : $A^+ + B^- \rightarrow AB + W_P$

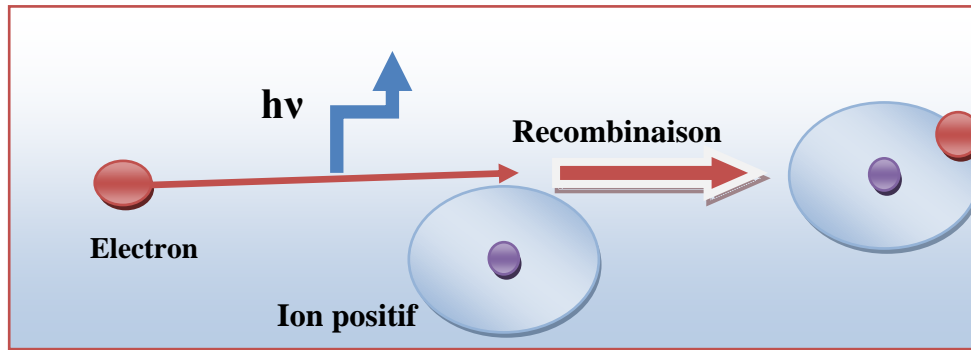
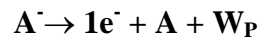


Figure 1.6. Phénomènes de recombinaison

Détachement: c'est le phénomène qui se produit lorsqu'un ion négatif cède l'électron supplémentaire.



Le **tableau 1.1** présente les collisions produites par des électrons (les plus communes), dans une décharge électrique (A et B sont deux atomes du gaz).

Tableau 1.1 Collisions induites par un électron dans un plasma de décharge

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

1.4. Caractéristiques des décharges électriques dans les gaz

Un gaz soumis à une décharge électrique, peut se trouver dans différents régimes de fonctionnement. Tous dépendent de mouvement des électrons, des particules, et des ions.

1.4.1. Avalanche électronique

On considère deux électrodes planes placées dans un gaz et soumises à une tension élevée.

a. Electron primaire

Créé par ionisation grâce à des agents naturels tels que les rayonnements cosmiques et la radioactivité de la terre.

b. Description de l'avalanche

L'électron primaire e_0 accéléré par le champ E entre en collision avec un atome A_1 et l'ionise, ce dernier à son tour libère un électron et devient lui même un ion positif.

Les électrons e_0 et e_1 ionisent par collision deux atomes A_2 et A_3 qui libèrent deux électrons e_2 et e_3 . Ces quatre électrons entrent en collision avec 4 autres atomes qu'ils ionisent, ceci conduit à une avalanche électronique. La multiplication des électrons se poursuit suivant ce processus jusqu'à ce que l'avalanche arrive à l'anode (**figure 1.7**). [4-5]

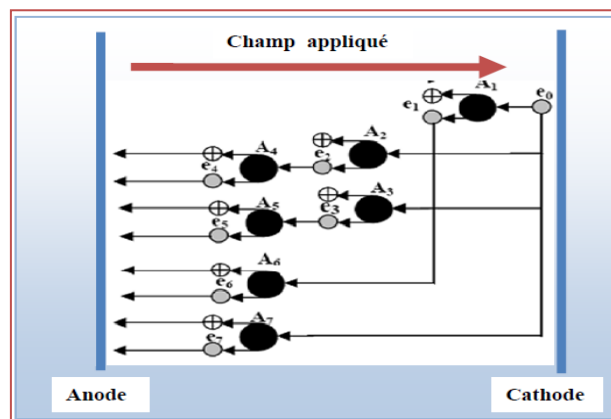


Figure 1.7. Déroulement de l'avalanche électronique

- L'avalanche prépare le chemin au claquage du gaz.
- Un atome ionisé fournit un électron et devient lui même un ion positif ; il y a autant d'électrons dans l'avalanche que d'ions positifs. Chaque collision ionisante produit une paire électron-ion positif.
- L'avalanche progresse dans le sens opposé au champ électrique (Cathode→Anode).

1.4.2. Charge d'espace

Les électrons plus rapides sont absorbés par l'anode, tandis que les ions positifs lourds et plus lents forment entre les électrodes un ensemble de charges qu'on appelle charge d'espace présentée sous forme d'un cône où elle progresse dans le sens opposé du champ électrique (**figure 1.8**) [4]- [8]

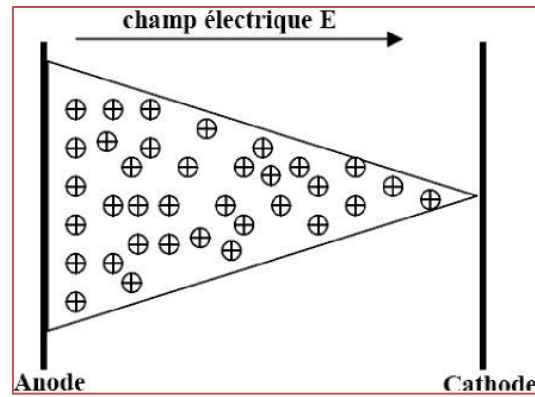


Figure 1.8 Forme de la charge d'espace

1.5. Mécanisme de la décharge des isolants gazeux

C'est dans le gaz que le mécanisme de claquage a été le mieux élucidé et des bases théoriques ont été élaborées. Le mécanisme de claquage dans les solides et les liquides n'est pas encore aussi bien établi.

1.5.1. 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.

1.5.1.1. Loi de Paschen

La loi de Paschen donne l'expression de la tension de claquage pour un gaz donné et elle est seulement une fonction du produit pression gaz et de la distance inter-électrodes (figure 1.9).

$$V_b = \frac{B.p.d}{\ln\left(\frac{A.p.d}{\ln\left(1+\frac{1}{\gamma}\right)}\right)} \quad (1.3) \quad [1]$$

- V_b : tension claquage ;
- p : pression gaz ;
- d : distance inter-électrodes ;
- A et B : constantes phénoménologiques du coefficient de première ionisation de Townsend ;

• γ : Coefficient d'émission secondaire, fonction du matériau et de son état de surface. il est défini comme le rapport entre le nombre d'électrons secondaires émis par la cathode et la somme des ions et photons qui la bombardent.

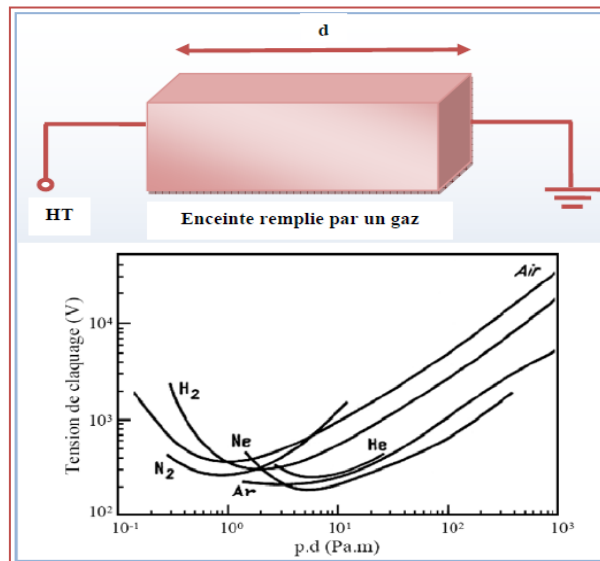


Figure 1.9. Courbe de Paschen [1]

Nous pouvons constater que pour un gaz à pression atmosphérique ($p = 1,013 \cdot 10^5$ Pa), les courbes passent par un minimum pour une distance inter électrode d'environ $10 \mu\text{m}$ ($p \cdot d = 0,5$ à 5 environ). Cela signifie que, pour la production de décharges à pression atmosphérique dans des conditions d'utilisation usuelles ($d \geq 1$ mm), la tension de claquage est une fonction croissante de la distance inter électrode. La courbe de Paschen présente un minimum qui correspond à $300\text{-}400$ V dans l'air à la pression atmosphérique.

Ce minimum est assez mal défini et dépend de l'état des électrodes et du gaz. Cela signifie qu'au dessous de cette tension aucun amorçage n'est possible.

Nous avons également récapitulé dans le [tableau 1.2](#), les valeurs minimales du produit $p d_{\text{min}}$ et de la tension $V_{b\text{min}}$ correspondante. On constate pour chaque gaz donné, les valeurs de ces deux constantes sont différentes.

Tableau 1.2. Valeurs minimales des constantes pour différents types de 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
Hexafluorure de soufre	0.26	507
Dioxyde de carbone	0.57	420
Néon	4.0	245
Hélium	4.0	155

1.6. Décharge Couronne

L'effet corona, aussi appelé « effet de couronne » est une décharge électrique entraînée par l'ionisation du milieu entourant un conducteur. Elle se produit lorsque le potentiel électrique dépasse une valeur critique mais dont les conditions ne permettent pas la formation d'un arc.

Lors de l'ionisation d'un atome, un électron supplémentaire va être ainsi libéré puis accéléré vers l'anode pouvant à son tour ioniser un nouvel atome et ainsi de suite. Une région de forte densité électronique se développe ainsi autour de l'anode, c'est la zone d'ionisation ou *zone active*. Les ions positifs, sous l'effet de la force de Coulomb, sont repoussés vers la cathode où ils sont collectés. Cette zone de déplacement unipolaire dans l'espace inter-électrode est appelée *zone de dérive*. [4]- [7-9] (figure 1.10).

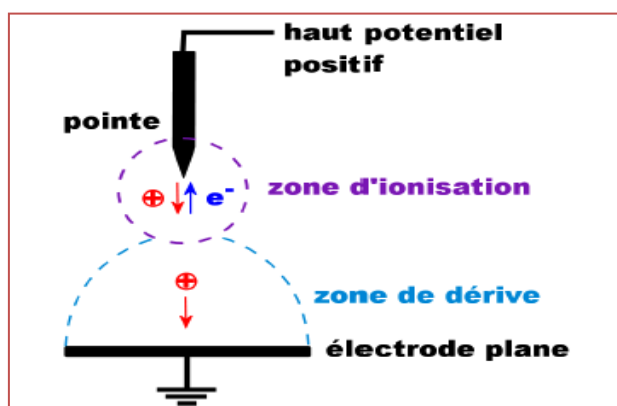


Figure 1.10. Décharge couronne [9]

1.6.1. Géométrie de la décharge

Les décharges couronnes sont des décharges électriques pré-disruptives qui se développent dans l'intervalle gazeux entre deux électrodes fortement asymétriques. Parmi les configurations très variées de systèmes d'électrodes utilisés, les plus courantes sont les systèmes pointe/plan, multi-pointes/plan, couteau/cylindre, fil-plan, fil/cylindre ou cylindre/cylindre (figure 1.11) [1]- [10]

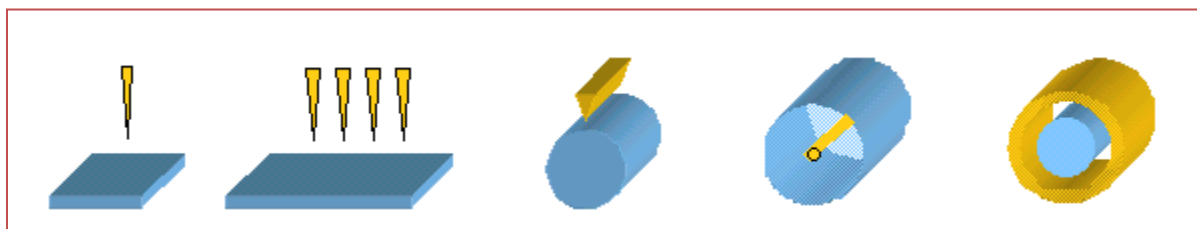


Figure 1.11. Systèmes d'électrodes utilisés pour la production de décharge couronne [10]

La décharge est classiquement établie entre une électrode active et une électrode passive (électrode reliée à la terre). L'électrode active est une pointe (ou un fil de petit diamètre, couteau...) à laquelle on va appliquer un haut potentiel électrique tandis que l'électrode passive est une plaque, une grille ou un cylindre (figure 1.12).

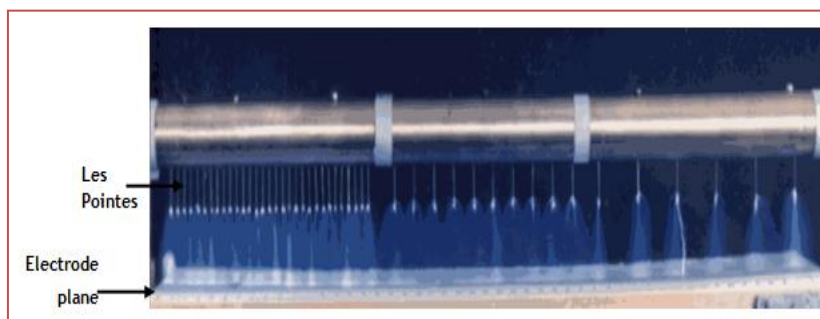


Figure 1.12. Décharge couronne entre des pointes et une électrode plane [10]

1.6.2. Décharge Couronne en polarité positive

La décharge couronne positive est celle qui se produit quand la pointe est portée à un potentiel positif et la plaque à la terre. Dans ce cas, dans la zone de champ intense autour de la pointe, des électrons sont produits par photo-ionisation et sont accélérés vers l'anode (la pointe).

Autour de celle-ci, se développe alors une région de forte ionisation: zone en pointillé à la Figure 1.13. Les ions positifs ainsi créés sont repoussés par l'anode, sous l'effet des forces

de Coulomb, jusqu'à une distance de la pointe (inférieure au millimètre) au-delà de laquelle le champ électrique trop faible ($< 30 \text{ kV/cm}$ dans l'air à pression atmosphérique) ne permet plus la création d'ions positifs. Les ions positifs migrent donc vers la cathode (la plaque).

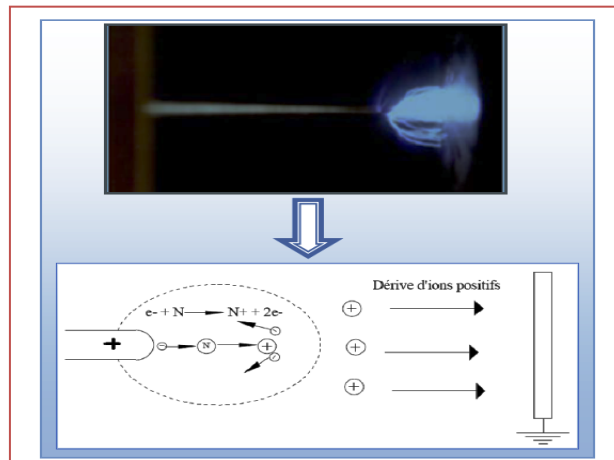


Figure 1.13. Descriptif de la décharge couronne positive.

1.6.3. Décharge couronne en polarité négative

Dans le cas où la pointe est portée à un potentiel négatif, il y a toujours création d'électrons par photo-ionisation et apparition de la zone d'ionisation autour de la pointe. Les ions positifs alors créés reviennent rapidement à la cathode (Figure 1.14). Seuls les ions négatifs créés par attachement dans une zone où le champ est plus faible peuvent migrer vers la plaque.

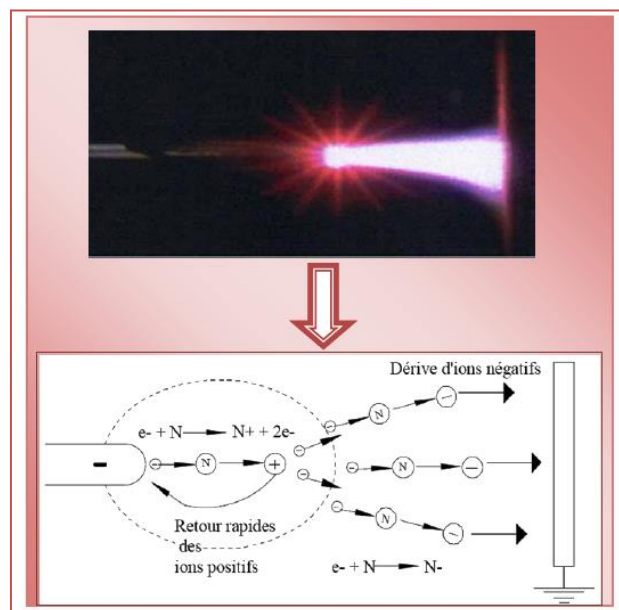


Figure 1.14. Descriptif de la décharge couronne négative

1.7. Décharges à barrière diélectrique (DBD)

1.7.1. Historique des DBDs

L'histoire des *DBDs* démarra en 1839 lorsque *Schönbein* identifia l'odeur apparaissant autour de l'anode pendant l'électrolyse de l'eau, comme l'attribut d'un nouveau composé chimique qu'il a dénommé ozone. Il a fallu attendre jusqu'en 1857 pour arriver aux premières expérimentations connues sur les décharges à barrière diélectrique ou décharges à barrière réalisées par *Von Siemens* ; celui-ci breveta l'ozoneur : dispositif dont la conception n'a pas fondamentalement évolué depuis.

En 1932, *Buss* décrit le caractère filamentaire de cette décharge dans l'air à travers les premiers clichés photographiques et mesures à l'oscilloscope réalisés sur les *DBD*.

Dans les années soixante dix, les premières simulations et recherches sur les *DBDs* permettent d'élargir le champ d'application de ces décharges aux traitements de surface, aux dépôts de couche, et plus tard aux lasers, aux écrans plats, aux traitements d'effluents gazeux...

Il faut attendre 1988 pour découvrir l'existence d'un régime de *DBD* homogène à la pression atmosphérique grâce aux recherches des Japonais. Depuis, de nombreuses recherches ont été menées afin de comprendre les phénomènes physiques régissant les *DBDs*. [1]- [4-6]- [11]- [12]

1.7.2. Définition des DBDs

Une *DBD* est une source de plasma froid hors d'équilibre caractérisée par la présence d'au moins un diélectrique entre les deux électrodes métalliques (figure 1.15).

Pour transporter un courant autre que celui de déplacement (courant passant dans la capacité) dans l'espace de décharge, le champ électrique doit d'être assez intense pour provoquer le claquage du gaz.

Pour des valeurs élevées de pression (et de distance inter électrodes), l'augmentation du courant entre deux électrodes métalliques entraîne généralement le passage vers un régime d'arc, synonyme de plasma à haute température et de dommages à la surface.

Le rôle du diélectrique est de constituer d'une certaine façon une capacité en série avec l'espace de gaz. Et donc sa charge limitera la tension appliquée au gaz, ce qui permet d'éviter la transition vers un arc. L'accumulation de charges issues du plasma sur le diélectrique solide entraîne une chute du potentiel et du champ appliqués sur le gaz, conduisant à l'extinction de la décharge.

Il agit donc comme un ballast qui, dans le cas idéal, ne consomme aucune énergie. Le diélectrique étant un isolant, sa constante diélectrique et son épaisseur, en combinaison avec la dérivée dans le temps de la tension appliquée dv / dt , détermine le courant de déplacement qui peut passer à travers le diélectrique. Il ne laisse pas passer le courant continu (DC) et les décharges DBD sont nécessairement pulsées et requièrent donc l'utilisation de tension alternative pour fonctionner.

Les matériaux couramment utilisés comme barrière diélectrique sont le verre, le quartz, l'alumine, des couches de polymères et certaines céramiques particulières. Puisque à haute fréquence, la limitation du courant par la barrière diélectrique devient de moins en moins efficace, la DBD est normalement utilisée entre des fréquences de 50Hz à 10MHz. La **figure 1.15** illustre une configuration d'une décharge DBD.

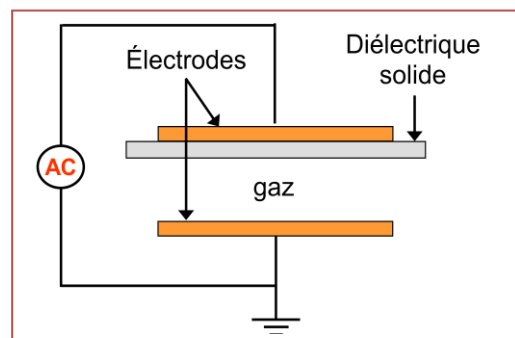


Figure 1.15. Configuration classique d'une DBD

1.7.3. Principe de fonctionnement des DBDs

Suite à l'application d'une tension suffisamment élevée sur les électrodes, le claquage du gaz conduit à la formation d'un canal conducteur appelé micro-décharge (**figure 1.16-a**). Cette micro-décharge peut être représentée par le schéma équivalent de **la figure 1.16-d**.

Le diélectrique en vis-à-vis de la micro-décharge se comporte comme l'isolant d'un condensateur, C_{ds} , dont les armatures sont d'un côté la décharge et de l'autre l'électrode. Notons que ce schéma équivalent n'a de sens que si l'on considère uniquement une seule micro-décharge ou une décharge homogène sur toute la surface des électrodes. Par la suite, nous noterons V_a la tension appliquée sur la cellule de décharge, V_g celle appliquée sur le gaz et enfin V_{ds} celle appliquée sur le diélectrique. Le passage du courant induit une accumulation de charges sur la surface du diélectrique solide en vis-à-vis du canal de décharge qui se traduit par une augmentation de la tension V_{ds} .

Si l'augmentation de cette tension au fur et à mesure du développement de la décharge est plus rapide que l'augmentation de la tension V_a , elle cause une chute de la tension

appliquée sur le gaz V_g , ce qui conduit à l'extinction de la décharge. Ainsi, la micro-décharge est bloquée bien avant d'avoir atteint un degré d'ionisation suffisant pour transiter en régime d'arc.

Tant que la tension appliquée augmente, des micro-décharges s'initient à de nouvelles positions car la présence de charges résiduelles sur le diélectrique diminue le champ électrique appliqué sur le gaz aux positions où des micro-décharges se sont déjà développées (**figure 1.16-b**).

Au changement de polarité (**figure 1.16-c**), les charges précédemment déposées sur le diélectrique permettent un claquage du gaz sous un champ plus faible que lors de la première alternance. [12-15]

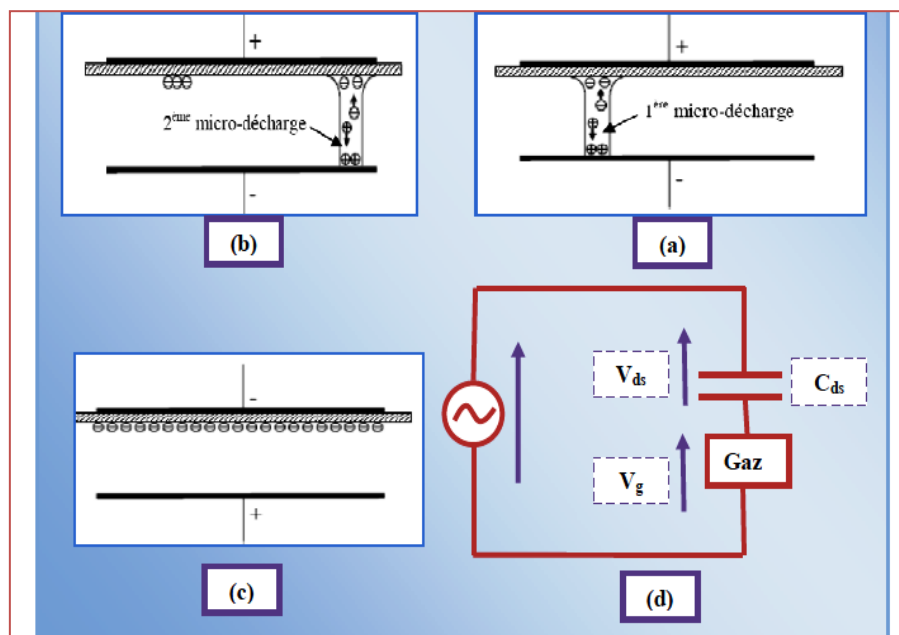


Figure 1.16. Principe de fonctionnement d'une DBD (a) établissement d'une première micro-décharge, (b) extinction de la première micro-décharge et amorçage d'une nouvelle, (c) changement de la polarité appliquée sur les électrodes, (d) schéma électrique équivalent d'une micro-décharge. [6]

1.7.4. Types de décharges 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.

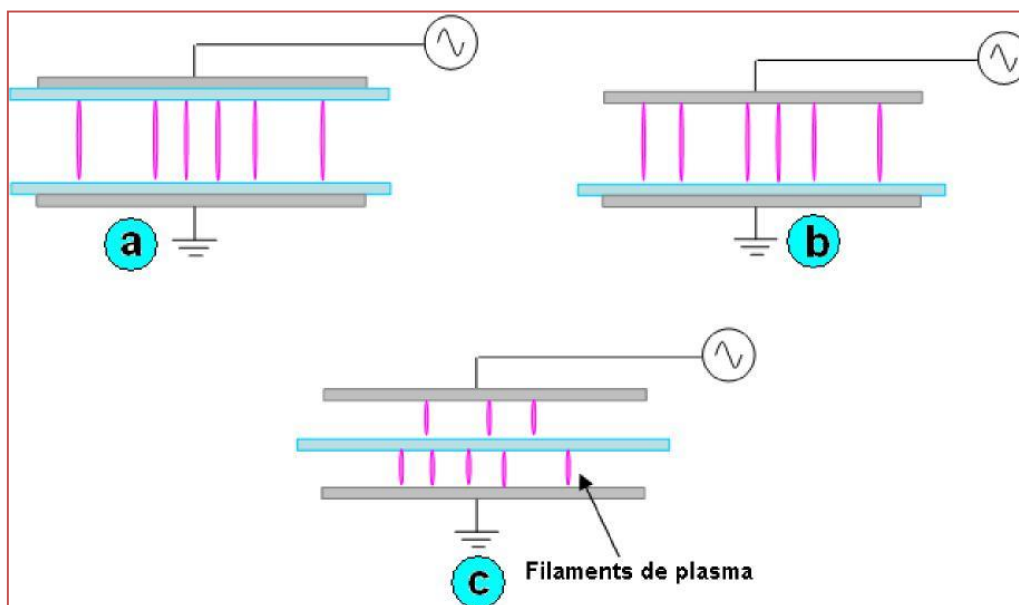
L'utilisation d'un isolant permet également de générer des décharges soit **en volume** soit **de surface**.

1.7.4.1. Décharge volumique à barrière diélectrique

La DBD volumique s'établit entre deux électrodes séparées l'une de l'autre par un diélectrique. La décharge se développe principalement dans le volume gazeux. Lorsqu'un espace gazeux sépare les électrodes, les filaments se propagent dans le volume de gaz et s'étalent sur la surface. Dans le cas des trois premiers montages de la **Figure 1.17 (a- c)**, la décharge est obtenue dans le volume séparant les deux électrodes. [1]-[6]- [16-17]

1.7.4.2. Décharge à barrière diélectrique surfacique

Cette décharge est établit entre au moins deux électrodes placées de part et d'autre du diélectrique et est dite surfacique car il n'y a plus, comme précédemment, d'espace gazeux entre les électrodes (le diélectrique occupant tout l'espace inter-électrodes). L'électrode active est directement en contact avec le diélectrique, et la décharge va se propager à la surface de l'isolant. Dans une telle décharge, il est clair que la surface du diélectrique joue un rôle dans la propagation du plasma en particulier quand la cathode est au-dessous du diélectrique. La quatrième configuration de la **figure 1.17 (d - g)** voit la décharge s'instaurer à la surface du diélectrique [1]-[6]- [13]-[18]



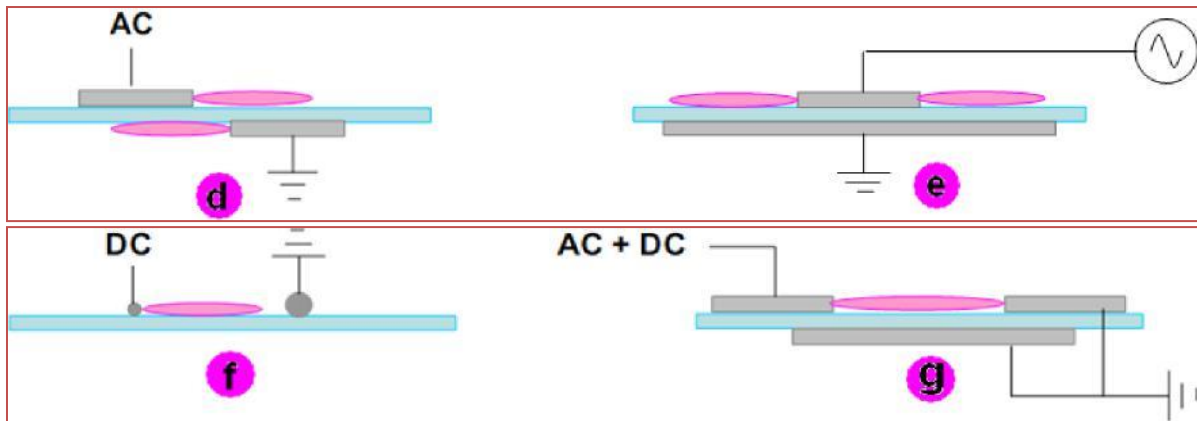


Figure 1.17. Schémas de décharge à barrière diélectrique, avec un gap gazeux (a - c), ou en surface (d - g). [18]

1.7.5. Applications des décharges à barrière diélectrique

Toutes les applications utilisant les DBDs s'appuient en général sur des processus similaires. En effet, l'application d'un champ électrique initie la décharge dans laquelle se forment des particules chargées, des espèces excitées et des radicaux libres. Les réactions issues de la présence de ces espèces instables conduisent à des changements chimiques dans la composition du gaz ou sur objets placés au contact de ce gaz. La figure suivante résume le principe général des DBDs et énumère leurs applications majeures dont certaines d'entre elles sont détaillées dans les paragraphes suivants [2]- [6]

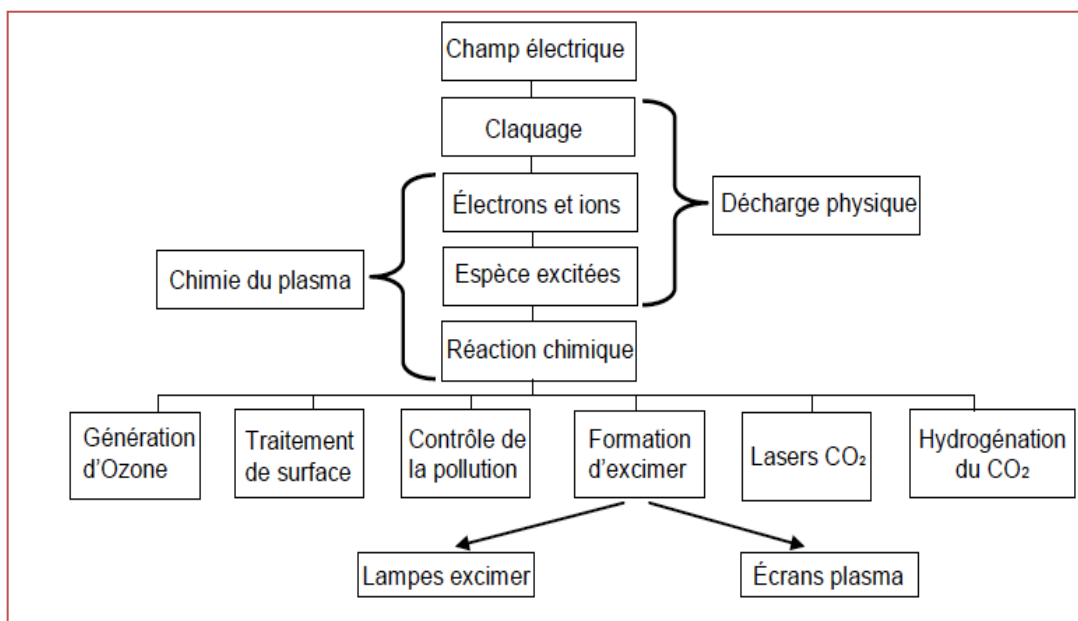
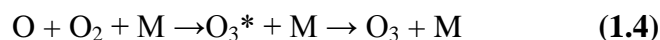


Figure 1.18. Diagramme indiquant le principe général des DBDs et leurs applications [2]

a. Génération d'Ozone

La première et la plus importante des applications des *DBDs* est la génération d'ozone provenant du traitement de l'air ou de l'oxygène. La synthèse de l'ozone dans les *DBDs* est réalisée par la réaction chimique:



Avec :

- M peut être une molécule d'oxygène ou une molécule d'azote si l'air est utilisé ;
- O_3^* désigne une molécule d'ozone dans un état excité.

La plus grande installation de génération d'ozone pour la désinfection de l'eau était construite à *Nice (France)* et à *St. Petersburg (Russie)* à la fin du siècle dernier. Aujourd'hui, quelques milliers d'installations sont en fonctionnement. Les plus grandes atteignent des niveaux de puissance des plusieurs *MW* et produisent quelques tonnes d'ozone par jour. Bien que la purification de l'eau potable soit toujours le marché de l'ozone le plus important, d'autres applications ont émergé. A cause du coût élevé de l'oxygène pur, beaucoup de petits générateurs d'ozone utilisent l'air comme gaz d'aliments. La **figure 1.19** illustre un générateur d'ozone à décharge à barrière diélectrique. [2]-[19]

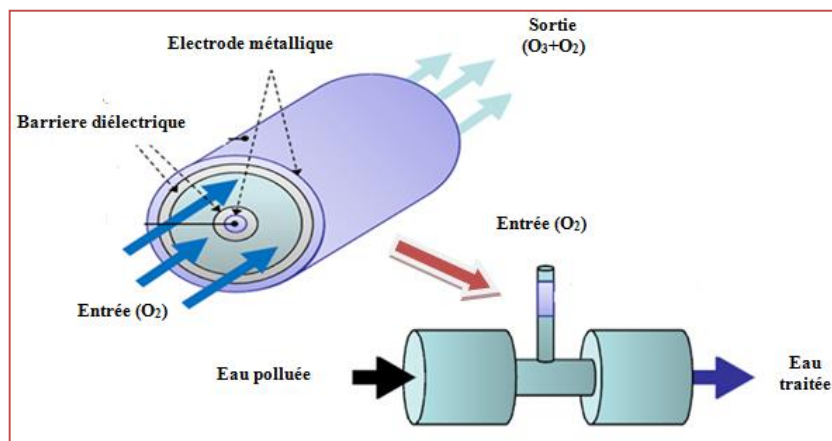


Figure 1.19. Schéma de principe d'un ozoniseur utilisé dans le traitement d'eau [20]

b. Traitement de surfaces

L'utilisation des *DBDs* pour les traitements de surface couvre un large spectre. Nous pouvons en citer entre autres les applications suivantes :

- Modification des propriétés de la surface d'un matériau ;

- Amélioration des propriétés d'adhésion, de mouillabilité,
- Traitement des textiles ;
- Traitement de polymères, dépôt de SiO_2 ;
- Nettoyage de surfaces (silicium, aciers...)
- Désinfection, stérilisation

L'une des propriétés principales des DBDs est qu'elles peuvent fonctionner en régime filamentaire ou homogène. La caractéristique « homogène » leur confère la propriété de pouvoir agir pour une modification uniforme des surfaces traitées (**figure 1.20**). [2]-[21-22]

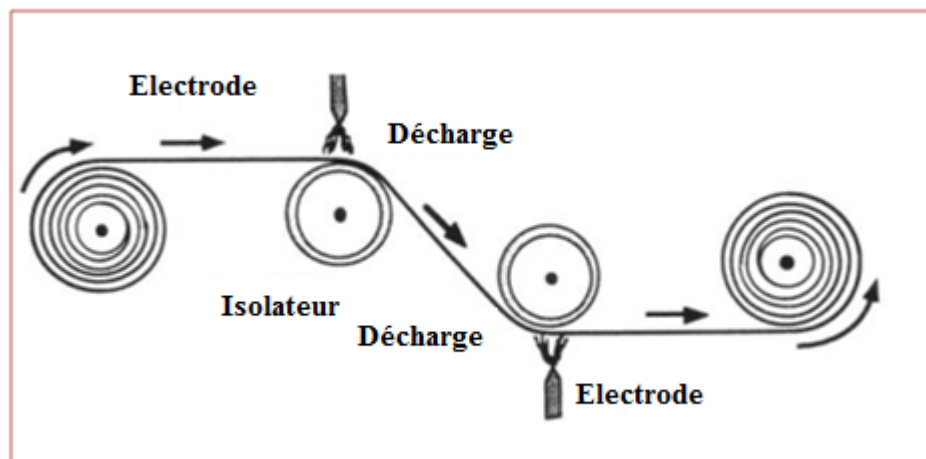


Figure 1.20. DBD utilisées dans le traitement surfacique de plastique

c. Ecrans plasmas

Les afficheurs à écran plasma AC utilisant le rayonnement VUV à xénon pour exciter le phosphore sont des nouveautés récentes sur la large palette des applications des DBDs. Un afficheur à écran plasma est constitué de deux verres plats séparés par un gap d'environ 100 μ m rempli d'un mélange de gaz rare (généralement Xe-Ne ou Xe-Ne-He) capable d'émettre des rayonnements UV.

Une matrice d'électrodes est posée sur chaque lame de verre. Ces électrodes sont couvertes par des couches fines de diélectrique de 20 μ m à 40 μ m d'épaisseur. La géométrie standard des électrodes disponibles dans le commerce est coplanaire (ACC). Bien que la structure d'électrodes ACC soit la plus développée de nos jours, la structure d'électrode ACM est toutefois considérée comme la meilleure parce que les propriétés de la décharge ainsi que le schéma d'adressage sont très simples.

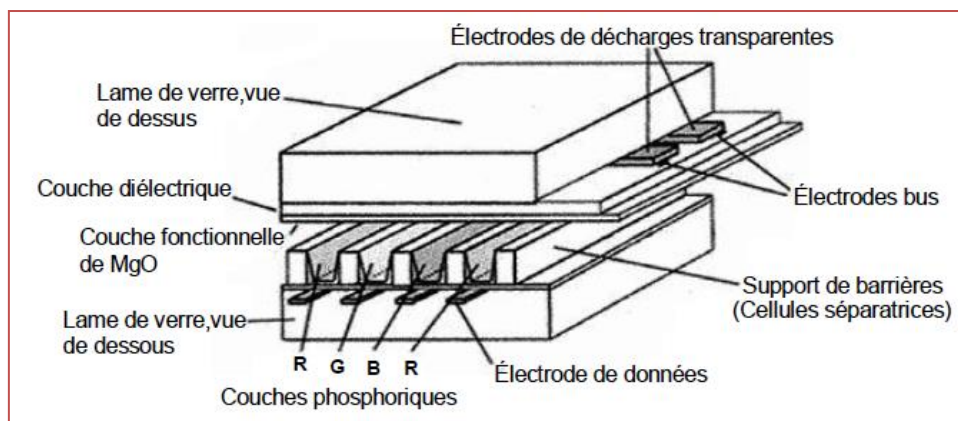


Figure 1.21. Configuration d'un afficheur à écran plasma [23]

Les lampes à espèces excitées, excimères ou exciplexes, présentent des avantages par rapport aux techniques classiques de production d'UV :

- 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 avec une largeur de raie de l'ordre de la dizaine de nanomètres. La Figure 1.22, montre les principaux domaines d'applications des excilampes.

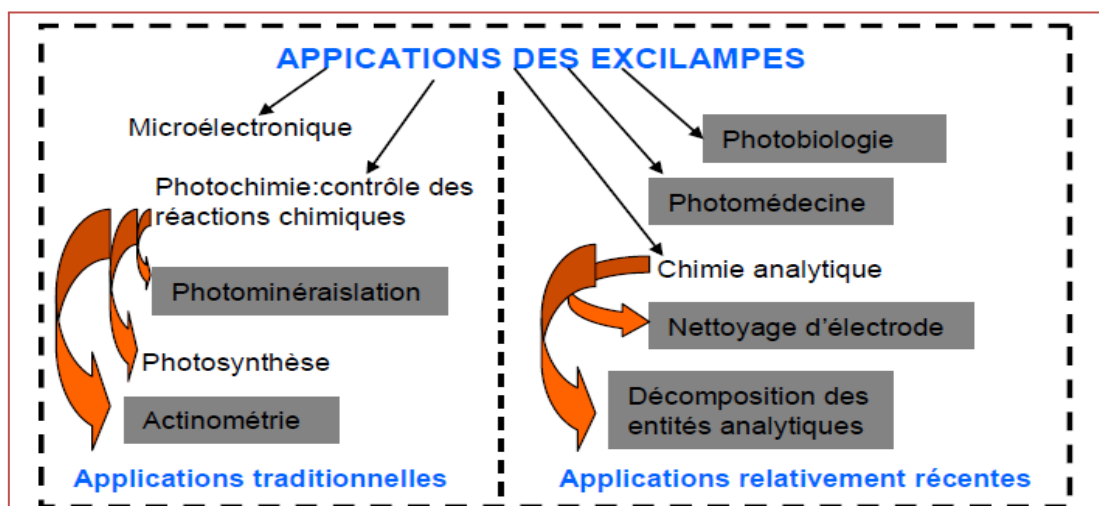


Figure 1.22. Domaines d'application des excilampes [24]

1.8. Ozone et ses applications

1 8.1. Définition

L’ozone est un gaz de couleur bleu pâle voisin de l’oxygène qui peut avoir sur les êtres vivants des conséquences bénéfiques ou dangereuses. Il est naturellement détruit et régénéré dans l’atmosphère suivant un processus faisant intervenir le rayonnement solaire ultraviolet et l’oxygène. L’ozone est également présent dans la basse atmosphère grâce aux courants atmosphériques descendants en provenance de couche d’ozone. Il est essentiellement produit dans les régions tropicales et est transporté vers les hautes latitudes au cours de l’hiver par les grands courants aériens, les **figures 1.23** et **1.24** montrent la formation et la destruction du gaz d’ozone. [1]-[6]

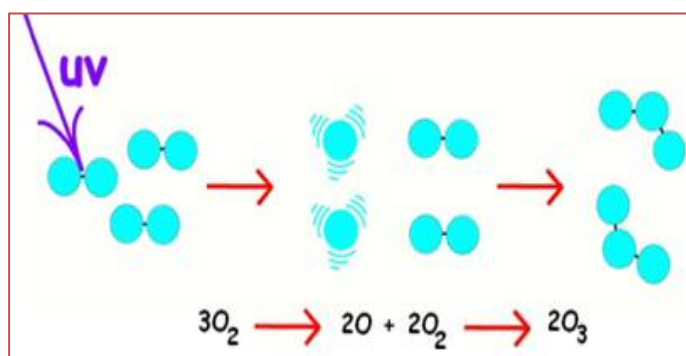


Figure 1.23. Formation naturelle de l’ozone [6]

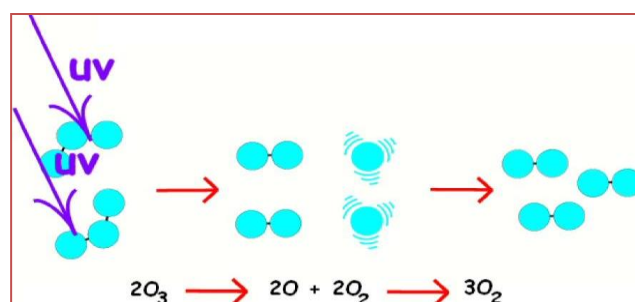


Figure 1.24. Destruction naturelle de l’ozone

L’ozone est une forme allotropique de l’oxygène formée de trois atomes de cet élément. Dans son état fondamental, la molécule d’ozone présente deux liaisons oxygène d’une longueur de $1,278 \pm 0,003 \text{ \AA}$ et un angle de $116,45^\circ$. Elle possède un faible moment dipolaire de 0,53 Debye dont la fonction la plus connue est la protection contre les dangereuses radiations ultraviolettes du soleil mais c’est aussi un puissant oxydant et un puissant

désinfectant ayant une grande variété d'utilisation, la plus remarquable est la désinfection des eaux.

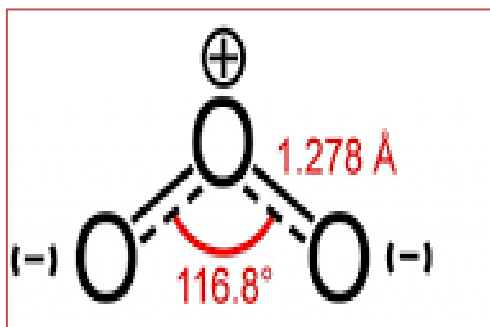


Figure 1.25. Structure de la molécule d'Ozone

1.8.2. Caractéristiques de l'ozone :

L'ozone (O_3) est une forme très instable et réactive de l'oxygène. C'est un gaz bleuté et odorant, qui se forme naturellement dans la stratosphère sous l'action du rayonnement ultraviolet, émis par le soleil, sur les molécules d'oxygène. Les caractéristiques physiques et chimiques de l'ozone sont englobées dans le [tableau 1.3](#)

Tableau 1.3. Caractéristiques de l'ozone [1]

Masse moléculaire	47.998 g/mol
Apparence	Gaz bleu pâle
Densité à 0°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	142.3 kJ/mol (34.15 kcal/mol)

1.8.3. Avantages et inconvénients de l'ozone

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

- **Avantages** : il existe plusieurs avantages de l'ozone dont on peut citer :
 - Il ne laisse aucun dérivé dangereux, contrairement au chlore.
 - Il possède une durée de vie très réduite où le retour à l'oxygène ne laisse pas de résidu.
 - Pas de stockage de produits dangereux
 - Oxydation très complète
 - Possède une grande efficacité contre toute substance organique : la bactérie, les virus, les mycètes, les spores, le protozoaire, les pathogènes fongiques, les ferments, les kystes et les algues.
 - Propriétés pour éliminer les graisses.
 - Ozone créé au point d'usage – aucun emmagasinage ou transport de produits chimiques hasardeux exigés [1]-[6]- [26].

- **Inconvénients**

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

1.8.4. Production d'ozone

- **Production naturelle** :

Deux méthodes pour produire l'ozone naturellement, ces deux méthodes ont suffisamment d'énergie pour séparer les molécules d'oxygène (figure 1.26)



Figure 1.26. Production naturelle d'ozone [26]

- **Production artificielle d'ozone :**

Il existe deux méthodes pour produire l'ozone artificiellement (**figure 1.27**)

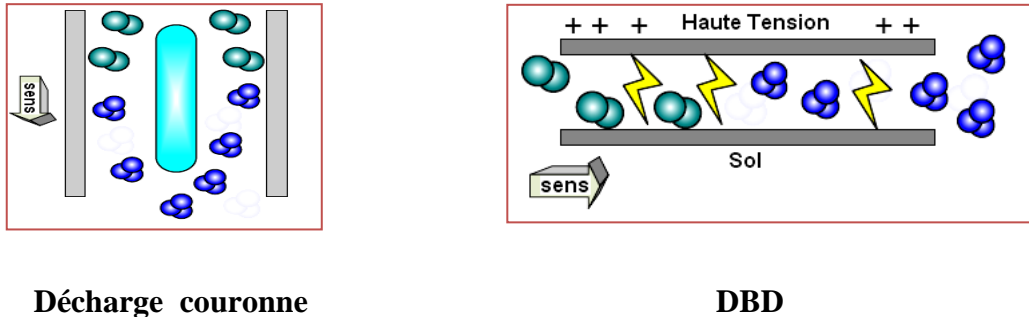


Figure 1.27. Production artificielle d'ozone

*L'oxygène se transforme en ozone après avoir été frappé par l'énergie de la lumière UV d'une ampoule génératrice d'UV.

*L'oxygène est piégé entre les électrodes à haute tension qui simulent la décharge couronne.

I.8.5. Applications de l'ozone

L'ozone a été employé dans le traitement des effluents industriels pour la destruction ou l'élimination des molécules organiques complexes, des cyanures et des phénols provenant des industries chimiques, etc. Le traitement final à l'ozone d'une eau résiduaire urbaine ou combinée à des effluents industriels, permet également sa réutilisation pour des applications de lavage, d'irrigation ou pour la protection incendie. Le potentiel d'oxydation de l'ozone, 50% plus élevé que celui du chlore, a poussé de nombreuses entreprises à utiliser l'ozone dans leur processus de fabrication.

- **Eau Potable :** L'ozone est utilisé depuis plusieurs années dans les installations d'eau potable grâce à:
 - Un faible niveau de dosage nécessaire
 - Un temps de contact réduit
 - Une excellente action bactériologique
 - Une efficacité dans une large gamme de pH et de températures
 - La production sur site **[1]-[6]**



Figure 1.28 Traitement des eaux potables par l'ozone [6]

- **Industrie :** L'ozone est aujourd'hui l'agent chimique le plus économique pour les procédés de blanchiment de pâtes à papier et permet d'éviter toute présence de composés chlorés (AOX) ultérieure. Comme pour l'industrie papetière, l'industrie chimique cherche de nouvelles façons d'accroître la productivité tout en utilisant des procédés écologiques. Elle a trouvé en l'ozone une excellente solution à son problème.

- **Domaine agro-alimentaire**

L'Ozone est utilisé de plus en plus dans les domaines agro-alimentaires notamment le lavage des fruits et la production de glace ozonés.

a. Lavage des produits alimentaires.

Stériliser l'extérieur des fruits et des légumes avec de l'eau ozonisée peut éliminer les engrais et les bactéries extérieurs et d'autres pathogènes et prolonger la durée de conservation de 3 à 10 fois. [26]



Figure 1.29. Lavage des fruits et légumes par l'eau ozonée [26]

b. Production de glace ozonée pour la conservation d'aliments

La conservation de la pêche par exemple avec de la glace ozonée et la réfrigération basée sur la technologie de la glace liquide et de son action avec l'ozone évalue la qualité biochimique, physicochimique, sensorielle et microbiologique des sardines conservées dans la glace liquide ozonisée, dans le but d'allonger la vie utile et augmenter le rendement de la pêche. Cette technique augmente la vie utile des sardines de 15 jours pour celles traitées avec de la glace liquide ozonisée [6]- [27]

• Autres applications industrielles

- Lavage de réservoirs, conduites : contrôle des bio- films.
- Lavage de bouteilles, futs, murs et sols de caves.
- Lavage de pièces métalliques.

• Traitement de l'air par l'ozone

Les concentrations de l'ozone typiques utilisées sont pour le traitement de l'air ambiant, comme par exemple dans des chambres froides. Certains chercheurs pensent qu'en fait la croissance bactérienne pourrait être stimulée avec plusieurs concentrations d'ozone (tous dépend du domaine d'application). La période de traitement pour des niveaux d'une réduction importante de germes pathogènes varie de quelques heures à quelques jours. Les virus et les bactéries sont les germes pathogènes les plus faciles à contrôler. Les champignons

et moisissures exigent des concentrations d’ozone plus élevées pour des périodes de temps plus longues. [28]

- **Applications médicales de l’ozone**

L’ozonothérapie est une thérapeutique non conventionnelle qui vise par l’utilisation de l’ozone en très faible concentration à traiter différentes affections et symptômes. Cette approche thérapeutique n’est pas reconnue mais connaît en revanche un regain d’intérêt depuis le début du 21^{ème} siècle. Cette méthode n’est pas nouvelle et a été pratiquée à des fins médicales depuis les années 1930.

En Basse concentration, l’ozone :

- favorise la circulation sanguine.
- stimule le système immunitaire.
- induit une régénération tissulaire.
- exerce une action cicatrisante.
- Ozonothérapie dentaire.

En Haute concentration, l’ozone s’avère antihémorragique exerce une puissante action stérilisante (détruit : bactéries, virus, levures et parasites), freine les réactions immunitaires indésirables. [29]

I.8.6. Ozone et la désinfection des eaux

Il existe actuellement cinq méthodes courantes pour la désinfection de l’eau dans l’industrie:

La chloration de l’eau

La stérilisation par les rayons U.V

La microfiltration

L’ultrafiltration [1]-[6-7]-[30-32].

La chloration et la stérilisation par UV sont des méthodes très simples à mettre en œuvre, alors que l’ozonisation est plus complexe, mais aussi plus intéressante.

La microfiltration est intéressante uniquement dans des cas très particuliers en raison de ses coûts élevés de fonctionnement.

L’ultrafiltration est utilisée depuis longtemps en microélectronique pour la stérilisation finale au point d’utilisation et est utilisée aussi en eau potable.

Les systèmes utilisés aujourd’hui pour traiter l’eau dans les stations de traitement de l’eau présentent plusieurs aspects négatifs. Par exemple, l’utilisation du chlore n’est pas optimale. Ce désinfectant puissant laisse des traces non négligeables car il reste présent dans l’eau une fois traitée et a des impacts négatifs sur la faune et la flore aquatique ainsi que sur l’eau que nous consommons. Le **tableau 1.4** illustre les différentes méthodes utilisées pour le traitement des eaux.

Tableau1 .4. Caractéristiques des différentes méthodes de désinfection. [6]

Critères	Ozone	Chlore	U.V	μ filtration
Grandeur de l’installation	Grande	Grande	Petite-grande	Très petite
Investissement	important	important	Moyen	Faible
Entretien	Faible	faible	Moyen	Important
Utilisation	Complexe	complexe	Simple	Simple
Rémanence	Moyenne	forte	Faible	Moyenne
Goût/odeur	Nul	caractéristique	Nul	Nul
Efficacité germicide	Très bonne	bonne	Bonne	Bonne
inefficace contre	Aucun	Virus* protozoaires	Algues Moisissures**	Virus

L’ozonation est un traitement chimique par oxydation, technique utilisant l’ozone, essentiellement mise en œuvre dans le secteur de l’eau dans les buts suivants :

1. La désinfection, autrement dit la destruction des micro-organismes.
2. L’élimination des odeurs (*désodorisation*).
3. L’élimination des substances chimiques (*décoloration*).
4. L’amélioration du goût.
5. L’oxydation du fer et du manganèse.
6. La dégradation des pesticides.

L’ozone est un agent oxydant puissant, capable de désinfecter l’eau à une concentration et un temps de contact moindres que ceux de désinfectants plus faibles comme le chlore, le bioxyde de chlore et la monochloramine.

L’ozone est le plus puissant des oxydants utilisables en traitement de l’eau. Le **tableau 1.5** montre les potentiels Redox de produits oxydants employés dans l’industrie, il montre que l’ozone est l’oxydant le plus fort.

Tableau 1.5. Potentiels Redox de quelques produits oxydants utilisés dans l’industrie [7]

Réactif	Potentiel Redox(v)
Ozone	2.07
Peroxyde d’hydrogène	1.17
Chlore (gaz)	1.36
Oxygène	1.23

1.9. Conclusion

Nous avons présenté brièvement dans la première partie de ce chapitre les concepts de base des décharges électriques, notamment les différents régimes de décharges dans les gaz, la classification des plasmas et leur domaine d’application.

Une part prédominante de cette étude bibliographique est consacrée aux décharges à barrières diélectriques dans une deuxième partie. Nous avons présentés les principes généraux des DBDs, leurs configurations courantes et les différentes applications industrielles.

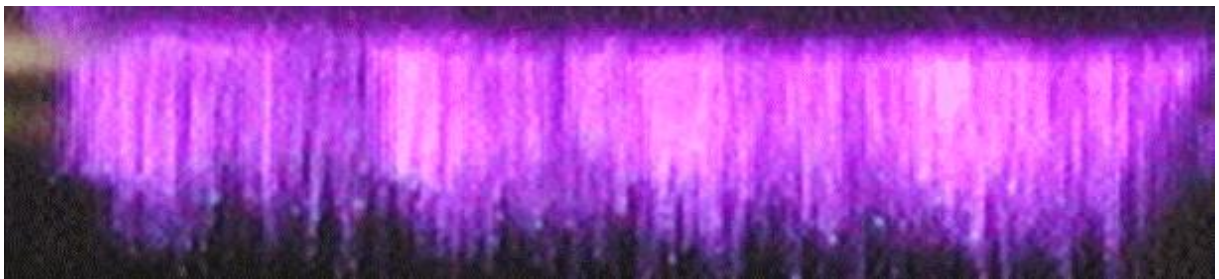
Lors de son fonctionnement, une décharge DBD produit de l’ozone à partir des molécules d’oxygène présentes dans l’air. Ce type de décharge est étudié pour ses deux configurations surfaciques et volumiques pour la génération d’ozone et son utilisation dans un procédé de traitement de l’eau.

Dans la dernière partie de ce chapitre, nous avons présenté les propriétés de l’ozone comme un produit industriel très efficace dans nombreuses applications, de production, avantages, ainsi que la désinfection. L’ozone présente des solutions écologiques et même économiques dans plusieurs applications par rapport aux autres processus chimiques, en se basant surtout sur le traitement des eaux.

Dans le but d’augmenter le rendement énergétique des générateurs d’ozone une étude détaillée sera effectuée au chapitre deux pour ces générateurs en agissant sur leurs caractéristiques électriques et géométriques.

Chapitre 2

Etude comparative entre
générateurs d'ozone à
DBD volumique et
surfactive



2

ETUDE COMPARATIVE ENTRE GENERATEURS D'OZONE A DBD VOLUMIQUE ET SURFACIQUE

2.1. Introduction

L'ozone a été utilisé pendant de nombreuses années au niveau industriel dans plusieurs domaines, la purification de l'eau potable, désinfection de l'air, le contrôle des odeurs et le traitement des eaux usées. Etant l'un des oxydants les plus puissants, l'ozone est capable d'accomplir ces tâches tout en ne laissant aucun résidu.

Ces dernières années, les décharges à barrière diélectrique (DBD) sont considérées comme le moyen le plus efficace pour la production d'ozone [33-35].

Ce type de décharge est généré entre deux électrodes métalliques, dont au moins une électrode est recouverte d'une couche diélectrique, en utilisant des alimentations à haute tension alternative ou pulsée. Les décharges à barrière diélectriques, appelées silencieuses, fonctionnent généralement à hautes fréquences comprises entre 50 Hz à 50 kHz [36-38].

Il existe plusieurs configurations géométriques des DBD qui varient généralement en fonction de leur application et leur conception. Elles peuvent être classées selon leur type de décharge où on peut citer les DBDs surfacique et volumique et même hybrides. Une autre classification peut être effectuée selon la géométrie des électrodes à savoir les DBDs à : électrodes planes parallèles avec une ou deux barrière, électrodes cylindriques co-axiales, configuration fil-cylindre, fil-plan-plan, pointe-plan avec au moins l'une des électrodes étant recouverte par le diélectrique.

Les décharges surfaciques sont construites avec une barrière diélectrique en contact avec les deux électrodes dans les deux côtés [39-40].

Dans la littérature, on trouve de nombreuses publications sur la génération d'ozone par DBD volumique, couramment utilisée à l'échelle industrielle pour la production d'ozone destinée essentiellement au traitement des eaux. Cependant, peu d'études sont consacrées à la production d'ozone issue d'une DBD surfacique utilisée pour diverses applications, telles que

le contrôle de la pollution, la stérilisation, la production d'ozone ou le traitement des surfaces [41-42].

Dans ce chapitre nous réalisons une analyse expérimentale paramétrique pour pouvoir faire une comparaison entre les deux modes de génération d'ozone cités ci-dessus, en termes du taux de production d'ozone ainsi que la puissance consommée, autrement dit : efficacité énergétique.

2.2. Conception des générateurs d'ozone à DBD surfacique et volumique

2.2.1. Générateur à DBD volumique

Ce type de réacteur est similaire dans sa géométrie à celui réalisé par *Nemmich et al.* [6] durant leurs travaux. Nous avons opté pour la configuration cylindrique qui possède l'avantage d'offrir une surface de décharge plus grande comparativement aux formes planes. Par conséquent elle permet de produire plus d'ozone, ainsi qu'une très bonne flexibilité pour l'écoulement du gaz (oxygène et ozone). Dans ce genre de réacteur le plasma est créé au niveau du volume de décharge.

Ce générateur est constitué de deux électrodes métalliques de formes cylindriques :

- **Electrode externe**

Pour le choix du matériau de l'électrode cylindrique externe, nous avons opté pour l'acier inoxydable car il possède des propriétés physiques (masse assez faible) et chimique (résiste à la corrosion) excellentes en comparaison avec d'autres matériaux. L'électrode externe reliée à la masse est de **250 mm** de longueur avec un diamètre intérieur qui vaut **46 mm**.

- **Electrode interne**

Cette électrode est en aluminium adhésif d'une longueur de **160 mm**, est connectée à la haute tension, ce choix est effectué pour faciliter l'insertion de cette dernière à la surface intérieure de la barrière diélectrique.

- **Barrière diélectrique**

L'effet des diélectriques est de répartir les charges accumulées uniformément sur leur surface. De plus, en accumulant les charges à leurs surfaces, le diélectrique aide à créer un champ électrique inverse au champ électrique appliqué aux bornes des électrodes. Cette dernière propriété cause un arrêt de la décharge avant le passage à l'arc à la tension prévue par la loi de Paschen. Au lieu d'avoir une décharge très énergétique et localisée, on aura une décharge stable et répartie sur la surface totale des électrodes cachées par les diélectriques.

Une élévation de température contribue à diminuer la durée de vie d'un isolant et par conséquent une diminution de la résistance d'isolement (les isolants ont généralement un

coefficient de température négatif), diminution de la rigidité diélectrique, oxydation et ramollissement pouvant atteindre la fusion [1].

L’augmentation de la température est provoquée par les pertes diélectriques et l’échauffement des conducteurs. La chaleur est difficilement évacuée par les isolants car ceux-ci ont une conductivité thermique très faible.

Parmi les matériaux diélectriques utilisés nous avons choisi le verre (figure 2.1) vu sa résistivité à la température élevée et à l’effet corrosif de l’ozone. Ce tube cylindrique en verre de **2.5 mm** d’épaisseur et **250 mm** de longueur et de diamètre interne de **39 mm**, conduit à un intervalle de décharge de **1 mm**. Cette barrière permet de stabiliser la décharge sur toute sa surface, avec limitation de courant et empêchement de l’arc électrique.



Figure 2.1. Photographie d’une électrode interne en aluminium adhésif insérée à l’intérieur de la barrière diélectrique en verre.

• Bouchons de centrage (téflon)

Afin de garder la symétrie entre la barrière diélectrique et l’électrode masse, autrement dit : maintenir le même intervalle de décharge à l’intérieur du générateur, des bouchons en téflon fileté ont été montés au bout des deux côtés du générateur. En plus, ils ont pour rôle la stabilisation de la décharge le long de l’intervalle de décharge. Les deux bouchons sont munis d’ouvertures d’entrée et de sortie de gaz afin de séparer les électrodes de l’écoulement du gaz d’ozone (figure 2.2).

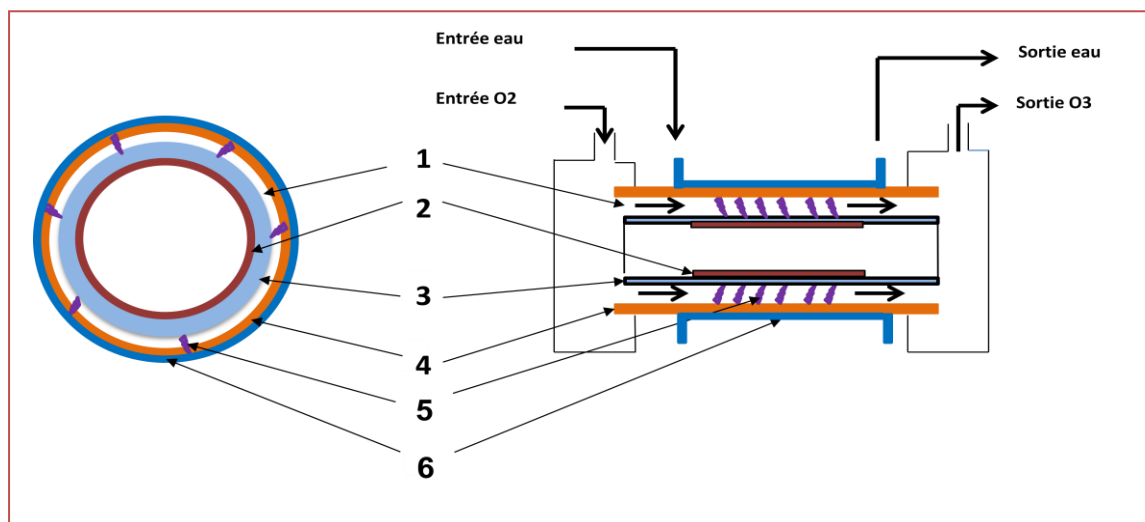


Figure 2.2. Photographie du bouchon de symétrie en téflon

• Système de refroidissement

Au cours de l’utilisation de ce réacteur dans un dispositif de traitement des eaux, nous avons constaté un échauffement au niveau de l’électrode externe dû à l’augmentation de la température qui accélère la dissociation de l’ozone, chose qui nous a conduits à l’installation d’un système de refroidissement. Celui-ci est constitué d’un cylindre en acier inoxydable placé au-dessus de l’électrode externe et qui comprend deux ouvertures, l’une pour l’entrée de l’eau de refroidissement et l’autre pour la sortie de cette eau dans un circuit fermé.

Les figures (2.3) et (2.4) illustrent le schéma descriptif du générateur d’ozone de type volumique et une photographie du générateur conçu dans notre laboratoire.



A : Coupe transversale

B : Coupe longitudinale

Figure 2.3. Schéma descriptif du réacteur d’ozone à DBD volumique (DBDV)

1- Intervalle de décharge (1mm), 2- Electrode haute tension, 3- Barrière diélectrique, 4- Electrode de masse, 5- Plasma, 6- circuit de refroidissement. [6]

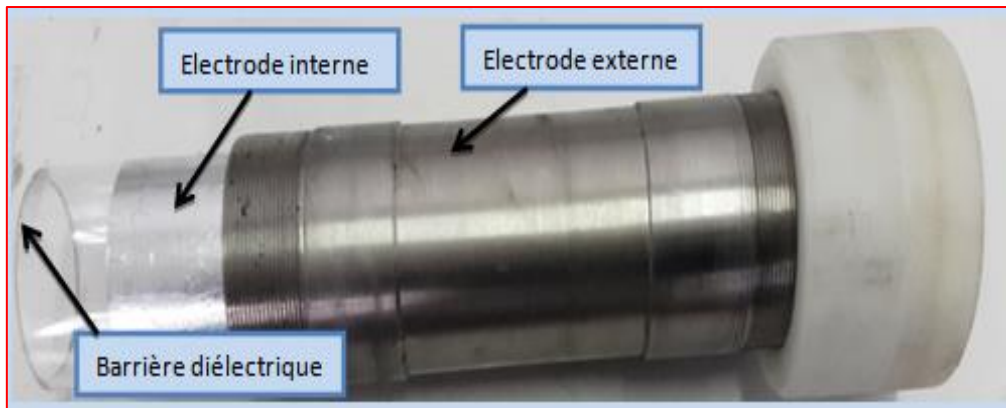


Figure 2.4. Photographie du réacteur d'ozone à DBD volumique [6].

2.2.2. Générateur à DBD surfacique

Ce type de réacteur est de forme cylindrique constitué de deux électrodes métalliques en contact avec la barrière diélectrique des deux côtés. Nous décrivons dans ce qui suit la géométrie de ce générateur.

Dans ce genre d'ozoniseur la décharge est générée au niveau de l'électrode haute tension en contact avec la surface interne de la barrière diélectrique.

- **Electrode externe**

Cette électrode est en aluminium adhésif similaire à celle utilisée dans la configuration volumique de même longueur **160 mm**, elle est collée au niveau de la surface extérieure de la barrière diélectrique et reliée à la terre.

- **Electrode interne**

Pour créer la décharge électrique à la surface intérieure du tube en verre, nous avons opté pour une électrode en grille en acier inoxydable insérée à l'intérieur de la barrière diélectrique et reliée à la haute tension. Cette grille métallique de longueur **240 mm** est composée de plusieurs mailles d'une surface de **1 mm²** chacune avec une épaisseur de **0.75 mm**.

- **Barrière diélectrique**

Pour faire une comparaison entre les deux configurations : volumique et surfacique, nous avons opté pour la même barrière diélectrique en verre utilisée pour la configuration précédente.

• **Bouchons de fermeture en téflon**

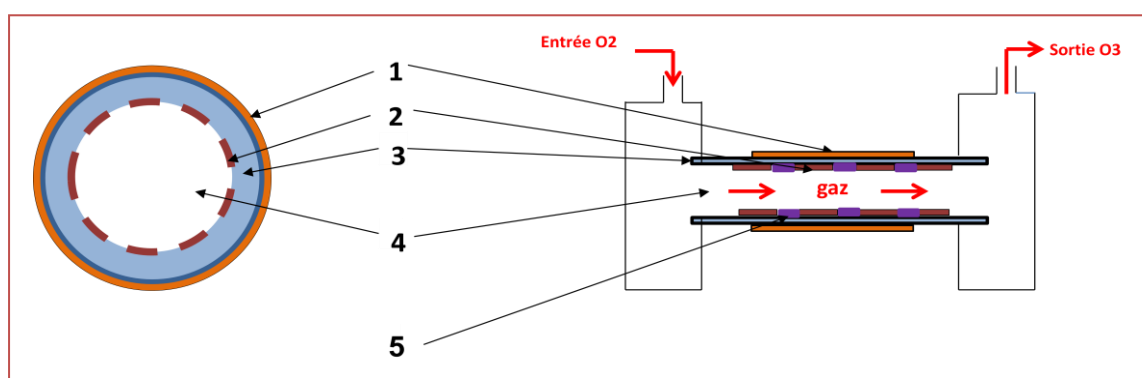
Afin d’assurer un bon écoulement du gaz à l’intérieur du tube et pour éliminer les fuites aux extrémités de la barrière, deux bouchons en téflon sont serrés aux bouts du tube en verre, munis des ouvertures d’entrée et de sortie du gaz.

• **Ecoulement du gaz**

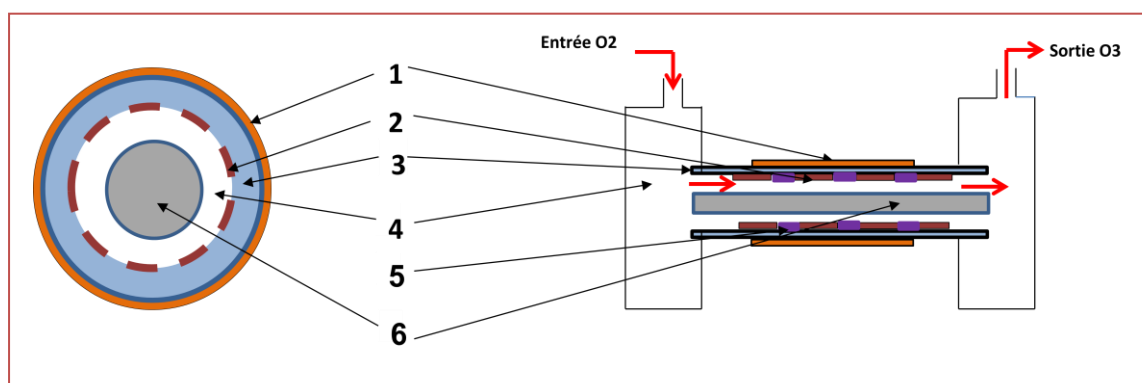
Ce générateur à barrière diélectrique surfacique a deux configurations possibles:

-**DBDS1**: le gaz circule dans l’intégrité du volume intérieur du tube de verre (**figure 2.5.a**);

-**DBDS2**: un deuxième tube de plus petit diamètre en téflon (PTFE), de diamètre extérieur **35 mm**, est inséré à l’intérieur du réacteur, presque en contact avec l’électrode en grille; le gaz circule dans l’espace étroit entre les deux tubes coaxiaux. (**figure 2.5.b**).



(a) Sans tube à l’intérieur (DBDS1)



(b) Avec tube en téflon à l’intérieur (DBDS2)

Coupe transversale

Coupe longitudinale

Figure 2.5. Schéma descriptif du réacteur d’ozone à DBD surfacique (DBDS)

1- Electrode de masse, 2- Electrode haute tension, 3- Barrière diélectrique, 4 Ecoulement du gaz-, 5-Plasma, 6-tube en téflon.

La **figure 2.6** illustre une photographie du réacteur d'ozone à DBD surfacique développé dans notre laboratoire.



Figure 2.6. Photographie du réacteur d'ozone à DBD surfacique

- **Système de refroidissement**

Lors de nos manipulations de traitement des eaux, on a constaté un échauffement au niveau de la barrière diélectrique : chose qui conduit à la destruction des molécules d'ozone, cela montre que l'installation d'un système de refroidissement est indispensable. Pour cela, le générateur d'ozone est enfermé dans un boîtier étanche métallique relié à la terre rempli d'eau de refroidissement. Ce boîtier contient deux ouvertures l'une pour l'entrée de l'eau et l'autre pour la sortie constituant un circuit fermé.

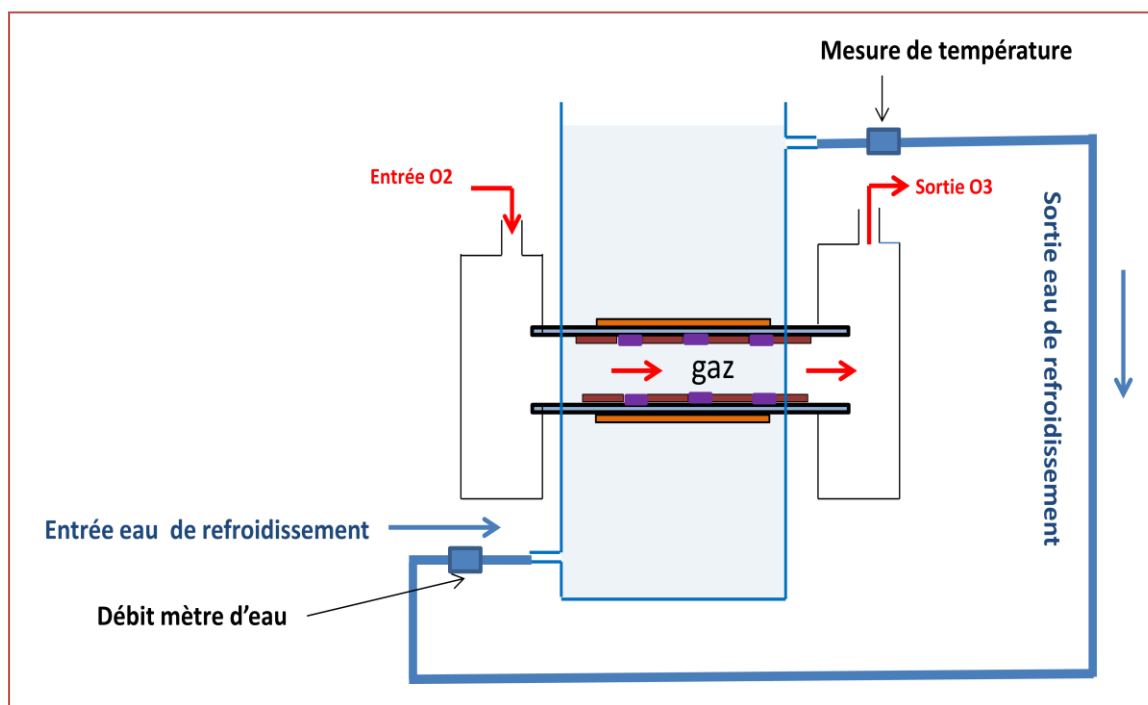
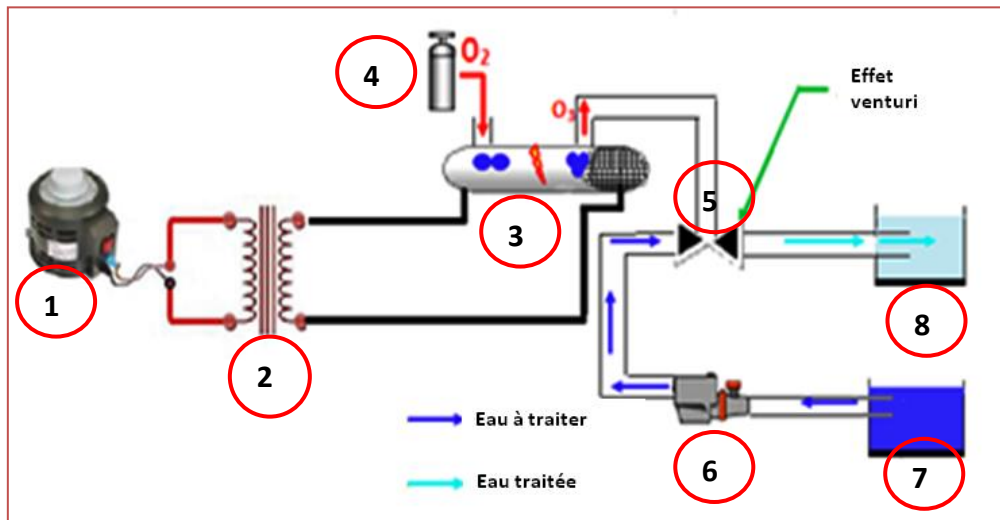


Figure 2.7. Schéma descriptif du système de refroidissement du réacteur d'ozone à DBD surfacique

2.3. Exploitation du générateur d’ozone dans un circuit de traitement des eaux

Le schéma général du dispositif expérimental adopté dans cette étude est représenté à la **figure 2.8**.



(a) schéma descriptif du dispositif de traitement des eaux



Figure 2.8. Dispositif expérimental utilisé pour le traitement des eaux

(a) schéma descriptif, (b) photographie du système

1. Alimentations AC variable (0-250 V) ; 2. Transformateur HT/HF ; 3. Générateur d’ozone ;
4 Concentrateur d’oxygène à débit variable (de 1 à 5 L/mn) ; 5.Injecteur venturi; 6. Pompe;
7. Eau à traiter ; 8. Eau traitée

L'insertion du générateur d'ozone dans une installation de désinfection de l'eau nécessite le matériel suivant :

- 1- Alimentations AC variable (**0-250V**) pour alimenter le transformateur HT d'une part et la pompe à eau d'autre part.
- 2- Transformateur haute tension, haute fréquence HT/HF qui délivre une tension variant de 1 kV à 6 kV avec une fréquence de 35 kHz.
- 3- Générateurs d'ozone à DBD surfacique ou volumique décrits plus haut.
- 4- Concentrateur d'oxygène (**NIDEK medical Nuvo lite Mark 5**) à débit variable, qui élimine de l'azote, le dioxyde de carbone, la vapeur d'eau et les hydrocarbures à partir de l'air.
- 5-Système venturi : Nous avons opté pour l'utilisation d'un injecteur de type Venturi afin d'assurer un mélange efficace entre l'ozone dans son état gazeux et l'eau. Son rôle consiste à créer un effet d'aspiration du gaz (**figure 2.9**).

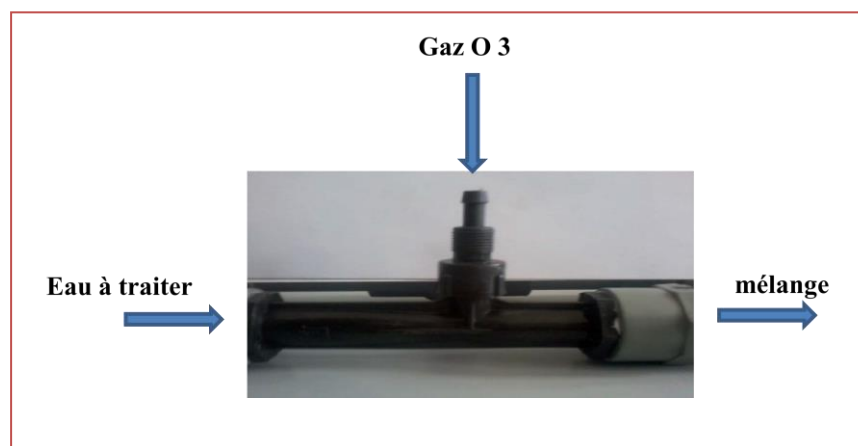


Figure 2.9. Système venturi

Le procédé de traitement de l'eau est un circuit fermé ou ouvert, l'eau « polluée » sort du réservoir et l'eau traitée revient dans le même réservoir ou dans un autre réservoir. La pompe aspire l'eau avec un débit d'environ 10 L/min, le système d'injection Venturi permet d'injecter l'ozone produit par le générateur dans le circuit d'eau. En effet, une aspiration se produit au niveau de l'injecteur Venturi, qui va permettre d'assurer le mélange de l'eau avec l'ozone.

Une eau colorée a été utilisée pour estimer le niveau de la production d'ozone en calculant le taux de décoloration τ mesuré à partir des absorbances avant et après le traitement par un spectrophotomètre visible de type **Optizen 1412V**. Ensuite, le taux de décoloration est estimé en utilisant l'équation suivante:

$$\tau(\%) = \frac{Abs_0 - Abs_1}{Abs_0} \times 100 \quad (2.1)$$

Où: Abs_0 est l'absorbance avant le traitement, et Abs_1 l'absorbance après le traitement pour une longueur d’onde déterminée.

2.4. Caractéristiques électriques des générateurs d’ozone

2.4.1 Courant de décharge électrique

La tension V appliquée a été mesurée avec un oscilloscope numérique (**GWINSTEK GDS-3154**) en utilisant une sonde à haute tension (**Tektronix P6015A**), tandis que l’image du courant I a été visualisée en mesurant la chute de tension à travers une résistance shunt de 100Ω (**figure 2.10**).

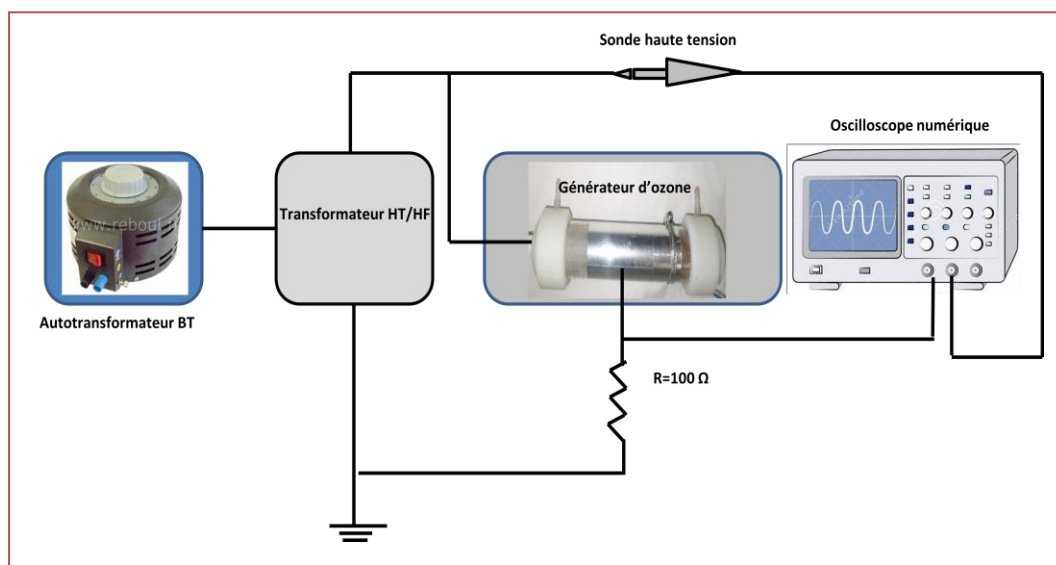


Figure 2.10. Visualisation des courants et tension, mesure de puissance

Les **figures 2.11** et **2.12** illustrent la forme de la tension et du courant de décharge pour les deux générateurs cités DBDV et DBDS1 respectivement.

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

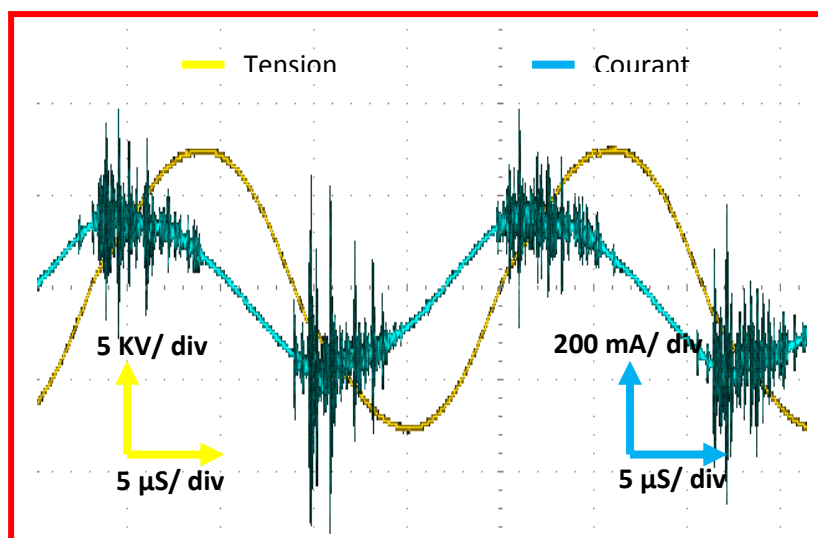


Figure. 2.11. Signaux électriques du courant et de la tension, dans une DBD volumique

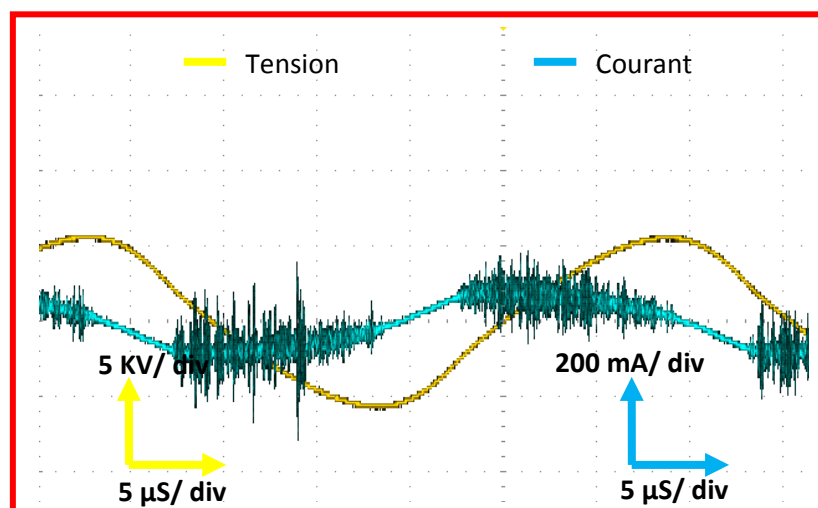


Figure. 2.12. Signaux électriques du courant et de la tension, dans une DBD surfacique

2.4 .2. Mesure des puissances consommées

La détermination de la puissance consommée par les trois générateurs d'ozone est indispensable afin de savoir lequel de ces trois réacteurs demande moins de puissance autrement dit les classer selon leur rendement énergétique.

Le calcul de la puissance est obtenu en effectuant le produit de la tension d'alimentation par le courant de décharge. Lorsque le signal est périodique, la puissance est donnée par la relation suivante :

$$P = \left(\frac{1}{T}\right) \int_0^T V(t).I(t). dt \quad (2.2)$$

Avec :

P : Puissance consommée (W)

V(t) : Tension appliquée (V)

I(t) : Courant de décharge (A)

Dans le cas de notre configuration expérimentale, U(t) est la mesure de la voie 1 multipliée par le coefficient de la sonde. I(t) est obtenu en divisant la mesure de la voie 2 (qui est une tension) par la résistance de 100 Ω. Comme notre oscilloscope à mémoire, dispose de fonctions intégrées (math), nous pouvons obtenir directement l’affichage d’une puissance moyenne (cumul de 25000 mesures élémentaires sur une période), en calculant la valeur de la moyenne statistique du produit $V * I$ sur 25000 points.

2.5. Résultats et discussion

2.5.1. Effet de la tension sur la puissance consommée

La **figure 2.13** illustre la variation de la puissance consommée en fonction de la tension appliquée pour les générateurs d’ozone DBDV, DBDS1, DBDS2 respectivement.

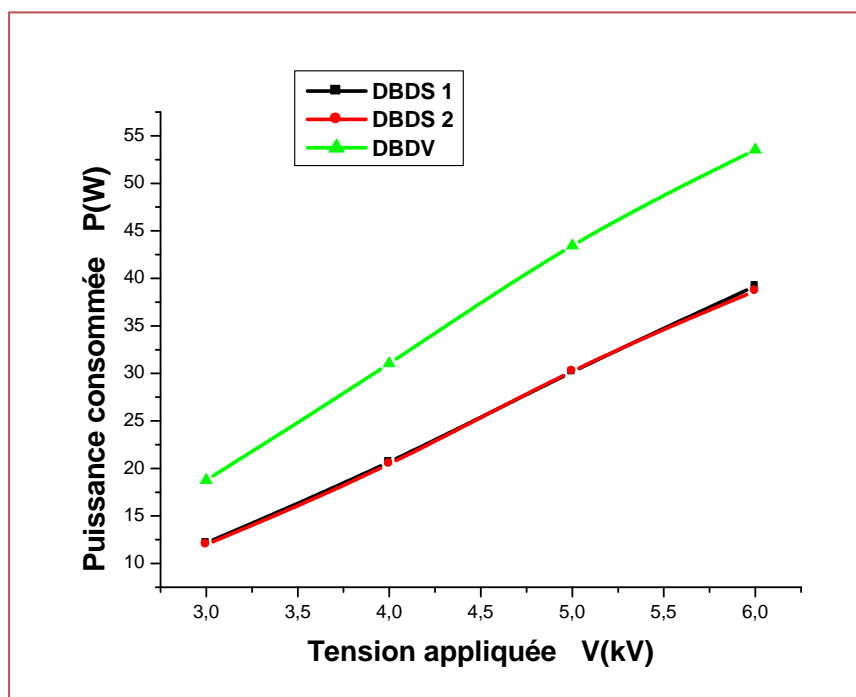


Figure 2.13. Variation de la puissance consommée en fonction de la tension appliquée, pour les trois configurations.

L’énergie consommée, pour une fréquence du signal donnée, est proportionnelle à la tension de la décharge. Paradoxalement, il a été constaté que le réacteur à décharge

volumique consomme une puissance beaucoup plus élevée, en soulignant une évolution linéaire de la puissance en fonction de la tension. Nous remarquons que le modèle DBDV consomme près de 40% de plus en termes de puissance en comparaison avec les réacteurs à décharge surfacique. Ainsi, par exemple, pour une tension $V = 6$ kV, la puissance maximale consommée par les réacteurs DBDS est de 38 W, alors qu'elle augmente jusqu'à 53 W pour le modèle DBDV.

2.5.2. Influence de la tension et du débit sur la concentration d'ozone

Dans cette section, l'effet de la haute tension appliquée V (kV) et le débit d'oxygène Q_{O_2} (L/min) sont analysés expérimentalement. Les résultats obtenus représentent la variation du taux de décoloration τ (%) et l'efficacité de la décoloration τ/P (représentant le rapport entre le taux de décoloration τ et la puissance consommée P en %/W pour les trois réacteurs en fonction de V et Q . Chaque point tracé représente la moyenne de deux mesures avec leurs barres d'erreur associées afin de montrer la bonne répétabilité des expériences. Toutes les manipulations sont faites dans des conditions climatiques stables à savoir une température variant entre 20°C et 30 °C et un taux d'humidité compris entre 60 % et 70 %.

2.5.2.1. Influence de la tension sur la génération d'ozone

La **figure 2.14** montre la variation du taux de décoloration en fonction de la tension pour les trois configurations des générateurs d'ozone.

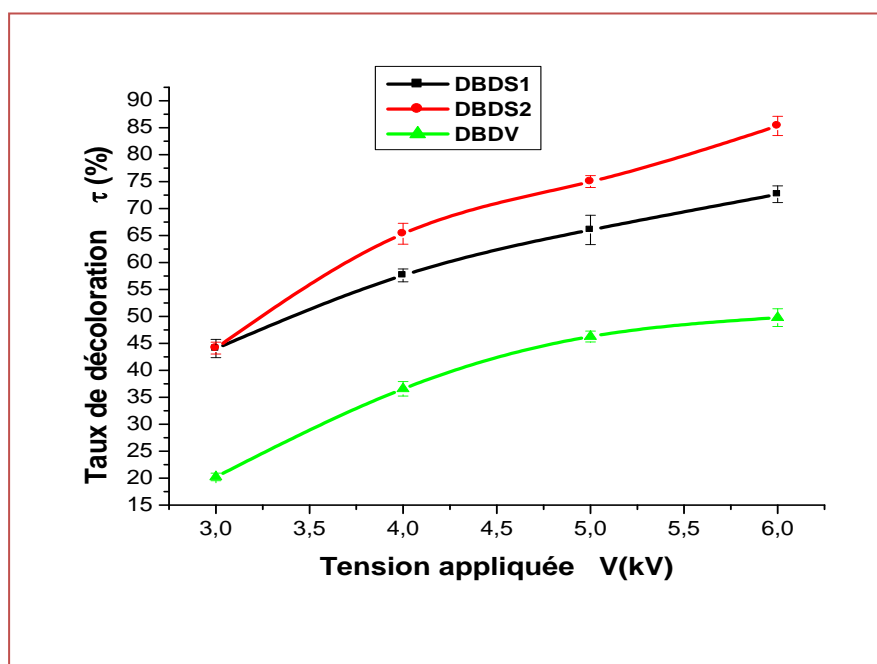


Figure 2.14. Variation du taux de décoloration en fonction de la tension appliquée pour les trois réacteurs DBD ($Q_{O_2} = 5$ L/min)

On peut constater que le taux de décoloration τ augmente quasi-linéairement avec la tension appliquée quelle que soit la configuration du réacteur.

L'augmentation de la tension pour les trois configurations fait augmenter l'intensité de courant électrique de la DBD, par conséquent élever la densité d'électrons libres et le taux de dissociation des molécules d'oxygène. Ceci permet d'augmenter la concentration d'ozone produit et par conséquent le taux de décoloration de la solution.

En outre, les résultats obtenus soulignent que le taux de décoloration τ obtenu en utilisant un réacteur à DBD surfacique est beaucoup plus élevé que celui obtenu avec le modèle à DBD volumique. Par exemple, le taux de décoloration obtenu par le générateur DBDS2 est presque deux fois supérieur à celui du DBDV pour une tension donnée, cela est dû à la nature de l'électrode en maille qui permet au champ électrique d'atteindre des valeurs élevées.

De plus, le réacteur DBDS2 produit plus d'ozone que SDBD1, en raison de la diminution du volume de l'écoulement du gaz qui engendre l'augmentation de la concentration d'ozone.

2.5.2.2. Influence du débit sur la génération d'ozone

La variation du taux de décoloration en fonction du débit d'oxygène est illustrée dans la [figure 2.15](#)

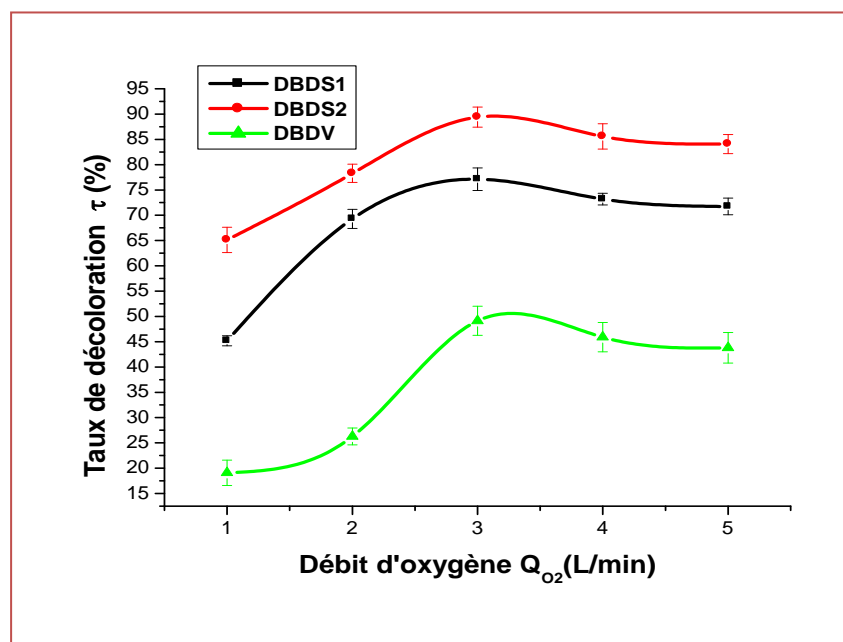


Figure 2.15. Variation du taux de décoloration en fonction du débit d'oxygène pour les trois réacteurs à DBD (Tension $V=6kV$)

Les résultats de la **figure 2.15** montrent que l'augmentation du débit d'oxygène fait croître le taux de décoloration et par conséquent l'augmentation de la concentration d'ozone pour les différents types de réacteurs étudiés. Cela est dû à l'élévation de la densité des molécules d'oxygène soumises à la décharge électrique pour se transformer en ozone, jusqu'à une valeur optimale $Q_{O_2}=3$ L/min.

L'augmentation du débit d'oxygène au delà de 3 L/min a pour conséquence de créer une surcharge de molécules d'oxygène dans les zones de décharge, non soumises aux micros-décharge, cela provoque une diminution de la concentration d'ozone (augmentation de plus en plus de molécules d'oxygène par rapport aux molécules d'ozone).

Les résultats obtenus nous montrent encore la supériorité des réacteurs surfaciques par rapport aux réacteurs volumiques, la différence étant supérieure pour les petites valeurs de Q .

On constate que pour un débit de 2L/min par exemple, le taux de décoloration est seulement de 25% pour DBDV tandis qu'il atteint 65% et 80% pour DBDS1 et DBDS2 respectivement.

2.5.3. Simulation numérique du champ électrique au niveau des réacteurs d'ozone

L'analyse numérique du champ électrique en utilisant un logiciel (CSP) a été effectuée afin d'estimer le champ électrique dans l'espace pour chaque configuration DBD. Le "Programme de Simulation des charges" (CSP), développé par *Levin et al.* [45], a déjà prouvé son efficacité dans l'analyse du champ électrique. Le programme est fourni avec une entrée interactive de données, contrôle facile des erreurs et des fonctions évoluées en post-traitement [46-48].

Pour chaque configuration, le champ électrique maximal a été estimé au voisinage de l'électrode haute tension (à 0,1 mm au-dessus de l'électrode de haute tension à l'intérieur du tube de verre pour le réacteur à DBD surfacique et à 0.1 mm de la barrière diélectrique à l'extérieur du tube de verre dans le cas du réacteur à DBD volumique).

Les résultats obtenus en fonction de la position sur l'axe des générateurs tracés sur la **figure 2.16** indiquent que le champ électrique dans le cas des réacteurs en surface est sensiblement plus élevé que pour le réacteur en volume, cela est dû à la configuration maillée de l'électrode haute tension pour les réacteurs d'ozone surfacique. Les valeurs maximales du champ électrique sont d'environ $1,0 \times 10^7$ V/m et $0,4 \times 10^7$ V/m pour DBDS1 et DBDV respectivement.

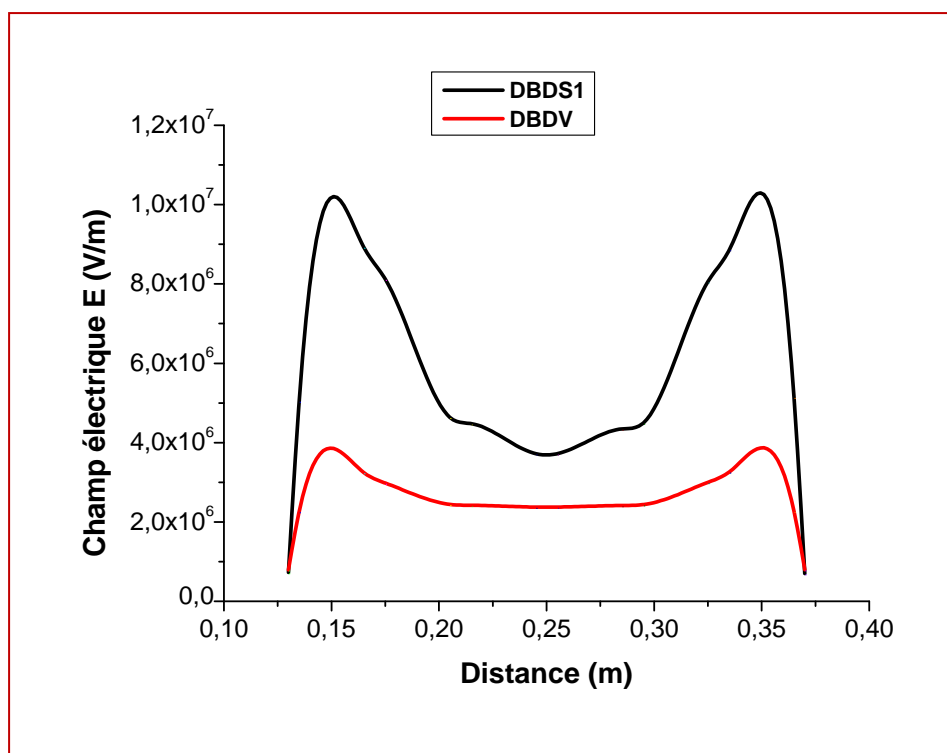
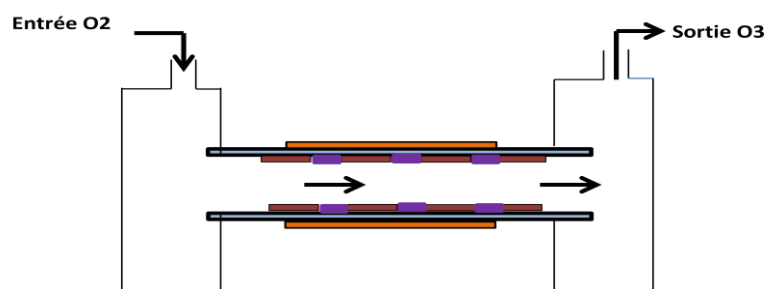


Figure 2.16. Champ électrique au voisinage de l'électrode à haute tension pour les trois configurations (Tension appliquée $V=6kV$)

2.5.4. Influence de la géométrie de l'électrode terre pour le modèle à DBD surfacique

En constatant que la distribution longitudinale du champ électrique présente des pics aux extrémités de l'électrode terre, nous avons subdivisé l'électrode du réacteur à DBD surfacique DBDS1 en deux puis trois portions comme l'indique la [figure 2.17](#), en gardant la même longueur de la zone efficace de décharge.



(a)

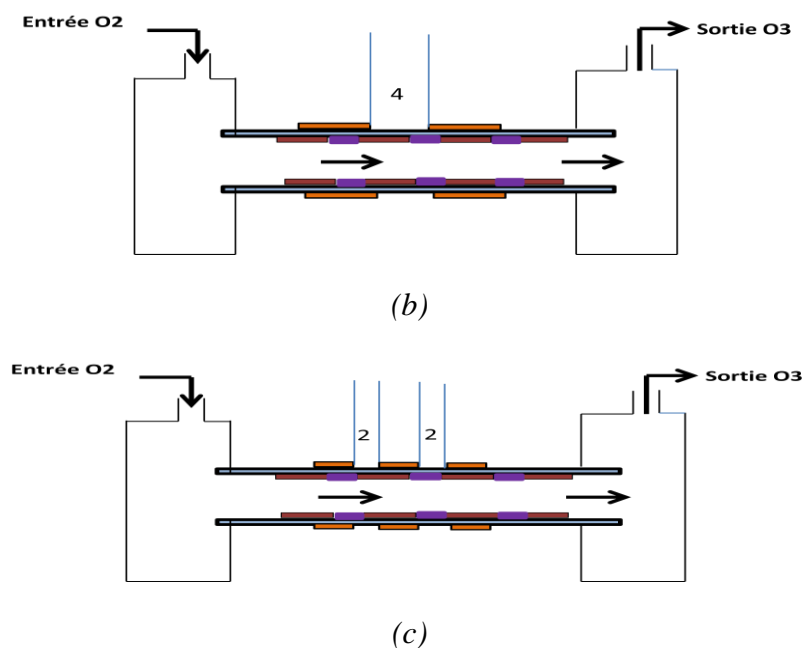


Figure 2.17. DBD surfacique avec l'électrode reliée à la terre subdivisée en petites portions

(Toutes les dimensions sont en mm)

(a) une portion $L = 150$ mm, (b) deux portions $L = 2 \times 75$ mm (c) trois portions $L = 3 \times 50$ mm

La **figure 2.18** illustre la variation du taux de décoloration en fonction de la tension appliquée pour les trois générateurs illustrés dans la **figure 2.17**, en gardant le même débit d'oxygène.

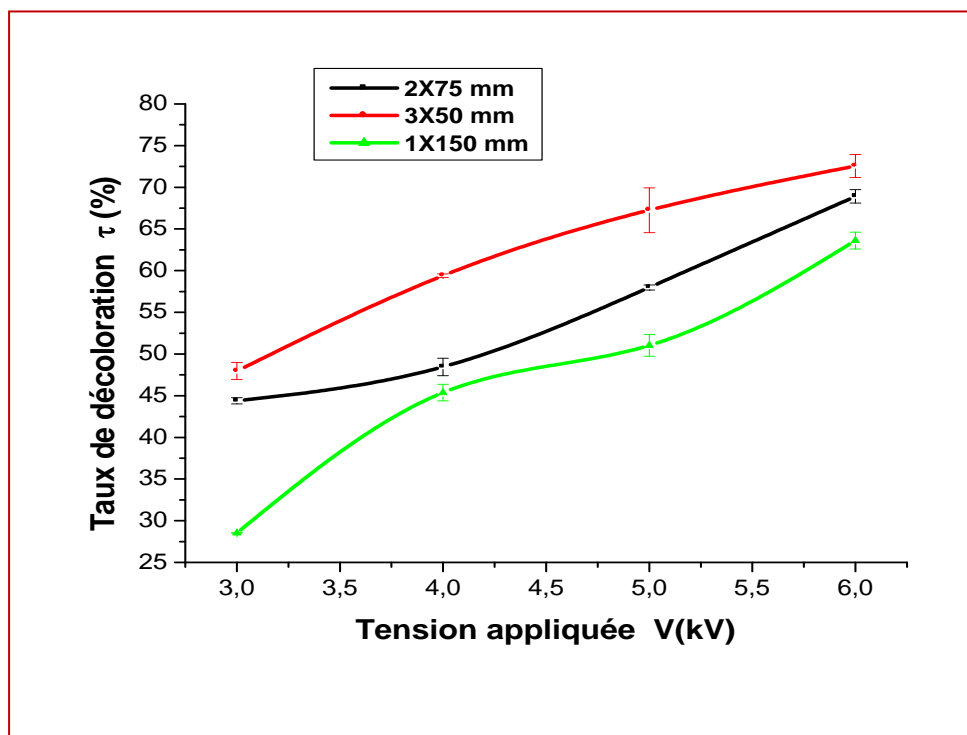


Figure 2.18. Variation du taux de décoloration en fonction de la tension appliquée aux trois configurations du DBDS1 ($Q_{O_2} = 5L/min$)

La concentration d'ozone et par conséquent le taux de décoloration sont significativement plus élevés lorsque l'électrode de masse est divisée en trois parties, en raison de l'augmentation du champ électrique aux extrémités des portions. Par conséquent, il est intéressant de subdiviser cette électrode en plusieurs portions.

2.5.5. Efficacité énergétique des différents générateurs d'ozone

Pour pouvoir faire une comparaison adéquate entre les trois générateurs cités dans ce chapitre, il est indispensable d'estimer leur rendement énergétique, autrement dit la concentration d'ozone par rapport à la puissance consommée. La [figure 2.18](#) illustre l'efficacité énergétique des générateurs DBDS1, DBDS2 et DBDV respectivement en fonction de la tension.

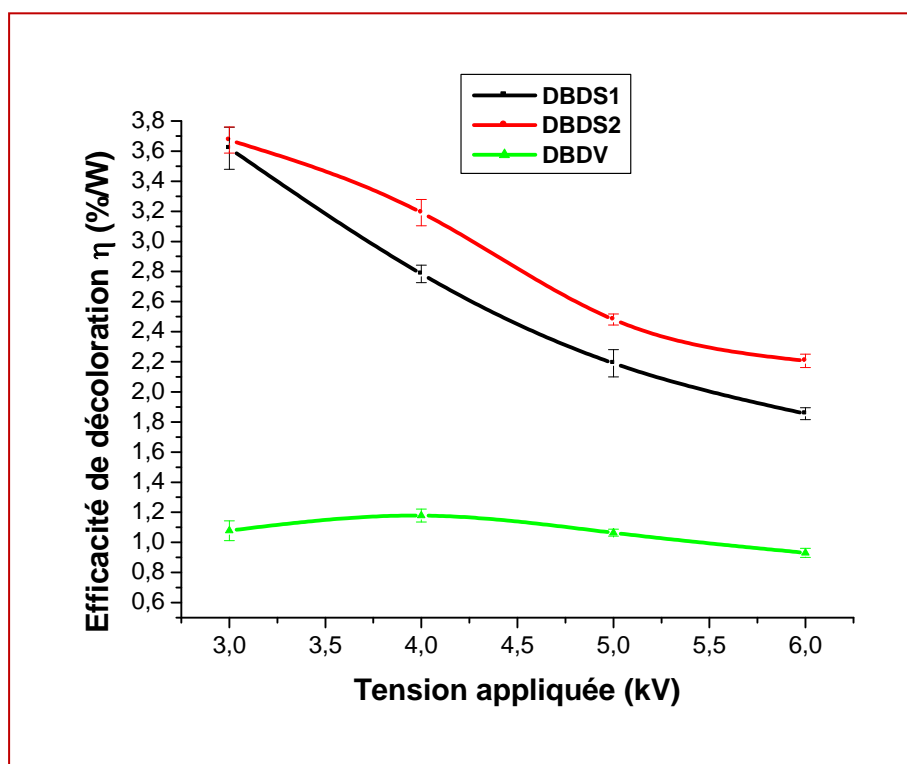


Figure 2.18. Efficacité énergétique en fonction de la tension appliquée pour les trois générateurs

L'efficacité énergétique, exprimée en pourcentage du taux de décoloration par unité de puissance, confirme définitivement la supériorité des réacteurs à DBD surfacique. En effet, l'efficacité de la décoloration est de 2,5 à 3,5 fois plus élevée par rapport au réacteur à DBD volumique.

De plus, il est clairement remarquable que le rendement énergétique est inversement proportionnel à la tension appliquée pour les trois géométries des générateurs d'ozone, cela est dû aux pertes d'énergie qui accompagne cette augmentation de tension.

2.6. Conclusion

Une étude expérimentale comparative entre les générateurs d'ozone à DBD volumique et surfacique a été présentée dans le présent chapitre.

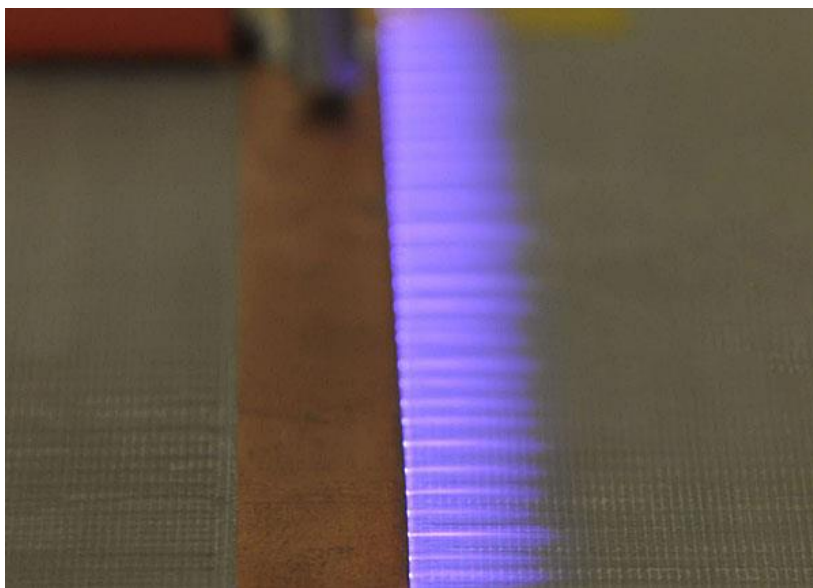
A partir des expériences réalisées, il est possible de conclure que le réacteur à DBD surfacique a donné de meilleurs résultats en termes de taux de génération d'ozone ainsi que la puissance consommée. En outre, les résultats obtenus ont permis de vérifier que l'efficacité énergétique du réacteur surfacique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

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

L'identification de la conception géométrique optimale d'un générateur d'ozone de forme cylindrique à DBD surfacique, en utilisant la méthodologie des plans d'expérience, afin d'augmenter l'efficacité énergétique de production d'ozone fera l'objet du chapitre suivant.

Chapitre 3

Optimisation des paramètres du générateur d'ozone à DBD surfacique



3

OPTIMISATION DES PARAMETRES DU GENERATEUR D'OZONE À DBD SURFACIQUE

3.1. Introduction

L'utilisation de l'ozone est souvent la seule et la plus efficace technologie permettant d'obtenir une eau de haute qualité. Elle est parfaitement adaptée au traitement durable de l'eau du fait du caractère écologique du processus utilisé [49].

En raison des coûts élevés d'investissement des générateurs d'ozone, nous devons faire attention dans leur conception et leur fabrication. En outre, ils doivent être estimés au moment de déterminer les besoins en énergie pour la production d'ozone : l'énergie pour la production de gaz (oxygène ou air comprimé) et l'énergie électrique. [50-51].

Beaucoup d'études ont été faites pour l'optimisation des paramètres électriques et dimensions géométriques des réacteurs à DBD volumique, cependant peu d'études expérimentales ont été réalisées pour les réacteurs à DBD surfacique. [52-53]

Après avoir effectué une étude comparative entre les deux générateurs d'ozone à décharges volumique et surfacique dans le chapitre précédent, et les résultats satisfaisants obtenus en terme de concentration d'ozone générée par les réacteurs à décharge surfacique, on propose dans cette partie de procéder à l'optimisation expérimentale. Celle-ci est divisée en trois grandes parties :

- La première a pour objet de réaliser différents types de générateurs à DBD surfacique en prenant en considération l'influence du diamètre de la barrière diélectrique (tube en verre) et le volume de l'écoulement du gaz sur la concentration d'ozone.
- La seconde partie est consacrée à la modélisation par surfaces de réponse (RSM) pour l'identification de la conception géométrique optimale d'un générateur d'ozone de forme cylindrique, afin d'augmenter la génération d'ozone et de minimiser la consommation d'énergie.
- La troisième partie est dédiée à l'application du générateur d'ozone en utilisant un dispositif expérimental pour la décoloration de trois types d'eau, à savoir :
 - Eau contaminée par un colorant alimentaire ;
 - Eau infectée par un colorant textile industriel ;

➤ Eau rejetée par une entreprise de textile. [54-55]

3.2. Conception des différents réacteurs à DBD surfacique

3.2.1. Influence du volume d'écoulement du gaz

La première partie de ce chapitre est consacrée à l'étude de l'influence du volume du gaz passant à travers le générateur d'ozone à DBD surfacique.

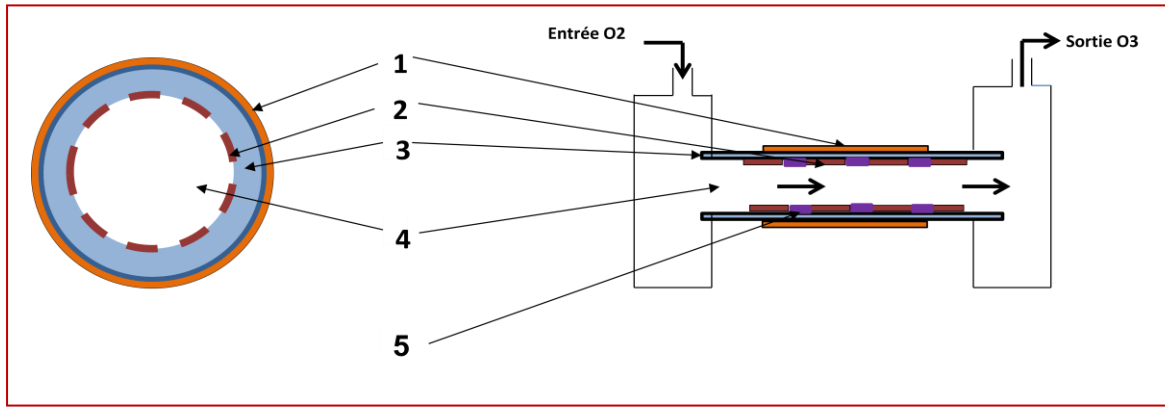
L'électrode de masse est en aluminium adhésif d'une longueur de **200 mm** collée à la surface extérieure du tube en verre. Celui-ci, agissant comme une barrière diélectrique, a une épaisseur de **1.5 mm**, un diamètre extérieur de **50 mm** et une longueur de **300 mm**. L'électrode cylindrique reliée à la haute tension est une grille métallique en acier inoxydable de longueur **250 mm** de longueur, d'épaisseur **0,75 mm**. Cette grille en contact avec la surface intérieure du tube de verre est formée de mailles d'une surface de **1 mm²** chacune. Pour cette configuration, la décharge se produit au niveau de la grille en contact avec le verre.

Pour analyser l'influence du volume d'écoulement d'air, trois configurations géométriques différentes sont proposées (**figure 3.1**) :

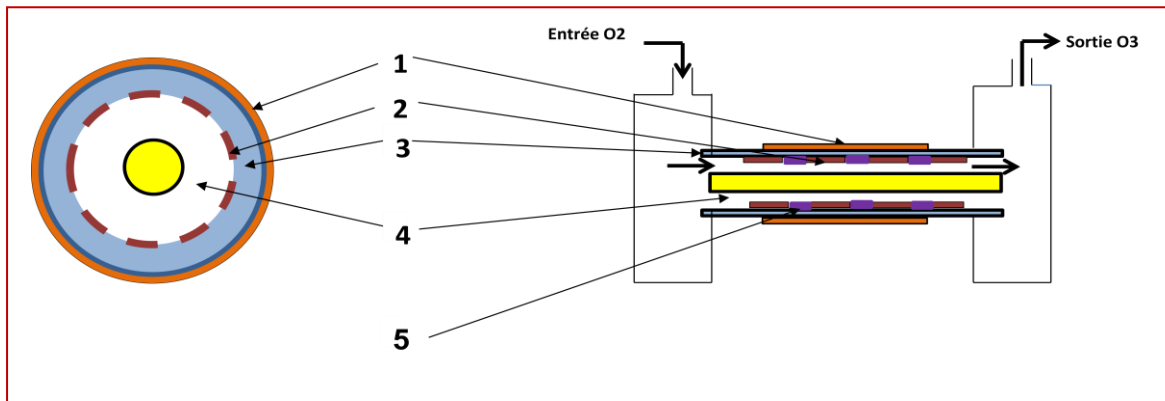
- DBDS1: le gaz circule dans la totalité du volume interne du tube de verre de diamètre interne **44 mm** (**figure. 3.1.a**);

- DBDS2: un deuxième tube de petit diamètre en verre, de diamètre extérieur **32 mm**, est inséré à l'intérieur du réacteur d'une manière coaxiale, de telle sorte que le gaz circule dans un espace entre les deux tubes d'un intervalle de **6mm** (**figure. 3.1.b**)

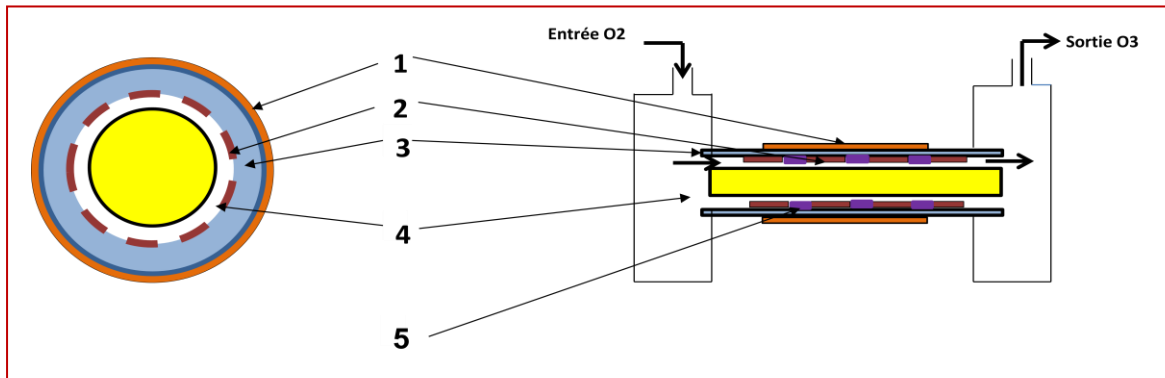
- SDBD3: un tube en Téflon (PTFE), de diamètre extérieur **40 mm**, est inséré à l'intérieur du réacteur DBDS1, presque en contact avec la grille haute tension; le gaz traverse un intervalle de **2mm** entre les deux tubes coaxiaux (**figure.3.1.c**)



(a) Gaz traversant la totalité du volume à l’intérieur du tube en verre



(b) Gaz traversant un intervalle de 6mm entre les tubes en verre.



(c) Gaz traversant un intervalle de 2mm entre les tubes en verre et en téflon.

Coupe transversale

Coupe longitudinale

Figure 3.1. Schéma descriptif du réacteur d’ozone à DBD surfacique (DBDS) avec les différentes configurations d’écoulement du gaz.

1-Electrode de masse, 2- Electrode haute tension, 3- Barrière diélectrique, 4 Ecoulement du gaz, 5-Plasma.

Pour connaître l’influence du diamètre de la barrière diélectrique, nous avons opté pour une quatrième configuration DBDS4 pour laquelle nous avons remplacé le tube en verre de diamètre intérieur **44 mm** par un autre tube de même nature du diélectrique avec un diamètre intérieur réduit égale à **39 mm** . Afin de garder la même surface de décharge, nous avons augmenté la longueur de l’électrode masse en aluminium adhésif qui vaut **225 mm**.

3.3. Description du dispositif expérimental de décoloration des eaux

Le branchement du générateur d’ozone dans une installation pour la décoloration de l’eau nécessite les équipements suivants :

- Alimentation AC variable (**0-250V**) : pour alimenter le transformateur HT.
- Transformateur de haute tension haute fréquence HT-HF : Il sert à alimenter en haute tension le réacteur DBD.
- Générateur d’ozone à DBD surfacique de configuration cylindrique
- Concentrateur d’oxygène à débit variable (de 1 à 5 L/min).
- Injecteur Venturi : afin d’assurer un mélange efficace entre l’ozone et l’eau
- Pompe à eau (10 L/min).

Le procédé de traitement de l’eau est un circuit qui peut être fermé ou ouvert, l’eau « polluée » sort du réservoir et l’eau traitée revient dans le même réservoir ou dans un autre réservoir. La pompe aspire l’eau avec un débit d’environ 10 L/min, le système d’injection Venturi permet d’injecter l’ozone produit par le générateur dans le circuit d’eau. En effet, une aspiration se produit au niveau de l’injecteur Venturi, qui va permettre d’assurer le mélange de l’eau avec l’ozone.

La **figure 3.2** montre le dispositif expérimental utilisé pour nos manipulations. Toutes les expériences ont été réalisées dans les mêmes conditions de température (20-25° C) et d’humidité (60 à 70 %).

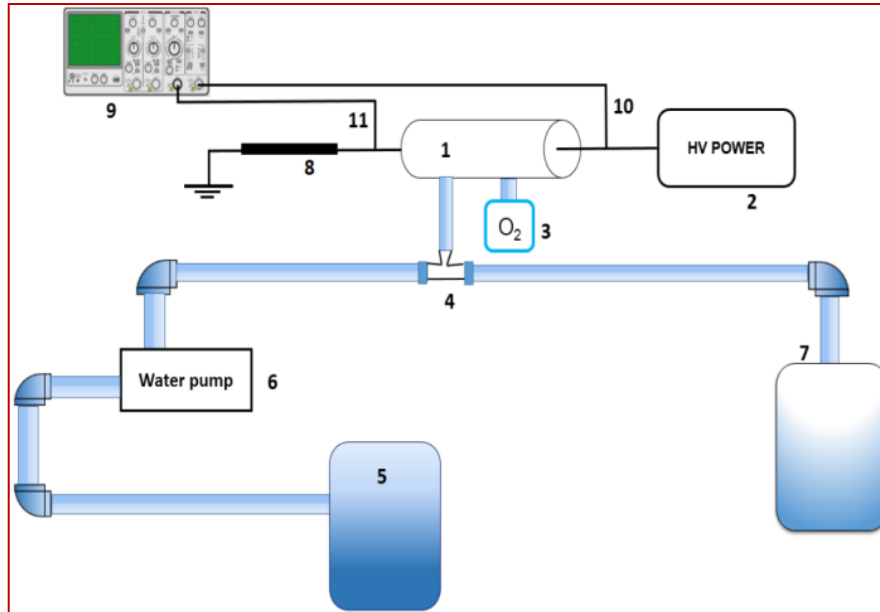


Figure 3.2. Dispositif expérimental utilisé pour le traitement des eaux

1. Générateur d’ozone, 2. Alimentation haute tension,
 3. Concentrateur d’oxygène, 4. Injecteur Venturi, 5. Réservoir d’eau, 6. Pompe à eau,
 7. sortie d’eau traitée. 8. résistance de 100 Ω, 9. Oscilloscope numérique,
 10. Sonde de mesure de la haute tension, 12. Sonde basse tension.

La quantité d’ozone produite est estimée en calculant le taux de décoloration évalué par la mesure de l’absorbance avant et après traitement mesurée par un spectrophotomètre visible.

3.3.1. Effet de la tension

La **figure 3.3** illustre l’influence de la tension générée par le transformateur HT-HF et appliquée aux différents générateurs à DBD surfaciques cités dans les paragraphes précédents.

Nous notons que durant cette expérience, on fait varier la tension de 3 à 6 kV en maintenant un débit constant $Q = 5 \text{ L/mn}$.

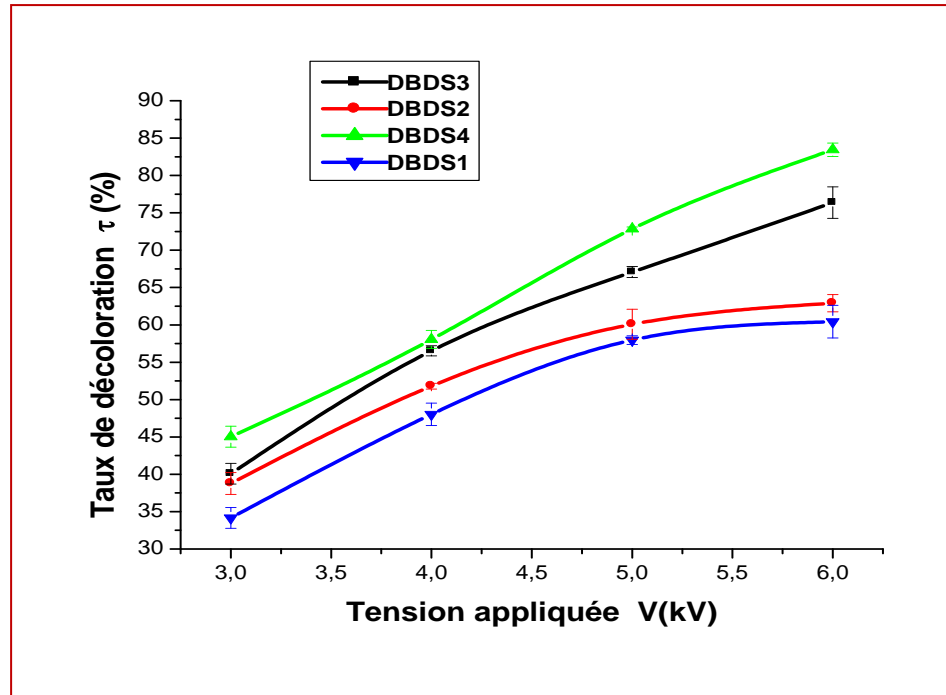


Figure 3.3. Variation de taux de décoloration en fonction de la tension pour les quatre configurations ($Q_{O_2}=5L/min$)

Nous constatons d'une part que l'augmentation de la tension pour les quatre configurations est accompagnée avec l'augmentation du taux de décoloration, chose qui est due à l'élévation du nombre de micro-décharges et de leur intensité dans les différents réacteurs DBD. Par conséquent, le taux de dissociation des molécules d'oxygène vont se multiplier, donc une concentration d'ozone plus intense.

D'autre part, on remarque bien que la diminution du volume de l'écoulement du gaz engendre une augmentation de la concentration d'ozone et par conséquent le taux de décoloration. Cela est dû à l'augmentation du rapport des volumes O_3/O_2 .

Pour le générateur DBDS4, il présente une meilleure décoloration grâce à la diminution du volume gazeux en gardant la même surface de décharge effectuée par l'élévation de la longueur de l'électrode masse. Cette réduction de diamètre conduit à un rapport oxygène /ozone plus réduit où les molécules d'ozone prédominent dans le mélange et par conséquent un taux de décoloration plus grand.

3.3.2. Effet du débit d'oxygène

Dans cette section, on désire voir l'influence du débit d'oxygène variant de 1 à 5 L/min sur le taux de décoloration, pour les quatre configurations des réacteurs d'ozone, en gardant la même valeur de la tension $V=6$ kV.

Les résultats des expériences sont illustrés dans la **figure 3.4**.

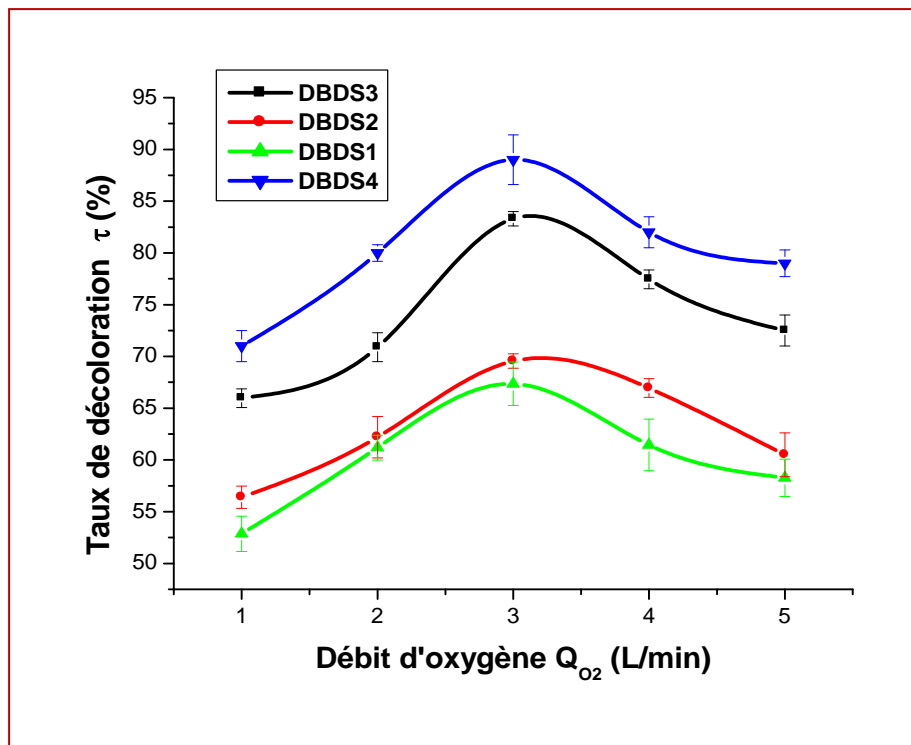


Figure 3.4. Variation du taux de décoloration en fonction du débit d’oxygène pour les différentes configurations ($V=6$ kV)

D’après cette figure, on peut dire que l’augmentation du débit d’oxygène fait augmenter le taux de décoloration et par conséquent l’augmentation de la concentration d’ozone. Cela est dû à l’élévation du nombre de molécules d’oxygène soumises à la décharge électrique.

L’augmentation du débit d’oxygène au delà de 3 L/min permet d’accroître la vitesse des molécules d’oxygène, donc un faible temps de séjour en contact de la surface de décharge. Cela va engendrer que certaines molécules d’oxygène ne sont pas soumises aux micros-décharge, et par conséquent une diminution de la concentration d’ozone (augmentation de plus en plus de molécules d’oxygène par rapport aux molécules d’ozone).

Nous pouvons aussi constater qu’en diminuant l’intervalle du passage de gaz, en allant du générateur DBDS1 vers DBDS4, le taux de décoloration augmente par l’approche des molécules d’oxygène à la surface intérieure de la barrière diélectrique qui est plus proche à la zone de décharge, chose qui conduit à plus de réactions entre l’oxygène et le plasma, donc un plus d’ozone qui se produit. [6]

3.3.3. Influence de la longueur d’électrode

En analysant les résultats précédents, on constate bien la supériorité des générateurs DBDS3 et DBDS4 en termes de concentration d’ozone. Dans cette partie, nous optons pour l’analyse l’influence de la longueur d’électrode sur la quantité d’ozone produite dans les réacteurs DBDS3 et DBDS4.

Les résultats représentés dans la **figure 3.5** sont obtenus en faisant varier la longueur de l’électrode avec une tension fixe qui vaut 6kV et un débit d’oxygène constant 5L/min

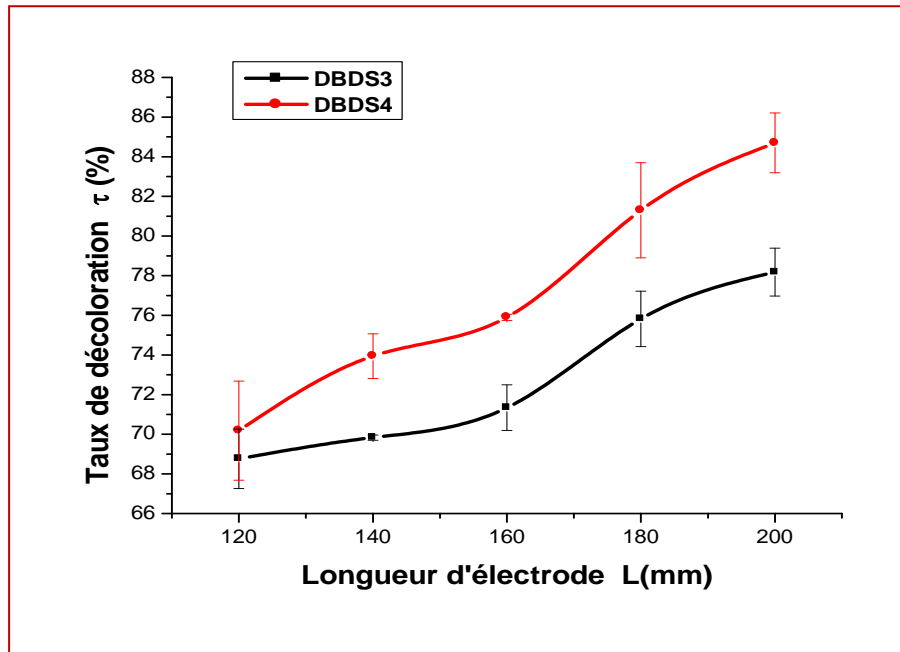


Figure 3.5. Variation du taux de décoloration en fonction de la longueur de l’électrode ($V=6\text{ kV}$, $Q_{O_2}=5\text{ L.min}$).

Nous pourrions dire que la concentration d’ozone augmente quasi-linéairement avec la longueur, chose qui est due à l’augmentation de la surface de décharge.

3.3.4. Mesure de la puissance consommée

Dans cette partie, nous allons procéder à la caractérisation électrique de la décharge à barrière diélectrique de surface (DBD_S), autrement dit étudier les caractéristiques électriques de la DBD (courant de décharge et puissance).

La **figure 3.6** montre le montage électrique pour la mesure de courant de la décharge dans la DBD ainsi que la tension dans le réacteur. Une résistance **R** égale à **100 Ω**, connectée en série avec le réacteur DBD, sert à mesurer le courant de décharge.

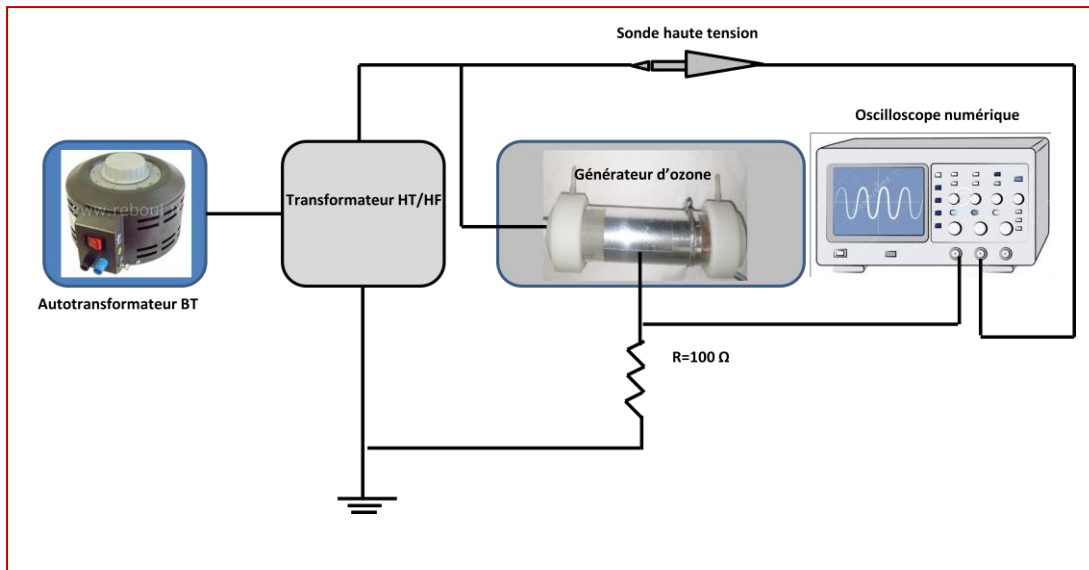


Figure 3.6. Dispositif expérimental de mesure de puissance

Le calcul de la puissance consommée est fait de la même façon que celle citée dans le chapitre précédent en calculant le produit sur 25000 points entre le courant et la tension, par la fonction *math* disponible sur l’oscilloscope numérique utilisé dans notre dispositif expérimental.

La figure 3.7 montre la puissance moyenne consommée par les deux réacteurs à DBD surfacique DBDS3 et DBDS4.

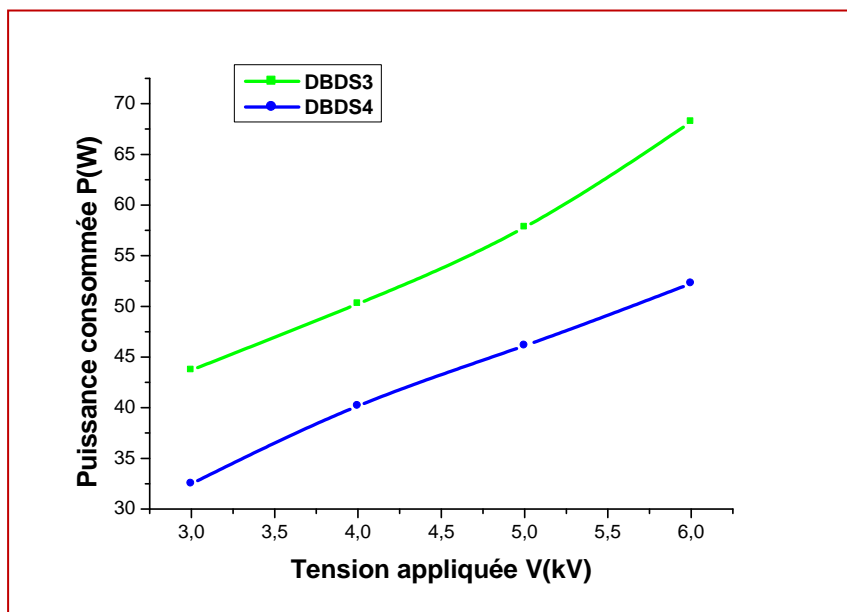


Figure 3.7. Puissance consommée pour les réacteurs DBDS3 et DBDS4

Les résultats obtenus en termes de consommation de puissance des réacteurs d’ozone DBDS3 et DBDS4 soulignent une évolution linéaire de la puissance en fonction de la tension. En outre le générateur DBDS3 consomme près de 45% en plus de puissance en comparaison avec le réacteur DBDS4.

3.4. Optimisation du générateur d’ozone à DBDS4

Les résultats trouvés précédemment montrent l’avantage de l’utilisation du générateur DBDS4 à diamètre réduit qui présente une meilleure efficacité énergétique, autrement dit plus d’ozone produit avec une consommation d’énergie réduite. Cela nous conduit à une optimisation des paramètres géométriques et électriques de ce générateur, à savoir la *tension appliquée* et le *débit d’oxygène* ainsi que la *longueur d’électrode* afin d’augmenter son rendement énergétique, en utilisant la méthode des plans d’expériences.

Nous présenterons les principes de base de la modélisation expérimentale avec le logiciel *MODDE 5.0* [56-57] que nous avons utilisé pour optimiser l’efficacité du procédé de génération d’ozone.

3.4.1 Rappels sur la méthode des plans d’expériences

3.4.1.1 Concepts fondamentaux : réponses, facteurs effets, interactions:

Les scientifiques sont souvent amenés à comprendre comment réagit un système en fonction des facteurs susceptibles de le modifier. Pour visualiser cette évolution, il mesure une réponse et essaye ensuite d’établir des relations de cause à effet entre les réponses et les facteurs. (figure 3.8). [58-60]

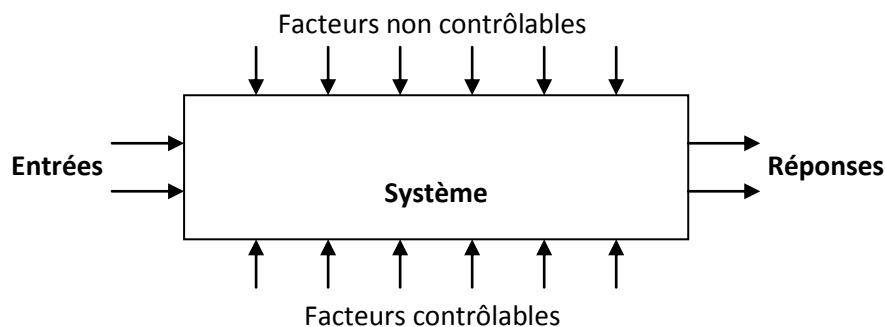


Figure 3.8. Environnement du système

Parmi les facteurs on distinguera:

- les facteurs contrôlables qui dépendent directement du choix du technicien (pression, température, matériau ...)

- les facteurs non contrôlables qui varient indépendamment du choix du technicien (conditions climatiques, environnement d'utilisation...).

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

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

Les phénomènes étudiés sont mis sous la forme mathématique suivante :

$$\mathbf{Y} = \mathbf{f}(\mathbf{U}_{ij}) \quad (3.1)$$

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

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

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

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

3.4.1.2 Etapes d'une étude par plans d'expériences

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

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

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

b/ Choix d'un modèle

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

$$y = a_0 + \sum a_i x_i + \sum a_{ij} x_i x_j + \sum a_{ijl} x_i x_j x_l + \dots + \sum a_{ij\dots k} x_i x_j \dots x_k \quad (3.2)$$

Où :

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

L'intérêt de modéliser la réponse par un polynôme est de pouvoir calculer ensuite toutes les réponses du domaine d'étude sans être obligé de faire les expériences. Ce modèle est appelé "modèle postulé" ou "modèle a priori" [58].

c/ Choix des expériences à réaliser

La méthode des plans d'expérience peut être sommairement comparée à la méthodologie traditionnelle dite de "*variation facteur par facteur*"

Pour étudier l'influence de deux facteurs sur une réponse, on peut adopter deux stratégies expérimentales pour la conception des essais.

Selon la méthode traditionnelle, on bloque le facteur A au centre du domaine de variation et on fait varier le facteur B aux deux extrémités de son domaine: on obtient les mesures M_1 et M_2 . Avec le facteur A on réalise la même opération pour obtenir les points M_3 et M_4 . Dans cette méthode, l'effet de B sera mesuré à partir des mesures M_1 et M_2 et celui de A à partir des mesures M_3 et M_4 . Donc pour chaque facteur la moitié des mesures seulement est utilisée pour rendre compte d'un effet.

La méthode des plans d'expériences consistera à réaliser 4 essais aux extrémités du domaine expérimental. L'effet de A apparaît comme la différence entre la moyenne $(Y_2+Y_4)/2$ et la moyenne $(Y_1+Y_3)/2$. Le même raisonnement s'applique pour l'effet de B.

d/ Réalisation des essais

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

e/ Interprétation des résultats des essais

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

3.4.1.3 Variables codées

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

$$X_{ij} = (U_{ij} - U_{0j}) / \Delta U_j \quad (3.3)$$

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

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

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

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

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

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

3.4.14. Principaux avantages des plans d’expériences :

Les principaux avantages de cette méthode sont:

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

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

3.4.2 Plan composite centré

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

La première partie de l’étude est un plan factoriel complet ou fractionnaire complétée par des points au centre pour vérifier la validité du modèle du premier degré [59]. Si les tests de validation sont positifs l’étude s’achève le plus souvent, mais s’ils sont négatifs on entreprend des essais supplémentaires pour établir un modèle du second degré.

La seconde partie consiste à l’étude des essais supplémentaires, ces nouveaux essais sont représentés par des points d’expériences situés sur les axes de coordonnées et par de nouveaux points centraux. Les points situés sur les axes de coordonnées sont appelés les points en étoile (figure 3.9).

Les plans composites présentent donc trois parties :

- Plan factoriel : c’est un plan factoriel complet ou fractionnaire à deux niveaux par facteurs : les points expérimentaux sont *aux sommets* du domaine cubique d’étude.
- Plan en étoile : les points du plan en étoile sont sur les axes et ils sont en général tous situés à la *même distance du centre* du domaine d’étude.

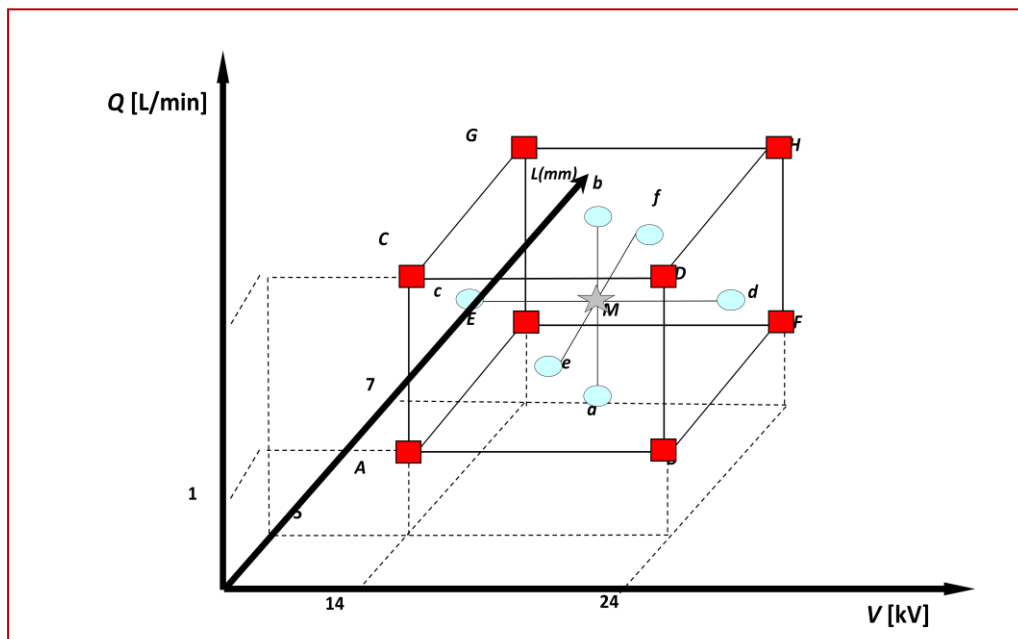


Figure 3.9. Disposition des expériences dans un plan composite centré.

- Points expérimentaux situés au *centre* du domaine d’étude et cela aussi bien pour les plans factoriels que pour les plans en étoile (composite).

Le nombre total d’essais n à réaliser est la somme :

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

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

$$n = n_f + n_\alpha + n_0 \quad (3.4)$$

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

$$n = 2^k + 2.k + n_0 \quad (3.5)$$

Avec :

- 2^k : nombre d’essais correspondant au plan factoriel.
- $2k$: nombre d’essais du plan en étoile.
- n_0 : nombre d’essais au centre.

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

3.4.3. Qualité du modèle

a. Qualité descriptive du modèle

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

$$0 \leq R^2 \leq 1 \quad (3.6)$$

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

b. Qualité prédictive du modèle :

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

$$-\infty \leq Q^2 \leq 1 \quad (3.7)$$

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

3.4.4. Logiciel MODDE 5.0

Parmi les logiciels utilisés on cite *MODDE* de la société *Umetrics*, qui est spécialisé dans la construction et l'analyse de plans d'expériences. Il permet de bâtir et d'analyser des plans de criblage, en surface de réponse, Taguchi, de mélanges, D-optimaux, des plans multi variés « *Onion Designs* » ainsi que des plans comportant à la fois des composants et des facteurs de procédés. Pour estimer les modèles, il utilise soit la méthode des moindres carrés usuelle (*MLR*) soit la méthode des moindres carrés partiels (*PLS*). Cela permet notamment d'ajuster un modèle reliant les variations de toutes les réponses aux facteurs en prenant en compte la structure de covariances.

Nous avons utilisé ce logiciel sous Windows pour la création et l'évaluation de modèles expérimentaux. Le programme aide l'utilisateur à l'interprétation des résultats et la prévision des réponses. Il calcule les coefficients du modèle mathématique et identifie les meilleures adaptations des facteurs permettant d'optimiser le processus. [60]

3.4.5. Résultats et Discussion

3.4.5.1. Expériences de criblage

Dans cette deuxième partie, les expériences ont été réalisées en prenant en compte les trois paramètres affectant la variation du taux de décoloration à savoir, la longueur d'électrode **L** (en mm), la tension appliquée **V** (en kV) et le débit d'oxygène **Q** (en L/min). Les limites de variation de ces trois facteurs ont été définies par des expériences préliminaires de type « *un facteur à la fois* ».

- Expérience 1. Tension variable **V** (3-6) kV, pour une longueur des électrodes constante **L** = 225 mm et un débit **Q** fixe égale à 5L/min. (figure 3.3)
- Expérience 2. Débit d'oxygène variable **Q** (1-5) L/min, pour une longueur des électrodes constante **L** = 225 mm et une tension égale à 6kV (figure 3.4)
- Expérience 3. Tension constante **V**=6 kV, débit constant **Q**=5 L/min en variant la longueur de 120 à 200 mm. (figure 3.5)

3.4.5.2. Identification du point optimal

L'identification des valeurs optimales de dimensions ont été déterminées en utilisant un plan double composite à faces centrées (CCF) avec **3** facteurs; Il se compose de 8 expériences situées au sommet du cube (points carrés A, B ... H), 6 expériences situés dans les centres des faces du cube (points ronds a, b ... f) et 3 expériences identiques dans le point central M (point étoile). Ainsi, un plan d'expériences CCF avec 3 facteurs comprend (2x17) expériences (figure 3.9). Il faut noter que chaque essai est répété deux fois afin de calculer la

valeur moyenne. Les deux niveaux "max" et "min" sont les limites établies dans la section précédente pour chacune des trois variables (L_{min} , L_{max}), (Q_{min} , Q_{max}) et (V_{min} , V_{max}).

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

$$L_c = (L_{min} + L_{max})/2 = (12 + 20)/2 = 16 \text{ cm} \quad (3.8)$$

$$V_c = (V_{min} + V_{max})/2 = \frac{4 + 6}{2} = 5 \text{ kV} \quad (3.9)$$

$$Q_c = (Q_{min} + Q_{max})/2 = \frac{2 + 4}{2} = 3 \text{ l/min} \quad (3.10)$$

Les résultats des expériences sont donnés dans le **tableau 3.1**. En plus du taux de décoloration (%), la puissance consommée P(W) a été également considérée comme une réponse significative.

Tableau 3.1. Résultats du plan expérimental CCF

Longueur d'électrode L (mm)	Tension V (kV)	Débit d'oxygène Q (l/min)	Taux de décoloration (%)	Puissance consommée (W)
160	4	2	64,8	30,12
200	4	2	69,23	41,40
160	6	2	74,3	43,49
200	6	2	77,73	56,83
160	4	4	64,16	30,12
200	4	4	78,28	41,47
160	6	4	73	43,42
200	6	4	82,81	56,93
160	5	3	70	38,17
200	5	3	77,86	48,63
180	4	3	77,1	31,2
180	6	3	85,94	53,22
180	5	2	66,39	41,98
180	5	4	70,91	41,98
180	5	3	77,1	41,98
180	5	3	74,38	41,98
180	5	3	74,5	41,98

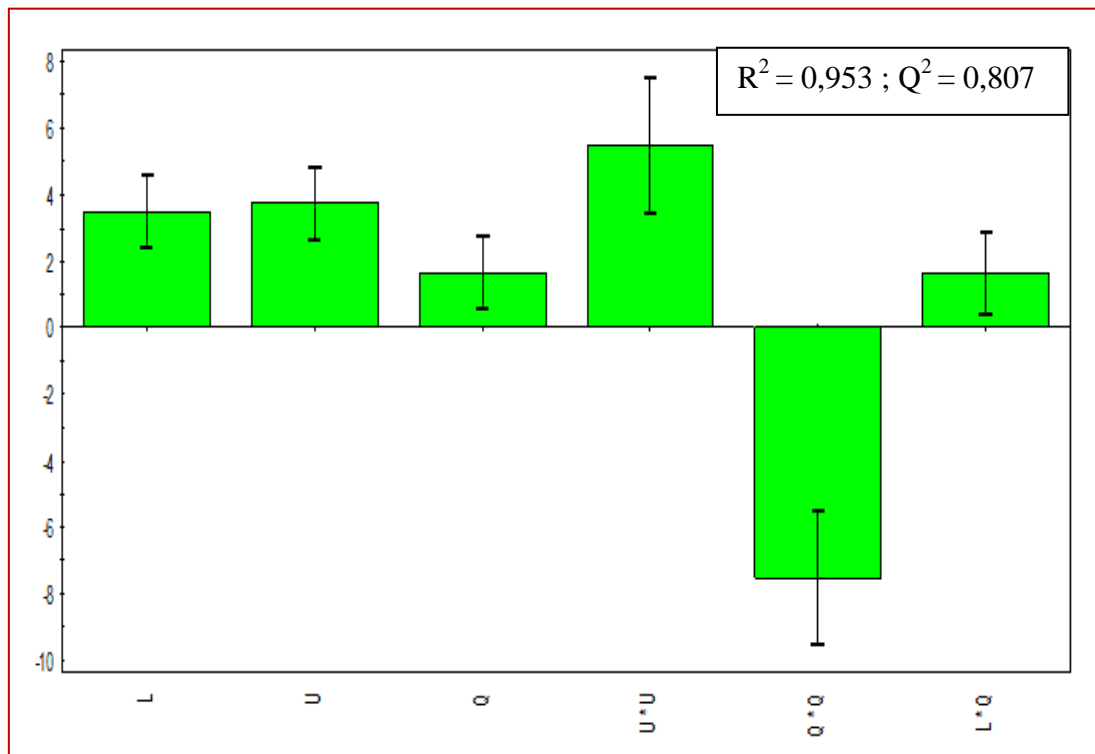
Les modèles mathématiques du taux de décoloration τ et la puissance consommée par le réacteur surfacique d’ozone DBDS4, en *négligeant les effets non significatifs*, proposés par MODDE 5.0 sont montrés par les équations suivantes :

$$\tau = 75,28 + 3,49L^* + 3,75U^* + 1,67Q^* + 5,49U^{*2} - 7,52Q^{*2} + 1,64L^*Q^* \quad (3.11)$$

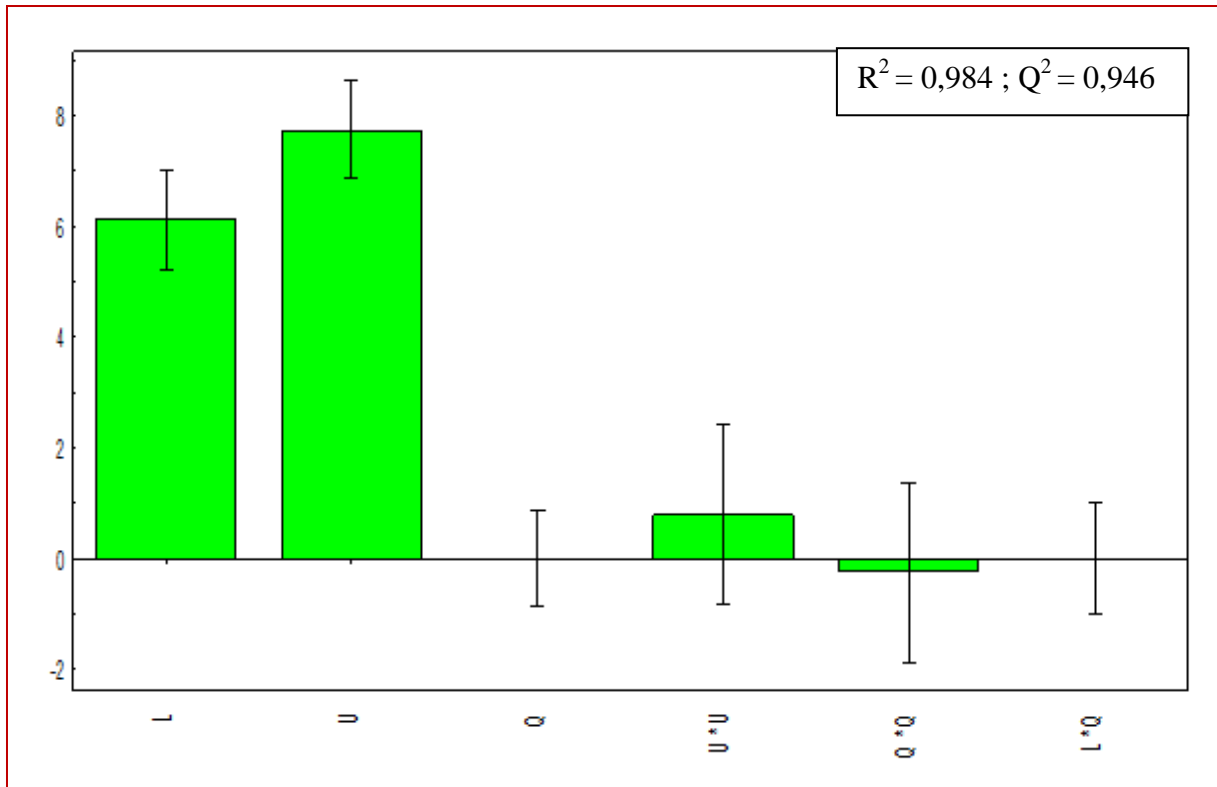
$$P = 2,42 + 6,11L^* + 7,75U^* + 2,03 \cdot 10^{-7}Q^* + 0,80U^{*2} - 0,25Q^{*2} + 1,67 \cdot 10^{-6}L^*Q^* \quad (3.12)$$

Comme les critères statistiques de validation sont proches de l’unité, $R^2 = 0,953$ et $Q^2 = 0,807$ pour le taux de décoloration et $R^2 = 0,984$ et $Q^2 = 0,946$ pour la puissance P, les deux modèles ont été validés et ont été utilisés pour optimiser les facteurs d’entrée afin de trouver un meilleur rendement énergétique.

L’influence des différents facteurs sur les deux réponses sont données par la **figure 3.10**



(a)



(b)

Figure 3.10. Coefficients des modèles obtenus
a) Taux de décoloration et b) Puissance consommée

Selon les résultats obtenus par MODDE 5.0, nous pouvons constater que les effets de la tension, du débit et de la longueur d’électrode sont significatifs pour le taux de décoloration (**figure 3.10 a**). Par contre, seuls les facteurs tension et longueur influent sur la puissance consommée (**figure 3.10 b**).

Les deux histogrammes montrent que le taux de décoloration augmente avec les trois facteurs à savoir la tension, le débit d’oxygène ainsi que la longueur.

Concernant la puissance consommée, elle est proportionnelle à la tension et la longueur d’électrode.

D’un autre côté, les résultats obtenus à partir des modèles mathématiques indiquent une interaction significative entre la longueur L et le débit Q pour le taux de décoloration.

Les tracés de contours obtenus avec MODDE 5.0 sont représentés à la **figure 3.11**. Ces courbes illustrent que le taux de décoloration est très influencé par les facteurs tension et longueur.

On peut conclure aussi que l’augmentation de la longueur est accompagnée par une légère élévation du taux de décoloration, contrairement à la puissance qui subit une grande augmentation.

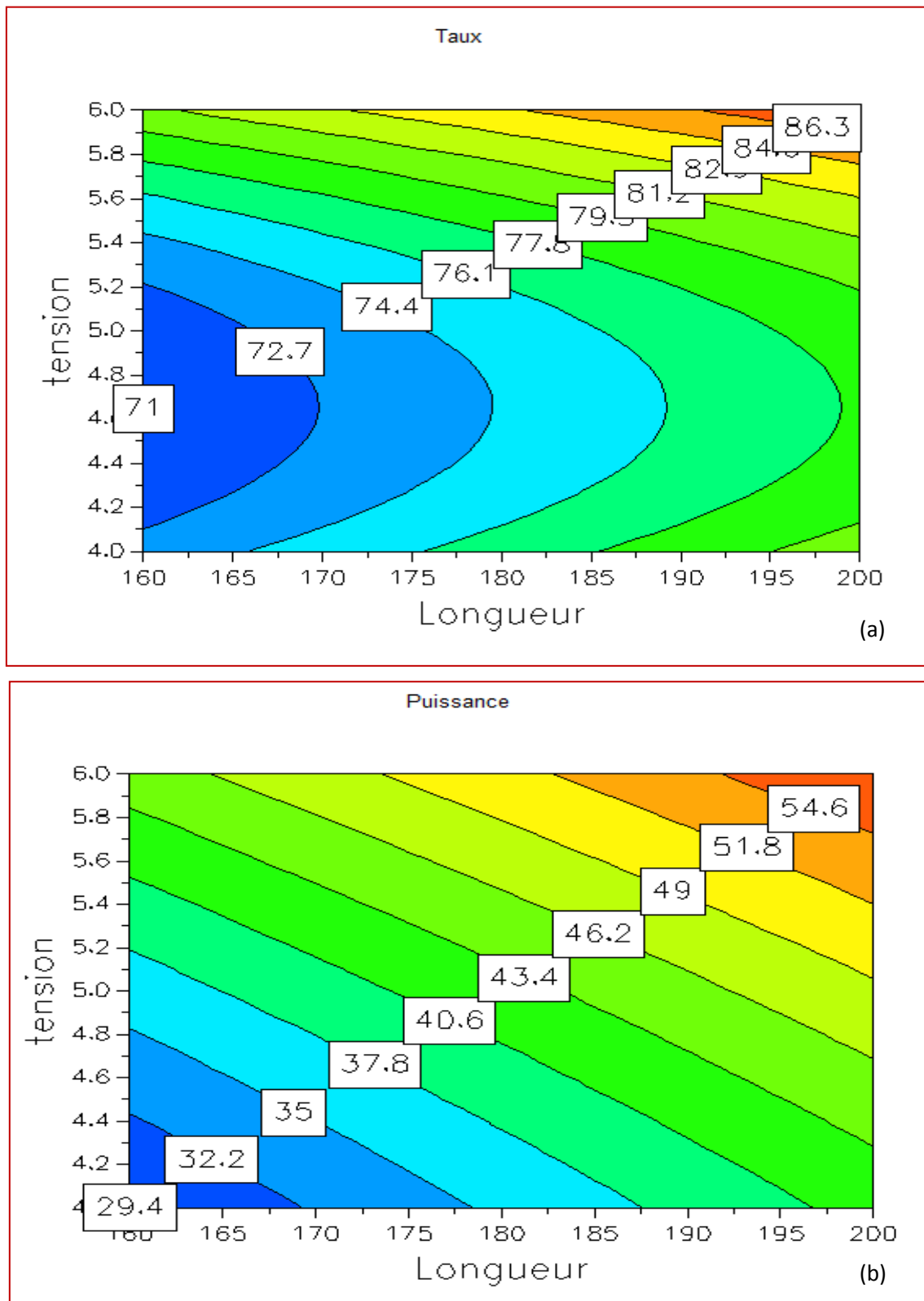


Figure 3.11. Contours iso-réponses
 a) Taux de décoloration et b) Puissance consommée.

Le logiciel utilisé offre la possibilité de trouver les valeurs optimales des facteurs pour avoir un meilleur taux de décoloration avec une faible puissance consommée.

Selon ce modèle, l'optimum du processus, en maximisant le taux de décoloration est obtenue pour $V = 6$ kV, $L = 200$ mm et $Q = 3.4$ L/min, correspondant à un taux de décoloration de 87.80 % et une puissance consommée de 57.04 W (figure 3.12.a).

Toutefois, si la consommation d'énergie est considérée comme une réponse plus importante que le taux de décoloration, l'optimiseur bascule vers un autre point de fonctionnement en minimisant la puissance consommée qui a pour facteurs d'entrée $V = 4$ kV, $L = 160$ mm et $Q = 4$ L/min, pour ce point, on obtient $\tau = 65,87$ % et $P = 29,10$ W (figure3.12.b).

Selon ces résultats, en réduisant la longueur du générateur d'ozone par plus de 40mm (de 200 mm à 160 mm) le taux de décoloration diminue de moins de 25 %, pour une diminution de la puissance consommée d'environ -50%.

Les résultats obtenus prouvent qu'il n'est pas recommandé d'utiliser des tubes d'ozone de grande longueur et il est plus approprié d'utiliser plusieurs générateurs de longueur plus courte.

	Response	Criteria	Weight	Min	Target	Max
1	Taux	Maximize	1	83,4472	85,3017	
2	Puissance	Exclude				

Iteration: 5001 Iteration slider:

	1	2	3	4	5	6	7	8
	Longueur	tension	Débit	Taux	Puissance	T/P	iter	log(D)
1	200	4,0098	3,2066	80,6611	41,6472	1,9675	5000	0,7967
2	200	4	3,2236	80,7331	41,5848	1,9716	5001	0,7831
3	199,999	6	3,4608	87,8006	57,0453	1,4842	719	-10
4	200	6	3,6	87,1515	57,0079	1,472	0	-10
5	199,996	6	3,2838	88,2036	57,0774	1,4925	464	-10
6	200	6	3,6	87,1515	57,0079	1,472	0	-10
7	194,403	6	3,268	87,1161	55,3689	1,5391	470	-10
8	188	6	3	85,7725	53,4287	1,5936	328	-10

(a)

	Response	Criteria	Weight	Min	Target	Max
1	Taux	Exclude				
2	Puissance	Minimize	1		27,7202	30,494

Iteration: 5000		Iteration slider: <input type="text"/>						
	1	2	3	4	5	6	7	8
	Longueur	tension	Débit	Taux	Puissance	T/P	iter	log(D)
1	160	4	4	65,8791	29,1071	2,1646	1547	-0,602
2	160,036	4,0004	2,2	68,544	29,2122	2,2494	1936	-0,5386
3	160,618	4,0003	2	65,8849	29,2983	2,2002	2052	-0,4899
4	160	4	3,8	68,5824	29,1989	2,2161	4049	-0,5464
5	160,001	4,0001	2,4961	71,4545	29,2976	2,2943	5000	-0,4903
6	160	4	2	65,8296	29,1071	2,2069	1547	-0,602
7	160	4	4	65,8791	29,1071	2,1646	1547	-0,602
8	160	4	3,9944	65,9635	29,1102	2,1662	1854	-0,6001

(b)

Figure .3.12. Résultats du programme d'optimisation de MODDE 5.0, (a) maximisation de la concentration d’ozone, (b) minimisation de la puissance consommée.

3-5. Décoloration des eaux par le générateur d’ozone optimisé

Pour tester l’efficacité du générateur à dimension optimale, une partie expérimentale regroupant un ensemble d’expériences de décoloration d’eau est mise en place, en effectuant des mesure de taux décoloration à l’aide d’un **Spectrophotomètre UV** de l’eau avant et après traitement.

Toutes les expériences ont été faites dans les mêmes conditions de température et d’humidité, en utilisant 10 litres d’eau de robinet circulant dans un *circuit fermé*.

Trois manipulations ont été effectuées pour analyser la décoloration d’eau colorée contaminée par différents colorants :

- Eau contaminée par un colorant alimentaire ;
- Eau contaminée par un colorant textile ;
- Eau usée de l’unité de textile.

3 .5.1. Traitement de l’eau contaminée par colorant alimentaire

Nous avons essayé le procédé d’ozonation sur 10 L d’un mélange d’eau de robinet avec un colorant alimentaire. Nous mettons le procédé en marche et prélevons un échantillon de l’eau avant le traitement ensuite, après des intervalles de 2 min de traitement. Les résultats obtenus sont présentés dans la **figure 3.13**.

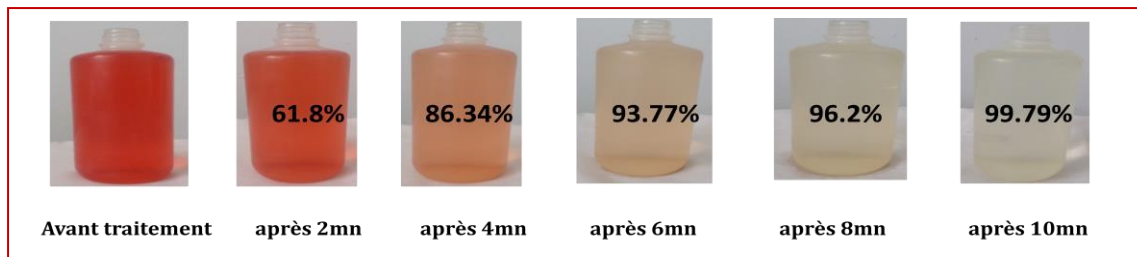


Figure 3.13 .Décoloration d’une eau infectée par un colorant alimentaire.

Les résultats sont très visibles lorsqu’on met côté-à-côté les échantillons, en remarquant une décoloration visible de l’eau après la deuxième minute, ainsi qu’une disparition totale de la couleur après 10 mn de traitement.

3.5.2. Traitement de l’eau contaminée par un colorant textile

Dans ce qui suit, on a opté pour l’utilisation du générateur d’ozone pour un traitement de la même eau mais contaminée par un colorant industriel textile de type : **Rouge Erionyl RS**, en gardant le même volume de 10 L. Nous mettons le procédé en marche et prélevons un échantillon de l’eau avant le traitement, et après une durée de 15 -30- 45 mn et 1h respectivement. ([figure3.14](#))



Figure 3.14. Décoloration d’une eau infectée par un seul colorant textile.

Les résultats de traitement montrent que ce procédé est bien efficace, l’eau est assez claire par rapport à son état initial et la couleur a presque totalement disparu.

3.5.3. Traitement de l’eau issue de l’industrie textile

Du moment que l’ozone est employé aussi pour le traitement des eaux colorées ayant un seuil de pollution élevé, dans cette expérience nous allons montrer que le traitement de l’eau par l’ozone peut être appliqué dans les stations d’épuration des eaux usées industrielles.

Nous avons traité un échantillon de 10L d'eau colorée issue d'une unité textile et qui comprend plusieurs couleurs à la fois. Les résultats de la décoloration sont montrés dans la **figure 3.15**.

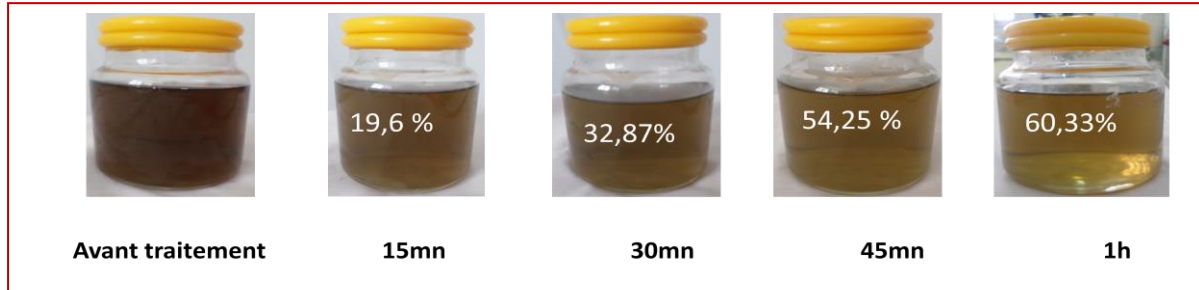


Figure 3.15. Décoloration d'une eau infectée par un seul colorant de textile.

3.6 Conclusion :

A partir des expériences réalisées, il est recommandé d'utiliser des réacteurs à DBD surfacique à diamètre et longueur d'électrode réduits et avec un intervalle de circulation du gaz assez petit pour avoir des résultats satisfaisants en termes de génération d'ozone ainsi qu'une réduction de la puissance consommée.

Les résultats trouvés montrent que la décoloration des eaux par l'ozone est une technique intéressante pour permettre la réutilisation de l'eau traitée pour le lavage, l'irrigation ou la lutte contre les incendies. Ces résultats désignent que le degré élevé de pollution et de contamination de l'eau (couleur) nécessite un temps de contact adéquat qui doit être assuré afin que les réactions chimiques soient complètes c'est-à-dire une durée de traitement plus satisfaisante.

La conception d'un nouveau générateur hybride utilisant une décharge mixte (surfacique- volumique) pour le traitement des eaux fera l'objet du chapitre suivant.

Chapitre 4

Etude et développement
d'un générateur d'ozone
hybride à DBD mixte
(surfactive-volumique)



4

DEVELOPPEMENT ET ETUDE D'UN GENERATEUR D'OZONE HYBRIDE A DBD MIXTE (SURFACIQUE-VOLUMIQUE)

4.1. Introduction

L'ozone (O_3) est un germicide oxydant puissant et efficace. Il possède un potentiel de désinfection beaucoup plus élevé que le chlore et d'autres désinfectants, ainsi, il est largement utilisé dans la désinfection de l'air et de l'eau, des produits chimiques et certaines applications pharmaceutiques [61-63].

Les décharges à barrière diélectrique (DBD) sont considérées comme décharges silencieuse qui sont largement utilisées pour la production d'ozone et dans plusieurs autres applications telles que le traitement de surfaces, lampes à DBD et dans le domaine biomédicale [64-67].

Il existe deux configurations différentes de réacteurs à DBD: décharge volumique [68-73] et surfactive [74-81]. Actuellement, la plupart des générateurs d'ozone qui sont utilisés dans l'industrie pour traitement des eaux sont à DBD volumique, tandis que les générateurs d'ozone à DBD surfactive sont rarement exploités.

En plus générateurs d'ozone à DBD volumique et surfactive, les modèles hybrides dans lesquels les deux types de décharges se produisent simultanément sont développés et analysés dans le présent chapitre.

Par exemple, *Nomoto et al.* (1995) ont proposé un modèle de générateur hybride avec une spirale électrode reliée à la haute tension avec une fréquence d'alimentation industrielle (60 Hz) [75].

Dans cette partie de la thèse, nous optons pour une analyse expérimentale comparative entre un nouveau générateur d'ozone hybride à décharge électrique mixte (surfactive-volumique) et les générateurs cités dans les chapitres précédents (volumique et surfactive).

4.2. Structure et dimensions des différents modèles des générateurs d'ozone

4.2.1. Générateur d'ozone à DBD volumique

Cette géométrie est représentée dans le chapitre 2 (*section 2.2.1*) avec un intervalle de décharge légèrement inférieur à **1 mm** généralement utilisé pour ce type de décharge, l'électrode interne reliée à la haute tension est en adhésif aluminium d'une longueur de **130 mm**. L'électrode de masse est un cylindre en acier inoxydable d'une longueur de **200 mm** et un diamètre intérieur de **28 mm**. La barrière diélectrique est un cylindre en verre avec une longueur de **200mm** et un diamètre intérieur de **23 mm**. Dans ce type de réacteur la décharge s'effectue au niveau de l'intervalle qui sépare l'électrode de masse et la barrière diélectrique.

4.2.2. Générateur d'ozone à DBD surfactive :

Dans la conception de ce type de réacteur, on utilise la même barrière diélectrique utilisée précédemment où l'électrode de masse est le même adhésif aluminium utilisé pour le réacteur volumique collée sur la surface extérieure de la barrière. L'électrode haute tension est un grillage cylindrique en acier inoxydable d'une épaisseur de **0,75 mm** et une surface de **1mm²** de la maille élémentaire. Cette dernière doit être en contact avec la surface interne du tube en verre. Dans ce type de générateur la décharge, s'effectue au niveau de la surface du grillage.

4.2.3. Générateur d'ozone à DBD mixte surfactive- volumique (hybride) :

Le réacteur hybride est similaire du générateur volumique dont l'adhésif aluminium est remplacé par le même grillage utilisé dans la configuration en surface (**figure 4.1**).

Dans cette géométrie, comme son nom indique, les décharges surfactives et volumiques sont générées simultanément. La première est au niveau de la surface de l'électrode haute tension ainsi que la deuxième qui s'effectue dans l'intervalle de décharge.

Ce type est mené de quatre ouvertures, deux pour chaque type de décharge pour la canalisation du gaz.

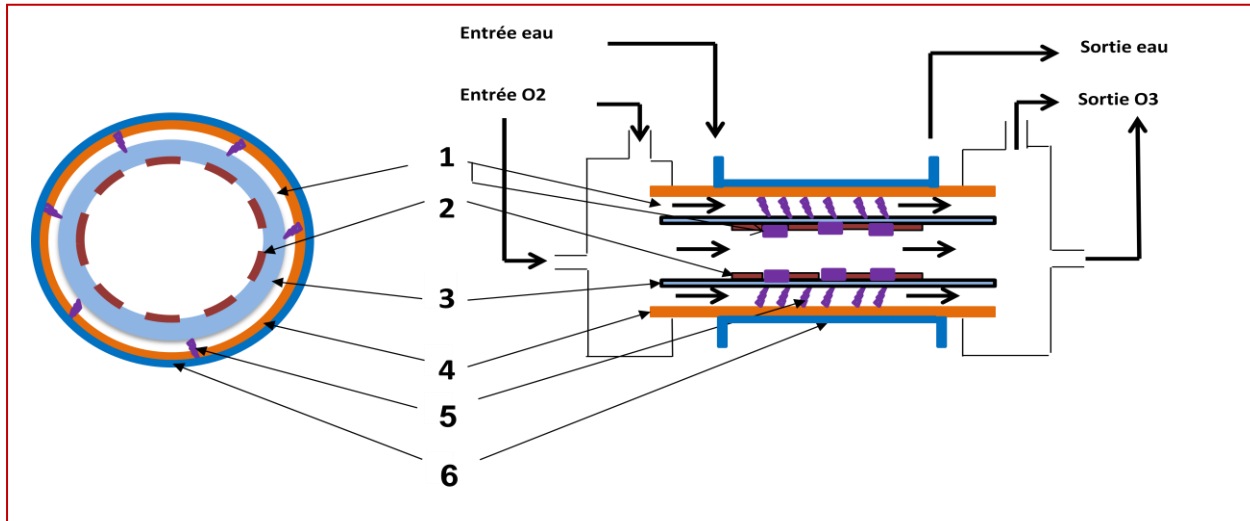
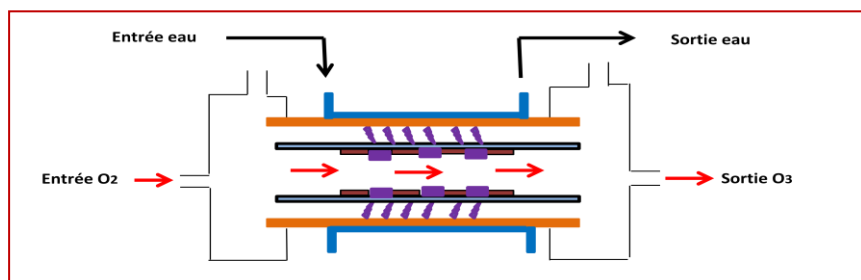


Figure 4.1. Schéma descriptif du réacteur d'ozone à DBD hybride (DBDH)

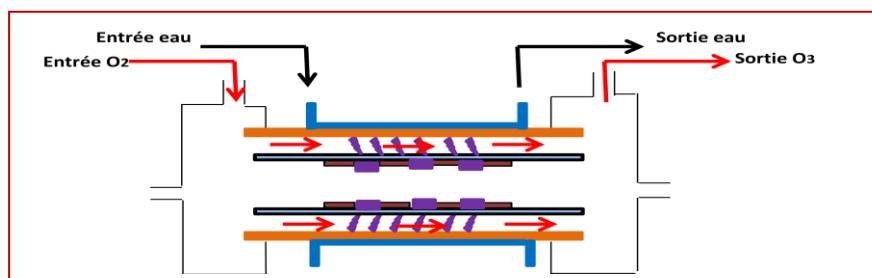
- 1- Zones de décharge, 2- Electrode haute tension, 3- Barrière diélectrique, 4- Electrode de masse, 5- Plasma, 6- circuit de refroidissement.

Le générateur d'ozone de configuration hybride comporte cinq possibilités pour la circulation du gaz (**figure 4.2**) :

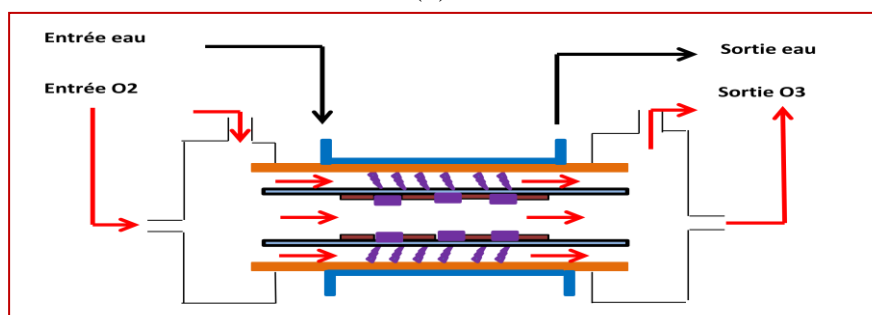
- DBDH-S : la totalité du gaz circule seulement dans le tube en verre via la décharge en surface (**figure 4.2a**).
- DBDH-V : la totalité du gaz circule seulement dans l'intervalle entre la face extérieure de la barrière et la partie intérieure de l'électrode de masse à travers la décharge silencieuse (**figure 4.2b**).
- DBDH-S//V : le gaz traverse simultanément les deux types de décharge en parallèle (**figure 4.2c**).
- DBDH-SV : le gaz est injecté dans le tube afin de rencontrer la décharge en surface, ensuite, il sera réinjecté dans l'intervalle de décharge volumique (**figure 4.2d**).
- DBDH-VS : le gaz traverse en premier lieu la décharge volumique puis surfacique en deuxième étape (**figure 4.2.e**).



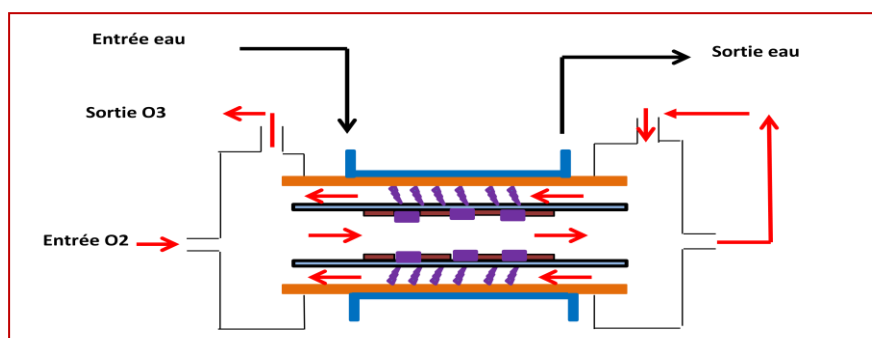
(a)



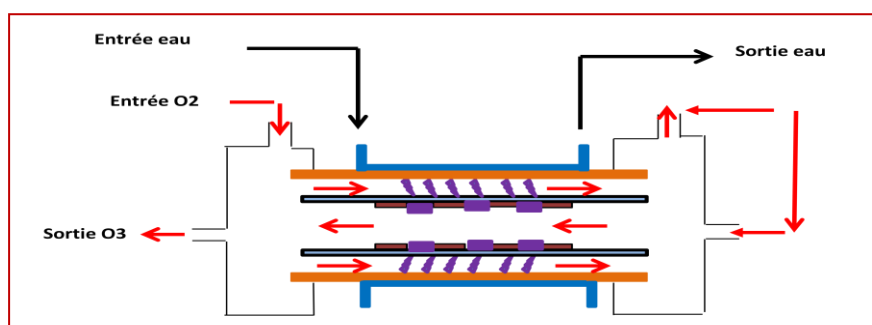
(b)



(c)



(d)



(e)

Figure 4.2. Différentes configurations de la circulation du gaz dans l'ozoniseur hybride.

4.3. Etude des caractéristiques électriques des différents réacteurs d'ozone :

Dans cette section nous nous intéresserons à l'étude du comportement électrique des générateurs d'ozone qui consiste à visualiser le courant de décharge ainsi que la mesure de la puissance électrique consommée.

4.3.1. Moyens expérimentaux et techniques de mesure

Le schéma global du dispositif de caractérisation électrique que nous avons utilisé est illustré sur la **figure 4.3**.

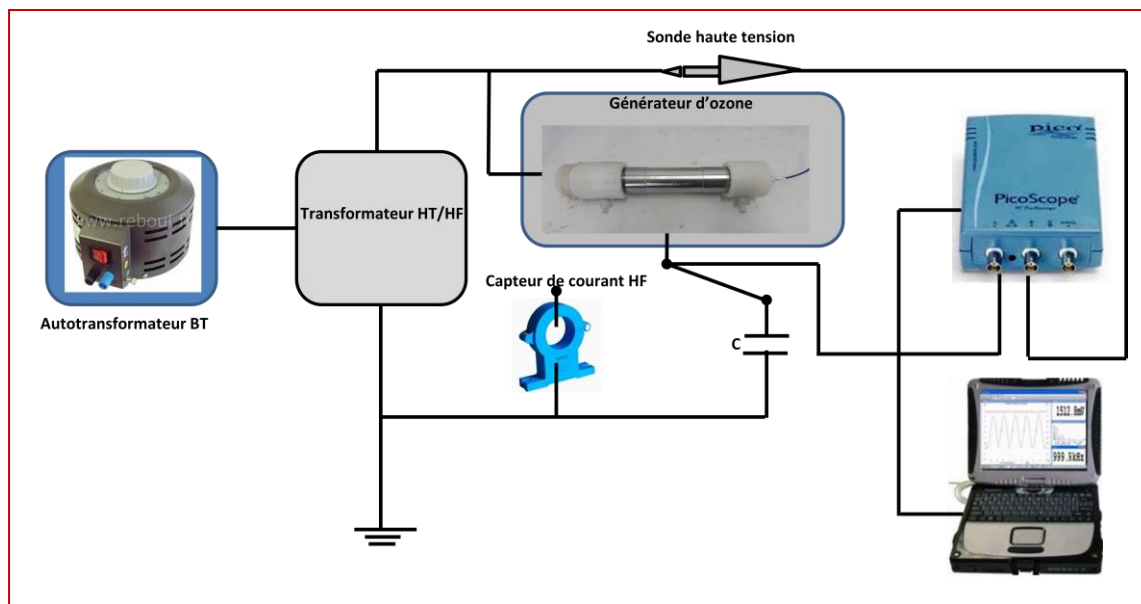


Figure 4.3. Schéma du dispositif expérimental utilisé pour la caractérisation électrique.

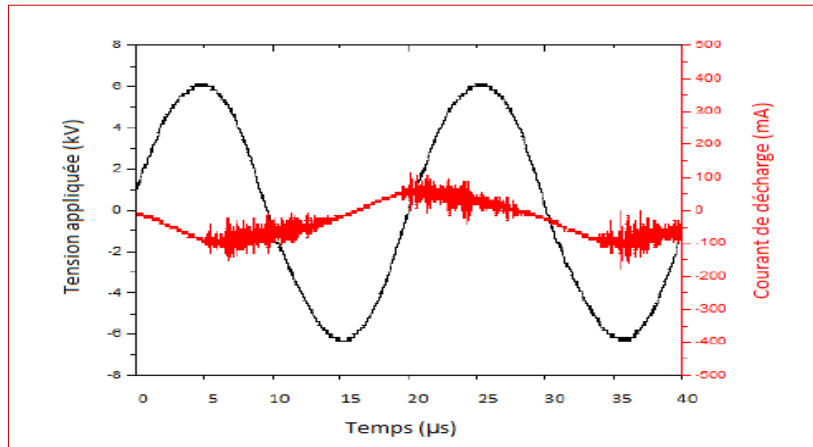
Un autotransformateur BT ajustable alimente un transformateur HT/HF pour délivrer un voltage de 0 à 7kV avec une fréquence de résonance qui varie entre 50 Hz et 50 kHz, qui devrait être appliquée aux bornes du générateur.

Cette haute tension est mesurée via une sonde haute tension (TEKTRONIX P6015A, 1000 :1), le courant de décharge est mesuré à travers un capteur de courant à effet hall d'une bande passante de 10MHz (Pearson Current Monitor Model 410). Ces deux signaux sont visualisés via un pico scope numérique (Picoscope 3204B-AV700/155) avec deux ports USB reliés à un ordinateur.

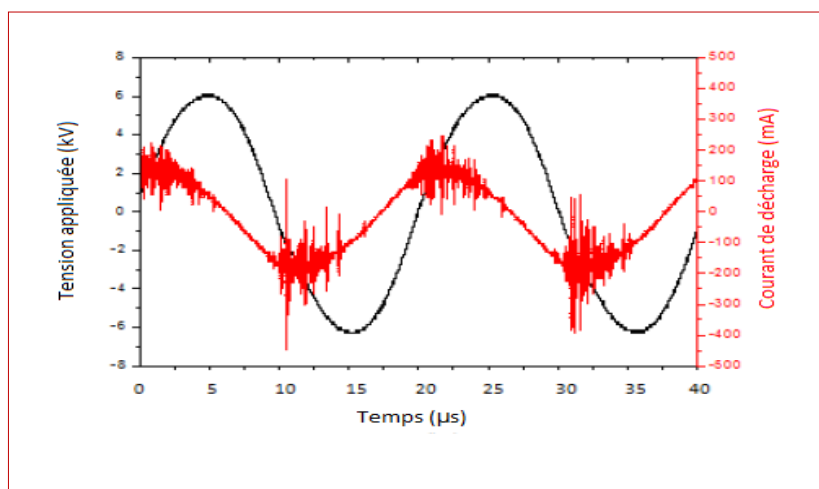
L'acquisition des signaux associés aux grandeurs électriques étudiées a permis d'obtenir les différentes formes d'onde correspondantes. Ainsi nous avons pu relever les formes d'ondes typiques de la tension appliquée et du courant de décharge.

Les formes d'ondes du courant et de la tension sont enregistrées sur plusieurs périodes avec un total de 100000 points. Les formes d'onde de tension sont enregistrées sur la voie 1 du oscilloscope tandis que celles du courant sont acquises sur la voie 2.

Les diagrammes de tension et de courant pour les trois réacteurs d'ozone cités ci- dessus sont illustrés dans la **figure 4.4**



(DBDS)



(DBDV)

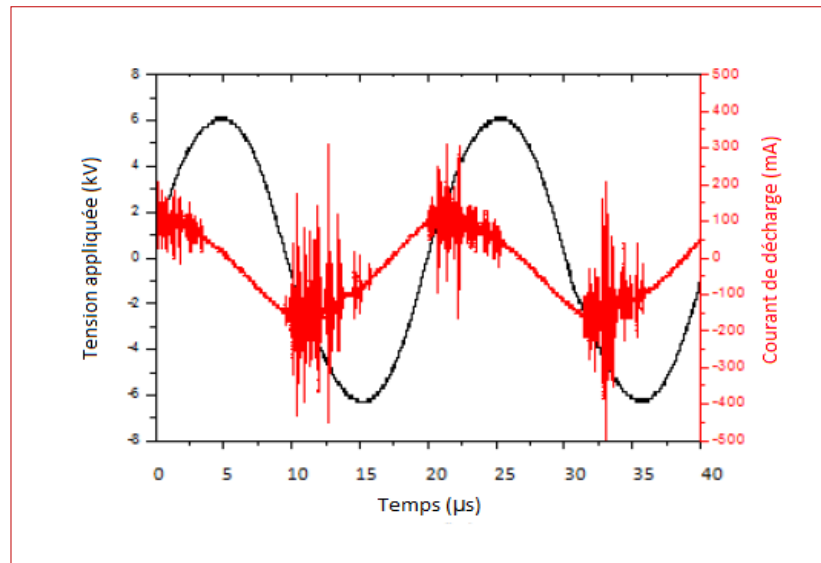


Figure 4.4. Caractéristique du courant de décharge et de la tension pour les trois générateurs d'ozone.

En analysant les trois diagrammes des courants, nous constatons que les courants de décharge sont similaires pour les réacteurs d'ozone à DBD volumique et hybride dans leurs formes et leurs valeurs d'amplitudes avec une légère supériorité pour le réacteur à décharge hybride.

Par contre la densité des microdécharges dans la géométrie surfactive est supérieure aux deux autres configurations avec une amplitude réduite.

Le **tableau 4.1** illustre l'analyse du courant de décharge pour les trois configurations des réacteurs d'ozone pour la même tension appliquée.

Tableau 4.1. Valeurs des pics des courants de décharge pour différents réacteurs d'ozone

	DBDS		DBDV		DBDH	
	Positive	Négative	Positive	Négative	Positive	Négative
Pic de courant (mA)	80	125	200	300	250	300

4.3.2. Calcul de la puissance électrique consommée

Il existe deux façons de calculer la puissance consommée par la décharge. La première est la méthode du produit instantané décrite ci-dessous, tandis que la deuxième est la méthode de Lissajous qui permet de déterminer la puissance consommée à partir de la caractéristique

charge-tension du circuit. Des études ont montré que ces deux méthodes donnent des résultats assez similaires. [13]

La puissance est calculée en faisant le produit de la tension appliquée par le courant de décharge. Il s'agit d'une valeur moyenne donnée par la relation ci-après :

$$P = \frac{1}{nT} \int_0^{nT} V(t).I(t)dt \quad (4.1)$$

Avec,

P : puissance moyenne consommée par le réacteur (W)

T : période du signal (s)

V(t) : tension appliquée au générateur (V)

I(t) : courant de décharge (A)

n : nombre de périodes entières du signal.

Cette méthode consiste à enregistrer plusieurs périodes du courant et de la tension avec une acquisition mémoire du oscilloscope qui vaut 100000 points/voie.

Après avoir multiplié chaque entité par les coefficients adéquats (1000 pour la sonde de tension et 10 pour le capteur de courant), on réalise le produit. On effectue la moyenne statistique du résultat obtenu, ce qui nous donne la valeur de la puissance moyenne.

Une deuxième méthode peut être utilisée pour évaluer la puissance consommée qui consiste à placer une capacité en série d'une valeur de 22 nF avec le générateur d'ozone et visualiser les caractéristique tension- charge (courbe de Lissajous).

L'énergie consommée dans une période est évaluée en calculant l'aire du parallélogramme par l'équation suivante :

$$W = \frac{1}{nT} \int_0^{nT} V(t).CdV_c = \frac{1}{nT} \int_0^{nT} V(t).dq(t) = \oint V.C.dV_c = \oint V.dq \quad (4.2)$$

Avec :

T : période de la tension appliquée (S).

q: la charge transmise par le réacteur (C).

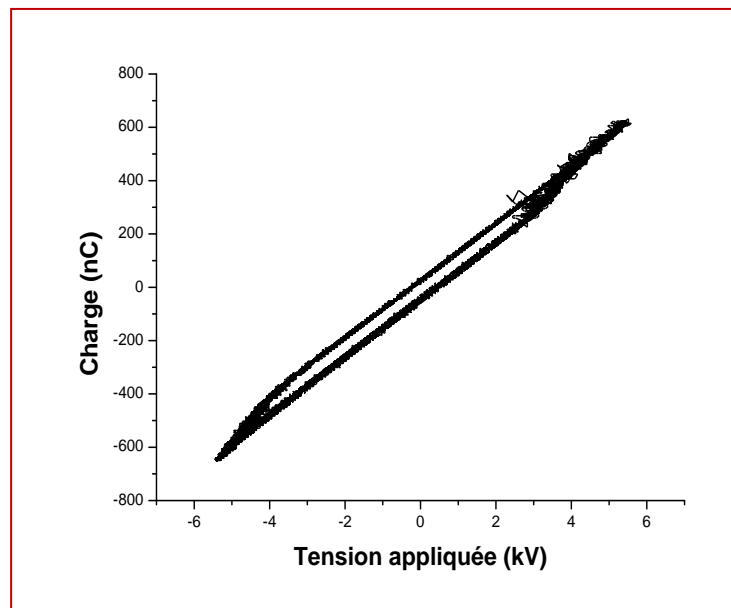
V_C : tension aux bornes de la capacitance (V).

La puissance consommée par le réacteur se calcule en multipliant l'énergie appropriée par la fréquence de résonance du système transformateur générateur d'ozone.

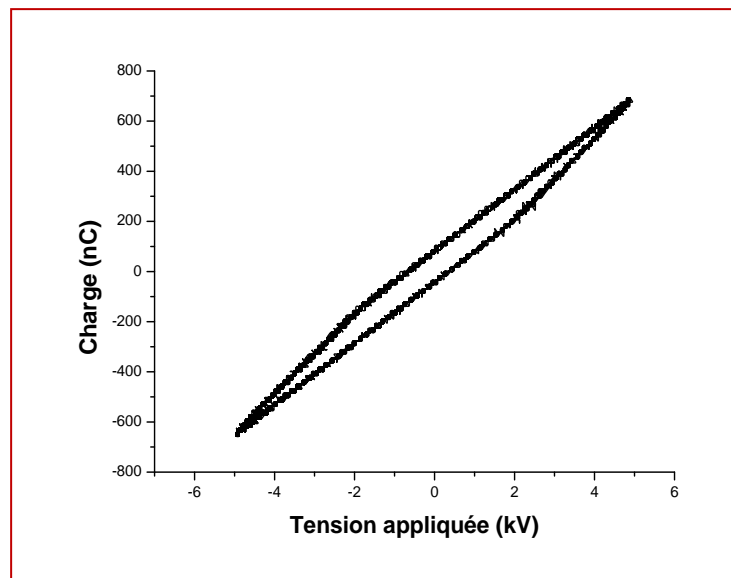
$$P = W.f \quad (4.3)$$

Où f est la fréquence du signal appliqué (Hz)

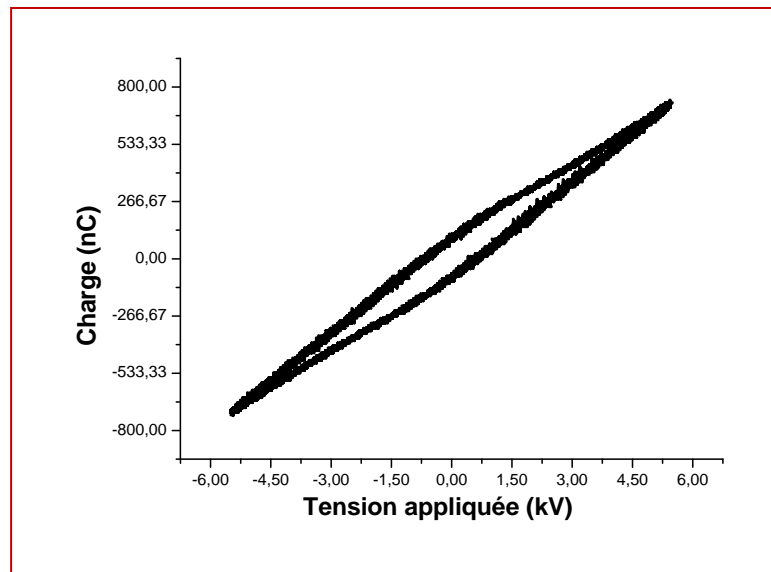
La **figure 4.5** illustre les courbes de Lissajous pour différents générateurs d'ozone sous une tension maximale de 6 kV. En calculant l'air des trois courbes, on peut déduire que l'énergie consommée pendant une période est de 0,755 mJ pour la configuration surfactive et 0,797 mJ pour le réacteur à DBD volumique 0,848 mJ pour le réacteur hybride. En multipliant ces valeurs d'énergie par la fréquence appropriée, la puissance consommée égale à 37.79 W, 39.85 W et 42.44 W pour les trois configurations surfactive, volumique et hybride respectivement.



DBDS



DBDV



DBDH

Figure 4.5. Courbe de Lissajous des trois réacteurs à tension maximale

La **figure 4.6** englobe les puissances consommées pour les trois configurations des générateurs d'ozone.

Les courbes de la puissance électrique consommée en fonction de la tension montrent que la puissance augmente avec la tension avec une variation quasi linéaire dans les trois configurations. Nous remarquons, d'une part que pour les faibles tensions la configuration surfacique est plus gourmande en termes de puissance, d'autre part au delà de 5 kV, la puissance électrique consommée dans la configuration hybride est supérieure à celle consommée dans les configurations volumique et surfacique.

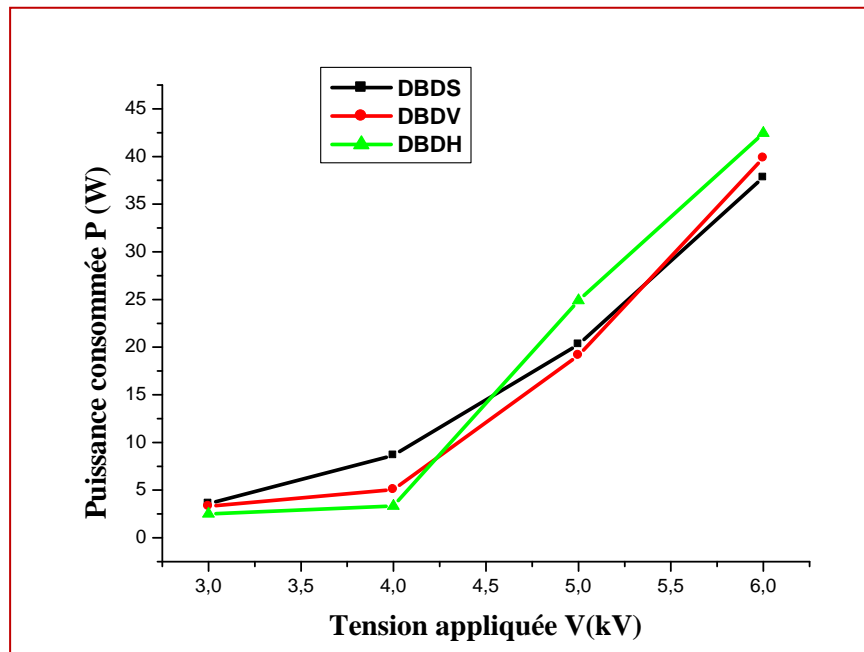


Figure 4.6. Puissance consommée en fonction de la tension appliquée, pour les trois configurations.

4.4. Concentration d'ozone pour les trois modèles des générateurs d'ozone

Afin de connaître l'efficacité de chaque réacteur en termes de production d'ozone ainsi que la décoloration des eaux, on a utilisé un moniteur d'ozone **106-H** pour mesurer la concentration d'ozone C_{O_3} en g/m^3 en fonction de temps, tel qu'il est illustré dans la figure 4.7.

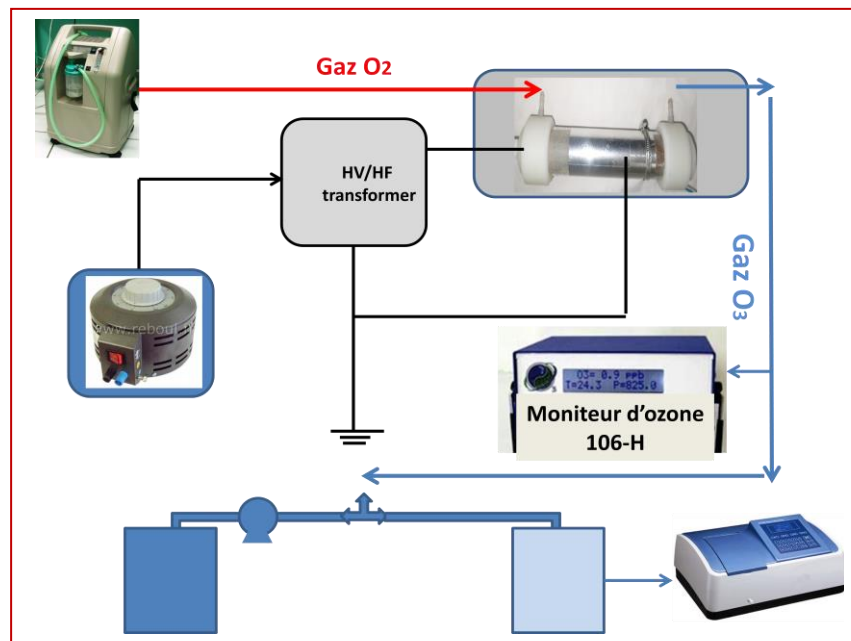


Figure 4.7. Dispositif utilisé pour la mesure de la concentration d'ozone

Toutes les manipulations sont faites dans les mêmes conditions standards de la température (25⁰C-30⁰C) et d'humidité (60%-75%) et un débit d'oxygène constant de **1 L/min**. Chaque mesure est effectuée deux à trois fois afin de prendre la valeur moyenne.

4.4.1. Influence du sens d'écoulement du gaz sur la concentration d'ozone dans le générateur hybride

Dans cette partie nous optons pour la variation de la tension d'alimentation et son impact sur la concentration d'ozone dans le réacteur hybride pour différents configurations de la circulation du gaz citée auparavant.

Les résultats obtenus et illustrés dans la **figure 4.8** montrent que le taux de dégradation de la couleur (*calculé par la formule 2.1 g.2.3*) augmente avec la tension appliquée, quel que soit le chemin d'écoulement de gaz dans le réacteur à DBD hybride.

En outre, à une tension appliquée donnée, le taux de décoloration est plus élevé lorsque le gaz circule uniquement à travers la décharge surfactive (S-DBDH) comparativement à l'écoulement via la décharge en volume (V-DBDH).

En plus, nous constatons que le modèle hybride est plus efficace en termes de production d'ozone, en particulier dans le cas où le gaz passe en premier par la DBD volumique.

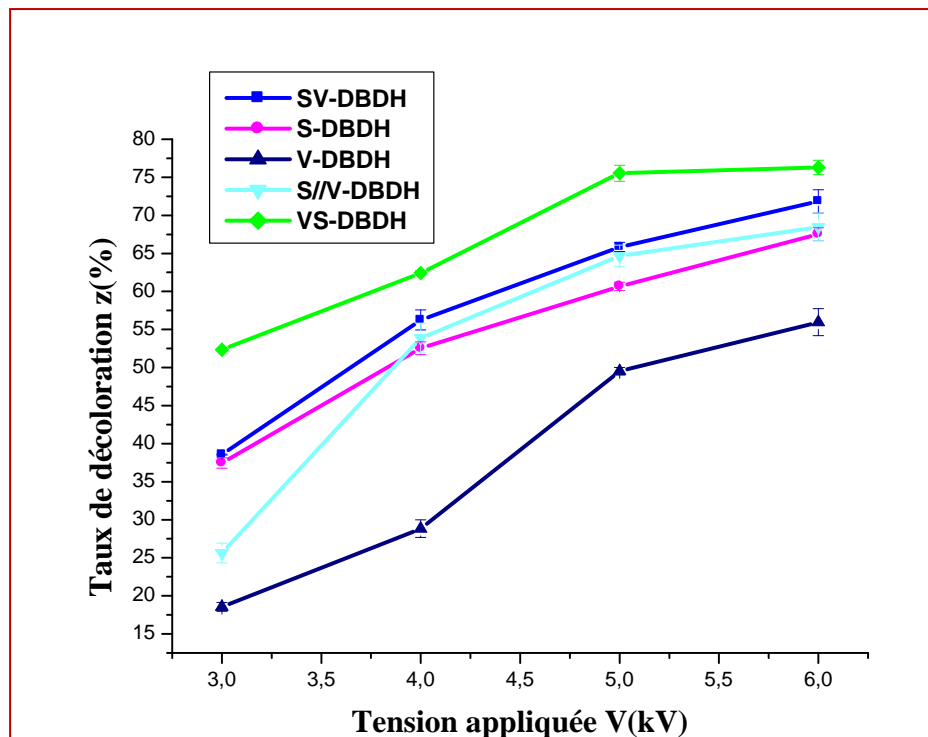


Figure 4.8. Taux de décoloration en fonction de la tension pour différentes configurations d'écoulement du gaz dans le réacteur hybride ($Q_{O_2}=5$ L/min)

4.4.2. Comparaison entre les performances du générateur hybride, surfactive et volumique

L'objectif des travaux réalisés dans cette section est d'établir une comparaison entre le nouveau générateur hybride et les deux autres à décharge volumique et surfactive.

Le même débit d'oxygène est injecté dans les trois réacteurs en gardant les mêmes conditions expérimentales, en variant la tension d'alimentation appliquée sur les trois modèles. Les résultats des expériences sont montrés dans la **figure 4.9**.

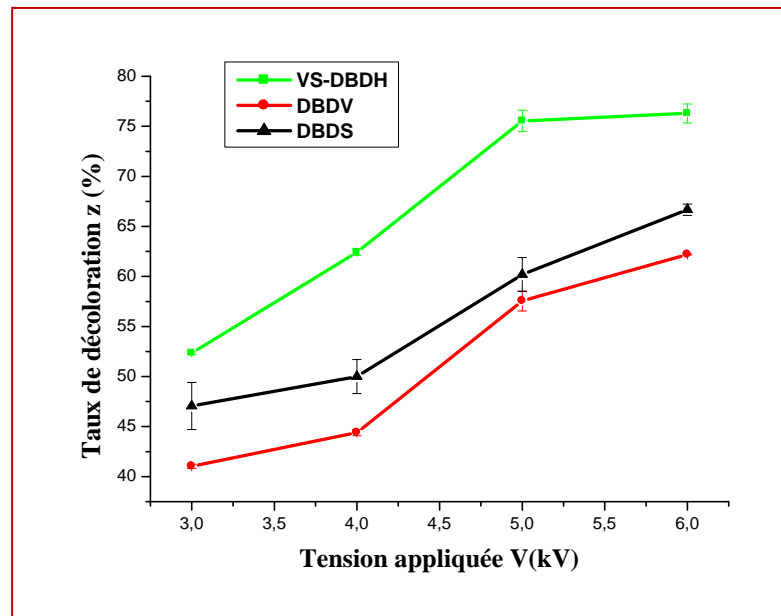


Figure 4.9. Taux de décoloration en fonction de la tension pour trois géométries des réacteurs d'ozone ($Q_{O_2}=5L/min$)

Selon la tension appliquée pour les trois réacteurs, les résultats indiquent que la configuration en série VS-DBDH du générateur hybride est supérieur aux modèles DBDS et DBDV en termes de génération d'ozone. Par exemple, pour une tension $V = 5$ kV donnée, le taux de décoloration est égal à 76 % pour DBDH, 63 % pour DBDS et 58% pour le générateur volumique DBDV.

4.4.3. Etude comparative de la décharge surfactive entre les modèles hybride S-DBDH et surfactive DBDS

Cette partie des expériences est consacrée à l'étude comparative de la décharge surfactive dans le nouveau réacteur hybride **S-DBDH** (en faisant circuler l'oxygène à travers la

DBD surfactive uniquement) et la décharge surfactive du modèle surfactive pur (DBDS). Les résultats obtenus sont présentés dans la **figure 4.10**.

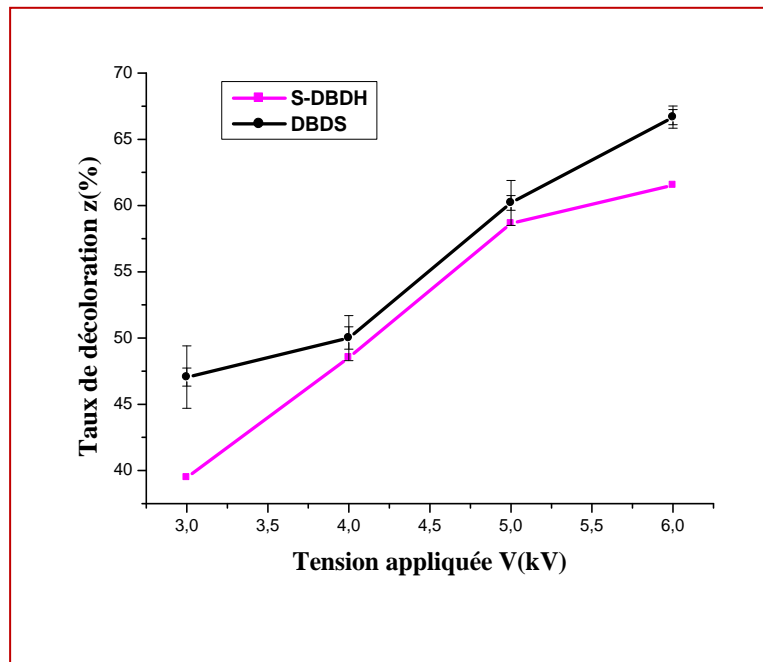


Figure 4.10. Taux de décoloration en fonction de la tension générée par la décharge surfactive des modèles S-DBDH et DBDS

D'après la courbe ci-dessus, nous constatons que la décharge en surface du générateur à DBD surfactive est supérieure à celle générée par le réacteur hybride, cette différence est due à l'existence de la décharge volumique au niveau l'intervalle entre les deux électrodes dans la configuration hybride.

4.4.4. Etude comparative de la décharge volumique entre les modèles hybride V-DBDH et volumique DBDV

Dans ce qui suit, nous optons pour une comparaison entre la décharge silencieuse créée par le générateur purement volumique (DBDV) et celle générée par le réacteur hybride lorsque le gaz circule seulement à travers l'intervalle de la décharge volumique (V-DBDH). Les mêmes conditions de travail ont été menées, les résultats obtenus sont illustrés dans la **figure 4.11**.

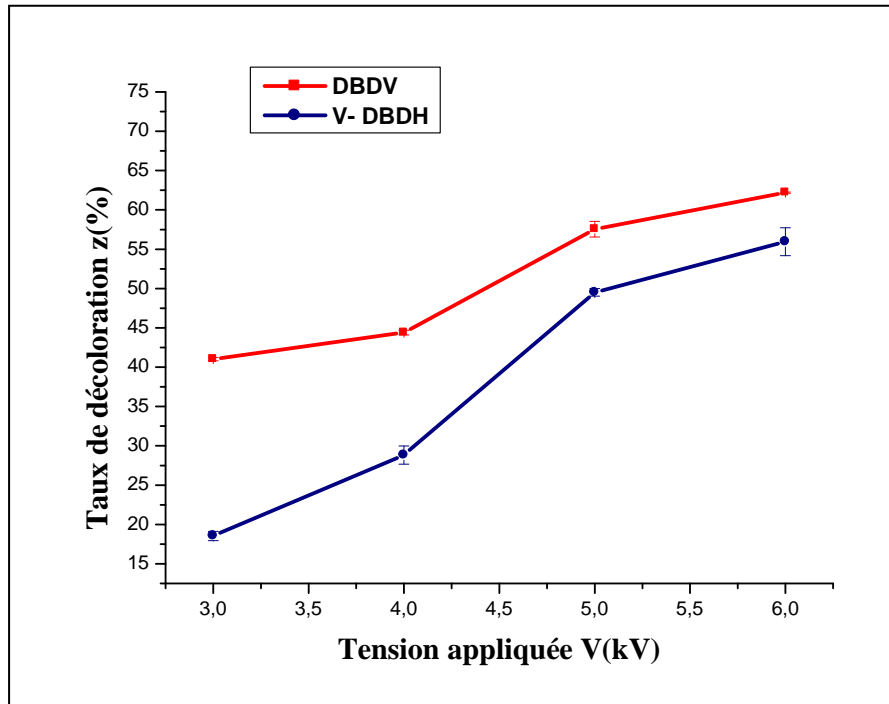


Figure 4.11. Taux de décoloration en fonction de la tension générée par la décharge volumique des modèles V-DBDH et DBDV

Nous constatons que la configuration purement volumique génère plus d'ozone par rapport à la décharge silencieuse générée par l'ozoniseur hybride.

Ce phénomène est due au fait qu'une partie de l'énergie consommée dans le modèle hybride est perdue dans la décharge surfactive.

4.4.5. Effet du débit sur la concentration d'ozone pour les différents réacteurs

Afin d'étudier l'effet du débit d'oxygène Q_{O_2} sur la génération d'ozone, le taux de décoloration a été mesurée à divers débits d'écoulement de gaz de 0.5 à 5 L/min à tension constante égale à 6 kV.

L'évolution de la quantité d'ozone générée en fonction du débit d'oxygène Q_{O_2} pour les trois modèles est représentée à la [figure 4.12](#).

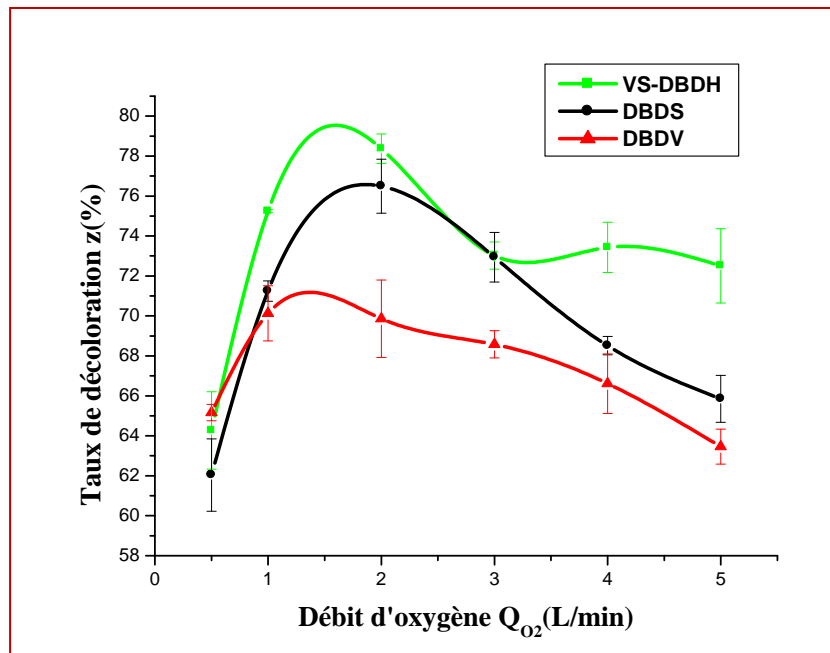


Figure 4.12. Taux de décoloration en fonction du débit d'oxygène pour les trois réacteurs pour une tension égale à 6 kV

Les résultats obtenus montrent encore la supériorité du réacteur hybride, la différence étant supérieure pour les petites valeurs de Q . Nous avons constaté que pour un débit de 2 L/min, par exemple, le taux de décoloration est de 69% pour VDBD tandis qu'elle atteint presque 75 % avec SDBD et environ 79% avec HDBD.

4.5. Taux d'ozone pour les trois réacteurs

Un moniteur d'ozone a été utilisé pour quantifier la concentration du gaz d'ozone en g/m^3 avec un débit qui ne dépasse pas les 2 L/min. Cette quantité d'ozone peut être exprimée en g/h autrement dit le taux d'ozone τ_{O_3} , en prenant en considération le débit d'oxygène.

La **figure 4.13** représente le taux d'ozone en fonction de la tension appliquée calculé par la formule suivante :

$$\tau_{O_3} \text{ (g/h)} = C_{O_3} \text{ (g/m}^3\text{)} \cdot Q_{O_2} \text{ (m}^3\text{/h)} \quad (4.4)$$

Où :

C_{O_3} : Concentration d'ozone en g/m^3

τ_{O_3} : Capacité d'ozone en g/h

Q_{O_2} : Débit d'oxygène qui alimente le réacteur d'ozone.

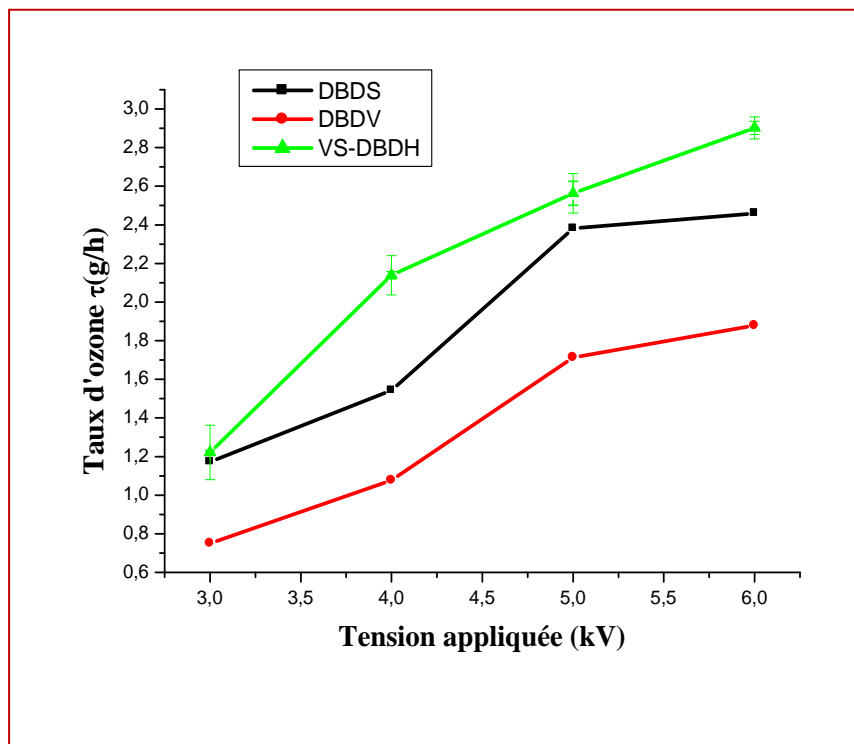


Figure 4.13. Taux d'ozone en fonction de la tension pour trois géométries des réacteurs d'ozone ($Q_{O_2}=1$ L/min)

En faisant une synthèse des résultats trouvés, nous remarquons que le taux d'ozone augmente en élevant la tension appliquée pour les trois générateurs d'ozone. Cela est dû à l'augmentation la densité des micros décharges qui vont fissurer de plus en plus la liaison entre les molécules d'oxygène.

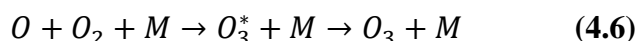
Ces résultats confirment la supériorité de la configuration hybride au point de vue taux de décoloration dont cette dernière comprend les deux décharges en volume et en surface à la fois.

4.6. Efficacité énergétique des réacteurs d'ozone

L'efficacité du générateur d'ozone η_{O_3} en g/kWh, a été déterminée à partir de la puissance de décharge à l'aide de l'équation 4.5. Les résultats sont présentés sur la figure 4.14.

$$\eta_{O_3}(\text{g/kWh}) = \tau_{O_3}(\text{g/h}) / P(\text{kW}) \quad (4.5)$$

L'efficacité dans les deux modèles SDBD et VDBD atteint une valeur maximale de 13% / W pour la plus faible valeur de la tension, alors qu'il augmente jusqu'à 22% / W pour le modèle HDBD. Dans ce cas la majeure partie de l'énergie de décharge est consommée pour conduire à la formation des molécules d'ozone selon la réaction (4.6) [82].



Où M où est le troisième partenaire de collision (O^+ , O_2 , O_2^- , O^- , Etc.) et O_3^* signifie une espèce d'ozone transitoires excités produite en premier lieu dans la **réaction (4.6)**.

En outre, au-delà de 5 kV, tous les modèles sont similaires en termes d'efficacité de la décoloration. La puissance consommée par le tube d'ozone est trop élevée et devient indésirable et elle tend à détruire les molécules d'ozone tel que décrit par les réactions suivantes [82] :

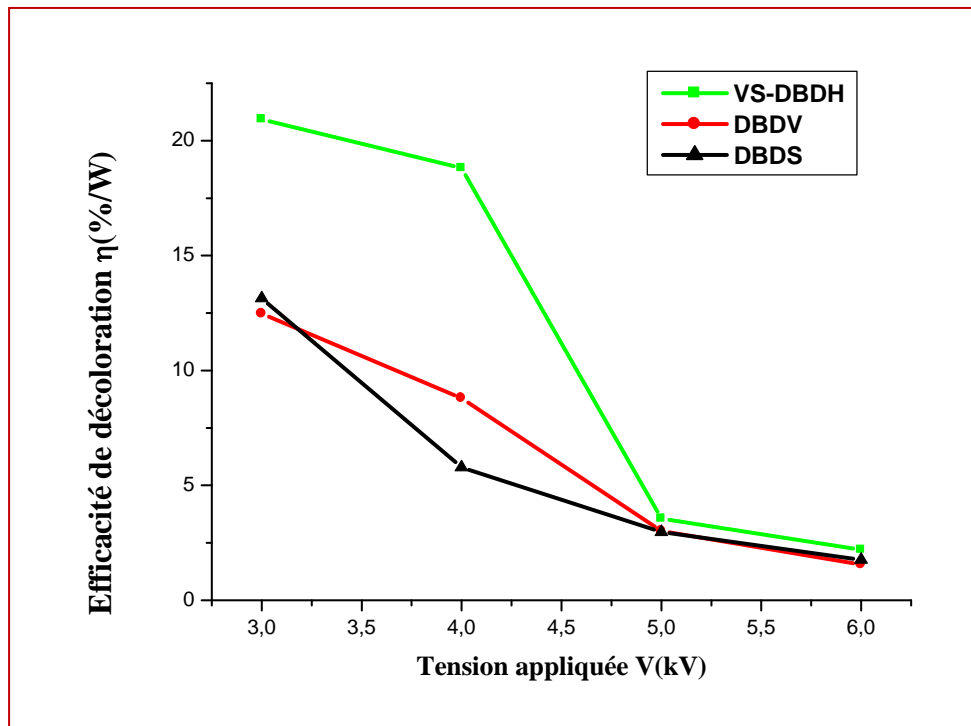
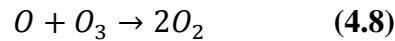
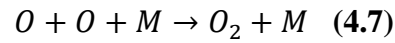


Figure 4.14. Efficacité énergétique pour les trois configurations ($Q_{O_2}=5L/min$).

4.7. Conclusion

Une nouvelle géométrie d'un générateur d'ozone hybride a été présentée dans cette partie de thèse dont une étude expérimentale comparative avec des configurations de décharge en volume et en surface a été effectuée.

D'après les résultats des expériences trouvés, nous pouvons déduire que même si la décharge en volume est la méthode la plus répandue dans le domaine industriel de la génération d'ozone, le réacteur à DBD hybride a montré son fiabilité au point de vue efficacité énergétique par rapport aux deux autres configurations.

En Plus, les résultats obtenus ont permis de constater que la combinaison série entre la décharge volumique et surfactive pour réacteur hybride, augmente le taux de production d'ozone avec des faibles débits d'oxygène et conduit à l'élévation de la concentration d'ozone.

Chapitre 5

Traitement des eaux usées industrielles et domestiques par ozonation



5

TRAITEMENT DES EAUX USÉES INDUSTRIELLES ET DOMESTIQUES PAR OZONATION

5.1. Introduction

Le traitement des eaux est nécessaire à la préservation de notre environnement altéré par de nombreuses pollutions. Il est ainsi indispensable de traiter les eaux usées urbaines et industrielles avant leur rejet dans le milieu naturel. De façon parallèle à la dégradation des ressources en eau, le traitement des eaux de surface et des eaux souterraines pour la production d'eau potable est au centre des préoccupations de santé publique.

Les colorants sont largement utilisés dans les imprimeries, les produits alimentaires, cosmétiques et cliniques, mais en particulier dans les industries textiles pour leur stabilité chimique et la facilité de leur synthèse et leur variété de couleurs. Cependant, ces colorants sont à l'origine de la pollution une fois évacués dans l'environnement dont La production mondiale des colorants est estimée à plus de 800 000 t/an .

Dans les industries de textiles, les rejets polluants entraînent de sérieux problèmes sur l'environnement à cause de leur coloration intense, leurs teneurs élevées en matières organiques difficilement biodégradables (détergeant, tensioactifs ...), en matières en suspension et en sels [83].

De nombreuses études ont été effectuées dans le but de traiter ces effluents en identifiant des méthodes économiques de traitement telles que les traitements : biologiques, physique, par procédés membranaires, par adsorption sur matériaux et par coagulation-floculation. [84-85]

Malheureusement, tous ces procédés de traitement présentent des inconvénients majeurs qui résident dans plusieurs aspects et limitent ainsi le choix d'un tel procédé pour le traitement de ces eaux [86-87].

Dans cette partie de la thèse, nous optons dans une première partie pour le traitement des rejets liquide de textiles issues de l'unité industrielle de Sebdu, wilaya de Tlemcen et de rendre l'effluent global incolore et plus biodégradable pour respecter les normes algériennes en vigueur (annexe). Dans la deuxième partie nous présentons le traitement des eaux usées

domestiques de la station d'épuration (STEP) de Ain Tolba située dans la wilaya d'Ain-Temouchent.

5.2. Réalisation des différents systèmes de refroidissement

La production d'ozone par DBD est accompagnée par un échauffement très important qui influe négativement sur la quantité d'ozone générée. L'objectif de cette partie est de vérifier l'efficacité de plusieurs systèmes de refroidissement afin de choisir le plus efficace.

Pour le dispositif expérimental, on a utilisé un moniteur d'ozone 106-H pour mesurer la concentration d'ozone en g/m^3 en fonction de temps. L'ozoneur est alimenté par un concentrateur d'oxygène (PSA oxygen generator), avec un débit de 1 L/min et un thermomètre pour mesurer la température au niveau des électrodes (**Figure 5.1**). Ce système est appliqué sur les deux générateurs à DBD surfacique et volumique cités dans le deuxième chapitre.

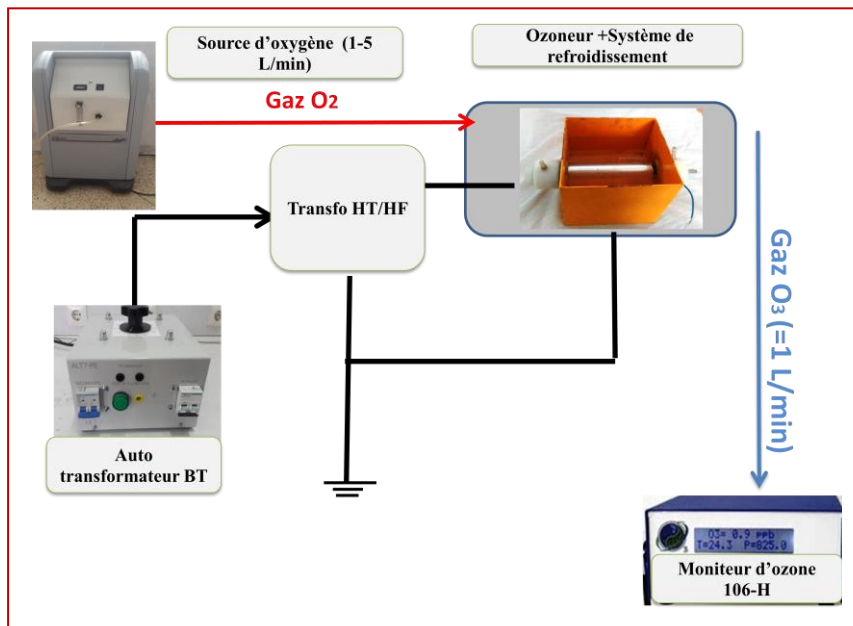


Figure 5.1. Dispositif utilisé pour la mesure de la concentration d'ozone avec les systèmes de refroidissement.

Trois systèmes de refroidissement sont mis en place dans le procédé d'ozonation pour les deux réacteurs à DBDS et DBDV (*décrits dans le chapitre 2 § 2.2*), à savoir :

5.2.1. Configuration (SR1) : Refroidissement par air ambiant en utilisant un boîtier métallique muni d'un ventilateur placé dans la partie supérieure au dessus de la partie active du générateur dont l'étanchéité est assurée par des joints lèvres (**figure 5.2**).

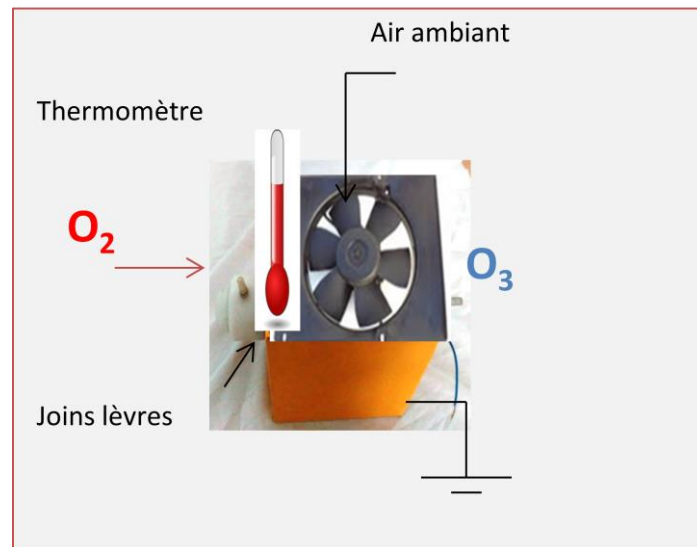


Figure 5.2. Système de refroidissement des réacteurs d'ozone à air ambiant (SR1)

5.2.2. Configuration (SR2) : refroidissement du générateur d'ozone par une eau stationnaire en faisant immerger la partie active du réacteur dans le même boîtier précédent rempli de 10 litres d'eau (**figure 5.3**).

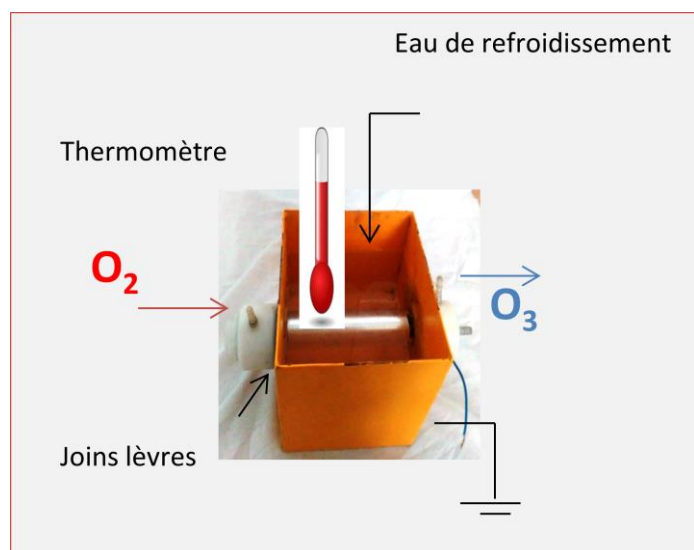


Figure 5.3. Système de refroidissement des réacteurs d'ozone avec une eau stationnaire (SR2)

5.2.3. Configuration (SR3) : Refroidissement du réacteur en faisant circuler les 10 litres d'eau par le biais d'une pompe dans un circuit fermé à travers un radiateur, équipé d'un ventilateur, pour faire diminuer la température de l'eau de refroidissement (**figure 5.4**).

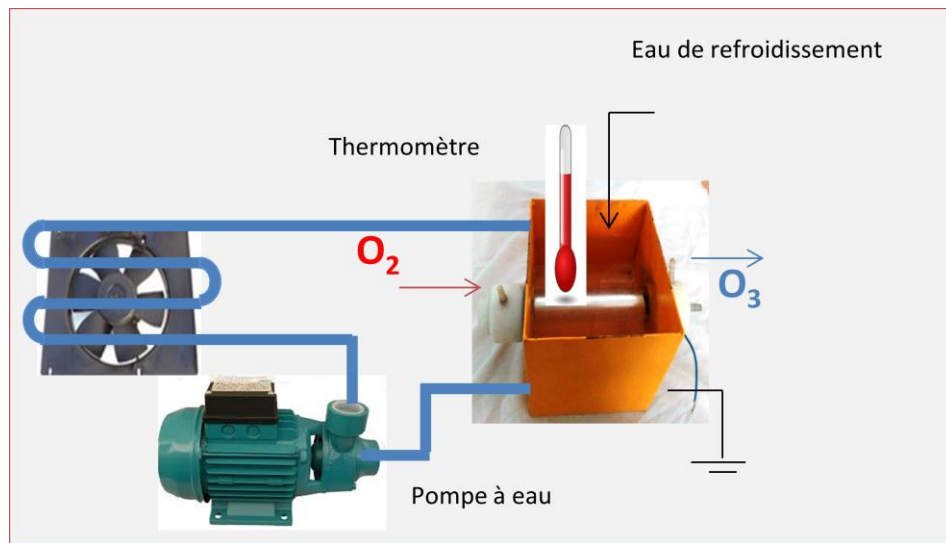


Figure 5.4. Système de refroidissement des réacteurs d'ozone par eau circulant dans un circuit fermé(SR3)

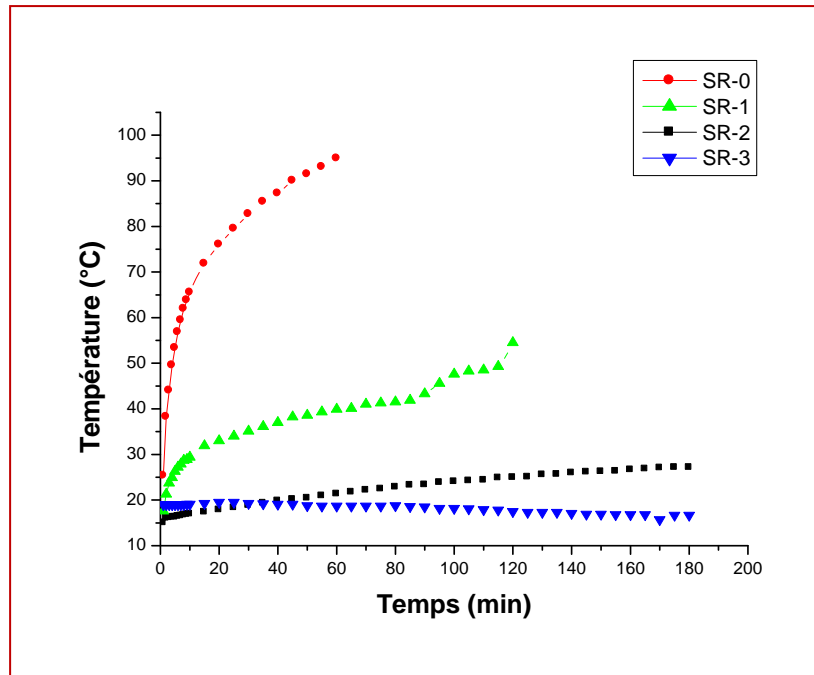
5.2.4. Influence de la température sur la concentration d'ozone

La [figure 5.5](#) illustre la variation de la température en fonction du temps pour les deux réacteurs d'ozone surfacique et volumique respectivement, dans les configurations suivantes :

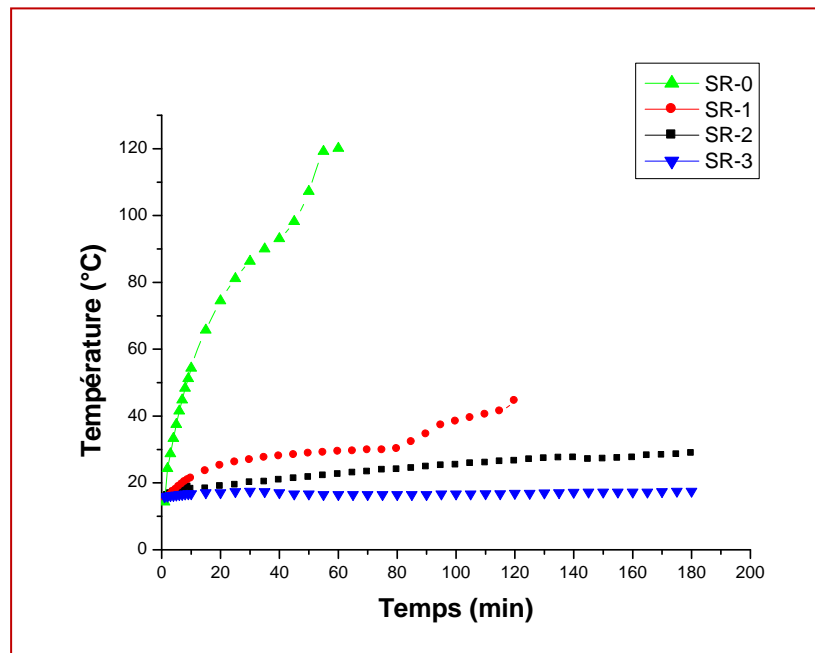
- _ **SR-1** : refroidissement par ventilateur
- _ **SR-2**: refroidissement par eau stationnaire
- _ **SR-3** : refroidissement par eau en mouvement
- _ **SR-0** : sans système de refroidissement

En implantant les trois systèmes de refroidissement dans le procédé de génération d'ozone, nous remarquons à partir des expériences réalisées, que le système de refroidissement (SR-3) est plus fiable pour deux types de réacteurs par rapport aux autres systèmes (SR-1) et (SR-2) dont la température garde sa valeur initiale après trois heures de fonctionnement avec une légère diminution dans la configuration surfacique.

Nous notons que les expériences ont été arrêtées pour les deux cas SR-0 et SR-1 après 1h et 2h respectivement à cause du risque de détérioration de la barrière diélectrique.



(a) DBD Surfactive



(b) DBD Volumique

Figure 5.5. Evolution de la température en fonction de temps dans les 4 configurations de refroidissement, (a) DBDS, (b) DBDV ($(Q_{O_2}=1 \text{ L/min})$, $(V=6 \text{ kV})$)

La variation de la concentration d'ozone en fonction de temps avec le système de refroidissement SR-3 pour les deux générateurs d'ozone est montrée dans la [figure 5.6](#).

Nous pouvons remarquer que la concentration d'ozone est plus élevée pour la configuration surfacique que volumique d'une part, d'autre part, la production d'ozone reste constante au cours de temps pour les deux géométries en utilisant le système de refroidissement (SR3) avec eau circulant dans un circuit fermé.

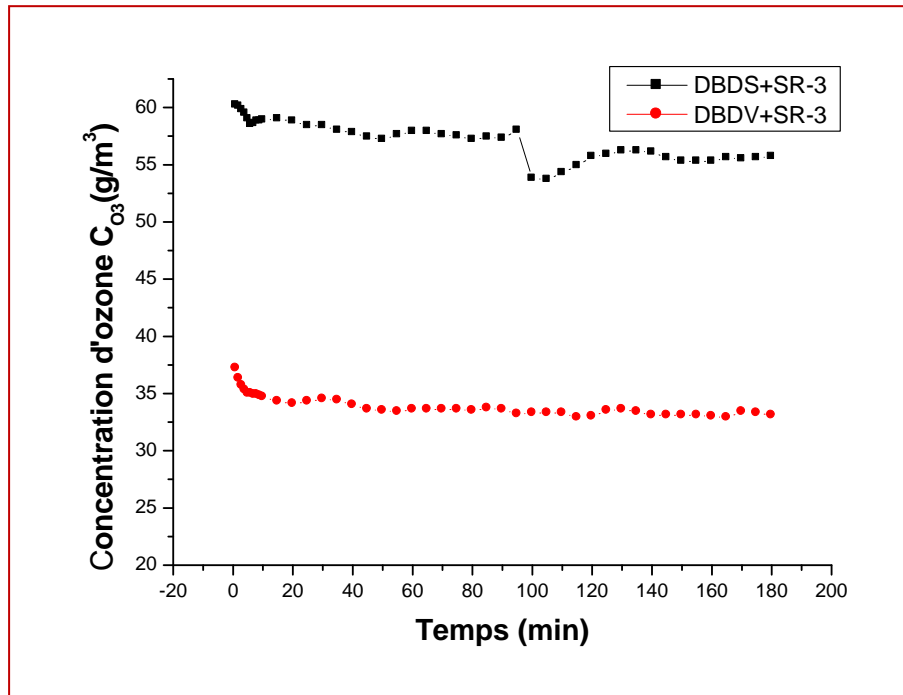


Figure 5.6. Evolution de la concentration d'ozone en fonction de temps pour les deux réacteurs en utilisant le système de refroidissement SR-3 ($Q_{O_2}=1$ L/min), ($V=6$ kV).

5.3. Types d'eaux usées

Les eaux usées peuvent être classées en trois types : les eaux résiduaires domestiques, les eaux *pluviales* et les eaux *industrielles*.

Les *eaux résiduaires domestiques* ont des caractéristiques assez peu variables, et sont chargées principalement en matières organiques.

Les *eaux pluviales* peuvent poser un problème pour les stations d'épuration, particulièrement pendant les périodes orageuses, quand le système d'assainissement est commun (domestiques et pluviales). Ces eaux vont alors diluer les eaux domestiques et perturber le bon fonctionnement des stations d'épuration. L'eau de pluie peut également être en contact avec les polluants présents dans l'atmosphère et dans les fumées industrielles, ou se charger, après ruissellement, d'hydrocarbures ou d'autres polluants présents sur les sols urbains et les toitures.

Pour les *eaux usées industrielles*, leurs caractéristiques sont en fonction de l'industrie considérée. Elles peuvent être chargées d'une grande variété de polluants : matières organiques, métaux lourds, produits toxiques, hydrocarbures, colorants, etc. (**Annexe**)

5.4. Principaux indicateurs de qualité d'eaux usées

Dans le domaine du traitement des eaux, divers paramètres sont utilisés pour mesurer la qualité d'une eau. Ces paramètres sont essentiels dans la conception d'une station d'épuration, dans le choix d'un procédé de traitement, dans le dosage de réactifs et/ou dans la mesure de l'abattement des polluants. Les principaux indicateurs sont :

- La température.
- Le potentiel d'Hydrogène (pH) qui mesure l'activité de l'ion hydrogène dans une solution. Les valeurs inférieures à 7 indiquent l'acidité et celles supérieures à 7 indiquent l'alcalinité.
- Les Matières En Suspension (MES) comprennent les matières *insolubles* qui sont en suspension dans le liquide, comme les matières organiques et minérales de taille importante. Ce paramètre est exprimé en mg/L.
- La Demande Chimique en Oxygène (DCO) est la concentration, exprimée en mg/L, d'oxygène équivalente à la quantité de dichromate consommée par la matière organique contenue dans l'échantillon soumis à l'oxydation par dichromate de potassium. Cette DCO représente la quantité de dioxygène O₂ consommée par toutes les matières réductrices présentes dans les eaux.

- La Demande Biologique en Oxygène (DBO₅) est la quantité, exprimée en mg/L, d'oxygène consommée par l'activité bactérienne pour dégrader les matières organiques biodégradables en 5 jours (à 20 °C et dans l'obscurité).
- La pollution azotée se caractérise par des formes réduites et oxydées. L'azote (NTK) indique la forme organique et ammoniacale d'azote (formes réduites). Il est exprimé en mg/L.
- L'azote global (NGL) mesure la quantité d'azote global comprenant toutes les formes (réduites et oxydées) : organique, ammoniacal, nitrites NO₂⁻, nitrates NO₃⁻. Cet indicateur est exprimé en mg/L.
- Le Phosphore Total (PT) indique les dérivées du phosphore comme les phosphates et les composés organiques phosphorés. Il est exprimé en mg/L.
- Les métaux lourds comme le cadmium, le chrome, le cuivre, etc.
- Les hydrocarbures totaux.
- Les colorants pour l'industrie de textiles, imprimeries....
- Différents germes et coliformes....

5.5. Méthodes de traitement des eaux usées

5.5.1. Méthodes physiques (pré-traitement)

Le premier objectif de toute filière de traitement relève du domaine de la clarification afin d'éliminer les matières en suspension présentes dans les eaux (séparation solide-liquide). On distingue notamment les actions physiques suivantes : dégrillage, tamisage, coagulation-floculation-décantation et filtration.

a- Adsorption sur charbon actif ou autres matériaux

Le charbon actif ou d'autres matériaux adsorbants peuvent être utilisés pour éliminer plusieurs polluants d'eaux usées. Comme les colorants ne sont pas tous ioniques, la plupart des adsorbants ne peuvent pas réduire tous les colorants. Le charbon actif, adsorbant le plus communément utilisé pour la réduction de la couleur (à cause de sa capacité d'adsorption élevée), est capable d'adsorber la plupart des colorants. Toutefois, cette technique ne résout pas le problème, elle ne fait que déplacer la pollution de l'état liquide à l'état solide. De plus, ces techniques, non destructives, nécessitent des opérations postérieures onéreuses de régénération et de post traitement des déchets solides [88].

b- Filtration membranaire

Dans ce procédé, les polluants sont piégés par des membranes semi-perméables dont les diamètres des pores sont inférieures à celui des molécules à éliminer.

La filtration sur membrane pilotée par pression hydraulique se décline en microfiltration, ultrafiltration, nanofiltration et osmose inverse. Parmi les quatre types de procédés, la nanofiltration et l'osmose inverse sont les plus adaptés à la réduction partielle de la couleur et des petites molécules organiques, mais l'osmose inverse reste la plus répandue. La nanofiltration s'applique surtout au traitement des bains de teinture de colorants réactifs en agissant comme un filtre moléculaire, tandis que la microfiltration retient les matériaux colloïdaux tels que les colorants dispersés ou de cuve grâce à une "membrane écran". L'ultrafiltration ne s'applique qu'à la réduction de la DCO et des solides en suspension, et ne se montre réellement efficace qu'en combinaison avec la coagulation/floculation. [89-92].

c- Méthode physicochimique de coagulation/floculation

La coagulation/floculation est souvent appliquée pour le traitement des eaux usées de l'industrie de textile pour enlever d'avantage la demande chimique en oxygène (DCO) et la couleur avant un traitement biologique. Elle peut aussi être utilisée comme procédé principal de traitement. Ce procédé est basé sur l'addition d'un coagulant qui va former des floccs avec les polluants organiques. Ces floccs sont ensuite éliminés par décantation et filtration. [93].

5.5.2. Procédés biologiques

Dans les méthodes biologiques, des procédés aérobies et anaérobies sont utilisés dont des micro-organismes (bactéries) jouent un rôle majeur permettant de dégrader les composés organiques présents dans l'effluent.

Dans le domaine de l'industrie de textile, les procédés d'épuration par voie biologique sont basés sur la biotransformation microbienne des colorants. En outre, la majorité des colorants sont très stables et non biodégradables. La biodégradation est favorable pour les eaux usées présentant un rapport $DCO/DBO_5 > 0.5$, par contre elle est très limitée lorsque ce rapport dépasse 0,2. Le rapport DBO_5/DCO , appelé degré de dégradation biochimique, sert de mesure pour la dégradation biochimique des polluants dans les eaux usées. [88].

5.5.3. Procédés chimiques (désinfection)

Les méthodes chimiques de traitement reposent sur l'interaction chimique entre les polluants à traiter et les réactifs qui aident à la séparation des polluants de l'eau, à la destruction ou à la neutralisation des effets nocifs associés à ces polluants.

Les techniques d'oxydation chimique sont généralement appliquées quand les procédés biologiques sont inefficaces. Elles peuvent être ainsi utilisées en étape de prétraitement pour les procédés biologiques. L'oxydation chimique est souvent appliquée pour le traitement des eaux usées contenant des polluants non biodégradables et /ou toxiques et de fortes concentrations que les autres procédés ne peuvent pas traiter ou transformer en produits biodégradables et/ou non toxiques. Ainsi, l'oxydation chimique se révèle un procédé efficace de traitement des eaux usées. On distingue:

- Les procédés classiques d'oxydation chimique
- Les procédés d'oxydation avancée.

Les procédés classiques d'oxydation chimique sont basés sur l'ajout d'un agent oxydant dans la solution à traiter. Les principaux agents oxydants sont:

a- Chloration

Elle représente un oxydant moyennement fort et est utilisé pour le traitement des eaux usées ou plutôt pour la désinfection

b- Ozonation

L'ozone est un oxydant efficace avec une rapidité de l'action en solution sur les bactéries et les virus, couplés avec une faible production de produits secondaires indésirables. De plus, l'ozonation est plus sûre d'emploi que la chloration et ne nécessite pas de transport de produits chimiques, puisque ce gaz est généré "in situ" à partir du dioxygène soumis à une décharge électrique. Au niveau environnemental, l'ozone est très toxique pour la vie aquatique, mais il est rare, après la désinfection, de trouver de l'ozone résiduel en quantité significative, car sa réaction avec les composés présents est très rapide et il est détruit rapidement en raison de son instabilité.

c- Procédé d'oxydation avancé (POA)

Ces procédés mettent pour la plupart en combinaison deux ou trois réactifs (oxydants) afin de produire des radicaux hydroxyles. Les radicaux libres sont des espèces hautement actives capables de réagir rapidement et de manière non sélective sur la plupart des composés organiques, réputés difficilement oxydables par voie biologique ou par des traitements chimiques conventionnels. Les POA peuvent être subdivisés en quatre groupes : les procédés d'oxydation chimique en phase homogène ($\text{H}_2\text{O}_2/\text{Fe}^{2+}$ et $\text{H}_2\text{O}_2/\text{O}_3$), les procédés photocatalytiques en phase homogène et/ou hétérogène ($\text{H}_2\text{O}_2/\text{UV}$, O_3/UV et $\text{Fe}^{2+}/\text{HO}_2/\text{UV}$;

TiO₂/UV), les procédés d'oxydation sonochimique et les procédés d'oxydation électrochimique. Au regard des deux premières, les POA ont l'avantage de pouvoir fonctionner à température ambiante et en condition de pression normale. De plus, les potentialités offertes par ceux-ci peuvent être combinées avec un traitement biologique en aval ou en amont de ce dernier, à une dégradation oxydante des substances toxiques réfractaires. En effet, l'inconvénient majeur est leur coût relativement élevé comparé à un traitement biologique. Dès lors, quand les produits intermédiaires d'oxydation peuvent être facilement biodégradés. [94].

Tableau 5.1. Comparaison de technologies physiques et chimiques, de dépollution des effluents textiles.

Technologie	Exemples	Avantages	Inconvénients
Coagulation Floculation	Alun : Al(OH) ₃ Ca(OH) ₂ FeCl ₃ Polyélectrolytes	équipement simple Décoloration relativement rapide Réduction significative de la DCO	Formation de boues Adjonction obligatoire de produits chimiques Fonctionnement onéreux Coagulants non réutilisables Réduction spécifique de la couleur Peu d'information sur la réduction de DBO et DCO
Filtration sur Membranes	Osmose inverse Nanofiltration Microfiltration Ultrafiltration	Utilisation simple et rapide Pas d'addition de produits chimiques Faible consommation énergétique Réduction de la couleur Traitement de grands volumes	Investissement important Sélectif Encrassement rapide des membranes par colmatage Pré et post-traitements nécessaires
Adsorption	Carbone activé Silice	Réduction efficace de la couleur Technologie simple Faible coût d'utilisation pour certains Adsorbants	Investissements et coûts de fonctionnement élevés Lent et limité en volume Régénération onéreuse des adsorbants (voir impossible) Sélectif Formation de boues
Oxydation Chimique	<i>Ozone</i>	Traitement de gros volumes Diminution nette de la coloration Décoloration rapide et efficace des colorants solubles et insolubles	Investissements et coûts de fonctionnement élevés
Réduction Chimique	Chlorure d'étain Hydrosulfite de Sodium	Décoloration rapide et efficace des colorants Azoïques	Formation d'amines aromatiques (toxiques) Dégradation incomplète

5.6. Description du dispositif expérimental d'ozonation d'eaux usées

Le dispositif expérimental utilisé pour les expériences de traitement de l'eau est décrit à la **figure. 5.7**. L'effluent à traiter est mis en mouvement au moyen d'une pompe à eau avec un débit de 10 L/min approximativement. L'ozone est injecté dans la boucle par le biais d'un système venturi décrit dans les chapitres précédents. Le mélange entre l'ozone et l'effluent pollué permet de le désinfecter. L'ozone est généré par un générateur d'ozone à DBD surfacique ou volumique alimenté par un concentrateur d'oxygène, avec un débit de 5 L/min. En plus ces générateurs d'ozone sont équipés d'un système de refroidissement (SR-3). L'excès du gaz d'ozone est évacué à l'extérieur par une deuxième canalisation. La réaction se fait à température et pression ambiantes.

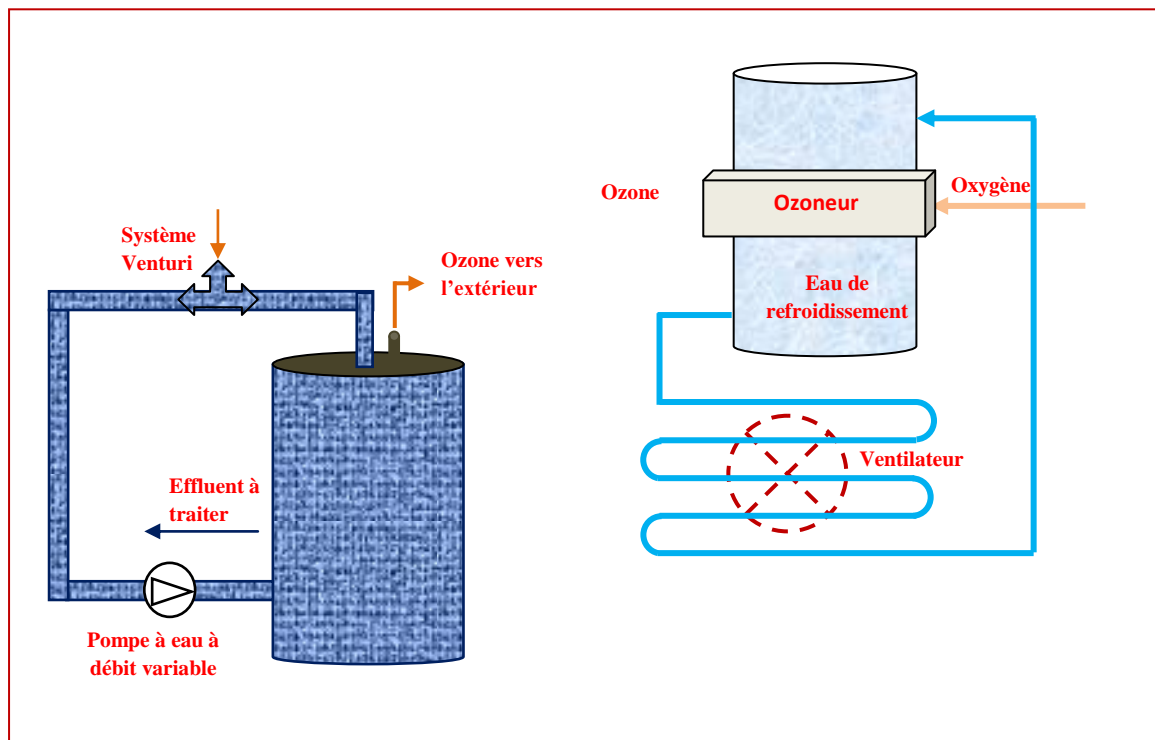


Figure 5.7. Procédé d'ozonation d'eaux usées.

5.7. Traitement des rejets de textile par ozonation

5.7.1. Processus de l'industrie textile

Le secteur textile fait partie des six branches d'activités générant la moitié des flux industriels de pollution (**annexe**). Les effluents issus de ce secteur peuvent être très colorés et difficiles à traiter. La **coloration** de ces eaux usées est de plus en plus perçue comme une nuisance importante. La plus grande part des effluents est représentée par l'ennoblissement qui englobe les prétraitements (désencollage, blanchissement), la teinture ou l'impression et les

opérations qui confèrent aux fibres textiles des propriétés particulières (**figure 5.8**). La plupart de ces traitements sont des grands consommateurs d'eau (200 L/kg en moyenne).

Au cours des différentes étapes du procédé de teinture, des quantités plus ou moins importantes de colorants sont perdues par manque d'affinité avec les surfaces à teindre ou à colorer et se retrouvent dans les rejets.

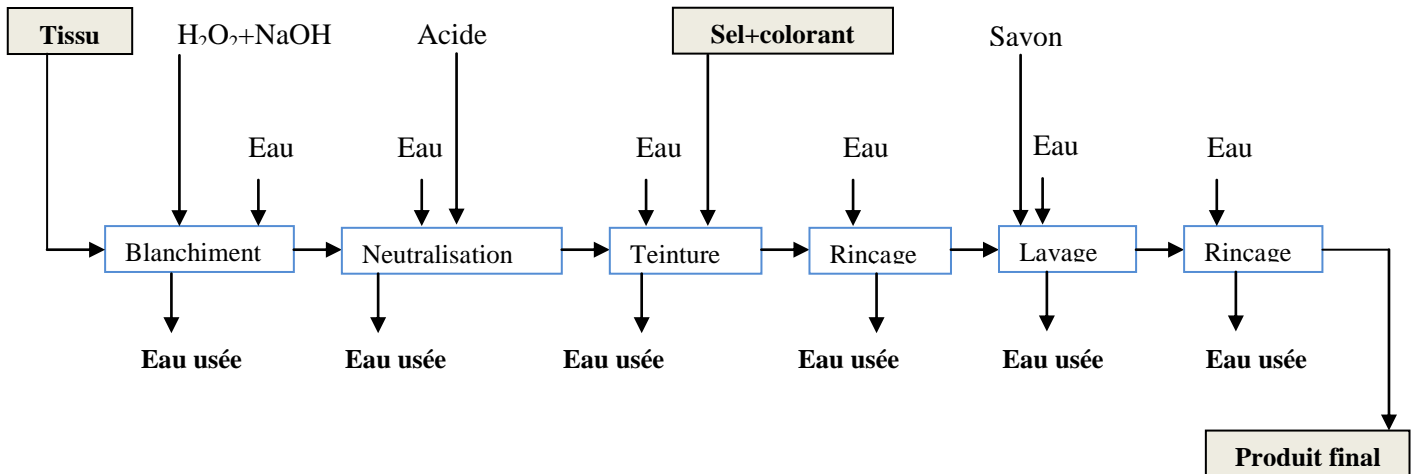


Figure 5.8. Processus de fabrication de textile

5.7.2. Caractéristiques des eaux de textile à traiter

Dans le but de disposer de données réelles, on a utilisé des échantillons prélevés d'un effluent industriel d'une unité de textile installée dans la zone industrielle de la Sebdou, Wilaya de Tlemcen. Actuellement, cet effluent subit un traitement chimique par coagulation-floculation et biologique avant d'être rejeté vers le milieu récepteur (réseau d'assainissement local). Les 10 litres d'eaux usées brutes prise le 14.02.2016 sont caractérisées par plusieurs paramètres physico-chimiques, et les valeurs moyennes des principaux paramètres sont rassemblées dans le Tableau 5.1.

Tableau 5.2. Caractéristiques physicochimiques des effluents textiles à traiter

Paramètres	T (°C)	pH	MES mg/L	DCO mg/L	DBO5 mg/L	Turbidité (NTU)	Absorbance à	
							296 nm	510 nm
Valeurs moyenne	31	8,89	510	1353,9	449,4	186	1.91	0.318
Normes algériennes	35	9	30	250	150	50	–	–

On constate que ces eaux sont assez chaudes, de qualité physico-chimique variable en fonction de la nature du tissu lavé et des produits ajoutés pour le lavage (enzymes, pierres ponce, adoucissement, eau de Javel...), mais, en général, ces eaux sont très chargées en matières organiques, en matières en suspension.

Les valeurs de la D.C.O de ces eaux sont caractéristiques d'un effluent de textile appartenant à la catégorie moyennement concentrée selon la classification des effluents de textile ou de teinture .Dans cette classification, on distingue trois groupes majeurs en fonction de la DCO du rejet: très concentré ($D.C.O > 1600 \text{ mg/l}$); moyennement concentré ($800 \text{ mg/l} < D.C.O < 1600 \text{ mg/l}$) et faiblement concentré ($D.C.O < 800 \text{ mg/l}$). [93].

5.7.3. Impact d'ozone sur la qualité d'effluent

a- Effet de l'ozone sur la turbidité néphélogométrique

La **néphélogométrie** est une des techniques de mesure de la teneur de particules en suspension ou de la turbidité d'un milieu liquide. Elle consiste à mesurer la lumière diffusée à 90° d'angle par rapport à la lumière incidente. L'instrument utilisé pour faire les mesures est le néphélogométrie (AL250 T-IR). La courbe de la **figure 5.9** montre l'évolution de la diminution de la turbidité en fonction de temps lors du 3 heures d'ozonation des eaux brutes.

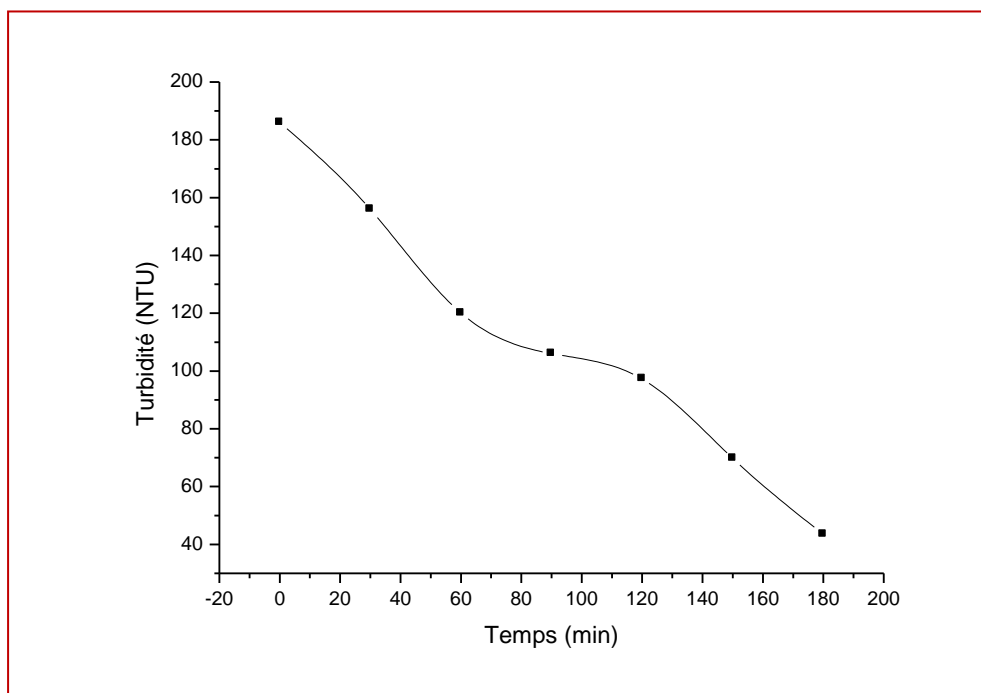


Figure 5.9. Evolution de la turbidité de l'eau traitée en fonction du temps.

En analysant la courbe ci-dessus, nous constatons que la moitié de la turbidité a été éliminée après une heure de traitement, cette forte diminution est due à la réaction rapide de la turbidité avec l'ozone moléculaire. Prenant ces résultats en considération, la turbidité atteint les 43.5 NTU en fin du traitement, valeur très proche de la norme algérienne (50 NTU) et reste supérieure à celle du rejet traité par la STEP de l'unité industrielle (11.4 NTU) (**annexe**). Cette station d'épuration existant au sein de l'unité de textile se base sur le traitement physico-chimique (coagulation/floculation) et biologique.

En termes de turbidité, nous pouvons introduire pour une première possibilité le procédé d'ozonation comme une technique complémentaire avec les techniques physiques de traitement pour améliorer la qualité de l'eau à la sortie de la STEP pour sa réutilisation en irrigation sans la faire traiter une deuxième fois via les STEPs des réseaux d'assainissement. La deuxième possibilité consiste à utiliser une combinaison de plusieurs ozoniseurs afin d'augmenter la qualité des eaux rejetées.

b- Effet de l'ozone sur la dégradation des colorants

Pour chaque radiation de longueur d'onde λ , la proportion de lumière absorbée par la solution colorée est mesurée par son absorbance $Abs(\lambda)$ dont elle est proportionnelle à la concentration du colorant.

Les valeurs de l'absorbance UV maximale à la longueur d'onde maximale ($\lambda_{max}=510$ nm) montrent l'existence d'une faible coloration verte dans ces eaux brutes. Par ailleurs, les analyses par spectroscopie UV visible montre l'existence d'une autre bande d'absorbance UV à la longueur d'onde maximale $\lambda_{max}= 296$ nm qui révèle la présence d'un autre corps dans le rejet et qui est absorbé dans cette longueur d'onde.

La **figure 5.10** montre l'évolution de l'absorbance aux longueurs d'onde maximales à 510 nm et 296 nm respectivement après une demi- heure de traitement avec un pas de 5 minutes

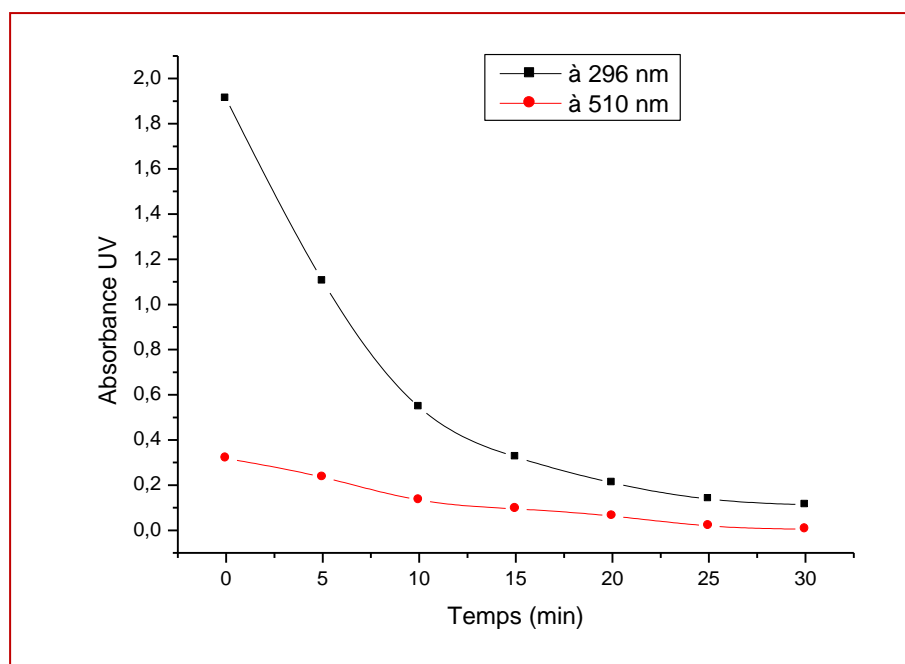


Figure 5.10. Absorbance UV maximale du colorant et de la bande à $\lambda_{max}=296$ nm en fonction du temps.

En analysant cette courbe, on remarque une diminution significative de l'absorbance au niveau des deux longueurs d'onde après seulement 10 minutes de traitement, ce qui montre l'efficacité du procédé d'ozonation en termes de dégradation de la couleur.

Le taux de décoloration pour les deux longueurs d'ondes est représenté en fonction de temps dans la [figure 5.11](#).

La décoloration des eaux pour les deux longueurs d'ondes dépasse les 90% après presque 25 minutes de traitement par ozonation, ce qui nous conduit à dire que cette dernière est très efficace pour la dégradation des colorants.

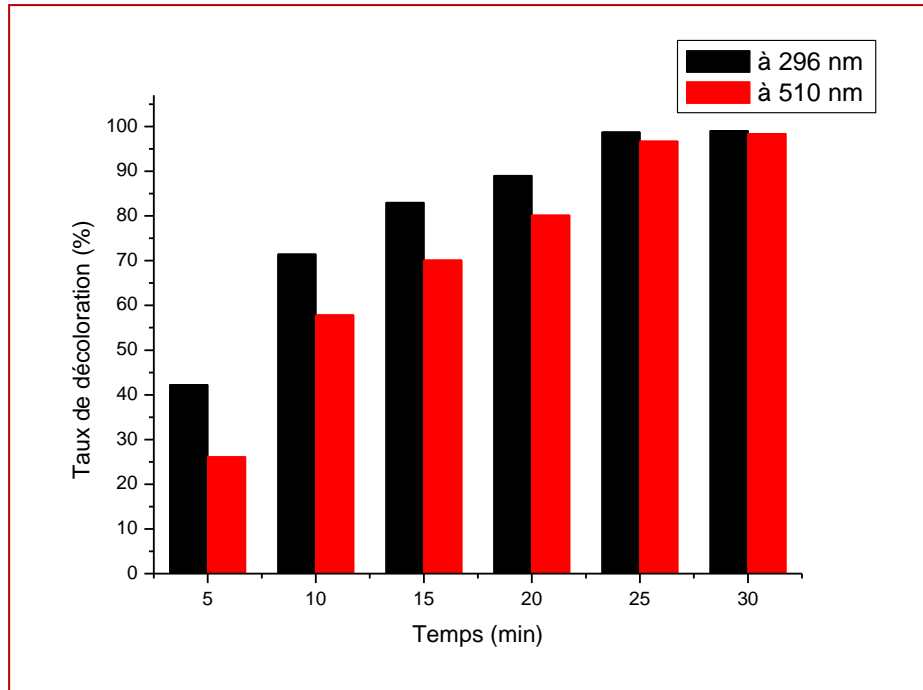


Figure 5.11. Taux de décoloration des eaux en fonction du temps.

c- Effet de l’ozone sur les substances micro-organiques

La demande biochimique en oxygène représente la concentration en oxygène dissous, consommé par les micro-organismes pour oxyder la matière organique des substances dissoutes ou en suspension [48]. Dans cette étude, la DBO₅ a été mesurée pour quantifier les polluants organiques biodégradables (toute matière organique biodégradable polluante va entraîner une consommation d’O₂). La DBO est mesurée au bout de 5 jours (DBO₅), à 20°C (température favorable à l’activité des micro-organismes consommateurs d’O₂) et à l’obscurité (afin d’éviter toute photosynthèse parasite).

La valeur de la DCO correspond à la quantité d’oxygène nécessaire pour l’oxydation de toutes les substances organiques dans les eaux usées [63]. la DCO est un bon indicateur de la quantité de substances organiques chimiquement oxydables présents dans l’eau. Dans cette étude, la concentration de la DCO était un paramètre utilisé pour évaluer l’efficacité de l’ozone auprès des polluants existants dans les eaux usées.

Après trois heures de traitement par ozone d’eaux brutes issues de l’unité de textile, la concentration de la DCO passe de 1353,9 à 452,6 mg/L, tandis pour la DBO₅, le traitement de l’effluent conduit à une diminution de 60% environ dont la DBO passe d’une valeur de 449.5 à 178.37 mg/ L.

La matière en suspension subit à son tour une diminution de 80% environ, en allant de 510 mg/L avant traitement à 102 mg/L après traitement.

Nous pouvons dire, que le procédé d'ozonation appliqué est insuffisant en termes de dégradation de matière organique, en comparant les résultats des paramètres physicochimiques de la solution traité avec les normes en vigueur (**annexe**). Pour cela nous proposons, soit de multiplier le nombre de générateur d'ozone afin d'améliorer la qualité des eaux d'une part, soit d'ajouter un autre système complémentaire de traitement à l'ozonation pour réduire le temps de traitement afin d'augmenter le rendement de notre procédé.

5.8. Impact d'ozone sur une eau infectée par plusieurs colorants de textile

Dans cette partie de la thèse, nous essayons de vérifier l'impact de l'ozonation sur une solution préparée au laboratoire et infectée par des colorants industriels de type textile.

5.8.1. Généralités sur les colorants

Les colorants textiles synthétiques sont exclusivement composés de produits organiques. Les colorants textiles peuvent être classés selon leur composition chimique (azoïques, anthraquinoniques, au soufre, à base de triphénylméthane, indigoïdes, à base de phtalocyanines, etc.) ou selon leur domaine d'application. Un colorant doit posséder, outre sa couleur propre, la propriété de teindre. Cette propriété résultant d'une affinité particulière entre le colorant et la fibre est à l'origine des principales difficultés rencontrées lors des traitements. **[96-97]**

5.8.2. Classification des colorants

Les colorants synthétiques sont classés selon leur structure chimique et leur méthode d'application sur différents substrats (textiles, papier, cuir, matières plastiques, etc.).

a- Classification technologique

La classification technologique permet à l'utilisateur de connaître le mode d'application du colorant, et donc ses domaines d'utilisation, ses propriétés (solubilité, affinité pour tel type de fibres ou matériaux, nature de la fixation ...). Il est souvent difficile de connaître la composition chimique des colorants car la confidentialité sur la composition chimique est généralement préservée. Cette classification comprend trois éléments :

- Le nom générique de la classe d'application ;
- La couleur ;
- Le numéro d'ordre chronologique d'inscription au " colore index "

b- Classification technique

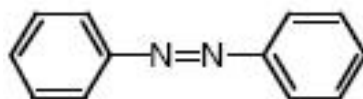
Les colorants utilisés dans l'industrie textile contiennent habituellement des groupes acides sulfoniques qui leur confèrent une hydrosolubilité appropriée et qui permettent à la molécule du colorant de se lier ioniquement aux sites chargés du réseau polymérique du tissu, on peut classer les colorants organiques en deux catégories suivant leur synthèse :

- Colorants naturels
- Colorants synthétiques

Les colorants d'origine synthétique sont des molécules complexes qui peuvent être de type anionique ou cationique. Ils appartiennent à une douzaine de familles chimiques différentes. [98-100].

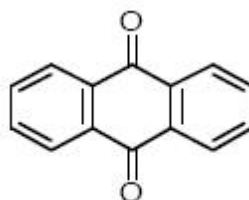
a- Colorants azoïques

Les colorants azoïques sont caractérisés par la présence au sein de la molécule d'un groupement azoïque (-N=N-) reliant deux noyaux benzéniques. Cette catégorie de colorant est actuellement la plus répandue sur le plan de l'application, puisqu'ils représentent plus de 50% de la production mondiale de matières colorantes.



b- Colorants anthraquinoniques

Les colorants anthraquinoniques sont d'un point de vue commercial, les plus importants après les colorants azoïques. Leur formule générale dérivée de l'anthracène, montre que le chromophore est un noyau quinonique sur lequel peuvent s'attacher des groupes hydroxyles ou amino. Ces produits sont utilisés pour la coloration des fibres polyester, acétate et triacétate de cellulose.

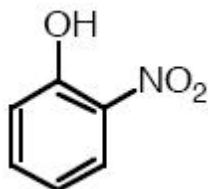


c- Colorants triphénylméthanés

Les colorants triphénylméthanés et leurs dérivés hétérocycliques constituent la plus ancienne classe de colorants synthétiques. Actuellement bien moins importants que les

g- Colorants nitrés et nitrosés

Les colorants nitrés et nitrosés forment une classe de colorants très limitée en nombre et relativement ancienne. Ils sont actuellement encore utilisés, du fait de leur prix très modéré lié à la simplicité de leur structure moléculaire caractérisée par la présence d'un groupe nitro ($-NO_2$) en position ortho d'un groupement électrodonneur (hydroxyle ou groupes aminés).



5.8.3. Préparation de la solution mère

Trois colorants de types textiles sont utilisés dans une solution de 10 L d'eau de robinet, les propriétés physico-chimiques des colorants utilisés sont illustrées dans le [tableau 5.3](#).

Tableau 5.3. Propriétés physico-chimiques pour les colorants textiles utilisés

Nom Usuel	Naphthol yellow S	Reactive red 120	Acid Blue 113
Structure			
Masse Molaire (g. mol ⁻¹)	358.19	1469,34	681.648
Formule chimique	C ₁₀ H ₄ N ₂ Na ₂ O ₈ S	C ₄₄ H ₂₄ C ₁₂ N ₁₄ Na ₆ O ₁₀ S ₆	C ₃₂ H ₂₃ N ₅ O ₆ S ₂ Na ₂
Solubilité dans l'eau	50 g/ L	70 g/L	80 g/L
Caractère	Acide	Acide	Acide
$\lambda_{max}(nm)$	415	515	566
Utilité	Textile	Textile	Textile
Stabilité	Stable, incompatible avec des agents oxydants puissants.	Très stable	Stable

Le choix de ces colorants est basé sur les caractéristiques suivantes :

- Solubilité élevée.

➤ Analyse simple par spectrométrie UV/visible.

5.8.4. Mise en marche du dispositif de décoloration

Le dispositif expérimental utilisé pour les expériences de traitement de l'eau est décrit à la **figure 5.7**. L'eau contaminée à traiter est mise en mouvement au moyen d'une pompe à eau. Un système Venturi permet l'injection d'ozone dans la boucle de l'eau. Ensuite nous mesurons l'efficacité du procédé en effectuant une analyse de la décoloration du mélange à l'aide d'un spectrophotomètre de l'eau avant et après traitement.

Les résultats obtenus sont présentés dans la **figure 5.12**, nous estimons le résultat obtenu visuellement en remarquant le taux de décoloration de l'eau.

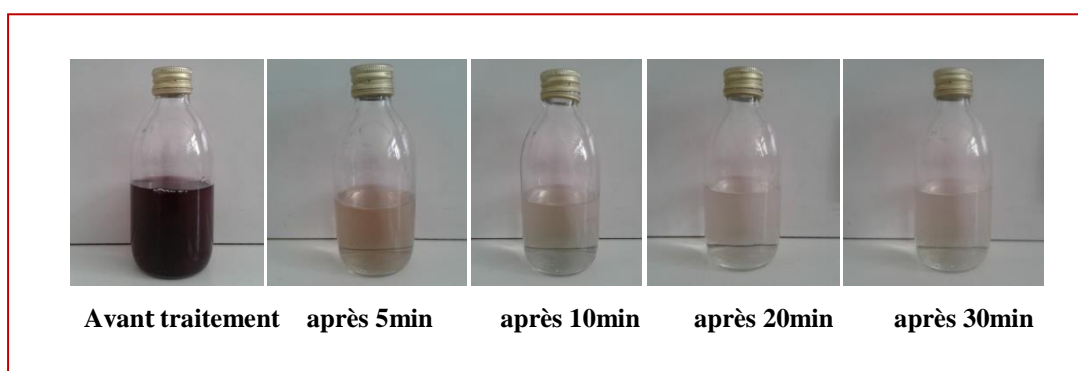


Figure 5.12. Progression de décoloration

Nous pouvons remarquer que la décoloration est nettement visible de l'eau après 10 minutes de traitement, en plus elle est presque complète après 30 minutes, dont une transparence complète d'environ 92 % a été atteinte.

La **figure 5.13** illustre les taux de décoloration approprié à chaque longueur d'onde maximale des colorant séparément en fonction de temps, mesurés avec le spectrophotomètre .

On remarque qu'après 5 min de traitement, les colorants bleu et rouge, subissent une importante dégradation de la couleur qui atteint les 85 % environ, tandis que le colorant jaune dépasse les 80 % en termes de décoloration après 30 min de traitement.

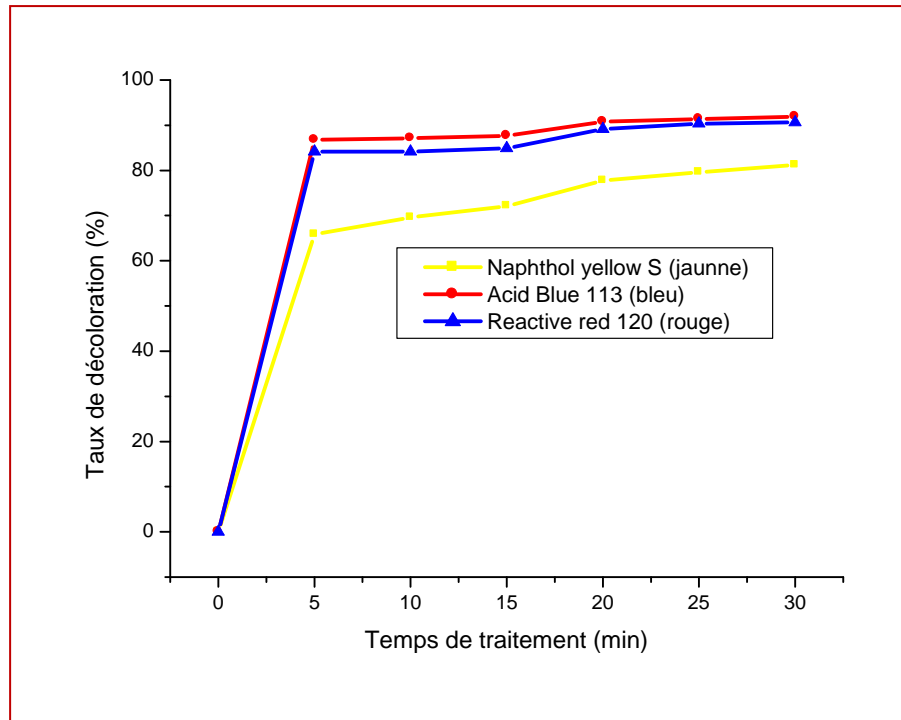


Figure 5.13. Taux de décoloration pour chaque couleur séparément

5.9. Traitement d'eaux urbaines

Dans cette section, nous désirons tester l'efficacité du procédé d'ozonation par DBD surfacique et volumique sur les eaux urbaines domestiques qui alimentent la station d'épuration (STEP) de Ain Tolba (Wilaya de Ain-Temouchent). Elle est destinée au traitement d'eaux urbaines des 16000 habitants avec une capacité de 1920 m³ par jour.

Le **tableau 5.4** englobe les différents résultats d'analyses physico-chimiques de l'eau brute (relevé du 13/03/2016) avant et après traitement par ozonation en utilisant les deux générateurs à décharge surfacique et volumique.

Tableau 5.4. Résultats des analyses physicochimiques des eaux usées

Paramètres	Eau brute (entrée STEP)	Eau ozonée		Normes OMS
		Par DBDS	Par DBDV	
T (°C)	14.41	20.8	20.7	30
PH	7.73	7.78	7.90	6.5 ≤ pH ≤ 9
NO ₃ -N	9.00	0.2	1.2	1mg/l
NO ₂ -N	1.55	0.021	0.032	--
PO ₄ -P	4.15	1,85	2,93	<20mg/l
NH ₃ -N	0.03	0	0	<0.5mg/l

En analysant les résultats du **tableau 5.4**, nous constatons :

- une légère augmentation de la température des eaux après traitement par ozone pour les deux configurations suite à la circulation d'eaux à traiter dans une boucle fermée.
- Le PH est toujours dans les normes même après l'oxydation par l'ozone.
- Une diminution remarquable pour les nitrites $\text{NO}_2\text{-N}$, nitrates $\text{NO}_3\text{-N}$, ainsi que les phosphates $\text{PO}_4\text{-P}$.

Nous remarquons également, en plus du fait que le modèle surfacique soit plus efficace, les résultats de l'analyse physicochimique confirment sa supériorité sur le modèle volumique.

L'histogramme de la **figure 5.14** regroupe les résultats de différentes concentrations des matières organiques solubles et insolubles dans les eaux usées avant et après traitement.

Les valeurs de concentration de la DBO_5 passe de 320 à 61 mg/L après une heure de traitement par un générateur d'ozone à DBD volumique, tandis qu'elle atteint les 42 mg/L dans les mêmes conditions de traitement avec un réacteur à DBD surfaciques.

Ces résultats nous ont permis de montrer l'augmentation de la biodégradabilité de la matière organique, mais cette concentration résiduelle en DBO_5 (42 et 61 mg/L) reste plus élevée que les normes algériennes de rejet (35 mg /L), les normes de l'OMS (30 mg/L), et aux normes extrêmes limitées à l'eau d'irrigation (30 mg / L) **[101-103]**.

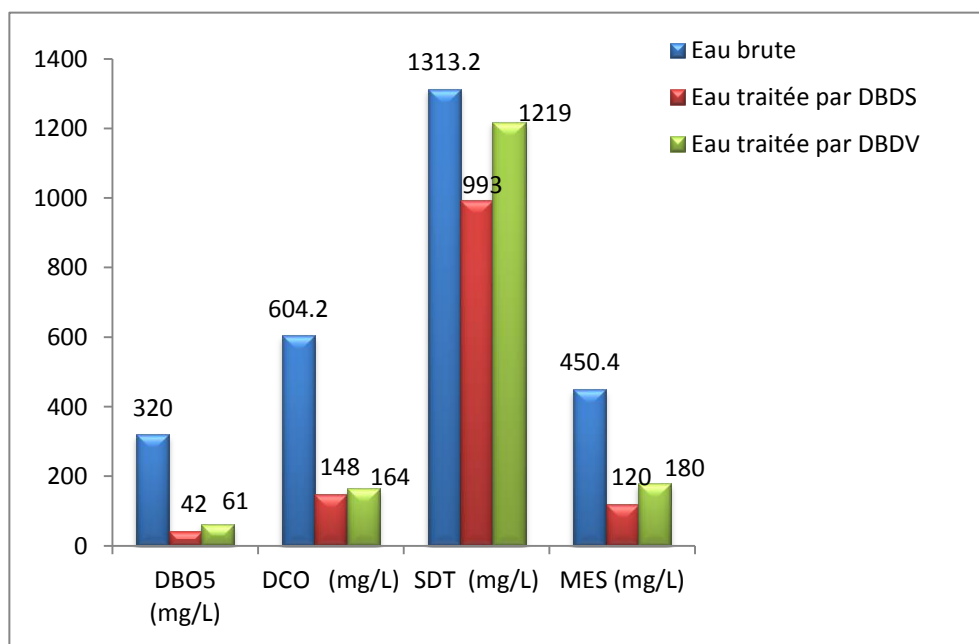


Figure 5.14. Résultats des concentrations des matières organiques des eaux traitées par les deux générateurs d'ozone.

D'après les résultats du traitement, nous constatons une réduction importante de la DCO de 75.5% et 72.85 % avec les ozoniseurs surfacique et volumique respectivement. Nous notons aussi que les valeurs de la DCO après ozonation restent supérieures aux normes algériennes de rejet (120 mg/L), comme les normes de l'OMS (90 mg/L), et aux normes extrêmes limitées à l'eau d'irrigation (90 mg/L). Ces taux pourront diminuer encore plus en utilisant plusieurs générateurs d'ozone.

Les SDT, ou solides dissous totaux sont le total de matières solides dissoutes estime le résidu total qui reste après évaporation d'un échantillon d'eau qui a été filtré afin d'enlever les matières solides en suspension de plus de 1 mm de grosseur. Par conséquent, la concentration des solides est proportionnelle à la conductivité électrique des solutions.

Les résultats d'analyse montre l'efficacité du système d'ozonation en matière des SDT, ils ont subit une grande diminution en passant de 1313.2 mg/L à 993.6 mg/L et 1219 mg/L par les deux réacteurs d'ozone surfacique et volumique respectivement.

La présence de matières en suspension est due à la nature urbaine des eaux usées, après ozonation, ce paramètre à subit une diminution de près de 75% avec une légère supériorité du traitement par générateur à SDBD surfacique.

5.10. Conclusion

Cette partie de la thèse avait pour objectif l'étude de la dépollution des eaux dans les effluents de l'industrie textile et domestique par l'ozonation en utilisant les deux réacteurs à DBD volumique et surfacique réalisés.

Dans le même cadre du traitement des rejets de textile, un autre volet de dépollution a été étudié, celui de la dégradation de la couleur par le procédé d'ozonation.

En plus des résultats trouvés dans le premier chapitre concernant la comparaison entre les deux générateur à DBD surfacique et volumique, nous avons validé la supériorité du générateurs d'ozone surfacique par rapport au volumique en termes d'analyses physicochimiques des eaux domestiques traitées par les deux générateurs.

D'un autre côté, l'utilisation des systèmes de refroidissement fait augmenter la production d'ozone en évacuant la chaleur générée par la décharge électrique. Le refroidissement à eau en mouvement représente la meilleure solution pour un meilleur rendement de production d'ozone

La qualité physico-chimique des eaux domestiques et industrielles a été nettement améliorée par le procédé d'ozonation, en notant que l'emploi d'un seul générateur reste insuffisant pour atteindre les normes algériennes en vigueur.

Les résultats trouvés montrent que la décoloration des eaux par l'ozone est une technique intéressante pour permettre sa réutilisation pour le lavage, pour l'irrigation ou pour la lutte contre les incendies.

Conclusion générale

CONCLUSION GÉNÉRALE

L'élimination des micropolluants contenus dans l'eau est un défi auquel doivent faire face de plus en plus les installations. Tandis que les processus de traitement conventionnels n'arrivent pas à les éliminer complètement, l'oxydation avec l'ozone s'avère l'une des méthodes de traitement les plus efficaces.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons étudié la mise en place de plusieurs types de générateurs d'ozone selon leurs mode de décharge (surfacique, volumique et mixte) et leur utilisation, dans un montage de désinfection des eaux, dans le but d'améliorer l'efficacité de ce procédé.

En premier lieu, dans ce travail, nous avons opté pour deux configurations, l'une basée sur la décharge volumique et l'autre sur la décharge surfacique. Ces deux types de *DBD* différents dans la géométrie des électrodes ont été comparés tout au long de cette étude, d'un point de vue électrique et en termes de génération d'ozone. Les principaux résultats déduits de cette étude se résument dans les points suivants :

- L'étude électrique a montré qu'on obtient deux décharges quasi- similaires à partir des deux configurations étudiées. Cependant, la configuration surfacique présente une densité plus élevée des microdécharges en comparaison avec la configuration volumique qui est caractérisée par une amplitude de courant plus grande. En plus, l'augmentation de la tension appliquée a pour conséquence d'augmenter la puissance consommée par les deux modèles des générateurs, surtout pour la configuration volumique.
- En termes de production d'ozone et dans les mêmes conditions expérimentales, il a été constaté que pour les deux modèles l'élévation de la tension a pour effet d'accroître la quantité d'ozone, mais d'un autre côté cette augmentation provoque la diminution de l'efficacité énergétique, autrement dit la concentration d'ozone par un 1 kWh d'énergie consommée.

Par ailleurs, la méthodologie des plans d'expériences qui est un outil puissant pour l'identification du point optimal du procédé d'ozonation a été utilisée dans ce travail. Grâce aux résultats préliminaires, le procédé peut être rendu moins sensible aux variations, en évitant ainsi les éventualités coûteuses de mauvais traitement. Comme l'efficacité de production d'ozone est liée aux dimensions géométriques du générateur, une procédure expérimentale basée sur les techniques de surface de réponse a été proposée pour la

détermination des dimensions optimales du générateur à DBD surfacique. A partir des résultats trouvés, il est recommandé d'utiliser des réacteurs à décharge surfacique à diamètre et longueur d'électrode réduits et avec un intervalle de circulation d'oxygène le plus petit possible (de l'ordre de 1 mm) pour avoir des concentrations d'ozone satisfaisantes, avec une réduction de la puissance consommée.

Dans la troisième partie de la thèse, un nouveau générateur hybride qui utilise les deux modes de décharge (volumique et surfacique) simultanément a été étudié. Ainsi une analyse expérimentale comparative avec des configurations de décharge en volume et en surface a été effectuée. Les résultats obtenus ont montré que ce nouveau réacteur présente un meilleur rendement énergétique par rapport aux deux autres modèles. D'un autre côté, la combinaison série entre la décharge volumique et surfacique dans cette configuration hybride, augmente le taux de production d'ozone avec des faibles débits d'oxygène.

Durant les expériences effectuées dans le cadre de la préparation de ce travail, il a été constaté que la production d'ozone est accompagnée par une élévation de température et qui engendre une diminution remarquable du rendement énergétique en favorisant la dissociation des molécules d'ozone. Pour cette raison, plusieurs systèmes de refroidissement ont été mis en place pour faire face à ce problème. Notre choix s'est porté sur le refroidissement avec une eau en mouvement dans un circuit fermé muni d'un ventilateur, et ce suite aux résultats satisfaisants trouvés qui ont montré que la continuité de fonctionnement pendant plus de 3 heures peut être assurée.

Après avoir optimisé le procédé de génération d'ozone, nous avons effectué le traitement des eaux domestiques issues de la station d'épuration d'Ain Tolba, Wilaya de Ain Temouchent en premier lieu, et industrielles de type textile en deuxième lieu, en utilisant un générateur surfacique et un autre volumique.

Les analyses physico-chimiques de l'eau de la STEP d'Ain Tolba avant et après le traitement, ont montré que l'eau a été quasiment désinfectée, en constatant une dégradation considérable de tous les paramètres..

Par ailleurs, les résultats d'analyse physico-chimique de traitement des effluents textiles montrent une grande dégradation au niveau des paramètres. La qualité peut être plus améliorée en appliquant une concentration d'ozone plus grande.

En plus, les analyses par spectrophotométrie de l'eau industrielle colorée, avant et après le traitement, montrent l'efficacité de l'ozonation en termes de dégradation des colorants qui sont toxiques lors de leurs rejets dans l'environnement.

Ainsi, nous avons montré que l'ozonation des eaux domestiques et industrielles présente une solution écologique parfaitement adaptée au traitement de ce type d'eaux. La concentration d'ozone dans l'eau que le dispositif a atteint, est insuffisante pour la désinfection complète, ce qui nécessite l'amélioration de notre dispositif en multipliant le nombre de générateurs d'ozone ou bien associer le procédé d'ozonation avec un autre dispositif complémentaire de traitement biologique, physique ou autre.

Perspectives

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

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

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

Références bibliographiques

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] **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**.
- [2] **M.A.Djibrillah**, « Eléments de conception d'un générateur électrique pour alimentation d'un dispositif de décharge à barrière diélectrique », thèse de doctorat, université de Toulouse, **2011**.
- [3] **K.H.Becker, U. Kogelschatz, K.H Schoenbach, R.J .BARKER**, « Non equilibrium air plasmas at atmospheric pressure », IOP Publishing, **2005**.
- [4] **K. Allegraud**, « Décharge à DBD de surface ; physique et procédé », thèse de doctorat, Ecole polytechnique, CNRS, **2008**.
- [5] **P. Audier**, « Etude d'une DBD surfacique, application au contrôle d'écoulement autour d'un profil d'aile », thèse de doctorat, université d'Orléans, **2012**.
- [6] **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**.
- [7] **M. Abouzlam**, « Optimisation d'un procédé de traitement des eaux par ozonation catalytique », thèse de doctorat, université de Poitiers, **2014**.
- [8] **V.Bouchinha**, « Etude de l'écoulement induit par une DBD surfacique », thèse de doctorat, université d'Orléans, **2009**.
- [9] **R.Joussot**, « Etude, caractérisation et amélioration d'un actionneur plasma, application au contrôle de transition d'une couche limite de balsa », thèse de doctorat, université d'Orléans, **2009**.
- [10] **N.Naude**, « Etude électrique de la physique d'une décharge de Townsend atmosphérique et de son interaction avec un générateur », thèse de doctorat, Toulouse III-Paul Sébastien, **2005**.
- [11] **R .D. Medina**, « Alimentation de puissance d'une lampe exciplexe à décharge à barrière diélectrique, en vue du contrôle du rayonnement », thèse de doctorat, Université de Toulouse, **2008**.
- [12] **Y. Belebna, S. Nemmich, N. Hammadi, A. Tilmatine**, « Production d'ozone par

décharge à barrière diélectrique pour traitement de l'air », International conference on energy and sustainable development (CESD'2013).

[13] **B. Dramane**, « précipitation électrostatique de particules submicroniques par DBD, étude électrique, granulométrique et aérodynamique », thèse de doctorat, université de Poitiers, **2009**.

[14] **M. Abdel-Salam, A. Hashem, A. Yehia, A. Mizuno, A. Turkey, and A. Gabr**, « Characteristics of corona and silent discharges as influenced by geometry of the discharge reactor ». Journal of Physics D : Applied Physics, 36 :252–260, **2003**.

[15] **M. Dumitran**, « Collection des fines particules dans un dépoussiéreur électrostatique », PhD thesis, Université Joseph Fourier, Grenoble, **2001**.

[16] **Jolibois, J., K. Takashima, A. Mizuno**, “Application of a Non-Thermal Surface Plasma Discharge in Wet Condition for Gas Exhaust Treatment: Nox Removal.” Journal of Electrostatics 70:300–8 (**2012**)

[17] **Ikehata, K., N. Naghashkar, M. Gamal El-Din**. . “Degradation of Aqueous Pharmaceuticals by Ozonation and Advanced Oxidation Processes: A Review.” Ozone: Science & Engineering 28 (6):353–414 (**2006**)

[18] **N.M. Bodret**, « recherche d'optimisation énergétique d'un réacteur plasma froid de traitement d'effluents gazeux chargés en composé organiques volatiles », PhD thesis, Supelec, **2012**.

[19] **U. Kogelschatz, B. Eliasson, W. Egli**, « From ozone generators to flat television screens: history and future potential of dielectric-barrier discharges », Pure Appl. Chem., Vol. 71, No. 10, pp. 1819-1828, 1999

[20] **Nemmich, S., A. Tilmatine, Z. Dey, N. Hammadi, K. Nassour, and S. Messal**. “Optimal Sizing of a DBD Ozone Generator Using Response Surface Modeling.” Ozone: Science & Engineering 37:3–8. **2015**.

[21] **U. Kogelschatz**, « Dielectric-barrier Discharges: Their History, Discharge Physics, and Industrial Applications », Plasma Chemistry and Plasma Processing, Vol. 23, No. 1, **2003**

[22] **Z. Falkenstein, J.J Coogan**, « Microdischarge behaviour in the silent discharge of nitrogen–oxygen and water–air mixtures », J. Phys. D: Appl. Phys. (30) 817– 825. Printed in the UK (1997)

[23] **K. Hassouni, F. Massines, J-M. Pouvesle**, « Plasmas Froids : Génération, Caractérisation et Technologies », I Ed des Presses de Saint Etienne, **2004**.

[24] **S. Kanazawa, M. Kogoma, T. Moriwaki, S. Okazaki**, « Stable glow plasma at

atmospheric pressure », *J. Phys. D: Appl. Phys.* 21, 838 (1988)

[25] **Masuda, S., K. Akutsu, M. Kuroda, Y. Awatsu, and Y.A. Shibuya.** “Ceramic-based Ozonizer Using High-Frequency Discharge.” *IEEE Trans. Ind. Appl.* 24(2): 223–231. **1988**

[26] Shao, T., K. Long, C. Zhang, J. Wang, D. Zhang, P. Yan, and S. Zhang. “Electrical Characterization of Dielectric Barrier Discharge Driven by Repetitive Nanosecond Pulses in Atmospheric Air.” *J. Electrostat.* 67: 215–221. **2009.**

[27] **Y.Fauvel,** « Utilisation de l’ozone comme agent stérilisateur de l’eau de mer pour l’épuration de coquillage », science et pêche, pêche maritime n^o 25 (1964)

[28] **Y. Bellebna, A. Tilmatine**” Application of dielectric surface barrier discharge for air disinfection», *acta electrotechnica et Informatica*, Vol. 13, No. 3, 22–26 **2013**

[29] **J.Durane,** « Apport de l’ozone dans la mise en charge dans les maladies parodontales », thèse de doctorat, Université de Toulouse, **2014**

[30] **N.Bouregba, Y. Benmimoun, B. Meddah, A.Tilmatine & Aoumria Ouldoumouma** « Ozonation of wastewater in Algeria by dielectric barrier discharge», *Desalination and Water Treatment* Volume 57, Issue 4, **2016**

[31] **A. Jarmany1, A. Kheribech1, M. Mountadar** «la decoloration des rejets liquides de textile par électrocoagulation » *Phys. Chem. News* 6 101-109 (2002)

[32] **H. Ben Mansour, O. Boughzala, d. Dridi, D. Barillier, L.Chekir-Ghedira et R. Mosrati** « Les colorants textiles sources de contamination de l’eau : criblage de la toxicité et des méthodes de traitement » *Revue des sciences de l’eau / Journal of Water Science*, vol. 24, n° 3, p. 209-238. **2011**

[33] **Ikehata, K., N. Jodeiri Naghashkar, and M. Gamal El-Din.** “Degradation of Aqueous Pharmaceuticals by Ozonation and Advanced Oxidation Processes: A Review.” *Ozone: Science & Engineering* 28 (6):353–414.**2006**

[34] **Jenei, I., P. Kis, and E. Kiss.** “The Development of Ozone Generators with the Analysis of the Field Distribution of the Electrode Arrangements.” *Ozone: Science & Engineering* 29 (3):215–20. **2007.**

[35] **Pekárek, S.** “Experimental Study of Surface Dielectric Barrier Discharge in Air and Its Ozone Production.” *Journal of Physics D: Applied Physics* 45 (7):075201–9. **2012**

[36] **Chang, J.-S.** “Recent Development of Plasma Pollution Control Technology: A Critical Review.” *A Critical Review. Science and Technology of Advanced Materials* 2:571–6.**2001.**

[37] **Sung, T. L., S. Tei, C. M. Liu, R. C. Hsiao, P. C. Chen, Y. H. Wu, and K. bihara.**

- “Effect of Pulse Power Characteristics and Gas Flow Rate on Ozone Production in a Cylindrical Dielectric Barrier Discharge Ozonizer.” *Vacuum* 90:65–9. **2013**.
- [38] **Williamson, J. M., D. Trump, P. Bletzinger, 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):4400–6. **2006**.
- [39] **Boonduang, S., S. Limsuwan, W. Kongsri, and P. Limsuwan.** “Effect of Oxygen Pressure and Flow Rate on electrical Characteristic and Ozone Concentration of a Cylinder-Cylinder DBD Ozone Generator.” *Procedia Engineering* 32:936–42. **2012**.
- [40] **Mizuno, A.** “Industrial Applications of Atmospheric Non-Thermal Plasma in Environmental Remediation.” *Plasma Physics and Controlled Fusion* 49 (5A):A1–A15. **2007**.
- [41] **Zhao, Y., K. Shang, L. Duan, Y. Li, J. An, C. Zhang, and Y. Wu.** “Influence of Power Supply on the Generation of Ozone and Degradation of Phenol in a Surface Discharge Reactor.” *Journal of Physics Conference Series* 418 (1):12131–6. **2013**.
- [42] **Zouzou, N., C. Agbangla, E. Moreau, and G. Touchard.** “Diesel Particle Treatment Using a Surface Dielectric Barrier Discharge.” *IEEE Transactions on Plasma Science* 36:1354–5. **2008**.
- [43] **Šimek, M., P. F. Ambrico, S. De Benedictis, G. Dilecce, V. Prukner, and J. Schmidt.** “Behaviour in a N₂–NO Surface Dielectric Barrier Discharge in the Modulated Ac Regime at Atmospheric Pressure.” *Journal of Physics D: Applied Physics* 43 (12):124003–1240011. **2010**.
- [44] **Wang, C., G. Zhang, and X. Wang.** “Comparisons of Discharge Characteristics of a Dielectric Barrier Discharge with Different Electrode Structures.” *Vacuum* 86 (7):960–4. **2012**.
- [45] **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**.
- [46] **A. Bendaoud, A. Tilmatine, K. Medles, M. Rahli, M. Huzau, and L. Dascalescu,** “Characterization of Dual Corona-Electrostatic Electrodes for Electrostatic Processes Applications “ *IEEE transactions on industry applications*, vol. 44, no. 3, **2008**.
- [47] **M. Kachi, L. Dascalescu** “Corona discharges in asymmetric electrode configurations“ *Journal of Electrostatics* (72) 6-12. **2014**.
- [48] **N. Ramdani, A. Hamou¹, S. Nemnich, A. Tilmatine, M. Y. oufadi and M. Lloréns pascual del Riquelme** “Ozonation of Wastewater by Dielectric Barrier Discharge and its

Impact on the Elimination of Fecal Bacteria and Inorganic Micropollutants“ Journal of ecology of Health & Environment .3, No. 3, 81-90 **2015**.

[49] **A. A. Garamoon, F. F. Elakshar, A. M. Nossair, and E. F. Kotp**, “Experimental study of ozone synthesis,” Plasma Sources Science and Technology, 11, 254-259, **2002**.

[50] **B. Eliasson, and U. Kogelschatz**, “Modeling and applications of silent discharge plasmas”, IEEE Transactions on Plasma Science, Vol.19, No.2,309-323.**2010**

[51] **M. Nisoa, and T. Srinuam** “Characteristics of Ozone Production by Using Atmospheric Surface Glow Barrier Discharge” Walailak J Sci & Tech; 6(2): 283-292. **2009**

[52] **P. Baroch, N. Saito and O. Takai**. “Special type of plasma dielectric barrier discharge reactor for direct ozonization of water and degradation of organic pollution”. J. Phys. D: Appl. Phys. 41, 1-6. **2008**

[53] **N. Boudesocque**, “Contribution à l’étude de plasmas d’arc immergé, applications à la décontamination et à la gazéification d’effluents organiques aqueux“, thèse de doctorat, université de Limoges, **2007**

[54] **P. Ceccato** “Filamentary plasma discharge inside water : initiation and propagation of a plasma in a dense medium” thèse de doctorat, Ecole Polytechnique Palaiseau (Paris) France.**2009**

[55] **S. Nemnich, A.Tilmatine, Z.Dey, N. Hammadi** “Dimensionnement géométrique optimal d’un générateur d’ozone à décharge à barrière diélectrique ” 9^{ème} conférence de la société française d’électrostatique 27-29 Aout **2014**.

[56] **S. Nemnich, Y.Belebna, N. Hammadi et A. Tilmatine** ” Étude expérimentale de l’influence des paramètres sur l’efficacité du procédé de génération d’ozone par décharge à barrière diélectrique”. CNHT’13, Algerian Journal Of Technology Série B Numéro spécial avril **2013**.

[57] **S.-M. Remaoun, A. Tilmatine, N. Hammadi, F. Miloua, K. Medles** ” Optimisation of one stage electrostatic precipitator for welding fume filtration” Scientia Iranica, Volume 19, Issue 6, 1861-1864.**2012**

[58] **K.Medles**, ”Modélisation expérimentale des installations de séparation électrostatique de particules” .thèse de doctorat, université de sidi bel abbes . **2008**

[59] **M.N.Brahami , S. Hadjeri, S. Nemnich, M. Brahami & A. Tilmatine**, Experimental investigation of a PV solar generator for supplying water treatment process” International Journal of Environmental Studies, Volume 72, Issue 1,207-221. **2015**

- [60] MODDE 5.0, "User guide and tutorial", Umetrics, **1999**.
- [61] **J.S. Chang, A.J. Kelly, J.M. Crowley**, "Handbook of Electrostatic Processes," Ozone Generation and Applications, vol. 26, pp. 581–605, **1995**.
- [62] **A. Fridman, A. Chirokov, A. Gutsol**, "Non-thermal atmospheric pressure discharges", J. Phys. D: Appl. Phys. Vol.38,pp.1–24,**2005**.
- [63] **N. Bouregbaa, Y. Benmimoun, B. Meddabh, A. Tilmatine& A. Ouldoumnad**," Ozonation of wastewater in Algeria by dielectric barrier discharge," Science & Engineering: The Journal of the International Ozone Association Vol.52, **2014**
- [64] **U. Kogelschatz, B. Eliasson, M. Hirth**, "Ozone generation from oxygen and air: discharge physics and reaction mechanisms", Ozone Sci. Eng.Vol.9, pp367–377, **1987**.
- [65] **J. Kitayama, M. Kuzumoto**, "Theoretical and experimental study on ozone generation characteristics of an oxygen-fed ozone generator in silent discharge", J. Phys. D: Appl. Phys. Vol. 30, pp2453–2461, **1997**.
- [66] **V.I. Gibalov, G.J. Pietsch**, "The development of dielectric barrier discharges in gas gaps and on surfaces," J. Phys. D: Appl. Phys. Vol.33, pp 2618–2636, **2000**.
- [67] **F. Massines, P. Ségur, N. Gherardi, C. Khamphan, and A. Ricard**, "Physics and chemistry in a glow dielectric barrier discharge at atmospheric pressure: diagnostics and modeling," Surf. Coat. Tech.,Vol. 175,pp 8-14, **2003**.
- [68] **T-L .Sung,S. Teii ,C-M. Liu ,R-C. Hsiao ,P-C. Chen , Y-H.Wu ,K. Ebihara** , "Effect of pulse power characteristics and gas flow rate on ozone production in a cylindrical dielectric barrier discharge ozonizer," Vacuum, Vol. 90, pp65–69, **2013**.
- [69] **I.Jenei, P.Kis, E.Kiss**, "The development of ozone generators with the analysis of the field distribution of the electrode arrangements." Ozone: Science and Engineering, Vol.29 (3), pp215-220, **2007**.
- [70] **C.Wang , G.Zhang , X.Wang**, "Comparisons of discharge characteristics of a dielectric barrier discharge with different electrode structures."Vacuum, Vol86 (7), pp960–964, **2012**.
- [71] **S.Masuda , K.Akutsu, M.Kuroda, Y.Awatsu and Y. Shibuya** "A ceramic-based ozonizer using high-frequency discharge," IEEE Trans. Ind. Appl.Vol242,pp 23–31,**1988**.
- [72] **Y.Zhao Y, K.Shang , L.Duan L, Y.Li , J.An , C.Zhang , Y.Wu** , "Influence of power supply on the generation of ozone and degradation of phenol in a surface discharge reactor," Journal of Physics Conference Series 418(1),pp 12131-12136,**2013**.
- [73] **Williamson , D.Trump, P.Bletzinger , N.Ganguly**, "Comparison of high-voltage ac and pulsed operation of a surface dielectric barrier discharge." Journal of Physics D: Applied

Physics Vol39(20),pp 4400–4406,2006

- [74] **J.Jolibois, K. Takashima , A.Mizuno** , “Application of a non-thermal surface plasma discharge in wet condition for gas exhaust treatment: NOx removal.” Journal of Electrostatics, Vol 70, pp 300-308,2012.
- [75] **Nomoto.Yukiharu, O.Toshikazu , K.Seiji and A.Takayoshi** ,” improvement of ozone yield by a silent-surface hybrid discharge ozonizer,” IEEE transaction on industry applications, Vol. 31, N^o 6, pp1458-1462,1995
- [76] **Cieplak, T., C. Yamabe, S. Ihara, S. Satoh, J. Pawlat, J. Cieplak, and I. Pollo**, ‘Ozone Generation Using Plate Rotating Electrode Ozonizer-Effect of Electrode Rotation and discharge Analysis Method’, Ozone: Sci. Eng. 22:563–574 (2000).
- [77] **Diaz,R.,A.Marquez,D.Menendez,andR.Perez**, “MediumFrequency Pulse Train OzoneGeneration”, Ozone: Sci. Eng. 21:635–642 (1999).
- [78] **Eliasson, B., M. Hirth, and U. Kogelschatz**, “Ozone Synthesis from Oxygen in Dielectric Barrier Discharges”, J. Phys. D: Appl. Phys.20:1421–1437 (1987).
- [79] **Garamoon, A. A., F. F. Elakshar, A. M. Nossair, and E. F. Kotp**, “Experimental Study of Ozone Synthesis”, Plasma Sources Sci.Tech. 11:254–259 (2002).
- [80] **Jodzis, S.** “Effect of Silica Packing on Ozone Synthesis from Oxygen-Nitrogen Mixtures”, Ozone: Sci. Eng. 25:63–72 (2003).
- [81] **Jogan, K., A. Mizuno, T. Yamamoto, and J. S. Chang**, “the Effect of Residence Time on the CO2 Reduction from Combustion Flue Gases by an AC Ferroelectric Packed Bed Reactor”, IEEE Trans. Ind. Appl. 29(5):876–881 (1993).
- [82] **U. Kogelschatz, B. Eliasson, M. Hirth**, “Ozone generation form oxygen and air: discharge physics and reaction mechanisms”, Ozone. Sci. Eng. 10:367-378. (1987)
- [83] **T. Jaoher, M. Oubalkace, M. Makhoh**, Colloque international « Gestion des Rejets Industriels pour un Développement Durable ». Fac. Sc. d’El Jadida-Maroc. (1997).
- [84] **H. Lin Shengh, Y. Lin Wen**, Environ. Teach, 15, 299-311. 1994.
- [85] **J. Carriere, J. Peter Jones, D. B. Arhur**, “Decolorization Of Textile Dye Solutions “ Ozone, Sci. Engin., 15 189-200. (1993).
- [86] **M. El Krati**, «Immobilization of vegetable tannins on tannery chrome shavings and their use for the removal of hexavalent chromium from contaminated water” Thèse de doctorat d’Etat (Chimie), Fac. Sci. El Jadida, Univ. Chouaïb Doukkali (2000).
- [87] **L. Szyrkowicz**, ”A Comparative study on oxidation of disperse dyes by electrochemical process, ozone, hypochlorite and fenton reagent “, Wat.Res., 35 (9) 2129-2136, 2001.

- [88] **Abidi nadjib**, “interaction argile naturelle-effluents teinture-influence des propriétés de surface des argiles et mécanismes d’adsorption des colorants”, thèse de doctorat, université de bizerte, (2015).
- [89] **Robins on T., G. McMullan , R. Marchant et P. Nigam,**” Remediation of dyes in textile effluent: a critical review on current treatment technologies with a proposed alternative”. *Bioresour. Technol.*, 77, 247-255. **2001**.
- [90] **Taylor J.S. et E.P. Jacobs**, “Water treatment membrane processes”. New- York, NY, 238 p, **1996**.
- [91] **Van der Zee F.P. et S. Villaverde**, “Combined anaerobic–aerobic treatment of azo dyes - A short review of bioreactor studies”. *Water Res.*, 39, 1425-1440, **2005**.
- [92] **Anselem C. et E.P. Jacobs,**”Water treatment membrane processes.” Mallevalle, New York, NY, USA, pp. 401-1087, **1996**.
- [93] **Hao O.J., H. Kim et P.C. Chiang** , “ Decolorization of wastewater”, *Crit. Rev. Environ. Sci. Technol.*, 30, 449-505, **2003**.
- [94] **Benmansour H., D. Coroller , D. Barillier , K. Ghedira , L. Chekir et R. Mosrati** ,” Evaluation of genotoxicity and pro-oxidant effect of the azo dyes: Acids yellow 17, violet 7 and orange 52, and their biodegradation products by *Pseudomonas putida* mt-2. *Food Chem. Toxicol.*, 45, 1670-1677, **2007**.
- [95] **Lin, S. H., & Lin, C. M,** ” Treatment of textile waste effluents by ozonation and chemical coagulation”. *Water research*, 27(12), 1743-1748.**1993**.
- [96] **Chebli derradji,** ” Traitement des eaux usées industrielles: Dégradation des colorants azoïques par un procédé intégré couplant un procédé d’oxydation avancée et un traitement biologique”, thèse de doctorat, université Ferhat Abbas, Sétif, **2012**.
- [97] **Lemlikchi wahiba,** ” Elimination de la pollution des eaux industrielles par différents procédés d’oxydation et de co-précipitation”, thèse de doctorat, université Mouloud Mammeri, Tizi ouzou, **2012**.
- [98] **Robert D., Parra S., Pulgarin C., Krzton A., Weber J.V,** “Chemisorption of phenols and acids on TiO₂ surface” ,*Appl. Surf. Sci.* 167, 51-58. **2000**.
- [99] **Guillard C., Lachheb H., Houas A., Ksibi M., Elaloui E., Herrmann J.M.,** “Influence of chemical structure of dyes, of pH and of inorganic salts on their photocatalytic degradation by TiO₂ comparison of the efficiency of powder and supported TiO₂”, *Photochem.Photobiol. A: Chem.* 158 27-36. **2003**.
- [100] **M. Capon, V. Courilleu, C. Valette,** *Chimie des couleurs et des odeurs*, Nantes,

Culture et technique, **1999**.

[101] **JORA**, Annexe des valeurs limites maximales des paramètres de rejet des installations de déversement industrielles (Annex of the maximum values limits of the rejection parameters of industrial spills installations), Journal Officiel de la République Algérienne, N°26, Avril, **2006**.

[102] **JORA**, Spécification des eaux usées épureées utilisées à des fins d'irrigation (Specifying of purified wastewater used for irrigation purposes), Journal Officiel de la République Algérienne, N°41, 15 Juillet, **2012**.

[103] **OMS**, L'utilisation des eaux usées en agriculture et aquaculture: recommandation avisées sanitaires (The Use of Wastewater in Agriculture and Aquaculture: Informed Sanitary Recommendations), Organisation Mondiale de la Santé, Genève, pp. 17–60. **1989**.

Liste des travaux de recherche

Publications :

- 1- Nemmich, S., A. Tilmatine, Z. Dey, N. Hammadi, **K. Nassour**, and S. Messal. “**Optimal Sizing of a DBD Ozone Generator Using Response Surface Modeling.**” *Ozone: Science & Engineering* 37 (1) :3–8. 2015.
- 2- **Kamel Nassour**, Mostefa Brahami, Said Nemmich, Nacera Hammadi, Noureddine Zouzou & Amar Tilmatine, “**Comparative Experimental Study between Surface and Volume DBD Ozone Generator** ” *Ozone: Science & Engineering* 38(1) :70–76. 2016.
- 3- **Kamel Nassour**, Mostefa Brahami, Said Nemmich, Nacera Hammadi, Amar Tilmatine Noureddine Zouzou “**A new hybrid surface-volume dielectric barrier discharge reactor for ozone generation**” *IEEE Trans. Ind. Appl.* (sous commission de lecture).

Communications :

- 1- Nemmich, S., Z. Dey, Y. bellebne ,N. Hammadi, **K. Nassour**, A. Tilmatine. “**Dimensionnement géométrique optimal d’un générateur d’ozone à décharge à barrière diélectrique**”, 9ème conférence de la Société Française d’Electrostatique, 27-29 août 2014, Toulouse, France.
- 2- **K. Nassour** , M.Brahami, S.Nemmich, N. Hammadi, A. Tilmatine , N. Zouzou, “**A Surface DBD Ozone Generator for Textile Wastewater Treatment** ” 10 ème conférence nationale de la haute tension ; Alger 24-26 mai 2016 .
- 3- **K. Nassour**, M. Brahami, S. Nemmich, F.Miloua, N. Zouzou, N.Ramdani, A. Tilmatine, “ **Etude expérimentale comparative des générateurs d’ozone à DBD surfacique et volumique pour le traitement de l’eau**”, 10 ème conférence de la Société Française d’Electrostatique, 29-31 août 2016, Poitiers, France.
- 4- A. Chebbah, S.Hadjeri, **K.Nassour**, S.Nemmich, N.Zouzou, A.Tilmatine, “**Développement d’un nouveau générateur d’ozone à DBD surfacique à haute concentration**”, 10 ème conférence de la Société Française d’Electrostatique, 29-31 août 2016, Poitiers, France.

- 5- F. Tounsi, F. Miloua, **K. Nassour**, S. Nemnich, A. Tilmatine, R. Ouiddir, **"Contribution à l'étude électrothermique d'un réacteur plasma à barrière diélectrique poreuse en tension continue"** , 10 ème conférence de la Société Française d'Electrostatique, 29-31 août 2016, Poitiers, France.
- 6- **Kamel Nassour**, Mostefa Brahami, Said Nemnich, Nacera Hammadi, Amar Tilmatine, Noureddine Zouzou **"A new hybrid surface-volume dielectric barrier discharge reactor for ozone generation"** IEEE Industry Applications Society, Annual Meeting, 18-22 octobre 2015 Dallas, Texas, USA
- 7- **Nassour Kamel**, Brahami Mostefa, Nemnich Said, Hammadi Nacera, Tilmatine Amar and Zouzou, Noureddine , **"Developpement d'un nouveau générateur d'ozone à décharge à barrière diélectrique. Application pour le traitement de l'eau"**, Conférence Internationale en Sciences et Technologies Electriques au Maghreb, 26-28 Octobre 2016 , Marrakech, Maroc

Annexe

(Valeurs limites des rejets liquides industriels)

DECRETS

Décret exécutif n° 06-141 du 20 Rabie El Aouel 1427 correspondant au 19 avril 2006 définissant les valeurs limites des rejets d'effluents liquides industriels.

Le Chef du Gouvernement,

Sur le rapport du ministre de l'aménagement du territoire et de l'environnement,

Vu la Constitution, notamment ses articles 85-4° et 125 (alinéa 2) ;

Vu la loi n° 90-08 du 7 avril 1990, complétée, relative à la commune ;

Vu la loi n° 90-09 du 7 avril 1990, complétée, relative à la wilaya ;

Vu la loi n° 03-10 du 19 Jomada El Oula 1424 correspondant au 19 juillet 2003 relative à la protection de l'environnement dans le cadre du développement durable ;

Vu la loi n° 04-04 du 5 Jomada El Oula 1425 correspondant au 23 juin 2004 relative à la normalisation ;

Vu la loi n° 05-07 du 19 Rabie El Aouel 1426 correspondant au 28 avril 2005 relative aux hydrocarbures ;

Vu le décret présidentiel n° 04-136 du 29 Safar 1425 correspondant au 19 avril 2004 portant nomination du Chef du Gouvernement ;

Vu le décret présidentiel n° 05-161 du 22 Rabie El Aouel 1426 correspondant au 1er mai 2005 portant nomination des membres du Gouvernement ;

Vu le décret exécutif n° 93-160 du 10 juillet 1993 réglementant les rejets d'effluents liquides industriels ;

Décète :

Article 1er. — En application des dispositions de l'article 10 de la loi n° 03-10 du 19 juillet 2003, susvisée, le présent décret a pour objet de définir les valeurs limites des rejets d'effluents liquides industriels.

SECTION 1

DES DISPOSITIONS PRELIMINAIRES

Art. 2. — Au sens du présent décret on entend par rejet d'effluents liquides industriels tout déversement, écoulement, jet et dépôt d'un liquide direct ou indirect qui provient d'une activité industrielle.

Art. 3. — Les valeurs limites de rejets d'effluents liquides industriels sont celles fixées en annexe du présent décret.

Toutefois, en attendant la mise à niveau des installations industrielles anciennes dans un délai de cinq (5) ans, les valeurs limites des rejets d'effluents liquides industriels prennent en charge l'ancienneté des installations industrielles en déterminant une tolérance pour les rejets d'effluents liquides industriels émanant de ces installations. Ces valeurs sont fixées et annexées au présent décret.

Pour les installations pétrolières, le délai est de sept (7) ans conformément aux dispositions législatives en vigueur, et notamment celles de la loi n° 05-07 du 19 Rabie El Aouel 1426 correspondant au 28 avril 2005, susvisée,

En outre et en raison des particularités propres aux technologies utilisées, des tolérances particulières aux valeurs limites sont également accordées selon les catégories industrielles concernées. Ces tolérances sont annexées au présent décret.

SECTION 2

DES PRESCRIPTIONS TECHNIQUES RELATIVES AUX REJETS D'EFFLUENTS LIQUIDES INDUSTRIELS

Art. 4. — Toutes les installations générant des rejets d'effluents liquides industriels doivent être conçues, construites et exploitées de manière à ce que leurs rejets d'effluents liquides industriels ne dépassent pas à la sortie de l'installation les valeurs limites des rejets définies en annexe du présent décret et doivent être dotées d'un dispositif de traitement approprié de manière à limiter la charge de pollution rejetée.

Art. 5. — Les installations de traitement doivent être conçues, exploitées et entretenues de manière à réduire à leur minimum les durées d'indisponibilité pendant lesquelles elles ne peuvent assurer pleinement leur fonction.

Si une indisponibilité est susceptible de conduire à un dépassement des valeurs limites imposées, l'exploitant doit prendre les dispositions nécessaires pour réduire la pollution émise en réduisant ou en arrêtant, si besoin, les activités concernées.

SECTION 3

DU CONTROLE DES REJETS D'EFFLUENTS LIQUIDES INDUSTRIELS

Art. 6. — Au titre de l'autocontrôle et de l'autosurveillance les exploitants d'installations générant des rejets d'effluents liquides industriels doivent tenir un registre où sont consignés la date et les résultats des analyses qu'ils effectuent selon des modalités fixées par arrêté du ministre chargé de l'environnement et, le cas échéant, du ministre chargé du secteur concerné.

Les mesures sont effectuées sous la responsabilité de l'exploitant et à ses frais dans les conditions fixées par la réglementation en vigueur.

Art. 7. — Les résultats des analyses doivent être mises à la disposition des services de contrôle habilités.

Art. 8. — Les services habilités en la matière effectuent des contrôles périodiques et ou inopinés des caractéristiques physiques, chimiques et biologiques des rejets d'effluents liquides industriels visant à s'assurer de leur conformité aux valeurs limites fixés en annexe du présent décret.

Art. 9. — Le contrôle des rejets comporte un examen des lieux, des mesures et analyses opérées sur place et des prélèvements d'échantillons aux fins d'analyses.

Art. 10. — L'exploitant de l'installation concernée est tenu d'expliquer, commenter ou fonder tout dépassement éventuellement constaté et fournir les actions correctives mises en œuvre ou envisagées.

Art. 11. — Les opérations de contrôle, telles que définies ci-dessus, donnent lieu à la rédaction d'un procès-verbal établi à cet effet.

Le procès-verbal comporte :

— les noms, prénoms et qualité des personnes ayant effectué le contrôle,

— la désignation du ou des générateurs du rejet d'effluents liquides industriels et de la nature de leur activité,

— la date, l'heure, l'emplacement et les circonstances de l'examen des lieux et des mesures faites sur place,

— les constatations relatives à l'aspect, la couleur, l'odeur du rejet, l'état apparent de la faune et de la flore à proximité du lieu de rejet et les résultats des mesures et des analyses opérées sur place,

— l'identification de chaque échantillon prélevé, accompagné de l'indication de l'emplacement, de l'heure et des circonstances de prélèvement,

— le nom du ou des laboratoires destinataires de l'échantillon prélevé.

Art. 12. — Les méthodes d'échantillonnage, de conservation et de manipulation des échantillons ainsi que les modalités d'analyses sont effectuées selon les normes algériennes en vigueur.

Art. 13. — Toutes dispositions contraires au présent décret et notamment les dispositions du décret exécutif n° 93-160 du 10 juillet 1993, susvisé, sont abrogées.

Art. 14. — Le présent décret sera publié au *Journal officiel* de la République algérienne démocratique et populaire.

Fait à Alger, le 20 Rabie El Aouel 1427 correspondant au 19 avril 2006.

Ahmed OUYAHIA.

ANNEXE I

VALEURS LIMITES DES PARAMETRES DE REJETS D'EFFLUENTS LIQUIDES INDUSTRIELS

N°	PARAMETRES	UNITE	VALEURS LIMITES	TOLERANCES AUX VALEURS LIMITES ANCIENNES INSTALLATIONS
1	Température	°C	30	30
2	PH	-	6,5 - 8,5	6,5 - 8,5
3	MES	mg/l	35	40
4	Azote Kjeldahl	"	30	40
5	Phosphore total	"	10	15
6	DCO	"	120	130
7	DBO5	"	35	40
8	Aluminium	"	3	5
9	Substances toxiques bioaccumulables	"	0,005	0,01
10	Cyanures	"	0,1	0,15
11	Fluor et composés	"	15	20
12	Indice de phénols	"	0,3	0,5
13	Hydrocarbures totaux	"	10	15
14	Huiles et graisses	"	20	30
15	Cadmium	"	0,2	0,25
16	Cuivre total	"	0,5	1
17	Mercuré total	"	0,01	0,05
18	Plomb total	"	0,5	0,75
19	Chrome Total	"	0,5	0,75
20	Etain total	"	2	2,5
21	Manganèse	"	1	1,5
22	Nickel total	"	0,5	0,75
23	Zinc total	"	3	5
24	Fer	"	3	5
25	Composés organiques chlorés	"	5	7

PH : Potentiel d'hydrogène
DBO₅ : Demande biologique en oxygène pour une période de cinq (5) jours
DCO : Demande chimique en oxygène
MES : Matière en suspension

ANNEXE II

TOLERANCE A CERTAINES VALEURS LIMITEES DES PARAMETRES DE REJETS D'EFFLUENTS LIQUIDES INDUSTRIELS SELON LES CATEGORIES D'INSTALLATIONS

1 - INDUSTRIE AGRO-ALIMENTAIRE :

a - Abattoirs et transformation de la viande :

PARAMETRES	UNITE	VALEURS LIMITEES	TOLERANCE AUX VALEURS LIMITEES ANCIENNES INSTALLATIONS
Volume /quantité	m3/t carcasse traitée	6	8
PH	-	5,5 - 8,5	6-9
DBO ₅	g/t	250	300
DCO	"	800	1 000
Matière décantable	"	200	250

b - Sucrierie :

PARAMETRES	UNITE	VALEURS LIMITEES	TOLERANCE AUX VALEURS LIMITEES ANCIENNES INSTALLATIONS
Température	°C	30	30
PH	-	6-9	6-9
DBO ₅	mg/l	200	400
DCO	"	200	250
MES	"	300	350
Huiles et graisses	"	5	10

c - Levurerie :

PARAMETRES	UNITE	VALEURS LIMITEES	TOLERANCE AUX VALEURS LIMITEES ANCIENNES INSTALLATIONS
Température	°C	30	35
PH	-	5,5 - 8,5	6,5 - 8,5
DBO ₅	mg/l	100	120
DCO	"	7 000	8 000
MES	"	30	50

d - Brasserie :

PARAMETRES	UNITE	VALEURS LIMITEES	TOLERANCE AUX VALEURS LIMITEES ANCIENNES INSTALLATIONS
Température	°C	30	30
PH	-	5,5 - 8,5	9 - 10,5
DBO ₅	g/t de malt produit	250	300
DCO	"	700	750
MES	"	250	300

PH : Potentiel d'hydrogène

DBO₅ : Demande biologique en oxygène pour une période de cinq (5) jours

DCO : Demande chimique en oxygène

MES : Matière en suspension

e - Corps Gras :

PARAMETRES	UNITE	VALEURS LIMITES	TOLERANCE AUX VALEURS LIMITES ANCIENNES INSTALLATIONS
Température	°C	30	30
PH	-	5,5 - 8,5	6-9
DBO ₅	g/t	200	250
DCO	"	700	800
MES	"	150	200

2 - Industrie de l'Energie :**a - Raffinage de pétrole :**

PARAMETRES	UNITE	VALEURS LIMITES	TOLERANCE AUX VALEURS LIMITES ANCIENNES INSTALLATIONS
Débit d'eau	m ³ /t	1	1,2
Température	°C	30	35
PH	-	5,5 - 8,5	5,5 - 8,5
DBO ₅	g/t	25	30
DCO	"	100	120
MES	"	25	30
Azote total	"	20	25
Huiles et graisses	mg/l	15	20
Phénol	g/t	0,25	0,5
Hydrocarbures	g/t	5	10
Plomb	mg/l	0,5	1
Chrome 3+	"	0,05	0,3
Chrome 6+	"	0,1	0,5

b - Cokéfaction :

PARAMETRES	UNITE	VALEURS LIMITES	TOLERANCE AUX VALEURS LIMITES ANCIENNES INSTALLATIONS
DBO ₅	mg/l	30	40
DCO	"	120	200
Phosphores	"	2	2
Cyanures	"	0,1	0,1
Composés d'Azote	"	35	40
Indice Phénols	"	0,3	0,5
Benzène, Toluène, Xylène	"	0,08	0,1
Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques	"	0,08	0,1
Sulfure	"	0,08	0,1
Substances filtrables	"	40	50

PH : Potentiel d'hydrogène
DBO₅ : Demande biologique en oxygène pour une période de cinq (5) jours
DCO : Demande chimique en oxygène
MES : Matière en suspension

3 - Industrie mécanique :

PARAMETRES	UNITE	VALEURS LIMITES	TOLERANCE AUX VALEURS LIMITES ANCIENNES INSTALLATIONS
Température	°C	30	30
PH	-	5,5- 8,5	5,5- 8,5
DCO	mg/l	300	350
Cyanure	"	0,1	0,15
Cuivre	"	0,7	1
Nickel	"	0,7	1
Zinc	"	2,5	3
Plomb	"	0,7	1
Cadmium	"	0,5	1
Hydrocarbures	"	15	20
Phénol	"	0,5	1
Métaux totaux	"	20	25

4 - Industrie de transformation des métaux :

PARAMETRES	UNITE	VALEURS LIMITES	TOLERANCE AUX VALEURS LIMITES ANCIENNES INSTALLATIONS
Cuivre	mg/l	1.5	2
Nickel	"	2	2,5
Chrome	"	1,5	2
Fer	"	5	7,5
Aluminium	"	5	7,5

5 - Industrie de minerais non métallique :**a - Céramique :**

PARAMETRES	UNITE	VALEURS LIMITES	TOLERANCE AUX VALEURS LIMITES ANCIENNES INSTALLATIONS
Température	°C	30	30
PH	-	5,5 - 8,5	5,5 - 8,5
DCO	mg/l	80	120
Matière décantable	"	0,5	1
Plomb	"	0,5	1
Cadmium	"	0,07	0,2

b - Verre :

PARAMETRES	UNITE	VALEURS LIMITES	TOLERANCE AUX VALEURS LIMITES INDUSTRIES ANCIENNES
Température	°C	30	30
PH	-	5,5 - 8,5	5,5 - 8,5
DCO	mg/l	80	120
MES	"	0,3	0,5
Plomb	"	0,5	1
Cadmium	"	0,07	0,2
Chrome	"	0,1	0,1
Cobalt	"	0,1	0,1
Cuivre	"	0,1	0,3
Nickel	"	0,1	0,5
Zinc	"	2	5

PH : Potentiel d'hydrogène
DCO : Demande chimique en oxygène
MES : Matière en suspension

c - Ciment, plâtre et chaux :

PARAMETRES	UNITE	VALEURS LIMITES	TOLERANCE AUX VALEURS LIMITES ANCIENNES INSTALLATIONS
Température	°C	30	30
PH	-	5,5 - 8,5	5,5 - 8,5
DCO	mg/l	80	120
Matière décantable	"	0,5	1
Plomb	"	0,5	1
Cadmium	"	0,07	0,2
Chrome	"	0,1	0,1
Cobalt	"	0,1	0,1
Cuivre	"	0,1	0,3
Nickel	"	0,1	0,5
Zinc	"	2	5

6 - Industrie de textile :

PARAMETRES	UNITE	VALEURS LIMITES	TOLERANCE AUX VALEURS LIMITES ANCIENNES INSTALLATIONS
Température	°C	30	35
PH	-	6,5-8,5	6-9
DBO ₅	mg/l	150	200
DCO	"	250	300
Matière décantable	"	0,4	0,5
Matière non dissoute	"	30	40
Oxydabilité	"	100	120
Permanganate	"	20	25

7 - Industrie de tannerie et mégisserie :

PARAMETRES	UNITE	VALEURS LIMITES	TOLERANCE AUX VALEURS LIMITES INDUSTRIES ANCIENNES
DBO ₅	mg/l	350	400
DCO	"	850	1000
MES	"	400	500
Chrome total	"	3	4

PH : Potentiel d'hydrogène
DBO₅ : Demande biologique en oxygène pour une période de cinq (5) jours
DCO : Demande chimique en oxygène
MES : Matière en suspension

Résumé

« Optimisation du procédé de génération d’ozone par décharge à barrière diélectrique mixte « surfacique-volumique » pour le traitement d’eau »

Une décharge à barrière diélectrique est un plasma froid hors équilibre généré à la pression atmosphérique entre deux électrodes recouvertes de diélectrique. La configuration géométrique des électrodes dans ce type de décharge volumique, qui est la plus utilisée, peut-être de nature plan-plan, pointe-plan, multipointes-plan, lame-cylindre, fil-cylindre et cylindre-cylindre. Le but principal cette thèse est de réaliser et étudier plusieurs types des générateurs cylindriques à décharge à barrière diélectrique surfacique, volumique et hybride, et évaluer la faisabilité d’un procédé de traitement des eaux par ozonation, modéliser et optimiser le rendement en termes de taux de production d’ozone et consommation d’énergie. En plus cette technique sera impliquée dans un processus de traitement d’eaux urbaines et industrielles.

Mots-clés : décharge à barrière diélectrique, générateur d’ozone, décharge surfacique, décharge volumique, décharge mixte, traitement de l’eau.

Abstract

“Optimization of the ozone generation process by mixed dielectric barrier discharge "surface-volume" for water treatment”

A dielectric barrier discharge is a non-equilibrium plasma generated at atmospheric pressure between two electrodes covered with dielectric. The geometric configuration of the electrodes in this type of discharge volume, which is the most used, perhaps nature plane-plane, point-plane, multipointes -plane, blade- cylinder, wire- cylinder and cylinder-cylinder. The main is study and perform several types of generators cylindrical with surface dielectric barrier discharge, volume and hybrid, and assess the feasibility of a water treatment process by ozonation, model and optimize performance in terms of rates ozone production and energy consumption in addition this technique will be involved in a treatment process of urban and industrial waste water.

Keywords: dielectric barrier discharge, ozone generator, surface discharge, discharge volume, hybrid discharge, water treatment.

ملخص

" تحسين عملية توليد الأوزون من خلال التفريغ بالحاجز العازل المختلط "سطحي- حجمي" لمعالجة المياه"

التفريغ بالحاجز العازل هو عبارة عن بلازما غير متوازنة تتولد في ضغط جوي بين قطبين مغطين بعازل. الشكل الهندسي للأقطاب في هذا النوع من التفريغ الحجمي، وهو الأكثر استخداماً، قد يكون سطحي من الجهتين أو أسطواناني. الغرض الرئيسي من هذا البحث هو دراسة وتجريب العديد من أنواع المولدات بواسطة التفريغ بالحاجز العازل السطحي، الحجمي و الهجين وتقييم مدى نجاعتها في عملية معالجة المياه المستعملة (الحضرية والصناعية) بالأوزون.

كلمات البحث: الحاجز العازل، مولد الأوزون، تفريغ سطحي، تفريغ حجمي، تفريغ هجين ، معالجة المياه .