

**Titre:** Décharges à barrière diélectrique dans l'hélium et le néon à la pression atmosphérique  
**Title:**

**Auteur:** Aziz Berchtikou  
**Author:**

**Date:** 2010

**Type:** Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

**Référence:** Berchtikou, A. (2010). Décharges à barrière diélectrique dans l'hélium et le néon à la pression atmosphérique [Mémoire de maîtrise, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/471/>  
**Citation:**

 **Document en libre accès dans PolyPublie**  
Open Access document in PolyPublie

**URL de PolyPublie:** <https://publications.polymtl.ca/471/>  
**PolyPublie URL:**

**Directeurs de recherche:** Michael R. Wertheimer, & Raman Kashyap  
**Advisors:**

**Programme:** Génie physique  
**Program:**

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

DÉCHARGES À BARRIÈRE DIÉLECTRIQUE DANS L'HÉLIUM ET LE NÉON  
À LA PRESSION ATMOSPHÉRIQUE

AZIZ BERCHTIKOU

DÉPARTEMENT DE GÉNIE PHYSIQUE  
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION  
DU DIPLÔME DE MAITRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES  
(GÉNIE PHYSIQUE)

DÉCEMBRE 2010

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

DÉCHARGES À BARRIÈRE DIÉLECTRIQUE DANS L'HÉLIUM ET LE NÉON  
À LA PRESSION ATMOSPHERIQUE

présenté par : BERCHTIKOU Aziz .

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

Mme. SANTATO Clara, Ph.D., présidente.

M. WERTHEIMER Michael R., D.Sc.A., membre et directeur de recherche.

M. KASHYAP Raman, Ph.D., membre et codirecteur de recherche.

M. STAFFORD Luc, Ph.D., membre.

## DÉDICACE

À la Beauté !

## REMERCIEMENTS

Mes remerciements vont tout d'abord à mon directeur de recherche, le professeur Michel Wertheimer, pour avoir accepté que je réalise ce travail au sein de son équipe, et pour l'avoir dirigé avec une grande disponibilité. Sa rigueur scientifique, son enthousiasme et ses conseils m'ont été très précieux dans l'aboutissement de ce travail. Malgré mes limites, je lui sais gré de la confiance qu'il m'a accordée tout au long de ce parcours.

Que mon codirecteur de recherche, le professeur Raman Kashyap, reçoive ici l'expression de ma profonde gratitude pour son aide et ses encouragements. Sa collaboration fut décisive tout au long de ce travail.

Je tiens à remercier de façon particulière Monsieur Bachir Saoudi Pour les nombreuses discussions, qui ont permis d'orienter cette étude et sa contribution dans la rédaction de ce document.

Je remercie également la professeure Clara Santato d'avoir accepté de présider ce jury, et le professeur Luc Stafford d'en être membre.

Pensées affectueuses à l'ensemble des membres du département de Génie Physique que j'ai côtoyés tout au long de ces deux années : les étudiants, le personnel administratif autant que les techniciens. Merci à tous.

## RÉSUMÉ

Les décharges à barrière diélectrique (DBD) à la pression atmosphérique font partie des plasmas hors-équilibre thermodynamique. Elles peuvent être opérées en mode « filamentaire » ainsi que Townsend. Une des spécificités de cette décharge est qu'une électrode (ou les deux) est recouverte par un matériau diélectrique. Généralement, une DBD à la pression atmosphérique est une décharge filamentaire, mais en 1968 Bartnikas a rapporté l'existence d'une décharge luminescente uniforme dans He, maintenant dite « Atmospheric Pressure Glow Discharge (APGD) », c'est-à-dire « décharge luminescente à la pression atmosphérique », caractérisée par une seule impulsion de courant par demi-cycle de la tension alternative appliquée. Postérieurement, plusieurs chercheurs ont rapporté des décharges homogènes à la pression atmosphérique dans d'autres gaz ou mélanges gazeux. La majorité des études ont été faites dans He puisqu'il représente un milieu gazeux inerte, c'est-à-dire essentiellement sans réactivité chimique et sans problèmes de décomposition, donc un gaz qui peut être relativement facilement étudié et modélisé, au moins en première approximation.

Parmi les caractéristiques essentielles du plasma, la température du gaz est évidemment un paramètre très important à contrôler. Par exemple, pour le traitement ou modification de matériaux par plasma, une température trop élevée peut causer des dommages substantiels, particulièrement aux matériaux thermosensibles comme les polymères.

Les objectifs de cette recherche sont : 1) déterminer la température du gaz dans une APGD d'un gaz rare (He et Ne), en utilisant la spectroscopie d'émission optique (OES), qui a l'avantage d'être une technique de diagnostic non perturbatrice. Ceci a été accompli en utilisant le spectre rotationnel provenant du « First Negative System » (FNS)  $N_2^+(B^2\Sigma_u^+, v' = 0 \rightarrow X^2\Sigma_g^+, v'' = 0)$  qui a l'avantage de pouvoir être résolu même avec un spectrographe de résolution moyenne. La température rotationnelle,  $T_{rot}$ , peut alors être estimée simplement à partir d'un graphique de Boltzmann ; 2) étudier les effets thermiques liés au transfert de chaleur dans ces deux gaz rares, He et Ne ; 3) Finalement, étudier l'évolution spatio-temporelle de l'émission lumineuse provenant des espèces excitées dans les décharges de He et Ne, en utilisant une caméra numérique ultra-rapide.

La décharge APGD faisant l'objet du présent travail, est créée entre une électrode plane recouverte d'une mince (1 mm d'épaisseur) lame diélectrique circulaire d'alumine ( $Al_2O_3$ ), reliée

à la masse et séparée d'une distance de 3.0 mm d'une deuxième électrode en forme de pointe (aiguille). Celle-ci est en acier inoxydable, dont l'extrémité de la pointe présente un rayon de courbure de 20  $\mu\text{m}$  (Ogura Jewel Co., Japon), et est alimentée en haute tension sinusoïdale de fréquence 10 kHz. Les spectres d'émission ont été enregistrés à l'aide d'un spectrographe de distance focale de 0.5 m, couplé à un détecteur ICCD. La lumière provenant de la décharge est dirigée vers la fente du spectrographe à l'aide d'un dispositif optique mobile, capable de fournir une résolution spatiale d'environ 100  $\mu\text{m}$ .

Pour l'APGD de He, la  $T_{\text{rot}}$  atteint 450 K au voisinage de la pointe, et est d'environ 430 K près du diélectrique ( $z = 0$  mm) ; entre les deux électrodes, elle atteint sa valeur minimale d'environ 408 K pour  $z \approx 1.5$  mm. Pour l'APGD de Ne, la  $T_{\text{rot}}$  décroît de façon monotone de  $\sim 750$  K à  $\sim 580$  K lorsqu'on part de l'électrode-pointe ( $z = 3.0$  mm) vers le diélectrique (entre  $z = 0$  mm). Nos résultats montrent que l'APGD de Ne présente un gradient de température de 170 K, contrastant avec celui de l'APGD de He qui est seulement de 30 K. La distribution thermique plus homogène dans le cas de l'APGD de He s'explique par la conductivité thermique beaucoup plus élevée de He qui favorise un transfert rapide d'énergie calorifique, d'un endroit à l'autre du plasma. Par ailleurs, nous avons montré que la  $T_{\text{rot}}$  diminue de façon monotone au fur et à mesure que le débit de gaz augmente, et ce pour une même tension électrique imposée dans chacune des APGD. Néanmoins, l'écart de température est maintenu pour les deux APGD à plus de 200 K, quel que soit le débit et la distance à laquelle on se trouve entre les deux électrodes.

L'imagerie par caméra ICCD nous a permis de déterminer les « durées de vie » des deux décharges (entre 12 à 14  $\mu\text{s}$  environ), en précisant les temps de montée et de descente de l'intensité totale d'émission. Cette analyse spatio-temporelle de l'émission totale a en outre permis d'observer que l'APGD de Ne présente, au contraire de celle de He, une plus forte luminosité, notamment en son centre. Quant à l'APGD de He (dans son cycle positif), elle présente une « structure bipolaire » : intense vers la pointe et au niveau du diélectrique, avec une très faible émission dans l'intervalle situé à mi-parcours, entre ces deux zones.

## ABSTRACT

The purpose of this research has been to measure temperature,  $T$ , in dielectric barrier discharges (DBD) using optical emission spectroscopy (OES), which has the great advantage of being non-intrusive and non-perturbing. This is accomplished by analyzing high-resolution rotational bands in the emission spectra of suitable electronically-excited molecular species in the discharge.

Several molecules have in the past been used for this purpose, but the most frequently studied are nitrogen bands from the Second Positive System (SPS) of  $N_2$  and the First Negative System (FNS) of  $N_2^+$ . In this work, we measure the temperature,  $T$ , of dielectric barrier discharges (DBD) in noble gases using OES by analysing rotational bands in the emission spectra of the FNS of  $N_2^+$ . This has the advantage that rotational structure can be fully resolved even with a spectrograph of average performance, and that the rotational temperature,  $T_{\text{rot}}$  ( $\sim T_{\text{gas}}$ ), can then be determined from a conventional Boltzmann plot. Ionisation of  $N_2$  occurs mainly via Penning transfer from metastable excited states of He (ca. 20 eV) or Ne (ca. 16.6 eV). Using a glass-walled DBD chamber of volume 0.1 litter, we have studied atmospheric-pressure discharges in flowing helium (He) or neon (Ne) containing traces of nitrogen. Discharges were excited by audio-frequency (10 kHz) high voltage (HV) using a needle as the HV electrode and a dielectric (alumina)-covered planar grounded counter-electrode. OE spectra were acquired with a 0.5 m focal length spectrograph, coupled to an intensified charge coupled device (ICCD) detector. Using the (0-0) R-branch of the FNS  $N_2^+$  ( $B^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+$ ) bands near a wavelength of 391.4 nm, we have measured axial (inter-electrode) distributions of  $T_{\text{rot}}$  in both He and Ne.  $T_{\text{rot}}$  values were found to be highest at the needle electrode, of about 450 K and 740 K for He and Ne, respectively; in He,  $T_{\text{rot}}$  dropped to a minimum of about 408 K at the mid-gap position. We conclude that temperatures in noble gas discharges depend critically on thermal conductivities of the particular gases ( $K_{\text{He}} = 1.9$ ;  $K_{\text{Ne}} = 0.6$ , both in  $\text{mW.cm}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ) and on other experimental factors that influence heat transfer.

Even in flows of nominally very pure He or Ne,  $N_2$  impurity at the ppm level is sufficient to yield high enough spectral intensity for accurate  $T_{\text{rot}}$  measurements,  $T_{\text{rot}}$  increasing linearly with rising  $N_2$  flow. We measured the effect of gas flow rate,  $D$ , on  $T$  in these atmospheric-pressure discharges:  $D$  values were varied between ca. 50 and 400 sccm., and they showed that for both gases the temperature at the mid-point in the gap,  $z = 1.5$  mm, dropped near-linearly with rising



D, from  $\sim 490$  to  $< 400$  K in He, and from  $\sim 700$  to  $640$  K for the case of Ne. Those temperature differences were attributed to the much higher thermal conductivity of He than that of Ne: indeed, it appears that conductive and convective heat losses dominate in the He and Ne cases, respectively

Finally, the study of spatio-temporal discharge propagation behaviours in He and Ne, using an ultra-high speed digital camera, has permitted us to develop a plausible theoretical explanation for the axial intensity distributions in these discharges.

## TABLE DES MATIERES

DÉDICACE.....	iii
REMERCIEMENTS .....	iv
RÉSUMÉ.....	v
ABSTRACT .....	vii
LISTE DES TABLEAUX.....	xi
LISTE DES FIGURES.....	xii
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS .....	xvi
LISTE DES ANNEXES.....	xix
CHAPITRE 1 APERÇU SUR LA PHYSIQUE DES DÉCHARGES À BARRIÈRE DIÉLECTRIQUE. ÉLÉMENTS DE THERMOMÉTRIE.....	1
1.1 INTRODUCTION.....	1
1.3 Les deux grands régimes de DBD: les modes filamentaire et homogène.....	3
1.3.1 Importance du paramètre $P \times d$ .....	4
1.3.2 Caractéristiques électriques.....	5
1.4 DBD homogènes: nomenclature, conditions expérimentales et mécanismes .....	7
1.4.1. Classification.....	7
1.4.2. Mécanismes.....	8
1.4.3 Conditions opératoires permettant l'obtention d'une décharge homogène .....	11
1.5 Thermométrie en phase gazeuse par spectroscopie d'émission optique .....	13
CHAPITRE 2 DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL. DIAGNOSTIC OPTIQUE.....	18
2.1 Montage expérimental.....	18
2.1.1 Brève description des composants du dispositif expérimental.....	19
2.1.2 Diagnostic optique: Caractérisation du plasma par imagerie (CCD) et par spectroscopie optique d'émission (OES) .....	23

2.2	Application de l'OES à la détermination de la température de rotation dans les gaz nobles, He et Ne .....	29
CHAPITRE 3 RÉSULTATS ET DISCUSSION.....		31
3.1	Spectres d'émission de He et du Ne. Effet de la position, z .....	31
3.1.1	Cas de l'hélium.....	31
3.1.2.	Cas du néon .....	34
3.2	Calcul de la température du gaz des décharges de He et de Ne (modèle du graphique de Boltzmann).....	43
3.2.1	Cas de He .....	44
3.2.2	Cas de Ne .....	47
3.2.3	Comparaison He / Ne .....	49
3.3	Effet du débit de gaz sur la température de l'APGD.....	55
3.4	Étude de l'évolution spatio-temporelle des APGD de He et Ne par caméra ICCD (imagerie rapide) .....	60
3.4.1	Vue d'ensemble.....	60
3.4.2.	Distribution spatio-temporelle des intensités d'émission de quelques raies caractéristiques des APGD de He et de Ne .....	65
CHAPITRE 4 CONCLUSION .....		71
RÉFÉRENCES.....		73
ANNEXES .....		80

## **LISTE DES TABLEAUX**

Tableau 1.1: Ordre de grandeur des différentes espèces dans les deux régimes [19] .....	8
Tableau 1.2: Niveaux d'énergie des états métastables des gaz nobles (Ar, He et Ne) [28] .....	12
Tableau 2.1: Composition du gaz initial ultra pur (UHP) de He et de Ne (Pureté 99.999%) .....	23

## LISTE DES FIGURES

Figure 1-1: Différentes géométries d'électrodes pour les décharges DBD (schéma reproduit à partir de [18]). .....	3
Figure 1-2: Caractéristiques électriques, à 5 kHz avec un flux de gaz de 3 slm, d'une décharge : (a) filamentaire ; (b) luminescente (hélium) et de Townsend (azote) ; (c) multi-pics. Sont reportées les conditions opératoires : pression de travail, gaz utilisé et distance inter-électrode [21]. .....	6
Figure 1-3: Graphique de Boltzmann (tiré de nos résultats) permettant de remonter à la température T du gaz à partir de la pente $(-F(J)hc/kT)$ ainsi obtenue. ....	17
Figure 1-4: Spectre rotationnel (branche R) rattaché à la tête de bande du 1 <sup>e</sup> système négatif de $N_2^+$ (391.4 nm). Ne sont considérées que les raies R6-R14 pour He, et R6-R12 pour le Ne. ....	17
Figure 2-1: Schéma du dispositif expérimental utilisé pour la caractérisation de l'APGD : le 1 <sup>e</sup> cas renvoie à la configuration où la caméra CDD est utilisée seule et placée directement en face de la décharge; le 2 <sup>e</sup> cas correspond à celui où la caméra CDD est placée en série, derrière le spectrographe. ....	19
Figure 2-2: Schéma du réacteur utilisé dans l'étude de l'APGD .....	20
Figure 2-3: Circuit électrique .....	21
Figure 2-4: Schéma électrique équivalent de la cellule utilisée pour la décharge [20].....	22
Figure 2-5: Schéma du système optique permettant de focaliser dans une fibre optique la lumière émise par la décharge. Noter l'orientation de l'axe z ainsi que les positions $z = 0$ mm (surface diélectrique) et $z = 3.0$ mm (électrode pointe). ....	25
Figure 3-1: Spectre d'émission de l'APGD de He (UHP) pour une distance entre les électrodes pointe-plan de 3 mm, à la position axiale $z=0$ . L'intensité est normalisée à la valeur maximale de la tête de bande, 391.4 nm. Conditions expérimentales : $z = 0$ mm, fréquence d'excitation, 10 kHz, $V_{pp} = 1.6$ kV, débit de He, 300 sccm.....	32
Figure 3-2: Spectres d'émission de la décharge de He obtenus pour trois positions axiales caractéristiques: $z = 3$ mm (voisinage de la pointe); $z = 1.5$ mm (à mi-distance entre les	

électrodes); $z = 0$ (voisinage de la cathode). Les autres conditions expérimentales sont celles de la Fig. III. 1. La normalisation est effectuée avec $I_{391.4 \text{ nm}}$ , $z = 0$ .....	34
Figure 3-3: Spectre d'émission de l'APGD de Ne (plus de 0,1% d' $N_2$ ), pour une distance entre les électrodes pointe-plan de 3mm à la position axiale $z = 0$ mm. Voir annexe 3 pour l'identification des raies de Ne observées sur notre spectre .....	35
Figure 3-4: Spectres d'émission de la décharge de Ne (avec 0.1% de $N_2$ ), obtenus pour trois positions axiales caractéristiques: $z = 3$ mm (pointe); $z = 1.5$ mm (à mi-distance entre les électrodes); $z = 0$ (cathode). Les autres conditions expérimentales sont celles de la Fig. 3. 1. La normalisation est effectuée avec $I_{703 \text{ nm}}$ , $z = 0$ . .....	37
Figure 3-5: Distribution axiale de l'intensité relative de la tête de bande de $N_2^+$ (391.4 nm) entre $z = 0$ et $z = 3$ mm, dans l'APGD de He. Distance inter-électrodes = 3mm; tension crête à crête de 1,6 kV, 10 kHz et un débit d'He 300 sccm. ....	38
Figure 3-6: Distribution axiale de l'intensité relative de la tête de bande de $N_2^+$ (391.4 nm) dans l'APGD de Ne (avec 0.1% de $N_2$ ), comparativement à celle de He. Noter que la comparaison est faite pour des valeurs normalisées séparément. ....	41
Figure 3-7: Spectre vibro-rotationnel de la transition $N_2^+$ ( $B^2\Sigma_u^+$ , $v'=0 \rightarrow X^2\Sigma_g^+$ , $v''=0$ ) dans l'APGD de He pur, avec identification des raies associées à la branche R. Conditions opératoires: voir Fig.3-1.....	45
Figure 3-8: Spectre vibro-rotationnel de la transition de $N_2^+$ ( $B^2\Sigma_u^+$ , $v'=0 \rightarrow X^2\Sigma_g^+$ , $v''=0$ ) dans une APGD de He, montrant la superposition de la raie de la transition $3^3P \rightarrow 2^3S$ de He (388.9 nm) avec la raie R16 ainsi que celle de la transition vibrationnelle (3,6) du second positif de $N_2$ (389.4 nm) avec la R20. ....	45
Figure 3-9: Distribution axiale de $T_{\text{rot}}$ dans une APGD (pointe-plan) de He pure. La barre d'erreur représente l'écart type des 9 mesures indépendantes réalisées pour chaque position.....	47
Figure 3-10: Spectre rotationnel de la transition de $N_2^+$ ( $B^2\Sigma_u^+$ , $v'=0 \rightarrow X^2\Sigma_g^+$ , $v''=0$ ) dans une APGD de Ne; sont numérotées les raies associées à la branche R, où l'on note la superposition de la transition vibrationnelle (3,6) du second positif de $N_2$ (389.4 nm) avec la R16. ....	48

- Figure 3-11: Distribution axiale de  $T_{\text{rot}}$  dans une APGD (pointe-plan) de Ne. La barre d'erreur représente, dans ce cas de l'APGD de Ne, l'écart type de 12 mesures indépendantes réalisées pour chaque position  $z$ ..... 49
- Figure 3-12: (a) Comparaison de  $T_{\text{rot}}$  dans les APGD de He et de Ne (axes différents) (mêmes conditions qu'en Fig. 3-1 pour He et 3-3 pour Ne). (b) Représentation des mêmes données qu'en (a) en semi-log, faisant apparaître l'écart entre les  $T_{\text{rot}}$  des deux gaz, et leurs variations relatives ..... 51
- Figure 3-13: Variation de la conductivité thermique en fonction de la température dans les gaz nobles (He et Ne) [16]: par exemple, à 400 K,  $K_{\text{He}} = 1.85 \cdot 10^{-2} \text{ W} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ ;  $K_{\text{Ne}} = 5 \cdot 10^{-3} \text{ W} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$  ..... 53
- Figure 3-14: Représentation schématique de la transition entre l'état de gaz ionisé à l'état de gaz neutre : ce profil traduit par exemple celui de la décroissance du taux d'ionisation, de la densité électronique ou de la température ..... 54
- Figure 3-15: Évolution de  $T_{\text{rot}}$  en fonction du débit du gaz, dans une APGD de He, pour une distance  $z = 3.0 \text{ mm}$  (pointe) et pour  $z = 1.5 \text{ mm}$  (« milieu »). Autres conditions opératoires: idem qu'en Figure 3-1 (fréquence d'excitation 10 kHz,  $V_{\text{pp}} = 1.6 \text{ kV}$ ). ..... 55
- Figure 3-16: Évolution de  $T_{\text{rot}}$  en fonction du débit du gaz, dans une APGD de Ne, pour une distance  $z = 3.0 \text{ mm}$  (pointe) et pour  $z = 1.5 \text{ mm}$  (« milieu »). Autres conditions opératoires: idem qu'en Figure 3-3 (fréquence d'excitation 10 kHz,  $V_{\text{pp}} = 1.2 \text{ kV}$ ). ..... 56
- Figure 3-17: Variations comparées de  $T_{\text{rot}}$ , en fonction du débit du gaz, dans les APGD de He et de Ne: a) pour  $z = 3.0 \text{ mm}$  (pointe) et pour  $z = 1.5 \text{ mm}$  (« milieu »). Autres conditions opératoires: fréquence d'excitation 10 kHz,  $V_{\text{pp}} = 1.6 \text{ kV}$  (He); 1.2 kV (Ne). ..... 57
- Figure 3-18: Représentation schématique des vitesses du fluide gazeux lorsqu'il passe par différentes sections..... 59
- Figure 3-19: Image de l'APGD de He, obtenue sur un temps d'accumulation (temps d'exposition) de 0.5 ms, montrant une partie de la séquence d'événements où la décharge se répand sur le diélectrique (distance entre les électrodes pointe-plan, 3 mm; position axiale,  $z = 3.0 \text{ mm}$ ; débit de He, 300 sccm ; fréquence d'excitation, 10 kHz ; tension de crête à crête, 1.6 kV)..... 61

Figure 3-20: Séquence d'images les plus significatives de l'APGD de He, entre la pointe et le diélectrique. Nous avons pris 280 images de la totalité de l'événement spatio-temporel qu'est la décharge (d'une durée d'environ 12  $\mu$ s) ..... 62

Figure 3-21: Variations de l'intensité d'émission dans une APGD de He pour un demi-cycle positif. Les trois positions axiales caractéristiques ( $z = 3.0$  mm (pointe);  $z = 1.5$  mm (à mi-distance entre les électrodes);  $z = 0$  (diélectrique)) sont définies sur les images obtenues par convention. . ..... 63

Figure 3-22: Visualisation des événements les plus significatifs de l'APGD de Ne, entre la pointe et le diélectrique. Nous avons pris 300 images de la totalité de la décharge (dure environ 14  $\mu$ s): chaque image est séparée de la suivante de 46 ns, et celles qui sont rapportées ont été prises aux instants indiqués. .... 64

Figure 3-23: Distribution spatio-temporelle de l'intensité d'émission de la raie He I (706.5nm) dans une APGD de He pour un demi-cycle positif. Distance entre les électrodes pointe-plan, 3.mm; débit de He, 300 sccm; fréquence d'excitation, 10 kHz; tension de crête à crête, 1.6 kV. 67

Figure 3-24: Distribution spatio-temporelle de l'intensité d'émission de la raie He I (706.5 nm) dans une APGD de He pour un demi-cycle négatif. A l'inverse du demi-cycle positif, la zone d'intensité maximale se retrouve plutôt au voisinage de la pointe. .... 67

Figure 3-25: Distributions spatio-temporelle de l'intensité d'émission de la tête de bande de  $N_2^+$  (391.4 nm) dans l'APGD de He (cas d'un demi-cycle positif). .... 68

Figure 3-26: Distribution spatio-temporelle de l'intensité d'émission de la raie Ne (703 nm) dans l'APGD de Ne (cycle positif). Les données sont recueillies comme en Figure 3-22. Le temps  $t = 0$  ( $\mu$ s) correspond au maximum d'intensité enregistrée dans toute la distribution..... 69



## LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

a.c	Courant alternatif
$A_{J'J''}$	Coefficient d'émission stimulée d'Einstein
APGD	Atmospheric Pressure Glow Discharge
$B_v$	Constante rotationnelle
c	Vitesse de la lumière
CCD	Charge Coupled Device
$C_d$	Capacité du diélectrique équivalent
$C_g$	Capacité équivalente du gaz de la décharge
DBD	Dielectric Barrier Discharge
$D_v$	Constante rotationnelle
f	Fréquence de la tension appliquée
$F(J')$	Terme rotationnel
FDBD	Filamentary Dielectric Barrier Discharge
FNS	First Negative system
$\gamma$	Coefficient d'émission secondaire
GDBD	Glow Dielectric Barrier Discharge.
h	Constant de Planck
HV	Haute tension (high voltage)
I	Intensité d'émission
I (391.4)	Intensité d'émission de la tête de bande de $N_2^+$ à 391.4 nm
ICCD	Intensified Charge Coupled Device
$i_d$	Courant de décharge
$I_{J'J''}$	Intensité d'émission du niveau supérieur $J'$ vers le niveau inférieur $J''$

$J', J''$	Nombre quantique rotationnel
$k$	Constante de Boltzmann
$K$	Degré Kelvin
$\Lambda$	Moment angulaire
LIF	Laser Induced Fluorescence (Fluorescence induite par laser)
$N$	Nombre total de molécules
$N_2^+$	Ion moléculaire d'azote
$\nu_{J', J''}$	Nombre d'onde
OES	Optical Emission Spectroscopy (Spectroscopie d'émission optique)
PM	Photomultiplicateur
ppm	Parties par million
$Q_r$	Fonction de partition
$r$	Rayon
$S$	Nombre quantique de spin
$S_J$	Poids de la raie associé à $J$
sccm	Standard cubic centimetres per minute
SPM	Single Peak Mode
SPS	Second Positive System
$T$	Température
$t$	Temps
$T_{\text{rot}}$	Température de rotation
UHSI	Ultra-High Speed Imaging
RSB	Rapport signal sur bruit
SPM	Single Peak Mode

$U(t)$	Tension entre les bornes de cette résistance (en fonction du temps)
UV	Ultra-Violet
$V$	Amplitude de tension appliquée
$V_b$	Tension de claquage
$v', v''$	Nombres quantiques des états vibrationnels supérieur, $v'$ et inférieur, $v''$
$z$	Position axiale dans la décharge APGD pointe-plan de He ou de Ne

## LISTE DES ANNEXES

Annexe 1: Modèle du rotateur rigide : les termes spectraux .....	80
Annexe 2: Courbes de calibration du rotamètre et de la vis micrométrique ayant servi à délivrer les gaz d'hélium, de néon et d'azote .....	82
Annexe 3: Caractéristiques électriques des décharges DBD de He et de Ne.....	84
Annexe 4: Identification des raies du spectre de l'APGD du Ne .....	86
Annexe 5: Transitions moléculaires observées dans un APGD de Ne .....	87
Annexe 6: Constantes utilisées pour le calcul de la température rotationnelle .....	88
Annexe 7: Positions des raies du spectre rotationnel de l'azote pour les branches R et P .....	89
Annexe 8: Calcul d'incertitudes .....	90

# **CHAPITRE 1 APERÇU SUR LA PHYSIQUE DES DÉCHARGES À BARRIÈRE DIÉLECTRIQUE. ÉLÉMENTS DE THERMOMÉTRIE.**

## **1.1 Introduction**

La physique des plasmas hors équilibre à la pression atmosphérique est actuellement l'objet de nombreux travaux de recherche; c'est un domaine en plein essor. Différents types de plasmas, présentant des caractéristiques très différentes, peuvent être générés à la pression atmosphérique en changeant simplement la forme de l'excitation électrique, la géométrie du réacteur ou celle des électrodes. A l'heure actuelle, les décharges à barrière diélectrique (DBD), les torches micro-ondes et les micro-décharges sont les plus étudiées à travers le monde.

Les décharges à barrière diélectrique (DBD) sont connues depuis plus d'un siècle, et les premières expériences avec ces décharges ont été rapportées par Siemens [1]. Le champ d'applications de ce procédé est très large: génération d'ozone, traitement d'effluents gazeux, activation et traitement de surface, laser CO<sub>2</sub>, excilampes (lampe à excimères), écrans plasmas, etc., et touche de nombreux domaines industriels : électronique, textile, emballage, automobile [2-5]. Cette décharge présente des caractéristiques tout à fait intéressantes dont on peut citer: pression de travail élevée (autour de la pression atmosphérique, PA); fréquence d'excitation de l'ordre du kHz; au moins une électrode recouverte par un diélectrique; distance inter-électrodes de l'ordre de quelques mm ; tension appliquée de l'ordre de quelques kV.

L'intérêt d'opérer à la PA provient du fait qu'il est possible d'effectuer des traitements à grande échelle (visée industrielle), tout en gardant les coûts d'opération bas. De plus, l'utilisation de la barrière diélectrique empêche toute transition à l'arc, et donc tout échauffement local. Cet aspect est particulièrement important pour le traitement de matériaux thermosensible comme les polymères. Dans certaines conditions opératoires, ce procédé permet donc de traiter des films polymères tels que le polyéthylène (PE), polypropylène (PP) ou le polyéthylène téréphtalate (PET) sans en y provoquer des modifications substantielles (oxydations, réticulations, déformations, échauffement, etc.)

Dans le cadre de nos recherches, la DBD a été utilisée en géométrie pointe-plan, sachant que du point de vue des applications, les systèmes à barrière diélectrique sont généralement mis en œuvre en géométrie plan-plan (ou cylindres coaxiaux) ou fil-cylindre. L'intérêt de la géométrie

pointe-plan, choisie pour cette étude, réside notamment dans le fait que l'amorçage de la décharge se réalise, à un instant donné, en une zone très bien définie spatialement (extrémité de la pointe): à partir de là, cette décharge se propage depuis cette pointe en direction de l'autre électrode (plane), subissant des variations à la fois spatiales et temporelles. Un deuxième avantage est que la décharge est quasi-unidimensionnelle, facilitant ainsi l'interprétation de résultats expérimentaux obtenus. En contraste, les systèmes à géométrie plan-plan, par exemple, sont le siège de nombreux amorçages du plasma, produisant une certaine homogénéisation, à deux dimensions.

## 1.2 Définition et caractéristiques générales d'une DBD

Découverte et utilisée par Siemens en 1857 pour la génération d'ozone, la décharge à barrière diélectrique (DBD), ou «décharge silencieuse», fait partie des plasmas hors-équilibre thermodynamique [1, 2, 4, 5]. Une des spécificités de cette décharge est qu'une électrode (ou les deux) est recouverte par un matériau diélectrique, permettant d'accumuler des charges sur sa surface (ions ou électrons, selon le potentiel imposé à l'électrode qui change d'ailleurs à chaque demi-cycle de la fréquence d'excitation). Cette charge d'espace réduit l'intensité du champ électrique régnant entre les deux électrodes, évitant ainsi le passage à l'arc. L'utilisation d'une alimentation Haute Tension (HV) alternative s'avère nécessaire dans ce cas pour compenser ces charges créées en surface et perdues par le plasma, et ce afin d'éviter l'extinction de celui-ci.

Pour transporter un courant autre que capacitif dans l'espace entre électrodes, le champ électrique se doit d'être assez intense pour causer le claquage du gaz. Or, l'augmentation du courant entre deux électrodes métalliques entraîne généralement le passage vers un régime d'arc [5], synonyme de plasma à haute température et de dommages à la surface. Le diélectrique entre les électrodes, en augmentant la capacitance entre celles-ci, permet de réduire très sensiblement la tension appliquée au gaz, et donc d'éviter la transition vers l'arc. L'accumulation sur le diélectrique de charges issues du plasma entraîne une chute du potentiel appliquée à l'électrode, et par là du champ appliqué au gaz. Le courant  $I(t)$  circulant dans le système est donné par:

$$I(t) = C \times \frac{dU}{dt} \quad (1)$$

où  $C$  est la capacitance totale prenant en compte à la fois le diélectrique (fonction de son aire et de son épaisseur) et du gaz (fonction de la distance inter-électrodes et de nature de gaz);  $dU/dt$

mesure les variations instantanées de la tension appliquée. On observe que pour une tension DC appliquée, le courant est nul, ce qui explique que les décharges DBD sont nécessairement pulsées et requièrent donc l'utilisation de tension alternative pour fonctionner. Les matériaux couramment utilisés comme diélectriques sont le verre, la silice, l'alumine, certains polymères et céramiques. Des différences de potentiel de l'ordre de la dizaine de kV sont nécessaires pour créer une décharge pour un espace inter-électrodes de quelques mm. Les DBD fonctionnent de façon optimale dans la gamme des fréquences allant de 50 Hz à 10 MHz [2, 6].

Il existe plusieurs configurations géométriques des électrodes dans ce type de décharge : plan-plan [7-14], pointe-plan (utilisé dans notre cas) [8, 13, 14], multipoints-plan [15, 16], lame-cylindre, fil-cylindre [18] et cylindre-cylindre [16] comme indiqué sur la Figure 1-1.

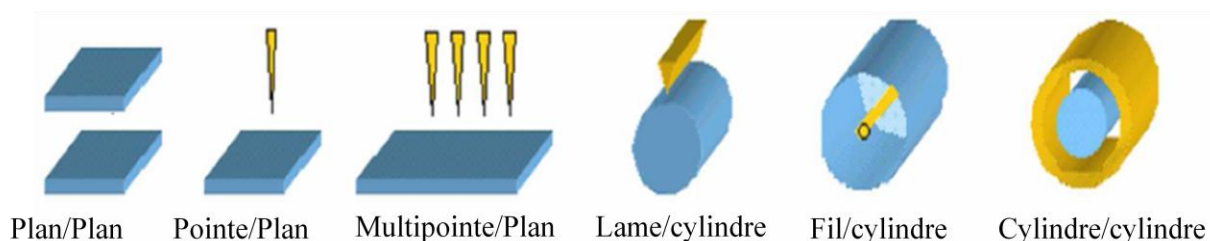


Figure 1-1: Différentes géométries d'électrodes pour les décharges DBD (schéma reproduit à partir de [19]).

### 1.3 Les deux grands régimes de DBD: les modes filamentaire et homogène

Dans ce qui suit, nous présentons un résumé des mécanismes associés à la création et à l'entretien des décharges DBD filamenteuses et homogènes. Celui-ci fait état des avancées les plus récentes en la matière et constitue une synthèse de la compréhension que nous avons de ce type de décharges. Par ailleurs, ce résumé tire une bonne partie de sa substance des publications de Massines et al [20], mais il est ordonné et structuré par nous d'une manière qui nous paraît plus simple à comprendre. Ceci explique aussi que nous ayons fait un peu plus état des travaux du groupe de Massines.

### 1.3.1 Importance du paramètre $P \times d$

Comme il existe de nombreuses configurations de DBD, nous nous limiterons ici au cas de deux électrodes planes parallèles, une fréquence d'excitation suffisamment basse pour avoir un seul claquage par demi-cycle, et une distance inter-électrode suffisante pour un passage, le cas échéant, au mode filamentaire. Pour une pression  $P$  donnée, la distance inter-électrode,  $d$ , constitue un paramètre important, mais c'est en réalité le produit ( $P \times d$ ) qui détermine les mécanismes d'ionisation [20]:

- i) le rapport  $\gamma/\alpha$  (émission d'électrons issus de la cathode/ionisation en volume) est fonction du rapport du libre parcours moyen de l'électron à la distance  $d$ . On comprend que si  $d$  est relativement important, la contribution à l'ionisation de l'émission secondaire  $\gamma$  est négligeable, donnant lieu dans ce cas à un mode filamentaire dans la très grande majorité des gaz;
- ii) plus précisément, si le produit  $Pd$  est faible, généralement inférieur à 30 Torr.cm, le claquage est un claquage de Townsend, défini à la fois par l'émission des électrons de la cathode (second coefficient d'ionisation  $\gamma$ ) et par l'ionisation en volume  $\alpha$  du gaz. L'échelle de temps de ce type de claquage est de l'ordre de la  $\mu s$ , et l'aire de décharge est égale à celle des électrodes [20];
- iii) pour des valeurs supérieures de  $Pd$  ( $Pd > 200$  Torr.cm), le claquage est de type «streamer» dû à la formation d'une avalanche électronique assez grande pour créer une quantité suffisante d'ions ( $\sim 10^8$ ); celle-ci donne lieu à un champ de charge d'espace de l'ordre de grandeur du champ appliqué. Il est clair que, dans ce cas, le claquage peut se produire sans apport *significatif* de l'émission cathodique: la transition du claquage Townsend au claquage filamentaire (streamer) se produit. La charge d'espace positive produit un champ électrique local qui accélère les électrons, créés entre la cathode et la charge d'espace positive, par photo-ionisation ou photoémission. L'échelle de temps de ce mécanisme de claquage est de l'ordre de la nanoseconde ( $ns$ ); et lorsque le filament relie les deux électrodes, une micro-décharge se développe, avec un dixième de mm de rayon.



### 1.3.2 Caractéristiques électriques

Ces différentes décharges se distinguent par leurs caractéristiques électriques: évolution du courant de décharge ( $I_2$ ), de la tension d'alimentation ( $U_2$ ) et de la tension aux bornes du plasma, généralement désignée par  $U_{\text{gaz}}$  (Noter qu'en Figure 1-2 est montré un troisième type de décharge qui dérive de la décharge homogène: il s'agit de la décharge multi-pics). De ce point de vue, le régime filamentaire se caractérise par une multitude de décharges de courte durée, distribuées aléatoirement dans l'espace inter-électrodes (Fig. 1-2). Ceci se traduit sur les traces de courant par une multitude de pulses très courts (quelques nanosecondes) dont la distribution est non reproductible d'une décharge à la suivante (Fig. 1-2a). Le régime homogène comprend deux types de décharge: la décharge luminescente (observée dans les gaz rares) ou de Townsend (observée en azote). Une décharge luminescente, comme celle obtenue en hélium, est caractérisée par un seul pulse de courant par demi-période, d'une durée de quelques microsecondes (Fig. 1-2b). Cette caractéristique intrinsèque de la décharge luminescente suggère un développement unique de la décharge dans tout l'espace inter-électrodes. Il en est de même pour la décharge de Townsend observée en azote (Fig. 1-2b), mais le pulse de courant en est plus étendu, d'une durée de quelques dizaines de microsecondes. Aussi pour un type de décharge (homogène, filamentaire ou à étincelle), la forme du courant reste la même, que l'alternance soit positive ou négative. La transition vers le régime filamentaire peut avoir lieu lorsque la puissance injectée augmente, et/ou que le taux d'impuretés ou de gaz électronégatif devient trop important [21, 22] (voir sec. 3.2).

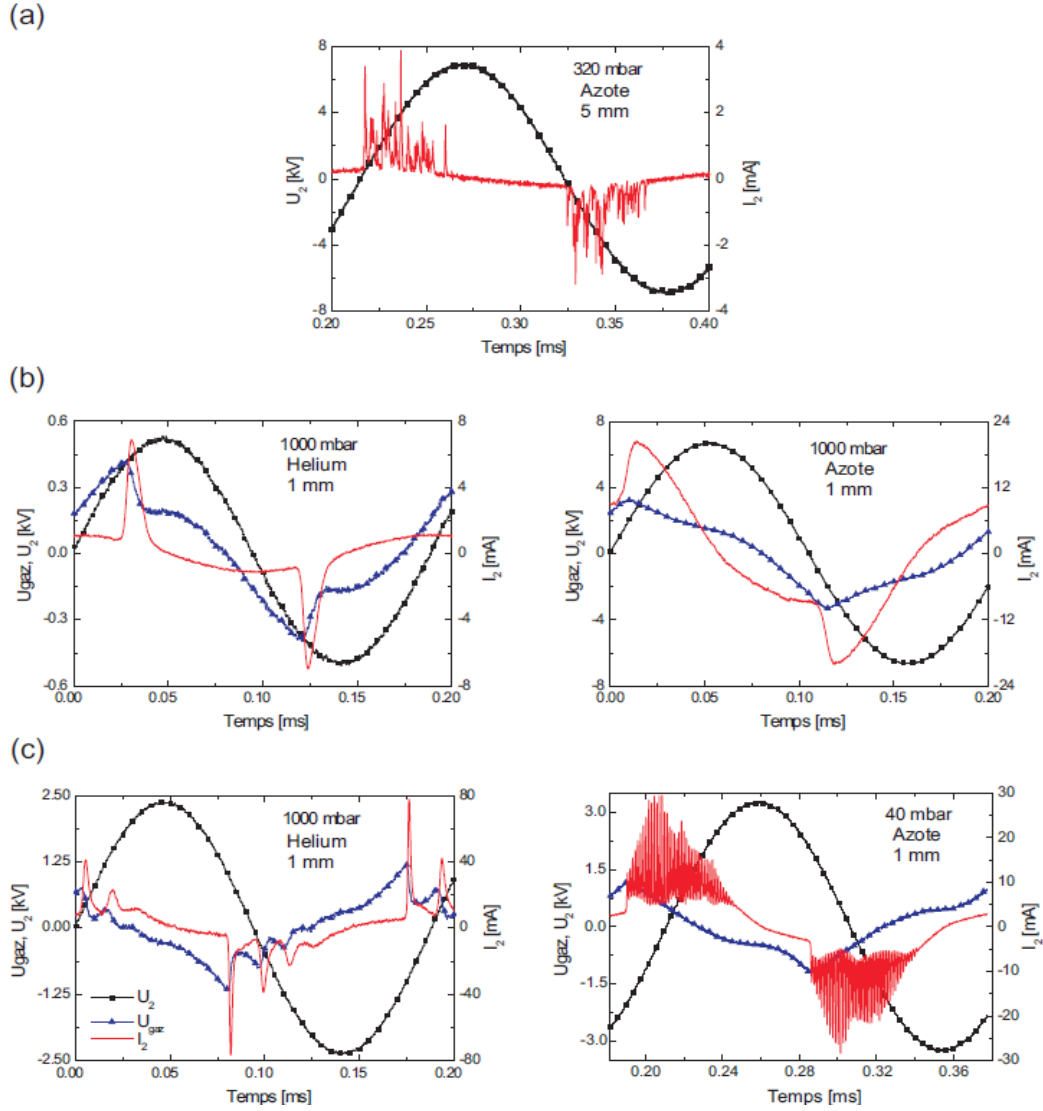


Figure 1-2: Caractéristiques électriques, à 5 kHz avec un flux de gaz de 3 slm, d'une décharge: (a) filamentaire; (b) luminescente (hélium) et de Townsend (azote); (c) multi-pics. Sont reportées les conditions opératoires: pression de travail, gaz utilisé et distance inter-électrode [23].

Dans ce qui suit, nous allons nous intéresser essentiellement au cas des décharges homogènes, en étudiant les conditions d'obtention, et les mécanismes qui les gouvernent.

## 1.4 DBD homogènes: nomenclature, conditions expérimentales et mécanismes

**1.4.1. Classification.** Dans la littérature traitant de ce sujet, il existe une disparité de noms désignant la DBD, et donnant lieu à des confusions. Pour se retrouver dans cette nomenclature, donnons quelques repères:

- i) décharge luminescente à la pression atmosphérique, APGD (du fait que Okazaki et al. [24, 25] ont observé que la luminescence (glow) l'emporte sur le caractère filamentaire dans une décharge d'He qui est celle qu'ils ont utilisée au départ);
- ii) plasma uniforme d'une décharge luminescente à une atmosphère (OAUGDP, pour One Atmosphere Uniform Gaz Discharge Plasma, Roth et al.) [26-28];
- iii) glow DBD (GDBD ou APGD) et Townsend DBD (TDBD ou APTD) (Massines et al. [20, 29]): ce groupe suggère que soit précisé le niveau le plus élevé d'ionisation dans chaque type de décharge.

Ces différences d'appellation résultent du «background» des équipes ayant travaillé dans ce domaine, qui analysent les observations expérimentales selon un point de vue bien spécifique : les spécialistes des plasmas thermiques à la PA et ceux des plasmas hors d'équilibre, à basse pression. A titre d'exemple, et dans le but d'obtenir une décharge APGD, les premiers essayent de limiter le courant, tandis que les seconds cherchent à obtenir un claquage de Townsend similaire au cas d'un plasma basse pression. En réalité ces deux approches sont nécessaires pour obtenir une DBD homogène. On verra d'ailleurs plus loin (sec. 4.2) que les mécanismes qui conduisent à une DBD homogène peuvent être rangés en deux catégories:

- i) processus qui contrôlent le claquage : obtenir un claquage de Townsend;
- ii) processus qui contrôlent le développement de décharges: limiter le développement de la décharge afin d'éviter un niveau d'ionisation trop élevé.

Pour remplir la première condition, l'émission secondaire  $\gamma$  doit être renforcée par rapport à l'ionisation  $\alpha$ . Quant à la seconde condition, la montée et l'amplitude du courant doivent être limitées, autrement dit le circuit d'alimentation électrique et la configuration des électrodes doivent être conçus de façon à ralentir l'ionisation. Le régime de décharge est déterminé par le

taux maximum d'ionisation atteint par chaque décharge. Le Tableau 1.1 compare les différentes caractéristiques obtenues dans différentes conditions conduisant aux deux types de décharges homogènes, APTD et APGD. L'une des différences est que l'APTD ne génère pas un gaz ionisé électriquement neutre, comme le cas d'une colonne positive. De plus la densité électronique maximale est de 3 ordres de grandeur plus faible que celle dans l'APGD, tandis que la puissance moyenne dissipée est généralement un ordre de grandeur plus grande que dans l'APGD caractérisant une DBD homogène.

Tableau 1.1: Ordre de grandeur des différentes espèces dans les deux régimes [20].

	APTD- TDBD	APGD - GDBD
Densité électronique maximum ( $\text{cm}^{-3}$ )	$10^7 - 10^8$	$10^{10} - 10^{11}$
Densité ionique maximum ( $\text{cm}^{-3}$ )	$10^{10}$	$10^{11}$
Formation du plasma neutre ( $n_+ = n_-$ )	Non	Oui (Colonne positive)
Métastable du gaz de la dilution	$10^{13}$	$10^{11}$
Densité du courant ( $\text{mA/cm}^2$ )	0.1 à 10	10 à 100
Variation du voltage du gaz autour de courant maximum	Constant (Plateau de Townsend)	Diminution (formation de chute cathodique)
Gaz de dilution	$\text{N}_2$ , Air, $\text{N}_2\text{O}$	Mélange de Penning dans He, Ar, Ne
Espace inter-électrode typique dans le gaz	< 2 mm	> 2mm
Gamme de fréquence typique	< 10 kHz	> 1 kHz
Puissance pour une excitation de 10 kHz	Quelques $\text{W/cm}^3$	Quelques 0.1 $\text{W/cm}^3$
Solution pour observer les micro-décharges	Courant ; méthode optique	Photomultiplicateur, ICCD

### 1.4.2. Mécanismes

Nous avons indiqué plus haut (sec. 4.1) que les mécanismes conduisant à une DBD homogène peuvent être rangés en deux catégories: (1) paramètres permettant d'améliorer significativement l'émission secondaire (augmenter  $\gamma$  par rapport à  $\alpha$ ); et (2) ceux qui permettent de «ralentir l'ionisation» du gaz, de façon à éviter une forte avalanche électronique et donc une micro-décharge. Dans le second cas, on peut modifier les caractéristiques du diélectrique et les matériaux utilisés de façon à ne pas obtenir un courant trop élevé.

### 1.4.2.1 Les différents "effets mémoire"

Ainsi, pour augmenter la contribution de l'émission secondaire (mécanisme (1)) avant et pendant la première étape du claquage, il faut distinguer trois contributions toutes reliées à un effet-mémoire : i) effet-mémoire dû à la couche diélectrique elle-même; ii) effet-mémoire dû à l'apport des ions de la colonne positive (piégeage des ions dans la mesure où la fréquence d'excitation est suffisamment élevée); iii) effet-mémoire dû aux espèces de longue durée de vie qui peuvent «survivre» entre deux décharges consécutives (propriété intrinsèque du gaz). En prodiguant un tel réservoir d'électrons, ces mécanismes assurent un claquage lent dans un champ électrique faible, donc de type Townsend.

#### ➤ Cas des ions

L'effet mémoire réfère à l'existence d'espèces créées au cours d'une décharge et qui restent présentes en concentration suffisante pour influencer aussi bien le claquage suivant que la transition entre le claquage filamentaire et Townsend. Ces espèces créées au cours de la décharge précédente sont en quelque sorte prises au piège dans le gaz et peuvent alors servir de source d'ionisation lente en présence d'un champ trop faible pour former une grande avalanche électronique. Après le claquage, le flux d'ions devient dominant quel que soit le régime de décharge obtenu à cause de la grande masse de ces porteurs de charges, comparée à celle des électrons. L'émission secondaire d'électrons de la cathode dépend du coefficient  $\gamma$  de la surface et du flux d'énergie des espèces atteignant la surface de la cathode. Ces espèces peuvent être des ions, des états excités à longue durée de vie (métastables) et des photons.

Pour piéger des ions à partir d'une décharge [27], il suffit d'avoir une zone de plasma neutre comme dans la colonne positive d'une APGD et une fréquence d'excitation suffisamment élevée [29]: lorsque le claquage ultérieur a lieu, ces ions parviennent à la cathode qu'ils bombardent, créant ainsi l'émission secondaire d'électrons. En revanche, dans une APTD, la dérive des ions vers la cathode est de l'ordre de la  $\mu\text{s}$  (fréquence du champ  $\sim \text{MHz}$ ): ils ne peuvent donc pas être impliqués dans l'effet de mémoire ! En conclusion, il faut qu'une colonne positive (ou plasma macroscopiquement neutre) soit formée au cours du développement d'une décharge et que le temps entre deux décharges consécutives ne soit pas trop long, pour piéger les ions.

### ➤ Cas des espèces à longue durée de vie

L'énergie nécessaire pour arracher un électron à partir d'une surface est au moins de 2 eV, ce qui est faible relativement aux énergies des espèces métastables que nous identifierons sous peu; celles-ci contribuent significativement à l'émission secondaire à partir de la cathode si leur flux sur celle-ci est assez grand. Cependant, leur durée de vie dans les gaz rares est assez courte (quelque  $\mu\text{s}$ ) en raison de la formation de dimères [31]. Donc, dans les gaz rares, la contribution de l'effet mémoire dû aux espèces de longue durée de vie est négligeable.

En dehors des décharges de gaz rares, l'émission d'électrons secondaires par l'impact des états excités de  $\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+)$  sur la surface du diélectrique a été envisagée comme l'explication la plus pertinente. La décharge est une décharge de Townsend, les métastables sont créés principalement à proximité de l'anode et continuent en permanence à diffuser à la surface. A la fin de la décharge, lorsque la polarité de la tension de gaz change, le flux des métastables peut être de  $\sim 5.10^{14}/\text{cm}^2\text{s}$  [32]. Comme les métastables induisent l'émission secondaire d'électrons [33, 34], ce mécanisme peut produire en continu des électrons entre deux décharges.

## 1.4.2.2 Modulation de l'ionisation du gaz

Il existe deux solutions pour moduler l'ionisation à l'amorçage de la décharge: (i) augmenter l'efficacité de l'ionisation par étapes; ii) réduire la valeur de la tension de claquage.

### ➤ Ionisation par effet Penning

Un claquage de Townsend est associé à une faible et lente ionisation dans le gaz comparativement à un claquage filamentaire. Si on considère les deux étapes des processus d'ionisation, l'ionisation par effet Penning est la plus courante. Dans un mélange de M avec une petite concentration de A, l'ionisation directe est donnée par :  $e + M \rightarrow M^+ + 2e$ , qui entre en compétition avec l'ionisation Penning :  $e + M \rightarrow M^* + e$ , suivie par  $M^* + A \rightarrow A^+ + e + M$ .

L'ionisation par effet Penning est un processus en deux étapes, donc plus lent qu'une ionisation directe, ce qui permet de « ralentir l'ionisation » et d'empêcher la formation de filaments. De plus, l'énergie dépensée pour créer l'état métastable  $M^*$  est inférieure à celle que demande le processus d'impact électronique direct. A titre d'exemple, le seuil d'ionisation de He est de 24,6 eV tandis que pour créer  $\text{He}^*$ , il faut environ 19,8 eV. Ce procédé permet donc l'ionisation dans un champ plus faible que la tension de claquage: il favorise un claquage de type Townsend parce

que les ions créés ont le temps d'atteindre la cathode où ils peuvent induire l'émission secondaire des électrons, et ce avant que le niveau d'ionisation ne soit trop élevé pour renforcer le champ électrique local. La contribution de l'effet Penning est importante sous faible champ, lorsque les états excités métastables sont préférentiellement créés par rapport aux ions. C'est le cas avant et pendant le claquage, et pendant la mise au point de la décharge du fait que le champ électrique est limité par le circuit électrique. Ainsi, l'ajout d'une résistance en série dans une APGD de He provoque une diminution du champ électrique lorsque le courant augmente, donnant lieu à une augmentation de l'ionisation par effet Penning (représenté, par exemple, par la présence d'ions  $N_2^+$ ) relativement à l'ionisation représentée par les ions  $He^+$  et  $He_2^+$ .

#### ➤ Configuration des électrodes et alimentation électrique

Dans une DBD, le diélectrique est introduit pour éviter la transition à l'arc. L'utilisation d'une inductance ou de matériaux résistifs favorise le passage en mode homogène des DBD, et ce en diminuant la tension à travers le gaz dès que (ou avant que) le niveau d'ionisation ne soit suffisamment élevé pour «localiser» le champ. Ainsi, du fait que le développement des micro-décharges est très rapide, il vaut mieux avoir recours à un composant de circuit qui réponde aussi rapidement au changement du courant. Ainsi, une résistance est sensible à l'intensité du courant ( $U = RI$ , et), tandis qu'une inductance l'est pour les variations temporelles de ce courant ( $U = L di/dt$ ).

### 1.4.3 Conditions opératoires permettant l'obtention d'une décharge homogène

Historiquement, la création des décharges homogènes n'a pas été la conséquence d'une connaissance préalable des mécanismes qui les gouvernent. Cependant, comme on l'a vu, une connaissance approfondie des processus impliqués pourrait permettre à l'avenir d'avoir un contrôle plus fin de ces décharges, notamment celui de leur homogénéité, de la distribution spatio-temporelle des espèces actives et de leur température. Ainsi, nous allons en résumer ci-après les conditions opératoires pour l'obtention des DBD homogènes à la pression atmosphérique. Ces conditions sont empiriques et elles ont été énoncées pour la première fois par Kogoma et al. en 1988 et 1990 [22, 24, 25, 35], puis complétées par les recherches menées depuis lors. Les paramètres à considérer sont: i) choix de la distance inter-électrodes et des matériaux

appropriés ; ii) composition gazeuse (et le taux d'impuretés); iii) fréquence d'excitation ( $\sim$  kHz), haute tension et accord d'impédance.

### i) Distance inter-électrode et diélectrique

On l'a déjà vu, le matériau diélectrique empêche la transition à l'arc en limitant le courant. La distance entre les électrodes est elle aussi critique, mais dépend du type de gaz utilisé. Ainsi, avec une distance inter-électrodes de 5 mm, il sera possible d'obtenir une décharge luminescente en hélium alors qu'en azote la limite de la décharge de Townsend se situe à 2 mm (Tableau 1.1). D'autre part, les conditions de surface, l'accumulation de charges [36], leur nature (alumine [37], polymère [38], etc.) modifient le coefficient d'émission secondaire,  $\gamma$ , ainsi que la nature des composants adsorbés en surface et leur concentration. Ces impuretés sont autant de «quencheurs» potentiels pour les métastables qui jouent un rôle déterminant pour la création et stabilité des décharge à la pression atmosphérique [39].

### ii) Composition gazeuse

Massines et al. ont montré que les impuretés jouent un rôle primordial pour la génération et l'entretien de la décharge via leur influence sur le quenching des métastables [30]. L'hélium est le gaz qui permet d'obtenir le plus facilement une décharge luminescente homogène à la pression atmosphérique. Il en est de même pour les autres gaz rares utilisés avec des impuretés (mélange de Penning) [7-14, 42,], mais la décharge peut être difficile à amorcer car le niveau d'excitation des espèces métastables créées est bien moins élevé que celui des métastables d'hélium (Tableau 1.2). L'ajout d'un gaz réactif ou atome électronégatif comme l'oxygène, même en faible proportion, peut faire transiter la décharge vers le régime filamentaire [36, 41, 42].

Tableau 1.2: Niveaux d'énergie des états métastables des gaz nobles (Ar, He et Ne) [10, 17].

	Configuration n.L.S	Énergie ( $\text{cm}^{-1}$ )	Énergie (eV)	durée de vie (sec)
Argon : Ar <sup>*</sup>	$^3\text{P}_0$	94554	11.7	40
	$^3\text{P}_2$	93144	11.5	
Ar <sub>2</sub>			14.43	
Hélium : He <sup>*</sup>	$2^1\text{S}_0$	166272	20.6	$9 \cdot 10^{-3}$
	$2^3\text{S}_1$	159850	19.8	$2 \cdot 10^{-2}$
He <sub>2</sub>			16	
Néon : Ne <sup>*</sup>	$^3\text{P}_0$	134820	16.7	20
	$^3\text{P}_2$	134043	16.5	$4 \cdot 10^{-2}$
Ne <sub>2</sub>			15	



### iii) Alimentation électrique

La fréquence utilisée est en général de l'ordre du kilohertz, avec une tension d'alimentation de quelques kilovolts. En fonction du gaz, de la pression et du type de barrière, il est important de pouvoir adapter la charge au circuit d'alimentation à l'aide d'un circuit d'adaptation d'impédance (inductance et capacité). Une régulation active du circuit électrique peut aussi aider à contrôler le type de décharge en limitant la valeur de  $dI/dt$  lors de l'amorçage de la décharge [37].

## 1.5 Thermométrie en phase gazeuse par spectroscopie d'émission optique<sup>1</sup>

Des résultats théoriques [30, 43, 44] et expérimentaux [8, 14, 29, 30, 45] montrent que le transfert d'énergie par collisions Penning est un processus extrêmement efficace dans la décharge de He, en raison des hautes énergies d'excitation des métastables He\* ( $^3S_1$  et  $^1S_0$  ; de l'ordre de 20 eV) ainsi que des valeurs élevées de leurs sections efficaces de collision,  $\sigma_c$  ( $\sigma_c \sim 10^{-15} \text{ cm}^2$ ). Dans le cas du Ne, ces valeurs sont un peu plus faibles comparativement à He, mais néanmoins importantes puisque les métastables Ne\* ( $^3P_2$  et  $^3P_0$ ) ont une énergie  $> 16.6 \text{ eV}$  (Tableau 1.2).

Par conséquent, les impuretés présentes, même à de faibles concentrations (quelques ppm) peuvent être ionisées par effet Penning: c'est le cas de la molécule d'azote (potentiel d'ionisation=14,54 eV) qui, par suite de son ionisation, donne lieu à de fortes émissions émanant du Premier Système Négatif (FNS)  $N_2^+$  [14, 29, 30, 46, 47]. Les mesures par spectroscopie optique d'émission (OES) ont montré que la distribution des niveaux rotationnels de la tête de bande de  $N_2^+$  ( $v'=0$ ,  $v''=0$ ) obéit à la statistique de Boltzmann, sachant que cette statistique ne s'applique stricto sensu que dans le cas d'une excitation thermique. Cela est dû au fait que l'excitation moléculaire due à un impact électronique dans ce type de décharges affecte peu le moment angulaire de la molécule, en raison de la faible masse des électrons<sup>2</sup>. Par conséquent, les molécules ainsi excitées (par impact électronique) présentent, elles aussi, essentiellement une distribution des niveaux de rotation qui obéit à la loi de Boltzmann, comme c'est le cas pour l'état fondamental.

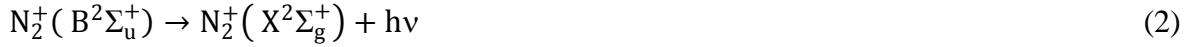
---

<sup>1</sup> Nous donnons ici un bref aperçu des conditions permettant de recourir à la technique de thermométrie et de la théorie sous-jacente. Nous discuterons plus en détail ces éléments dans le chapitre 3.1.

<sup>2</sup> L'énergie transférée par un électron, de masse  $m_e$ , à une particule lourde, de masse  $M$ , est proportionnelle à  $2m_e/M$ .

Du fait de la valeur élevée des fréquences de collision à la pression atmosphérique, cette distribution est proche de l'équilibre thermique à une certaine température effective,  $T_{\text{eff}}$ . Cependant, les états excités, qui présentent eux aussi toute une distribution d'états ro-vibrationnels, peuvent également être peuplés par des collisions de type Penning, notamment dans le cas de l'He et du Ne, ce qui peut éventuellement provoquer un écart par rapport à une distribution thermique [48, 49] de sorte que la température de rotation peut s'écarter légèrement de l'état d'équilibre avec la température de translation des neutres<sup>3</sup>.

Le spectre d'émission des décharges de type DBD dans He "pur" ou de mélanges He/N<sub>2</sub> est caractérisé par un intense signal en provenance de la tête de bande (391.4 nm) du premier système négatif N<sub>2</sub><sup>+</sup> (correspondant aux niveaux vibrationnels (0,0)) :



On peut classer les mécanismes d'excitation de l'état N<sub>2</sub><sup>+</sup> (B<sup>2</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup>) selon trois types principaux :

- i) collision directe électrons - molécule neutre d'azote N<sub>2</sub> (X<sup>2</sup>Σ<sub>g</sub><sup>+</sup>), à l'état fondamental [50, 51]:



Ce processus est connu pour être très efficace dans les décharges à basse pression, mais d'une importance moindre à la pression atmosphérique. Cependant, il doit être pris en compte dans le cas de He, notamment au voisinage de la pointe, où les électrons acquièrent une énergie cinétique considérable du fait de leur accélération par un champ électrique intense produit par l'électrode en forme de pointe très fine (voir sec.3.1 du Chapitre 3) [14].

- iii) transfert de charge:



- iv) effet Penning:




---

<sup>3</sup> Il y a équilibre entre les températures de rotation et de translation, lorsque la fréquence de collision est suffisamment élevée.

Chacun de ces mécanismes (3), (4) et (5), contribue au peuplement du niveau  $N_2^+(B^2\Sigma_u^+)$ , mais l'ionisation par effet Penning (éq. 5) est dominante [47, 52, 53].

L'équation (2) n'est applicable en thermométrie que si la relaxation rotationnelle de l'état  $N_2^+(B^2\Sigma_u^+)$ , à l'équilibre thermique, l'emporte sur la désexcitation radiative : autrement dit que cette relaxation soit plus rapide que la durée de vie radiative de cet état excité qui est d'environ 66 ns [43]. Il est intéressant de savoir, et ceci sera abordé au Chapitre 3, que cet état excité peut être plus ou moins rapidement piégé (quenching) par interaction avec les molécules d'azote, selon la concentration de celles-ci<sup>4</sup> :



Ainsi, lorsque la pression partielle de  $N_2$  est de 2 kPa ou 6,5 kPa dans une décharge de He à la pression atmosphérique, la durée de vie de l'état  $N_2^+(B)$  passe de 66 ns à respectivement 5 ns et 2 ns [46]. Aussi, lorsque la pression partielle d'azote augmente, les niveaux de rotation ne peuvent pas entièrement relaxer, provoquant ainsi une différence sensible entre les températures de rotation et translation.

Afin d'évaluer la  $T_{\text{rot}}$ , nous utilisons l'intensité des raies rotationnelles,  $I_{J'J''}$ , provenant du même niveau électronique et vibrationnel, donnée par:

$$I_{J'J''} = \frac{2 C v_{J'J''}^4}{Q_r} \times S_{J'} \times \exp\left(-\frac{F(J')hc}{KT_{\text{rot}}}\right) \quad (7)$$

en admettant que les populations rotationnelles du niveau excité sont en équilibre thermique. Ici,  $J'$  et  $J''$  sont les nombres quantiques des niveaux supérieur et inférieur de l'état rotationnel;  $S_{J'}$  est la force de raie associée à  $J'$ , et  $C$ , une constante qui dépend de la variation et de la grandeur du moment dipolaire, ainsi que de la population du niveau inférieur. Pour une valeur de  $T_{\text{rot}}$  donnée,  $Q_r$  (fonction de partition) reste constant pour toutes les raies de la *même* bande de vibration;  $F(J')$  est le terme de rotation (en  $\text{cm}^{-1}$ );  $h$ ,  $c$  et  $k$  sont respectivement la constante de Planck, la vitesse de la lumière, et la constante de Boltzmann. De la relation (6), on obtient:

---

<sup>4</sup> Dans notre cas, une très faible concentration d'azote (de l'ordre du ppm, cf. Tableau 1.2) est présente, sous forme d'impuretés, dans les décharges de He ou de Ne. Par ailleurs, nous introduisons délibérément  $N_2$  comme adjuvant, et ce à de faibles concentrations, pour en étudier l'influence sur la température des neutres.

$$\ln \left( \frac{I_{J'J''}}{v_{J'J''}^4 * S_{J'}} \right) = A - \frac{F(J')hc}{KT_{\text{rot}}} \quad (8)$$

où  $A (= \ln 2C/Q_r)$  est constant pour toutes les raies de la même bande ( $v'$ ,  $v''$ ), et pour une valeur donnée de  $T_{\text{rot}}$ ,  $v'$  et  $v''$  étant les nombres quantiques vibrationnels des niveaux inférieurs et supérieurs. En portant  $\ln (I_{J'J''}/v_{J'J''}^4 S_{J'})$  en fonction de  $F(J')$ , on obtient une droite de pente  $(-hc/kT_{\text{rot}})$  [49]: à partir des intensités des raies et des constantes de rotation (valeurs tabulées, voir Annexe I), il est facile de remonter à  $T_{\text{rot}}$ . Pour une transition  ${}^2\Sigma - {}^2\Sigma$ , les règles de sélection, pour des valeurs entières de  $K$ , sont telles que  $\Delta K = \pm 1$  ( $\Delta K = 0$  interdites).

Pour une valeur de  $K$  donnée,  $J = K + 1/2$  ou  $J = K - 1/2$ , avec deux niveaux faiblement séparés [46]<sup>5</sup>. En raison de la faible résolution de notre spectromètre, le spectre rotationnel obtenu ne comporte qu'une seule branche apparente, la branche R, qui est en fait la superposition des deux branches correspondant aux deux valeurs de  $J$  (dans ce cas,  $J \equiv K$ ). Si on désigne respectivement par  $K'$  et  $K''$  les niveaux supérieur et inférieur, et si on pose  $K'' \equiv K$ , alors pour la branche R ( $\Delta K = 1$ ), l'énergie rotationnelle s'écrit [45, 48] en termes spectraux:

$$F(K') = B_{v'}(K+1)(K+2) - D_{v'}(K+1)^2(K+2)^2 \quad (9)$$

Où  $B_{v'}$  et  $D_{v'}$  sont les constantes rotationnelles reliées au niveau supérieur (voir Annexe I), dont les valeurs ont été extraites des références [48] et [54]; l'attribution des longueurs d'onde aux différentes raies rotationnelles est effectuée, pour le FNS  $N_2^+$  ( $B^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+$ ) de la bande (0-0), conformément aux données de la référence [55].

---

<sup>5</sup> Le vecteur  $\vec{J}$  peut s'écrire :  $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S} + \vec{K}$ . Comme on est dans le cas d'une transition  $\Sigma - \Sigma$ ,  $\vec{J}$  s'écrit plus simplement  $\vec{J} = \vec{S} + \vec{K}$ .

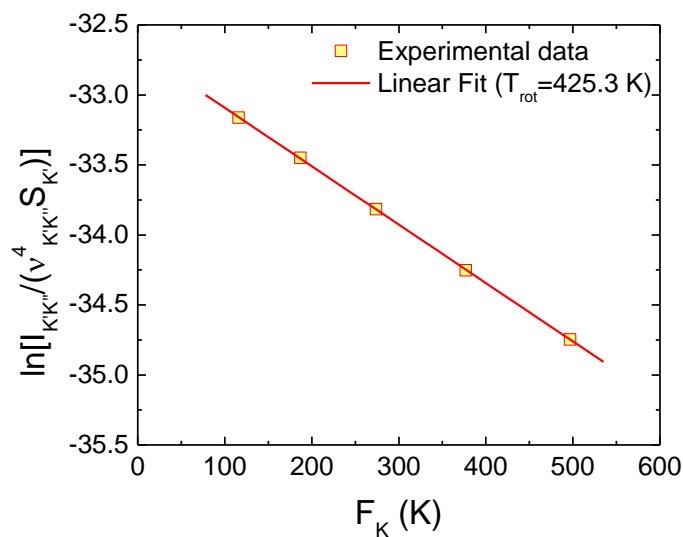


Figure 1-3: Graphique de Boltzmann (tiré de nos résultats) permettant de remonter à la température  $T$  du gaz à partir de la pente  $(-F(J) \times hc/kT_{\text{rot}})$  ainsi obtenue.

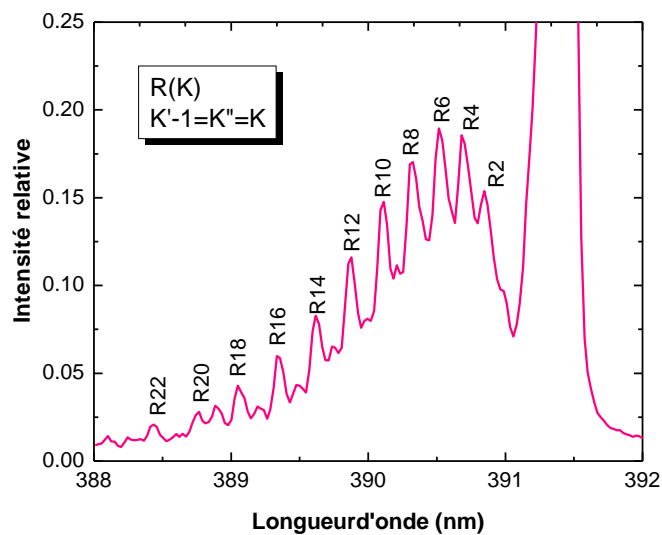


Figure 1-4: Spectre rotationnel (branche R) rattaché à la tête de bande du 1<sup>e</sup> système négatif de  $N_2^+$  (391.4 nm). Ne sont considérées que les raies R6 à R14 pour He, et R6 à R12 pour le Ne.

## CHAPITRE 2 DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL. DIAGNOSTIC OPTIQUE

### Introduction

Ce chapitre est consacré aux dispositifs expérimentaux et aux méthodes de diagnostics utilisés pour la réalisation de nos travaux. Nous allons donner une description succincte des éléments suivants: réacteur à plasma; circuit d'alimentation électrique; branchement des gaz; dispositifs optiques de diagnostic et de caractérisation du plasma.

### 2.1 Montage expérimental

L'appareillage expérimental utilisé dans nos travaux est comparable dans son principe à celui décrit dans les publications antérieures [7-14], avec cependant une modification importante: l'enceinte du réacteur est dans notre cas de  $100\text{ cm}^3$ , alors qu'elle était de 20 litres auparavant. Dans l'analyse comparative des résultats obtenus avec les deux systèmes ("petit" *versus* "grand" volume), il faudra prendre en compte le rapport de volume important (environ 200!) existant entre les deux. Le choix de la configuration petit-volume s'explique par le caractère très onéreux du Ne<sup>6</sup>, l'un des gaz que nous étudierons ici.

Le dispositif expérimental utilisé dans cette étude est représenté en Figure 2-1. Au centre, le réacteur formé d'une cellule de volume  $\sim 100\text{ cm}^3$  auquel sont branchés, d'une part, les circuits d'alimentation électrique et de gaz, et, d'autre part, les instruments de diagnostic optique et spectroscopique.

---

<sup>6</sup> Par exemple, un cylindre de grand volume (2500 psig) de Ne de pureté commerciale coûte en 2010 plus de 1600 \$ !

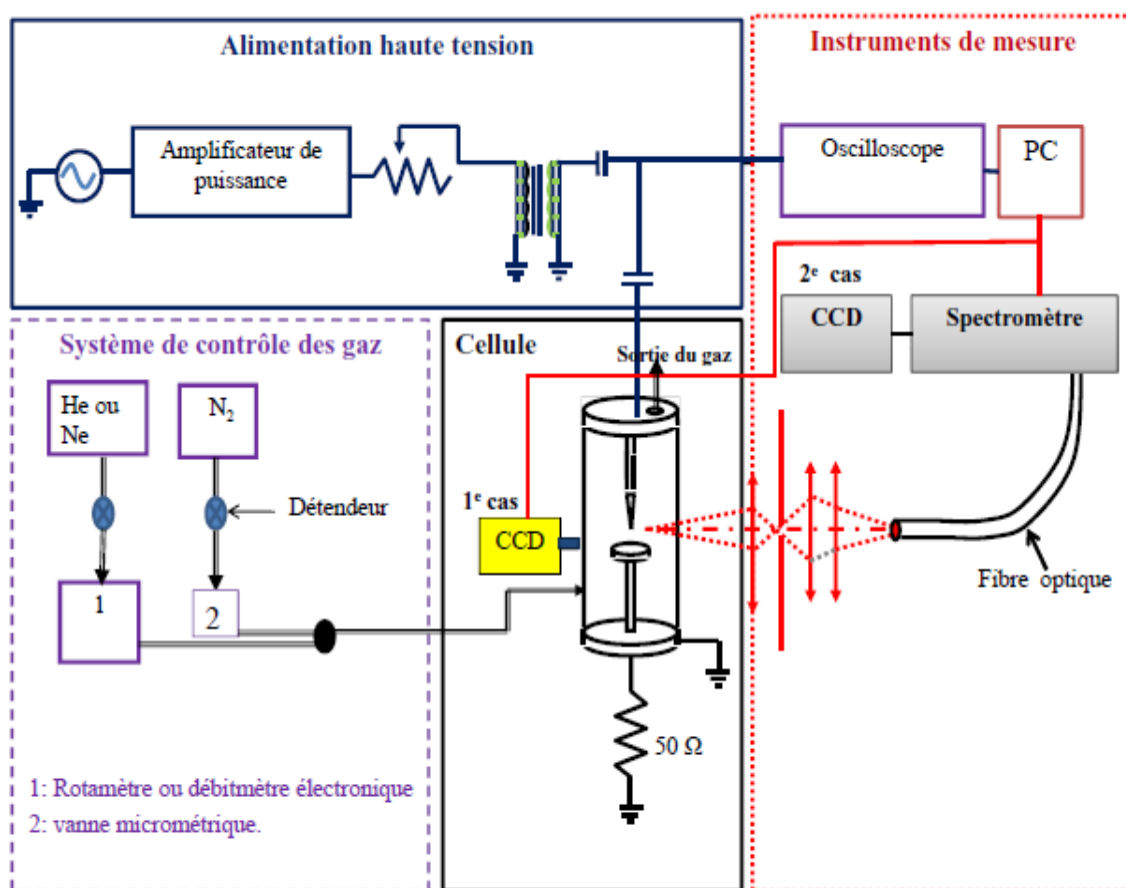


Figure 2-1: Schéma du dispositif expérimental utilisé pour la caractérisation de l'APGD: le 1<sup>er</sup> cas renvoie à la configuration où la caméra CDD est utilisée seule et placée directement en face de la décharge; le 2<sup>e</sup> cas correspond à celui où la caméra CDD est placée en série, derrière le spectrographe.

## 2.1.1 Brève description des composants du dispositif expérimental

### 2.1.1.1 Le réacteur

La cellule utilisée dans cette étude est cylindrique, d'environ 100 cm<sup>3</sup> de volume (diamètre interne 32 mm; hauteur, 105 mm) (Fig. 2-2); cette capacité réduite permet, avec un faible débit, de maintenir une légère surpression du gaz à l'intérieur de la cellule, empêchant ainsi les infiltrations d'air qui pourraient altérer la pureté du gaz.

Les parois de cette cellule cylindrique étant en polycarbonate, nous y avons introduit un tube de verre, de diamètre légèrement inférieur à l'original (diamètre 30 mm ; hauteur 82 mm), afin d'éviter les interactions entre la décharge et cette paroi polymère (polycarbonate). Une fenêtre de 2 cm de diamètre est percée dans ces deux tubes, permettant ainsi de recueillir le signal lumineux émis par la décharge pour fins de diagnostic. Le trou extérieur fait dans le verre est obturé par une fenêtre en silice.

La décharge est créée entre une électrode plane, reliée à la masse et séparée d'une distance de 3.0 mm de l'autre électrode en forme de pointe (aiguille). Celle-ci est en acier inoxydable, dont l'extrémité présente un rayon de courbure de 20  $\mu\text{m}$  (Ogura Jewel Co, Japan) [8, 14]; elle est alimentée en haute tension (HV). L'électrode plane est un disque d'acier inoxydable de 29 mm de diamètre, recouvert d'une fine couche diélectrique circulaire d'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) de  $\sim 1$  mm d'épaisseur, déposée par projection plasma. La distance entre les électrodes peut être ajustée de façon très précise à l'aide d'une vis micrométrique: dans toutes les expériences rapportées ici, elle a été fixée à 3.0 mm. Le choix d'une pointe de rayon de courbure aussi faible s'explique par le fait que nous voulons avoir une zone d'amorçage de la décharge très bien définie spatialement.

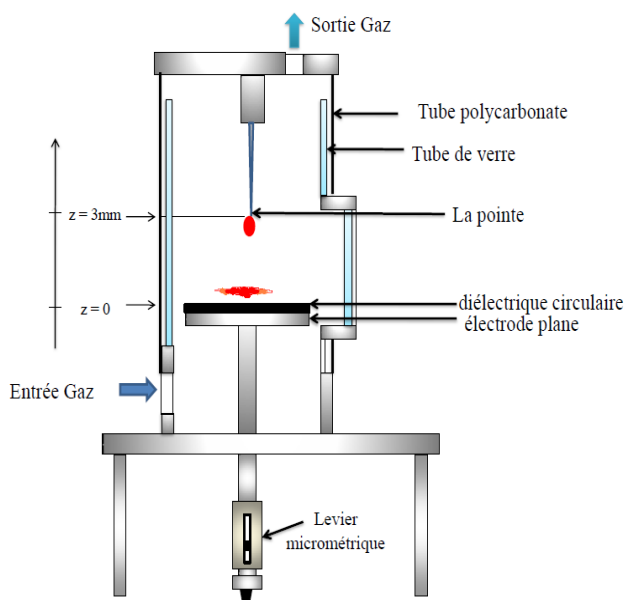


Figure 2-2: Schéma du réacteur utilisé dans l'étude de l'APGD.



### 2.1.1.2 Alimentation en énergie électrique

Le circuit d'alimentation électrique d'une décharge à barrière diélectrique est un des éléments clé pour le contrôle et la stabilité de la décharge. Le circuit électrique utilisé est schématisé sur la Figure 2-1 et 2-3: il se compose d'un générateur de fréquences allant de 1 Hz à 30 kHz (HP 3310A) et d'un amplificateur de puissance (marque OSC audio RAX 2450) arrangé en mode «bridge». Ainsi faisant, la puissance moyenne, délivrée en sortie de l'amplificateur, peut atteindre 1400 W, ce qui implique que le signal d'entrée est amplifié 40 fois. Ce signal est ensuite dirigé sur un transformateur HV via un circuit d'impédance qui permet d'optimiser le transfert de puissance; ce transformateur permet d'élever la tension à plus de 25 kV. Cependant une demande en courant trop élevée a comme effet de diminuer sensiblement cette tension en dessous de 25 kV; autrement dit, le circuit électrique ne peut pas délivrer une tension constante à la décharge si de forts courants traversent ce circuit (d'où d'éventuelles instabilités de la décharge). Cette haute tension alimente l'électrode positive à travers une capacité qui permet d'éviter tout effet corona. La tension optimale permettant d'atteindre la condition SPM ('Single Peak Mode') [7-10, 14] dans le néon est d'environ 1.2 kV; dans He, elle est de 1.6 kV (voir Annexe 3).

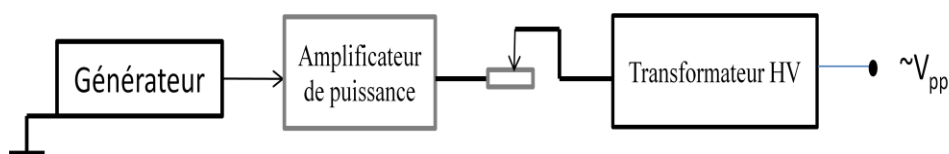


Figure 2-3: Schéma simplifié du circuit électrique.

La tension appliquée aux bornes des électrodes est mesurée par une sonde HV (de marque Tektronix modèle P6015 A), ayant une bande passante de 1 MHz, et un rapport de transformation «inverse» de 1000. Habituellement, il est possible de contrôler la puissance injectée ainsi que le régime de décharge obtenue: pour cela, il suffit de mesurer le courant de décharge et la tension appliquée au gaz. Cependant, dans le cas d'une décharge contrôlée par barrière diélectrique (DBD), ces grandeurs ne sont pas directement mesurables, il faut prendre en compte l'effet du diélectrique qu'on peut caractériser par une capacité mise en série avec celle du gaz. En branchant une résistance de 50  $\Omega$ , tout en bas de la cellule (voir Figures 2-1 et 2-4), on peut

remonter au courant qui traverse le circuit en mesurant la tension  $U(t)$  entre les bornes de cette résistance.

Le circuit équivalent [58] de la décharge APGD peut être schématisé par un agencement de condensateurs et de résistances (Fig. 2-4). Un condensateur  $C_d$  représente le diélectrique, en série avec un condensateur  $C_g$  représentant le gaz. Lorsque la tension est suffisamment élevée pour que la décharge ait lieu, un courant circule entre les électrodes, qui dépend de la valeur des capacités et de la résistance du gaz. L'augmentation de l'épaisseur du diélectrique fait diminuer la densité de courant dans la décharge par une augmentation de la résistance et une diminution de la capacité  $C_t$  qui y est associée.

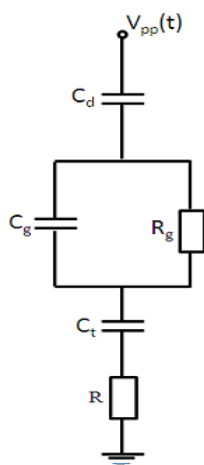


Figure 2-4: Schéma électrique équivalent de la cellule utilisée pour la décharge APGD [58].

### 2.1.1.3 Système d'alimentation en gaz

Les deux gaz nobles utilisés au cours de nos manipulations proviennent de bouteilles prêtes à l'usage. Chaque bouteille est munie d'un manodétendeur pour limiter la pression dans le circuit de gaz, en amont du rotamètre ou de la vanne micrométrique (pour l'azote utilisé comme adjuvant). Vu la sensibilité des décharges dans les gaz rares (He et Ne) aux impuretés, nous avons acquis des gaz ultra purs. Les concentrations maximales en impuretés de ces gaz sont présentées dans le Tableau 1.1, telles que spécifiées par le fournisseur (L'Air Liquide, Canada Ltée).

Tableau 2.1: Taux d'impuretés présents dans He et Ne ultra purs (Pureté 99.999%).

<b>O<sub>2</sub></b>	<b>CO</b>	<b>CO<sub>2</sub></b>	<b>N<sub>2</sub></b>
$\leq 0.1$ ppm	$\leq 0.1$ ppm	$\leq 0.1$ ppm	$\leq 0.1$ ppm
<b>CH<sub>4</sub></b>	<b>C<sub>n</sub>H<sub>m</sub></b>	<b>H<sub>2</sub></b>	<b>H<sub>2</sub>O</b>
$\leq 0.05$ ppm	$\leq 0.1$ ppm	$\leq 0.1$ ppm	$\leq 0.5$ ppm

Au début de notre étude, nous avons utilisé pour le contrôle des débits de gaz (He, Ne et N<sub>2</sub>) un débitmètre électronique asservi. Nous avons ensuite eu recours à un rotamètre pour les gaz nobles (He et Ne) et une vanne micrométrique pour N<sub>2</sub>; celle-ci a été à son tour remplacée par un rotamètre précis de faible débit. Pour connaître avec précision le débit de gaz dans la cellule, ces appareils (rotamètre et vanne micrométrique) ont été calibrés de façon à relier la position de la bille du rotamètre (ou l'indicateur de la vanne micrométrique) avec le débit de gaz correspondant. A titre d'illustration, nous avons donné en annexe 2 quelques courbes de calibration correspondant à l'hélium et au néon (NB: ces courbes doivent être régulièrement établies pour prendre en compte les changements pouvant survenir au niveau de l'appareillage).

### **2.1.2 Diagnostic optique: Caractérisation du plasma par imagerie (CCD) et par spectroscopie optique d'émission (OES)**

Dans cette étude, nous avons utilisé deux configurations différentes pour la collection et l'analyse du rayonnement émis par la décharge:

- i) émission lumineuse de la décharge → Caméra ICCD (imagerie);
- i) émission de rayonnement de la décharge → Banc optique → fibre optique → monochromateur → caméra ICCD (OES);

Dans ce qui suit, nous allons passer en revue chacun des éléments de ce dispositif et discuter brièvement leur mode de fonctionnement.

Pour ce diagnostic, nous faisons appel à un monochromateur de longueur focale 0.5 m (SpectraPro 500i, Acton Research Corporation), muni de trois réseaux de diffraction (1800 BLZ, 300 BLZ et un réseau holographique à 1800 traits/mm) pour caractériser l'émission lumineuse (optique) du plasma obtenu. L'autre élément important de cette caractérisation est la caméra CCD intensifiée 512x512 pixels<sup>2</sup> (Princeton Instruments, PI MAX 16 bits), qui permet à la fois

d'obtenir une cartographie spatio-temporelle de l'émission lumineuse et d'amplifier le signal. Une sonde électrique, reliée à un oscilloscope, nous permet de mesurer la tension aux bornes des électrodes. Dans les travaux antérieurs réalisés au laboratoire [7-14], un photomultiplicateur (PM) a été utilisé pour étudier l'évolution temporelle de la lumière émise par la décharge : le signal ainsi obtenu permet d'étudier les caractéristiques électriques du plasma (temps de montée, durée du signal de la phase positive et négative de la décharge).

### **Banc optique**

L'analyse spectroscopique à différentes positions entre les électrodes et en fonction du temps a été rendue possible par l'utilisation d'un système optique composé de lentilles convergentes permettant de focaliser la lumière, émise par la décharge, dans une fibre optique en quartz (Fig. 2-5). Il est à noter que l'image de la décharge est agrandie et inversée, notamment au niveau de la fente, et c'est à ce niveau que nous sélectionnons la zone émettrice de la décharge. Dans ce cas, l'intensité au niveau de l'électrode supérieure (pointe) correspond à la position la plus basse du banc optique: l'axe positif du banc optique est orienté vers le bas, dans le sens contraire à celui qui va de l'électrode plane à l'électrode supérieure. Ainsi, par convention,  $z = 0$  mm correspond à la surface du diélectrique;  $z = 3.0$  mm à l'extrémité de l'électrode pointe. La hauteur du banc optique est fixée à l'aide d'un levier micrométrique. Les positions  $z = 0$  mm et  $z = 3.0$  mm entre les deux électrodes peuvent être repérées en considérant deux extrema d'intensité émise par la surface du diélectrique et par l'extrémité de la pointe (on peut, par exemple, utiliser la raie 703 nm du néon). L'intensité de la lumière émise par une zone précise de la décharge peut être recueillie de façon spécifique en ajustant la fente de la lentille microscopique à une largeur de 0.2 mm; et sachant que l'image est agrandie, l'erreur sur la localisation de l'endroit émetteur de la décharge est d'autant plus faible. Ainsi, il est possible d'affecter à une position  $z$  du banc optique une émission caractéristique, permettant ainsi d'étudier l'influence du paramètre  $z$ , la position inter-électrode.

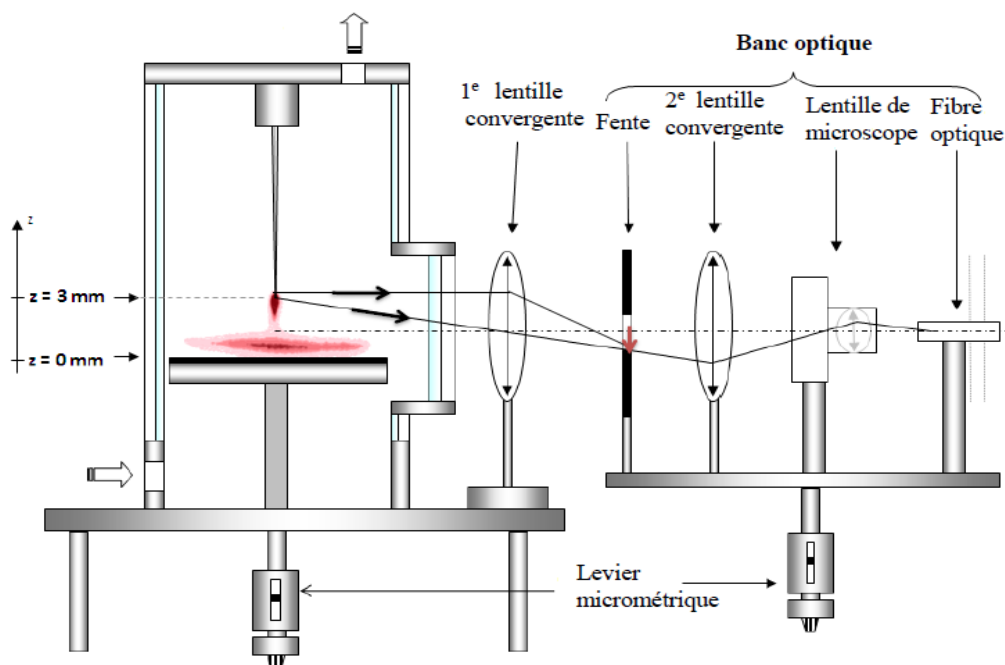


Figure 2-5: Schéma du système optique permettant de focaliser dans une fibre optique la lumière émise par la décharge. Noter l'orientation de l'axe  $z$  ainsi que les positions  $z = 0 \text{ mm}$  (surface diélectrique) et  $z = 3.0 \text{ mm}$  (électrode pointe).

### 2.1.2.1 Spectrographe et caméra ICCD

Le spectrographe a une résolution de  $0.05 \text{ nm}$  à  $435.8 \text{ nm}$  lorsqu'il est utilisé avec un réseau de 1800 traits par millimètre et une fente d'entrée de  $10 \mu\text{m}$ , en utilisant une durée total d'exposition d'environ de 200 ms. La lumière de la décharge est dirigée vers la fente d'entrée via le système optique mobile : pour atteindre un rapport signal/bruit acceptable, la plupart des expériences ont été réalisées avec une résolution spatiale de  $250 \mu\text{m}$ .

L'ICCD (Intensified Charge Coupled Device) constitue un réseau optoélectronique qui peut détecter et enregistrer des signaux lumineux variables dans l'espace et dans le temps (spatio-temporels), avec des temps d'exposition aussi courts que  $2.5 \text{ ns}$ . L'intensificateur inclus dans cet appareil amplifie d'abord le signal lumineux avant de le communiquer à la boîte CCD. Le tandem intensificateur/contrôleur permet un très rapide enregistrement d'événements périodiques de très courte durée, et ce même si la lumière émise est de faible intensité (cas de notre APGD).

Lorsqu'elle est couplée au spectrographe, le détecteur ICCD permet d'enregistrer les spectres émis périodiquement par la décharge sur une gamme de longueurs d'onde comprise entre 350 et à 900 nm, et dans un intervalle spectral de 10 nm.

L'appareil photo-numérique permet d'obtenir une suite d'images d'un événement particulier, prises à intervalles de temps précis (par exemple 100 ns). Chaque image est un ensemble de points (pixels) qui se distinguent par leur intensité de lumière. L'évolution spatio-temporelle de la propagation de la décharge est reconstituée à partir de l'enregistrement numérique des séquences d'images en fonctions du temps. Tout d'abord, on détermine la position exacte des deux électrodes sur les images numériques. Cette calibration permet d'inscrire la séquence des événements entre l'espace séparant les deux électrodes; 3.0 mm, autrement dit, les images numériques sont calibrées en millimètres (corrélation entre les pixels et dimensions spatiales réelles).

Comme nous l'avions vu auparavant, la caméra peut être utilisée soit seule pour recueillir l'émission de la décharge (dans ce cas, elle est face à la décharge), soit en série avec le monochromateur (la caméra derrière le spectromètre). Dans le 1<sup>e</sup> cas, la caméra détecte et enregistre les signaux émis par la décharge qui varient à la fois axialement et radialement ( $z$ ,  $r$ ) tandis qu'elle est asservie par le manipulateur pour recueillir des signaux sur un intervalle de temps bien précis. Ainsi, par exemple, la décharge APGD apparaît et disparaît en environ 14  $\mu$ s, et durant ce laps de temps, elle se développe d'abord, toute petite, depuis le sommet de la pointe et descend vers l'électrode plane en grossissant au fur et à mesure, et finit par s'étaler sur toute la surface du diélectrique. Durant ces 14  $\mu$ s, on peut, avec la caméra, faire par exemple 100, 200 ou 400 prises de vue de cet événement, ce qui correspond à une prise de vue chaque 100, 50 ou 25 ns. Bien sûr, il faudra vérifier que le temps d'ouverture de la caméra est bien inférieur à ces valeurs.

Dans l'autre configuration où la caméra est disposée en série avec le spectrographe, on peut détecter et faire une analyse spectrale de l'émission lumineuse pour des intervalles limités de longueurs d'onde (10 nm), et cela en fonction du temps pour une position  $z$  donnée. Autrement dit, on peut étudier et suivre les variations dans le temps de l'émission d'une raie précise de la décharge, notamment comment son niveau excité correspondant se peuple et se dépeuple en fonction du temps et de la position  $z$ .

Dans la 1<sup>e</sup> configuration, le détecteur ICCD a été fixé sur un support mobile qui permet d'ajuster sa position par rapport à la décharge et il est couplé à un objectif à grand angle (de marque Sigma, de 60 mm de rayon) pour focaliser l'image de l'espace inter-électrodes sur ce capteur, de façon à recueillir le maximum d'émission lumineuse. Dans le cas de la 2<sup>e</sup> configuration (caméra en série avec le monochromateur, on ajuste la position verticale du banc optique pour recueillir l'émission lumineuse en fonction d'une position  $z$  bien précise. Pour synchroniser la mise en tension des électrodes et le déclenchement de la caméra, il faut faire appel à un générateur d'impulsions qui asservit la boîte de contrôle de la caméra en fonction de ce qu'il reçoit du générateur d'impulsions lui-même. Cette procédure permet de définir le temps initial qui marque le démarrage à la fois de la mise sous tension des électrodes et celui de l'ouverture de la caméra. En absence de cette possibilité, il faudra explorer l'émission lumineuse sur un intervalle de temps assez long (par exemple, 100  $\mu$ s) pour détecter l'instant où la décharge apparaît et avec elle l'émission. Cet instant va correspondre à l'endroit où la tension lue sur l'oscilloscope subit une chute puis remonte sensiblement : la décharge est alors créée et l'émission lumineuse commence. Dans notre cas, il est approximativement de 18  $\mu$ s si l'instant 0 correspond à celui où les électrodes sont mises en tension. Bien qu'un photomultiplicateur soit bien adapté pour recueillir la totalité de l'émission émise par la décharge sur toute sa « durée de vie » (environ 14  $\mu$ s), nous avons utilisé la caméra pour ce faire. En effet, avec celle-ci, l'erreur maximum qu'on peut faire dans l'estimation de cet instant de démarrage de la décharge ne dépasse guère 50 ns (en prenant 200 images d'une décharge complète). En résumé, nous pouvons garder en mémoire les caractéristiques suivantes pour le cas de l'hélium [7-14] (voir chapitre 3):

- i) temps 0: mise sous tension des électrodes; c'est-à-dire début du demi-cycle positif de la montée sinusoïdale;
- ii)  $\sim 18 \mu$ s: amorçage de la décharge;
- iii)  $\sim 20 \mu$ s: l'intensité d'émission lumineuse atteint sa valeur maximale; la décharge remplit l'espace  $0 \leq z \leq 3.0$  mm et atteint le diélectrique;
- iv) 20-32  $\mu$ s: la décharge se répand sur le diélectrique ;
- v) les différents niveaux excités se peuplent et se dépeuplent avec des constantes de temps caractéristiques.

Pour pallier l'absence d'une synchronisation de l'ouverture de la caméra avec celle de l'amorçage de la décharge (ce qui peut être facilement obtenue avec un PM), le manipulateur dans ce cas peut prendre 400 images de la décharge, à partir du moment où il déclenche la mise sous tension des électrodes. Dans cet intervalle de 100  $\mu$ s (celui d'une période complète de l'alimentation HV sinusoïdale), il pourra identifier avec assez de précision l'instant où la décharge s'amorce et commence à émettre.

**Utilisation de la caméra en mode shutter et mode gate.** Nous allons donner dans ce qui suit quelques précisions sur l'utilisation de la caméra selon les deux modes principaux : mode shutter et mode gate. Il faut dire d'emblée que les deux modes peuvent être utilisés dans chacune des configurations que nous avons notées 1<sup>e</sup> cas (caméra directement placée en face de la décharge) et 2<sup>e</sup> cas (caméra placée derrière le spectromètre). Dans le mode shutter, la caméra est une sorte de photomultiplicateur dont la particularité est d'enregistrer continûment un signal lumineux sur un intervalle de temps défini par le manipulateur et d'en donner une représentation en pixels et non pas en courant : ainsi, on peut enregistrer l'émission sur 2, 10, 100 microsecondes par exemple ou bien 0,5 millisecondes, etc. La caméra additionne les émissions lumineuses (ou, dit autrement, elle réalise une intégration sur cet intervalle de temps) émanant de la décharge qui elle-même apparaît et disparaît et réapparaît pour disparaître à nouveau. Nous avons très souvent utilisé 0.5 ms comme temps d'enregistrement ou d'exposition: comme nous avons 2 décharges de 14  $\mu$ s chacune sur 100  $\mu$ s, nous avons alors 10 décharges sur 0.5 ms, et la moyenne se fait sur l'ensemble de ces décharges (pour obtenir un bon rapport signal/bruit, il est préférable d'acquérir sur au moins 0.2 ms). L'image qui nous est donnée avec ce mode shutter, la caméra étant placée en face de la décharge, est donc une sorte de moyenne de l'intensité lumineuse, représentée en mode image, où l'influence du temps ne s'exerce plus. Par contraste, lorsqu'elle est placée derrière le spectromètre, et en opérant toujours en mode shutter, on peut enregistrer le spectre « moyenné » sur le temps d'acquisition (par exemple, 0.5 ms) sur la plage de 350 à 800 nm.

Quant au mode gate, et lorsque la caméra est placée face à la décharge, on peut suivre l'évolution temporelle, *en discontinu*, de l'émission de la décharge: on obtient un nombre fini de photographies de l'émission lumineuse de la décharge: sur les 14  $\mu$ s que dure une décharge, le manipulateur prend à intervalle régulier une image; ainsi, il peut prendre 50, 100 ou même 500 selon les besoins, et suivre ainsi les variations qui se sont produites à l'intérieur de cet intervalle entre deux images. Lorsque la caméra est en revanche placée derrière le spectromètre, on acquiert



le spectre lumineux à intervalles réguliers: on peut alors observer les variations de l'intensité lumineuse sur une gamme précise du spectre (10 nm à chaque fois), qui se sont produites dans l'intervalle de temps qui s'est écoulé entre deux images. Ainsi, de proche en proche, on peut suivre les fluctuations de divers niveaux excités en fonction du temps (lequel est défini par le temps qui s'écoule entre deux images et que définit le manipulateur).

## **2.2 Application de l'OES à la détermination de la température de rotation dans les gaz nobles, He et Ne**

Le principe du diagnostic spectroscopique des plasmas est de déterminer les paramètres qui caractérisent ces milieux (densité électronique, température du gaz, etc.) à partir de l'analyse de leurs rayonnements. Pour chaque étude expérimentale, il existe un outil de diagnostic approprié, adapté aux contraintes expérimentales (instabilités, difficultés de prise de mesure, marqueur non spécifique, etc.) et par les conditions d'équilibre du plasma.

Différentes méthodes peuvent être utilisées pour une caractérisation complète des plasmas gazeux, dont on citera notamment les mesures électriques et optiques [7-14, 29, 30, 57-59], les figures de Lissajous [24], l'imagerie à haute vitesse [7-14, 29] et la spectroscopie d'émission [14, 29-30, 46, 48, 52-53, 60-61, 63], avec une bonne résolution spatio-temporelle [14, 31, 48, 52, 53, 60]. Dans notre laboratoire, nous avons continué à utiliser l'approche de Hudon et al. [54] qui combine les diagnostics électrique et optique de la décharge, permettant l'un et l'autre de détecter les impulsions courtes, le dernier permettant de caractériser aussi l'APGD.

La mesure de la température du gaz dans une décharge luminescente est un paramètre important en pratique puisqu'il nous renseigne sur les éventuels dommages que des températures trop élevées (même localement) peuvent faire subir aux matériaux thermosensibles tels que les polymères durant les traitements de surface. L'évaluation précise de la température des particules neutres n'est pas simple du fait que les capteurs conventionnels, tels les thermocouples, ne sont pas adaptés pour une utilisation dans les plasmas. D'autres méthodes mieux adaptées aux plasmas existent; on peut citer par exemple, la spectroscopie d'absorption, la fluorescence induite par laser (LIF) et la spectroscopie optique d'émission (OES) [14, 46, 47, 53].

Les deux premières méthodes sont généralement basées sur la mesure en continu de l'état fondamental des espèces et peuvent être employées pour estimer la température réelle du gaz

neutre; cependant, elles nécessitent un équipement pas toujours compatible avec des applications industrielles. En revanche, l'OES fournit des informations sur différentes espèces excitées du plasma, avec cependant comme inconvénient que la température mesurée ne représente pas nécessairement la température du gaz. La mesure par OES de la température du gaz peut être réalisée par l'analyse des bandes du spectre rovibrationnel moléculaires diatomiques, par exemple  $H_2$ ,  $C_2$ ,  $CN$ ,  $CH$ ,  $NH$ ,  $OH$ ,  $NO$  ou  $O_2$ . A cet effet, les deux bandes d'émission les plus utilisées sont: le Second Système Positif (SPS) de  $N_2$  et le Premier Système Négatif (FNS) de l'ion  $N_2^+$  [46, 48, 52, 53]. Ce dernier présente l'avantage d'avoir une structure rotationnelle qui peut être résolue, même en utilisant un spectrographe de performance moyenne. La température rotationnelle,  $T_{rot}$ , peut alors être facilement déterminée à l'aide d'un diagramme de Boltzmann [13, 14, 48, 54]; nous utiliserons cette méthode pour estimer la température du gaz dans des décharges en flux de He et de Ne, à la PA.

A la différence de Poenariu et al. [13, 14] qui ont utilisé He et le mélange He/ $N_2$  comme gaz plasmagènes pour 3 configurations différentes des électrodes, nous nous limiterons au cas de la configuration pointe-plan, en comparant les APGD de He et de Ne, avec ou sans adjuvant. Pour ce qui relève de la thermométrie, nous déterminerons la  $T_{rot}$  pour différentes positions dans l'espace inter-électrodes, en faisant varier faiblement la concentration de l'adjuvant  $N_2$ ; en dernier lieu, nous en étudierons l'effet d'une variation importante des débits de He et de Ne. Cela nous permettra de considérer ensuite les phénomènes d'échanges thermiques ayant lieu dans ces plasmas, en lien avec les conductivités thermiques des deux gaz.

## CHAPITRE 3 RÉSULTATS ET DISCUSSION

Dans ce qui suit, nous distinguerons trois volets de nos résultats: i) analyse spectroscopique des décharges de He et de Ne; ii) Évaluation de la température du gaz (i.e. des neutres) par thermométrie; iii) analyse spatio-temporelle des décharges, basée sur les données recueillies par la caméra ICCD. Chacun de ces volets implique l'étude de l'influence de plusieurs paramètres expérimentaux. Ainsi, pour ce qui relève de l'analyse spectroscopique, on considérera l'effet de la position axiale  $z$  sur les spectres obtenues dans des décharges DBD de He et de Ne, et ce pour la gamme des longueurs d'onde allant de 350 à 800 nm. Pour le deuxième volet, nous étudions les variations de l'émission de la tête de bande du FNS, 391.4 nm, en fonction de la position axiale,  $z$ , et ce pour les deux gaz, He et Ne; en même temps, on acquiert, à chaque fois, le spectre rotationnel correspondant (branche R). Ainsi, il est possible d'évaluer, à partir des intensités des raies rotationnelles, la  $T_{\text{rot}}$  (graphique de Boltzmann, Chap. 1. 4). Nous considérerons aussi les variations de  $T_{\text{rot}}$  en fonction de la distance axiale et du débit du gaz. Pour le 3<sup>e</sup> volet, nous analyserons les données recueillies avec la caméra ICCD, lorsqu'elle est placée notamment derrière le spectromètre (2<sup>e</sup> cas sur la Fig. 2-1): nous aurons à étudier les distributions spatio-temporelles,  $I_{z-t}$ , obtenues pour une longueur d'onde  $\lambda$  donnée.

### 3.1 Spectres d'émission de He et du Ne. Effet de la position, $z$

#### 3.1.1 Cas de l'hélium

Le spectre d'émission de l'APGD de He a été acquis entre 350 nm et 800 nm, pour un débit de He de 300 sccm et à la position  $z = 0$  (Fig. 3-1). Le spectre est enregistré pour  $\lambda \geq 350$  nm pour tenir compte de la faible sensibilité du détecteur ICCD en-deçà de cette limite inférieure. Précisons que la caméra est placée derrière le spectromètre (voir Fig. 2-1) et que la fibre optique recueille l'émission lumineuse, transmise par la fente; celle-ci est ajustée de façon à sélectionner l'émission d'une zone précise de la décharge (à une hauteur  $z$  fixée grâce au banc optique).

En allant de gauche à droite, on y observe notamment i) les bandes d'émission du second système positif (SPS) de  $N_2$  ( $C^3\Pi_u - B^3\Pi_g$ ), dont, par exemple, la 380 nm; ii) du premier système négatif (FNS) l'ion  $N_2^+$  ( $B^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+$ ), dont la 391.4 nm; iii) la transition ( $3^3S - 2^3P$ ) de He I, à 706 nm; et iv) la transition ( $3^5P \rightarrow 3^5S$ ) du triplet de l'oxygène, O I, à  $\lambda = 777$  nm. Hormis la raie de He, toutes les autres bandes et raies d'émission proviennent des impuretés de  $N_2$  et de  $O_2$ ,

présentes dans la bouteille de gaz (proportion de l'ordre de ppm, voir Tableau 2.1) ou de petites fuites d'air dans le système. Cependant, l'oxygène peut aussi provenir notamment du matériau cathodique ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) suite au bombardement de celle-ci par des espèces hautement énergétiques du plasma (ions, métastables, etc., voir plus loin).

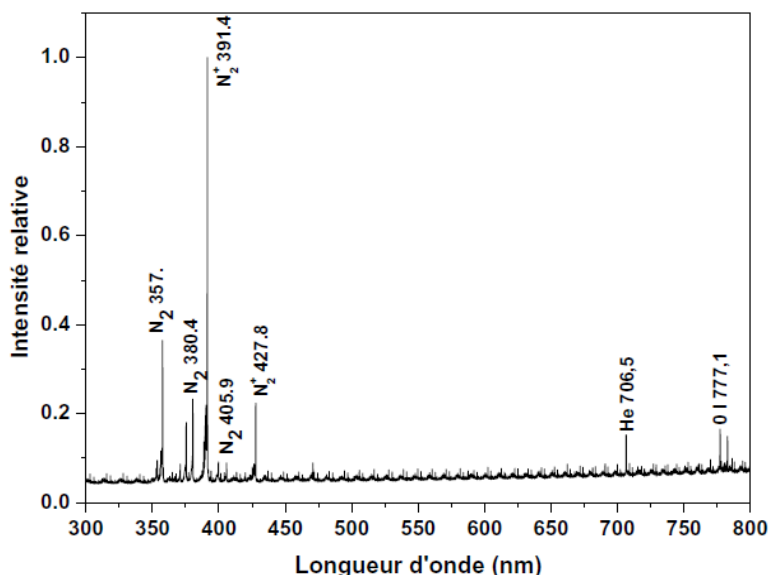


Figure 3-1: Spectre d'émission de l'APGD de He (UHP) pour une distance entre les électrodes pointe-plan de 3 mm, à la position axiale  $z = 0$ . L'intensité est normalisée à la valeur maximale de la tête de bande, 391.4 nm. Conditions expérimentales:  $z = 0$  mm, fréquence d'excitation, 10 kHz,  $V_{pp} = 1.6$  kV, débit de He, 300 sccm.

À cette position  $z = 0$ , il apparaît nettement que l'émission la plus intense provient de la tête de bande du FNS  $\text{N}_2^+$  ( $\text{B}^2\Sigma_u^+ - \text{X}^2\Sigma_g^+$ ), à 391.4 nm. Comparativement à cette émission, les transitions visibles de l'hélium sont faibles, même à cette position: transition ( $3^1\text{D} - 2^1\text{P}$ ), 667.8 nm ; transition ( $3^3\text{D} - 2^3\text{P}$ ), 587.6 nm ; transition ( $3^3\text{P} - 2^3\text{S}$ ), 388.8 nm. Cette dernière s'intercale entre les raies R ( $k = 14$ ) et R ( $k = 16$ ) du spectre rotationnel d'émission du FNS de  $\text{N}_2^+$ , et empêche de considérer la raie R16 pour le calcul de la  $T_{\text{rot}}$ .

On remarque aussi que les raies caractéristiques d'hydrocarbures sont inexistantes, ce qui indique que le plasma ainsi créé n'interagit pas avec la structure en polycarbonate du réacteur,

probablement à cause du tube de verre intercalé entre la décharge et les parois de ce tube extérieur.

### ➤ Effet de la position $z$

La Figure 3-2 montre les spectres d'émission de la décharge de He, pour la gamme 350 - 800 nm des longueurs d'onde, pour trois positions axiales caractéristiques ( $z = 0$ ,  $z = 1.5$ , et  $z = 3.0$  mm). Précisons que  $z = 0$  correspond à une émission issue du voisinage du diélectrique,  $z = 3$  mm à celle émanant de la pointe, tandis que  $z = 1.5$  se situe à mi-distance entre les deux. On relève notamment les points importants suivants:

- i) l'émission de la tête de bande du FNS de  $N_2^+$ , 391.4 nm, est la plus intense au niveau du diélectrique, passe par un minimum entre les deux électrodes ( $z = 1.5$  mm) et remonte sensiblement au voisinage de la pointe;
- ii) l'émission de la raie 706.5 nm de He semble disparaître au niveau de la pointe tandis qu'elle est maximum au voisinage du plan diélectrique ;
- iii) la raie O I, 777.1 nm, de l'oxygène atomique présente un maximum au niveau du diélectrique, mais disparaît quasiment au niveau de la pointe;
- iv) les raies  $N_2$  (C) sont aussi plus intenses au voisinage du diélectrique.

Dans la section 3, nous analyserons les variations temporelles de chacun de ces groupes de raies, pour une position axiale fixée. Nous y verrons notamment la cinétique de peuplement/dépeuplement de ces raies.

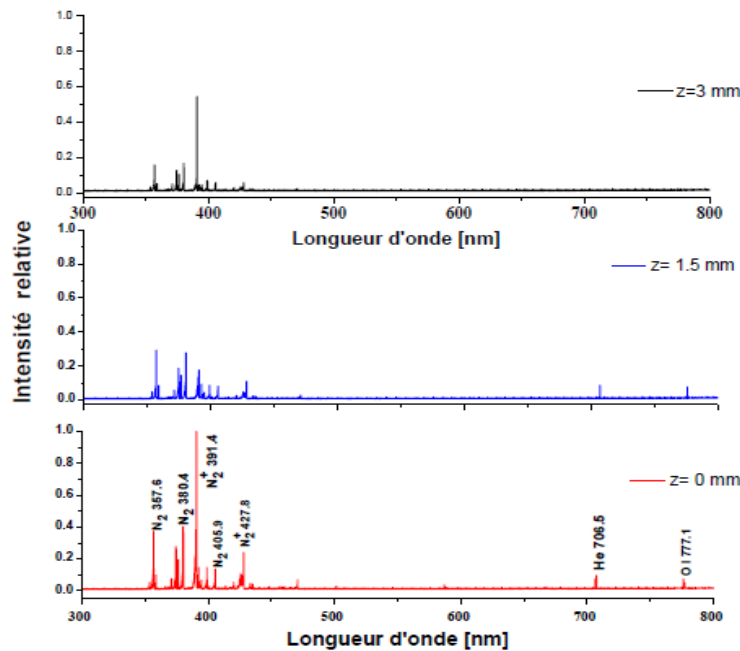


Figure 3-2: Spectres d'émission de la décharge de He obtenus pour trois positions axiales caractéristiques:  $z = 3.0$  mm (voisinage de la pointe);  $z = 1.5$  mm (à mi-distance entre les électrodes);  $z = 0$  (voisinage du diélectrique). Les autres conditions expérimentales sont celles de la Fig. 3-1. La normalisation est effectuée avec  $I_{391.4 \text{ nm}, z=0}$  ( $I \equiv 1.0$ , ou 100%).

### 3.1.2. Cas du néon

La Figure 3-3 présente un spectre d'émission de l'APGD de Ne, obtenu dans les conditions opératoires suivantes indiquées, en présence d'un ajout d'une très faible concentration de  $N_2$  (0.1%). Sans cet ajout d'une très faible teneur de  $N_2$ , l'intensité de la tête de bande du système  $N_2^+$  (391.4 nm) est quasiment nulle, d'où l'impossibilité d'observer les raies rotationnelles qui lui sont rattachées. Aussi, cet ajout est nécessaire pour procéder aux calculs de thermométrie.

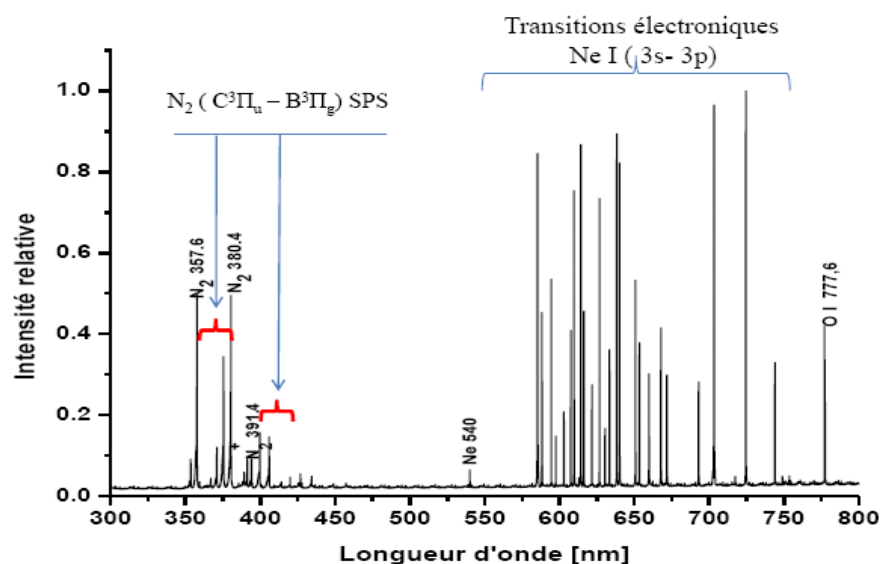


Figure 3-3: Spectre d'émission de l'APGD de Ne (avec 0,1% de  $N_2$ ), pour une distance entre les électrodes pointe-plan de 3 mm à la position axiale  $z = 0$  mm. Conditions expérimentales:  $z = 0$  mm, fréquence d'excitation, 10 kHz,  $V_{pp} = 1.2$  kV, débit de Ne, 280 sccm. Voir annexe 4 pour l'identification des raies de Ne observées sur notre spectre.

On peut faire les observations suivantes:

- i) l'APGD de Ne montre un spectre d'émission très riche dans la gamme des  $\lambda$  allant de 580 à 750 nm, provenant des transitions Ne I (3s - 3p), ce qui lui est caractéristique;
- ii) le spectre comprend aussi une forte émission émanant d'impuretés d'azote (entre 350 nm et 450 nm) (Annexe 5,  $N_2$ ) et d'oxygène: on note des transitions liées au SPS,  $N_2(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$ , et au FNS,  $N_2^+(B^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+)$ , et au triplet de l'oxygène, O I;
- ii) l'intensité de la tête de bande  $N_2^+$  est beaucoup plus faible, relativement aux émissions du système  $N_2(C)$ , il y a lieu de comparer cela à ce que nous avons observé pour le cas de He ;
- iii) l'émission due à O I est intense, en comparaison notamment avec les émissions des espèces azotées.

### ➤ Effet de la position $z$

La figure 3-4 montre trois spectres d'émission de la décharge de Ne, dans la gamme 350 - 800 nm des longueurs d'onde, pour trois positions axiales caractéristiques ( $z = 0$ ,  $z = 1.5$ , et  $z = 3.0$  mm). Ces données expérimentales permettent de noter les points suivants:

- i) l'émission de la tête de bande du FNS de  $N_2^+$ , 391.4 nm, est la plus intense au niveau du diélectrique, passe par un minimum entre les deux électrodes ( $z = 1.5$  mm) et remonte sensiblement au voisinage de la pointe;
- ii) l'émission de la raie 703 nm, qu'on va suivre préférentiellement, est maximale au niveau du diélectrique, puis chute fortement déjà à mi-distance entre pointe et plan diélectrique, et continue de décroître en allant vers la pointe. Il est à noter que globalement les différentes raies de Ne se comportent de façon semblable à la 703 nm, mais il y a quelques cas particuliers;
- iii) la raie O I, 777.1 nm, de l'oxygène atomique est assez intense au niveau du plan diélectrique et à mi-distance de l'espace inter-électrodes, puis s'évanouit au voisinage de la pointe;
- iv) les raies  $N_2$  (C) sont plus intenses à mi-distance entre plan diélectrique et anode.

Avant de procéder à l'analyse de ces différentes observations, nous étudions au préalable l'effet de la position  $z$  sur l'émission émanant de cette APGD. Ainsi, nous aurons tous les résultats permettant de faire un tel commentaire.



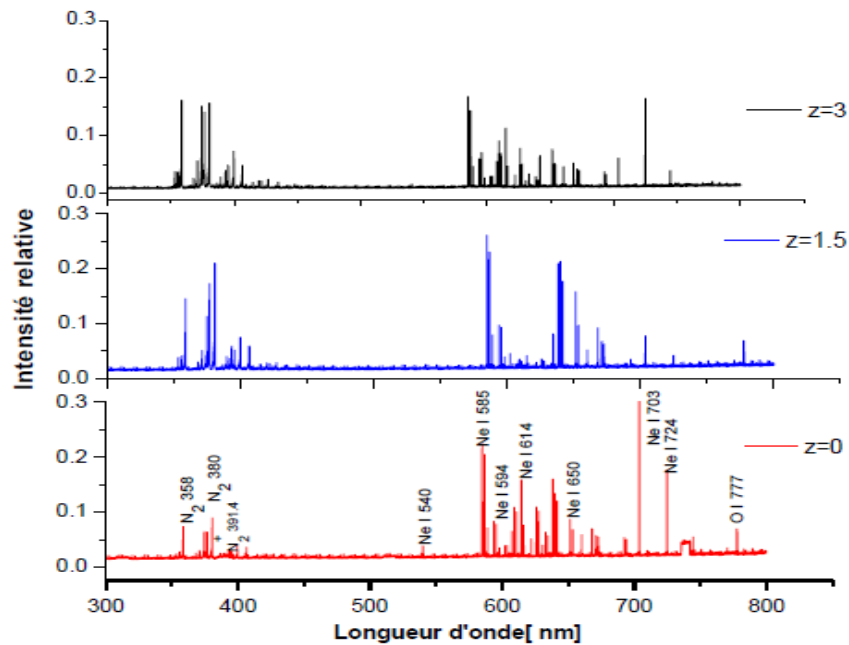


Figure 3-4: Spectres d'émission de la décharge de Ne (avec 0.1% de  $N_2$ ), obtenus pour trois positions axiales caractéristiques:  $z = 3.0$  mm (pointe);  $z = 1.5$  mm (à mi-distance entre les électrodes);  $z = 0$  (plan diélectrique). Les autres conditions expérimentales sont celles de la Fig. 3-3. La normalisation est effectuée avec  $I_{703 \text{ nm}}$ ,  $z = 0$  ( $I \equiv 1.0$ , ou 100%).

### 3.1.3 Émission de la tête de bande du système $N_2^+$ , dans les APGD de He et de Ne.

La méthode retenue ici pour estimer la  $T_{\text{rot}}$  fait appel à la tête de bande de  $N_2^+$ , 391.4 nm, et à la détermination assez précise de la structure fine de son spectre rovibrationnel. Pour étudier les variations spatiales (axiales) de  $T_{\text{rot}}$ , nous allons déterminer l'intensité du niveau  $N_2^+$  (B), pour différentes positions axiales.

#### 3.1.3.1 Cas de He

La Figure 3-5 montre la distribution axiale de l'intensité,  $I$ , de la tête de bande de  $N_2^+$ , émise en différents points entre les deux électrodes dans les conditions indiquées. La distribution spatiale de cette intensité fait apparaître 3 zones:

- i) au voisinage du diélectrique, l'intensité est proche de sa valeur maximale (pour  $z$  égal environ à 0.3 mm);
- ii) pour  $z > 0.3$  mm, elle décroît très fortement avec  $z$  croissant et atteint un minimum autour de  $z = 1.75$  mm.
- iii) pour  $z$  tel que  $1.75 \text{ mm} \leq z \leq 2.25$  mm,  $I$  varie très faiblement (vallée);
- iv) pour  $z > 2.3$  mm,  $I$  augmente de nouveau, mais pas aussi fortement que dans la 1<sup>e</sup> zone.

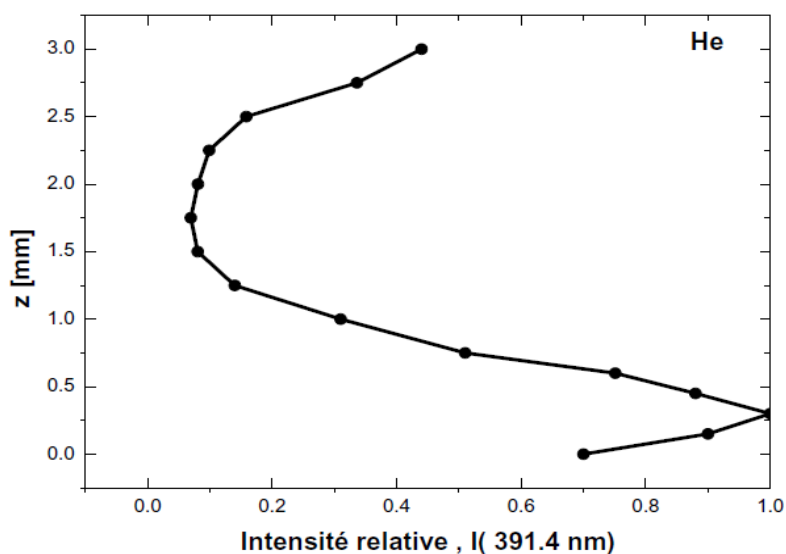


Figure 3-5: Distribution axiale de l'intensité relative de la tête de bande de  $N_2^+$  (391.4 nm) entre  $z = 0$  et  $z = 3.0$  mm, dans l'APGD de He. Distance inter-électrodes = 3 mm; tension crête à crête de 1.6 kV, 10 kHz et un débit de He de 300 sccm.

La forte intensité d'émission de la tête de bande de l'ion  $N_2^+$ , près du diélectrique et de la pointe, indique la présence d'espèces de haute énergie qui, par collisions, font passer les molécules de  $N_2$  au niveau excité de l'ion  $N_2^+$  (B) ; celui-ci se situe à 18.7 eV au-dessus du niveau fondamental de  $N_2^{+7}$ . En retournant au niveau fondamental de l'ion, il émet notamment la tête de bande (391.4

---

<sup>7</sup> Les bandes du premier système négatif de  $N_2^+$  correspondent aux transitions entre les états électroniques  $B^2\Sigma_u^+$  et  $X^2\Sigma_g^+$  (état fondamental de  $N_2^+$ ). L'état  $N_2^+$  ( $B^2\Sigma_u^+$ ) ( $v'=0$ ) se situe à 18,7 eV et  $N_2^+$  ( $X^2\Sigma_g^+$ ) ( $v''=0$ ) à 14,56 eV.

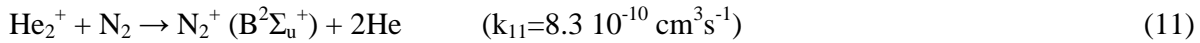
nm) transition correspondant aux niveaux vibrationnels (0,0), selon le schéma suivant [8, 9, 13-14, 29, 49, 64]:



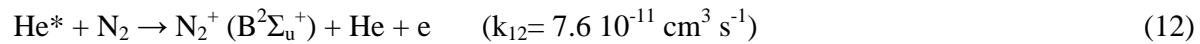
Avec un coefficient de réaction très élevé,  $K_{10} = 1.5 \cdot 10^7 \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$  [45].

La question se pose de savoir quelles sont les espèces qui pourraient contribuer au peuplement de ce niveau. On dénombre au moins trois types d'espèces qui peuvent fournir de telles énergies: i) les métastables  $\text{He}^*$ ; ii) les ions moléculaires  $\text{He}_2^+$ ; iii) les électrons de haute énergie. A cet effet, on sait que les métastables  $\text{He}^*$  ( $^3\text{S}_1$  et  $^1\text{S}_0$ ) ont une énergie de l'ordre de 20 eV (voir tableau 1.2), avec en outre des valeurs élevées pour leurs sections efficaces de collision ( $\sim 10^{-15} \text{ cm}^2$ ) [45]. D'autre part, les ions moléculaires, notamment dans les gaz rares de He, Ne et Ar, constituent un réservoir important d'énergie susceptible de contribuer à cette excitation [53, 65]. Dans ces deux cas, il suffit que les concentrations de ces espèces soient suffisamment élevées pour produire le niveau  $\text{N}_2^+$  (B). Pour ce qui concerne les électrons, si l'on s'en tient aux conditions habituelles de travail à la PA, pour induire l'ionisation de  $\text{N}_2$  est relativement faible. Cependant, dans notre cas, il y a lieu de considérer leur contribution, précisément au voisinage de la pointe: dans cette zone très réduite, un champ électrique local très intense y est produit et peut accélérer les électrons qui s'y trouvent de façon telle que leur énergie cinétique atteigne une valeur suffisante pour, lors d'une collision é-molécule  $\text{N}_2$ , ioniser celle-ci [10, 14, 67-68]. Résumons les principales réactions conduisant à la formation du niveau excité de l'état  $\text{N}_2^+$  ( $\text{B}^2\Sigma_u^+$ ):

- i) *transfert de charge*: celui-ci peut se faire avec l'ion  $\text{He}^+$  ou avec l'ion moléculaire  $\text{He}_2^+$ . Dans le cas précis de l'hélium, il y a prédominance des ions moléculaires<sup>8</sup> [13, 14, 29, 45, 46, 49]:



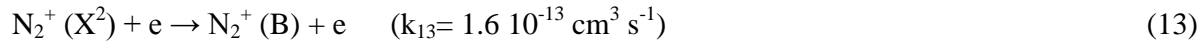
- ii) *effet Penning* [13-14, 31, 44, 45, 53]:




---

<sup>8</sup> La durée de vie de l'ion  $\text{He}^+$  est d'environ  $10^{-8}\text{s}$  puisqu'il se transforme en ion moléculaire selon la réaction  $\text{He}^+ + 2\text{He} \rightarrow \text{He}_2^+ + \text{He}$ , avec un coefficient de réaction  $k_6 = 1.5 \cdot 10^{-31} \text{ cm}^6\text{s}^{-1}$ .

iii) *impact électronique* : collision directe électron-ion  $N_2^+$  ( $X^2\Sigma_g^+$ ), amenant  $N_2^+$  de l'état fondamental à l'état excité  $N_2^+$  (B) [8, 9, 14,44, 53]:



On peut ainsi faire correspondre aux différentes régions spatiales de la décharge les principaux processus qui contribuent au peuplement/dépeuplement -du niveau  $N_2^+$  (B) :

- i) au voisinage de la pointe : processus électroniques dominants;
- ii) près du diélectrique : processus par effet Penning dominants, avec une contribution probable des ions moléculaires;
- iii) processus de perte des ions dans l'état  $N_2^+$  (B):  $N_2^+(B) + N_2 \rightarrow N_2 + N + N$ . Ce processus semble important dans la zone:  $0.5 \text{ mm} < z < 2 \text{ mm}$ ;
- iv) tout près du diélectrique, il y aurait une perte de métastables et des ions moléculaires qui bombardent la surface du diélectrique, d'où une moindre émission à partir du niveau  $N_2^+$  (B).

Nous reviendrons (sec. 3.3) sur la distribution spatio-temporelle du niveau  $N_2^+$  (B) dans les décharges de He et de Ne, cependant il y a lieu de préciser déjà que les résultats acquis ici (Fig. 3-5) sont une moyenne établie sur environ 10 décharges (accumulation de l'intensité émise par ce niveau sur 0.5 ms : voir Chap. 2, Fig. 2-1 (1<sup>e</sup> cas)). Dans le cas de l'analyse spatio-temporelle, les données sont recueillies sur plusieurs dizaines de ns.

Nous comparons plus loin les mécanismes à l'origine de la production du niveau  $N_2^+$  (B), dans l'APGD de He avec celle de Ne.

### 3.1.3.2 Cas de Ne

Dans le cas de l'APGD de Ne, l'état excité  $N_2^+$  (B) est relativement faiblement peuplé si on le compare avec celui de l'APGD de He (Fig.3-6): on note une plus forte émission près du diélectrique; lorsqu'on remonte vers l'anode, et pour  $z \geq 0.5 \text{ mm}$ , l'intensité émise par ce niveau chute de façon exponentielle pour atteindre sa valeur minimale près la pointe. Il est intéressant de noter que sur un rayon de 1 cm autour de la pointe, il ne semble pas y avoir d'électrons de très haute énergie dans l'APGD de Ne. D'ailleurs, la très faible intensité mesurée dans cette zone, près de la pointe, rend pour le moins aléatoire l'estimation de  $T_{\text{rot}}$  dans cette région.

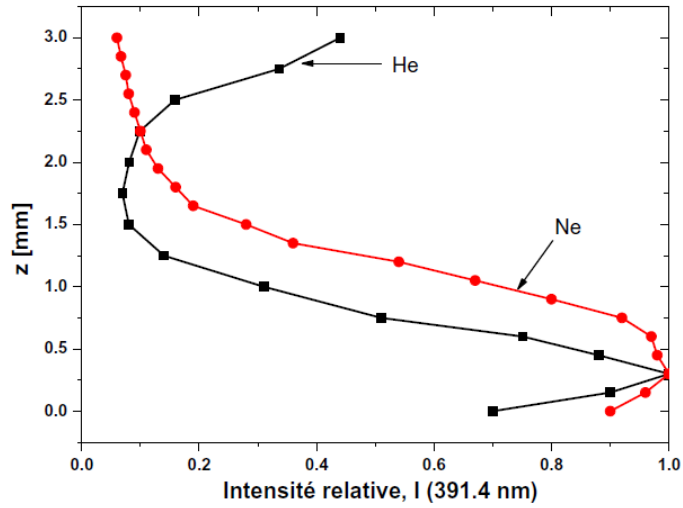
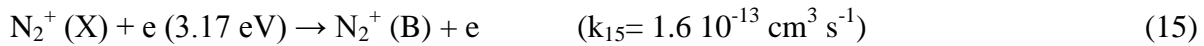
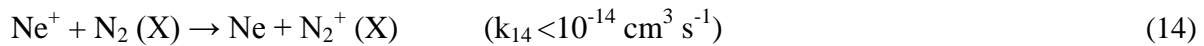


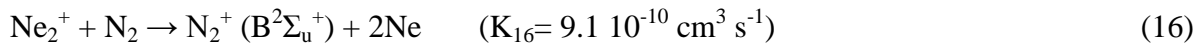
Figure 3-6. Distribution axiale de l'intensité relative de la tête de bande de  $N_2^+$  (391.4 nm) dans l'APGD de Ne (avec 0.1% de  $N_2$ ), comparativement à celle de He. Noter que la comparaison est faite pour des valeurs normalisées séparément. Même conditions qu'en Fig. 3-3.

De façon comparable au cas de He, résumons les différents processus réactionnels donnant naissance au niveau  $N_2^+$  (B):

- i) *transfert de charge*. On peut supposer ici aussi l'implication des ions atomiques et moléculaires du néon,  $Ne^+$  et  $Ne_2^+$ . Dans le cas précis du néon, on dispose de moins de données pour trancher la question [53, 65, 67]:



Avec les ions moléculaires, on a la réaction:



La réaction (16) semble être tout aussi probable que dans le cas de He, mais dans le cas du néon un fort quenching du niveau  $N_2^+$  (B) semble être à l'origine de la très faible émission radiative émanant de ce niveau: ce quenching est soit dû aux atomes Ne, aux molécules  $N_2$  ou à la recombinaison dissociative [10, 45].

- ii) *effet Penning*. Ici, les métastables de Ne peuvent ioniser les molécules de  $N_2$  pour donner le niveau  $N_2^+$  (X) (fondamental); à partir de là, un impact électronique peut porter cet ion vers le niveau  $N_2^+$  (B) [45, 65, 68] :



$$\sigma_t = 10.4 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2 \text{ [68]}$$

Ainsi dans le Ne, les métastables ne sont pas suffisamment énergiques ( $Ne^* \sim 16.6 \text{ eV}$ ) pour exciter directement le niveau  $N_2^+$  (B): une bonne partie d'entre eux est perdue dans la production de niveaux intermédiaires tels que  $N_2$  (C) [45] ou  $N_2^+$  (A) [45]. Si bien que la contribution des métastables à la formation du niveau  $N_2^+$  (B) est fortement réduite dans le cas du Ne.

### **Électrons très énergiques dans l'APGD de He et pas dans APGD de Ne, au voisinage de la pointe ?**

À l'évidence, nous pourrions, de façon comparable à ce qui a été fait dans le cas de He, délimiter grossièrement les zones où agissent de façon prédominante certains mécanismes plutôt que d'autres dans la création du niveau  $N_2^+$  (B). Pour indiquer plutôt les différences (voir Fig. 3-6), nous avons déjà fait remarquer qu'au voisinage de la pointe (sur 1 mm de rayon), pour le cas de Ne, il n'y a pratiquement pas d'électrons suffisamment chauds pour créer  $N_2^+$  (B) comme c'est le cas dans He. En complément de ce que nous avons dit auparavant, nous pourrions considérer l'hypothèse qui suit. Le libre parcours moyen des électrons dans le cas de He est plus grand que celui du Ne et sont en rapport inverse de leurs sections efficaces d'ionisation :

$$L_{pm} = 1/n\sigma_i \quad (18)$$

où  $\sigma_i$  est la section efficace d'ionisation et  $n$  la densité du gaz à la PA.

Par exemple, pour des énergies électroniques situées entre 3 eV (énergie moyenne d'un électron à la PA, au début du l.p.m) et 25 eV, le libre parcours moyen d'un électron dans He est en moyenne 2 à 2.5 plus grand que celui dans Ne [60, 69]. Ainsi, près de la pointe, un électron donné dans la décharge de He sera accéléré par le champ électrique local (très intense à cet endroit) sur une bien plus longue distance que dans le cas du Ne. Il a le temps d'acquérir une grande énergie avant d'entrer en collision avec un atome/molécule et de l'ioniser. Cela peut expliquer le fait que dans l'APGD de He, l'émission à partir du niveau  $N_2^+$  (B) (ce niveau étant alimenté par ces électrons hautement énergiques) est bien plus intense que dans le cas du Ne, au voisinage de la pointe.

### 3.2 Calcul de la température du gaz des décharges de He et de Ne (modèle du graphique de Boltzmann).

Ce modèle suppose que les populations des niveaux de rotation sont réparties selon une distribution de Boltzmann (plus le niveau est excité, moins il est peuplé), et qu'il existe un équilibre entre les énergies de rotation et celle de translation. Il y a une boucle fermée en quelque sorte entre ces deux énergies: statistiquement parlant, ce qui est reçu comme excitation rotationnelle se transforme lors de prochaines collisions sous forme translationnelle et vice versa. Ainsi, les radiations émises par ces différents niveaux de rotation, distribués en  $\exp[-F(J')hc/kT_g]$ <sup>9</sup>, vont nous servir à évaluer approximativement la température  $T_g$  du gaz, avec laquelle sont en équilibre les molécules rotationnellement excitées (voir 1.5). De plus, il n'y a pas de corrélation évidente entre l'intensité de la tête de bande (391.4 nm), excitée par les différents processus que nous avons déjà explicités (sec. 3.1.3.1), et les intensités des niveaux rotationnels (branche R). En effet, plus ces raies rotationnelles sont intenses, moins est probable la relaxation thermique (équilibre R-T de moins en moins probable).

On sait que pour de faibles énergies rotationnelles, i.e. le quantum de rotation est faible, la relaxation R-T (rotation – translation) se réalise avec une grande probabilité [17]. Cependant, plus le quantum de rotation  $2B_v(J+1)$  augmente, plus le transfert R-T devient lent. En général, la relaxation R-T (et, en outre, la relaxation R-R) est un processus rapide qui n'exige souvent que quelques collisions. Très souvent, les vitesses de relaxation rotationnelle sont comparables aux vitesses de thermalisation. La thermalisation, ou échange T-T, est un processus de maintien de l'équilibre à l'intérieur des degrés de liberté de translation. Ainsi, dans la plupart des cas (même dans les décharges hors équilibre), les degrés de liberté de rotation peuvent être considérés comme en quasi équilibre avec les degrés de liberté de translation et peuvent être caractérisés par la même température  $T_{rot}$ . Par conséquent, dans ce cas, la collision d'un rotateur avec un atome ou un autre rotateur peut être considérée comme une collision « classique » accompagnée d'un transfert d'énergie. Cela signifie que la probabilité de relaxation R-T et R-R est effectivement très élevée [17].

---

<sup>9</sup> Le terme  $F(J')$  est le quantum rotationnel du niveau supérieur de rotation,  $J'$ , qui s'exprime en fonction des constantes tabulées  $B_v$  et  $D_v$ .

### 3.2.1 Cas de He

Le spectre de rotation-vibration du FNS, essentiellement celui de la transition  $N_2^+ (B^2\Sigma_u^+) \rightarrow N_2^+ (X^2\Sigma_g^+)$  comprend un grand nombre de bandes particulièrement intenses. Dans la bande (0,0), certaines raies sont la superposition presque parfaite d'une raie P et d'une raie R (l'écart entre les longueurs d'onde des raies P et R formant une raie globale est toujours inférieur à 0.02 nm).

La Figure 3-7 montre le spectre vibro-rotationnel de la transition  $N_2^+ (B^2\Sigma_u^+, v'=0 \rightarrow X^2\Sigma_g^+, v''=0)$ , où l'on voit clairement la branche R utilisée ( $\Delta K = +1$ ) pour le calcul de la température rotationnelle. Pour l'APGD de He, nous avons dû retenir les raies ( $K = 6$ ) à ( $K = 14$ ) seulement, et ce en raison du recouvrement des raies ( $K = 2, K = 4$ ) par celles de la branche P (de nombre quantique rotationnel,  $K = 29, K = 31$ ). Il en est de même pour la raie R ( $K = 16$ ) qui convole avec la tête de bande de la transition vibrationnelle (3,6) du second positif de  $N_2$  (389.4 nm, voir Fig. 3-8). Si bien qu'en fin de compte, le calcul sera effectué avec R6 à R14 inclusivement: cela est amplement suffisant pour déterminer  $T_{rot}$  avec assez de précision [13, 14, 56].

Un graphique portant en ordonnée le  $\ln[I_{K'K''}/(v_{K'K''}^4 S_{K'})]$  en fonction du terme rotationnel  $F(J')$  correspondant permet de remonter, via la pente  $[-F(J')hc/kT_g]$ , à la température  $T_g$  (donc  $T_{rot}$ ) du gaz. La  $T_{rot}$  est déterminée pour différentes positions axiales, allant de la pointe au diélectrique, après avoir acquis pour chaque position le spectre rotationnel et avoir tracé le graphique de Boltzmann correspondants.



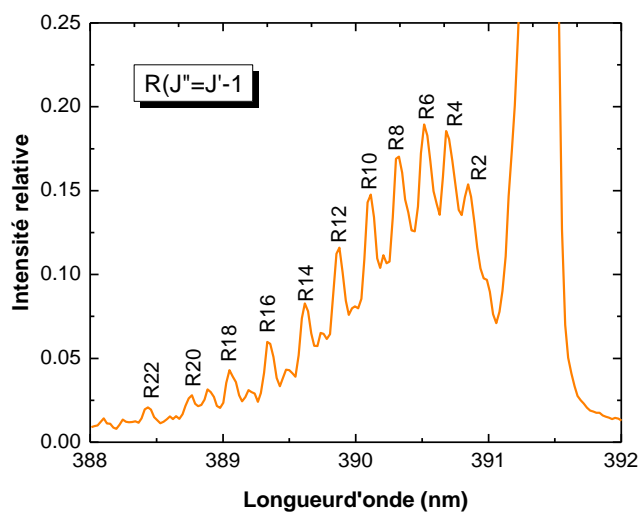


Figure 3-7: Spectre vibro-rotationnel de la transition  $N_2^+$  ( $B^2\Sigma_u^+$ ,  $v'=0 \rightarrow X^2\Sigma_g^+$ ,  $v''=0$ ) dans l'APGD de He pur, avec identification des raies associées à la branche R. Conditions opératoires : voir Fig. 3-1.

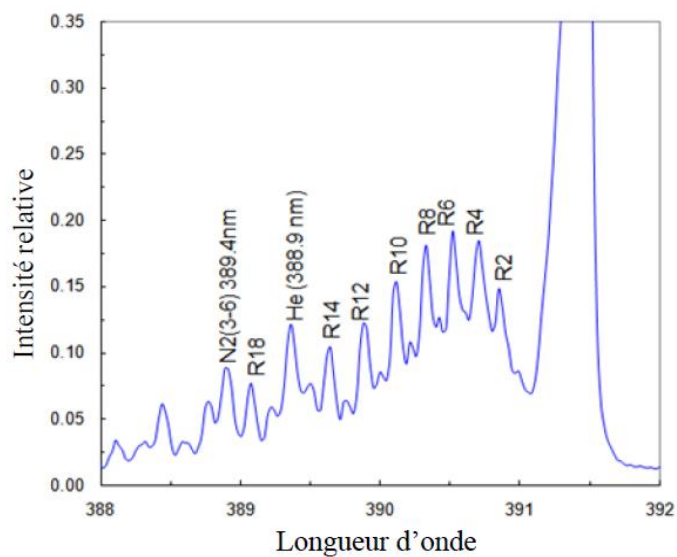


Figure 3-8: Spectre vibro-rotationnel de la transition de  $N_2^+$  ( $B^2\Sigma_u^+$ ,  $v'=0 \rightarrow X^2\Sigma_g^+$ ,  $v''=0$ ) dans une APGD de He, montrant la superposition de la raie de la transition  $3^3P \rightarrow 2^3S$  de He (388.9 nm) avec la raie R16 ainsi que celle de la transition vibrationnelle (3,6) du second positif de  $N_2$  (389.4 nm) avec la R20.

L'ensemble des valeurs de  $T_{\text{rot}}$  est porté en fonction de la position axiale  $z$  correspondante (Figure 3-9). Il faut préciser que la valeur moyenne (avec sa barre d'erreur) de chaque point a été calculée sur la base de 9 expériences indépendantes: pour chaque position, nous avons acquis 9 fois le spectre rotationnel correspondant, de façon indépendante et dans les mêmes conditions.

La Figure 3-9 montre que la  $T_{\text{rot}}$  dans l'APGD de He présente un profil quasi-parabolique: valeurs élevées aux extrémités et un minimum au «centre». Ainsi,  $T_{\text{rot}}$  est d'environ  $430 \pm 9$  K (Voir Annexe 8 pour la détermination de l'erreur totale,  $\Delta T_{\text{rot}}$ , dans la mesure de  $T_{\text{rot}}$ ) près du diélectrique ( $z = 0$ ) et atteint  $450 \pm 22$  K près de la pointe. A mi-chemin, pour  $z = 1.5$  mm environ,  $T_{\text{rot}}$  présente une valeur minimale ( $408 \pm 12$  K).

Noter que la différence de  $T_{\text{rot}}$  entre  $z = 0$  et  $z = 1.5$  mm d'une part et entre  $z = 1.5$  mm et  $z = 3.0$  mm d'autre part est importante comparativement aux deux extrémités ( $z = 0$  et  $z = 3.0$  mm): le centre de la décharge est plus «froid» que le reste de la décharge. On peut penser que la diffusion thermique se fait moins bien dans l'APGD de He, quand on part de l'une des extrémités vers le «centre». Cependant, on peut aussi considérer le fait que, au niveau des extrémités, il y a plus d'électrons et autres espèces chaudes qu'au centre : ainsi, tous les électrons d'énergie  $\varepsilon > 1$  eV peuvent exciter rotationnellement les molécules  $\text{N}_2^{+10}$  si bien que les niveaux rotationnels soient plus peuplés en ces zones périphériques. D'autre part, comme nous l'avons indiqué, ces niveaux rotationnels de faible énergie sont en équilibre thermique avec le gaz environnant (processus R-T fortement probable) : ils relaxent plus facilement au lieu d'émettre radiativement, ainsi que le montre le spectre rotationnel obtenu. En plus de ces processus, ces électrons chauffent aussi les neutres du gaz (collisions conduisant à l'excitation rotationnelle et vibrationnelle des molécules  $\text{N}_2$ , au voisinage de la pointe) [14]. Ces divers processus induisent un échauffement substantiel du gaz aux extrémités de la décharge.

On reviendra sur les propriétés thermiques et de transfert de chaleur dans la décharge de He, en nous appuyant sur les résultats ci-dessus et en les comparant à ceux obtenus dans le cas de la décharge de Ne (sec. 3.2.3).

---

<sup>10</sup> Le processus d'excitation rotationnelle non résonant, par un électron d'énergie  $\varepsilon > 1$  eV, est 100 fois plus efficace que l'excitation vibrationnelle correspondante [17].

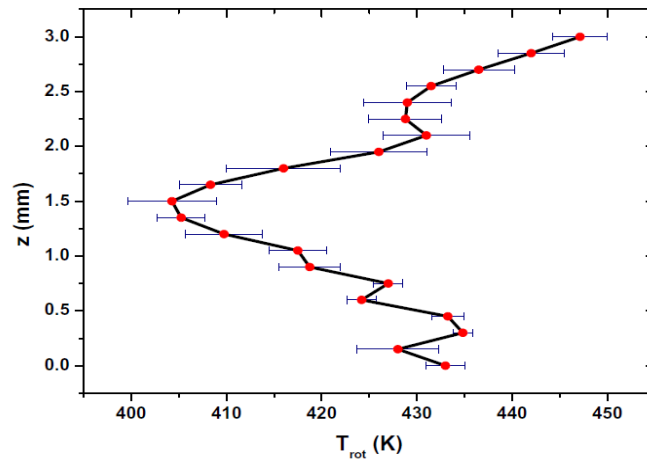


Figure 3-9: Distribution axiale de  $T_{\text{rot}}$  dans une APGD (pointe-plan) de He pur. La barre d'erreur représente l'écart type des 9 mesures indépendantes réalisées pour chaque position (voir Annexe 8 en fin de mémoire). Voir Fig. 3-1 pour les conditions opératoires.

### 3.2.2 Cas de Ne

Dans le cas de l'APGD de Ne, la tête de bande de la transition vibrationnelle (3,6) du second positif de  $\text{N}_2$ , apparaît à 389.4 nm (voir Fig. 3-10), soit au même endroit que la raie R16 et peut, lorsqu'elle est très intense, empiéter sur la raie R14. Si bien que le calcul de la  $T_{\text{rot}}$  ne peut se faire correctement qu'en utilisant les raies R6 à R12, excluant donc R14. Avec ces quatre points, le coefficient  $R^2$  de l'approximation linéaire reste au dessus de 0.98. Cela est jugé suffisant pour déterminer avec assez de précision la  $T_{\text{rot}}$ . La Figure 3-10 montre le spectre rotationnel de la transition de  $\text{N}_2^+$  ( $\text{B}^2\Sigma_u^+, v'=0 \rightarrow \text{X}^2\Sigma_g^+, v''=0$ ) dans une APGD de Ne. Comme pour le cas de l'APGD de He, la température rotationnelle se détermine en utilisant la méthode de Boltzmann, en portant le terme  $\ln[I_{K'K''}/(v^4_{K'K''} S_{K'})]$  en fonction du terme rotationnel  $F(J')$ .

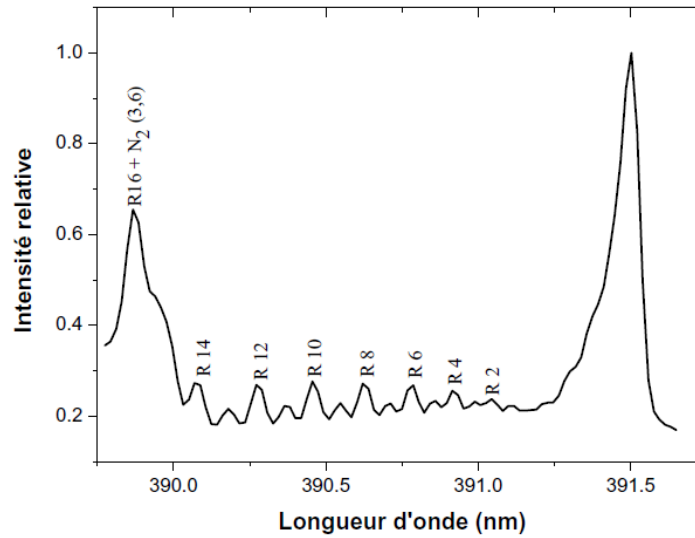


Figure 3-10: Spectre rotationnel de la transition de  $N_2^+$  ( $B^2\Sigma_u^+$ ,  $v'=0 \rightarrow X^2\Sigma_g^+$ ,  $v''=0$ ) dans une APGD de Ne; sont numérotées les raies associées à la branche R, où l'on note la superposition de la transition vibrationnelle (3,6) du second positif de  $N_2$  (389.4 nm) avec la R16.

La Figure 3-11 montre l'évolution de la  $T_{\text{rot}}$  lorsque l'on parcourt la distance inter-électrode depuis la position  $z = 0$  (au contact du diélectrique) jusqu'à l'autre électrode (pointe,  $z = 3.0$  mm): en gros,  $T_{\text{rot}}$  présente la valeur la plus faible ( $590 \pm 24\text{K}$ ) (Annexe 8) près du diélectrique, et augmente de façon monotone à mesure que  $z$  augmente, pour atteindre sa valeur maximale près de la pointe ( $750 \pm 45$  K). Cependant, il y a lieu de remarquer qu'au voisinage du diélectrique,  $0 \leq z \leq 1.0$  mm, la température peut être considérée comme constante, fluctuant autour d'une valeur moyenne de 620 K (il faut tenir compte des incertitudes de mesure, plus grandes en cette zone).

Contrairement au cas de l'APGD de He, la différence de température la plus grande est observée entre le diélectrique et la pointe, et non pas entre le milieu de la décharge et l'une des extrémités. Cet écart thermique est d'environ 160 K, ce qui est assez considérable, et montre la moins grande efficacité avec laquelle se transfère la chaleur d'un endroit à l'autre de ce gaz.

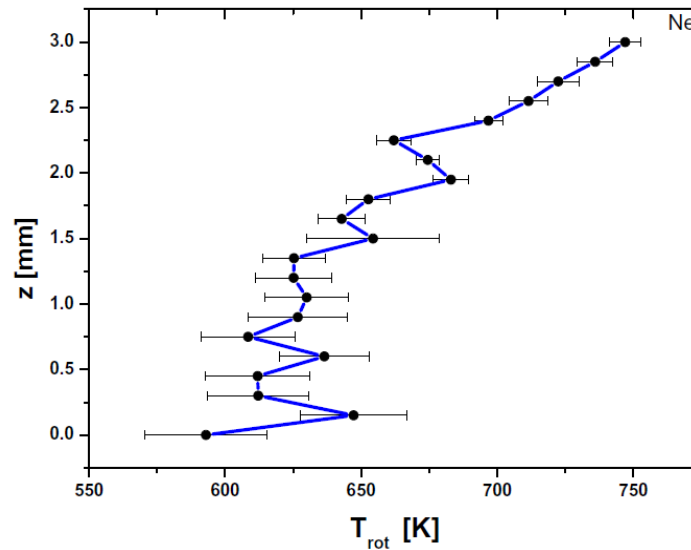


Figure 3-11: Distribution axiale de  $T_{\text{rot}}$  dans une APGD (pointe-plan) de Ne. La barre d'erreur représente, dans ce cas de l'APGD de Ne, l'écart type de 12 mesures indépendantes réalisées pour chaque position  $z$  (voir Annexe 8 en fin de mémoire). Conditions en Figure 3-3.

### 3.2.3 Comparaison He / Ne

Avant de procéder à la comparaison des deux APGD de He et de Ne du point de vue thermométrique, rappelons que les deux plasmas sont créés dans des conditions expérimentales relativement semblables, hormis une différence notable dans la tension HV alimentant les deux APGD: 1.6 kV pour He et 1.2 kV pour Ne (voir Figures 3-1 et 3-3). Si l'on tient compte de la légère différence des débits<sup>11</sup>, et des différences de tension HV (25% de plus pour He), on peut considérer qu'il y a approximativement 15 à 20% plus de puissance injectée dans l'APGD de He, relativement à celle de Ne. Ça dépend des mécanismes de chauffage du gaz. On pourrait donc s'attendre à observer une température  $T_{\text{rot}}$  plus élevée dans He que dans Ne, mais tel n'est pas le cas. En effet, la distribution de  $T_{\text{rot}}$  selon  $z$  révèle que l'APGD de Ne est partout bien plus chaude que l'APGD de He, pour à peu de choses près les mêmes conditions expérimentales. Dans Ne, la

<sup>11</sup> La Figure 3-17 montre que pour un débit de He de 280 sccm,  $T_{\text{rot}}$  est de 460 K, c'est-à-dire qu'elle a augmenté de 10 K relativement à 300 sccm!

température diminue progressivement depuis la pointe jusqu'au diélectrique, alors que pour He,  $T_{\text{rot}}$  décroît de  $z = 3.0$  mm (pointe), passe par un minimum autour de  $z = 1.5$  mm («centre») pour augmenter sensiblement de nouveau, en allant vers  $z = 0$  (diélectrique).

Ainsi, il y a deux différences importantes entre ces deux APGD (cf. Figure 3-12) :

- 1) la température du gaz « moyenne » est de 430 K dans He alors qu'elle est de 670 K pour Ne : la différence moyenne de température est de 240 K entre ces 2 décharges, et que l'APGD de Ne est relativement beaucoup *plus chaude*;
- 2) dans l'APGD de He, l'écart thermique maximum est de 40 K alors qu'il est de 160 K dans Ne. Cela montre que l'APGD de He est, du point de vue distribution thermique axiale, beaucoup plus homogène que celle de Ne.

Pour simplifier la discussion, nous considérons que la tension électrique imposée dans chacune des APGD est approximativement la même, sachant que ni le volume de plasma dans les deux cas ne sont rigoureusement égaux, ni la tension fournie. Ainsi, l'observation (1) montre que :

- i) Ne est celui d'entre ces deux gaz qui emmagasine le plus d'énergie sous forme thermique, que ce soit comme énergie cinétique des neutres de Ne ou des molécules  $N_2$  et  $N_2^+$  avec excitation rotationnelle. Il faut préciser à cet effet qu'il y a environ 1000 fois plus de molécules  $N_2$  dans Ne que dans He, et ceci à cause de notre dopage délibéré du Ne. Autrement dit, la probabilité de collision entre un électron faiblement énergétique et une molécule  $N_2$  est beaucoup plus grande dans Ne que dans He. Ceci peut expliquer d'ailleurs l'observation de Martus et al [68] où l'ajout de 0.2% de  $N_2$  a occasionné un échauffement significatif de la décharge ( $\sim 100$  K/%  $N_2$ ) [14, 43].
- ii) Le fait que la température moyenne des neutres dans l'APGD de Ne soit beaucoup plus haute que dans le cas de He peut s'expliquer par une conductivité thermique plus grande de He : la chaleur se propage d'un endroit à l'autre (aussi bien radialement qu'axialement) dans le plasma de He bien plus rapidement que dans celui de Ne. De proche en proche, on atteint la zone où il n'y a plus de plasma, mais où commence le gaz neutre : alors de même, la chaleur se transfère d'un point du plasma de He vers un autre point appartenant au gaz neutre de He avec la même

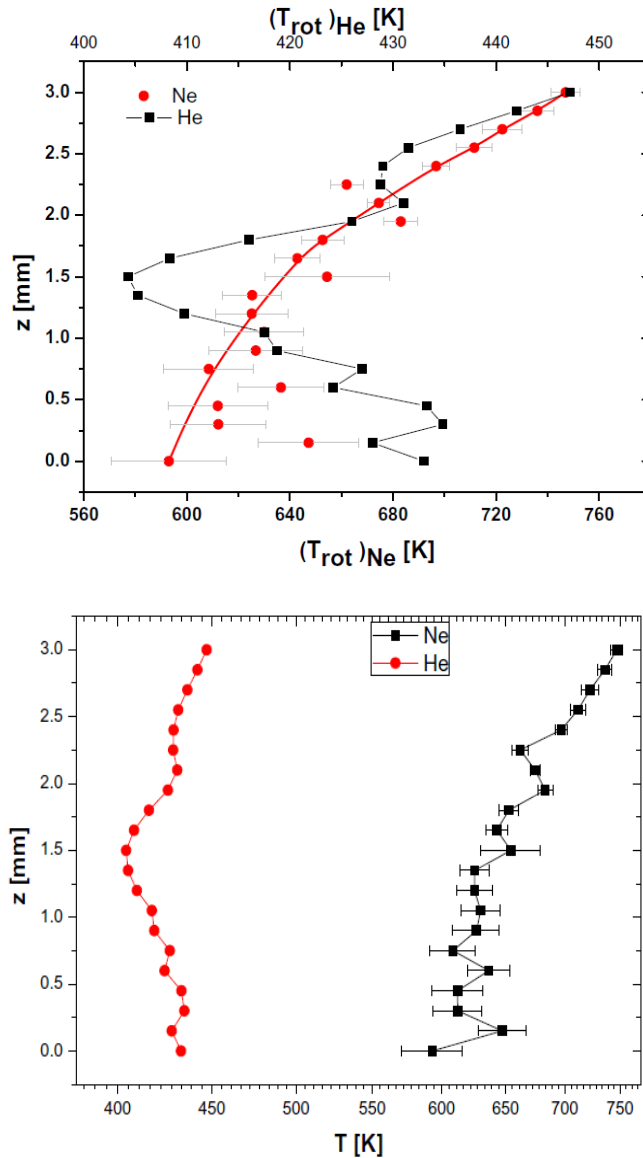


Figure 3-12: (a) Comparaison de  $T_{\text{rot}}$  dans les APGD de He et de Ne (abscisses différentes) (mêmes conditions qu'en Fig. 3-1 pour He et 3-3 pour Ne). (b) Représentation des mêmes données qu'en (a) sur la même échelle de  $T$ , faisant apparaître l'écart entre les  $T_{\text{rot}}$  des deux gaz.

vitesse que dans le plasma lui-même. Si bien que la chaleur s'évacue plus rapidement de l'APGD de He vers le gaz neutre et vers les parois que dans le cas de l'APGD de Ne.

De même peut-on expliquer l'observation (2): l'APGD de He est, du point de vue thermique, relativement plus homogène axialement que celle de Ne : comme nous venons de le signifier,

c'est la valeur élevée de la conductivité thermique dans He qui favorise un transfert rapide d'énergie calorifique, d'un endroit à l'autre du plasma, ne laissant subsister qu'une faible inhomogénéité. A contrario, la conductivité thermique dans Ne est moins élevée et donne lieu à une distribution thermique moins homogène, donc à l'installation d'un gradient thermique plus élevé.

Pour illustrer cela, nous allons faire un calcul empirique très simplifié de la conductivité thermique à l'intérieur de ces deux gaz, et à la frontière plasma/gaz neutre. La conductivité thermique  $\lambda$  est définie comme le rapport de la vitesse à laquelle l'énergie thermique est transportée à travers une surface unité, au gradient de température:

$$\frac{1}{A} \frac{dQ}{dt} = -\lambda \frac{dT}{dz} \quad (19)$$

où  $\lambda$  est le coefficient de conductivité thermique<sup>12</sup> (unités:  $\text{W} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ ) qui exprime la plus ou moins grande aptitude qu'a un corps à transférer, d'un endroit à l'autre, la chaleur qui le traverse.

Considérons les gradients de température les plus caractéristiques observés au sein de chacune des 2 APGD (Figures 3-12 (a)): pour He, entre le « centre » et le diélectrique; pour Ne, entre les deux électrodes.

Pour He, le gradient thermique entre ces 2 points est :  $\frac{\Delta T}{\Delta z} = \frac{T_{\max} - T_{\min}}{d} = \frac{430 - 408}{1.5} = 14 \text{ K mm}^{-1}$

Pour Ne, on aura:

$$\frac{\Delta T}{\Delta z} = \frac{T_{\max} - T_{\min}}{d} = \frac{750 - 610}{3} = 46 \text{ K mm}^{-1}.$$

Pour une même puissance, P, injectée par unité de surface ( $\frac{1}{A} \frac{dQ}{dt}$ ) dans les deux gaz, on doit avoir :

---

<sup>12</sup> A titre indicatif, donnons l'expression de la conductivité thermique:  $\lambda = \frac{1}{2} k \bar{v} l \rho_N$ ,  $\lambda$  [ $\text{W} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ ] est la conductivité thermique,  $k$  [J/k], la constante de Boltzmann,  $\bar{v}$ , la vitesse moyenne,  $l$  [m], le libre parcours moyen et  $\rho_N$  [ $1/\text{m}^3$ ], la densité de particules.



$$\lambda_{\text{He}} = \frac{P}{\frac{\Delta T}{\Delta z}} = \frac{P}{14} \text{ W} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{mm}^{-1}$$

$$\lambda_{\text{Ne}} = \frac{P}{\frac{\Delta T}{\Delta z}} = \frac{P}{53} \text{ W} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{mm}^{-1}$$

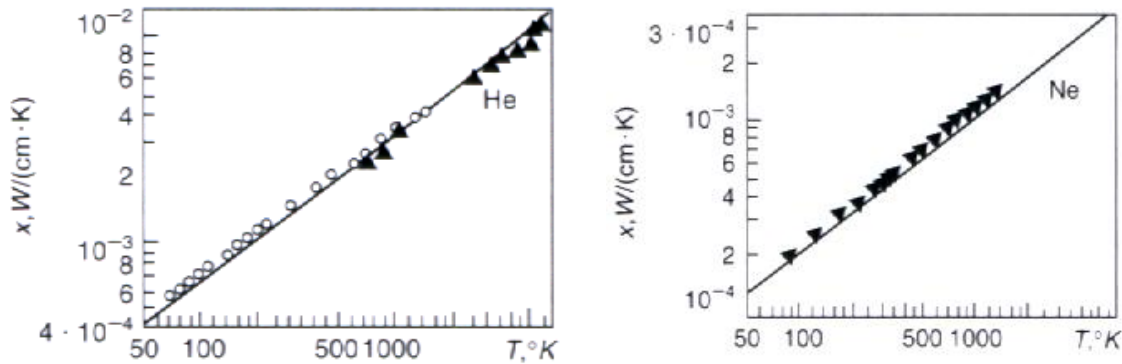


Figure 3-13: Variation de la conductivité thermique en fonction de la température dans les gaz nobles (He et Ne) [16]: par exemple, à 400 K,  $\lambda_{\text{He}} = 1.85 \cdot 10^{-2} \text{ W} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ ;  $\lambda_{\text{Ne}} = 5 \cdot 10^{-3} \text{ W} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ .

D'autre part, si l'on considère 2 points situés l'un à l'intérieur du plasma<sup>13</sup>, l'autre immédiatement à l'extérieur, donc dans le gaz neutre (300 K environ), on pourra évaluer les différences de température de part et d'autre de l'interface «plasma - gaz neutre» (Figure 3-14). On évalue d'abord les températures moyennées sur l'axe, dans chacune des deux APGD :

Pour He: on obtient facilement la température moyenne dans He, en posant

$$T_{\text{moy}}(\text{He}) = (450 + 408) / 2 = 430 \text{ K}$$

Pour Ne : même raisonnement que ci-dessus:

$$T_{\text{moy}}(\text{Ne}) = (750 + 590) / 2 = 670 \text{ K}$$

---

<sup>13</sup> On caractérisera grossièrement le plasma par une température moyennée axialement,  $T_{\text{moy}}$ .

Si bien que relativement au gaz neutre, l'élévation de température est de 130 K pour He et de 370 K pour Ne. Ce qui montre que, en gros,  $\Delta T(\text{Ne}) = 3 \Delta T(\text{He})$ , en corrélation inverse des valeurs respectives des conductivités thermiques (voir Figure 3-13).

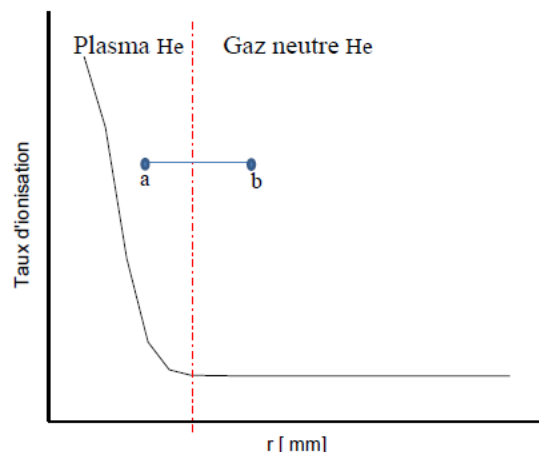


Figure 3-14: Représentation schématique de la transition entre l'état de gaz ionisé à l'état de gaz neutre : ce profil traduit par exemple celui de la décroissance du taux d'ionisation, de la densité électronique ou de la température

**Effet de l'ajout de  $\text{N}_2$  sur la température globale de la décharge de Ne.** Revenons un instant sur le fait que la température des neutres de l'APGD de Ne est bien plus élevée que celle de He. Il faut préciser qu'il y a  $10^3$  plus de molécules  $\text{N}_2$  dans Ne que dans He<sup>14</sup>: les électrons faiblement énergiques dans l'APGD de Ne ont une probabilité bien plus élevée de collisionner une molécule  $\text{N}_2$  que dans He, et donc de peupler les niveaux rotationnels de  $\text{N}_2$  et de  $\text{N}_2^+$ . Cela expliquerait le fait qu'une partie de l'énergie soit stockée, même temporairement, dans ces niveaux rotationnels: cela peut contribuer à élever la température de l'APGD de Ne relativement à He, sachant par ailleurs, que les niveaux rotationnels (voir sec 3.2) sont en équilibre thermique avec les niveaux de translation dans chacune de ces décharges. (Noter qu'avec 0.1% de  $\text{N}_2$  dans He, on aurait une  $+\Delta T = 10 \text{ K}$ , puisque la pente de  $T$  vs. %  $\text{N}_2$  est  $100\text{K} / \% \text{N}_2$ .) [14, 46, 47].

<sup>14</sup> Rappelons qu'il y a 1 ppm de  $\text{N}_2$  dans He et qu'on a introduit délibérément 0.1%  $\text{N}_2$  dans Ne.

### 3.3 Effet du débit de gaz sur la température de l'APGD

La Figure 3-15 montre l'évolution de  $T_{\text{rot}}$  dans une APGD de He, aux distance fixées  $z = 3.0$  mm (voisinage immédiat de la pointe) et pour  $z = 1.5$  mm (« milieu » de la décharge), lorsque le débit de He est varié progressivement de 50 à 450 sccm. Pour chacune des distances  $z$ , on observe que  $T_{\text{rot}}$  décroît quasi linéairement à mesure que le débit de He,  $D_{\text{He}}$ , est accru dans la décharge.

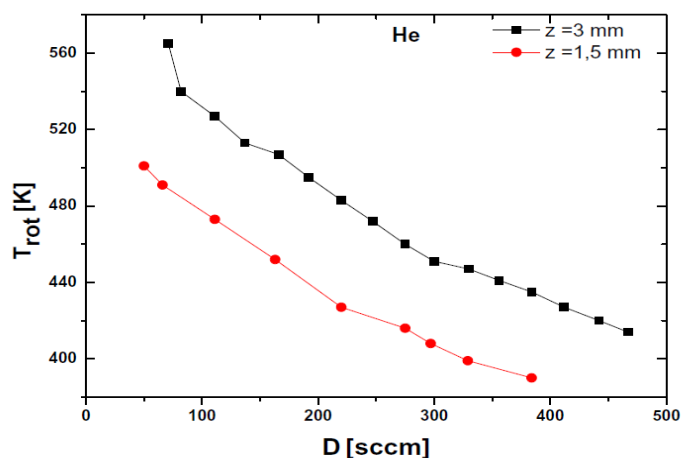


Figure 3-15: Évolution de  $T_{\text{rot}}$  en fonction du débit du gaz, dans une APGD de He, pour une distance  $z = 3.0$  mm (pointe) et pour  $z = 1.5$  mm (« milieu »). Autres conditions opératoires: idem qu'en Figure 3-1 (fréquence d'excitation 10 kHz,  $V_{\text{pp}} = 1.6$  kV).

D'autre part, les pentes des deux graphiques correspondant à  $z = 3.0$  et  $z = 1.5$  mm sont comparables. Dans chacun des cas, pour un  $D_{\text{He}}$  faible (50 sccm pour  $z = 1.5$  mm),  $T_{\text{rot}}$  est maximale (570 K); lorsque  $D_{\text{He}}$  atteint 380 sccm,  $T_{\text{rot}}$  chute à 390 K environ. Même observation pour la distance  $z = 3.0$  mm; d'ailleurs la pente est presque identique dans les deux cas. Il y a lieu de remarquer la reproductibilité des résultats sachant que nous retrouvons bien les valeurs de  $T_{\text{rot}}$  obtenues auparavant avec un débit de 300 sccm de He: 408 K pour  $z = 1.5$  mm et 450 K pour  $z = 3.0$  mm.

Dans le cas de Ne, on obtient une évolution de  $T_{\text{rot}}$  assez comparable à celle de l'APGD de He, hormis le fait que pour  $z = 1.5$  mm, la pente des variations de  $T_{\text{rot}}$  est beaucoup moins raide qu'à  $z = 3.0$  mm (la pente à  $z = 1.5$  mm est 2 fois plus faible qu'à  $z = 3.0$  mm). Ceci peut s'expliquer comme un effet dû à la pointe: dans le cas de Ne, nous l'avons vu (3.1.3.2), les électrons

n'acquièrent pas suffisamment d'énergie pour ioniser atomes ou molécules, mais ils peuvent par contre donner plus d'énergie de type cinétique à ces particules<sup>15</sup>, d'où un échauffement du gaz par thermalisation.

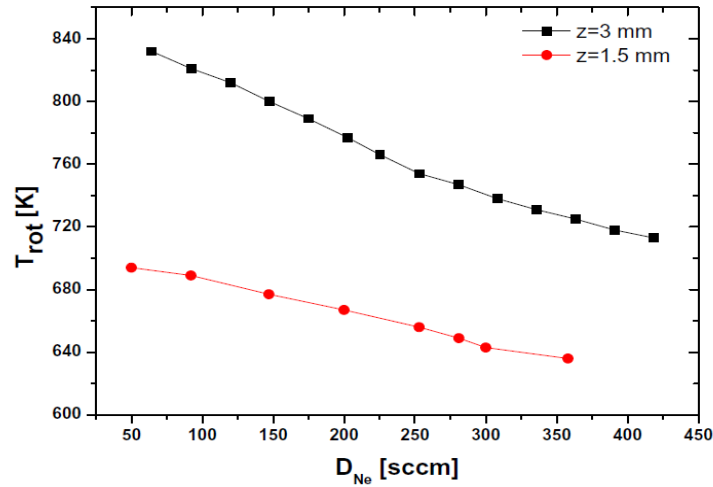


Figure 3-16: Évolution de  $T_{rot}$  en fonction du débit du gaz, dans une APGD de Ne, pour une distance  $z = 3.0$  mm (pointe) et pour  $z = 1.5$  mm (« milieu »). Autres conditions opératoires: idem qu'en Figure 3-3 (fréquence d'excitation 10 kHz,  $V_{pp} = 1.2$  kV).

L'effet du débit sur la température du gaz plasmagène a été étudié par Wang et [61], dans une décharge RF (micro-plasma) de He et Ar à la pression atmosphérique: ils ont fait varier le débit du gaz vecteur de «sans flux» à 500, puis à 2000 sccm. Les températures moyennes mesurées sont respectivement de 595, 545 et 480 K pour He. Cette baisse de température de plus de 100 K est attribuable au phénomène convectif qui est de plus en plus accentué lorsque le débit est augmenté.

La figure 3-17 montre un graphique comparatif de l'évolution de  $T_{rot}$  telle que mesurée dans les APGD de He et de Ne entre les deux électrodes pointe-plan, aux deux positions axiales  $z = 3.0$  et

<sup>15</sup> L'énergie transférée par un électron de masse  $m_e$  et d'énergie cinétique  $\varepsilon$  ( $\varepsilon = \frac{m_e \omega_a^2}{2}$ ), à une particule lourde de masse  $M_\beta$ , est donnée par l'expression:  $\frac{2m_e}{M} (1 - \cos\theta) \left[ \frac{m_e \omega_a^2}{2} - \frac{m_\beta \omega_\beta^2}{2} \right]$ . Si la particule est au repos et que la collision s'effectue avec un angle  $\theta = \pi$  (collision frontale), alors le transfert est maximum et vaut  $\frac{4m_e}{M} \varepsilon$  [76].

$z = 1.5$  mm, en fonction du débit de gaz. A peu de choses près, on peut considérer que  $T_{\text{rot}}$  suit une décroissance monotone au fur et à mesure que le débit de gaz augmente, et ce pour les deux APGD. La différence de température est maintenue pour les deux plasmas à plus de 200 K, quel que soit le débit et la distance à laquelle on se trouve entre les deux électrodes.

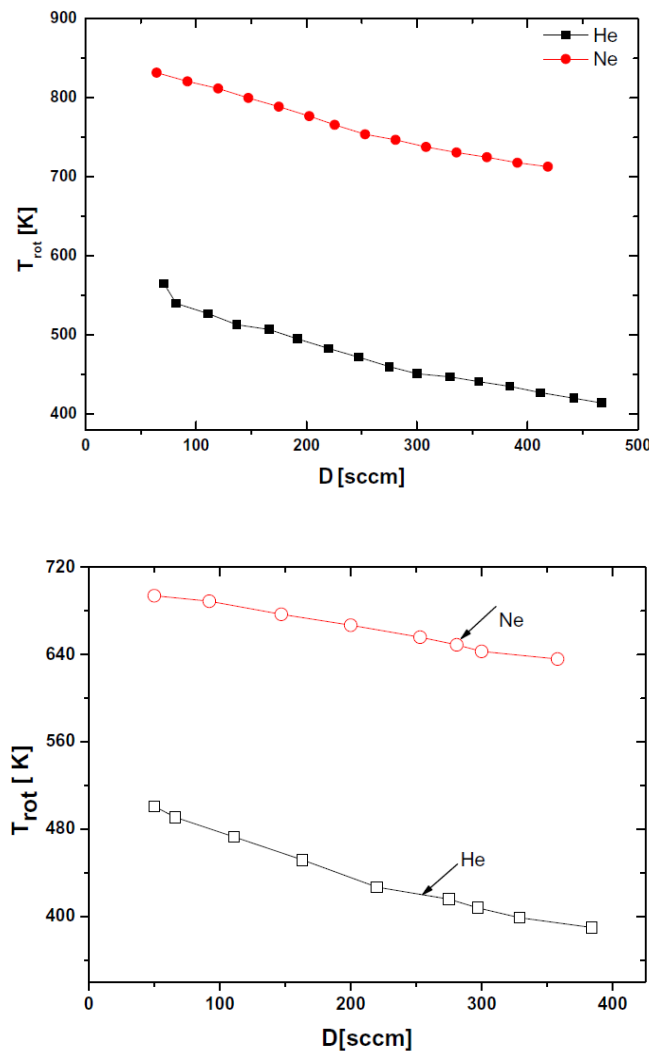


Figure 3-17: Variations comparées de  $T_{\text{rot}}$ , en fonction du débit du gaz, dans les APGD de He et de Ne : a) pour  $z = 3.0$  mm (pointe) et pour  $z = 1.5$  mm (« milieu »). Autres conditions opératoires: fréquence d'excitation 10 kHz,  $V_{\text{pp}} = 1.6$  kV (He); 1.2 kV (Ne).

Une des façons de comprendre l'effet de cette variation de débit sur la température du gaz est de faire appel au tenseur de pression cinétique dont la formule mathématique illustre clairement

l'effet que l'on recherche à définir. Le tenseur de pression cinétique se calcule à partir de la fonction de distribution  $f_1$  par la formule (noter que  $\mathbf{w}$ ,  $\mathbf{v}$  sont des vecteurs) (voir [76]):

$$\underline{\psi} = m \int (\mathbf{w} - \mathbf{v})(\mathbf{w} - \mathbf{v}) f_1 d\mathbf{w} \quad (20)$$

On voit clairement que c'est une mesure de l'agitation thermique, c'est-à-dire une sommation des écarts des vitesses microscopiques  $\mathbf{w}$  par rapport à la vitesse de fluide  $\mathbf{v}$ . Ainsi, la pression cinétique serait nulle dans un faisceau parfaitement ordonné (monocinétique) où toutes les molécules auraient la même vitesse ( $\mathbf{w} = \mathbf{v}$ ); d'autre part, elle est maximum lorsqu'on est en mode sans flux (car alors  $\mathbf{v} = 0$ ) et toute la quantité de mouvement se transforme en agitation thermique. Ainsi, dans un système où la quantité de mouvement totale est constante<sup>16</sup>, et si l'on augmente fortement la vitesse du fluide, on diminue d'autant cette pression cinétique. Dans notre cas, la différence  $\mathbf{w} - \mathbf{v}$  va en diminuant au fur et à mesure que le débit est augmenté de 50 sccm à 500 sccm environ, induisant une chute de plus en plus significative de la pression cinétique ou de l'énergie thermique des atomes et molécules.

On va partir de l'expression générale du flux de quantité de mouvement qui reste constante dans nos expériences, quel que soit le débit utilisé. Celle-ci est donnée par :

$$\bar{T} = m \int \bar{\mathbf{w}} \bar{\mathbf{w}} f d\mathbf{w} \quad (21)$$

Pour obtenir une expression simple de la relation (21), on utilisera l'équation (20). Le terme  $(\mathbf{w} - \mathbf{v})(\mathbf{w} - \mathbf{v})$  de l'équation (20) se développe aisément en :

$$(\bar{\mathbf{w}} - \bar{\mathbf{v}})(\bar{\mathbf{w}} - \bar{\mathbf{v}}) = \bar{\mathbf{w}}\bar{\mathbf{w}} - \bar{\mathbf{v}}\bar{\mathbf{w}} - \bar{\mathbf{w}}\bar{\mathbf{v}} + \bar{\mathbf{v}}\bar{\mathbf{v}} \quad (22)$$

En prenant soin d'annuler les termes croisés  $\bar{\mathbf{v}}\bar{\mathbf{w}}$  et  $\bar{\mathbf{w}}\bar{\mathbf{v}}$  du fait de l'équiprobabilité des valeurs du sin de l'angle formé par  $\mathbf{w}$  et  $\mathbf{v}$ . On obtient :

$$\bar{\psi} = m \int \bar{\mathbf{w}} \bar{\mathbf{w}} f d\mathbf{w} - n m \bar{\mathbf{v}} \cdot \bar{\mathbf{v}} \quad (23)$$

De sorte que le flux total de quantité de mouvement  $\bar{T}$  s'écrit :

$$\bar{T} = n m \bar{\mathbf{v}} \cdot \bar{\mathbf{v}} + \bar{\psi} \quad (24)$$

---

<sup>16</sup> Dans notre cas, la puissance injectée dans le gaz est constante lorsque le débit est varié. De plus, les électrons sont supposés être ceux qui transportent toute la quantité de mouvement avant de la distribuer aux autres particules.

Le premier terme est le flux convectif de quantité de mouvement, c'est-à-dire le flux transporté par le fluide gazeux en tant que système unitaire, dans un mouvement d'ensemble; le second terme représente toute la quantité de mouvement transportée par les molécules considérées individuellement, et qui est une forme d'agitation relativement au mouvement d'ensemble. Ce second terme est le flux de quantité de mouvement produit par l'agitation thermique.

Pour comprendre comment dans notre système, il y a diminution progressive de cette agitation thermique, il suffit de considérer les éléments suivants:

En augmentant le débit d'entrée du gaz (He ou Ne) par le tuyau de 8 mm de diamètre, on augmente par là la vitesse de ce fluide (rappelons que le débit  $Q = v_1 s_1$ , avec  $v_1$ , la vitesse du fluide et  $s_1$ , la section d'entrée). Parvenu dans la cellule, le gaz se dilate et perd de la vitesse qui devient  $v_2$  dans cette enceinte, mais cette vitesse  $v_2$  augmente en proportion de l'augmentation de  $v_1$ , si bien qu'en augmentant le débit, on augmente bien la vitesse du fluide dans l'enceinte même.

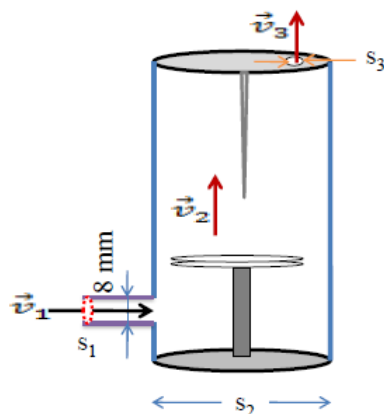


Figure 3-18: Représentation schématique des vitesses du fluide gazeux lorsqu'il passe par différentes sections.

Aussi, pour maintenir  $\bar{T}$  constant dans l'expression (24), et comme le terme convectif est augmenté, le terme d'agitation thermique doit diminuer en conséquence et proportionnellement. Cela illustre bien la baisse progressive et monotone de la température du gaz lorsque le débit est augmenté, à puissance injectée constante.

## 3.4 Étude de l'évolution spatio-temporelle des APGD de He et Ne par caméra ICCD (imagerie rapide)

### 3.4.1 Vue d'ensemble

L'imagerie par caméra ICCD<sup>17</sup> est un moyen de diagnostic idéal pour étudier et suivre les variations spatio-temporelles des plasmas. Elle permet de cartographier (coordonnées spatiales) l'émission émanant de l'ensemble des états excités émetteurs, et de suivre l'évolution en fonction du temps de l'intensité de ces émissions (variations temporelles des populations des niveaux excités). L'intérêt de cet outil est justement de permettre à l'expérimentateur de faire varier l'intervalle de temps entre deux prises de vue, et donc d'avoir un certain contrôle sur les données qu'il souhaite obtenir et étudier.

Tel que mentionné auparavant, nous avons utilisé, pour cette étude, deux configurations différentes pour la collection et l'analyse du rayonnement émis par la décharge. Dans ce qui suit, nous allons d'abord faire appel à la configuration 1 (**1<sup>e</sup> cas**, Figure 2.1): la caméra étant placée devant la décharge, elle permet d'accumuler soit pendant 0.5 ms les émissions émanant de chacun des points de la décharge (mode shutter), soit en des intervalles de temps beaucoup plus courts (prendre 50 images, à 20 ns d'intervalle entre chaque image, par exemple). On peut schématiser les choses de la façon suivante : pour un ensemble de points donnés de la décharge repérés par les coordonnées cartésiennes  $(x_i, y, z_i)$  ( $y$  étant l'épaisseur ou la profondeur du plasma), la caméra donne une image  $(x_i, z_i)$  dans laquelle elle a en quelque sorte réalisé une sommation ou une intégration sur toute la coordonnée  $y$ . Cette sommation apparaît sur l'axe des couleurs comme une intensité émise par tous les points ayant la même coordonnée  $(x_i, y, z_i)$ . Si la décharge est considérée dans son ensemble comme un espace émetteur, l'image obtenue permet d'attribuer à chaque point de cette décharge une intensité donnée; on obtient ainsi une cartographie de l'émission. Un point important à retenir est que, dans cette configuration (1<sup>e</sup> cas), on n'a aucune discrimination quant aux longueurs d'onde émises par la décharge ; ceci sera effectué avec la configuration 2. Un objectif est utilisé pour focaliser l'image de l'espace inter-électrodes sur la CCD. La caméra est placée perpendiculairement à l'axe des électrodes, face au

---

<sup>17</sup> La caméra permet d'intensifier fortement (jusqu'à 250 fois !) le signal lumineux qu'elle reçoit.



côté le plus long (12 cm), la lumière émise est ainsi intégrée sur la profondeur de la décharge (quelques mm).

Nous citerons pour commencer des études comparables réalisées par Mangolini et al [48, 63] et Golubovskii et al [39, 71] pour montrer la puissance de cet outil d'imagerie: ils ont montré que pour des pulses de courant successifs correspondent des claquages en différents points de l'espace inter-électrode. Cependant, de récentes publications [4, 11, 14] ont montré que pour une décharge lumineuse (par demi-cycle), une expansion axiale et radiale du front d'ionisation, due au champ induit par les charges d'espace, a lieu. Nous verrons que ces observations corroborent les nôtres et les complètent.

### 3.4.1.1 Cas de l'APGD de He

Dans ce mode d'imagerie (mode shutter), la caméra accumule les émissions lumineuses et les additionne pour chaque point, sachant que la décharge progresse de haut vers le bas. Ainsi, il y a une forte corrélation entre l'axe des temps et celui de  $z$ .

La Figure 3-19 montre une image de l'APGD de He dans laquelle on distingue la distribution spatiale des intensités émises par l'APGD : l'échelle des intensités montre que le maximum d'émission se situe au niveau de la pointe (couleur rouge), puis en son voisinage et au niveau du diélectrique (couleur verte), le reste (couleur bleue) désigne ce qu'il y a de moins intense. Autour de la pointe de l'électrode supérieure (haute tension), on observe une forte intensité lumineuse, issue des différents états excités de la décharge. En contraste, l'émission de la décharge à la mi-distance semble être très réduite en comparaison avec les deux zones (pointe et diélectrique).

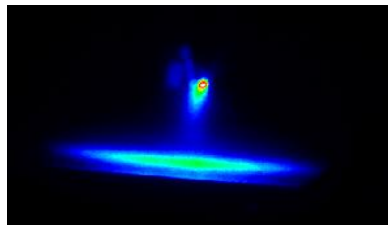


Figure 3-19: Image de l'APGD de He, obtenue sur un temps d'accumulation (temps d'exposition) de 0.5 ms, montrant la répartition globale des intensités pour l'ensemble des 10 décharges ayant eu lieu au cours de ce laps de temps. L'image illustre en particulier les deux plus importantes séquences où on perçoit la naissance de la décharge au niveau de la pointe, et son étalement sur le

diélectrique. Distance entre les électrodes pointe-plan, 3 mm; position axiale,  $z = 3.0$  mm; débit de He, 300 sccm; fréquence d'excitation, 10 kHz; tension de crête à crête, 1.6 kV.

Nous allons considérer à présent une séquence complète d'images obtenues à différents instants (mode gate), permettant d'avoir une vue « en mouvement » et panoramique de la décharge. La Figure 3-20 montre l'évolution de l'APGD de He depuis sa formation au niveau de pointe ( $0 \leq t \leq 2 \mu\text{s}$ ), son développement dans l'espace inter-électrodes ( $2 \mu\text{s} \leq t \leq 5 \mu\text{s}$ ), jusqu'à son étalement au niveau du diélectrique (pour  $t > 5 \mu\text{s}$ ).

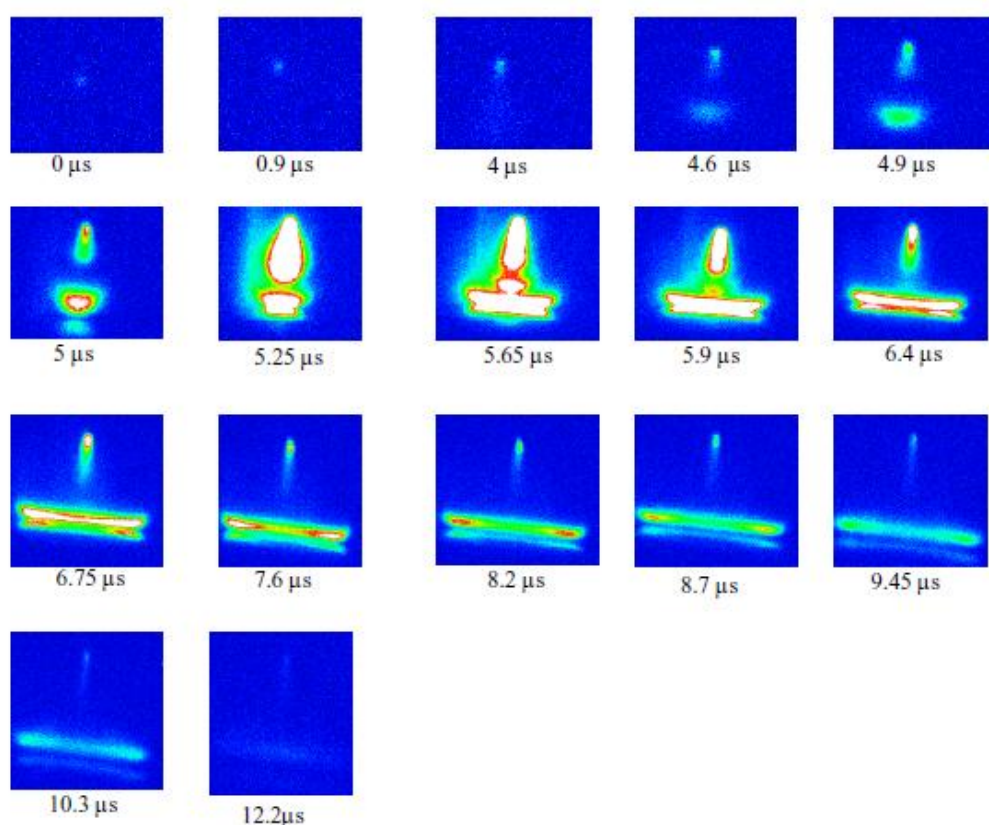


Figure 3-20: Séquence d'images les plus significatives de l'APGD de He, entre la pointe et le diélectrique. Nous avons pris 280 images de la totalité de l'événement spatio-temporel qu'est la décharge (d'une durée d'environ  $14 \mu\text{s}$ ): chaque image est séparée de la suivante de 50 ns, mais nous n'en avons rapporté que quelques unes, telles que prises aux instants indiqués.

### Représentation graphique des variations de l'intensité en fonction du temps et de la position axiale dans la décharge de He

Chaque image obtenue à un instant donné (prenons le cas de la 5<sup>e</sup> image de la Fig. 3-20) présente un maximum qu'on peut localiser aisément avec un logiciel de traitement d'images. De même, il est possible d'attribuer, avec une petite marge d'erreur, la position axiale d'émission ; il suffit de lui apposer l'espace inter-électrodes. Ainsi, il est possible à la fois de définir la coordonnée  $z$  de la zone émettrice, et le maximum émis par cette zone. La Figure 3-21 fait appel à cette façon de représenter les résultats : on y montre l'évolution de l'intensité des maxima d'émission en fonction du temps et pour les trois positions axiales caractéristiques :  $z = 0$  (diélectrique) ;  $z = 1.5$  mm (milieu de la décharge) et  $z = 3.0$  mm (pointe). On voit clairement que la décharge atteint un maximum d'émission localisé au niveau de la pointe avant de se répandre sur le diélectrique, où l'émission est également intense. Le temps de montée correspond à environ  $2 \mu\text{s}$ , tandis que le temps de descente est bien plus long (environ  $8 \mu\text{s}$ ). L'activité de la décharge à mi-distance semble être très réduite en comparaison avec les deux zones opposées (pointe et diélectrique).

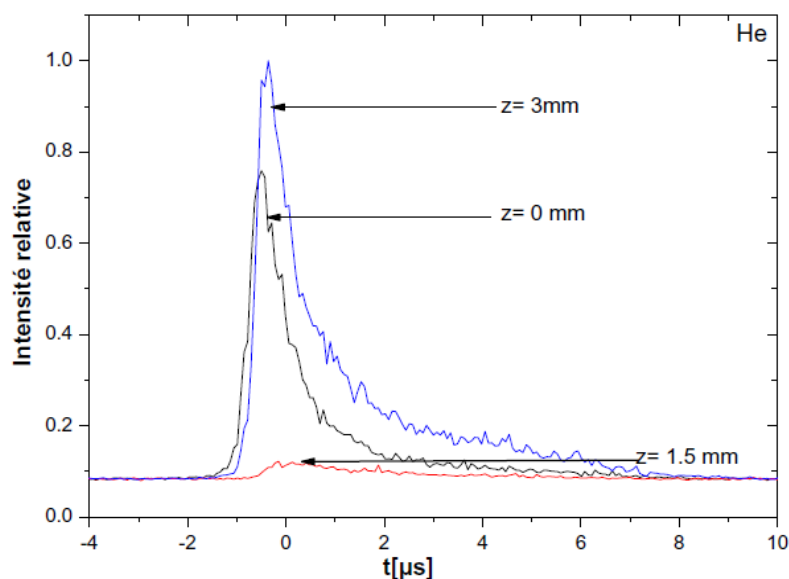


Figure 3-21: Variations de l'intensité d'émission dans une APGD de He pour un demi-cycle positif. Les trois positions axiales caractéristiques ( $z = 3.0$  mm (pointe);  $z = 1.5$  mm (à mi-distance entre les électrodes);  $z = 0$  (diélectrique)) sont définies sur les images obtenues par convention.

L'ensemble de cette séquence d'images montre de façon remarquable les différents stades par lesquels passe la décharge: elle se développe d'abord, toute petite, au sommet de la pointe, puis se propage vers le diélectrique en « grossissant » au fur et à mesure ; elle finit par s'étaler sur toute la surface du diélectrique pour disparaître complètement. Les données se rapportant à la durée « exacte » de la décharge, les maxima d'émission, etc., seront précisées un peu plus loin.

### 3.4.1.2 Cas de l'APGD de Ne

La Figure 3-22 présente une séquence d'images obtenues à différents instants, permettant d'avoir une vue « globale » des principales étapes de la « vie » de la décharge de l'APGD de Ne (laquelle, on le verra, a une durée d'environ 14  $\mu\text{s}$ ). Cette figure montre l'évolution de l'APGD de Ne, entre sa formation (au niveau de pointe,  $0 \leq t \leq 2 \mu\text{s}$ ), son développement entre les deux électrodes ( $2 \mu\text{s} \leq t \leq 11 \mu\text{s}$ ), jusqu'à son propagation radiale au niveau du diélectrique (pour  $t > 11 \mu\text{s}$ ).

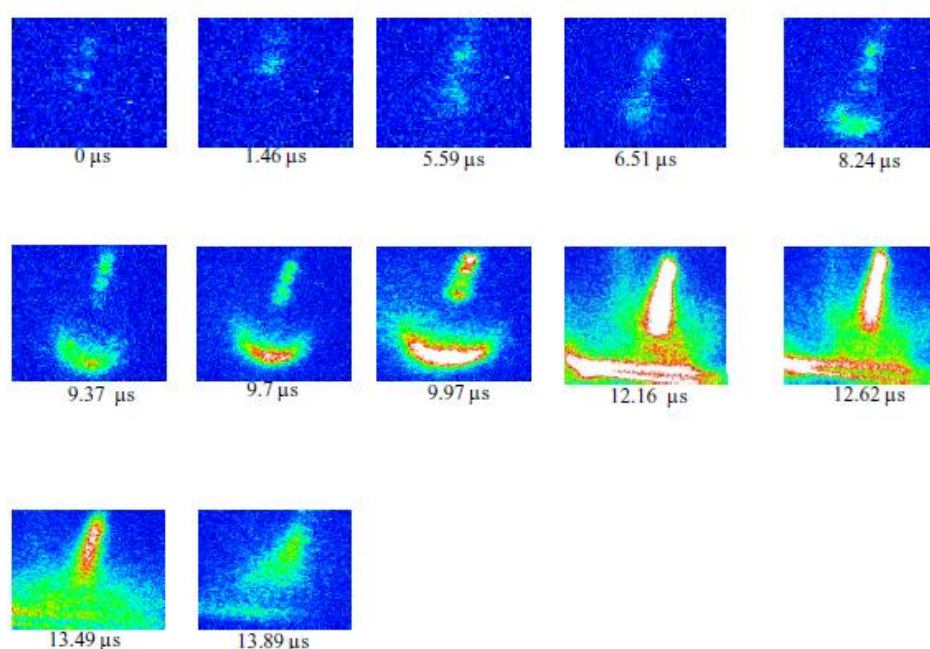


Figure 3-22: Visualisation des événements les plus significatifs de l'APGD de Ne, entre la pointe et le diélectrique. Ici, nous avons pris 300 images de la totalité de la décharge (comme la décharge dure environ 13  $\mu\text{s}$ , chaque image est séparée de la suivante de 46 ns); celles qui sont rapportées ont été prises aux instants indiqués.

Manifestement, la décharge de Ne montre des caractéristiques assez semblables du point de vue spatio-temporel à celle de He, en tout cas pour ce qui concerne l'intensité émise sur tout le spectre de chaque décharge. Dans ce qui suit, nous procéderons à une analyse, quoique trop brève, permettant de discriminer les émissions de quelques états excités caractéristiques de chaque décharge.

### **3.4.2. Distribution spatio-temporelle des intensités d'émission de quelques raies caractéristiques des APGD de He et de Ne**

L'analyse spatio-temporelle de l'intensité émise par certains états excités de l'APGD de He permettra de connaître les variations fines de l'intensité de ces raies en fonction du temps et de la position axiale choisie dans la décharge, tel que montré dans quelques travaux antérieurs [13, 14]. Pour y parvenir, nous utilisons l'approche suivante :

- i) la décharge étant mise en route, la caméra est placée dans la configuration 2 (voir Figure 2-1, chapitre 2), donc après le monochromateur. Une zone précise de la décharge est sélectionnée en plaçant le banc optique à une position définie avec la vis micrométrique (position axiale fixée entre  $z = 0$  et  $z = 3.0$  mm). A l'aide du logiciel WinSpec, on définit la longueur d'onde à sélectionner par le monochromateur dans lequel passe toute l'émission lumineuse recueillie par la fibre optique;
- ii) avec le même logiciel, on définit le nombre « d'images » spectrales que la caméra aura à prendre (par exemple 200 pour la « durée de vie » de la décharge, 14  $\mu$ s) de la raie ainsi choisie;
- iii) les données obtenues peuvent être représentées sur une sorte de distribution  $I_{\lambda-z-t}$ <sup>18</sup> à 3 dimensions (voir par exemple, Fig. 3-24) ou sur un graphique à 2 dimensions qui montrerait l'intensité (ordonnée) en fonction du temps, la position  $z$  étant maintenue fixe.

---

<sup>18</sup> Cette distribution  $I_{\lambda-z-t}$  représente les variations de l'intensité (selon un codage de couleurs) d'une raie donnée en fonction à la fois du temps (ici en  $\mu$ s) et en fonction de la position axiale choisie dans l'espace inter-électrodes.

### 3.4.2.1 Décharge de He

Les intensités d'émission des raies He I à  $\lambda = 706.5$  nm et  $N_2^+$  (FNS) à  $\lambda = 391.4$  nm sont acquises pour 21 positions axiales différentes, distribuées graduellement entre le diélectrique,  $z = 0$  mm et la pointe,  $z = 3.0$  mm, et en choisissant les paramètres logiciel de façon à ne retenir que la demi-période positive du cycle d'alimentation en haute tension. Ces intensités ont été normalisées à leurs valeurs maximales respectives pour comparer les dépendances temporelles des raies spectrales dans une demi-période positive ou négative. Dans ce qui suit, nous ne montrerons qu'une partie des résultats obtenus.

#### 3.4.2.1.1 Distribution spatio-temporelle de la raie He I dans l'APGD de He

La Figure 3-23 montre la distribution  $I_{\lambda-z-t}$  pour l'APGD de He dans les conditions opératoires habituelles (Fig. 3-19), la raie d'émission étant He I (706.5 nm). Le temps  $t = 0$  ( $\mu$ s) correspond au maximum d'intensité enregistrée dans toute la distribution, aussi il lui correspond ipso facto un  $z$  donné (qui est dans ce cas tout proche du diélectrique). En contraste avec la Figure 3-19<sup>19</sup>, on distingue bien une zone au voisinage du diélectrique où l'intensité d'émission est maximale : cet événement survient environ 8  $\mu$ s après l'amorçage de la décharge. Mis à part cette zone, on observe qu'au niveau de la pointe, l'intensité de cette raie est relativement faible. On peut noter aussi que la décharge s'amorce timidement vers les  $-8$   $\mu$ s, en tout cas tel que vu avec cette distribution de He I (706 nm).

---

<sup>19</sup> La Figure 3-23 rapporte uniquement les données concernant la raie 706 nm, recueillie durant une seule décharge alors que la Figure 3-19 recueille l'intensité de tout le spectre de l'APGD et sur 10 décharges.

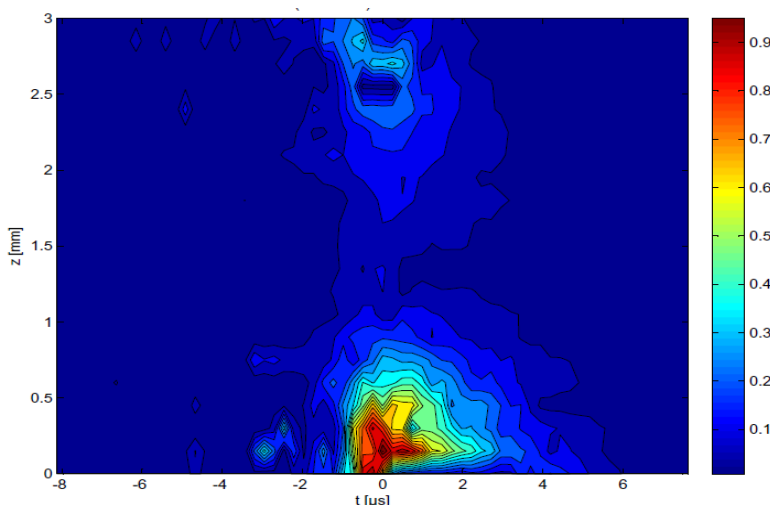


Figure 3-23: Distribution spatio-temporelle de l'intensité d'émission de la raie He I (706.5nm) dans une APGD de He pour un demi-cycle positif.

Dans la demi-période négative, la répartition de la raie de He I (706.5 nm) semble se cantonner plutôt au voisinage de la pointe (Fig. 3-24); il ne semble pas y avoir de propagation entre les deux électrodes (ou alors très faible), la luminosité provenant essentiellement de l'électrode supérieure (pointe). Au voisinage du diélectrique, l'intensité est très faible et de courte durée  $< 1$   $\mu$ s.

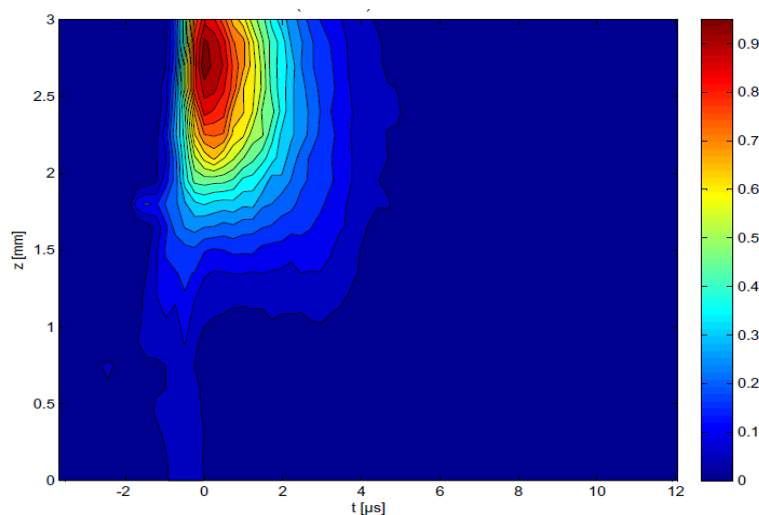


Figure 3-24: Distribution spatio-temporelle de l'intensité d'émission de la raie He I (706 nm) dans une APGD de He pour un demi-cycle négatif. A l'inverse du demi-cycle positif, la zone d'intensité maximale se retrouve plutôt au voisinage de la pointe.

### 3.4.2.1.2 Distribution spatio-temporelle de la tête de bande de $N_2^+$

La Figure 3-25 montre la distribution spatio-temporelle de l'émission provenant de la tête de bande de  $N_2^+$ : on y observe que la zone d'émission maximum se situe autour de  $z = 0.7 \pm 0.2$  mm. Au niveau de la pointe, il n'y a pratiquement pas d'émission. Si l'on se rapporte à la Figure 3-5, on note des différences sensibles avec le résultat de la Figure 3-24: en effet, le maximum d'émission est décalé encore plus du côté du diélectrique (vers  $z = 0.3$  mm), et il apparaît un maximum relatif autour de la pointe. Cela s'explique par le fait que les données de la Figure 3-24 sont recueillies durant une seule décharge alors que la Figure 3-5 fait la moyenne des intensités de la tête de bande de  $N_2^+$  sur 10 décharges (cycle positif et négatif).

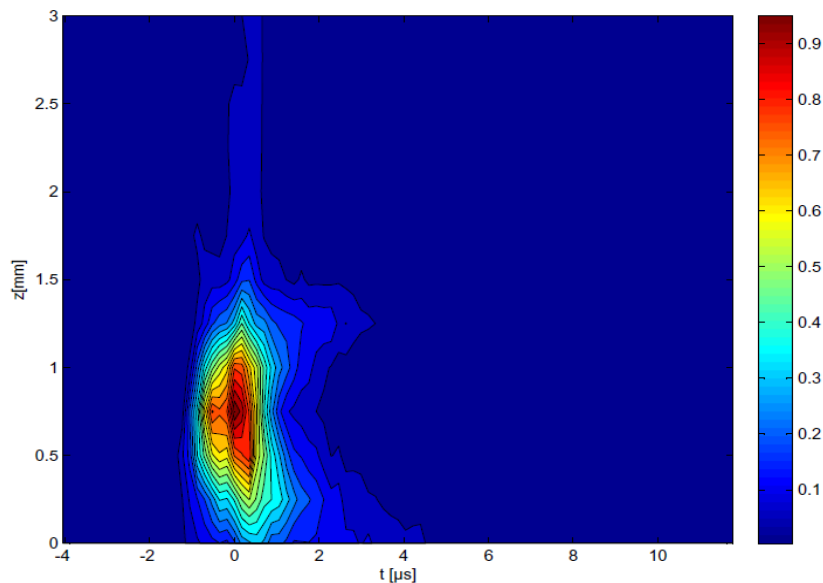


Figure 3-25: Distributions spatio-temporelle de l'intensité d'émission de la tête de bande de  $N_2^+$  (391.4 nm) dans l'APGD de He (cas d'un demi-cycle positif).

### 3.4.2.2 Décharge de Ne

La distribution  $I_{\lambda-z-t}$  de la raie Ne I 703 nm dans l'APGD de Ne est représentée sur la Figure 3-26. Cette distribution obtenue pour une seule décharge nous donne des renseignements intéressants, et elle présente des éléments la distinguant fortement de l'APGD de He. Ainsi, si la « durée de vie » de la décharge est d'environ 13  $\mu s$  (à peu près égale à celle de He), son émission lumineuse est bien plus intense et spatialement beaucoup plus large. On peut distinguer assez facilement les



zones d'intensités maximales d'émission :  $z \approx 2.2 \text{ mm} \pm 0.1 \text{ mm}$  ;  $z \approx 1.5 \text{ mm} \pm 0.3 \text{ mm}$  ;  $z \approx 1 \text{ mm} \pm 0.1 \text{ mm}$  ; la zone médiane est de loin celle qui montre la plus intense luminosité et celle qui s'étale le plus dans le temps; c'est aussi un aspect distinguant l'APGD de Ne de celle de He.

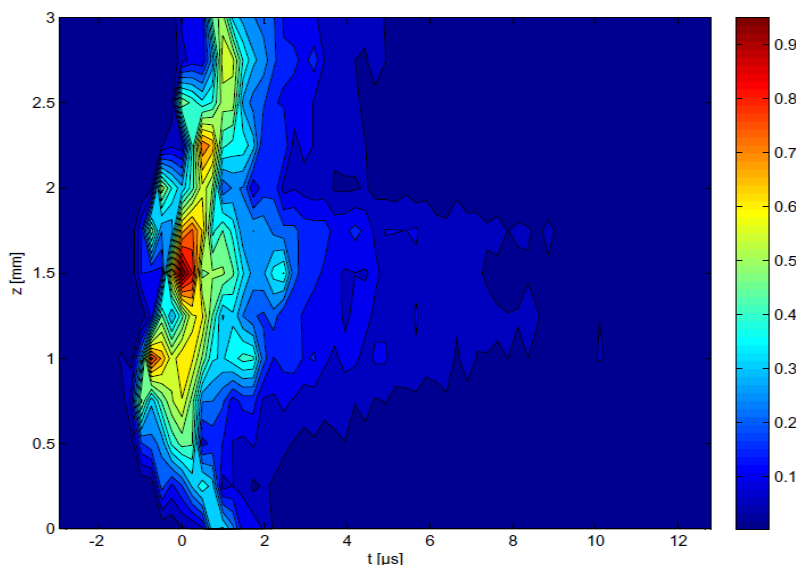


Figure 3-26: Distribution spatio-temporelle de l'intensité d'émission de la raie Ne (703 nm) dans l'APGD de Ne (cycle positif). Conditions opératoires: voir Figure 3-22. Le temps  $t = 0 \text{ (}\mu\text{s)}$  correspond au maximum d'intensité enregistrée dans toute la distribution.

### 3.4.3 Conclusion

Sur la base des données, peu nombreuses, que nous avons obtenues dans cette étude préliminaire des variations temporo-spatiales des APGD de He et de Ne, nous pouvons seulement fournir des éléments de réflexion pour une étude plus approfondie qui sera menée ultérieurement. Cependant, cette caractérisation partielle nous a fourni un certain nombre d'éléments forts intéressants :

- i) détermination des durées de vie des deux décharges (environ 12 à 14  $\mu\text{s}$ ); avec une définition assez précise des temps de montée et de descente ;
- ii) délimitation précise des zones de plasma de faible et de forte luminosité: l'APGD de Ne se distingue nettement de celle de He en ce qu'en son milieu, elle est la « plus large » et la plus intense. Quant à l'APGD de He (dans son cycle positif), elle présente une « structure

bipolaire »: très intense vers la pointe et au niveau du diélectrique, avec une très faible émission dans l'intervalle situé à mi-parcours de ces deux zones ;

- iii) il y a lieu de valider le résultat (Figures 3-23 et 3-26) qui montre que l'APGD de He semble s'amorcer plutôt au niveau de la pointe, tandis que celle de Ne, l'amorçage part du centre de l'espace inter-électrodes. Résultat qui peut avoir un impact sur les processus physiques à l'origine de la création du régime diffus dans ces deux décharges;
- iv) il est fort aisé avec ce type de résultats (notamment tels que représentés en Figure 3-21 par exemple) d'étudier les cinétiques de peuplement et de dépeuplement d'un niveau excité donné. En outre, il est facile de faire une analyse comparative des « constantes de temps » de différents niveaux excités de la décharge de He avec celle de Ne. Une telle étude est riche d'enseignements et que cette approche par imagerie par caméra CCD permet de mener à bien.

## CHAPITRE 4 CONCLUSION

La revue bibliographique nous a montré la complexité des mécanismes présidant à la création des décharges de type DBD. C'est dans ce cadre, très large, que s'inscrit notre contribution visant à apporter des éléments nouveaux, expérimentaux et théoriques, susceptibles d'enrichir notre compréhension de la physique des DBD. Pour ce faire, nous avons conçu un dispositif expérimental, composé d'une petite cellule de 100 cm<sup>3</sup> comportant un applicateur de type DBD pointe-plan permettant de créer et d'entretenir des décharges à la pression atmosphérique, et utilisant essentiellement les gaz nobles d'hélium et de néon. Notre caractérisation comporte une étude spectroscopique de l'émission lumineuse des décharges dans la gamme allant de 350 à 800 nm, la détermination de la température rotationnelle des APGD de He et de Ne dans différentes conditions expérimentales, et l'analyse de la distribution spatiale des intensités lumineuses émanant de ces APGD (pour tout le spectre et pour certaines raies) et leurs variations dans le temps.

La technique par spectroscopie d'émission optique (OES) appliquée aux APGD de He et de Ne nous a permis d'identifier les raies caractéristiques de ces deux décharges et de révéler la présence d'émissions issues d'impuretés d'azote, émanant des niveaux  $N_2(C)$  et  $N_2^+(B)$  notamment. En outre, les intensités lumineuses émises par ces décharges pour trois positions axiales particulières (au voisinage de la pointe; au « centre » de la décharge, et au niveau du diélectrique) ont été obtenues et comparées. Tirant profit de la présence d'une émission assez forte émanant du premier système négatif de l'ion  $N_2^+$ , notamment dans la décharge de He (il a fallu ajouter 0.1% de  $N_2$  dans le cas de Ne), nous avons cherché à évaluer la température du gaz dans ces deux décharges, en fonction de la position axiale et du débit gazeux, utilisant la méthode thermométrique par le diagramme de Boltzmann.

Nous avons montré que, dans nos conditions de travail habituelles (environ 300 sccm de gaz vecteur), la température « moyenne » du gaz est de 430 K dans He alors qu'elle est de 670 K dans l'APGD de Ne. Il est apparu notamment que l'APGD de Ne est plus chaude que celle de He (un écart de 240 K entre ces 2 décharges). D'autre part, la température moyenne du gaz décroît de façon différente selon l'axe z dans chacune de ces deux décharges, l'APGD de He étant somme toute beaucoup plus homogène que celle de Ne. Ces deux observations s'expliquent normalement par la conductivité thermique plus élevée de He: la chaleur se propage d'un endroit à l'autre

(aussi bien radialement qu'axialement) du plasma de He bien plus rapidement que dans celui de Ne. De même, ce transfert de chaleur s'effectue aussi rapidement du plasma *vers* les parois (l'extérieur) et explique la faible température moyenne de l'APGD de He. Par ailleurs, nous avons montré que la  $T_{\text{rot}}$  diminue de façon monotone au fur et à mesure que le débit de gaz augmente, et ce pour une même puissance injectée dans chacune des APGD. Néanmoins, l'écart de température est maintenu pour les deux APGD à plus de 200 K, quel que soit le débit et la distance à laquelle on se trouve entre les deux électrodes.

Pour obtenir une cartographie de l'émission lumineuse de nos décharges, et suivre ses variations dans le temps (qui est corrélé à l'axe z dans notre cas), nous avons eu recours à l'imagerie par caméra ICCD. Sur la base d'une caractérisation partielle, nous avons pu déterminer les « durées de vie » des deux décharges (entre 12 à 14  $\mu\text{s}$  environ), en précisant les temps de montée et de descente de l'intensité totale d'émission. Cette analyse spatio-temporelle de l'intensité émise a en outre permis de délimiter, de façon assez précise, les zones de plasma de faible et de forte luminosité : l'APGD de Ne se distingue nettement de celle de He du fait qu'en son milieu, elle est la « plus large » et la plus intense. Quant à l'APGD de He (dans son cycle positif), elle présente une « structure bipolaire » : très intense vers la pointe et au niveau du diélectrique, avec une très faible émission dans l'intervalle situé à mi-parcours de ces deux zones.

Les décharges à barrière diélectrique dans les gaz rares à la pression atmosphérique ont une importance technologique dans un certain nombre de domaines d'application y compris le traitement de surface des matériaux. Plusieurs études ont montré que l'APGD est bien maîtrisée au sein de laboratoire. Par contre son application industrielle nécessite des recherches plus poussées dans l'avenir. Dans la présente recherche, nous avons étudié seulement une très petite partie de ce phénomène extrêmement complexe, nommé "APGD". Nous avons identifié les moyens d'améliorer le dispositif expérimental. Le système actuel, réalisé dans notre laboratoire nous permettra encore d'explorer d'avantage. Alors de nombreuses expériences peuvent être réalisées en utilisant le Ne. Ces expériences nous permettront , d'analyser l'influence du diélectrique (composition, surface, épaisseur) sur le comportement de décharge, d'étudier les différentes configurations géométriques des électrodes, de voir le comportement de différents mélanges de gaz qui peuvent être intéressants pour l'application industrielle et enfin de mener une analyse spatio-temporelle en vue d'étudier les dynamiques de peuplement et de dépeuplement de quelques niveaux excités importants peuvent être intéressants..

## RÉFÉRENCES

- [1] Siemens, W. Poggendorfs, Ann. Phys. Chem., **1857**, 102, 66.
- [2] A Fridman, A. Chirokov, A. Gutsol, “Non-thermal atmospheric pressure discharges”, J. Phys. D: Appl. Phys., **2005** 38(2), R12005.
- [3] U. Kogelschatz, “Dielectric barrier discharges: their history, discharge physics, and industrial applications”, Plasma Chem. Plasma Process., **2003**, 23, 1.
- [4] I. Radu, R. Bartnikas, M. R. Wertheimer, “Positive and negative polarity current pulse characteristics of a helium glow discharge in a cylinder-plane electrode gap at atmospheric pressure”, J. Phys. D: Appl. Phys., **2004**, 95, 5994.
- [5] U. Kogelschatz, “Physics and applications of dielectric-barrier discharges”, ICOPS 2000, IEEE. Conference Record –Abstracts.27 the IEEE International Conference on Plasma Science, New. Orleans, LA, USA, **2000**, 81.
- [6] U. Kogelschatz, “Filamentary, patterned, and diffuse barrier discharges”, IEEE Trans. Plasma Sci., **2002**, 30, 1400.
- [7] I. Radu, R. Bartnikas, M. R. Wertheimer, “Frequency and voltage dependence of glow and pseudoglow discharges in helium under atmospheric pressure”, IEEE Trans. Plasma Sci., **2003**, 31, 1363.
- [8] I. Radu, R. Bartnikas, M. R. Wertheimer, “Dielectric barrier discharges in helium at atmospheric pressure: Experiments and model in the needle-plane geometry”, J. Phys. D, Appl. Phys., **2003**, 36, 1284.
- [9] I. Radu, R. Bartnikas, M. R. Wertheimer, “Dielectric barrier discharges in atmospheric pressure helium in cylinder-plane geometry: Experiments and model”, J. Phys. D: Appl. Phys., **2004**, 37, 449.
- [10] I. Radu, R. Bartnikas, M. R. Wertheimer, “Diagnostics and modelling of noble gas atmospheric pressure dielectric barrier discharges in homogeneous or diverging electric fields”, J. Phys. D: Appl. Phys., **2005**, 38, 539.
- [11] I. Radu, R. Bartnikas, M. R. Wertheimer, “Imaging of atmospheric pressure glow discharges in helium and argon”, IEEE Trans. Plasma Sci., **2005**, 33, 280.

- [12] I. Radu, R. Bartnikas, G. Czeremuszkin, M. R. Wertheimer, "Diagnostics of dielectric barrier discharges in noble gases: atmospheric pressure glow and pseudoglow discharges and spatio-temporal patterns", *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **2003**, 31, 411.
- [13] V. Poenariu, "Spectroscopic diagnostics of atmospheric pressure helium dielectric barrier discharges", *Mémoire de Maîtrise (École Polytechnique, Université de Montréal)*, **2006**.
- [14] V. Poenariu, R. Bartnikas, M. R. Wertheimer, "Spectroscopic diagnostics of atmospheric pressure helium dielectric barrier discharges in divergent fields", *Plasma. Process. Polym.*, **2006**, 3 (1), 17.
- [15] K. Takaki, S. Kato, T. Fujiwara, "Removal of NO and NO<sub>x</sub> using a multipoint-type dielectric barrier discharge reactor at a narrow gap", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **2001**, 34, 2032.
- [16] A. Muaffaq, K. Takaki, T. Fujiwara, "Low-voltage operation of a plasma reactor for exhaust gas treatment by dielectric barrier discharge", *Rev. Sci. Instrum.*, **1998**, 69, 1847.
- [17] A. Fridman, L. A. Kennedy, "Plasma Physics and Engineering", New York: Taylor & Francis, New York, **2004**.
- [18] A. M. Tas, R. Van Hardeveld, E. M. Van Veldhuizen, "Reactions of NO in a positive Streamer Corona Plasma", *Plasma Chem. Plasma Process.*, **1997**, 17, 371.
- [19] A. V. Randonnier, "Conception et simulation d'un réacteur fil-cylindre à décharge couronne avec barrière diélectrique adapté au traitement des oxydes d'azote dans des effluents marqués par un isotope". Thèse de doctorat, Université Paris VI, **2002**.
- [20] F. Massines, N. Gherardi, N. Naudé, P. Ségur, "Recent advances in the understanding of homogeneous dielectric barrier discharges", *E. P. J. Applied Physics*, **2009**, 47 (2), 22805.
- [21] G. M. Sessler, J.E. West, "Production of high quasi-permanent charge densities on polymer foils by application of breakdown fields", *J. Appl. Phys.*, **1972**, 43, 922.
- [22] Y. M. Kogoma, T. Moriwaki, S. Okazaki, "The mechanism of the stabilization of glow plasma at atmospheric pressure", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **1990**, 23 (8), 1125.
- [23] Alban Sublet, "Caractérisation de décharges à barrières diélectriques atmosphériques et sub-atmosphériques et application à la déposition de couches d'oxyde de silicium". Thèse de doctorat, Université Paris VI (France), **2002**.
- [24] S. Okazaki, M. Kogoma, M. Uehara, Y. Kimura, "Appearance of stable glow discharge in air, argon, oxygen and nitrogen at atmospheric pressure using 50 Hz source", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **1993**, 26 ,889.

- [25] S. Okazaki, M. Kogoma, H. Uchimaya, in Proc. 3rd Int.Symp. “High Pressure Low Temp. Plasma Chem”, Hakone III, Strasbourg, France, **1991**, 101.
- [26] J. R. Roth, D.M. Sherman, S.P. Wilkinson, “Electrohydrodynamic Flow Control with a Glow-Discharge Surface Plasma”, AIAA J., **2000**, 38, 1166.
- [27] B. P. Pandey, Subrata Roy, “An explanation of the sheath instability”, Phys. Plasmas, **2003**, 10, 5.
- [28] J. Rahel, Xin Dai, D. M. Sherman, “The physics and phenomenology of One Atmosphere Uniform Glow Discharge Plasma (OAUGDP™) reactors for surface treatment applications”, *Phys. D: Appl. Phys.*, **2005**, 38, 555.
- [29] F. Massines, A. Rabehi, P. Decomps, R. B. Gadri, P. Ségur, C. Mayoux, “Experimental and theoretical study of a glow discharge at atmospheric pressure controlled by a dielectric barrier”, J. Appl. Phys., **1998**, 83, 2950.
- [30] F. Massines, P. Ségur, N. Gherardi, C. Khamphan, A. Ricard, “Physics and chemistry in a glow dielectric barrier discharge at atmospheric pressure: diagnostics and modeling”, Surf. Coatings Technol., **2003**, 174-175, 8.
- [31] F. Tochikubo, T. Chiba, T. Watanabe, “Structure of Low-Frequency Helium Glow Discharge at Atmospheric Pressure between Parallel Plate Dielectric Electrodes”, Jpn. J. Appl. Phys., **1999**, 38 (Part 1), 5244.
- [32] C. Khamphan, P. Ségur, F. Massines, M. C. Bordage, N.Gherardi, Y. Cesses, in Proc. 16th Int. Symp. on Plasma Chem., Taormina, Italy, **2003**.
- [33] P. F. Little, “Electron Emission gas discharges I”, Encyclopedia of physics, XXI, edited by S. Flugge, **1956**.
- [34] D. A. Bosan, T. V. Jovanovic, D.M. Krmpotic, “The role of neutral metastable N<sub>2</sub> (A) molecules in the breakdown probability and glow discharge in nitrogen”, J. Phys. D: Appl. Phys., **1997**, 30, 3096.
- [35] S. Kanazawa, M. Kogoma, T. Moriwaki, S. Okazaki, “Stable glow plasma at atmospheric pressure”, J. Phys. D: Appl. Phys., **1998**, 21 (5), 833.
- [36] J. Ráhel, D. M. Sherman, “The transition from a filamentary dielectric barrier discharge to a diffuse barrier discharge in air at atmospheric pressure”, J. Phys. D: Appl. Phys., **2005**, 38 (4), 547.

- [37] E. Aldea, P. Peters, H. De Vries, M. C. M. Van De Sanden, "Controlling the atmospheric glow stability", in 17th International Symposium on Plasma Chemistry, ISPC 17, Toronto, Canada, **2005**.
- [38] N. Gherardi, G. Gouda, E. Gat, A. Ricard, F. Massines, "Transition from glow silent discharge to micro-discharges in nitrogen gas", *Plasma Sources Sci. Technol.*, **2000**, 9 (3), 340.
- [39] V. A. Maiorov, Yu B. Golubovskii, "Influence of the interaction between charged particles and dielectric surface over a homogeneous barrier discharge in nitrogen", *Plasma Sources Sci. Technol.*, **2007**, 16 (1), S67.
- [40] F. Massines, N. Gherardi, N. Naudé, P. Ségur, "Glow and Townsend dielectric barrier discharge in various atmosphere", *Plasma Phys. Control. Fusion*, **2005**, 47 (12), B577.
- [41] D. Lee, J. M. Park, S. H. Hong, Y. Kim, "Numerical simulation on mode transition of atmospheric dielectric barrier discharge in helium-oxygen mixture", *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **2005**, 33 (2), 949.
- [42] R. Brandenburg, V. A. Maiorov, Yu. B. Golubovskii, H-E. Wagner, J. Behnke, J. F. Behnke, "Diffuse barrier discharges in nitrogen with small admixtures of oxygen: discharge mechanism and transition to the filamentary regime", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **2005**, 38 (13), 2187.
- [43] R. Bartnikas, J. P. Novak, "Effect of air admixture in helium on the rate of the breakdown current rise", *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **1992**, 20, 487.
- [44] J. P. Novak, R. Bartnikas, "Theoretical and experimental investigations on the process of high-pressure discharge development", *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **1991**, 19, 95.
- [45] A. Richard, Ph. Décomps, F. Massines, "Kinetics of radiative species in helium pulsed discharge at atmospheric pressure", *Surf. Coatings Technol.*, **1999**, 112, 1.
- [46] N. K. Bibinov, A. A. Fateev, K. Wiesenmann, "Variation of the gas temperature in He/N<sub>2</sub> barrier discharges", *Plasma Sources Sci. Technol.*, **2001**, 10, 579.
- [47] N. K. Bibinov<sup>1</sup>, A. A. Fateev and K. Wiesenmann, "On the influence of metastable reactions on rotational temperatures in dielectric barrier discharge in He - N<sub>2</sub> mixtures", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **2000**, 34, 1819.
- [48] C. Anderson, M. Hur, P. Zhang, L. Mangolini, U. Kortshagen, "Two-dimensional space-time-resolved emission spectroscopy on atmospheric pressure glows in helium with impurities", *J. Appl. Phys.*, **2004**, 96, 1835.



- [49] G. Herzberg, I. "Spectra of Diatomic Molecules", 2nd Ed., Van Nostrand, New York, **1950**.
- [50] B. Massabieaux, A. Plain, A. Ricard, M. Capitelli, C. Gorse, "Excitation of vibrational and electronic states in a glow discharge column in flowing  $N_2$ ", J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., **1983**, 16, 1863.
- [51] S. P. Brühl, M. W. Russell, B. J. Gómez, G. M. Grigioni, J. N. Feugeas, A. Ricard, "A study by emission spectroscopy of the  $N_2$  active species in pulsed DC discharges", J. Phys. D: Appl. Phys., **1997**, 30, 2917.
- [52] J. H. Kim, Y. H. Choi, W. Choe, J. J. Choi, Y. S. Hwang, "Optical measurements of gas temperatures in atmospheric pressure RF cold plasmas", Surf. Coatings Technol., **2002**, 171, 211.
- [53] S. Y. Moon, W. Choe, "A comparative study of rotational temperatures using diatomic OH,  $O_2$  and  $N_2^+$  molecular spectra emitted from atmospheric plasmas", Spectrochim. Acta B, **2003**, 58, 249.
- [54] C. Hudon, R. Bartnikas, M. R. Wertheimer, "Spark-to-glow discharge transition due to increased surface conductivity on epoxy resin specimens", IEEE Trans. Electr. Insul., **1993**, 28, 1.
- [55] K. A. Dick, W. Benesch, H. M. Crosswhite, S. G. Tilford, R. A. Gottscho, R. W. Field, "High resolution spectra of bands of the first negative group of ionized molecular nitrogen ( $N_2^+ 1NG: B^2 \Sigma_u^+ \rightarrow X^2 \Sigma_{gu}^+$ )", J. Mol. Spectr., **1978**, 69, 95.
- [56] Joël Lavoie, "Conception d'une cellule pour la caractérisation par spectroscopie d'émission d'une décharge APGD dans le néon", Projet de fin d'étude, École Polytechnique de Montréal, **2007**.
- [57] R. Bartnikas, "Note on discharges in helium under a.c. conditions", Brit. J. Appl. Phys., J. Phys. D, **1968**, 1, 659.
- [58] R. Bartnikas, "Note on ac discharges between metallic-dielectric electrodes in helium", J. Appl. Phys., **1969**, 40, 1974.
- [59] R. Bartnikas, "Some Observations on the Character of Corona Discharges in Short Gap Spaces", IEEE Trans. Electr. Insul., **1971**, 6, 63.

- [60] Z. Navratil, R. Brandenburg, D. Trunec, A. Brabec, P. Stahel, H.-E. Wagner, Z. Kopecky, "Comparative study of diffuse barrier discharges in neon and helium", *Plasma Sources Sci. Technol.*, **2006**, 15, 8.
- [61] Q. Wang, F. Doll, V. M. Donnelly, D. J. Economu, N. Sadeghi, G. F Franz, "Experimental and theoretical study of the effect of gas and temperature in an atmospheric pressure microplasma", *J. Phys. D : Appl. Phys.*, **2005**, 38, 1690.
- [62] N. Masoud, K. Martus, M. Figus, K. Becker, "Rotational and vibrational temperature measurements in a high-pressure cylindrical dielectric barrier discharge (C-DBD)", *Contrib. Plasma Phys.*, **2005**, 45, 32
- [63] L. Mangolini, C. Anderson, J. Heberlein, U. Kortshagen, "Effects of current limitation through the dielectric in atmospheric pressure glows in helium", *J. Phys. D Appl. Phys.*, **2004**, 37, 1021.
- [64] J. P Novak, R. Bartnikas, "Effect of dielectric surface on the nature of partial discharge", *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, **2000**, 7, 146.
- [65] A. Richard, "Excitation de  $N_2$  et  $H_2$  en impuretés dans des décharge de gaz rares He, Ne, et Ar", *Revue de Phys.: Appl.*, **1975**, 10, 137.
- [66] E. C. Martinez, "Absorption spectroscopy measurements of resonant and metastable atom densities in atmospheric pressure discharges using a low pressure lamp as a spectral-line source and comparison with a collisional-radiative model", *Spectrochim. Acta Part B*, **2010**, 65, 199.
- [67] A. D Wilson, J. C. Avelar Batista, S. J. Dowey, J. Rodson, A. Leyland, A. Matthews, K. S. Fancey., "Investigation into nitrogen-inert gas interactions in d.c. diode glow discharges", *Thin Solid Films*, **2001**, 142-144, 540.
- [68] K. Martus, N. Masoud, K. Becker, "Collisional and radiative processes in high-pressure Ne/ $N_2$  discharges", *Plasma Sources Sci. Technol.*, **2006**, 15, S84.
- [69] A. Ricard, "Transfert d'énergie entre états excités", *J. Phys. Colloque C3*, supplémente au **1997**, 8, C3-239.
- [70] Y. A. Cengel, M. A. Boles, "Thermodynamics an Engineering Approach", Fifth edition, Higher education, New York, **2006**.
- [71] Yu. B. Golubovskii, V. A. Maiorov, J. Behnke, J. F. Behnke, "Influence of interaction between charged particles and dielectric surface over a homogeneous barrier discharge in nitrogen", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **2002**, 35, 751.

- [72] K. V. Kozlov, H.-E. Wagner, R. Brandenburg, P. Michel, “Spatio-temporally- resolved spectroscopic diagnostics of the barrier discharge in air at atmospheric pressure”, J. Phys. D: Appl. Phys., **2001**, 34, 3164.
- [73] E. Guyon, J. P. Hulin, “Hydrodynamique Physique”, Edition Science / CNRS Edition, Paris, **1982**.
- [74] R. B. Bird W. E. Stewart and Edwin N. Lightfoot, “Transport Phenomena”, Second Edition, John & Sons, Inc, New York, **2002**.
- [75] F. F. Chen, “Introduction to plasma Physics”, Plenum Press, New York **1929**.
- [76] J. L. Delcroix, A. Bers, “ Physique des Plasmas”, Inter Éditions / CNRS Edition, Paris , **1994**

## ANNEXE 1 : Modèle du rotateur rigide : les termes spectraux

Une première approximation consiste à considérer la molécule comme indéformable, figée dans sa configuration d'équilibre : c'est l'approximation du rotateur rigide. Une étude plus précise exige un calcul global de l'énergie de vibration-rotation, que l'on peut toujours écrire comme la somme d'un terme purement vibrationnel,  $E_v$ , et d'un terme rotationnel dépendant aussi des nombres quantiques vibrationnels; cette dépendance traduit l'influence de la non-rigidité de la molécule.

### Molécules diatomiques

Les niveaux d'énergie de rotation d'une molécule diatomique sont donnés, dans l'approximation du rotateur rigide, par la formule :

$$\frac{E_r}{hc} = F(J) = B_e J(J+1), J = 0, 1, 2, \dots, \quad (1.1)$$

Où  $F(J)$  est le terme spectral rotationnel exprimé en  $\text{cm}^{-1}$  et  $B_e$  la constante d'inertie (ou constante rotationnelle) inversement proportionnelle au moment d'inertie de la molécule; elle a pour valeur :

$$B_e = \frac{h}{8\pi^2 c I^e} \quad (1.2)$$

Où  $I^e$  désigne le moment d'inertie de la molécule, dans sa configuration d'équilibre, par rapport à une droite passant par le centre de masse  $O_g$  et perpendiculaire à l'axe moléculaire  $z$ . Le nombre quantique rotationnel  $J$  caractérise le moment cinétique  $P$  de la molécule tournant autour d'axe passant par  $O_g$  et perpendiculaire à  $z$  :

$$P = h\sqrt{J(J+1)}, \quad (1.3)$$

La relation  $E_r = P^2/2I^e$  étant valable aussi bien en mécanique classique qu'en mécanique quantique.

L'influence de la non rigidité de la molécule se manifeste par deux effets : il faut, dans la formule du rotateur rigide, remplacer la constante rotationnelle à l'équilibre  $B_e$  par une valeur moyenne de la constante rotationnelle calculée sur un niveau vibrationnel donné (on supposera qu'il s'agit du plus bas niveau vibrationnel et on désignera cette valeur moyenne par  $B_0$ ); il faut aussi

introduire un nouveau terme, de degré deux par rapport à  $J(J + 1)$ , qui traduit l' influence de la distorsion centrifuge. Le terme spectral rotationnel devient alors :

$$\frac{E_r}{hc} = F(J) = B_0 J(J + 1) - DJ^2 J(J + 1)^2 \quad (1.4)$$

Où la valeur de  $B_0$  est assez peu différente de celle de  $B_e$  et où  $D$  est beaucoup plus petit que  $B_0$ .

**ANNEXE 2 : Courbes de calibration du rotamètre et de la vis micrométrique  
ayant servi à délivrer les gaz d'hélium, de néon et d'azote**

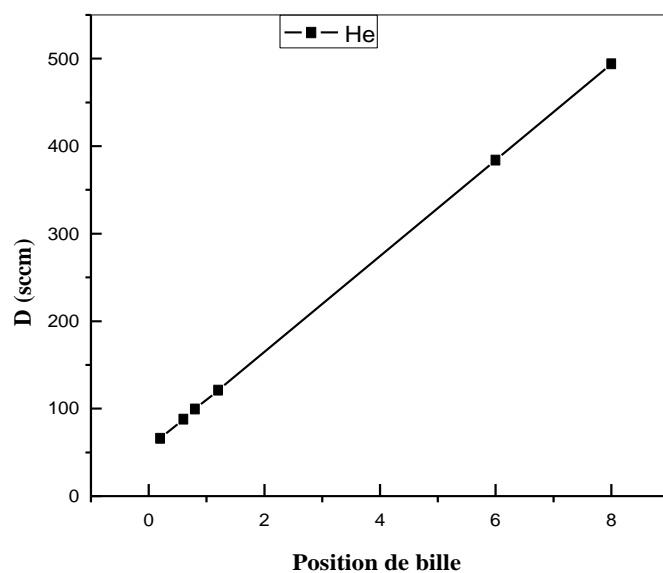


Figure AII. 2. Calibration du rotamètre pour le He

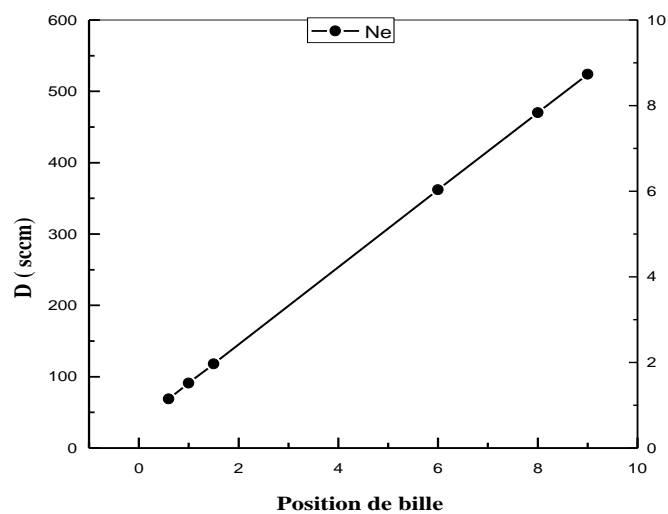


Figure AII. 3. Calibration du rotamètre pour le Ne

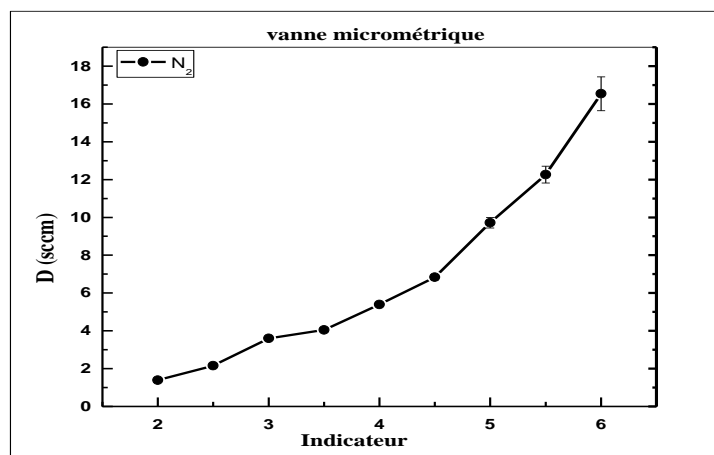


Figure AII.3. Calibration de la vanne micrométrique pour l'azote.

### ANNEXE 3: Caractéristiques électriques des décharges DBD de He et de Ne

#### Cas de l'He

La figure suivante illustre le voltage aux bornes des électrodes. On remarque que la décharge est bien en condition APGD, avec un pic de forte amplitude par période. La sinusoïde de la tension est modifiée lors de la décharge, ce qui indique une circulation de courant entre les deux électrodes. L'amplitude crête à crête de la tension nécessaire pour amorcer le claquage est de 1.6 kV.

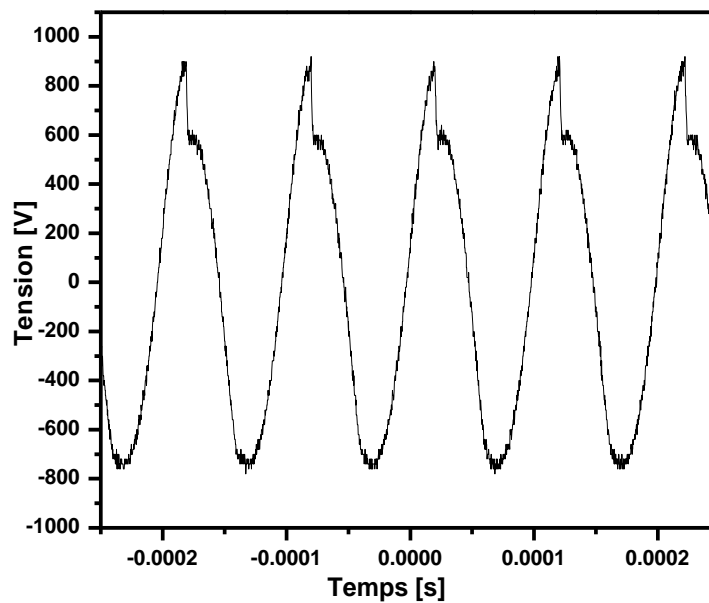


Figure 1: Signal de la tension appliquée aux électrodes dans une APGD de He pur (1.6 kV, 10 kHz)

#### Cas de Ne

La figure suivante illustre le signal aux bornes des électrodes. En conditions APGD, on remarque l'apparition d'un pic par demi-cycle. L'amplitude de la tension crête à crête nécessaire 1.2 kV est moins élevée que dans le cas de l'He.



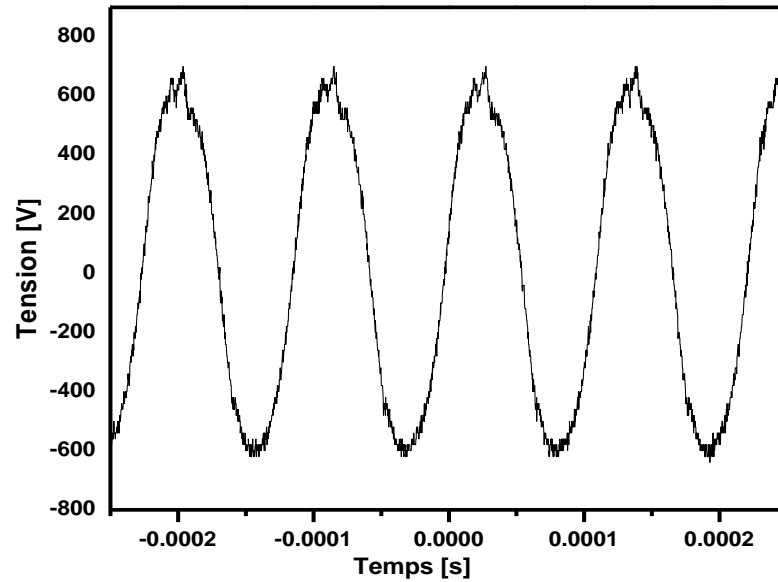


Figure 2: Signal de la tension appliquée aux électrodes dans une APGD de Ne (1.2 kV, 10 kHz)

La tension nécessaire pour créer la décharge de Ne est beaucoup plus faible que celle de He. En effet, le rapport des tensions nécessaires pour ioniser le Ne et l'He est de  $600/800 = 0.75$ . Il est donc plus faible que le rapport des potentiels d'ionisation des deux gaz  $21.4/24.6 = 0.88$ .

## ANNEXE 4: Identification des raies du spectre APGD du Ne

Tableau 1: Identification des raies du spectre d'APGD du Ne : transitions électroniques Ne I: 3s  $\rightarrow$  3p à une position axiale au voisinage de diélectrique

Espèces excités	$\lambda$ (nm)	$E_i$ (cm <sup>-1</sup> )	Intensité relative	Transition []	Termes
Ne I	540.05	134459.2871	0.06	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3p$	$^2[3/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	585.25	135888.7173	0.84	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3p$	
Ne I	588.19	134041.840	0.54	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3p$	$^2[3/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	594.480	134041.8400	0.53	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3p$	$^2[3/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	597.5	134041.8400	0.18	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3p$	$^2[3/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	602.9	134459.287	0.18	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3p$	$^2[3/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	607.4	134459.2871	0.7	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3p$	$^2[3/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	609.5	134459.2871	0.71	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3p$	$^2[3/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	612.84	134459.2871	0.44	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3p$	$^2[3/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	614.31	134 041.840	0.86	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3p$	$^2[3/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	616.36	134818.6405	0.44	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3p$	$^2[1/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	621.73	134041.8400	0.26	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3p$	$^2[3/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	626.65	134818.6405	0.73	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3p$	$^2[1/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	630.48	134459.2871	0.16	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3p$	$^2[3/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	633.44	134041.8400	0.34	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3p$	$^2[3/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	638.3	134459.2871	0.88	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3p$	$^2[3/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	640.22	134041.8400	0.81	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3p$	$^2[3/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	650.65	134459.2871	0.52	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3p$	$^2[3/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	653.29	134818.6405	0.37	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3p$	$^2[1/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	659.89	135888.7173	0.30	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3p$	$^2[1/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	667.83	135888.7173	0.42	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3p$	$^2[1/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	671.70	135888.7173	0.30	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3p$	$^2[1/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	692.95	135888.7173	0.28	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3p$	$^2[1/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	703.0	134041.8400	0.96	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3p$	$^2[3/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	717.39	135888.7173	0.049	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3p$	$^2[1/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	724.5	134459.2871	1	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3p$	$^2[3/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	743.89	134818.6405	0.32	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{1/2}) 3s \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3p$	$^2[1/2] \rightarrow ^2[1/2]$
Ne I	748.89	148257.7898	0.049	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3p \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3d$	$^2[1/2] \rightarrow ^2[3/2]^\circ$
Ne I	753.58	148257.7898	0.049	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3p \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3d$	$^2[1/2] \rightarrow ^2[1/2]^\circ$
Ne I	754.40	148257.7898	0.05	$2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3p \rightarrow 2s^2 2p^5 (^2P^\circ_{3/2}) 3d$	$^2[1/2] \rightarrow ^2[1/2]^\circ$

## ANNEXE 5: Transitions moléculaires observées dans un APGD de Ne

Tableau 2 : Les transitions moléculaires observées dans la gamme de longueur d'onde 350 nm – 430 nm, dans un APGD de Ne à une position axiale au voisinage de diélectrique

Espèces excites	nm	Intensité relative	Transition	Niveaux vibrationnels
$N_2$ (second système positif)	350.05	0.08	$N_2(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$	(2,3)
$N_2$ (second système positif)	353.6	0.095	$N_2(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$	(1,2)
$N_2$ (second système positif)	357.6	0.50	$N_2(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$	(0,1)
$N_2$ (second système positif)	370.9	0.12	$N_2(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$	(2,4)
$N_2$ (second système positif)	375.5	0.34	$N_2(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$	(1,3)
$N_2$ (second système positif)	380.4	0.50	$N_2(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$	(0,2)
$N_2$ (second système positif)	389.4	0.05	$N_2(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$	(3,6)
$N_2$ (second système positif)	394.2	0.15	$N_2(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$	(2,5)
$N_2$ (second système positif)	399.7	0.16	$N_2(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$	(1,4)
$N_2$ (second système positif)	405.9	0.15	$N_2(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$	(0,3)
$N_2$ (second système positif)	414.0	0.03	$N_2(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$	(3,7)
$N_2$ (second système positif)	420.1	0.044	$N_2(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$	(2,6)
$N_2$ (second système positif)	426.8	0.049	$N_2(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$	(1,5)
$N_2$ (second système positif)	427.9	0,03	$N_2(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$	(0,4)
$N_2^+$ (premier système négatif)	391.4	0,044	$N_2(B^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+)$	(0,0)

Tableau 3: Énergie d'excitation des espèces présentes dans la décharge

Espèces	Système de la transition moléculaire	Symbole	Énergie d'Excitation
$N_2$	Second système positif	$(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$	7.35 eV pour $N_2(C^3\Pi_u)$ 11.03 eV pour $N_2(B^3\Pi_g)$
$N_2^+$	Premier système négatif	$(B^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+)$	14.6 eV pour $N_2^+(X^2\Sigma_g^+)$ 18.14 eV pour $N_2^+(B^2\Sigma_g^+)$

## ANNEXE 6 : Constantes utilisées pour le calcul de la température rotationnelle

$\nu_0$  Origine de la branche ou zéro de la ligne

Transition vibrationnelle: (0-0), (0-1), (0-2)

$$\nu = \nu_0 + 2B_{\nu'} + (3B_{\nu'} - B_{\nu''})J + (B_{\nu'} - B_{\nu''})J^2 = R(J)$$

$$\nu = \nu_0 + (B_{\nu'} - B_{\nu''})J + (B_{\nu'} - B_{\nu''})J^2 = Q(J)$$

$$\nu = \nu_0 - (B_{\nu'} + B_{\nu''})J + (B_{\nu'} - B_{\nu''})J^2 = P(J)$$

Les constantes rotationnelles pour calculer  $T_{\text{rot}}$  :

	$\mathbf{B^2\Sigma_u^+}$	$\mathbf{B^2\Sigma_g^+}$
$\nu$	$B_{\nu'}$	$B_{\nu'}$
0	2.073	1.92229
1	2.049	1.9035
2	2.025	1.88422

## ANNEXE 7: Positions des raies du spectre rotationnel de l'azote pour les branches R et P

Tableau 4 : Position des raies du spectre rotationnel de l'azote pour les branches R et P :

Tableau	cm <sup>-1</sup>	nm	cm <sup>-1</sup>	nm
N	R-branche	R-branche	R-branche	P-branche
0	25570.207	391.080		
1	25574.666	391.012	25562.217	391.202
2	25579.420	390.939	25558.675	391.257
3	25584.481	390.862	25555.439	391.306
4	25589.847	390.780	25552.509	391.351
5	25595.484	390.694	25549.885	391.391
6	25601.446	390.603	25547.556	391.427
7	25607.702	390.508	25545.547	391.458
8	25614.287	390.407	25543.789	391.485
9	25621.146	390.303	25542.364	391.506
10	25628.322	390.193	25541.279	391.523
11	25635.809	390.079	25540.501	391.535
12	25643.582	389.961	25539.957	391.543
13	25651.667	389.838	25539.816	391.545
14	25660.050	389.711	25539.957	391.543
15	25668.728	389.579	25540.501	391.535
16	25677.713	389.443	25541.058	391.526
17	25686.998	389.302	25542.093	391.511
18	25696.587	389.157	25543.432	391.490
19	25706.477	389.007	25545.077	391.465
20	25716.664	388.853	25547.029	391.435
21	25727.152	388.694	25549.287	391.400
22	25737.948	388.531	25551.844	391.361
23	25749.025	388.364	25554.717	391.317
24	25760.408	388.193	25561.373	391.215
25	25772.085	388.017	25565.152	391.157
26	25784.060	387.837	25569.247	391.095
27	25796.346	387.652	25573.631	391.028
28	25808.900	387.463	25578.331	390.956
29	25821.778	387.270	25583.330	390.880
30	25834.935	387.073	25588.641	390.798
31			25594.232	390.713
			25600.134	390.623

## ANNEXE 8: Calcul d'incertitudes

Dans cette partie, nous allons développer la façon dont nous avons évalué l'erreur expérimentale pour le calcul de la température rotationnelle. L'expression qui permet de déterminer cette température est directement reliée à l'intensité d'émission des raies rotationnelles liées à la tête de bande du 1<sup>e</sup> système négatif ( $\lambda = 391.4$  nm). Aussi, estimer l'erreur sur la température revient essentiellement, et nous le verrons plus en détail ci-dessous, à estimer celle portant sur la mesure de l'intensité des raies rotationnelles impliquées. Cette température rotationnelle moyenne est évaluée à partir de la pente du graphique de Boltzmann ( $\alpha = hc/kT_{\text{rot}}$ ). Ainsi, la précision de mesure sur la température est donnée par

$$\Delta T_{\text{rot}}/T_{\text{rot}} = \Delta \alpha / \alpha \quad (1)$$

Il suffit d'évaluer correctement la précision avec laquelle est mesurée la pente du graphique, en reportant les valeurs moyennes des intensités des raies rotationnelles avec leurs barres d'erreur totale (erreur totale = erreur aléatoire (évaluée avec les 9 mesures réalisées) + erreur systématique (évaluée notamment pour les premières et les deuxièmes raies du spectre rotationnel considéré)).

L'incertitude dans les mesures expérimentales (classiquement déterminée par le calcul de l'écart type), sont dues le plus souvent à l'opérateur, et, dans notre cas, nous avons déterminé celle-ci avec neuf mesures indépendantes. Quant à l'évaluation de l'erreur systématique, il faut partir des spectres tel qu'enregistrés par notre dispositif optique. En effet, les raies rotationnelles de l'APGD de He ne sont pas suffisamment résolues, notamment la R6 et R8. Il y a en outre, et ce pour les APGD, une erreur significative dans l'estimation des valeurs absolues des intensités puisque la ligne de base, dans chaque cas, mais plus encore pour He, présente une pente importante alors qu'elle devrait être plate. Il est possible de résoudre cette dernière difficulté (estimation des valeurs absolues) en ayant recours à un logiciel qui permette d'ajuster chacune des raies avec un profil gaussien ou lorentzien qui ainsi donnera la valeur la plus proche de la valeur réelle. Par ailleurs, il sera possible d'estimer la convolution de chacune des raies, notamment la R6 et R8. Pour simplifier, nous allons opérer de la façon suivante:

i) les raies rotationnelles, nommément la R6 et R8 pour He convoluent l'une avec l'autre: nous faisons l'approximation que l'incertitude sur les valeurs de leurs intensités respectives est d'environ 5%; en effet, ce que l'une de ces raies perd comme intensité au profit de l'autre par la

convolution de leurs branches, elle le récupère aussi, mais on ignore la proportion exacte donnée d'un côté et reçue de l'autre;

ii) on estime que, en valeur relative, chacune des raies est sous-estimée quant à sa valeur absolue, mais dans une proportion à peu près comparable pour chacune ( $\Delta I/I$  constant pour toutes les raies) si bien que cette erreur peut être négligée.

## I. Cas de l'APGD de He

### 1) Erreur aléatoire

Dans ce cas, on se base sur les 9 mesures indépendantes des valeurs des intensités, avec leur écart type tel que calculé, on obtient alors le graphique ci-dessous.

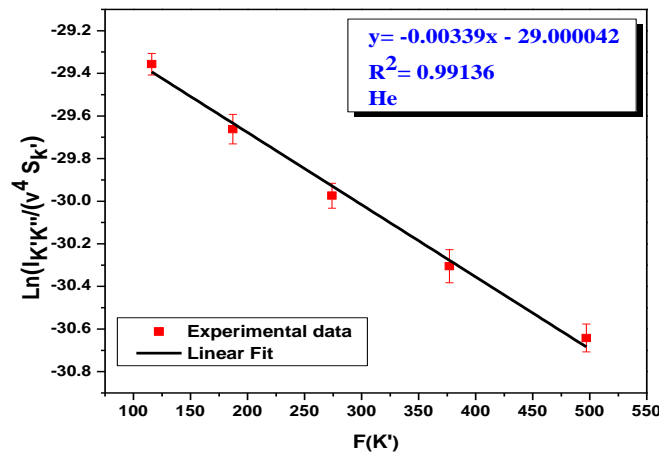


Figure 1 : Ajustement linéaire des points expérimentaux du diagramme de Boltzmann des raies rotationnelles (près du diélectrique) pour l'APGD de He, *pour la seule erreur aléatoire*. La pente de la droite ( $\alpha = hc/kT_{\text{rot}}$ ), permet de remonter à la  $T_{\text{rot}}$ . La précision est d'environ 1%, comme le montre la valeur de  $R^2$ .

L'ajustement linéaire des points expérimentaux donne la valeur la plus probable de la pente  $\alpha$ . Cette valeur de la pente est déterminée avec un coefficient d'ajustement  $R^2$  tel que:

$$1 - R^2 = \Delta\alpha/\alpha]_{\text{aléatoire}} \quad (2)$$

Ce qui permet, à l'évidence, de remonter à la précision avec laquelle est obtenue cette valeur de  $\alpha$ , et par-là à  $\Delta T_{\text{rot}}$  (voir (1)).

Dans ce cas précis,  $R^2 = 0.01$ , alors  $\Delta\alpha/\alpha]_{\text{aléatoire}} = 1\%$ .

## 2) Erreur totale

Calculons maintenant l'erreur totale. Pour ce faire, on suppose que la R6 et R8 sont affectées d'une barre d'erreur de 6% (1% issue de l'erreur aléatoire + 5% de l'erreur systématique<sup>20</sup>).

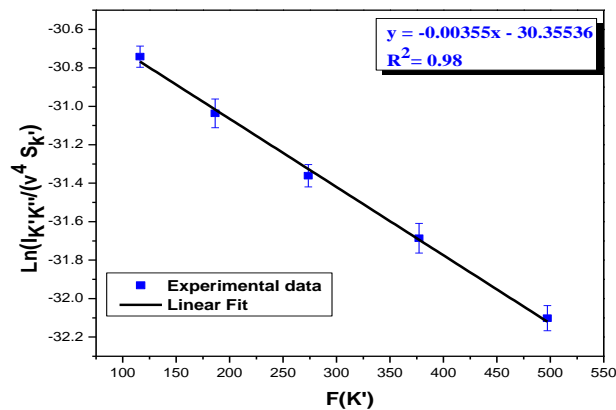


Figure 2 : Ajustement linéaire du diagramme de Boltzmann des raies rotationnelles (les intensités de R6 et R8 sont affectées de 6% ici). Relativement à la Figure 1, on observe une variation de la pente et une baisse dans le coefficient de corrélation,  $R^2$ .

Alors, pour He :  $\Delta\alpha/\alpha = 1 - R^2 = 1 - 0.98 = 0.02$

On a donc près du diélectrique ( $T_{\text{rot}} = 430 \text{ K}$ ) :

$$\Delta T_{\text{rot}}/T_{\text{rot}} = 0.02$$

$$\Delta T_{\text{rot}} = T_{\text{rot}} \times 0.02 = 9 \text{ K}$$

Ainsi, près du diélectrique :

---

<sup>20</sup> L'erreur totale sur la valeur de I,  $\Delta I$ , est déterminée en multipliant l'intensité mesurée par 0.06. Cette valeur affecte la barre d'erreur imputée à ces deux intensités de raies, R6 et R8.



$$T_{\text{rot}} = 430 \pm 9 \text{ K}$$

Le tableau suivant présente l'erreur totale au centre ( $z = 1.5 \text{ mm}$ ) et au voisinage de la pointe ( $z = 3.0 \text{ mm}$ ).

Position axiale	$z = 1.5 \text{ mm}$	$z = 3.0 \text{ mm}$
Coefficient d'ajustement $R^2$	0.97	0.95
Incertitude totale	0.03	0.05
$T_{\text{rot}}$	408 K	450 K
$\Delta T_{\text{rot}}$	12 K	22 K

## II. Cas de l'APGD de Ne

### 1) Erreur aléatoire

Dans ce cas, on se base sur les 9 mesures indépendantes des valeurs des intensités, avec leur écart type tel que calculé, on obtient alors le graphique ci-dessous.

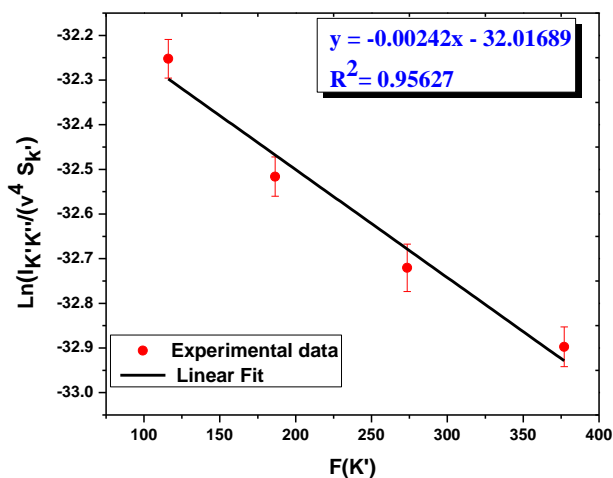


Figure 3. Ajustement linéaire des points expérimentaux du diagramme de Boltzmann des raies rotationnelles (près du diélectrique) pour l'APGD de Ne. On remonte à la  $T_{\text{rot}}$  à partir de la pente ( $\alpha = hc/kT_{\text{rot}}$ ).

De même que précédemment, le coefficient de corrélation permet de remonter à l'incertitude expérimentale :

$$\Delta\alpha/\alpha = 1 - R^2 = 1 - 0.96 = 0.04$$

On a donc près du diélectrique (avec  $T_{\text{rot}} = 590 \text{ K}$ ) :

$$\Delta T_{\text{rot}}/T_{\text{rot}} = 0.04$$

$$\Delta T_{\text{rot}} = T_{\text{rot}} \cdot 0.04 = 24 \text{ K}$$

Finalement :

$$T_{\text{rot}} = 590 \pm 24 \text{ K}$$

Le tableau suivant présente l'erreur totale au centre ( $z = 1.5 \text{ mm}$ ) et vers la pointe ( $z = 3.0 \text{ mm}$ ) :

Position axiale	$z = 1.5 \text{ mm}$	$z = 3.0 \text{ mm}$
Coefficient d'ajustement $R^2$	0.95	0.94
Incertitude totale	0.05	0.06
$T_{\text{rot}}$	660 K	750 K
$\Delta T_{\text{rot}}$	33 K	45 K

Les écarts  $\Delta T_{\text{rot}}$  par rapport à la valeur moyenne sont reportées, sous forme de barres d'erreur, dans les graphiques présentant les variations de  $T_{\text{rot}}$  en fonction de la position axiale  $z$ , pour les APGD de He et de Ne