



TRANSFERTS RADIATIFS DANS LES PLASMAS THERMIQUES

Jean-Gaël Lacombe

► To cite this version:

Jean-Gaël Lacombe. TRANSFERTS RADIATIFS DANS LES PLASMAS THERMIQUES. Matériaux. Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2008. Français. NNT : . tel-00402060

HAL Id: tel-00402060

<https://theses.hal.science/tel-00402060>

Submitted on 6 Jul 2009

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

INSTITUT POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

N° attribué par la bibliothèque

[illegible]

THESE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'Institut polytechnique de Grenoble

Spécialité : « *Energétique Physique* »

préparée au laboratoire Science et Ingénierie des Matériaux et des Procédés

dans le cadre de l'**Ecole Doctorale** « Mécanique et Energétique »

présentée et soutenue publiquement

par

Jean-Gaël Lacombe

le 13 Novembre 2008

TRANSFERTS RADIATIFS DANS LES PLASMAS THERMIQUES

JURY

M. Rémy Jost	, Président
M. Alain Gleizes	, Rapporteur
M. Michel Vardelle	, Rapporteur
M. Anouar Soufiani	, Examineur
M. Christian Trassy	, Examineur
M. Yves Delannoy	, Directeur de thèse

Résumé :

Cette étude porte sur la description numérique des transferts de chaleur par rayonnement dans les plasmas inductifs à pression atmosphérique. On s'est fixé deux types de systèmes comme cadre de l'étude : des torches de faible diamètre et faible puissance (2,5cm, 1kW) servant aux analyses spectrochimiques et des torches de puissance plus grandes dites « procédé » (4cm, 20kW). Ces dernières sont utilisées dans des procédés de purification de silicium par plasma.

La modélisation du rayonnement doit s'inscrire dans des simulations faisant intervenir l'écoulement, la thermique, la chimie et l'induction et doit donc rester relativement légère.

Pour ce faire, deux modèles ont été utilisés. Les premiers calculs utilisent la méthode du Coefficient d'Emission Nette (CEN), largement décrite dans la littérature. Le second modèle, appelé P1, est un modèle spectral et bien adapté aux milieux absorbants. Il est bien plus lourd à mettre en œuvre mais permet de lever les hypothèses les plus restrictives liées au CEN. On a développé une méthode permettant de décrire le spectre complet d'un gaz à l'aide d'un minimum de bandes du spectre afin de ne pas rendre le modèle P1 trop lourd.

Enfin, les modèles développés ont été testés grâce à des mesures de température menées au laboratoire par spectrométrie d'émission optique (OES), d'une part sur les torches d'analyses en argon pur et d'autre part sur une torche procédé fonctionnant en argon puis en argon-oxygène.

Mots clés : plasma thermique, argon, argon-oxygène, torche d'analyse, torche de purification, rayonnement, CEN, P1, OES, ETL, flux radiatifs, regroupement de bandes spectrales.

Abstract:

This work deals with the numerical description of radiative heat transfer in atmospheric pressure inductively coupled plasmas. Two types of systems were of concern during this study: low diameter, low power torches (2,5cm, 1kW) for spectrochemical analysis and power (or process) torches (4cm, 20kW) for silicon plasma purification.

Modeling of radiation has to be implemented in simulations describing flow, thermal, chemistry and induction and must thus not be too heavy.

To do so, two models were used. The first calculations used the Net Emission Coefficient (NEC) method, largely described in literature. The second model, called P1, is spectral and well adapted to absorbing media. It is more CPU demanding but enables one to suppress the most restrictive hypotheses made in the NEC model. A method was developed to treat the whole spectrum of a given gas with minimum number of spectral intervals, in order for the P1 model not to be too heavy.

Finally those models were tested with temperature measurements carried out in the lab. Some were made on analysis torches functioning in pure argon and the others on process torches working in argon or argon-oxygen.

Key words : thermal plasma, argon, argon-oxygen, analysis torch, purification torch, radiation, NEC, P1, OES, LTE, radiative heat fluxes, spectral band grouping.

TABLE DES MATIERES

CHAPITRE I. INTRODUCTION	5
1. Le silicium photovoltaïque	6
2. Le procédé de purification par plasma	7
2.1. Principe de la purification par plasma	7
2.2. Intégration de la purification plasma dans le procédé.	9
3. Les problématiques scientifiques liées à la production de SoG-Si.	9
CHAPITRE II. PRESENTATION DES PLASMAS INDUCTIFS	11
1. Principe de l'ICP	11
1.1. Allumage	11
1.2. Fonctionnement	11
2. Les torches à plasma.	12
2.1. Description des différentes torches ICP	13
2.1.1. Les torches d'analyse spectrochimique	13
2.1.2. Les torches « procédé »	14
2.2. Torchés étudiées au cours de la thèse	15
2.3. Problème lié aux torches ICP : le rendement de couplage	15
3. Physique des plasmas inductifs	16
3.1. La notion plasma thermique	16
3.2. Les hypothèses d'équilibre thermodynamique	18
3.2.1. Equilibre thermodynamique complet (ETC)	18
3.2.2. Equilibre thermodynamique local (ETL)	19
4. Phénomènes radiatifs dans les plasmas inductifs	20
4.1. Equation du transfert radiatif	20
4.2. Phénomènes radiatifs dans un plasma thermique : calcul du spectre	22
4.2.1. Raies du spectre	22
4.2.2. Fond continu du rayonnement	25
5. Méthodes de résolution approchée de l'ETR	26
5.1. Coefficient d'Emission Nette (CEN)	27
5.2. Ordonnées discrètes (DO)	27
5.3. Caractéristiques partielles	28
5.4. Méthode des harmoniques sphériques (P1)	29
5.5. Coefficient moyen d'absorption (CMA)	30
CHAPITRE III. DESCRIPTION DE L'OUTIL NUMERIQUE	32
1. Les différents cas étudiés	32
1.1. Torchés d'analyse	34
1.2. Torche procédé	34
1.3. Calculs en argon-oxygène	34
2. Maillage	35
2.1. Torchés d'analyse	35
2.2. Torchés procédé	35
3. Modèle hydrodynamique et thermique	38

3.1.	Equations du modèle	38
3.2.	Conditions aux limites	39
4.	La turbulence	40
5.	L'électromagnétisme : le module Induc2D.	41
5.1.	Description du module d'induction	41
5.2.	Conditions aux limites	42
6.	La chimie ou le problème de la composition du plasma	45
7.	Les couplages radiatifs	47
7.1.	La méthode CEN	47
7.2.	Le modèle DO	48
7.2.1.	Utilisation du modèle	48
7.2.2.	Conditions aux limites	48
7.3.	Le modèle P1 par bandes	50
CHAPITRE IV.	CALCUL DES PROPRIETES RADIATIVES DE L'ARGON	54
1.	Algorithme de calcul des profils de raie	56
2.	Calcul de la contribution du continuum	58
2.1.	Argon pur	58
2.2.	Mélange argon-oxygène	59
3.	Calcul des coefficients d'émission nette	60
4.	Regroupement des raies et génération des bases de données P1	62
4.1.	$\tau_\lambda \ll 1$: émission volumique	63
4.2.	$\tau_\lambda \gg 1$: équilibre radiatif	63
4.3.	$\tau \approx 1$: regroupement des raies pour le modèle P1	67
4.4.	Bandes du modèle P1 pour le mélange argon-oxygène	74
4.4.1.	Spectre UV d'un mélange 95%Ar, 5%O ₂ molaire	74
4.4.2.	Bandes du modèle P1 dans le visible et l'IR pour un mélange 95%Ar, 5%O ₂ molaire	77
CHAPITRE V.	RESULTATS NUMERIQUES	80
1.	Implémentation des modèles	80
2.	Résultats et discussion	80
2.1.	Torche d'analyse en argon pur	80
2.1.1.	Remarques générales	80
2.1.2.	Etude des transferts radiatifs	83
2.2.	Torche d'analyse avec un mélange Argon-oxygène	87
2.3.	Torche procédé en argon pur	93
2.4.	Torche procédé en argon-oxygène	98
CHAPITRE VI.	MESURE DES PROPRIETES PLASMA PAR SPECTROMETRIE D'EMISSION OPTIQUE (OES)	102
1.	Spectrométrie d'émission.	102
1.1.	Principe des mesures et avantages	102
1.2.	Conversion intensité $\rightarrow$ émissivité : l'inversion d'Abel	103
1.3.	Théorie des transitions radiatives et hypothèses de mesures.	105
1.3.1.	Détermination de la température par mesure de l'intensité absolue des raies	106
1.3.2.	Cas particulier des multiplets	107

1.3.3.	Méthode absolue à partir du fond continu du rayonnement	107
1.3.4.	Méthode basée sur l'intensité relative des raies	108
2.	Dispositifs expérimentaux	109
2.1.	Torche d'analyse	109
2.1.1.	Générateur haute fréquence	109
2.1.2.	Torche	110
2.1.3.	Dispositif d'acquisition	111
2.2.	Torche de purification	112
2.2.1.	Générateur HF et torche	112
2.2.2.	Dispositif d'acquisition	115
3.	Méthodologie et post traitement	115
3.1.	Choix des raies atomiques	116
3.2.	Etalonnage du dispositif	116
3.3.	Traitement des données	118
3.3.1.	Corrections des données expérimentales	119
3.3.2.	Lissage et symétrisation des données	121
3.3.3.	Estimation des incertitudes	123
4.	Résultats et discussion	126
4.1.	Torche d'analyse	126
4.1.1.	Profils de températures pour différentes raies de l'argon	126
4.1.2.	Mesures de températures en fonction de r et z	127
4.2.	Torche procédé	128
4.2.1.	Mesures en argon pur	128
4.2.2.	Mesures en argon-oxygène	130
CHAPITRE VII. CONFRONTATION DES SIMULATIONS AUX EXPERIENCES		134
1.	Torches d'analyse	134
1.1.	Expériences menées au laboratoire	134
1.2.	Expérience de référence de la littérature	136
2.	Torches procédé	140
2.1.	Torche procédé 40mm en argon pur	140
2.2.	Torche procédé 40mm en argon-oxygène	142
CONCLUSION		145
ANNEXE A : PRISE EN COMPTE DU RECOUVREMENT DES RAIES.		148
ANNEXE B : CALCUL DES PARAMETRES SOM ET ΔSIM DU MODELE DES CARACTERISTIQUE PARTIELLES.		151
ANNEXE C : [LACOMBE, 2008]		154
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES		167

Chapitre I. Introduction

La première décharge plasma a été produite à la fin du 19^e siècle par Hittorf. Il s'agissait de plasmas inductifs de faible puissance fonctionnant sous basse pression et qui n'ont pas donné lieu à des applications. Thomson, quelques années plus tard, a fourni l'explication de l'ignition de la décharge par un premier électron libre accéléré par le champ dans la bobine inductrice. A ce moment là, les décharges étaient allumées sous basse pression alors que l'on parvient à présent à déclencher des décharges à des pressions bien plus élevées à partir d'étincelles.

C'est seulement durant la seconde guerre mondiale que l'on a pu créer et maintenir des plasmas inductifs à des pressions proches de la pression atmosphérique et avec des puissances permettant d'envisager des applications [Babat, 1947]. La première torche à plasma inductif utilisant un tube ouvert dans lequel s'écoule un gaz date des années 60 [Reed, 1961]. C'est l'utilisation d'un écoulement hélicoïdal dans le tube, stabilisant le plasma, qui a permis le développement de cette technique. Cette technologie a permis à de nombreuses applications de voir le jour et ce type de torche est encore largement utilisé aujourd'hui.

Les plasmas inductifs (« Inductively Coupled Plasmas » ou ICP) sont utilisés dans des domaines variés. On peut citer en premier lieu l'analyse spectrochimique car cette application a probablement été le moteur du plus d'études sur les plasmas inductifs. [Yang, 1989] et [Barnes, 1975] ont entre autres contribué au développement des techniques de modélisation de ces dispositifs. [Trassy, 1999] et [Michaud, 1983], par exemple, ont travaillé sur les mécanismes de transfert d'énergie vers les analytes (substances à analyser) et sur les techniques de mesures. D'un point de vue plus industriel, on utilise également des torches à plasma inductif pour la synthèse de silice de haute pureté pour les fibres optiques ou pour la fabrication de poudres nanométriques [Dolbec, 2008]. De nombreuses études sont actuellement en cours sur l'utilisation de plasmas inductifs capacitifs ou micro-onde pour détruire les polluants gazeux [Pasquier, 2003]. Les plasmas à pression atmosphériques sont également étudiés en tant que source de lumière pour fabriquer des lampes. Une bonne vue d'ensemble des développements liés aux torches inductives a été donnée par [Dresvin, 1977].

L'étude présentée ici est cependant motivée par une autre application plus récente des plasmas inductifs, même si le travail effectué au cours de la thèse n'est pas spécifique à ce domaine. Il s'agit de la purification par plasma de silicium afin de produire des cellules solaires.

Les problématiques scientifiques liées à ces applications recouvrent de nombreux domaines comme les transferts énergétiques plasma surface dans le cas de dépôts par plasma ou plasma particule pour les analyses spectrochimiques, la chimie hors équilibre thermodynamique ou les transferts de chaleur par rayonnement.

Ainsi, [Bottin, 1999] a étudié les plasmas d'air hors équilibre dans l'optique de la conception de matériaux pour les rentrées atmosphériques. [Pelletier, 2006] a étudié la cinétique chimique de mélanges argon-oxygène sous conditions plasmas. [Tazeem, 1999] a également étudié la cinétique chimique pour des molécules carbonées dans un plasma pour la synthèse de diamant. La détermination des propriétés thermodynamiques et de transport est également une problématique récurrente dans le domaine des plasmas ([Cressault, 2001]).

Le travail présenté ici s'intéresse à la modélisation des transferts radiatifs dans un gaz ionisé. Cette problématique a déjà été abordée dans le cas de molécules diatomiques par [Van der Heijden, 2003] et par [Cressault, 2001] dans le cas de plasmas d'arc contenant des vapeurs métalliques.

Cette diversité de problématiques liées aux plasmas s'explique en partie par la variété des applications industrielles. Cependant, un bon nombre des problématiques sont communes à différentes applications plasma. C'est le cas des transferts radiatifs notamment, qui sont étudiés dans la plupart des plasmas à pression atmosphérique.

Les méthodes et les résultats développés au cours de la thèse peuvent s'appliquer à tout domaine faisant intervenir des plasmas inductifs à pression atmosphérique. Nous les présentons ici dans le contexte particulier du développement d'un procédé de purification de silicium par plasma, pour des applications photovoltaïques.

1. Le silicium photovoltaïque

L'industrie photovoltaïque a connu un essor important et continu depuis les années 1990. La puissance installée en France a ainsi été plus que décuplée en 10 ans [Juquois, 2005]. C'est un des secteurs industriels qui connaît la plus forte croissance en France actuellement. Le prix d'une cellule solaire est en grande partie conditionné par le prix du silicium servant à sa fabrication (~40%).

Traditionnellement approvisionnée en silicium par l'industrie microélectronique, l'industrie du silicium photovoltaïque consomme à présent plus de silicium purifié (en masse) que les fabricants de composants électroniques. La conséquence de ceci est une importante augmentation du prix du silicium purifié et des délais de livraison beaucoup plus longs. Ce problème s'accroît avec la croissance du marché de l'énergie solaire dans le monde.

A long terme, la nécessité d'une filière de production de silicium dédié au photovoltaïque semble évidente. L'objectif d'une telle filière dédiée est la production à des coûts beaucoup plus faibles (35€/kg au lieu de plus de 100€/kg) de silicium de qualité photovoltaïque en grande quantité, par opposition aux procédés de production de silicium de qualité microélectronique pour lesquels une faible masse de silicium permet la réalisation d'une grande quantité de composants.

Il est important de noter tout d'abord que la pureté du silicium requise pour fabriquer des cellules solaires (Solar Grade Silicium SoG-Si) n'est pas la même que celle nécessaire à la fabrication de composants en microélectronique. En effet, la concentration d'impuretés recherchée pour ces derniers est de l'ordre de 10^{-3} ppm (partie par million en masse) alors que des concentrations d'impureté de l'ordre de 1 ppm sont acceptables pour fabriquer des cellules solaires rentables sur le plan économique. Le rendement est bien sûr moindre avec de telles puretés mais le coût de purification devrait être moindre lui aussi. Le Tableau I-1 récapitule les différents types de silicium disponibles sur le marché en fonction de leur concentration en impuretés.

Tableau I-1 : les différents types de silicium utilisés pour le photovoltaïque disponibles sur le marché

Qualité du silicium	Impuretés	Procédé de fabrication (indicatif)	Prix approximatif (€)
MG-Si	~1% en masse	Carbothermie	1
SoG-Si	Qques ppm	A développer (par ex. purification plasma)	15
Silicium microélectronique	Qques 10^{-3} ppm	Attaque acide (HCl), distillation, condensation	100

La problématique de la purification du SoG-Si est également particulière à cette industrie. Les impuretés à supprimer ainsi que celles qui sont acceptables sont propres à la filière des cellules solaires. A partir de matériau de qualité métallurgique (MG-Si), une attention particulière doit être portée aux impuretés de type métallique ainsi qu'aux éléments dopants (bore et phosphore). Le silicium métallurgique (MG-Si) contient typiquement quelques pourcents d'impuretés métalliques et quelques dizaines de ppm de dopants.

Afin d'adapter les filières de production aux besoins particuliers de l'industrie photovoltaïque, de nombreux projets ont vu le jour. On peut citer par exemple le programme du New Energy and Industrial Technology Organisation (NEDO) au Japon¹.

Des études de faisabilité (ARTIST, [Einhaus, 2000]) ont montré que le procédé de purification par plasma développé au laboratoire permettait de produire du SoG-Si à un prix compétitif et donnant de bons rendements pour les cellules en bout de chaîne [Delannoy, 2002]. L'idée soutenant le programme ARTIST ainsi que les développements qui ont suivi (projet Photosil notamment) est de raffiner du silicium métallurgique amélioré (UMG-Si) afin d'atteindre des rendements de cellules de 13% environ pour des prix inférieurs à 20€/kg. Le procédé Photosil est décrit dans le paragraphe suivant.

2. Le procédé de purification par plasma

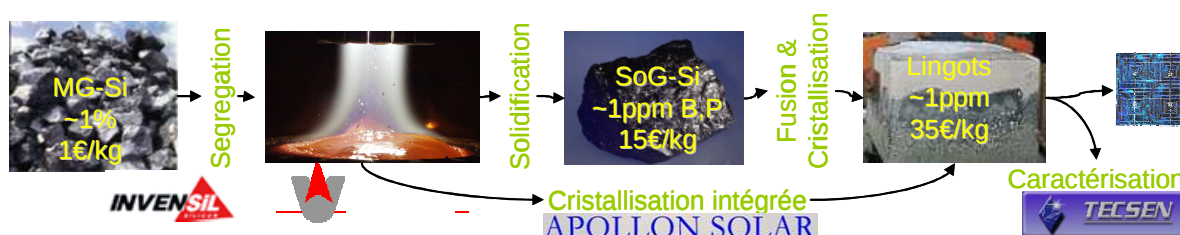


Figure I-1 : les différentes étapes du procédé de production de SoG-Si Photosil.

Le projet Photosil est une collaboration entre les organismes de recherches CNRS, qui possède au laboratoire SIMAP/EPM le savoir-faire lié à la purification plasma du silicium, CEA (maitre d'œuvre du pilote et fabricant de cellules test), et les sociétés PEM-Invensil, fournisseur de MG-Si, et Apollon Solar (développant un procédé de cristallisation en ligne). Ce projet vise à démontrer l'intérêt économique d'un procédé de transformation complet de MG-Si en wafers destinés à la fabrication de cellules. La chaîne de purification contient différentes étapes (Figure I-1) mais s'articule autour de la technique de purification par plasma développée au laboratoire.

2.1. Principe de la purification par plasma

Le principe soutenant cette technique de purification est l'évaporation des impuretés dopantes contenues dans le silicium métallurgique. Cette évaporation se fait par voie chimique et en particulier en formant des composés volatiles avec les impuretés en surfaces du MG-Si. Ce procédé peut être intéressant si on l'applique à du silicium liquide et brassé afin d'assurer le renouvellement des impuretés en surface et si on utilise le plasma afin d'augmenter la quantité d'espèces réactives atteignant la surface du MG-Si. Le schéma de

¹ <http://www.nedo.go.jp/itd/grant-e/index.html>

principe du procédé est représenté sur la Figure I-2. On peut résumer les étapes clé du procédé comme suit :

- Transport des impuretés à travers le bain de silicium vers la surface.
- Apport d'espèces réactives à la surface du bain.
- Contrôle des réactions chimiques en surface (afin d'évaporer les impuretés préférentiellement au silicium).
- Evacuation des produits de réaction depuis la surface.

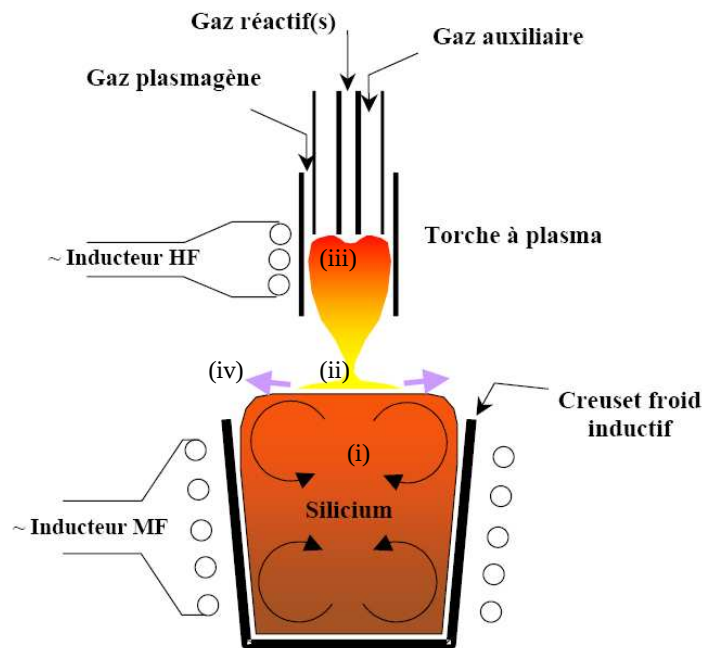


Figure I-2 : schéma de principe de l'étape de purification du silicium par plasma. Tirée de [Pelletier, 2006].

Le silicium est fondu par induction à moyenne fréquence ($\sim 10\text{kHz}$) afin d'éviter les interactions entre les deux champs (HF et MF). L'induction dans le silicium permet également le brassage du liquide. Le silicium liquide est contenu dans un creuset froid dans lequel se trouvent des plaques de silice couvrant les parois. L'intérêt de cette solution est d'éviter la pollution du silicium par les parois du creuset.

La torche à plasma utilisée fonctionne à haute fréquence (quelques MHz) et permet d'envoyer les espèces réactives en surface du silicium. Différents gaz réactifs peuvent être utilisés en fonction de la réaction chimique recherchée. Dans le cadre de Photosil, l'utilisation de MG-Si implique l'utilisation de H_2 et O_2 . Les raisons de ce choix sont exposées dans la partie suivante.

L'étude des temps caractéristiques liés à chacun phénomènes ci-dessus a permis de cibler les étapes à optimiser. [Alemany, 2000], [Delannoy, 2002] ont montré que le brassage du silicium n'était pas un facteur limitant. En revanche, la chimie en surface du plasma pose le plus de problèmes. La diffusion des réactifs dans la couche limite au dessus du bain pourrait être l'étape la plus lente. La chimie en surface est d'autant plus difficile à contrôler qu'un trop fort taux d'oxygène en surface conduit à la formation d'une croûte de silice qui bloque l'évaporation des impuretés (Figure I-3) et leur renouvellement à la surface du bain.

Pour fixer les idées, on peut préciser que ce type de procédé fonctionne avec des torches de 40mm ou plus pour des puissances induites de plusieurs dizaines de kW, que ce soit dans le bain de silicium ou dans le plasma. Quelques dizaines de kilos de silicium peuvent être purifiées simultanément dans la version industrielle de ce procédé, installée à Chambéry.

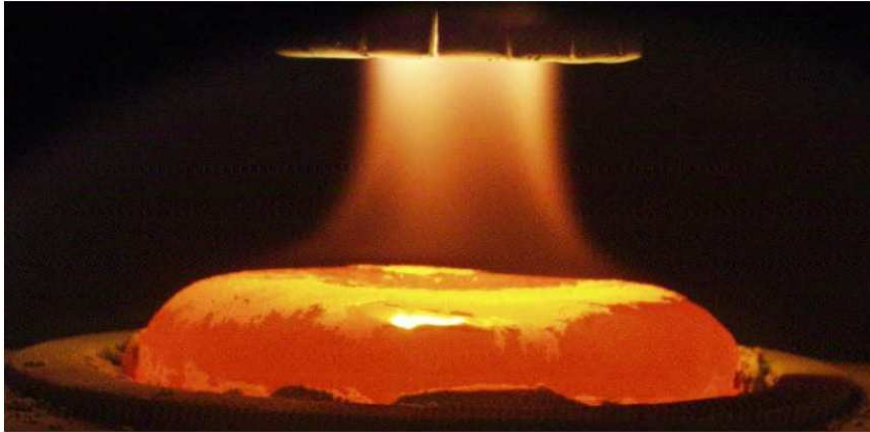


Figure I-3: formation d'une croûte de SiO_2 à la surface du bain de silicium.

2.2. Intégration de la purification plasma dans le procédé.

Avant de purifier le silicium à l'aide du plasma inductif (ICP), le MG-Si subit une première étape de purification visant à supprimer certains types de polluants. Par ségrégation, beaucoup d'impuretés peuvent être traitées et notamment les métalliques. On peut réduire le problème de la purification du MG-Si à un petit nombre d'éléments présentant un fort coefficient de ségrégation : C, O, Ca, P et B. Le matériau fourni par PEM-Invensil contient de quelques ppm à 0,1% de ces différents corps. La plupart de ces impuretés sont susceptibles de former des composés volatiles en présence de radicaux O et H, ce qui explique le choix des gaz réactifs injectés dans le plasma. Afin d'optimiser cet aspect du procédé, une thèse est en cours au laboratoire².

Après purification, le silicium devrait être, à terme, directement coulé en lingots susceptibles d'être découpés pour donner des wafers. Le schéma du procédé Photosil dans son ensemble est donné sur la Figure I-2.

L'évaporation des impuretés qui ne ségrègent pas est donc une étape clé de la méthode de production de SoG-Si exposée jusqu'ici.

3. *Les problématiques scientifiques liées à la production de SoG-Si.*

Le développement et l'optimisation du procédé Photosil a soulevé un certain nombre de questions scientifiques. La ségrégation des impuretés métalliques en amont de l'étape de purification a par exemple été étudiée par [Einhaus, 2006]. Par ailleurs la compréhension de la chimie en surface du silicium liquide nécessite des études expérimentales aussi bien que numériques. Ainsi, pour connaître la nature des réactions chimiques à l'interface, il est nécessaire de savoir quelles espèces réactives atteignent le bain de silicium et en quelle quantité. Ces phénomènes ont toutes les chances d'être sensibles aux paramètres du plasma comme la température et le taux d'ionisation. Cependant, la détermination purement expérimentale de ces paramètres est difficile en raison des problèmes liés à l'instrumentation des réacteurs de purification par plasma. Une autre limite des études purement expérimentales sur ce type d'installation est la transposition des résultats obtenus aux réacteurs axés sur la

² Travail de thèse conduit à SIMAP/EPM par Julien Degoulange.

production plutôt que sur l'étude scientifique. La solution à ce type de problème réside en partie dans la modélisation des phénomènes principaux ayant lieu dans le réacteur de purification. Ce type de modélisation peut compléter les résultats expérimentaux et permet de les extrapoler à des dispositifs qui ne sont pas nécessairement instrumentés.

Un effort a donc été entrepris dans cette direction. Une attention particulière a été apportée à la chimie du plasma [Pelletier 2006] afin de déterminer les concentrations des réactifs ainsi que leur répartition dans le réacteur de purification. Scientifiquement cela pose le problème de la cinétique chimique et de la démixtion des espèces. L'effet du rayonnement sur la chimie de purification est également intéressant à étudier, en tant que mécanisme de refroidissement du plasma et donc de modification de sa composition, voire en tant que facteur influençant directement les réactions par des mécanismes photochimiques. Ces problèmes sont à l'origine de la thèse présentée ici. Ce travail a pour objectif la description par des moyens numériques et expérimentaux des mécanismes de transfert radiatifs dans un plasma thermique d'argon contenant éventuellement des espèces réactives. On cherche à quantifier les transferts radiatifs dans les torches plasmas utilisées pour la purification. Cela nécessite l'utilisation de modèles de rayonnements que l'on tente de valider par des études expérimentales.

Afin de développer un certain savoir-faire sur le traitement des transferts radiatifs dans un plasma, on a d'abord étudié le cas de l'argon pur. L'argon en lui-même ne permet pas la purification mais c'est le gaz choisi pour le transport des espèces réactives issues de la dissociation d' O_2 et H_2 . On a donc réalisé une première étude semi-empirique sur des plasmas d'argon pur afin de mettre au point une méthode et un modèle satisfaisants. Cette démarche a permis de traiter de la même manière des plasmas d'argon- O_2 , plus proches des conditions normales de purification. Ici aussi, l'étude porte à la fois sur des calculs et des mesures.

Si la purification du silicium par plasma a motivé cette thèse, il est important de noter que les méthodes et les modèles développés au cours de cette étude ne sont pas limités à ce champ d'applications. Comme on l'a dit précédemment, le problème des transferts radiatifs est récurrent dans bon nombre d'applications plasmas à pression atmosphérique. Si la composition du gaz change d'une application à l'autre, la façon de décrire les transferts radiatifs peut être transposée d'un procédé à un autre.

La démarche pour exposer ces travaux est donc la suivante. D'abord, une introduction aux plasmas inductifs à pression atmosphérique ainsi que la description des hypothèses généralement admises pour le décrire. Cette description inclura également une présentation des mécanismes de transfert radiatifs et un état de l'art des modèles de rayonnement dans les gaz ionisés.

Le chapitre suivant s'attachera à présenter les méthodes numériques utilisées pour simuler les phénomènes couplés intervenant dans un plasma thermique : écoulement des gaz, turbulence, induction électromagnétique, chimie, calcul des propriétés de transport. Le cas des mélanges Ar- O_2 sera alors évoqué pour ce qui est de la chimie et des propriétés de transport.

Les méthodes de calcul des propriétés radiatives d'un plasma de composition donnée seront ensuite décrites avant de montrer leur intégration dans une méthode de résolution de l'équation du transfert radiatif permettant d'obtenir les flux radiatifs au sein du plasma. Une méthode originale de découpage spectral a été développée pour ce besoin.

La suite de la thèse présente la validation des calculs obtenus de cette manière. Les méthodes expérimentales seront donc décrites avant de confronter les résultats obtenus aux calculs réalisés dans le cas de l'argon pur, puis dans le cas de mélange Ar- O_2 .

Chapitre II. Présentation des plasmas inductifs

1. Principe de l'ICP

1.1. Allumage

Un plasma inductif s'allume selon un principe relativement simple. On accélère une charge libre initiale à l'aide d'un champ électrique. Si la charge est suffisamment accélérée, elle peut, lors d'une collision avec un atome du gaz, créer une nouvelle charge qui sera à son tour accélérée. Une avalanche est ainsi générée qui permet l'allumage du plasma.



Le symbole * désigne l'énergie cinétique de l'électron accéléré par le champ. Dans le cas de l'argon, le niveau d'ionisation est situé 15,75eV au dessus du niveau fondamental de l'atome. Dans un plasma à pression atmosphérique, les collisions sont trop nombreuses pour que les électrons atteignent de telles énergies. L'ionisation est en fait réalisée par étape. Les atomes d'argon sont d'abord excités par les électrons jusqu'aux premiers niveaux, qui sont métastables (11,55eV et 11,72eV). Ces niveaux ne se dés excitent pas spontanément par rayonnement et ils peuvent être stables assez longtemps pour que l'atome excité subisse une nouvelle collision avec un électron :



On parle d'ionisation en échelle. Ce type de mécanisme est caractéristique des gaz rares. Le problème principal lié à l'allumage du plasma est d'accélérer suffisamment la charge initiale pour enclencher l'avalanche. Pour cette raison, les ICPs sont parfois allumés à basse pression pour diminuer la fréquence de collisions ou avec une étincelle. On peut aussi utiliser une pointe conductrice qui augmente localement le champ (effet de pointe) jusqu'à que les électrons soient suffisamment énergétiques.

1.2. Fonctionnement

Une fois allumé, un ICP fonctionne selon le principe du transformateur. L'inducteur joue le rôle de circuit primaire tandis que le gaz ionisé sert de circuit secondaire. Utiliser un courant alternatif dans l'inducteur permet d'accélérer les électrons libres selon des trajectoires circulaires, créant ainsi des boucles de courant.

La création d'un plasma nécessite donc la présence de charges dans le gaz ainsi que leur accélération. Cette dernière contrainte impose notamment la fréquence du courant alternatif utilisé. En toute rigueur, un champ alternatif accélère à la fois les ions et les électrons. A très haute fréquence cependant, l'inertie des ions empêche leur accélération. Dans les plasmas ICP RF, on ne va donc accélérer que les électrons. La fréquence (ou pulsation ω) de coupure pour une particule chargée donnée est la fréquence en deçà de laquelle les charges peuvent être accélérées :

$$\omega = \sqrt{\frac{e^2 n_0}{\epsilon_0 m}} \quad \text{II. 3}$$

Avec e la charge, n_0 la densité de charge, ϵ_0 la permittivité du vide et m la masse de la particule chargée. Si la fréquence du champ est grande devant ω , alors les charges ne sont

plus excitées par le champ. Cette fréquence est nettement supérieure pour les électrons du fait de leur masse beaucoup plus faible.

Les plasmas inductifs étudiés ici fonctionnent à des fréquences de l'ordre du Mhz ou de la dizaine de MHz. Cela correspond à l'excitation des électrons par le champ. Dans ce type d'ICP, les ions et les neutres sont excités (et donc chauffés) indirectement par les collisions entre les électrons et les particules lourdes.

La zone où la puissance est transférée au plasma est souvent appelée zone de couplage. Elle représente en fait l'épaisseur de peau électromagnétique δ au-delà de laquelle le champ est écranté par le plasma. Plus la fréquence d'induction est élevée, plus cette zone est fine :

$$\delta = \sqrt{\frac{2}{\mu\sigma\omega}} \quad \text{II. 4}$$

Avec μ la perméabilité magnétique, σ la conductivité électrique et ω la pulsation d'induction. La puissance volumique P_{Joule} transférée par effet Joule au sein du plasma par le champ est donnée par :

$$P_{\text{Joule}} = \sigma E^2 \quad \text{II. 5}$$

Avec E l'intensité du champ électrique.

Il n'y a donc pas de chauffage du plasma par induction en dehors de la zone de couplage.

2. Les torches à plasma.

Le but de cette étude est de déterminer les flux radiatifs et leur influence sur la thermique globale du procédé. Une attention particulière est donc portée à la torche à plasma et à la production du plasma inductif (ICP).

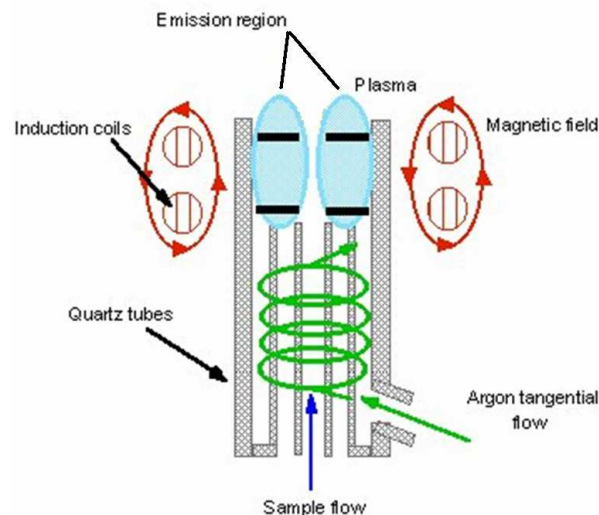


Figure II-1 : schéma d'une torche à injection axiale.
D'après [Pelletier, 2006].

Les torches utilisées au cours de cette sont dites à injection axiale. Le gaz s'écoule dans un tube ouvert autour duquel est positionné l'inducteur (Figure II-1). La torche en elle-même est constituée de trois tubes concentriques dans lesquels trois débits peuvent être ajustés. Le débit extérieur, aussi appelé plasmagène est souvent le plus important. Il permet entre autres de protéger le tube extérieur de la chaleur en maintenant une couche de gaz froid autour de la

zone plasma. L'importance de ce gainage dépend du flux de chaleur transféré par le plasma à l'écoulement extérieur plus froid.

Des études [Reed, 1961], ont montré que l'injection tangentielle du gaz dans le tube extérieur stabilisait la flamme, même si l'on peut obtenir des plasmas stables sans cette technique (Figure II-2, droite). Le débit intermédiaire est dit auxiliaire et l'écoulement central est appelé débit injecteur. Les torches ICP sont utilisées dans de nombreuses applications et de nombreuses variantes de cette configuration ont été amenées à voir le jour. Deux variantes de ces dispositifs ont été utilisées au cours de la thèse et sont décrites ci-dessous

2.1. Description des différentes torches ICP

2.1.1. Les torches d'analyse spectrochimique

Parmi les systèmes à plasma inductifs, le domaine de l'analyse chimique est probablement le plus étudié depuis de nombreuses années [Trassy, 1999], [Regt, 1995], [Devoto, 1978], [Behringer, 1976].

En injectant un composé dans le plasma, il est possible de le décomposer en atomes qui sont ensuite excités. On parle d'analyte. L'analyte se désexcite spontanément en émettant de la lumière. En réalisant des mesures spectrométriques sur le plasma contenant le composé à analyser, on peut en déterminer la composition car les longueurs d'onde auxquelles se produisent les désexcitations sont caractéristiques d'un élément. Une grande partie du savoir-faire développé sur les torches ICP provient de ce type d'étude mais peut être appliqué à différents types de plasmas et/ou de configurations. Par exemple, si l'on injecte un analyte très bien caractérisé dans le plasma, il est possible de déterminer la température et le taux d'ionisation. A l'inverse, en utilisant un plasma dont les propriétés sont relativement bien connues, il est possible de déterminer les espèces présentes (et leur quantité) dans un échantillon inconnu. Cette démarche est la base de l'analyse spectrochimique.

Les torches d'analyse ne requièrent en général pas de fortes puissances puisqu'il est possible de maintenir un plasma d'analyse avec environ 1kW électrique et des torches de 10 à 15mm de rayon. Les tubes confinant le gaz sont souvent en quartz dans les applications d'analyse spectrochimique en raison de la transparence de ce dernier dans le visible. Le plus souvent ces tubes n'ont pas besoin d'être refroidis car les flux de chaleur imposés par le plasma sont suffisamment faibles. Cependant, un mauvais réglage de la torche peut amener le plasma à se « coller » à la paroi en quartz, causant la détérioration rapide des tubes (Figure II-2, à gauche). En général, il est tout de même possible d'affiner les réglages de la torche avec le plasma allumé.

La torche représentée sur la Figure II-2 fonctionne à une fréquence de 27,4MHz, ce qui correspond à une épaisseur de l'ordre du mm pour la zone de couplage. La forme du plasma obtenu est très sensible à l'alignement des tubes. En revanche, les plasmas produits dans les torches d'analyses sont en général très stables dans le temps une fois que la torche est bien réglée.

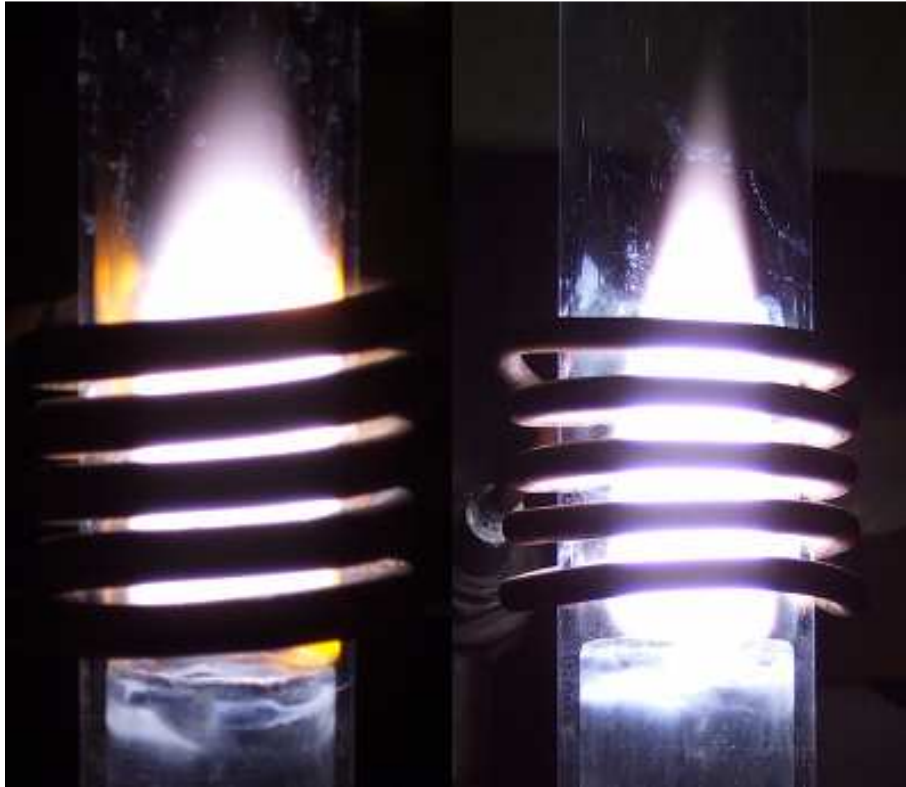


Figure II-2: plasma collé à la paroi (gauche) ou en fonctionnement normal (droite) dans une torche d'analyse.

2.1.2. Les torches « procédé »

Dans le cadre du projet Photosil, les torches utilisées sont plus grandes (20 à 24mm de rayon) et consomment de bien plus grandes puissances. La torche est très comparable à une torche d'analyse mais le procédé vise à purifier d'importantes quantités de silicium, ce qui explique ce changement d'échelle.

Les torches de purification sont du même type que celles dédiées à l'analyse chimique (Figure II-2). L'utilisation de fortes puissances électriques impose cependant certaines modifications. Ainsi, les flux de chaleur entre le plasma et les parois de la torche sont trop élevés pour permettre l'utilisation de tubes en quartz, surtout si le plasma n'est pas parfaitement confiné au centre de l'écoulement (comme c'est le cas sur la Figure II-2, à gauche). Le tube extérieur est en fait une cage froide en cuivre refroidie à l'eau. Il est par conséquent très difficile de réaliser des mesures de spectrométries dans la zone chaude du plasma avec ce type de torche. De plus, la mise en œuvre pratique de ce type de torche est plus longue car les réglages doivent être faits avant l'allumage du plasma.

L'injecteur est en cuivre refroidi à l'eau également. La présence de conducteurs autres que le plasma dans la torche pose à son tour quelques problèmes. Le champ magnétique induit transfère une partie de sa puissance dans ces conducteurs. Une conséquence de cela est que l'évaluation du rendement de couplage des torches de purification est bien plus difficile. Une mesure de l'augmentation de température de l'eau de refroidissement ne permet pas de distinguer la puissance joule dissipée dans les parois, par le courant induit dans le cuivre, et celle fournie par le plasma aux parois, par convection et rayonnement.

La caractérisation du plasma étant plus délicate pour les torches de forte puissance, il est compréhensible que ces torches soient moins étudiées, du point de vue expérimental que les torches d'analyses avec des tubes en quartz transparents, isolants et non refroidis.

2.2. Torches étudiées au cours de la thèse

L'étude des transferts radiatifs dans les plasmas inductifs présentée ici est d'abord basée sur la modélisation. Cependant, les moyens disponibles au laboratoire ont permis une étape de validation expérimentale du code. On a choisi de travailler sur une torche d'analyse dans un premier temps car l'instrumentation de ce type d'installation est plus facile et bien maîtrisée. Les expériences sont reproduites numériquement pour valider les codes avant de les extrapoler à des dispositifs de plus grande puissance sur lesquelles les mesures ne sont pas toujours faciles ou possibles.

Par ailleurs, dans les plasmas de faible puissance, l'influence des modèles de rayonnement est faible ([Dixon, 2004], [Barnes, 1975]). Les études expérimentales sur les torches d'analyse se restreindront donc à la validation du code dans son ensemble (turbulence, induction, etc...). Une étude expérimentale sur la torche de 40mm présente au laboratoire sera également présentée mais dans un but légèrement différent. L'intérêt est de se placer dans des cas où les transferts radiatifs sont prépondérants afin de valider les modèles de rayonnement en particulier.

Les différents dispositifs utilisés au cours de cette étude sont présentés dans le Tableau II-1.

Tableau II-1 : Descriptif des torches étudiées au cours de la thèse.

	Torche d'analyse	Torche procédé	Torche pilote industriel
Diamètre (mm)	27	40	48
Débit total (L/min)	10	100	200
Puissance induite typique (kW)	1	20	50
Type d'étude	Expérimentale & numérique	Expérimentale & numérique	Numérique

Certains dispositifs expérimentaux décrits dans la littérature ([Michaud, 1983], [Yang, 1989], [Huang, 1992], [Regt, 1995]) seront également simulés afin de donner un champ d'applications plus large aux modèles développés au cours de la thèse. Par exemple, [Regt, 1995] a publié des mesures faites sur des torches d'analyses fonctionnant à 100MHz au lieu de 27,4MHz qu'il sera intéressant de reproduire numériquement.

De manière générale les torches d'analyses sont bien décrites dans la littérature, aussi bien du point de vue expérimental que numérique [Yang, 1989], [Barnes, 1975, 1981], [Alder, 1980], [Kornblum, 1977], [Mermet, 1975], [Huang, 1992, 1997]. En revanche, pour les torches de plus grandes dimensions et puissances, on trouve surtout des études numériques, par exemple pour la fabrication de nano-poudres par plasma [Xue, 2001, 2002], [Mostaghimi, 1984, 1985, 1990]. [Pelletier, 2006] a également réalisé une étude numérique de la cinétique chimique dans les torches de fortes puissance utilisées pour la purification de silicium.

2.3. Problème lié aux torches ICP : le rendement de couplage

Dans l'optique de validation des modèles numériques utilisés au cours de cette étude, un problème important se pose pour déterminer la puissance induite à appliquer dans les modèles. C'est un paramètre important pour la modélisation, et expérimentalement, on ne connaît en général que la puissance électrique fournie par le générateur, qui comporte un

étage en courant continu où cette puissance est facile à mesurer. A l'aval, un oscillateur à triode(s) intégré au générateur peut dissiper une partie de cette puissance (faible part si les triodes fonctionnent en mode de commutation, mesurable si elles sont refroidies à l'eau). La puissance sortant du générateur permet bien sûr de maintenir le plasma par induction mais une partie est dissipée par effet Joule dans les éléments conducteurs du système. Il s'agit principalement de l'inducteur lui-même pour les torches d'analyse et de l'inducteur, de la cage froide et de l'injecteur en cuivre pour les torches procédé. En refroidissant ces éléments et en mesurant l'élévation de température de l'eau on peut déterminer la puissance fournie à ces éléments conducteurs. Cependant les éléments conducteurs peuvent être chauffés par le rayonnement émis par le plasma ou par convection dans le cas de la cage froide et de l'injecteur pour les torches procédé. Dans ce cas la puissance a bien été transmise au plasma mais est finalement absorbée par l'eau de refroidissement, d'où une forte incertitude sur le rendement de couplage.

Les études publiées sur ce problème estiment le rendement de couplage dans une torche procédé entre 10% et 50% [Soric, 2006]. Ce chiffre est très probablement plus élevé dans une torche d'analyse car il y a moins d'éléments susceptibles de dissiper la puissance fournie par l'inducteur.

3. Physique des plasmas inductifs

L'optimisation du procédé de purification requiert une connaissance poussée des conditions physiques en sortie de torche. De nombreux travaux ont été publiés, tant sur les mesures de ces paramètres physiques [Regt, 1995], [Trassy, 1999], [Huang, 1992], que sur la modélisation de ces phénomènes [Boulos, 1980], [Mostaghimi, 1985, 1990], [Pelletier, 2006]. Une hypothèse relativement fréquente dans ce type de travaux est celle de l'Equilibre Thermodynamique Local (ETL). Cette hypothèse suppose un équilibre thermique et chimique de toutes les particules entre elles en tout point du plasma. De plus amples précisions seront données plus loin. Il faut noter que certains phénomènes ne sont pas forcément bien décrits dans ces conditions. Une étude a été réalisée au laboratoire sur la cinétique chimique dans le réacteur de purification plasma [Pelletier, 2006]. Celle-ci met en évidence la différence de composition du plasma selon que l'on suppose l'équilibre chimique ou non.

Pour le calcul des transferts par rayonnement, l'hypothèse de l'ETL sera mise en défaut de la même manière, un plasma se comportant assez différemment d'un corps noir pour ce qui est du rayonnement. L'étude présente s'attachera en particulier à évaluer l'influence des transferts radiatifs (et donc du déséquilibre radiatif) sur l'équilibre thermique du plasma.

Les études ont néanmoins montré qu'un certain nombre de paramètres physiques peuvent être calculés avec une bonne précision dans l'hypothèse de l'ETL. C'est le cas des champs de vitesse et de température ainsi que des transferts de masses et d'énergie par convection et conduction [Pateyron, 2005]. Les propriétés de transport peuvent être calculées facilement dans l'hypothèse de l'ETL comme une fonction de la température. Les résultats obtenus de cette manière sont satisfaisants dans certaines configurations particulières [Kannappan, 1977], [Mostaghimi, 1987], [Pelletier, 2006].

3.1. La notion plasma thermique

On parle souvent de plasmas thermiques, par opposition aux plasmas « froids ». Cette distinction peut se ramener à la notion d'énergie cinétique moyenne des particules. Pour simplifier, on qualifie de thermique un plasma où toutes les particules ont la même énergie

cinétique moyenne (la même température). A l'inverse, on parle de plasma froid quand les électrons plus légers ont une énergie cinétique moyenne supérieure à celle des particules lourdes (ions et atomes). Le terme « froid » désigne le fait que les particules lourdes, dans un tel plasma, ont une énergie très proche de celle atteinte à température ambiante ; tandis que les électrons peuvent avoir une énergie correspondant à 10000K ou plus. Cependant, on obtient en général des plasmas froids en travaillant à basse pression, et le terme "froid" peut donc être pris comme une description de la pression...

La Figure II-3 montre les mécanismes de transfert d'énergie dans un plasma inductif.

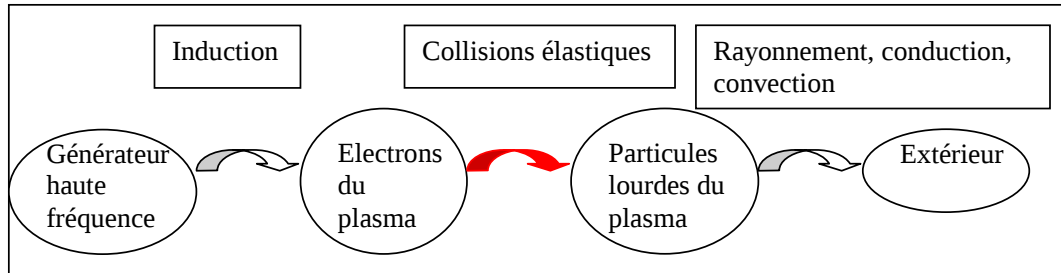


Figure II-3 : mécanismes de transfert d'énergie dans les plasmas inductifs entre le générateur et le gaz.

On passe d'un plasma froid à un plasma thermique en fonction de l'intensité des transferts d'énergie par collisions élastiques entre les électrons et les particules lourdes. Un électron étant 2000 fois plus léger qu'un nucléon (proton ou neutron), l'énergie transférée en moyenne au cours d'une collision électron-lourd est très faible :

$$\left\langle \frac{\Delta E_c}{E_c} \right\rangle = \frac{2m_e}{M} < 10^{-3} \quad \text{II. 6}$$

Les électrons étant excités par le champ, de nombreuses collisions sont nécessaires pour amener l'énergie cinétique moyenne des lourds au niveau de celle des électrons. Si les collisions sont suffisamment nombreuses, on parlera de plasma thermique ou collisionnel. C'est le plus souvent le cas à pression atmosphérique, en particulier pour les plasmas étudiés au cours de la thèse. Si le plasma est produit à basse pression la fréquence de collision sera trop faible et on ne pourra plus définir la température de manière unique et on parlera de plasma froid.

Dans un plasma d'argon à pression atmosphérique, la fréquence de collision électronique est de l'ordre de quelques GHz, par conséquent, un électron va subir en moyenne quelques milliers de collisions au cours d'une alternance du champ, ce qui permet de supposer que la différence d'énergie entre les lourds et les électrons est très faible. Cette hypothèse doit être considérée avec précaution. En effet des calculs de torche ICP de forte puissance utilisant deux équations d'énergie (une pour les lourds et une pour les électrons) ont permis de mettre en évidence des écarts d'énergie correspondant à quelques centaines de K entre les différentes particules dans les zones de champ intense ([Mostaghimi, 1987]).

L'étude des plasmas thermiques ou collisionnels permet de faire quelques hypothèses supplémentaires que nous allons discuter dans la partie suivante.

3.2. Les hypothèses d'équilibre thermodynamique

3.2.1. Equilibre thermodynamique complet (ETC)

Un plasma à l'équilibre thermodynamique complet est une vue de l'esprit, mais le concept est utile pour fixer les idées. Cette hypothèse implique un plasma homogène uniforme. Toutes les particules doivent avoir la même énergie cinétique moyenne et donc la température peut être définie de manière unique dans un plasma à l'ETC.

Si l'on s'intéresse plus en détail aux mécanismes se produisant au sein du plasma, d'autres conditions apparaissent pour obtenir l'ETC :

- Processus réversibles à l'échelle microscopique.
- Distribution maxwellienne des vitesses des particules :

$$n(v) = 4\pi n_0 v^2 \left(\frac{m}{2\pi k_B T} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{mv^2}{k_B T}\right) \quad \text{II. 7}$$

Avec $n(v).dv$ la densité de particules ayant une vitesse égale à v (à dv près), n_0 la densité totale de particules, m leur masse, T la température et k_B la constante de Boltzmann. Ce type de distribution de vitesse est une conséquence de l'hypothèse de plasma collisionnel. Elle apparaît lorsque les chocs entre particules sont le mécanisme principal de transfert d'énergie.

- Densité d'espèces excitées selon une distribution de Boltzmann

$$n_u = n_0 \frac{g_u}{Q(T)} \exp\left(-\frac{E_u}{k_B T}\right) \quad \text{II. 8}$$

n_u étant la densité d'atomes dans l'état excité u , défini par son énergie E_u et sa dégénérescence g_u . $Q(T)$ est la fonction de partition de l'atome (obtenue par somme des $g_u \cdot \exp(-E_u/k_B T)$ sur tous les états excités possibles). L'hypothèse principale amenant à la distribution de Boltzmann des états excités est que la population de ces derniers est gouvernée par les collisions. Cela signifie en particulier dans le cadre de cette étude que les variations de population des états par absorption ou émission de photons sont faibles devant celles dues aux collisions entre particules.

- Les concentrations chimiques à l'ETC ne sont fonction que de la température et de la composition atomique du plasma. Cela revient à supposer que les réactions chimiques sont à l'équilibre. En admettant cela, et en l'appliquant à la réaction d'ionisation d'un plasma d'Argon pur (II. 2, II. 9) on peut obtenir le taux d'ionisation d'une espèce dans un plasma à partir de l'équation de Saha :

$$\frac{n_i n_e}{n_n} = 2 \frac{Q_i}{Q_e} \left(\frac{2\pi m_e k_B T}{h^2} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{E_i}{k_B T}\right) \quad \text{II. 9}$$

Les suffixes i , n et e désignent respectivement les ions, les neutres et les électrons. h est la constante de Planck. [Griem, 1974] a montré qu'en présence d'électrons libres, la valeur de l'énergie d'ionisation d'un atome devait être abaissée, on parle l'abaissement du potentiel d'ionisation, noté δE_i . L'équation précédente (II. 9) doit donc être corrigée comme suit dans un gaz ionisé :

$$\frac{n_i n_e}{n_n} = 2 \frac{Q_i}{Q_e} \left(\frac{2\pi m_e k_B T}{h^2} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{E_i - \delta E_i}{k_B T}\right) \quad \text{II. 10}$$

Pour un plasma d'argon à 10000K, on trouve des valeurs de δE_i de l'ordre de 0,2eV à comparer à l'énergie d'ionisation qui est de 15,75eV pour l'argon.

- Le rayonnement au sein du plasma à l'ETC est celui d'un corps noir et peut donc être décrit par la loi de Planck :

$$B_{\lambda 0} = \frac{2hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{\exp\left(\frac{hc}{\lambda k_B T}\right) - 1} \quad \text{II. 11}$$

Avec $B_{\lambda 0}$ l'intensité rayonnée par un corps noir à la longueur d'onde λ et c la vitesse de la lumière.

Toutes les conditions d'obtention de l'ETC peuvent se résumer en une seule. Chaque mécanisme se produisant dans le plasma doit être réversible en équilibre avec son processus inverse (émission-absorption de photons, ionisation- recombinaison des atomes, etc...).

A l'ETC, le plasma peut être complètement décrit à partir de sa composition³ et de la valeur de la pression et de la température. Les plasmas étudiés ici sont fortement inhomogènes et cette description ne convient plus. Par ailleurs, pour décrire les transferts radiatifs, on ne peut pas représenter le plasma comme un corps noir pour toutes les longueurs d'onde.

3.2.2. Equilibre thermodynamique local (ETL)

L'hypothèse de l'ETL permet de supposer que certains équilibres définis à l'ETC vont être perturbés alors que d'autres restent valides en chaque point (mais avec des valeurs différentes d'un point à l'autre). Par exemple, lorsqu'un photon sort du plasma, il ne peut pas y avoir d'absorption pour maintenir l'équilibre entre les processus inverses et on ne pourra plus décrire l'intensité radiative dans le plasma avec la fonction de Planck.

[Boulos, 1994] présente l'état d'ETL pour un plasma optiquement mince comme semblable à l'ETC mis à part l'intensité radiative dans le plasma qui diffère de celle d'un corps noir. Toutes les autres propriétés du plasma doivent pouvoir se ramener à une fonction de la température.

L'utilisation de l'ETL nécessite alors de vérifier que les autres équilibres ne sont pas perturbés par le déséquilibre radiatif. En particulier, la distribution de Boltzmann des états excités peut être faussée par l'émission de photons.

L'hypothèse de l'ETL permet de calculer simplement les propriétés de transport en fonction de la température. C'est une des raisons principales qui font que cette hypothèse est largement utilisée.

Pour les plasmas étudiés au cours de la thèse, une étude a été faite pour déterminer l'écart à l'équilibre causé par la cinétique chimique ([Pelletier, 2006]). Les réactions n'étant jamais réellement instantanées, les concentrations réelles de réactifs et de produits n'atteignent jamais exactement leur valeur d'équilibre. [Pelletier, 2006] a mis en évidence des écarts significatifs à l'équilibre chimique dans des plasmas d'argon, d'argon-oxygène. Dans le cadre de cette thèse, les concentrations de produits et de réactifs sont supposées à l'équilibre et on s'est concentré sur les déséquilibres radiatifs au sein du plasma.

Un modèle prenant en compte ces deux déséquilibres est envisageable mais n'entre pas dans le cadre de cette étude.

On trouve également des travaux décrivant le déséquilibre thermique du plasma. On parle souvent de modèles à « deux températures » : [Kannappan, 1977], [Tanaka, 2004], [Mostaghimi, 1986, 1990]. On peut supposer dans ce cas que les autres équilibres sont valides

³ Dans l'étude présentée ici, le terme composition désigne le mélange de gaz introduit dans la torche à température ambiante (par exemple Ar pur ou Ar95%, O₂ 5%), dont on peut déduire la proportion des éléments présents (95 atomes ou ions Ar pour 10 atomes ou ion O). On parlera de concentration lorsqu'on s'intéresse aux espèces présentes en un point donné du plasma (donc à une température donnée), ces espèces pouvant être Ar, Ar⁺, O, O⁺, O₂, O₂⁺, ...

mais on doit alors définir les propriétés chimiques, radiatives et de transport en fonction des énergies cinétiques moyennes des deux populations (lourds et légers) du plasma.

Pour résumer, l'étude présentée ici porte sur les plasmas collisionnels, à l'équilibre chimique et thermique et en déséquilibre radiatif. Cela permet de supposer que les propriétés de transport ne dépendent que de la pression et de la température en chaque point du plasma, que les états excités des atomes suivent une distribution de Boltzmann et que la concentration des différentes espèces (et notamment le taux d'ionisation) ne dépend elle aussi que des conditions locales de pression et de température. Ces hypothèses seront discutées plus loin.

4. Phénomènes radiatifs dans les plasmas inductifs

4.1. Equation du transfert radiatif

Considérons le volume dV contenant un gaz ionisé représenté sur la Figure II-4. On cherche la variation entre les points r et $r+dr$ de l'intensité radiative I dans la direction $\vec{s}$, (I est une triple densité de puissance, par unité de surface, de longueur d'onde et d'angle solide $d\Omega$ autour de la direction $\vec{s}$). En l'absence de particules macroscopiques, le rayonnement ne subit pas de dispersion, et cette variation s'écrit :

$$\frac{dI}{ds} = \text{émission} - \text{absorption} \quad \text{II. 12}$$

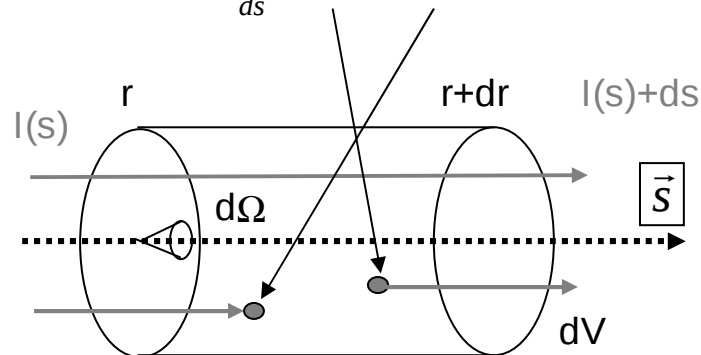


Figure II-4 : Equation du transfert radiatif.

Dans un milieu qui absorbe et émet de la lumière, l'intensité radiative spectrale $I_\lambda(r, \vec{s})$ en un point r et se propageant dans une direction $\vec{s}$ et à la longueur d'onde λ peut donc être déterminée à partir de l'équation différentielle du transfert radiatif ou ETR :

$$dI_\lambda(r, \vec{s}) = \varepsilon_\lambda ds - I_\lambda(r, \vec{s})\kappa_\lambda ds \quad \text{II. 13}$$

Avec ε_λ l'émissivité spectrale du milieu (en $\text{W.m}^{-3}.\text{sr}^{-1}.\text{m}^{-1}$) et κ_λ le coefficient d'absorption spectral (en m^{-1}). La résolution de l'ETR requiert donc de connaître les spectres d'absorption et d'émission du milieu. Ces spectres dépendent très fortement de la longueur d'onde et on doit alors les discrétiser. Pour des géométries complexes, l'ETR n'a pas forcément de solution analytique et on a recours aux simulations numériques pour obtenir l'intensité radiative dans le milieu. Dans ce contexte, la discrétisation fine des spectres engendre des temps de calculs très importants [Menart, 2000]. Différents modèles approchés, qui seront exposés plus loin, permettent la résolution de l'ETR avec des temps de calculs moins grands.

Dans l'hypothèse de l'ETL, on a vu que les processus élémentaires sont réversibles. On peut également supposer que la population des états excités suit une distribution de

Boltzmann. Dans ce cas, il est possible de relier l'émission ε_λ et l'absorption κ_λ dans le milieu à l'aide de la loi de Kirchhoff :

$$\varepsilon_\lambda = \kappa_\lambda B_{\lambda 0} = \frac{2hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{\exp\left(\frac{hc}{\lambda k_B T}\right) - 1} \kappa_\lambda \quad \text{II. 14}$$

Le calcul des spectres à introduire dans l'ETR se résume donc au calcul d'un spectre de κ_λ et l'ETR devient :

$$dI_\lambda(r, \vec{s}) = [B_{\lambda 0} - I_\lambda(r, \vec{s})] \kappa_\lambda ds \quad \text{II. 15}$$

Pour obtenir l'intensité dans un milieu radiatif, on doit donc calculer le spectre du milieu, puis se donner une méthode de résolution de l'ETR qui sera un compromis entre précision et temps de calcul. On peut noter que le type de modèle utilisé dépend pour beaucoup du comportement physique des photons dans le plasma. Pour décrire ces différents comportements, on utilise fréquemment la notion d'épaisseur optique. L'épaisseur optique τ_λ quantifie la fraction de l'intensité radiative qui sera piégée dans le plasma par absorption :

$$\tau_\lambda = \kappa_\lambda L \quad \text{II. 16}$$

Avec L la longueur du chemin optique parcouru par le photon considéré. L'épaisseur optique est une grandeur spectrale, comme le coefficient d'absorption et peut varier de plusieurs ordres de grandeurs d'une longueur d'onde à l'autre.

$1/\kappa_\lambda$ représente la longueur caractéristique sur laquelle le rayonnement est absorbé. La Figure II-5 montre schématiquement le comportement physique du rayonnement en fonction du coefficient d'absorption ou de l'épaisseur optique.

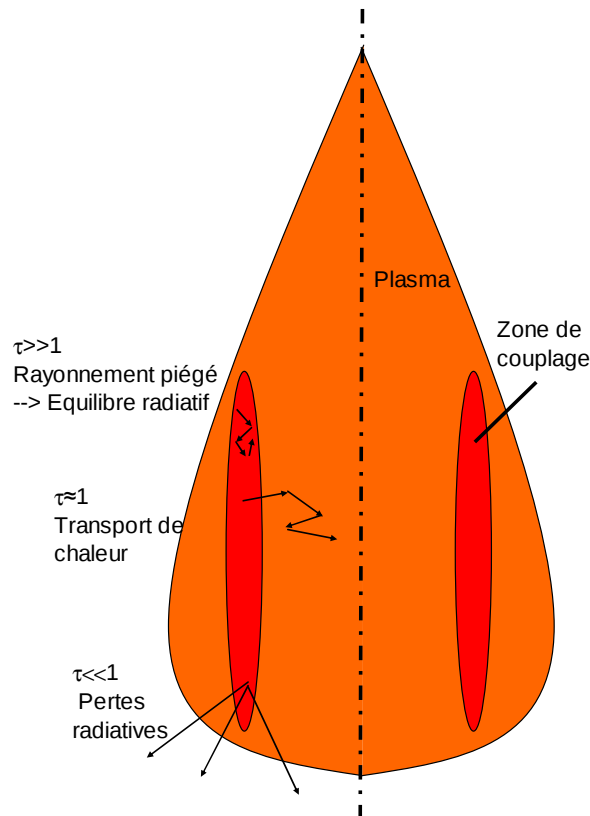


Figure II-5 : Influence de l'épaisseur optique sur les flux Radiatifs dans un plasma thermique.

Si $\tau_\lambda \gg 1$, le milieu absorbe la quasi-totalité des photons du milieu à cette longueur d'onde, on parle de plasma optiquement épais à cette longueur d'onde. Les photons sont absorbés sur une distance suffisamment petite pour que les zones d'émission et d'absorption n'aient pas de différence de température. Ainsi le bilan radiatif entre les deux points est

systématiquement nul et il n'y a pas de transport de chaleur. Le terme d'absorption dans (II. 15) devient prédominant et la solution de l'ETR tend vers l'intensité radiative d'un corps noir qui correspond à l'équilibre radiatif.

Si $\tau_\lambda \ll 1$, il n'y a pas d'absorption. Tous les photons émis sont perdus vers les parois du réacteur, on dit que le plasma est optiquement mince. Aux longueurs d'onde pour lesquelles le plasma est mince, le rayonnement se comporte comme un terme puits de l'équation d'énergie.

Si $\tau_\lambda \approx 1$, on parle d'épaisseur optique intermédiaire. Les photons sont absorbés sur des distances de l'ordre de la taille du plasma et pourront transporter de la chaleur au sein du plasma ou vers l'extérieur.

Nous allons à présent décrire les différents phénomènes radiatifs qui interviennent dans le spectre d'un élément.

4.2. Phénomènes radiatifs dans un plasma thermique : calcul du spectre

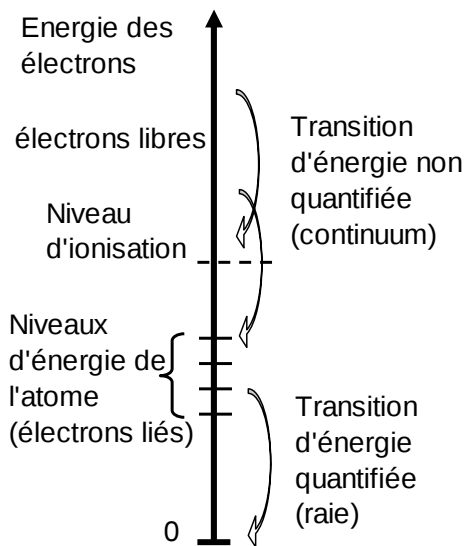


Figure II-6 : les différents types de transitions électroniques donnant lieu à des phénomènes radiatifs.

Les phénomènes radiatifs dans un plasma proviennent de transfert d'énergie au niveau des électrons, que ceux-ci soient libres ou liés à un atome (Figure II-6). Une transition électronique entre deux orbitales d'un atome donne une raie du spectre car l'énergie des deux niveaux initiaux et finaux est fixe. On parle de transition lié-lié. Dans le cas contraire, l'énergie de la transition n'est pas prédéterminée et on observe un continuum de rayonnement (répartie sur une large zone du spectre). On parle alors de transition libre-lié ou libre-libre.

4.2.1. Raies du spectre

L'émissivité est la puissance émise par unité de volume dans une direction donnée (donc, par unité d'angle solide). Pour une raie, l'énergie émise pour une transition (passage d'un atome du niveau u au niveau l) est celle du photon correspondant, $hc/\lambda = E_u - E_l$. En multipliant cette énergie par la densité d'atomes émetteurs n_u en m^{-3} et par la probabilité de

désexcitation spontanée de ce niveau émetteur A_{ul} en s^{-1} , on obtient l'émissivité totale (dans toutes les directions) $4\pi\epsilon_{ul}$ pour une transition u-l radiative donnée :

$$\epsilon_{ul}(T) = \frac{hc}{4\pi\lambda} A_{ul} n_u(T) \quad \text{II. 17}$$

La densité d'émetteurs est donnée à son tour par la distribution de Boltzmann (II. 8).

L'expression (II. 17) suppose que tous les photons émis lors d'une transition entre deux niveaux d'énergie d'un atome ont exactement la même énergie. En réalité, les orbitales électroniques des atomes d'un plasma peuvent être perturbées par le milieu et notamment les charges électriques environnantes. La perturbation d'une orbitale modifie son énergie, de même que celle des photons émis depuis cette orbitale. Lorsqu'on observera cette transition, la raie apparaîtra comme élargie (Figure II-7). On parle de profil de raie $P(\lambda)$. En fait ce profil est la répartition d'énergie des photons émis lors d'une transition autour de la longueur d'onde centrale. Donc par définition on a :

$$\int_0^{\infty} P(\lambda) d\lambda = 1 \quad \text{II. 18}$$

$$\text{Et } \epsilon_{\lambda ul}(T) = \frac{hc}{4\pi\lambda} A_{ul} n_u(T) P(\lambda) \quad \text{II. 19}$$

$\epsilon_{\lambda ul}$ est l'émissivité spectrale de la raie. On retrouve l'émissivité totale ϵ_{ul} par intégration sur les longueurs d'onde.

Deux types d'élargissement sont observés et décrits dans la littérature : Doppler et collisionnel. [Trassy, 1999] donne une liste des élargissements observés dans le cas de plasmas inductifs, et précise certaines théories utilisables pour les décrire. On peut trouver plus de détail sur l'élargissement des raies dans un plasma dans [Griem, 1974]. Pour décrire ces élargissements, on utilise la notion de largeur à mi-hauteur (FWHM). Un profil de raie typique, mesuré sur une des torches du laboratoire est donné sur la Figure II-7.

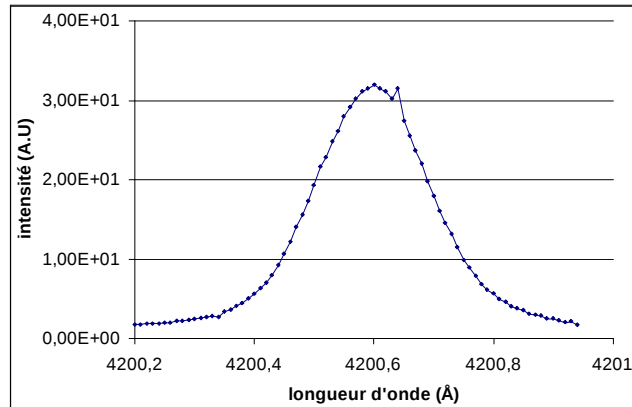


Figure II-7: Profil de raie typique (Ar 420nm) mesuré sur une des torches du laboratoire.

L'élargissement Doppler provient de la vitesse de l'atome émetteur par rapport à l'observateur ou au point absorbeur. Cette vitesse provient de l'agitation thermique des particules et l'élargissement correspondant peut-être significatif dans un plasma où les températures sont de l'ordre de 10000K. La largeur à mi hauteur correspondant à l'effet Doppler $\Delta\lambda_D$ est donnée par :

$$\Delta\lambda_D = \lambda_0 \sqrt{\frac{2kT \ln 2}{mc^2}} \quad \text{II. 20}$$

Le profil correspondant à la forme d'une gaussienne normalisée:

$$P_{Doppler}(\lambda) = \exp(-\ln(2) \left(\frac{\lambda - \lambda_0}{\Delta\lambda_D} \right)^2) \quad \text{II. 21}$$

L'élargissement collisionnel correspond à la perturbation des orbitales atomiques par les charges environnantes du plasma. Modifier une orbitale modifie également l'énergie du niveau correspondant. On parle d'élargissement Van der Waals pour désigner la perturbation par les nuages électroniques des atomes neutres et d'élargissement Stark pour désigner celle induite par les ions et les électrons libres. Il existe aussi un élargissement dit résonnant, qui correspond à un cas particulier de l'élargissement Van der Waals lorsque le niveau émetteur est couplé au niveau fondamental de l'ion.

Le profil du à l'élargissement collisionnel est de type Lorentzien :

$$P_{Collisionnel}(\lambda) = \frac{1}{1 + \frac{2(\lambda - \lambda_0)^2}{(\Delta\lambda_c)^2}} \quad \text{II. 22}$$

$$\text{Et : } \Delta\lambda_c = \Delta\lambda_{Stark} + \Delta\lambda_{vdWaals} + \Delta\lambda_{Re\,sonnant} \quad \text{II. 23}$$

$\Delta\lambda_c$ est la largeur à mi hauteur collisionnelle totale.

On peut traiter l'ensemble des phénomènes collisionnels par un seul élargissement car les différents phénomènes responsables de cet élargissement créent le même profil. Pour calculer ces élargissements, on a utilisé la théorie des impacts et l'approximation quasi-statique, détaillées dans [Lindholm, 1945] et [Foley, 1946] pour la première et [Griem, 1974] pour la seconde. L'élargissement résonnant est donné par :

$$\Delta\lambda_R = \frac{\lambda^5}{32\pi^2 c} \frac{g_r A_{fr} n_{rf}}{g_f} \quad \text{II. 24}$$

Les indices r et f correspondent respectivement aux niveaux résonnant et fondamental. Pour l'élargissement Stark, [Griem, 1974] propose :

$$\Delta\lambda_S = (1 + 1.75a(1 - 0.75 \frac{\rho_m}{\rho_D}))w \quad \text{II. 25}$$

Ou a et w sont des paramètres calculés et tabulés par Griem. ρ_m est la distance interatomique moyenne et ρ_D le rayon de la sphère de Debye.

$$\rho_m(T) = \left(\frac{4\pi P_{atm}}{3k_B T} \right)^{-1/3} \quad \text{II. 26}$$

$$\rho_D(N_{e-}) = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T}{2q^2 N_{e-}}} \quad \text{II. 27}$$

Le rapport de ces deux distances compare la distance entre deux particules dans le plasma et la distance sur laquelle les charges électriques sont écrantées. Cela représente la propension des ions à s'approcher des atomes émetteurs. Plus ils parviennent à s'approcher, plus l'orbitale émettrice sera perturbée et plus la raie sera élargie.

Les paramètres Stark a et w n'ont pas été tabulés pour toutes les transitions radiatives de tous les corps. Puisque l'on cherche à déterminer les transferts radiatifs dans leur ensemble, c'est-à-dire pour toutes les longueurs d'onde, on doit traiter des raies pour lesquelles a et w ne sont pas connues. [Trassy, 1999] propose une corrélation empirique qui permet d'obtenir une approximation raisonnable de l'élargissement Stark des raies de l'argon pour ces transitions :

$$\Delta\lambda_S = 2 \left(\frac{0,14153}{(E_u - E_l)(E_{ion} - E_u)} - 0,0295 \right) \quad \text{II. 28}$$

La formule ci-dessus donne l'élargissement Stark en nm. De manière générale, l'élargissement Stark augmente avec le taux d'ionisation et donc avec la température dans les gammes qui nous intéressent (jusqu'à 12000K environ).

L'élargissement Van der Waals représente la perturbation des orbitales atomiques par les nuages d'électrons des atomes neutres. Il a donc tendance à diminuer quand la température augmente, sous l'effet de la dilatation du gaz :

$$\Delta\lambda_w = Knv^{3/5} \frac{\lambda_0^2}{c} \quad \text{II. 29}$$

Ou v est vitesse moyenne des lourds, n la densité d'espèces neutres et K une constante :

$$K = 1.204 \left[\frac{h \langle r_i^2 \rangle - \langle r_j^2 \rangle}{8\pi\epsilon_0 \cdot 10^{-9}} \right]^{2/5} \quad \text{II. 30}$$

r_i et r_j étant le rayon moyen de l'orbitale de l'atome émetteur dans les niveaux d'énergie haut et bas, c'est-à-dire :

$$\langle r^2 \rangle = a_0^2 \frac{n^{*2}}{2Z_a} \langle 5n^{*2} + 1 - 3l(l+1) \rangle \quad \text{II. 31}$$

a_0 est le rayon de Bohr, Z_a le degré d'ionisation de l'émetteur +1, l le nombre quantique angulaire et n^* le nombre quantique principale effectif donné par :

$$n^* = Z_a \sqrt{\frac{E_{ion}^H}{E_{ion}^{Ar} - E_u^{Ar}}} \quad \text{II. 32}$$

On peut remarquer que pour tous les types d'élargissement collisionnels, la perturbation est d'autant plus grande que l'orbitale est haute en énergie. Plus un électron est loin de son noyau, plus il interagira facilement avec les autres charges du plasma.

On obtient enfin le profil réel par convolution des profils Doppler et collisionnels.

Tels que décrits jusqu'ici, les phénomènes d'élargissement perturbent les orbitales en augmentant ou en diminuant leur énergie de manière équivalente. On a pu observer que certains mécanismes d'élargissement causent une modification systématique de l'énergie de l'orbitale, un décalage. Ce décalage se traduit par une modification de la longueur d'onde centrale de la transition, on parle de Shift, noté $S\lambda$. C'est le cas pour les élargissements Stark et Van der Waals :

$$S\lambda_w = \frac{\Delta\lambda_w}{2,75} \quad \text{II. 33}$$

$$S\lambda_s = w \left(\frac{d}{w} \pm 2a(1 - 0.75r) \right) \quad \text{II. 34}$$

Avec d un paramètre tabulé pour certaines transitions par Griem.

Les théories décrites dans cette partie permettent de calculer les profils d'émission pour toutes les transitions radiatives d'énergie quantifiées. La loi de Kirchhoff permet d'en déduire les profils d'absorption. Le chapitre IV sur les bases de données radiatives y fait appel très souvent.

4.2.2. Fond continu du rayonnement

Les électrons libres du plasma sont susceptibles d'absorber ou d'émettre des photons. [Cressault, 2001] détaille tous les mécanismes responsables du continuum de rayonnement dans un plasma thermique. A partir de son étude et des calculs réalisés au laboratoire, seuls deux de ces phénomènes sont apparus comme significatifs pour des plasmas inductifs d'argon et d'oxygène : la recombinaison radiative et le rayonnement de freinage (Brehmstrahlung).

De nombreux travaux détaillent les théories utilisées pour décrire ces phénomènes. Des mesures du fond continu du rayonnement ont été publiées dans différentes configurations faisant intervenir des gaz rares, purs ou mélangés : [Burm, 2005], [Behringer, 1976].

Un électron libre freiné par les charges locales dans le plasma cédera son énergie en émettant un photon. L'énergie de ce photon dépend des charges environnantes et n'est pas quantifiée. C'est une transition libre-libre. On peut citer [Grant, 1958], [Schlüter, 1987, 1989] et [Lange, 1992] pour les calculs des transitions libre-libre dans l'argon et l'oxygène. Selon ces travaux, l'émissivité spectrale $\varepsilon_{\lambda}^{Brehm}$ correspondant au freinage des électrons libres par un ion de charge z et de densité N_i est donnée par :

$$\varepsilon_{\lambda}^{Brehm}(T) = C_1 z^2 \frac{N_e N_i}{T^{1/2}} \exp\left(-\frac{hc}{\lambda k_B T}\right) G_i(\lambda, T) \quad \text{II. 35}$$

Avec $C_1 = 5,44 \cdot 10^{-52} \text{ J.m}^3 \cdot \text{K}^{1/2} \cdot \text{ster}^{-1}$, et $G_i(\lambda, T)$ un facteur correctif appelé facteur de Gaunt. [Schlüter, 1989] a déterminé ce facteur de Gaunt pour l'oxygène et [Lange, 1992] pour l'argon. Cette correction vient du fait que les théories permettant de décrire le fond continu du rayonnement sont basées sur l'atome d'hydrogène et sur les atomes hydrogénoïdes (avec un électron sur la couche externe). Le facteur $G_i(\lambda, T)$ (ainsi que $\xi(\lambda, T)$ que l'on verra plus loin) permettent de relier un atome donné aux théories décrivant les atomes hydrogénoïdes.

Des photons d'énergie non quantifiée sont émis ou absorbés au cours de réactions de recombinaison radiative-photoionisation du type :



Les transitions libre-lié et notamment les mécanismes de recombinaison radiative-photoionisation ont été étudiés par [Biberman, 1960, 1961], [Hofsaess, 1978, 1979], [Burgess, 1958, 1959] par exemple. Selon ces études, l'émissivité spectrale pour la recombinaison radiative est :

$$\varepsilon_{\lambda}^{Rec}(T) = C_1 z^2 \frac{N_e N_i}{Q_i(T) T^{1/2}} \left[1 - \exp\left(-\frac{hc}{\lambda k_B T}\right) \right] g_i \xi(\lambda, T) \quad \text{II. 37}$$

Où g_i est la dégénérescence du niveau fondamental de l'ion et $\xi(\lambda, T)$ le facteur correctif de Biberman. Il remplit la même fonction de correction que le facteur de Gaunt pour le rayonnement de freinage. Les valeurs de $\xi(\lambda, T)$ peuvent être trouvées dans [Hofsaess, 1978, 1979] pour l'argon et l'oxygène.

5. Méthodes de résolution approchée de l'ETR

Pour calculer le flux radiatif dans un plasma dans le cadre de modèles couplés avec l'écoulement, l'induction ou la thermique, il n'est pas réaliste du point de vue du temps de calcul de réaliser une résolution systématique de l'ETR avec une discrétisation très fine de tout le spectre et en utilisant les valeurs « exactes » des coefficients d'émission et d'absorption. [Menart, 2000] résout néanmoins l'ETR avec une discrétisation fine du spectre mais sans coupler cette résolution à d'autres phénomènes physiques. Le champ de température notamment est découplé de la résolution de l'ETR.

Cette partie vise à présenter différentes méthodes pour contourner le problème ainsi que leurs cas d'applications.

5.1. Coefficient d'Emission Nette (CEN)

La méthode du CEN est une solution simple pour prendre en compte le refroidissement du plasma par rayonnement. On considère le rayonnement comme un terme puits de l'équation d'énergie. Cela revient à calculer en tout point du plasma la différence entre le rayonnement émis et le rayonnement absorbé en ce point. [Lowke, 1974] montre qu'on peut intégrer l'ETR pour obtenir la divergence du flux radiatif (qui est aussi le terme puits qu'on cherche à calculer) en supposant le milieu isotherme et uniforme sur une sphère de rayon R_p autour du point d'émission :

$$4\pi\epsilon_N = 4\pi \int_0^{\infty} \kappa_{\lambda} B_{\lambda 0} \exp(-\kappa_{\lambda} R_p) d\lambda \quad \text{II. 38}$$

R_p étant le rayon plasma.

L'avantage majeur de ce modèle est d'obtenir $4\pi\epsilon_N$ en fonction de la seule température au point considéré. Pour écrire (II. 38) on doit supposer que le plasma peut être représenté par une sphère isotherme de rayon R_p . En fait, il s'agit de traduire l'absorption des photons le long de leur trajet dans le plasma et on suppose que les photons s'échappent systématiquement du plasma par un chemin isotherme à la température d'émission et de longueur fixe. L'émission nette obtenue pouvant dépendre fortement de ce paramètre, c'est une source d'erreurs potentielle, d'autant que le rayon R_p d'un plasma ne correspond pas nécessairement à celui la flamme que l'on observe.

L'approximation peut sembler importante mais de nombreuses études ont montré qu'elle donnait de bons résultats dans une grande variété de cas. On peut citer notamment [Dixon, 2004] qui compare trois modèles de rayonnement (CEN, P1 et caractéristiques partielles) dans un plasma d'arc de SF_6 . De bons résultats sont obtenus pour les profils de température même avec le modèle d'émission nette, pourtant le plus simple.

Lorsque le plasma est optiquement mince ($\tau_{\lambda} \ll 1$), le terme d'absorption ($\exp(-\kappa_{\lambda} R_p)$) devient égal à 1 et l'hypothèse de plasma sphérique isotherme n'est plus nécessaire.

Les valeurs du coefficient d'émission nette ont été calculées pour de nombreuses compositions de gaz et différentes valeur de R_p : [Naghizadeh-Kashani, 2002] dans l'air, [Gleizes, 1991, 1993] dans l'argon et l'azote en présence de vapeurs métalliques, [Essoltani, 1994] dans Ar/Fe/H_2 , [Liani, 1997] dans CH_4/H_2 par exemple.

Les calculs réalisés à partir de ce modèle permettent de calculer les pertes par rayonnement dans un volume donné mais pas de transporter ces pertes. Les pertes dans chaque cellule ne sont pas prises en compte explicitement dans les autres éléments de volume. En fait, rien n'est précisé sur l'endroit où est absorbé ce rayonnement, sinon que chaque élément de volume en reçoit la même quantité de la part du reste du plasma. Cette approximation permet d'éviter d'ajouter des équations dédiées au rayonnement dans les simulations mais on ne peut pas en déduire la localisation spatiale des flux radiatifs.

5.2. Ordonnées discrètes (DO)

Ce modèle est une résolution effective de l'ETR, éventuellement spectrale. On peut résoudre plusieurs équations du modèle DO sur différentes bandes du spectre. Une bande est une plage du spectre sur laquelle on suppose que le coefficient spectral d'absorption est constant. En plus d'être spectral, ce modèle permet aussi une résolution en fonction de la direction de propagation du flux radiatif. Pour chaque bande, on résout l'équation sur différentes directions :

$$\nabla \cdot (I_\lambda(r, \vec{s}) \cdot \vec{s}) + \kappa_\lambda I_\lambda = \kappa_\lambda B_{\lambda 0} \quad \text{II. 39}$$

(II. 39) doit donc être résolue sur un certain nombre d'intervalles spectraux et en découpant à chaque fois le domaine en différentes direction de propagation. L'avantage est de pouvoir déterminer précisément la direction du flux radiatif, et donc la répartition spatiale des pertes radiatives dans une enceinte donnée.

L'inconvénient est que cette méthode ne simplifie pas vraiment le problème de temps de calcul posé par la discrétisation en fréquence du spectre du gaz. Pour conserver des temps de calcul raisonnables, on devra limiter le nombre de bandes et donc moyenner le spectre sur de larges intervalles pour se ramener à un corps gris par bandes.

Si l'on dispose de grandes puissances de calcul, il est possible d'utiliser le DO avec une discrétisation précise du spectre comme l'a montré [Ménart, 2000], même si la résolution du rayonnement n'était alors pas couplée à la résolution des autres phénomènes physique.

5.3. Caractéristiques partielles

L'idée derrière ce modèle est d'aller plus loin que la méthode du CEN en levant l'hypothèse de propagation du rayonnement sur un chemin isotherme de longueur fixe. Elle a été proposée par Sevast'Yanenko et son équipe : [Sevast'Yanenko, 1977, 1979, 1980]. C'est un modèle directionnel et non spectral. On va utiliser des bases de données comme pour le modèle CEN pour déterminer la divergence du flux radiatif. En revanche, ce modèle est directionnel donc en chaque point, on calculera cette divergence en fonction de la direction de propagation. Pour cela, l'espace autour de chaque point est découpé en différentes directions de propagation (10 à 20 selon [Erraki, 1999]), à la manière d'un modèle DO mais on ne résout qu'une équation puisque l'intégration en fréquence est faite en amont de la résolution de l'ETR :

$$\nabla \cdot (I(x, \vec{e}_x) \cdot \vec{e}_x) = \text{Som} \Big|_O^X - \int_O^X \Delta \text{Sim}(\xi, X) d\xi \quad \text{II. 40}$$

X est le point d'émission considéré et O est le point de sortie des photons.

Les termes Som et ΔSim doivent être tabulés (les détails de leur calcul est donné dans l'annexe B). Ils dépendent tout deux de la température en O et en X, mais aussi du profil de température entre les deux points. De cette manière, il n'est plus nécessaire de supposer que les photons se propagent sur des chemins isothermes. De plus, on retrouve l'expression du CEN si la température est constante entre O et X.

Sur chacune des directions de propagation, on obtient un profil de température. Les paramètres Som et ΔSim doivent être tabulés pour l'ensemble des profils de température qu'on va rencontrer et l'intégration sur le spectre doit être faite a priori pour chaque paramètre et chaque profil de température. Cette démarche nécessite donc de précalculer des très grandes bases de données et rend le modèle assez lourd à mettre en œuvre.

Ce modèle a été confronté à celui de l'émission nette par [Raynal, 1995] dans un plasma d'arc de SF₆. Les champs de températures obtenus étant satisfaisants.

L'avantage de cette description est l'utilisation d'une base de donnée permettant un couplage plus facile avec des équations hydrodynamiques et magnétodynamiques du fait du temps de calcul réduit une fois la base de donnée constituée. Elle est par ailleurs plus précise que la méthode du CEN. La limite principale reste la complexité des calculs à réaliser en amont et le fait que les résultats dépendent de la manière d'interpoler la température entre les points O et X ([Soloukhin, 1984] et [Koval'skaya, 1984]).

5.4. Méthode des harmoniques sphériques (P1)

Le modèle P-1 est la version la plus simple des modèles P-N. En l'occurrence c'est un modèle spectral et non directionnel. Il a été utilisé par [Modest, 1992], [Eby, 1998], [Freton, 2002] et [Dixon, 2004] pour des plasmas d'arc.

Dans le cadre des modèles P-N, l'intensité $I(\vec{r}, \vec{s})$ est décomposée en somme de fonctions qui dépendent séparément de la position et de la direction [Modest, 2003] :

$$I(\vec{r}, \vec{s}) = \sum_{l=0}^N \sum_{m=-l}^l Y_l^m(\vec{s}) I_l^m(\vec{r}) \quad \text{II. 41}$$

Où les $Y_l^m(\vec{s})$ sont des harmoniques sphériques, fonctions connues et construites à partir des polynômes de Legendre. C'est la valeur de N qui donne son nom au modèle P-N. Ainsi, pour le modèle P-1, on a quatre inconnues : $I_{l=0}^{m=0}(\vec{r})$ et $I_{l=1}^m(\vec{r})$, $m = -1, 0$ ou 1 .

Dans le cas du modèle P1, l'écriture des termes $Y_l^m(\vec{s})$ en repère sphérique (d'axe arbitraire) fait apparaître trois termes dépendant de la direction (pour $l = 1$) et un dernier qui ne dépend que de la position (pour $l=0$) :

$$I(\vec{r}, \vec{s}) = I_0^0 + I_1^0 \cos \theta + \frac{1}{\sqrt{2}} \sin \theta \cos \psi (I_1^{-1} - I_1^1) - \frac{i}{\sqrt{2}} \sin \theta \sin \psi (I_1^{-1} + I_1^1) \quad \text{II. 42}$$

On peut mettre (II. 41) sous la forme :

$$I(\vec{r}, \vec{s}) = a(r) + \vec{b}(r) \cdot \vec{s} \quad \text{II. 43}$$

Où a et $\vec{b}$ deviennent les inconnues du problème ($\vec{b}$ ayant 3 composantes on a bien 4 inconnues). Le choix du repère pour écrire les harmoniques sphériques n'intervient pas.

Plutôt que a et $\vec{b}$, on utilise le rayonnement incident G et le flux radiatif $\vec{q}$:

$$G(r) = \int_{4\pi} I d\Omega = a(r) \int_{4\pi} d\Omega + \vec{b}(r) \cdot \int_{4\pi} \vec{s} d\Omega = 4\pi a(r) \quad \text{II. 44}$$

$$\vec{q}(r) = \int_{4\pi} I \vec{s} d\Omega = a(r) \int_{4\pi} \vec{s} d\Omega + \vec{b}(r) \cdot \int_{4\pi} \vec{s} \vec{s} d\Omega = \frac{4\pi}{3} \vec{b}(r) \quad \text{II. 45}$$

Et en réinjectant les expressions de a et $\vec{b}$ dans (II. 43), on obtient une expression pour l'intensité radiative en fonction du rayonnement total (G) et du transfert par rayonnement ($\vec{q}$) :

$$I(\vec{r}, \vec{s}) = \frac{1}{4\pi} (G(\vec{r}) + 3\vec{q}(\vec{r}) \cdot \vec{s}) \quad \text{II. 46}$$

Puisque la distribution directionnelle de $I(\vec{r}, \vec{s})$ dépend de 4 paramètres, on écrit 4 intégrales indépendantes de l'ETR (II. 15) au lieu d'une équation pour chaque direction $\vec{s}$. En intégrant sur toutes les directions l'ETR multipliée par une fonction constante ($Y_0^0(\vec{s}) = 1$), puis par chacune des composantes de $\vec{s}$, on obtient [Modest, 2003] :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{q} = \kappa_\lambda (4\pi B_{\lambda 0} - G) \quad \text{II. 47}$$

$$\vec{q}(\vec{r}) = \frac{-1}{3\kappa_\lambda} \vec{\nabla} G \quad \text{II. 48}$$

Finalement, en éliminant le flux radiatif entre ces deux équations, on trouve en coordonnées cylindriques [Modest, 2003], [Eby, 1998] :

$$\frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\partial G_i}{3\kappa_i \partial z} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{r}{3\kappa_i} \frac{\partial G_i}{\partial r} \right) = -\kappa_i (4\pi B_i - G_i) \quad \text{II. 49}$$

L'inconnue G_i de cette équation aux dérivées partielles est l'intensité radiative intégrée sur toutes les directions (angle solide de 4π sr) dans la bande i , alors que B_i est la fonction de Planck intégrée sur la bande i . L'équation II. 49 est de type diffusive, le coefficient de

diffusion étant $1/3\kappa_i$. Le coefficient d'absorption est un paramètre très important du modèle et on se ramène encore une fois au problème de la discrétisation du spectre. Il est peu réaliste de discrétiser finement ce dernier et de résoudre des milliers ou des millions d'équations de type P1 simultanément.

Ce modèle a pour gros avantage de transporter la différence entre émission et absorption vers les cellules voisines et de fournir la distribution de rayonnement incident dans le plasma et sur les parois.

Le terme de droite de (II. 49) représente également le terme puits à introduire dans l'équation d'énergie si l'on couple thermique et rayonnement dans les simulations.

$$P_R = \sum_{i \text{ bandes}} -\kappa_i (4\pi B_i - G_i) \quad \text{II. 50}$$

Une des limites de la décomposition au premier ordre des harmoniques sphériques est qu'on ne retrouve pas forcément avec précision la répartition de l'intensité $I(\vec{r}, \vec{s})$ sur les différentes directions de propagation même si la valeur du rayonnement incident G est correcte.

5.5. Coefficient moyen d'absorption (CMA)

La méthode du CMA n'est pas une méthode de résolution de l'ETR. C'est un outil pour simplifier ces méthodes de résolutions. On a vu que la discrétisation en fréquence posait des problèmes pour beaucoup de modèles de rayonnement (DO et P1 notamment). [Gleizes, 1997] propose une solution pour moyenner les coefficients spectraux d'absorption κ_λ sur de larges bandes du spectre afin de réduire le nombre d'intervalles spectraux à résoudre.

$$\langle \kappa \rangle_{\lambda_1-\lambda_2} = \frac{\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} (\kappa_\lambda^{\text{continuum}} + \kappa_\lambda^{\text{raies}}) B_{\lambda 0} d\lambda}{\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} B_{\lambda 0} d\lambda} \quad \text{II. 51}$$

Cette manière de calculer la moyenne donne de meilleurs résultats qu'une moyenne classique lorsque le coefficient spectral d'absorption varie peu sur la bande de spectre considérée. L'intégration des raies à cette procédure peu poser des problèmes lorsque le coefficient spectral d'absorption des raies est très grand devant celui du continuum. [Gleizes, 1997] propose de traiter séparément les contributions du continuum et des raies :

$$\langle \kappa^{\text{raies}} \rangle_{\lambda_1-\lambda_2} = \frac{\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} \kappa_\lambda^{\text{raies}} B_{\lambda 0} d\lambda}{\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} B_{\lambda 0} d\lambda} = \frac{B_{\lambda 0}(\lambda_0) \pi \varepsilon_0^2 f_{lu} n_u}{W(\Delta\nu) m_0 c} \Lambda_r \quad \text{II. 52}$$

Avec f_{lu} la force oscillateur de la transition, ε_0 la permittivité du vide, m_0 la masse de l'atome et $W(\Delta\nu)$ la largeur de l'intervalle. Λ_r est un facteur de fuite permettant de tenir compte de l'absorption des raies très fortement absorbées dans le milieu. Λ_r vaut 1 pour une raie non absorbée et 0 si la raie est complètement absorbée. Il dépend d'un rayon plasma qui doit être fixé à priori, comme pour le CEN.

[Cressault, 2001] remarque que le coefficient spectral d'absorption du continuum est linéaire par morceaux et propose donc de construire les bandes du CMA autour de ces plages du spectre où les variations sont faibles.

Cette méthode a été appliquée pour résoudre l'ETR avec l'aide d'un modèle P1 (avec 5 à 10 bandes) dans le cas de plasmas d'arc de disjoncteur par [Eby, 1998] et de lampes argon-mercure par [Paul, 2004].

Le calcul du coefficient moyen d'absorption permet de traiter de larges plages du spectre avec un seul intervalle de fréquence ce qui est très avantageux pour les modèles spectraux de rayonnement. En revanche, lorsque des raies très absorbées sont présentes sur une plage on doit utiliser un facteur de fuite qui présente le même type d'inconvénients que le CEN.

Les modèles de rayonnement décrits dans ce chapitre permettent de décrire l'ensemble des phénomènes radiatifs dans un plasma thermique à pression atmosphérique. La méthode CEN est bien adaptée lorsque le plasma est optiquement mince, tandis que le modèle P1 devrait amener une description de l'absorption quand le plasma est optiquement épais.

On doit à présent intégrer ces méthodes de résolution de l'ETR à une modélisation plus globale faisant intervenir l'écoulement du gaz, le couplage inductif et la thermique du système pour représenter le comportement des plasmas ICP étudiés au cours de cette thèse. Les deux chapitres suivants décrivent donc les modèles utilisés pour le couplage développé au cours de cette étude, d'abord pour les phénomènes autres que le rayonnement (chapitre III), puis pour le rayonnement (chapitre IV)

Chapitre III. Description de l'outil numérique

La plupart des procédés à plasma thermique utilisent des torches, systèmes dans lesquels le plasma est engendré par un courant électrique ou un champ électromagnétique, puis soufflé vers un réacteur, une surface à traiter ou à chauffer. Dans d'autres applications, par exemple aux disjoncteurs, c'est le plasma lui-même qui crée un écoulement de gaz par la dilatation due au chauffage, ou par les forces électromagnétiques qui s'y développent. Ces systèmes sont donc fortement inhomogènes et sujets à de forts phénomènes de convection qui modifient les propriétés du gaz (en particulier sa température donc sa conductivité électrique) et influencent le couplage inductif, capacitif ou par conduction électrique. Les transferts radiatifs sont eux-mêmes fortement coulés à la thermique et dépendent donc indirectement des autres phénomènes se produisant dans le plasma.

Il est donc difficile de représenter correctement un plasma à pression atmosphérique, et notamment sa thermique, sans calculer également l'écoulement des gaz dans la torche ou les transferts d'énergie par induction.

Les modèles numériques développés afin de décrire les transferts radiatifs dans les plasmas thermiques seront intégrés ici à des simulations de torches à plasma inductif (ICP pour inductively coupled plasma) faisant intervenir les autres mécanismes physiques importants pour ces torches, c'est-à-dire la thermo-hydraulique, l'induction, les propriétés du mélange de gaz et un modèle de turbulence qui sert surtout aux zones froides à l'extérieur du plasma.

Le laboratoire a développé dans le passé un certain savoir faire dans l'utilisation du code commercial Fluent©. C'est un code utilisant la méthode des volumes finis qui propose de nombreux modèles simples pour une large gamme de phénomènes d'une part. D'autre part, ce code laisse une grande liberté dans l'ajout de modèles créés par l'utilisateur et dans leur couplage avec les modèles existants. C'est pourquoi l'étude numérique a été réalisée avec ce logiciel.

Certains modèles propres à Fluent© sont appropriés pour décrire un plasma thermique et son utilisation permet de se concentrer sur un aspect particulier de la modélisation. Ainsi, seuls l'électromagnétisme, la chimie et le rayonnement ont nécessité le développement de modules particuliers.

Les plasmas étudiés au cours de cette thèse sont supposés de symétrie cylindrique. Etant généré par une bobine inductrice, cette hypothèse revient notamment à négliger l'hélicité de la bobine. On a réalisé les simulations pour des milieux bidimensionnels et axisymétriques.

1. Les différents cas étudiés

Au cours de cette étude on s'est intéressé principalement à deux types de torches : les torches de faible puissance dédiées à l'analyse spectrochimique et les torches de plus forte puissance servant en l'occurrence à la purification du silicium pour les applications photovoltaïques. Dans les deux cas le plasma est chauffé par induction à haute fréquence (3 à 100MHz) mais les puissances et débits caractéristiques varient fortement d'un modèle de torche à l'autre.

Afin de valider les calculs numériques, on a aussi simulé certaines torches à plasma décrites dans la littérature et pour lesquelles des résultats expérimentaux sont disponibles [Michaud, 1983], [Regt, 1985]. De manière générale, les différentes torches sont conçues de la même manière : trois tubes concentriques par lesquelles s'écoulent le gaz plasmagène et

deux débits dits « auxiliaires » et « injecteur » dont l'utilisation varie en fonction de l'application considérée. Le débit injecteur permet par exemple d'introduire l'analyte dans un plasma de faible puissance pour la spectro-chimie alors que le débit auxiliaire peut servir à envoyer les espèces réactives sur le bain de silicium dans le cas d'une torche procédé. Bien sûr, ces exemples ne sont pas exhaustifs.

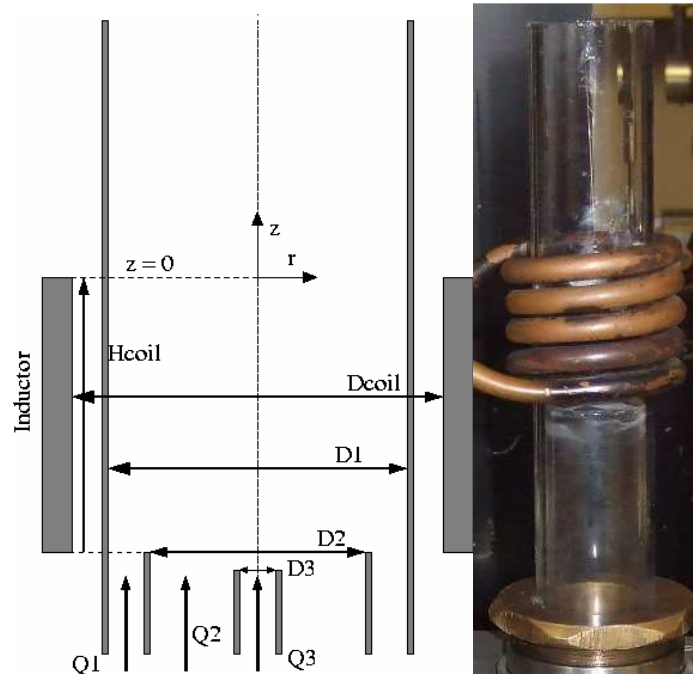


Figure III-1 : schéma de principe des torches plasma (gauche).
Photo d'une torche d'analyse (droite).

Le schéma de principe des différentes torches utilisées est donné sur la Figure III-1. Les données géométriques relatives à chacune d'entre elles sont regroupées dans le Tableau III-1. Sur la photo (Figure III-1, droite), le tube injecteur est situé plus bas dans la torche et n'apparaît pas. Toutes les configurations sont supposées axisymétriques.

Tableau III-1 : Typical input parameters for ICP devices simulations.

	Analysis torch	[Regt, 1995]	[Huang, 1992, 1997]	32mm torch	48mm torch	Process torch
D_1 (mm)	27	18	18	32	48	40
D_2 (mm)	24	16	16	30	36	38
D_3 (mm)	1,2	1,2	2	7	6	7
Q_1 (L/min)	10	12	14	60	166,7	90
Q_2 (L/min)	0	0,3	0,5	3,3	0	3.3
Q_3 (L/min)	0,17	0,6	0,8	3	0	3
P (W)	700 to 2000	1200	750 to 1750	3000 to 12000	12000 to 30000	12000 to 20000
F (MHz)	40	100	27,12	3,46	3,46	3,46
D_{coil} (mm)	32	26	27	34	40	40
H_{coil} (mm)	30	15	33,4	51	51	65

La torche d'analyse (colonne 1, Tableau III-1) a déjà été étudiée par [Michaud, 1983] avec d'autres méthodes de mesure.

Les débits indiqués dans le Tableau III-1 sont donnés à titre indicatif et peuvent changer d'une simulation à l'autre. Le débit utilisé dans les calculs sera indiqué s'il ne correspond pas à la valeur indiquée dans le tableau.

1.1. Torches d'analyse

On a étudié deux torches d'analyse spectrochimique au cours de cette étude. L'objectif est d'une part de confronter les mesures de températures publiées ([Michaud, 1983], [Regt, 1985]) à nos calculs et d'autre part de déterminer le comportement thermique des flux radiatifs dans des dispositifs de petite taille et de faible puissance. Des mesures de température ont été réalisées au laboratoire sur la torche d'analyse et seront décrites au chapitre IV. Ces mesures viendront compléter la démarche de validation débutée avec les données publiées par [Michaud, 1983] et [Regt, 1985].

Ces torches servent dans une certaine mesure de cas test pour les modèles de rayonnement avant d'extrapoler aux dispositifs de plus grande puissance pour lesquels les données expérimentales sont plus rares.

Les paramètres importants pour la définir le point de fonctionnement sont les débits et la puissance induite dans le plasma. Les débits de gaz sont directement mesurés pour toutes les expériences modélisées ici. La puissance électrique est mesurée au niveau du générateur haute fréquence, mais connaître la puissance exacte absorbée par le plasma est bien plus difficile : la différence entre les deux est la puissance dissipée par effet joule dans d'autres éléments que le plasma, à commencer par l'inducteur lui-même (cf. "Problème lié aux torches ICP: le rendement de couplage" au chapitre II). La validation des modèles est donc partielle mais le rendement de couplage qu'on est amené à utiliser lors des simulations pour reproduire les mesures de températures peut être une source d'information sur la pertinence des calculs.

1.2. Torche procédé

La détermination des flux radiatifs et des pertes par rayonnement dans les torches à plasma servant à la purification de silicium est un des objectifs de cette thèse. On a donc étudié le plasma produit dans deux installations de purification. L'une contient une torche de 40mm, alimentée par un générateur fournissant jusqu'à 35kW électriques. La deuxième installation est un pilote industriel et contient une torche de 48mm alimentée par une puissance de 50kW ou plus. Pour ces deux torches, le problème du rendement de couplage se pose également. Il est même nettement plus complexe que pour les torches d'analyse puisque le tube extérieur est une cage froide, qui peut absorber une partie de la puissance induite, de même que l'inducteur qui est un cuivre.

1.3. Calculs en argon-oxygène

Le procédé de purification se fait dans un mélange d'argon et de gaz réactifs et pas en argon pur. Les modèles de rayonnement ont donc été adaptés à un mélange argon-oxygène, afin de se rapprocher des conditions de fonctionnement du procédé de purification. Les cas décrits plus hauts ont donc été étudiés avec le mélange Ar95%, O₂ 5% en volume. Des mesures de température ont été réalisées sur la torche procédé de 40mm avec ce mélange de gaz afin d'évaluer la précision des modèles pour des mélanges. Les mesures en question seront décrites dans le chapitre IV.

2. Maillage

2.1. Torches d'analyse

On a réalisé le maillage des différentes torches sur le même principe. L'ensemble du maillage est construit autour de la zone de couplage de la torche (de $z = 0$ à $z = -H_{\text{coil}}$ sur la Figure III-1), la qualité des simulations dépendant fortement de la description de la zone de transfert d'énergie entre l'inducteur et le plasma. Le maillage de la torche d'analyse du laboratoire est représenté sur la Figure III-2. Le débit de gaz est orienté vers le haut sur ce type d'installation. Sur la Figure III-2, le maillage des éléments solides modélisés (bobine et tubes) n'est pas représenté pour des raisons de lisibilité. Pour une torche d'analyse, les puissances mises en jeu sont faibles et les trois tubes de la torche sont en quartz non refroidi. En revanche, une circulation d'eau refroidit l'inducteur. On représente pour les torches inductives un grand volume d'air (de diamètre $D \approx 15D_1$) autour de l'inducteur afin de permettre aux lignes de champs de se refermer librement, simplifiant ainsi les conditions aux limites pour le modèle d'électromagnétisme. Ce point sera détaillé dans le paragraphe suivant.

Dans la zone de l'inducteur, le maillage est resserré au niveau de l'injection des gaz et des parois : on a environ 6500 mailles dans la zone de l'écoulement délimitée par la bobine, ce qui représente une taille caractéristique de maille de l'ordre de 0,35mm.

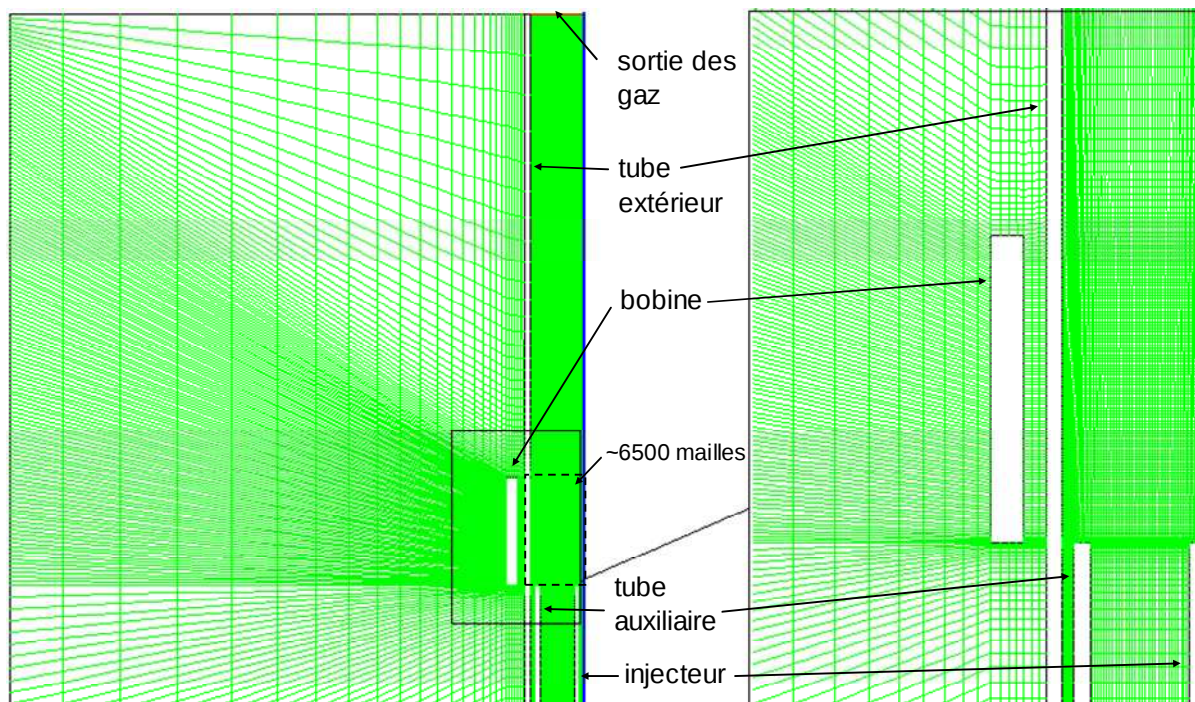


Figure III-2 : maillage d'une torche d'analyse : vue d'ensemble (gauche) et vue détaillée de la zone de couplage (droite).

2.2. Torches procédé

Pour les torches de plus grande puissance, on utilise aussi une torche à trois tubes concentriques mais qui s'intègre à un réacteur de purification. Les différentes parties de ce réacteur sont refroidies, de même que le tube externe de la torche, constitué d'une cage froide car il est exposé à des puissances beaucoup plus grandes. La cage froide étant en cuivre, elle

est chauffée par induction. De plus, le plasma est susceptible de céder une partie de son énergie vers la cage froide, notamment par rayonnement, rendant impossible l'utilisation de quartz. Au niveau de la modélisation, on doit remarquer qu'avec une simulation 2D axisymétrique, on ne peut pas représenter correctement l'induction dans la cage froide. Cette dernière est sectorisée et il n'est pas possible de la représenter exactement sans passer par des modèles 3D qui n'entrent pas dans le cadre de cette étude.

L'injecteur est également en cuivre refroidi pour les mêmes raisons. En effet, pour la purification, il est parfois utile de descendre l'injecteur dans la zone plasma (Figure III-3) pour améliorer la quantité d'espèces réactives en surface du silicium. On parle d'injecteur en position basse. Sur la Figure III-3 a, on peut remarquer que l'injecteur n'est pas maillé. Dans ce cas, il est supposé parfaitement conducteur et pris en compte dans le modèle d'induction comme une condition aux limites de potentiel vecteur nul. Cependant, l'inducteur étant un conducteur imparfait, éventuellement positionné au niveau de la zone de couplage, on doit se poser la question de son influence exacte sur l'induction au sein du plasma. Pour ce faire, on a modélisé le même système mais en tenant compte des courants induits réellement dans l'injecteur (Figure III-3 b). Ce point sera également abordé dans le paragraphe suivant.

Le déflecteur en revanche est en matériau réfractaire et n'est pas refroidi.

Le bas du réacteur est en général constitué de silicium liquide. Comme on l'a vu dans le chapitre I (Figure I-3), le silicium forme un dôme. Ce phénomène n'est pas pris en compte dans les simulations et on considère ce dôme comme horizontal et à la température de fusion du silicium.

Lorsque que la cible à purifier n'est pas présente (c'est le cas lorsqu'on réalise des mesures par spectrométrie optique d'émission sur cette installation, cf. chapitre VI), on abaisse simplement le niveau inférieur du réacteur jusqu'à une distance de 15cm sous la sortie de la torche.

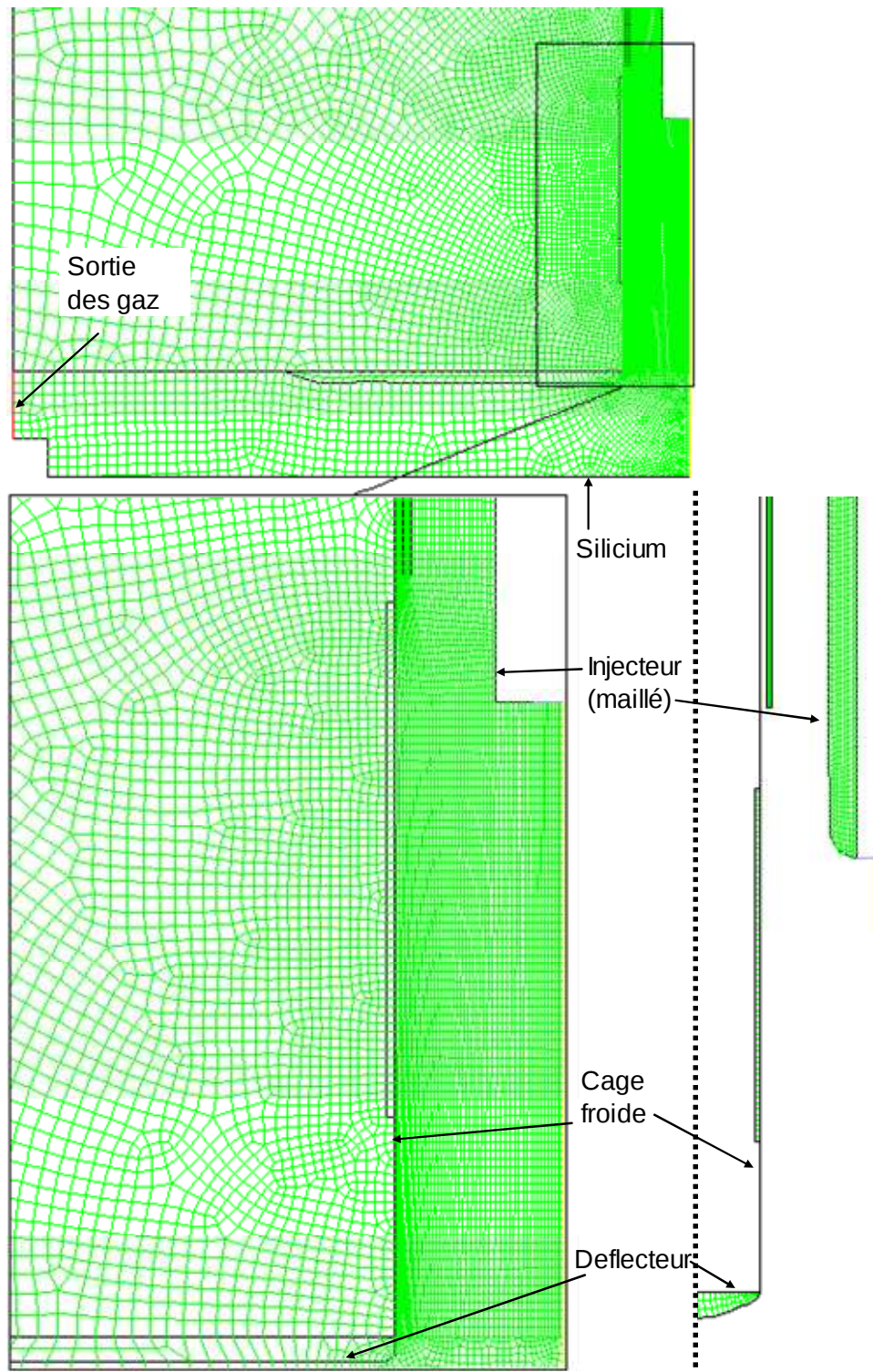


Figure III-3 : (a, gauche) injecteur non maillé, (b, droite) injecteur maillé.

3. *Modèle hydrodynamique et thermique*

3.1. Equations du modèle

A pression atmosphérique, et sous l'hypothèse d'équilibre thermodynamique local (ETL) discutée au chapitre II, un plasma se comporte comme un fluide, même s'il devient conducteur sous l'effet de l'induction. L'écoulement dans une torche à plasma est donc résolu à partir des équations de conservation de la mécanique des fluides :

Equation de continuité :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\nabla \cdot (\rho \vec{u}) \quad \text{III. 1}$$

Avec ρ la masse volumique et $\vec{u}$ la vitesse.

Equation de quantité de mouvement :

$$\frac{\partial \rho \vec{u}}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \vec{u} \vec{u} + \bar{p} \bar{I} - \bar{\tau}) = q(\vec{E} + \vec{u} \times \vec{B}) + \vec{J} \times \vec{B} \quad \text{III. 2}$$

Avec p la pression, $\bar{\tau}$ la matrice des contraintes visqueuses calculée à l'aide de la viscosité dynamique μ , q la densité locale de charges (qui sera négligée par la suite), $\vec{E}$ le champ électrique, $\vec{B}$ le champ magnétique et $\vec{J}$ la densité de courants induits, calculée à partir de la conductivité électrique σ . Dans III. 2, on néglige le terme dû au poids du gaz devant les autres forces en présence.

Le membre de droite de III. 2 représente les forces induites dans le milieu. Elles seront détaillées dans le paragraphe sur le module d'induction. Un premier couplage apparaît donc entre les équations décrivant le champ électromagnétique et l'équation de quantité de mouvement : le couplage induction $\rightarrow$ écoulement.

Equation d'énergie :

$$\frac{\partial \rho \left(h + \frac{u^2}{2} \right)}{\partial t} + \nabla \cdot \left(\vec{u} \left(\rho h + \frac{\rho u^2}{2} + p \right) \right) = \nabla \cdot \left(\lambda \vec{\nabla} T + \bar{\tau} \cdot \vec{u} \right) + P_J + P_R \quad \text{III. 3}$$

$$h = \int_{T_{ref}}^T C_p(T) dT \quad \text{III. 4}$$

Avec h l'enthalpie du gaz, C_p la capacité calorifique du gaz, λ la conductivité thermique effective du gaz, P_J la puissance joule et P_R l'énergie nette rayonnée par unité de temps et de volume. Ces deux derniers termes traduisent donc le couplage entre thermique et électromagnétisme (P_J) et entre thermique et rayonnement (P_R).

La présence d'une seule température dans ce modèle traduit l'hypothèse d'équilibre thermique entre toutes les particules, y compris les électrons malgré leur accélération par le champ électrique. De même, les propriétés du mélange (ρ , μ , σ , C_p , λ) ne font pas apparaître explicitement la composition du mélange de gaz (proportion d'électrons, d'ions, d'atomes et de molécules de différents types) car cette composition est supposée fonction de T seulement, d'après l'hypothèse d'équilibre chimique local : on retrouve la traduction de l'équilibre thermodynamique local décrit au chapitre II, seul le rayonnement n'est pas en équilibre.

En toute rigueur, les réactions chimiques sont couplées avec l'équation d'énergie. Cependant comme l'équilibre chimique local est supposé dans cette étude, les termes liés à la diffusion des espèces (démixtion) ou à la nature exothermique ou endothermique des réactions chimiques n'apparaissent pas. Le mécanisme de démixtion n'entre pas dans le cadre de cette étude et sera négligé. En revanche, la consommation ou libération d'énergie par les

réactions chimiques (la dissociation d'O₂ dans un mélange Ar-O₂ par exemple) est prise en compte, dans l'hypothèse de l'ETL, sous la forme de termes supplémentaires dans le calcul des propriétés de transport : la chaleur réactionnelle est intégrée au C_p et la conductivité réactionnelle apparaît dans la conductivité thermique. Nous reviendrons sur cet aspect des modèles un peu plus loin dans ce chapitre.

3.2. Conditions aux limites

La sortie des gaz du réacteur (en rouge sur la Figure III-2 et la Figure III-3) est reliée au milieu ambiant, on a donc pour cette frontière par où sort le fluide :

$$P = P_{atm} \quad \text{III. 5}$$

On a également pour les sorties de gaz, en notant n la normale à la frontière :

$$\frac{\partial u_r}{\partial n} = \frac{\partial u_z}{\partial n} = \frac{\partial u_\theta}{\partial n} = 0, \quad \frac{\partial T}{\partial n} = 0 \quad \text{III. 6}$$

L'axe de symétrie impose les conditions aux limites suivantes :

$$\frac{\partial P}{\partial r} = 0, \quad \frac{\partial T}{\partial r} = 0, \quad \frac{\partial u_z}{\partial r} = 0, \quad u_r = 0 \quad \text{III. 7}$$

Pour les aménages de gaz, on obtient la composante axiale de la quantité de mouvement vitesse à l'aide des débits, les sections de passage étant connues. Il est également possible d'imposer une composante tangentielle u_θ à la vitesse en entrée pour représenter l'écoulement tourbillonnaire (« swirl ») utilisé dans certaines torches pour stabiliser le plasma. Concrètement le swirl est utilisé dans les torches procédé que nous avons étudiées, pour les débits extérieur et intermédiaire, mais pas dans les torches d'analyse modélisées ici. Les gaz sont introduits dans la torche à température ambiante et on a pour les entrées du gaz :

$$T = T_{amb}, \quad u_z = u_{ent}, \quad u_\theta = u_{swirl}, \quad u_r = 0 \quad \text{III. 8}$$

Au niveau des parois du réacteur, on impose une condition de non glissement pour l'hydrodynamique. Grâce aux couches limites maillées près des parois du tube, il est possible d'utiliser un modèle à deux couches pour résoudre l'écoulement près des parois. En pratique on va résoudre une sous couche laminaire près des murs, le reste de l'écoulement étant résolu avec des modèles turbulents (voire paragraphe 4). Si la surface est refroidie, on impose $T = 300K$ pour la thermique, sinon, on impose une condition aux limites "couplée" sur la paroi, c'est-à-dire que le flux de chaleur se transmet intégralement au domaine solide de la paroi (qui doit être maillé) avec continuité de la température. Dans le cas des torches d'analyse, le tube extérieur de la torche est refroidi par convection naturelle. On impose donc un flux de chaleur sur la face externe de ce tube de la forme :

$$q_{tube\ exterieur} = h(T - T_{amb}) \quad \text{III. 9}$$

Avec $h = 50W.m^{-2}.K^{-1}$.

Lorsqu'on réalise un calcul sur une torche procédé avec une charge de silicium, la paroi inférieure du domaine représentant le silicium liquide est à température imposée $T=1680K$.

4. La turbulence

Les premiers modèles de plasmas inductifs supposaient un écoulement laminaire. De nombreux modèles couplés thermique/écoulement/induction ont été proposés sous cette hypothèse : [Boulos, 1980], [Mostaghimi, 1984, 1985, 1990]. La même équipe a ensuite évolué vers des modèles de type κ - ε pour décrire la turbulence dans les torches ICP. L'étude par [El-Hage, 1989] montre que les deux régimes d'écoulement sont susceptibles d'apparaître, notamment sous l'effet de l'écoulement hélicoïdal stabilisateur aussi appelé swirl. Les calculs ont montré que la viscosité turbulente était de l'ordre de grandeur de la viscosité laminaire dans la zone chaude de la torche. Celle-ci est donc laminaire tandis que la zone froide près des parois devient turbulente sous l'effet du gradient de vitesse important imposé par le débit plasmagène et des variations de viscosité avec la température.

Cette approche a été conservée ici et le modèle RNG κ - ε et les lois de paroi 'améliorées' proposés par Fluent© ont été utilisés. On résout deux équations de transport supplémentaires [Launder, 1974], l'une correspondant au taux de production d'énergie cinétique turbulente κ , et l'autre à la dissipation de cette énergie :

$$\frac{\partial(\rho\kappa)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho\kappa u_i)}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\alpha_\kappa \mu \frac{\partial \kappa}{\partial x_j} \right) + G_\kappa + G_b - \rho\varepsilon - Y_M \quad \text{III. 10}$$

$$\frac{\partial(\rho\varepsilon)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho\varepsilon u_i)}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\alpha_\varepsilon \mu \frac{\partial \varepsilon}{\partial x_j} \right) + C_1 \frac{\varepsilon}{\kappa} (G_\kappa + C_3 G_b) - C_2 \rho \frac{\varepsilon^2}{\kappa} - R_\varepsilon \quad \text{III. 11}$$

Avec α_κ et α_ε les nombres de Prandtl effectifs inverses relatifs aux quantités κ et ε , G_κ la production d'énergie turbulente due aux gradients de vitesses, G_b celle due à la flottabilité. Y_M représente les effets de compressibilité du fluide et les C_i sont des constantes. La viscosité μ tient compte de la viscosité turbulente locale μ_T (grâce à la théorie RNG ou 'renormalisation group', qui autorise des zones laminaires).

Près des parois, le frottement calculé permet de définir une épaisseur de sous couche visqueuse. Pour les mailles situées dans la sous couche visqueuse le modèle dégénère en un modèle à une équation de transport III. 10 modifiée), et les lois de paroi dégénèrent en $u_t=0$ et $\partial\kappa/\partial n=0$ (u_t est la vitesse tangente). Si la première maille est situé hors de cette sous couche (c'est le cas dans le réacteur pour les torches procédé), la loi de paroi reste la loi logarithmique habituelle (relation entre u_t et τ) et les conditions aux limites pour III. 10 et III. 11 restent celles du modèle κ - ε standard [Launder, 1974].

e modèle de turbulence est relativement simple mais il influe peu sur la zone de l'écoulement qui nous intéresse le plus, celle où les transferts radiatifs sont les plus importants, c'est-à-dire la zone la plus chaude dans la torche. Nos calculs montrent que la turbulence se développe majoritairement en amont de l'inducteur ($v_{\text{turb}}/v_{\text{lam}} \approx 10$) et dans le panache loin en aval de la zone de couplage ($v_{\text{turb}}/v_{\text{lam}} \approx 50$). Dans la partie chaude du plasma au niveau de l'inducteur (à quelques millimètres des parois), ce rapport est inférieur à 1. Nous avons donc estimé que ce modèle décrivait suffisamment bien la turbulence étant donné le domaine d'étude visé.

5. L'électromagnétisme : le module Induc2D.

5.1. Description du module d'induction

Les phénomènes d'induction dans le plasma peuvent être décrits par les équations de Maxwell dans un milieu chargé amagnétique et non polarisable. On fait généralement l'hypothèse de la neutralité du plasma (le rayon de la sphère de Debye, III. 27, est très faible) qui s'applique à l'équation III. 12 et d'instantanéité de la propagation des champs électrique et magnétique qui permet la simplification de III. 14.

$$\nabla \cdot \vec{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0} = 0 \quad \text{III. 12}$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0 \quad \text{III. 13}$$

$$\frac{\nabla \times \vec{B}}{\mu_0} - \epsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} = \frac{\nabla \times \vec{B}}{\mu_0} = \vec{J} \quad \text{III. 14}$$

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad \text{III. 15}$$

Le théorème de Gauss magnétique (III. 13) implique qu'il existe un potentiel vecteur $\vec{A}$ vérifiant :

$$\vec{B} = \nabla \times \vec{A} \quad \text{III. 16}$$

$\vec{A}$ n'est pas défini de manière unique par l'équation III. 16 et on va utiliser la jauge de Coulomb pour lever cette difficulté :

$$\nabla \cdot \vec{A} = 0 \quad \text{III. 17}$$

En introduisant le potentiel vecteur dans l'équation de Faraday III. 12, on obtient :

$$\vec{E} = -\frac{\partial \vec{A}}{\partial t} - \vec{\nabla} \phi \quad \text{III. 18}$$

Les champs électrique et magnétique peuvent donc s'exprimer en fonction d'un potentiel scalaire (Φ) et du potentiel vecteur $\vec{A}$. On parle de formulation A-V car le potentiel scalaire Φ est souvent noté V (comme 'voltage') en électromagnétisme, mais on risque des confusions avec la vitesse.

La densité de courant s'exprime par la loi d'Ohm, qui s'écrit avec cette formulation:

$$\vec{J} = \sigma(\vec{E} + \vec{u} \times \vec{B}) = \sigma \left(-\vec{\nabla} \Phi + \vec{u} \times \vec{B} - \frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \right) \quad \text{III. 19}$$

En injectant l'équation III. 19 dans III. 14 et en appliquant la jauge de Coulomb (III. 17), on obtient l'équation de l'induction en formulation A-V:

$$\Delta \vec{A} = \mu_0 \sigma \left(-\vec{\nabla} \Phi + \vec{u} \times (\nabla \times \vec{A}) - \frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \right) \quad \text{III. 20}$$

Le calcul du nombre de Reynolds magnétique montre que les effets convectifs n'interviennent pas dans la distribution du champ magnétique :

$$R_m = \mu_0 \sigma L \approx 4\pi \cdot 10^{-7} \cdot 4 \cdot 10^3 \cdot 40 \cdot 0,01 = 2 \cdot 10^{-3} \quad \text{III. 21}$$

Avec L la distance caractéristique de variation de $\vec{B}$ et σ la conductivité électrique. On peut alors négliger le terme $\vec{u} \times (\nabla \times \vec{A})$ dans III. 20.

Dans l'hypothèse de systèmes 2D et axisymétriques, le potentiel vecteur n'a qu'une composante selon θ , et est solution d'une équation purement diffusive :

$$0 = -\Delta A_\theta + \frac{A_\theta}{r^2} - \mu \sigma \frac{\partial \phi}{r \partial \theta} - \mu \sigma i \omega A_\theta \quad \text{III. 22}$$

Où $\partial \Phi / r \partial \theta$ est non nul seulement dans la bobine. Le champ électromagnétique est résolu dans tout le domaine, y compris les solides. L'utilisation pratique ce module d'induction requiert également de prévoir un large domaine autour de l'inducteur ou les lignes de champs doivent pouvoir se refermer. Le type de conditions pour A_θ (Neumann ou Dirichlet) utilisées sur la frontière extérieure n'intervient alors pratiquement pas sur le champ dans la bobine.

Les phénomènes d'induction sont couplés avec l'hydrodynamique et avec la thermique. Ainsi, un terme source de chauffage par effet Joule est introduit dans l'équation d'énergie :

$$P_J = \frac{J^2}{\sigma} \quad \text{III. 23}$$

Des forces doivent également être introduites dans l'équation de quantité de mouvement

$$\vec{F} = \vec{J} \times \vec{B} \quad \text{III. 24}$$

Ce module de résolution a déjà été utilisé par le passé. [Delannoy, 2002] l'a développé et utilisé pour simuler le chauffage et le brassage de silicium liquide par induction.

Ce type d'approche de l'induction dans un fluide conducteur a également été utilisé par [Xue, 2002] pour des plasmas inductifs.

5.2. Conditions aux limites

En étendant le domaine de calcul à des régions éloignées de l'inducteur, on peut appliquer la condition aux limites de potentiel vecteur nul sur toutes les frontières du domaine :

$$A(+\infty, z) = 0, A(r, \pm\infty) = 0 \quad \text{III. 25}$$

à part l'axe de symétrie où l'utilisation de l'axisymétrie dans Fluent© impose :

$$\frac{\partial A}{\partial r} = 0 \quad \text{III. 26}$$

Toutes les parois internes du domaine sont traitées avec une condition aux limites couplée pour l'électromagnétisme, y compris l'injecteur lorsque celui-ci est maillé (Figure III-5, droite). Lorsqu'on n'inclut pas l'injecteur dans le domaine de calcul (Figure III-5, gauche), on impose un potentiel vecteur nul sur la paroi de l'injecteur.

La Figure III-4 montre les champs de température obtenus avec les deux maillages proposés plus tôt (Figure III-3). Les paramètres pour les deux calculs sont $P = 19600W$, $Q_1 = 80L/min$, $Q_2 = 3.4L/min$ et $Q_3 = 2.9L/min$.

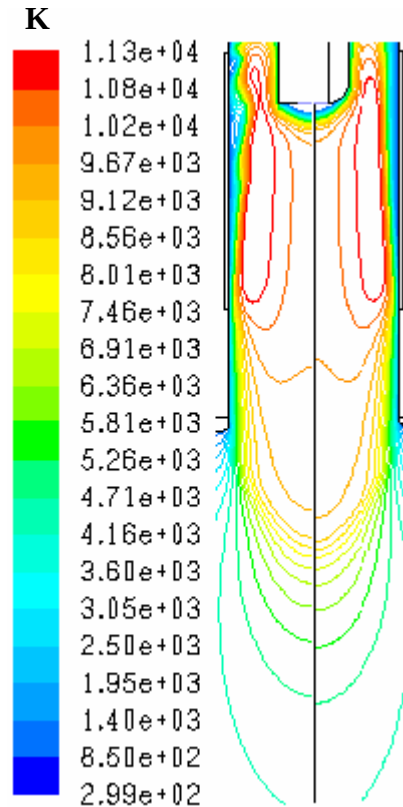


Figure III-4 : champs de température calculés avec le modèle P1 sur une torche de 40mm avec un injecteur maillé (droite), et sans mailler l'injecteur (gauche).

Les températures obtenues sont très proches dans les deux cas. La différence majeure entre les deux calculs réside dans l'apparition d'instabilités de cisaillement entre le plasma et l'écoulement extérieur froid et dense lorsque l'injecteur n'est pas maillé. Ces instabilités apparaissent parfois aussi dans les calculs où l'injecteur est maillé, ou dans les calculs à injecteur arrondi et non-maillé, mais la configuration la plus stable est celle où l'injecteur est maillé et arrondi.

D'après nos calculs, les courants induits dans l'injecteur sont inférieurs de plusieurs ordres de grandeurs à ceux que l'on observe dans le plasma. Le fait de mailler l'injecteur, qui permet d'obtenir précisément la distribution de ces courants dans l'injecteur, n'est donc pas capital.

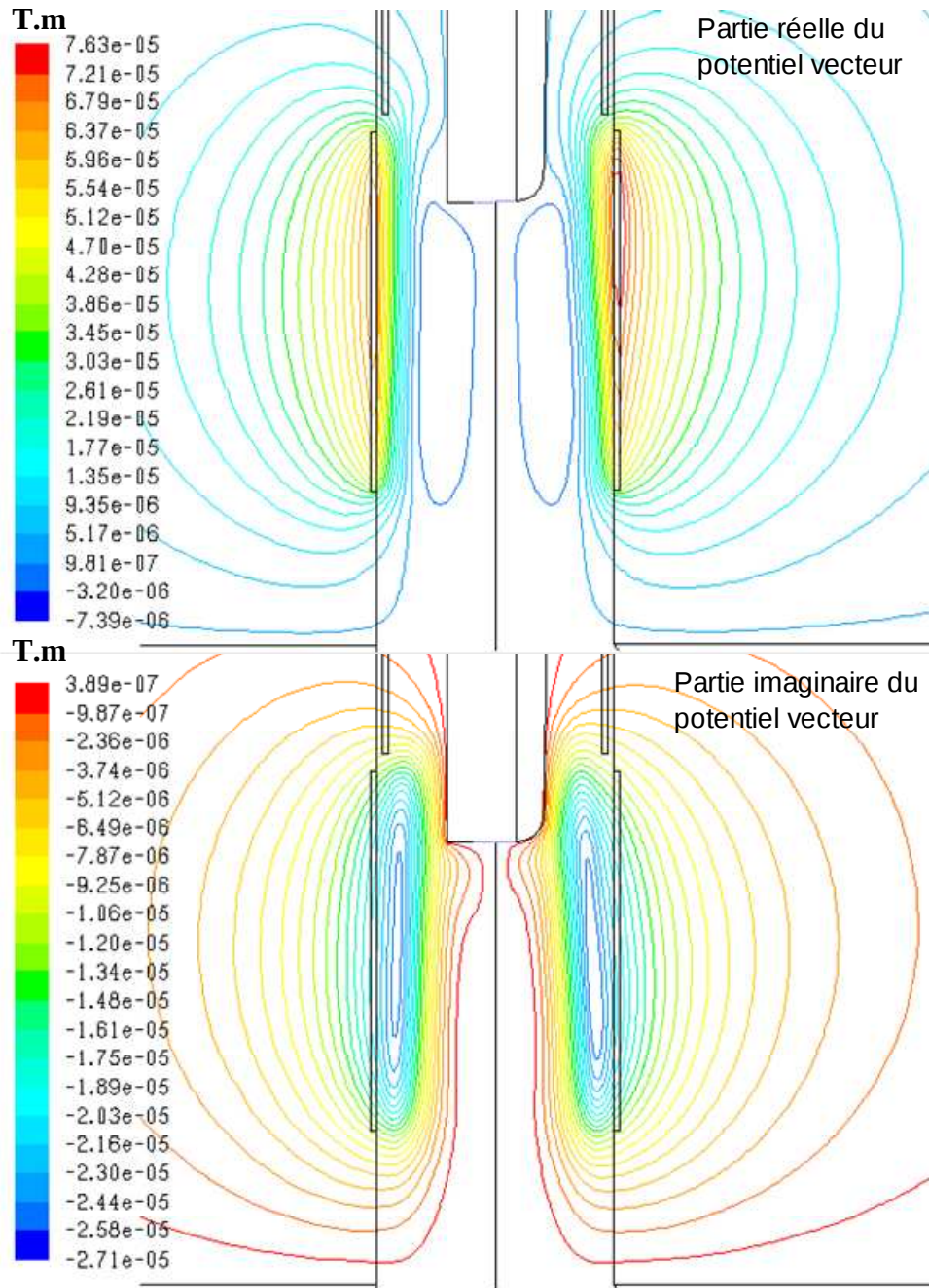


Figure III-5 : potentiel vecteur une torche de 40mm avec un injecteur maillé (droite), et sans mailler l'injecteur (gauche).

$P = 19600W$, $Q_1 = 80L/min$, $Q_2 = 3.4L/min$ et $Q_3 = 2.9L/min$.

Dans les simulations de torches d'analyse comme de torche procédé, on ne décrit pas les différentes spires de l'inducteur. La bobine est considérée comme une nappe de courant. Cela revient à négliger les effets d'inhomogénéité du champ induits par les différentes spires. Cependant, les travaux de [Xue, 2001] ont montrés que la prise en compte des différentes spires de l'inducteur n'induisait pas de grandes modifications du champ par rapport à des modèles plus simples.

En outre, dans le cas de la torche procédé, la source d'induction est une fine couche à courant imposée, placée à l'intérieur de la cage froide sur la hauteur de la bobine (Figure III-5). La bobine réelle, placée à l'extérieur de la cage froide, n'est donc pas modélisée. Ceci implique que le couplage du champ sur la cage froide n'est pas prise en compte, de même que le profil de courants induits sur la paroi interne de cette cage froide (on le suppose constant

sur la hauteur de la bobine et nul ailleurs). Le premier inconvénient est éliminé en travaillant à puissance imposée (il s'agit de la puissance induite dans le plasma). Pour tenir compte du couplage dans la cage froide, on doit donc inclure cet effet dans le rendement de couplage. Cette donnée n'est généralement pas disponible et on doit se contenter d'évaluations relativement imprécises. La connaissance du rendement de couplage serait un paramètre important pour l'amélioration de nos modèles.

Le profil des courants induits dans la cage froide en présence de plasma, est également une donnée difficile à obtenir. Un test a été réalisé en utilisant un profil de courant trapézoïdal (plutôt que constant) sur une hauteur supérieure à celle de la bobine. Cette modification n'a pas influencé les résultats de manière significative.

6. La chimie ou le problème de la composition du plasma

La modélisation des réactions chimiques dans le plasma n'est pas le but de cette étude. Pour simplifier ce problème complexe, on a supposé ici que les réactions chimiques parviennent à atteindre un équilibre dans le plasma, ce qui n'est que partiellement le cas, comme l'a montré [Pelletier, 2006].

Pour calculer les propriétés des plasmas d'argon et d'argon-oxygène, il est nécessaire de connaître la concentration des principales espèces présentes dans le plasma. Il s'agit de Ar et Ar^+ dans les plasmas d'argon, auxquels s'ajoutent O, O_2 , O_2^+ et O^+ dans les plasmas contenant également de l'oxygène, et bien sûr des électrons libres assurant l'équilibre des charges.

Cet équilibre des charges est vérifié en tout point du plasma dans l'hypothèse de l'ETL. On peut se faire une idée plus précise de la justesse de cette supposition en calculant la longueur de Debye :

$$\rho_D(N_{e-}) = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T}{2q^2 N_{e-}}} \approx \left(\frac{8,9 \cdot 10^{-12} \cdot 1,38 \cdot 10^{-23} \cdot 10^4}{2 \cdot (1,6 \cdot 10^{-19})^2 \cdot 1,5 \cdot 10^{22}} \right)^{1/2} = 4 \cdot 10^{-8} \text{ m} \quad \text{III. 27}$$

Cette dernière étant très petite devant les dimensions du plasma, l'hypothèse de neutralité en tout point du plasma est correcte.

On peut résoudre des équations de Saha (II. 9) pour obtenir les densités d'espèces ionisées dans le plasma mais de manière générale, on a utilisé un code dédié au calcul de la composition et des propriétés de transport dans l'hypothèse de l'ETL. Il s'agit de T&Twinner, développé au CPAT par Pateyron et son équipe ([Pateyron, 2005], [T&Twinner, 2006]). Ce code détermine la composition et les propriétés thermodynamiques du plasma par minimisation de l'énergie libre de Gibbs. Les propriétés de transport sont, selon la méthode de Chapman-Enskog, la conséquence en terme de flux d'un petit écart à l'équilibre introduit dans les équations intégral-différentielles de Boltzmann (qui décrivent la fonction de distribution des vitesses de chaque espèce), et se déduisent des intégrales de collisions entre chaque couple d'espèces en présence (le nombre de ces couples croît donc comme le carré du nombre N d'espèces). Ces intégrales de collisions n'étant pas systématiquement disponibles et vérifiables, le code TT-Winner utilise une représentation simplifiée des interactions entre particules distinctes basée sur un potentiel pour chaque espèce (N potentiels à connaître). Différents potentiels sont implantés en fonction des données disponibles pour les ions (potentiel coulombien ou tables), les neutres (potentiel de Lennard-Jones, de Stockmayer, ou à défaut sphère rigide) et pour les collisions électrons-lourds [Pateyron, 2003].

La Figure III-6 et la Figure III-7 montrent les concentrations obtenues avec T&Twinner pour l'argon pur et un mélange composé à 95% d'argon et à 5% d' O_2 molaire. Dans le cas du mélange argon- O_2 , les seules espèces présentant une concentration significative dans la plage de température considérées sont O, O^+ , O_2 , Ar et Ar^+ .

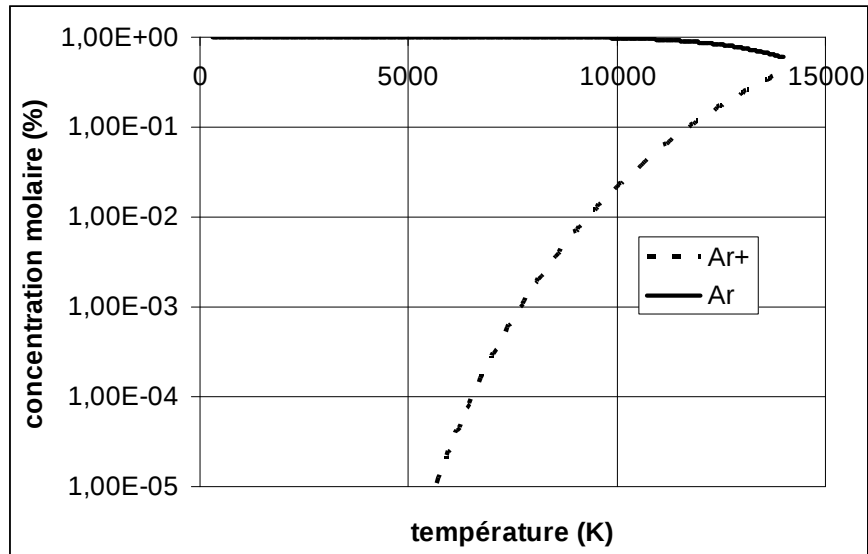


Figure III-6 : concentrations des différentes espèces présentes dans un plasma d'argon en fonction de la température, obtenues avec T&Twiner.

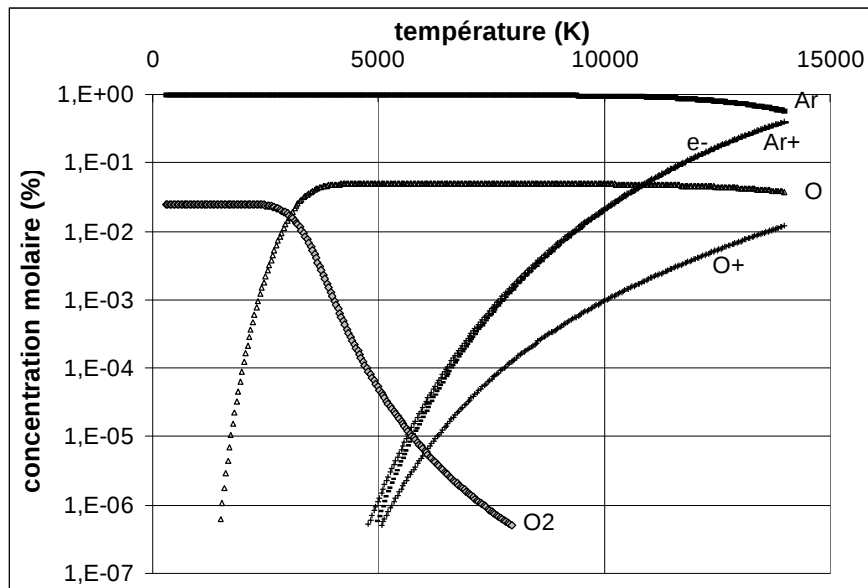


Figure III-7 : concentrations des différentes espèces présentes dans un plasma 95% Ar, 5% O₂ (molaire) obtenues avec T&Twiner en fonction de la température.

Les propriétés de transport et thermodynamiques pour ces deux mélanges sont données sur la Figure III-8. On n'observe pas de différences significatives entre les deux mélanges, sauf pour la conductivité thermique où la dissociation du dioxygène induit un pic aux alentours de 4000K. Il faut noter que les propriétés de l'oxygène pur diffèrent bien plus de celles de l'argon mais un mélange à 5% d'O₂ molaire à 300K semble se comporter globalement comme de l'argon pur pour ces propriétés.

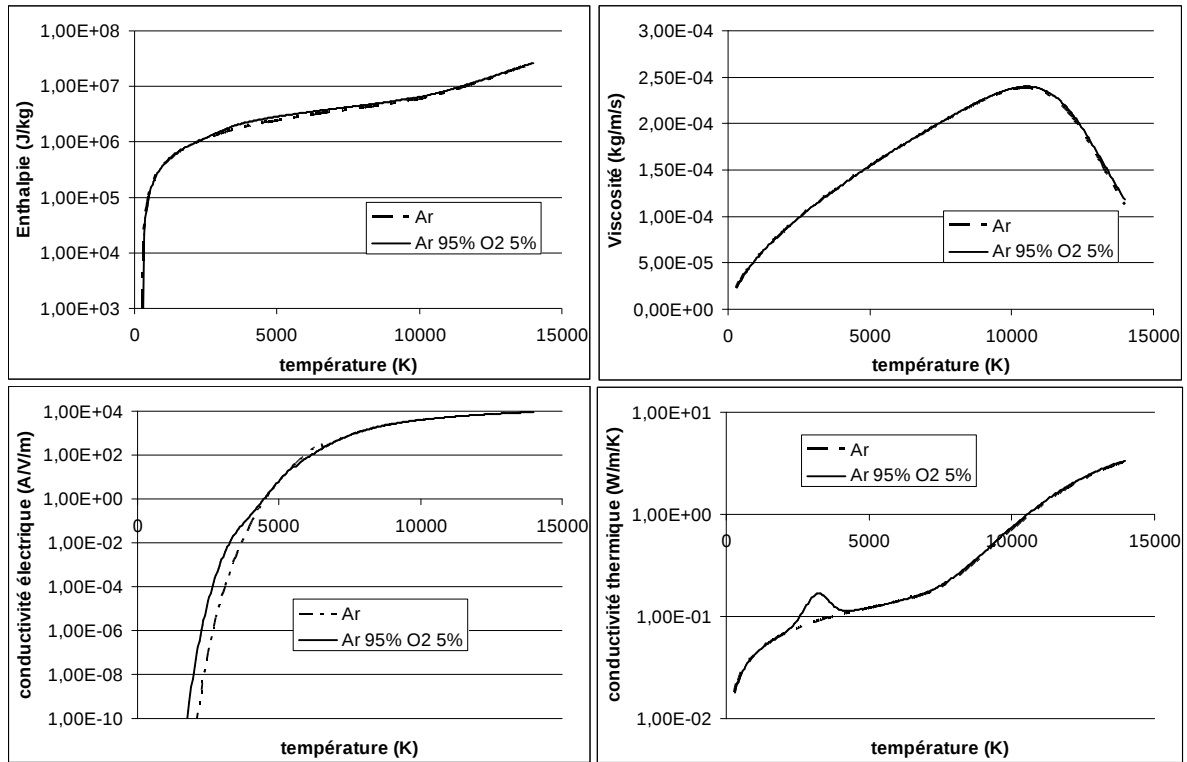


Figure III-8 : propriétés de transport des deux gaz considérés : Ar et Ar90% O10% en fonction de la température obtenues avec T&Twiner.

7. Les couplages radiatifs

Parmi les modèles présentés au chapitre 2, plusieurs ont été utilisés selon les cas d'application. On présente ici leur couplage avec les autres modèles utilisés pour décrire le plasma.

7.1. La méthode CEN

La méthode du CEN fournit le terme puits de l'équation d'énergie en fonction de la température de manière directe. On tabule l'émissivité totale ϵ_N (W/sr) intégrée sur tout le spectre, dans une base de données en fonction de la température et de la composition du gaz. Les variations de concentration avec la température doivent être prises en compte au moment de la réalisation de la base de données. Ce point sera détaillé dans le chapitre suivant. Le terme puits résultant est :

$$P_R = 4\pi\epsilon_N(T) \quad \text{III. 28}$$

Le couplage entre rayonnement et thermique est donc direct dans ce cas puisqu'on lit simplement les termes de couplage dans un tableau. Cette méthode a été utilisée afin de réaliser un calcul du rayonnement simplifié dans les cas où on s'intéresse à d'autres phénomènes. La méthode du CEN, très bien décrite dans la littérature a également servi de première base de validation des calculs faits avec des modèles plus complexes car elle permet d'obtenir des valeurs correctes de la température dans un grand nombre de cas d'étude.

7.2. Le modèle DO

7.2.1. Utilisation du modèle

Le modèle DO cause des temps de calcul trop longs lorsqu'on veut traiter les phénomènes d'émission/absorption dans un milieu non gris, c'est-à-dire, lorsqu'on doit discrétiser le spectre. Cependant, il utilise une discrétisation des différentes directions de propagation possibles (découpage des 4π stéradians en typiquement 32 directions discrètes) et décrit donc correctement la propagation des rayons lumineux aux longueurs d'onde où le plasma est optiquement fin. Au contraire, le modèle P_1 , qui est purement diffusif, est mieux adapté aux milieux optiquement épais, où la propagation se fait par une succession d'absorption et d'émission (isotrope) qui finissent par perdre trace de la direction initiale.

Le modèle DO, disponible dans Fluent, a été utilisé ici pour décrire la propagation du rayonnement aux longueurs d'onde pour lesquelles l'absorption est négligeable, dans le cas où les raies auto-absorbées sont, elles, décrites par le modèle P_1 .

L'idée est d'utiliser le modèle DO à la seule fin d'obtenir la répartition géométrique des pertes radiatives directes (c'est-à-dire, sans réabsorption partielle) dans l'enceinte considérée. L'émission correspondant aux longueurs d'onde pour lesquelles le plasma est optiquement mince est injectée de manière isotrope comme terme source dans le modèle DO avec un coefficient d'absorption nul (II. 39).

7.2.2. Conditions aux limites

La méthode du CEN consiste à traiter le rayonnement comme un puits pour l'équation d'énergie. La destination de ces pertes radiatives n'est pas calculée, ce qui supprime le problème des conditions aux limites. Cependant, en utilisant un modèle DO pour un milieu purement émetteur, on peut déterminer dans quelles zones du réacteur vont se concentrer ces pertes. En tenant compte de cette répartition, on doit alors se donner une condition aux limites pour les parois, et leur émissivité devient un paramètre important pour calculer l'intensité radiative dans le réacteur. Pour un modèle DO, l'émissivité de la paroi détermine quelle fraction de l'intensité radiative est absorbée et quelle fraction est réfléchie. La Figure III-9 montre l'intensité radiative pour un plasma d'Argon dont le rayonnement est calculé par CEN et propagé par le modèle DO dans un réacteur de purification ($P=9\text{kW}$, $Q_1 = 94\text{L/min}$, $Q_2 = 3.3\text{L/min}$ et $Q_3 = 1\text{L/min}$) avec une cible de silicium liquide et pour deux jeux de valeur d'émissivité des parois. Ces deux jeux de valeur pour l'émissivité des parois sont donnés dans le Tableau III-2. Pour certains matériaux du réacteur, la valeur de l'émissivité n'est pas forcément bien connue (notamment pour le silicium liquide ou les tubes en quartz). On a alors choisi des valeurs extrêmes parmi celles qui sont disponibles afin de mettre en évidence l'effet des conditions aux limites. L'hypothèse de corps gris diffus pour les composants du réacteur est de toute façon discutable.

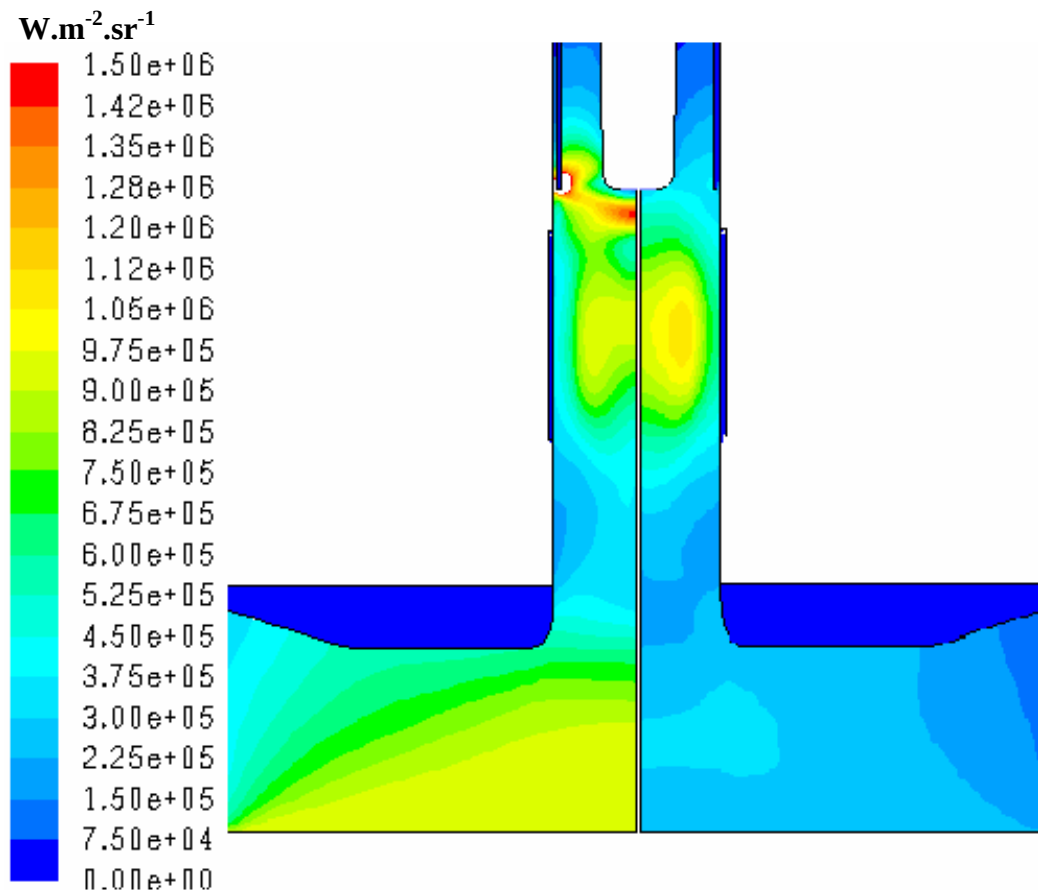


Figure III-9 : intensité radiative dans le réacteur de purification :
 (a, gauche) pour une émissivité égale à 1 pour les parois.
 (b, droite) émissivités des parois adaptée à chaque matériau.

Tableau III-2 : émissivités utilisées pour les parois dans les deux calculs de la Figure III-9. Les données de la deuxième colonne en été obtenues en recoupant les valeurs publiées par différents site commerciaux proposant des matériaux conçus pour les hautes températures.

1.		2.	Figure III-9a	3.	Figure III-9b
4.	Cible (Si liquide)	5.	1	6.	0.15
7.	Creuset (graphite)	8.	1	9.	0.8
10.	Défecteur (silice)	11.	1	12.	0.1
13.	Cage froide (cuivre oxydé)	14.	1	15.	0.7
16.	Injecteur (cuivre oxydé)	17.	1	18.	0.7
19.	Inducteur (cuivre oxydé)	20.	1	21.	0.7
22.	Tube auxiliaire (quartz)	23.	1	24.	0.03

Ces figures montrent bien l'importance des conditions aux limites dans la détermination des flux radiatifs dans le réacteur. L'utilisation d'un modèle CEN sans modèle DO revient à considérer toutes les parois comme transparentes (puisque les pertes radiatives sortent automatiquement du réacteur), ce qui peut amener des erreurs. Par ailleurs, la présence de la cible de silicium liquide à 1680K impose de tenir compte de son émissivité. En effet, celle-ci rayonne plusieurs kW dans l'enceinte (2.86kW pour $\epsilon=0.2$ et 14.3kW pour $\epsilon=1$). Le gaz n'étant pas absorbant pour notre modèle DO, cette chaleur va se répartir entre les différentes parois du réacteur sans influencer directement les champs de températures dans le plasma.

Lorsqu'on représente les parois par un corps noir, on obtient des intensités radiatives surestimées près de l'injecteur et du tube auxiliaire. De plus, l'intensité émise par la cible est

du même ordre que celle émise par le plasma, ce qui semble peu crédible. Les résultats obtenus avec des émissivités adaptées pour les parois nous semblent plus cohérents.

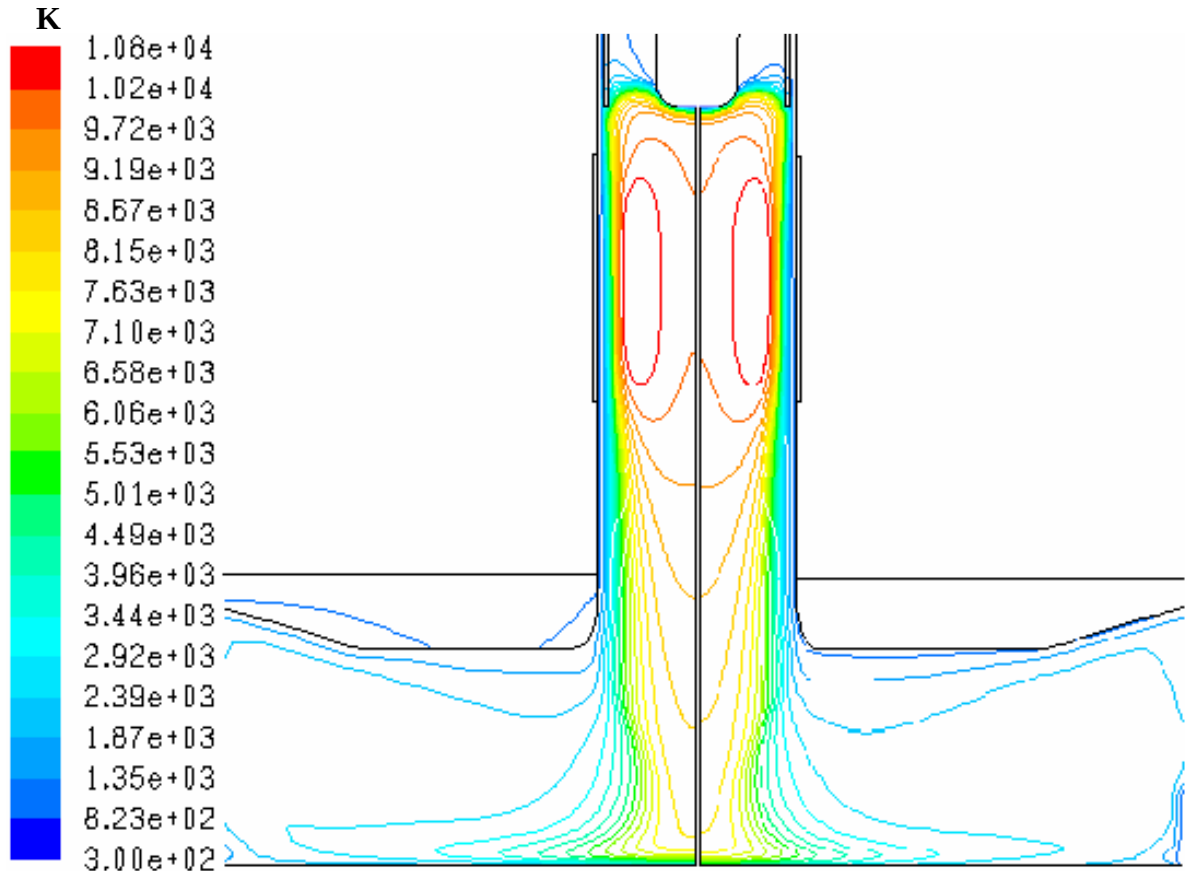


Figure III-10 : champ de température en fonction de l'émissivité des parois :

(a, gauche) : $\varepsilon = 1$ partout.

(b, droite) : ε adapté au matériau (Tableau III-2).

Les conditions aux limites radiatives ne modifient pas la température du gaz, puisque celui-ci n'absorbe pas le rayonnement incident du modèle DO (l'absorption a déjà été prise en compte par le modèle CEN lors de son calcul de l'émission). Les conditions aux limites ne peuvent donc influencer que la température des parois quand celle-ci n'est pas imposée. Les parois refroidies du réacteur (injecteur, cage froide, etc.) sont à température imposée et c'est alors les flux absorbés qui dépendent de l'émissivité de la paroi.

Par exemple, le flux émis par le silicium est majoritairement absorbé par les parois refroidies du réacteur. Une part de cette puissance rayonnée est également absorbée par le déflecteur qui atteint des températures de l'ordre de 900K si l'on ne tient pas compte des émissivités propres à chaque matériau (Figure III-10).

7.3. Le modèle P1 par bandes

C'est un modèle spectral (où par bandes), que nous avons développé avec l'aide du support Fluent (en standard, le modèle P1 de Fluent n'est pas spectral). L'équation III. 29 est donc résolue pour chaque plage du spectre qu'on s'est définie :

$$\frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\partial G_i}{3\kappa_i \partial z} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{r}{3\kappa_i} \frac{\partial G_i}{\partial r} \right) = -\kappa_i (4\pi B_i - G_i) \quad \text{III. 29}$$

G_i étant l'intensité radiative pour la bande i du spectre. En pratique, l'utilisation du logiciel commercial Fluent© et les temps de calcul imposent une limite de 50 bandes. La

discrétisation du spectre de l'argon et de l'argon-oxygène, qui sera décrite dans le chapitre suivant, a été faite dans le but de respecter cette contrainte. La résolution de l'ETR sur ces bandes renvoie ensuite le terme puits de l'équation d'énergie lié au modèle P1 :

$$P_R = \sum_{i \text{ bandes}} -\kappa_i (4\pi B_i - G_i) \quad \text{III. 30}$$

L'utilisation de ce modèle a pour but d'étudier plus en profondeur les mécanismes d'absorption qui sont mal pris en compte avec la méthode de l'émission nette. Ce modèle permet également de ne pas utiliser de paramètre arbitraire comme le rayon plasma dans les modèles CEN. Le modèle P1 permet enfin de localiser les pertes radiatives et les flux de chaleur en paroi.

L'émissivité des parois est d'ailleurs susceptible de jouer un rôle important sur les valeurs de G dans la torche. Les conditions aux limites pour l'ETR cherchent à imposer au modèle P1 une intensité radiative sortant de la paroi, égale à son émission propre augmentée de la part réfléchie du rayonnement) :

$$I(r=r_w, \vec{s}) = I_w(r_w, \vec{s}) \text{ pour } \vec{n} \cdot \vec{s} > 0 \quad \text{III. 31}$$

r_w désignant la position de la paroi, $\vec{n}$ la normale à cette paroi et I_w l'intensité émise et réfléchie par la paroi en r_w et selon $\vec{s}$.

Dans un modèle P1, III. 31 ne peut être vérifiée que de manière intégrale, soit [Modest, 2003] :

$$G + 2\vec{q} \cdot \vec{n} = 4 \int_{\vec{n} \cdot \vec{s} > 0} I_w(\vec{s}) \cdot \vec{s} \cdot \vec{n} d\Omega = 4J_w \quad \text{III. 32}$$

Où J_w est l'émittance de la paroi.

Par ailleurs, en considérant un bilan de flux radiatif sur un élément de surface de paroi grise on obtient :

$$q_{rad} = q_{emission} + q_{reflection} - q_{irradiation} = E + \rho H - H \quad \text{III. 33}$$

Avec H le flux incident et E le flux d'émission propre ; soit pour un corps gris émettant de manière diffuse

$$q_{rad} = \varepsilon E_b + (\rho - 1)H \quad \text{III. 34}$$

E_b étant l'émittance d'un corps noir à la température du mur et ε le coefficient d'émission.

Par ailleurs, l'émittance J d'un élément de surface grise qui émet de manière diffuse est défini par :

$$J = \varepsilon E_b + \rho H \quad \text{III. 35}$$

Ce qui correspond à la réflexion et à l'émission. On vérifie que pour un corps noir ($\varepsilon=1$, $\rho=0$) on a bien $J_b = E_b$.

Il vient :

$$q_{rad} = J - H \quad \text{III. 36}$$

Notons que l'hypothèse de surface grise émettant de manière diffuse implique également :

$$\varepsilon = \alpha = 1 - \rho \quad \text{III. 37}$$

Qui lie les coefficients d'émission, d'absorption et de réflexion de la surface.

On peut alors écrire :

$$q_{rad} (1 - \varepsilon) = \varepsilon E_b - \varepsilon H - \varepsilon J + \varepsilon H \quad \text{III. 38}$$

$$\Leftrightarrow q_{rad} = \frac{\varepsilon}{1 - \varepsilon} (E_b - J) = \vec{q} \cdot \vec{n} \quad \text{III. 39}$$

Et relier les grandeurs au niveau de la paroi avec les expressions du modèle P1 comme le montre [Modest, 2003]. Injectons (III. 32) dans l'équation (III. 39) :

$$4\vec{q} \cdot \vec{n} = \frac{4\varepsilon}{1-\varepsilon} \left(E_b - \frac{G}{4} - \frac{\vec{q} \cdot \vec{n}}{2} \right) = \frac{\varepsilon}{1-\varepsilon} (4\pi I_{bw} - G - 2\vec{q} \cdot \vec{n}) \quad \text{III. 40}$$

$$\vec{q} \cdot \vec{n} \left(\frac{4-4\varepsilon+2\varepsilon}{1-\varepsilon} \right) \left(\frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \right) = 4\pi I_{bw} - G \quad \text{III. 41}$$

$$\vec{q} \cdot \vec{n} = \frac{\varepsilon}{2(2-\varepsilon)} (4\pi I_{bw} - G) \quad \text{III. 42}$$

ε étant toujours le coefficient d'émission de la paroi et I_{bw} la fonction de Planck à la température de la paroi. Notons que cette condition aux limites introduit un nouveau paramètre $4\pi I_{bw} = W_i$ dans le modèle, lequel est tabulé de la même manière que κ_i et B_i pour les différents groupes de bandes spectrales.

Numériquement, cette condition aux limites est traitée comme un terme source des équations de diffusion de l'intensité radiative, dans les mailles touchant les parois. Le flux radiatif en paroi provenant de cette description est composé du flux de chaleur apporté au mur sous forme du gradient de G :

$$\vec{q}_{iw} = -\frac{1}{3\kappa_i} \vec{\nabla} G_{iw} \quad \text{III. 43}$$

Auquel s'oppose le flux réémis par la paroi : $4\pi \frac{\varepsilon}{2(2-\varepsilon)} I_{bwi}(T_w)$.

[Eby, 1998] remarque que les conditions aux limites influent beaucoup sur l'exactitude des résultats en étudiant un cas axisymétrique. Le flux calculé peut changer d'un facteur 2 selon la condition utilisée aux bornes du domaine pour les bandes spectrales de faible énergie. Pour les bandes de plus haute énergie cette différence est atténuée, ce qui limite tout de même l'influence des conditions aux limites sur le résultat final.

On a appliqué les deux jeux d'émissivités des parois présentés dans le Tableau III-2 au modèle P1 afin de mesurer l'influence des conditions aux limites sur nos cas d'études. Des résultats typiques sont donnés sur la Figure III-11. Modifier les émissivités du mur ne modifie pas le champ de température de manière significative (Figure III-10). Cela s'explique par le fait que les intervalles spectraux concernés par le modèle P1 sont très étroits et que les flux émis par les parois sur cette gamme de longueur d'onde sont faibles. Cela explique aussi pourquoi le terme d'émission volumique (qui contient la majorité du spectre pour laquelle le plasma est transparent) est bien plus sensible aux conditions aux limites.

Au sein du modèle P1, on observe une plus grande sensibilité à l'émissivité des parois pour les bandes peu absorbées (Figure III-11), ce qui est en accord avec les résultats de [Eby, 1998]. Considérer les parois comme des surfaces noires diminue la valeur de l'intensité radiative calculée puisque la totalité du flux atteignant les parois est absorbée. L'influence sur les champs de température est minime. Aucune différence de température supérieure à 50K n'a été observée entre les deux calculs de la Figure III-11.

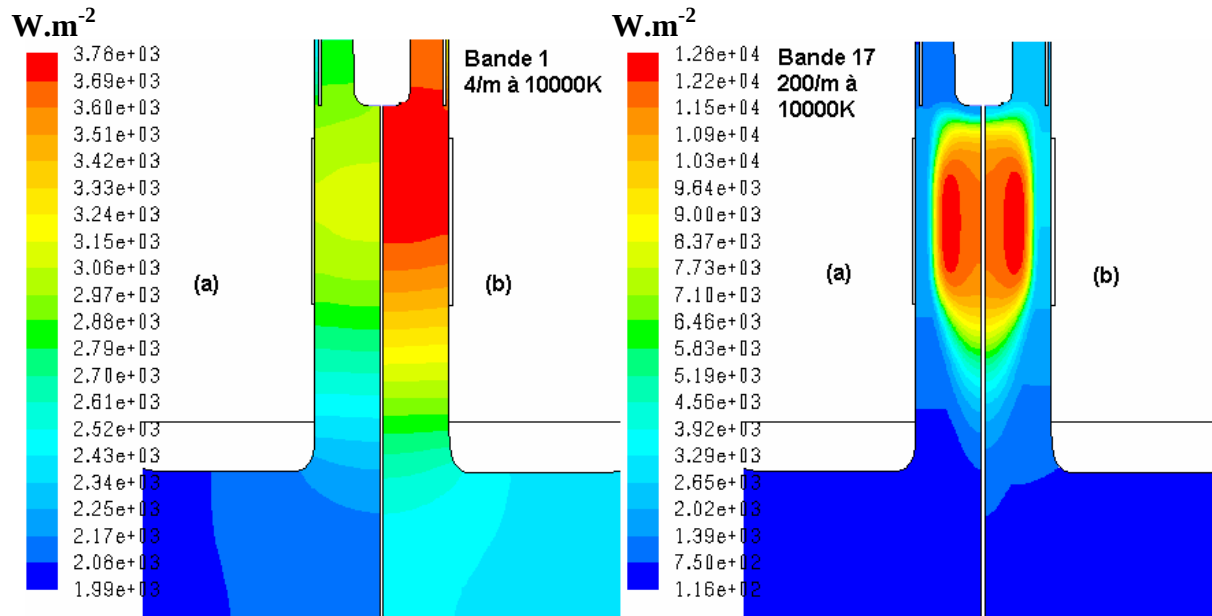


Figure III-11 : comparaison des intensités radiatives en fonction de l'émissivité des parois pour deux bandes du modèle P1 (bande 1 peu absorbée et bande 17 modérément absorbée)

(a) : $\varepsilon = 1$ partout.

(b) : ε adapté au matériau (Tableau III-2).

Les différents modèles présentés dans ce chapitre permettent de décrire la physique d'un plasma thermique à pression atmosphérique. Ces modèles présentent bien entendu des limitations. La plus importante d'entre elles est probablement liée au rendement de couplage dans le module d'induction. Une meilleure connaissance de la répartition de la puissance Joule entre les différents éléments de la torche, de l'enceinte et du plasma est nécessaire à l'exploitation réellement quantitative du modèle. Par ailleurs, l'absence de données fiables sur les émissivités des matériaux composant la paroi de l'enceinte limite la précision du calcul des intensités radiatives dans le cas de la méthode CEN. Pour le modèle P1, il faudrait en plus lever l'hypothèse de corps gris (et donc connaître l'émissivité spectrale de ces éléments), notamment pour le silicium liquide qui rayonne une grande quantité d'énergie dans l'enceinte.

Les cas tests réalisés avec les différents modèles de rayonnement montrent qu'on peut tout de même décrire qualitativement la thermique du plasma et du réacteur. Les résultats préliminaires présentés ici mettent en évidence la robustesse des différents modèles et la possibilité de coupler la thermique avec les autres phénomènes physiques. La précision de ces résultats est largement conditionnée par les propriétés radiatives utilisées (valeurs du CEN et paramètres κ_i et B_i pour le modèle P1). Le chapitre suivant va donc décrire comment on obtient ces propriétés radiatives et discuter de leur pertinence dans les chacune des configurations étudiées (Ar pur, Ar-O₂, torche d'analyse et torche procédé).

Chapitre IV. Calcul des propriétés radiatives de l'argon

On a vu au chapitre II différentes méthodes de résolution de l'équation du transfert radiatif (ETR). Chacune d'entre elles nécessite des propriétés radiatives du gaz en chaque point de maillage et éventuellement par bande spectrale (pour le modèle P1 par bande). Ces propriétés s'obtiennent à partir de bases de données spectroscopiques en fonction de paramètres locaux tels que la température et la composition du plasma. Par exemple, la méthode du CEN utilise un terme de pertes radiatives fonction de la température, il est donc nécessaire d'intégrer le spectre d'émission du gaz considéré sur toutes les longueurs d'onde pour chaque température rencontrée dans le milieu. Il serait très coûteux en temps de calcul de réaliser cette intégration pour chaque maille, à chaque itération pendant la simulation. Pour contourner ce problème, on utilise généralement des bases de données pré-calculées dans lesquelles on va lire les valeurs nécessaires au calcul.

Cette démarche est schématisée sur la Figure IV-1 et vaut pour tous les modèles de rayonnement présentés ici. Ce chapitre décrit donc comment on a généré les propriétés radiatives pour les deux modèles utilisés au cours de la thèse : la méthode CEN et le modèle P1 par bandes et pour les deux compositions considérées (Ar pur et Ar-O₂).

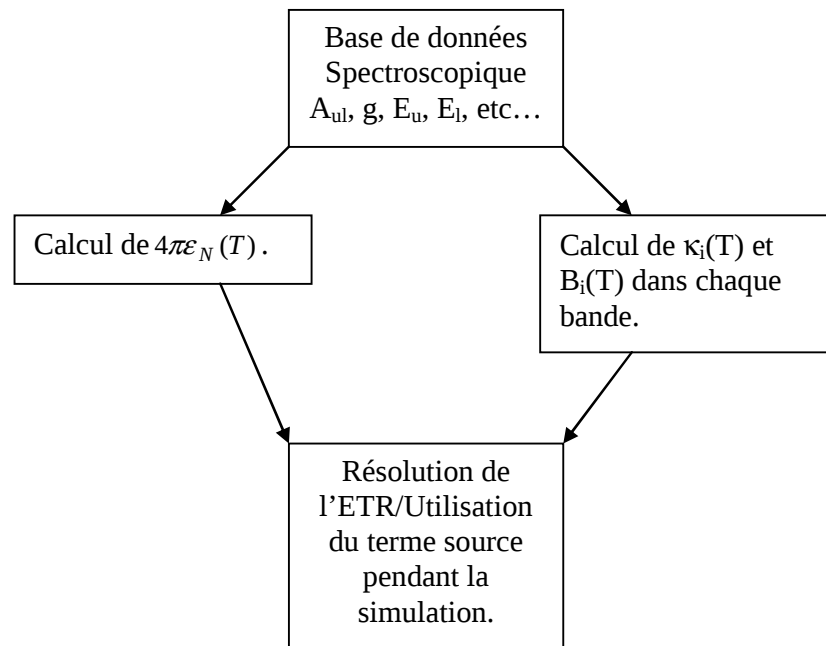


Figure IV-1 : démarche d'introduction des propriétés radiatives du plasma dans les simulations pour le CEN (gauche) et le modèle P1 (droite).

Ces calculs de bases de données, également appelées propriétés radiatives, dépendent de la base de données spectroscopique utilisée pour les générer. Différentes équipes ont publié des données permettant ces calculs, une bonne synthèse de différentes mesures de propriétés spectroscopiques a été mise en ligne par le National Institute of Standard and Technology⁴ (NIST). Cette base de données a été choisie pour la détermination des propriétés radiatives de l'argon et de l'oxygène.

Cette source de données spectroscopiques recense 430 transitions radiatives lié-lié pour l'argon neutre. Ce chiffre peut sembler faible par rapport au nombre de raies prises en compte par certains auteurs, qui établissent les valeurs du CEN jusqu'à 30000K et considèrent

⁴ http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html

des espèces plusieurs fois ionisées. [Gleizes, 1993] par exemple, utilise 702 raies, pour les calculs de CEN. Nos calculs prennent en compte seulement l'argon neutre mais reproduisent bien les résultats de la littérature comme on le verra plus loin (Figure IV-7), ce qui semble justifier l'utilisation de la base de données du NIST et de l'espèce Ar seule.

Pour l'étude des plasmas d'argon-oxygène, on a utilisé en plus des 430 raies d'Argon, 630 raies d'oxygène atomique provenant du même site NIST. Les résultats des calculs de concentrations avec T&Twiner (chapitre II) montrent qu'on peut se contenter de considérer Ar et O pour le calcul des propriétés radiatives. La différence majeure avec un plasma d'argon pur et la présence du continuum moléculaire à basse température (<4000K) et la présence de multiplets (parmi les 630 raies, la plupart sont suffisamment proches en longueur d'onde pour interagir du fait de leur élargissement), ce qui demande des adaptations des procédures développées initialement pour l'argon pur.

Certaines précautions supplémentaires, liées à la dissociation de O₂ doivent être prises, notamment pour prendre en compte les importantes variations de concentration avec la température. La disparition d'O₂ au dessus de 4000K environ et l'absence d'oxygène atomique en dessous de cette température influent largement sur les propriétés radiatives du mélange.

La présence de multiplets introduit le problème du chevauchement des raies qui revêt une grande importance (les valeurs du CEN peuvent être multipliées par 10 si on ne prend pas en compte ce phénomène). Les détails sur la manière de traiter le chevauchement des raies ainsi que l'explication de l'importance de ce phénomène seront donnés en annexe A. Pour illustrer ceci, on montre sur la Figure IV-2 le profil d'un multiplet de l'oxygène (O 395nm) auquel se superpose une raie de l'argon (Ar 395nm) obtenu par le calcul en tenant compte des recouvrement ainsi que le profil mesuré sur une des torches du laboratoire. L'élargissement instrumental devrait amener des profils plus élargis pour la mesure mais cet écart peut être expliqué par l'incertitude sur la mesure de la température.

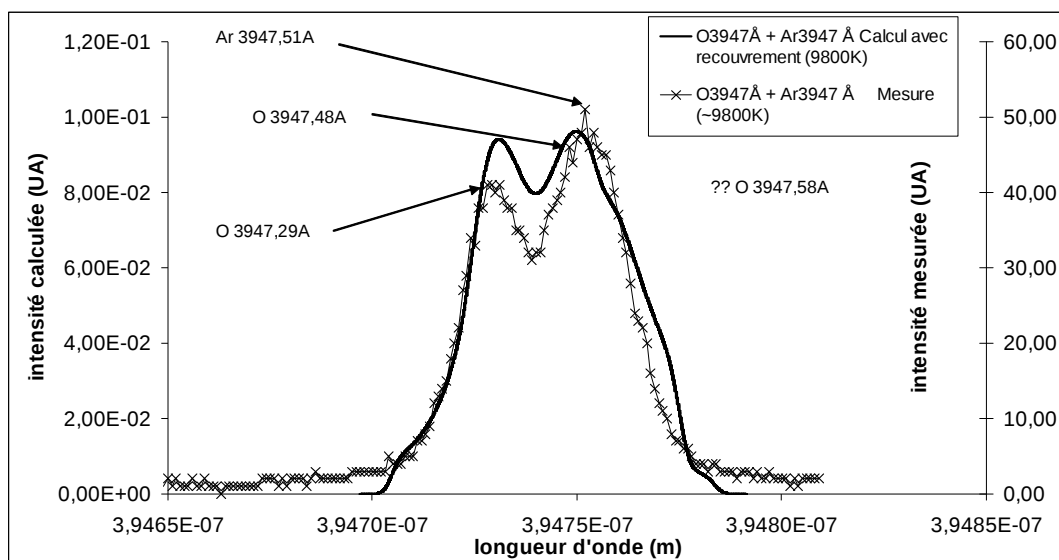


Figure IV-2 : profils calculés et mesurés du multiplet O395nm superposé à la raie Ar395nm. Calcul à 9800K et mesure à la même température, à l'incertitude expérimentale près (± 250 K environ).

La bonne correspondance des deux spectres montre que le problème du recouvrement peut être décrit par la méthode détaillée en annexe A.

1. Algorithme de calcul des profils de raie

Les théories utilisées pour calculer les profils des raies de l'argon ont été présentées dans le chapitre II. Dans cette partie nous présenterons donc plutôt l'algorithme utilisé pour calculer le terme de pertes radiatives à partir d'une base de données spectroscopique et surtout l'utilité de ces profils dans le cadre de la modélisation des flux radiatifs dans un plasma.

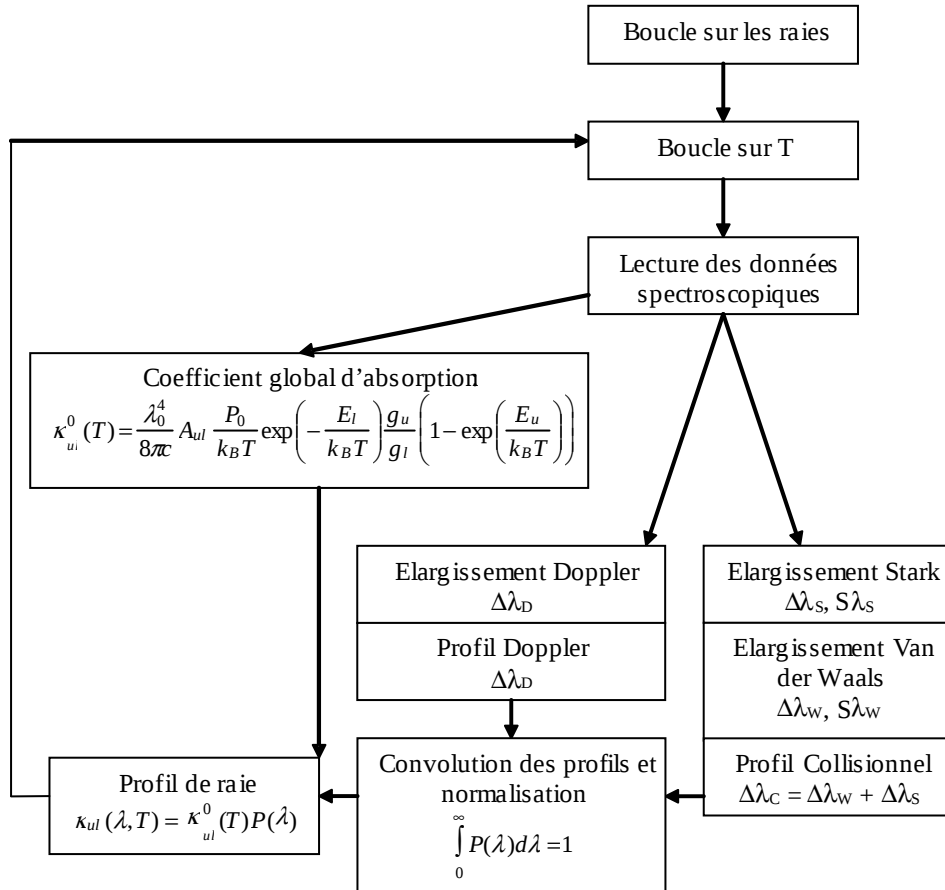


Figure IV-3 : algorithme de calcul des profils de raies $\kappa(\lambda, T)$.

La Figure IV-3 représente l'algorithme de calcul des profils de raie. Ces profils sont utilisés soit pour le calcul du CEN en intégrant toutes les transitions lié-lié sur le spectre soit pour calculer les paramètres du modèle P1.

Du point de vue des transferts radiatifs, la forme d'une raie et donc la répartition énergétique des photons issus d'une transition prend une grande importance pour les transitions fortement absorbées (ou auto-absorbées). En effet, même si une raie est très absorbée à sa longueur centrale, il existe nécessairement des longueurs d'onde qui ne sont pas absorbées, on parle des ailes de la raie. Pour les raies résonnantes, définies par leur niveau bas à 0eV et dont la longueur d'onde centrale est systématiquement à l'équilibre radiatif, les ailes de ces raies peuvent engendrer des transferts thermiques significatifs. On ne peut donc pas ignorer une transition parce que son coefficient d'absorption spectral est très élevé à la longueur d'onde centrale. Dans ce cas, la détermination du profil de la raie est importante pour décrire les transferts radiatifs.

Par ailleurs, la connaissance du coefficient spectral d'absorption permet de simplifier les calculs. On a dans un premier temps calculé ces profils de raies à une seule température (10000K), ce qui est proche des températures maximales attendues dans un plasma d'argon ou d'argon-oxygène comme ceux qui sont étudiés ici. La valeur de ce coefficient spectral

d'absorption au centre de la raie permet de déterminer a priori si la raie va être auto-absorbée dans le plasma.

On peut illustrer cela en calculant le coefficient d'émission nette spectral $4\pi\epsilon_{\lambda N}$ pour une raie résonnante de l'argon (Figure IV-4):

$$4\pi\epsilon_{\lambda N} = 4\pi\kappa_{\lambda} B_{\lambda 0} \exp(-\kappa_{\lambda} R_p) \quad \text{IV. 1}$$

Sur la Figure IV-4, on peut noter que le rayonnement du centre de la raie est absorbé sur des distances très courtes (dès que $R_p > 10^{-6}\text{m}$), et ne donne donc pas lieu à des pertes radiatives pour un rayon plasma réaliste (1mm-quelques cm). En revanche, quelque soit le rayon plasma, on observe des pertes radiatives au niveau des ailes de la raie (cf. courbe $R_p = 10^{-2}\text{m}$).

De par la loi de Kirchhoff (II. 14), plus le coefficient spectral d'absorption est élevé, plus l'émission est importante. Par conséquent, les raies pour lesquelles l'auto-absorption est significative jouent un rôle important dans les transferts radiatifs.

A l'inverse, la forme du profil de raie n'influe pas sur la valeur du CEN si le terme d'absorption est négligeable. Donc si le coefficient spectral d'absorption à la longueur d'onde central est faible à 10000K ($< \text{quelques m}^{-1}$), alors on peut se contenter du coefficient global d'absorption (κ_{ul}^0 sur la Figure IV-3) dans le calcul du CEN. Dans le cas de l'argon, on a trouvé entre 30 et 50 raies susceptibles d'être partiellement absorbées selon que l'on étudie une torche d'analyse ($R_p \approx 1\text{cm}$) ou une torche procédé ($R_p \approx 2\text{cm}$). Le calcul du profil n'est pas nécessaire pour les autres. Pour les transitions absorbées et dans le cas des mélanges argon-oxygène, on a pris en compte le recouvrement des raies, le cas échéant (voire annexe A).

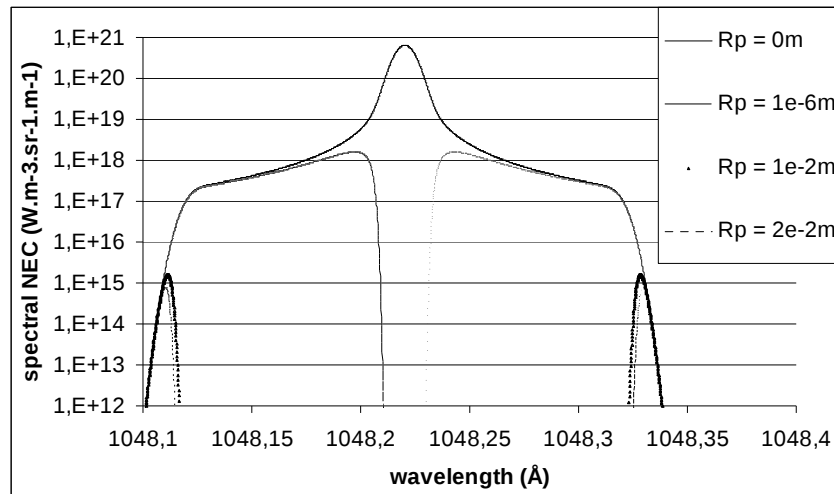


Figure IV-4 : coefficient spectral d'émission nette de la raie Ar 104,8nm à 10000K.

Le Tableau IV-1 montre les valeurs des élargissements typiques obtenus (cf. chapitre II) pour quelques raies de l'argon à 10000K. On a choisi les raies les plus énergétiques, donc celles qui sont auto-absorbées afin de donner des ordres de grandeurs.

On peut remarquer que les valeurs d'élargissement sont voisines pour l'ensemble des raies intenses de l'argon, à l'exception des raies résonnantes qui sont bien moins perturbées que les autres. Le niveau fondamental de l'argon, qui est le niveau bas des transitions résonnantes est très difficile à perturber car l'orbitale correspondante est beaucoup plus proche du noyau que pour les états excités. Puisque l'un des niveaux est peu perturbé, la distribution énergétique de ces transitions est plus étroite.

Tableau IV-1 : élargissements et coefficient spectral d'absorption maximum pour les raies les plus énergétiques de l'argon à 10000K.

λ_0 (nm)	$\kappa_u I(\lambda_0)$ (m^{-1})	$\Delta\lambda_D$ (nm)	$\Delta\lambda_R$ (nm)	$\Delta\lambda_W$ (nm)	$\Delta\lambda_S$ (nm)	$\Delta\lambda_C$ (nm)
104,822	1,51E+07	5,93E-04	4,92E-10	3,91E-05	4,26E-05	8,17E-05
86,68	4,34E+06	4,90E-04		6,65E-05	8,59E-05	1,52E-04
87,6058	3,87E+06	4,96E-04		6,24E-05	9,03E-05	1,53E-04
106,666	3,71E+06	6,04E-04	1,25E-10	3,84E-05	4,39E-05	8,23E-05
87,9947	8,83E+05	4,98E-04		6,09E-05	2,26E-04	2,87E-04
86,9754	3,93E+05	4,92E-04		6,51E-05	2,10E-04	2,75E-04
811,531	5,15E+02	4,59E-03		2,05E-03	4,34E-03	6,39E-03
842,465	2,94E+02	4,77E-03	3,87E-07	1,74E-03	3,28E-03	5,02E-03
840,821	1,98E+02	4,76E-03	3,97E-07	2,16E-03	4,42E-03	6,58E-03
763,511	1,48E+02	4,32E-03		2,37E-03	8,03E-03	1,04E-02
810,369	1,36E+02	4,59E-03	2,22E-07	2,98E-03	4,44E-03	7,42E-03
794,818	9,18E+01	4,50E-03		2,76E-03	3,86E-03	6,63E-03
912,297	8,50E+01	5,16E-03		4,05E-03	1,25E-02	1,66E-02
801,479	6,08E+01	4,54E-03		2,51E-03	9,06E-03	1,16E-02
922,45	5,31E+01	5,22E-03	1,42E-07	2,11E-03	5,76E-03	7,88E-03
738,398	4,04E+01	4,18E-03	7,88E-08	1,78E-03	9,03E-03	1,08E-02
751,465	3,61E+01	4,25E-03	8,16E-08	3,05E-03	9,34E-03	1,24E-02
826,452	3,01E+01	4,68E-03	1,50E-07	3,31E-03	1,62E-02	1,95E-02
852,144	2,93E+01	4,82E-03	1,59E-07	3,44E-03	1,69E-02	2,04E-02
800,616	2,76E+01	4,53E-03	6,83E-08	1,77E-03	1,06E-02	1,24E-02
772,421	2,63E+01	4,37E-03		2,69E-03	1,21E-02	1,48E-02
965,779	2,34E+01	5,46E-03	1,16E-07	3,71E-03	1,59E-02	1,96E-02
750,387	2,28E+01	4,25E-03	8,97E-08	3,28E-03	1,42E-02	1,75E-02
706,722	2,01E+01	4,00E-03		2,18E-03	6,69E-03	8,87E-03

2. Calcul de la contribution du continuum

2.1. Argon pur

Les théories permettant de décrire le fond continu du rayonnement ont également été présentées dans le chapitre II. On a calculé le coefficient spectral d'absorption du continuum dans la même gamme de température (300K à 12000K) pour la recombinaison radiative et le Brehmstrahlung sur la plage de longueur d'onde [100nm à 1000nm]. La photodissociation correspond à la réaction inverse de la recombinaison radiative. L'absorption par photodissociation est reliée à l'émission par recombinaison radiative via la loi de Kirchhoff (II. 14).

La Figure IV-5 montre les valeurs de l'absorption obtenues pour ces deux phénomènes à 10000K. On représente également l'intensité du corps noir à 10000K car elle permet d'obtenir l'émission correspondante. Aux longueurs d'onde inférieure à 100nm, le spectre de recombinaison radiative présente une plus forte absorption (recombinaison radiative vers le niveau fondamental). La valeur de l'absorption du continuum de l'argon dans l'UV n'est cependant pas suffisante pour absorber les raies situées aux mêmes longueurs d'onde.

L'émission dans le domaine UV est très faible si l'on suppose la loi de Kirchhoff valide. Le rayonnement de corps noir devient négligeable dans l'UV lointain et les longueurs d'onde en deçà de 100nm participent très faiblement aux transferts radiatifs dans un plasma d'argon pur. Pour cette raison, on a limité l'intégration du spectre continu aux longueurs d'onde supérieures à 100nm. On peut appliquer la même approximation aux longueurs d'ondes supérieures à 1000nm, l'émission est diminuée par la fonction de Planck qui décroît entre autre à cause de la faible énergie des photons dans l'infra rouge.

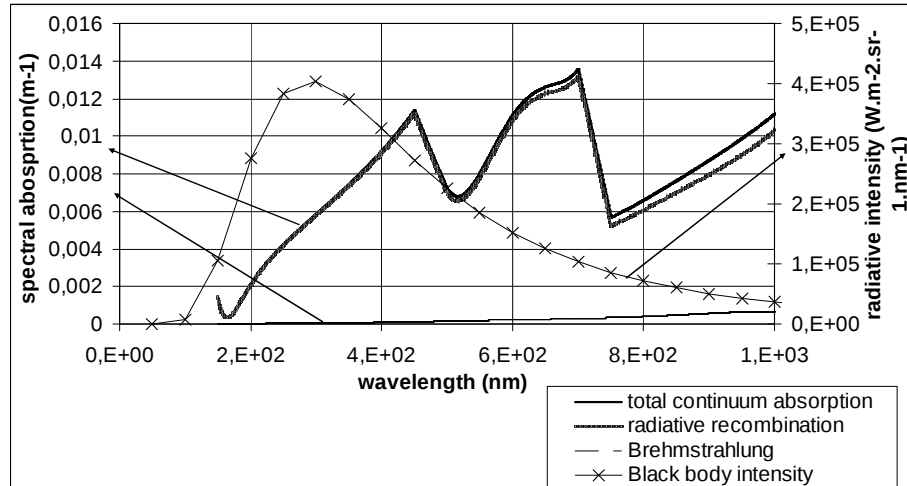


Figure IV-5 : coefficient spectral d'absorption du continuum de l'argon à 10000K et fonction de Planck à la même température.

L'ordre de grandeur du coefficient spectral d'absorption sur la plage de longueur d'onde considérée reste inférieur à $\kappa_\lambda \approx 0,1 \text{ m}^{-1}$, ce qui correspond à des épaisseurs optiques de l'ordre de 10^{-3} pour un plasma de taille centimétrique. Le fond continu du rayonnement de l'argon ne va donc pas être absorbant dans les torches étudiées ici, ce qui permet de simplifier nettement les calculs. En effet, pour le calcul des propriétés radiatives, on n'a pas besoin de tenir compte de l'augmentation d'absorption du rayonnement des raies par le continuum. Le rayonnement du continuum peut par contre être absorbé par les raies mais les plages de longueur d'onde concernée sont très étroites et l'émissivité du continuum est faible, ce qui permet de négliger ce phénomène. La faible absorption et la faible émission spectrale du continuum permet de traiter le rayonnement des raies et le fond continu radiatif de manière indépendante.

Par ailleurs, on observe des maxima locaux pour la photodissociation :



L'ion se désexcite pour donner un atome neutre dans un état excité. Les maxima locaux correspondent au fait que les ions Ar^+ se désexcitent préférentiellement vers certains niveaux d'énergie de l'atome. La localisation de ces niveaux excités « favorisés » est difficile car la longueur d'onde exacte des maxima locaux n'a pas pu être déterminée avec précision.

Les photons ainsi émis peuvent avoir une énergie supérieure à la différence d'énergie entre l'ion et le niveau excité de l'atome à cause de l'énergie cinétique de l'électron incident (collision inélastique).

2.2. Mélange argon-oxygène

Le fond continu de l'oxygène est plus intense que celui de l'argon.

La valeur du coefficient spectral d'absorption étant plus élevée, l'émission correspondante est significative sur une plus large gamme de longueur d'onde, comme on le

voit sur la Figure IV-6. Cependant, l'épaisseur optique pour le continuum atomique de l'oxygène reste nettement inférieure à 1 jusqu'aux environs de 100nm. Pour des longueurs d'onde plus faibles le phénomène d'absorption devient très important. L'émission du continuum atomique est faible en elle-même (à cause de la faible valeur de la fonction de Planck), mais il faut se poser la question de l'absorption des raies par ce fond continu.

Les raies résonantes de l'argon (Figure IV-4) sont dans la gamme de longueur d'onde correspondant aux fortes valeurs du continuum atomique de l'oxygène ($\kappa_\lambda \approx 40 \text{ m}^{-1}$). Les ailes de ces raies sont donc susceptibles d'être partiellement absorbées par le fond continu de l'oxygène. Dans le cas de l'argon pur, en revanche, le fond continu n'est pas assez important pour causer l'absorption des ailes des raies résonantes. Le comportement radiatif du plasma à ces longueurs d'onde peut donc dépendre fortement de la prise en compte de phénomène.

Cependant, lors des calculs des CEN, tenir compte de l'absorption des raies d'argon et d'oxygène dans l'UV par le continuum atomique ne modifie la valeur totale du CEN que de 3% au plus, la méthode générale décrite ci-dessous ne tient pas compte de ce phénomène (il sera par contre inclus dans les bases de données du modèle P1).

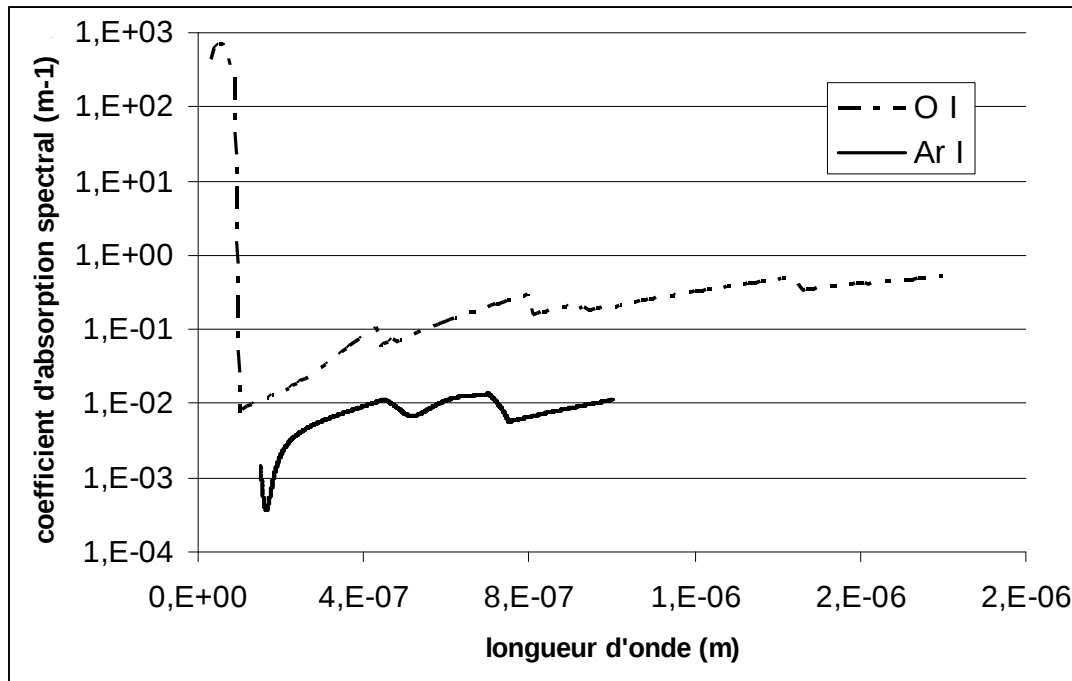


Figure IV-6 : continuum atomique de l'argon et l'oxygène à 10000K.

3. Calcul des coefficients d'émission nette

Pour calculer les valeurs du CEN, on a pris en compte les raies du spectre et le continuum. Comme on l'a vu au paragraphe précédent Figure IV-5, la faible absorption du continuum permet de la traiter séparément des raies :

$$4\pi\epsilon_N = 4\pi\epsilon_N^{\text{raies}} + 4\pi\epsilon_N^{\text{continuum}} \quad \text{IV. 3}$$

Si l'épaisseur optique pour le continuum n'était pas $\ll 1$, on ne pourrait pas écrire l'équation IV. 3 car les raies non absorbées de l'argon pourraient être absorbées par le fond continu. De même, une plus grande fraction du rayonnement émis par les raies intenses serait piégée.

Une autre conséquence de la faible absorption du continuum, dans le cadre de la méthode du CEN est que la contribution du continuum au CEN total ne dépend pas du rayon plasma choisi.

On a donc intégré sur les longueurs le spectre des raies puis celui du continuum pour obtenir les termes $4\pi\epsilon_N^{raies}$ et $4\pi\epsilon_N^{continuum}$. Les pas de longueur d'onde sont de l'ordre de 10^{-4} nm pour le spectre des raies et de l'ordre du dixième de nm pour le continuum. Cette différence provient des variations plus ou moins brusques du coefficient spectral d'absorption pour chacun des spectres. La Figure IV-7 montre les CEN obtenu pour l'argon pur avec $R_p=1\text{cm}$. On a représenté également les contributions des raies et du continuum. Nos propres calculs sont en bonne correspondance avec les valeurs de CEN publiées par [Essoltani, 1994] pour le même rayon plasma. Les écarts avec la littérature peuvent provenir de la manière de prendre en compte l'effet Stark quand les paramètres de Griem ne sont pas connus, de la manière de prendre en compte le chevauchement des raies ou de la base de données spectroscopique de départ.

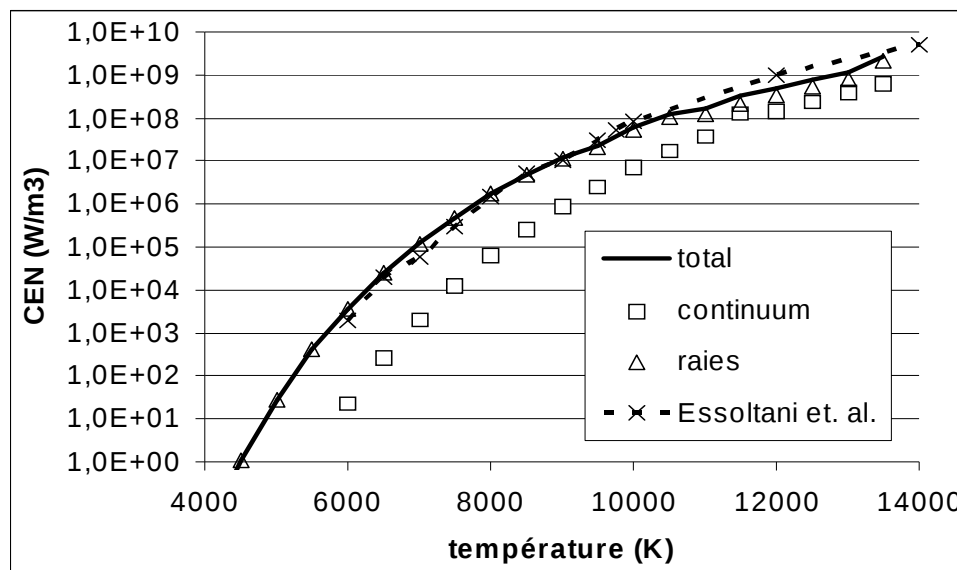


Figure IV-7 : coefficient d'émission nette de l'argon en fonction de T comparé aux données de la littérature. La contribution des raies et du continuum est également figurée.

On a réalisé des calculs de la même manière pour un mélange contenant 5% d'O₂ à 300 K et en tenant compte du chevauchement des raies de l'oxygène comme décrit dans l'annexe A. Il n'a pas été possible de trouver des calculs similaires dans la littérature afin de valider ces résultats. Cependant la méthode étant validée pour de l'argon pur, on peut supposer que les valeurs obtenues pour un mélange sont correctes.

On peut noter (Figure IV-8) que les plasmas contenant de l'oxygène rayonnent beaucoup plus que les plasmas d'argon pur, et notamment à basse température (en dessous de 8000K). Quelques multiplets de l'oxygène ont pu être identifiés comme cause de ce phénomène. En effet, contrairement à l'argon et aux gaz rares en général, les premiers niveaux excités de l'oxygène sont bas en énergie (2eV contre 11,5eV pour l'argon) et faciles à peupler même à basse température. Ces niveaux se désexcitent par rayonnement et permettent donc au plasma de rayonner même si peu de niveaux radiatifs sont peuplés. Le multiplet O 630nm illustre bien ce cas de figure et est lui-même responsable d'une grande partie des pertes radiatives des plasmas Ar-O₂ à basse température. Les données le concernant sont fournies dans le Tableau IV-2. Un bon indicateur de cette répartition des niveaux excités est donné par la fonction de partition $Q(T)$. $Q(T)$ vaut environ un pour l'argon sur toute la plage de température considérée dans cette étude, ce qui signifie qu'aucun niveau excité n'est

peuplé de manière significative par rapport au niveau fondamental. En revanche, la fonction de partition de l'oxygène vaut près de 9 à 4000K, ce qui signifie que seuls 11% des atomes d'oxygène sont dans leur état fondamental à 4000K. Les autres sont excités et peuvent donc rayonner même à basse température.

Tableau IV-2 : données spectroscopiques du multiplet O630nm. A_{ul} est la probabilité de transition, E est l'énergie et J le nombre quantique orbital.

λ_0 (nm)	A_{ul} (s^{-1})	E_l (eV)	E_u (eV)	J_l	J_u
630,0304	5.63e3	0	1.9673	2	2
630,0304	2.11e5	0	1.9673	2	2
636,3776	1.82e3	0.0196	1.9673	1	2
636,3776	3.39e6	0.0196	1.9673	1	2
639,1733	8.60e7	0.0281	1.9673	0	2

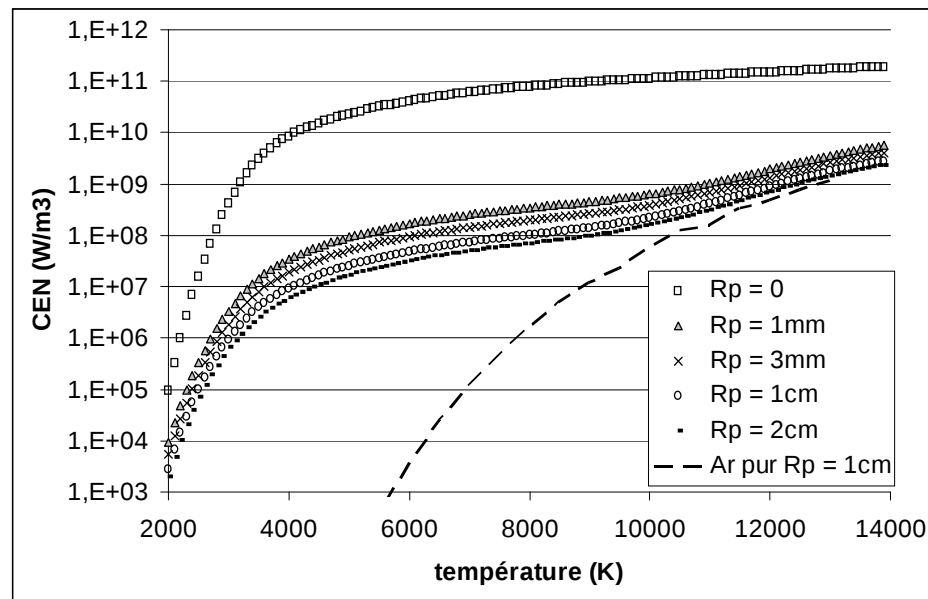


Figure IV-8 : coefficient d'émission net d'un mélange 95%Ar, 5% O₂ en volume en fonction de T et pour différents rayons plasma. Les valeurs obtenues en argon pur sont rappelées pour faciliter la comparaison.

4. Regroupement des raies et génération des bases de données P1

Pour utiliser le modèle P1 par bandes, défini par II. 49, on doit se donner sur chaque intervalle i du spectre (chaque « bande ») un coefficient d'absorption κ_i en m^{-1} et un coefficient d'émission $\kappa_i B_i$ en $W.m^{-3}sr^{-1}$. A ces deux paramètres s'ajoute une troisième grandeur qui permet d'imposer la condition aux limites et qui correspond à l'émission propre W_i des parois, en $W.m^{-2}$, à la température T_w de la paroi, dans chaque bande.

Comme pour la méthode du CEN, on ne va pas calculer ces grandeurs en cours de simulation, on a choisi de tabuler les 3 paramètres précédents pour chaque bande en fonction de la température. On lira ensuite la valeur des paramètres dans les bases de données au cours du calcul.

Pour des raisons de temps de calcul et d'outil numérique, on s'est limité à 50 bandes au maximum. On doit donc trouver un moyen de traiter tout le spectre de l'argon avec 50

intervalles spectraux. Ce paragraphe décrit donc les techniques utilisées pour arriver à cette simplification.

Pour simplifier la discrétisation spectrale, une piste est d'adapter les modèles au comportement physique des photons à une longueur d'onde donnée. On se base donc sur les cas limites qui ont été décrits au chapitre II (Figure II-5).

4.1. $\tau_\lambda < 1$: émission volumique

On a vu que l'épaisseur optique pour certaines parties du spectre (celles contenant seulement le continuum ou des raies peu intenses) est très faible. À ces longueurs d'onde le phénomène d'absorption est négligeable et le rayonnement se comporte physiquement comme une perte d'énergie volumique. On peut donc se contenter de calculer le terme d'émission de l'ETR à ces longueurs d'onde que l'on injecte comme terme puits de l'équation d'énergie.

L'émissivité pour ces épaisseurs optiques est faible mais recouvre de larges plages de longueurs d'onde (en fait la quasi totalité du spectre) et on ne peut pas négliger l'émission totale obtenue après intégration sur toutes les longueurs d'onde.

Les longueurs d'onde pour lesquelles le plasma est optiquement mince n'entrent pas dans le modèle P1, ce qui permet de limiter la discrétisation du spectre pour le modèle P1 à de courtes plages de longueur d'onde. En pratique on a considéré l'absorption comme négligeable pour $\tau_\lambda = \kappa_\lambda L < 0,1$ dans les torches d'analyses ($L = 1\text{cm}$) et pour $\tau_\lambda < 0,08$ dans les torches procédé ($L = 2\text{cm}$). Cette limite a été fixée en remarquant que le terme $e^{-\tau_\lambda}$ est petit devant l'incertitude sur la probabilité de transition et permet d'exclure suffisamment de raies pour limiter le nombre de bandes du modèle P1 à 50.

4.2. $\tau_\lambda \gg 1$: équilibre radiatif

Par ailleurs, pour des absorptions très fortes, le plasma peut se comporter comme un corps noir en équilibre radiatif. Il n'y a pas de transfert de chaleur par rayonnement à ces longueurs d'onde. Il n'est donc pas nécessaire de traiter les épaisseurs optiques très élevées pour décrire les transferts radiatifs dans un plasma thermique. On a cherché à quantifier l'épaisseur optique au-delà de laquelle les transferts radiatifs deviennent négligeables. Pour cela, on s'est donné un cas test de transferts radiatifs : deux plaques distantes de 1cm avec un profil de température imposé entre les deux, voisin de ce qu'on peut trouver dans une torche. Le milieu est gaz dont on impose le coefficient spectral d'absorption. On ne résout que l'ETR dans le domaine.

Avec un modèle P1 à une bande et un coefficient κ_i constant en fonction de la température, on calcule l'intensité radiative dans le milieu en fonction de la valeur choisie pour κ_i . Ce cas test est représenté schématiquement sur la Figure IV-9. Les parois sont noires et les bornes hautes et basses du domaine sont des symétries afin de se ramener à des plaques infinies (variations selon x uniquement).

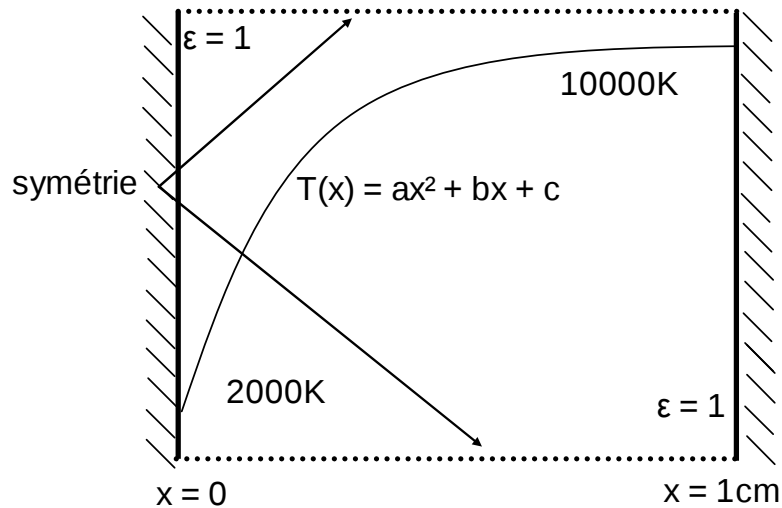


Figure IV-9 : cas test de l'équilibre radiatif pour le modèle P1.

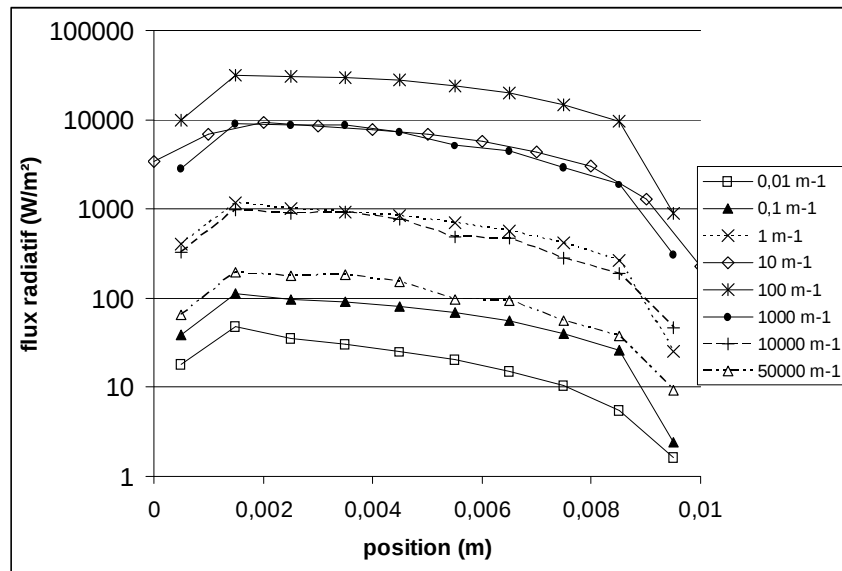
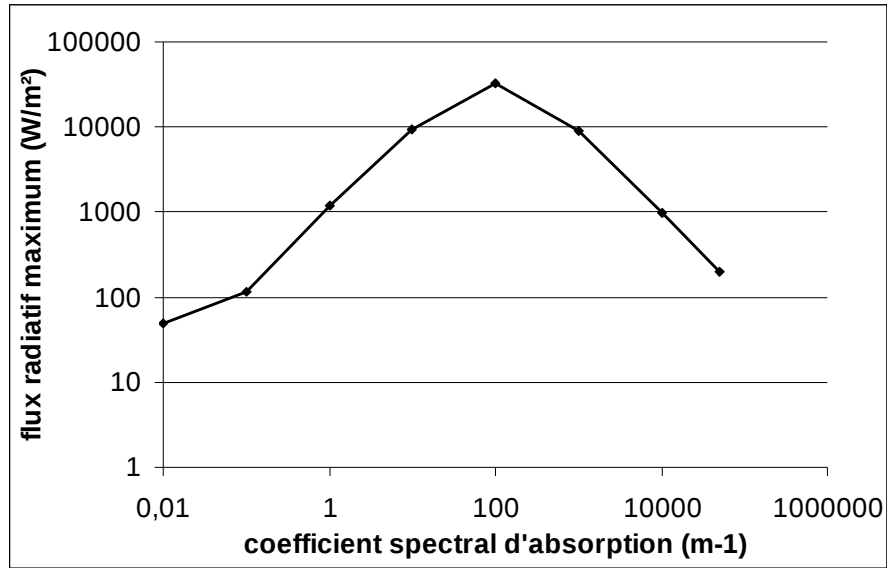


Figure IV-10 : flux radiatif en fonction de κ_i dans un plasma d'argon entre deux plaques avec température imposée dans le milieu.

La Figure IV-10 montre les flux radiatifs obtenus entre les plaques en fonction du coefficient spectral d'absorption choisi. Le flux n'est pas constant entre les deux plaques à cause de la conduction dans le milieu et du coefficient de conduction qui varie avec la température. La reconstruction du flux au centre des mailles est par ailleurs responsable des valeurs plus faibles observées près des parois. Les flux les plus importants correspondent à une absorption de 100m-1, soit une épaisseur optique égale à 1.

On résume par ailleurs la valeur maximum de ces flux entre les deux plaques en fonction de κ_i sur la Figure IV-11.

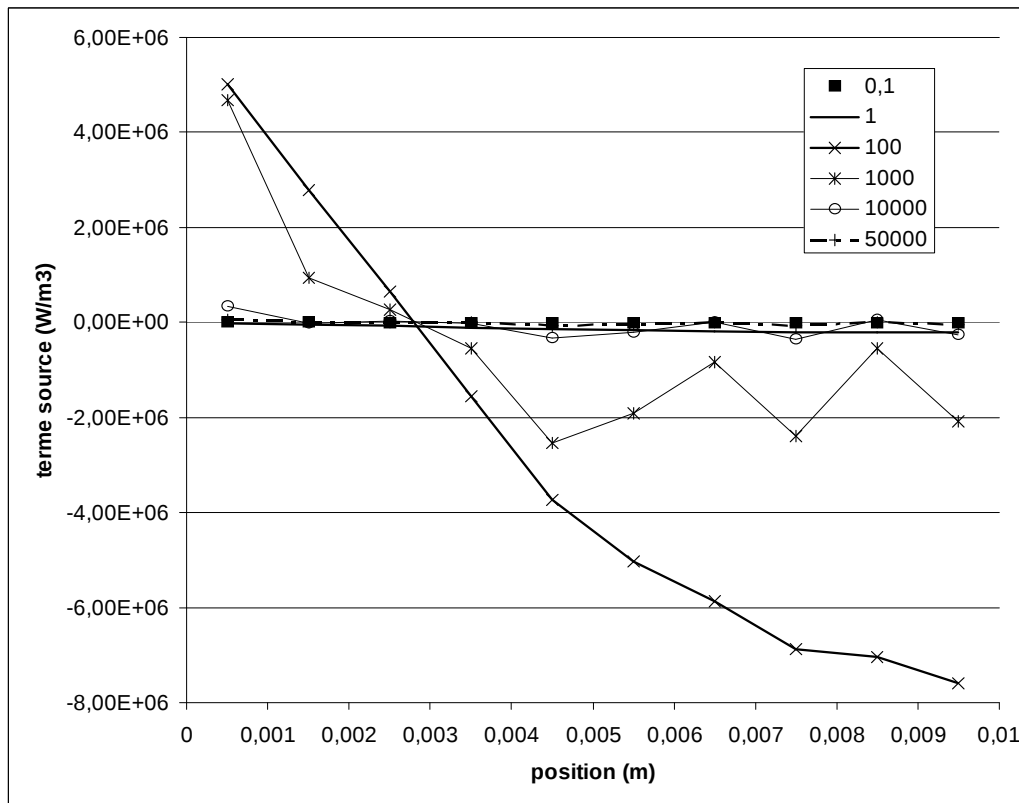
Figure IV-11 : flux radiatif maximum en fonction de κ_i .

A l'équilibre radiatif, les flux doivent être nuls, ce cas test indique qu'on s'approche de l'équilibre radiatif lorsque κ_i devient grand : pour nos plaques distantes de 1cm, le flux tombe à moins de 1% de sa valeur maximale quand $\kappa_i > 30000 \text{ m}^{-1}$. D'après II. 49, lorsque le coefficient d'absorption tend vers l'infini, on a :

$$G_i = 4\pi B_i$$

IV. 4

On a voulu vérifier ce cas limite, on montre sur la Figure IV-12 les variations en fonction de κ_i du terme source $P_R = \kappa_i (4\pi B_i - G_i)$ de l'ETR, qui est aussi le terme puits de l'équation d'énergie (chapitre III).

Figure IV-12 : terme source radiatif entre les deux plaques en fonction de κ_i .

Comme pour les flux radiatifs, le terme source atteint sa valeur maximum pour $\tau = 1$ (soit $\kappa_i = 100\text{m}^{-1}$ pour nos plaques distantes de 1cm). A $\kappa_i = 50000\text{m}^{-1}$, le terme source devient pratiquement nul, ce qui montre que l'équilibre radiatif est atteint (IV. 4). En affinant ces estimations, on a finalement pris pour valeur limite $\kappa_i = 25000\text{m}^{-1}$ à 10000K, soit une épaisseur optique $\tau = 250$ au dessus de laquelle on ne calcule plus de transfert radiatif. Seul le centre des raies résonnantes de l'argon ou de l'oxygène est concerné par cette limite, ce qui correspond à des plages spectrales relativement courtes.

Etant donné les variations d'absorption avec la température, on ne suppose qu'une plage de longueur ne donne pas lieu à des transferts radiatifs que si $\tau > 250$ quelque soit la température. Pour l'argon, le niveau absorbeur des raies résonnantes (le fondamental) se peuple quand la température diminue ($n_0 = P/k_B T$), donc si l'équilibre radiatif est à 10000K, il le sera d'autant plus à des températures plus faibles (Figure IV-17, groupe 8).

On peut tenir le même raisonnement pour les raies résonnantes de l'oxygène mais seulement jusqu'à 4000K environ car l'oxygène atomique disparaît très rapidement en dessous de cette température (Figure IV-21, groupe 6 de l'oxygène).

Le fait de modifier cette limite ne change pas de manière significative les longueurs d'onde à traiter puisque κ_λ varie très rapidement dans ces zones du spectre. En revanche, la gamme de coefficient d'absorption à traiter dans la résolution de l'ETR change fortement avec la limite choisie et cela influe directement sur le nombre de bandes nécessaires pour décrire le rayonnement, qui est limite principale à l'utilisation du modèle P1.

On a donc pu déterminer un ensemble de longueurs d'onde qu'il n'est pas nécessaire de traiter avec le modèle P1 par bandes. Un découpage schématique pour la raie Ar 104,8nm est donné sur la Figure IV-13.

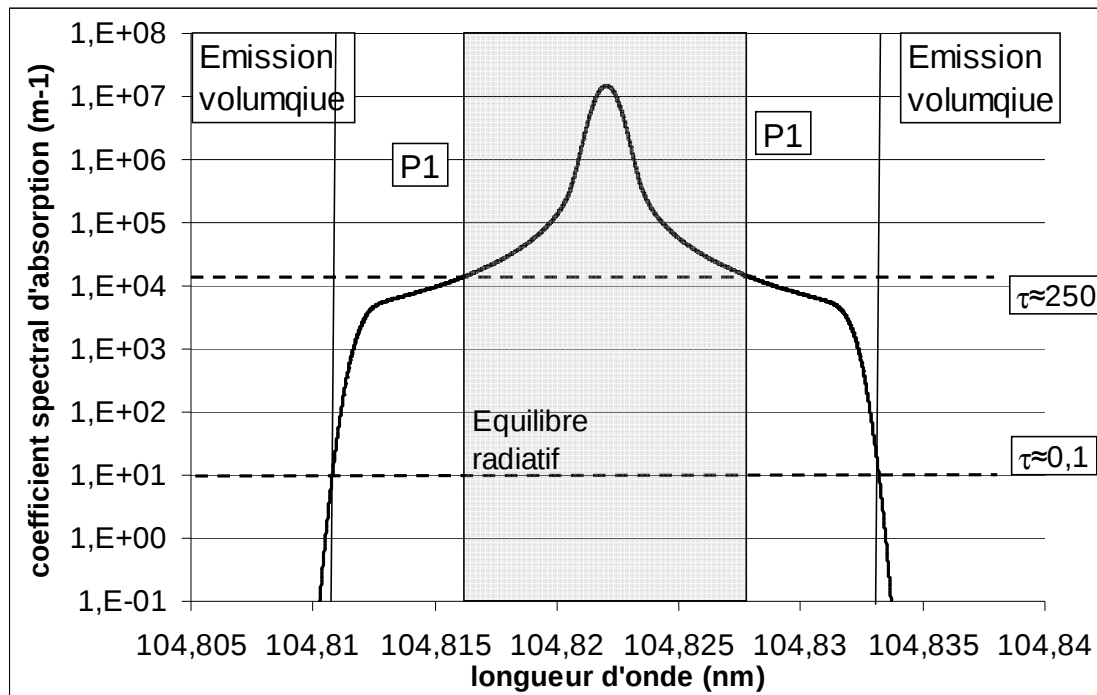


Figure IV-13 : traitement de la raie Ar 104,8nm avec les différents modèles de rayonnement en fonction de la valeur de κ_λ à 10000K pour une torche d'analyse ($L=1\text{cm}$).

Ce découpage permet de limiter l'utilisation du modèle P1 et donc la discrétisation du spectre aux seules longueurs d'onde où l'absorption est significative (Figure IV-13) et où on n'atteint pas l'équilibre radiatif. D'après les calculs de profils de raies faits avec l'algorithme de la Figure IV-3, quelques dizaines de raies doivent être traitées avec le modèle P1 pour un plasma d'argon pur de quelques centimètres de diamètre.

Etant donné les très grandes variations de κ_λ pour ces raies (de 10 à 25000 m⁻¹), une discrétisation fine de ces raies, ou ailes de raies, demanderait beaucoup plus que 50 intervalles de longueur d'onde. Il faut donc réduire encore le problème.

4.3. $\tau \approx 1$: regroupement des raies pour le modèle P1

On cherche donc à discrétiser les plages du spectre de l'argon correspond à quelques dizaines de raies présentant des valeurs de κ_λ entre 10 et 25000m⁻¹ avec 50 inconnues spectrales. Pour ce faire, on a développé une méthode de regroupement multicritères, sur la base d'une méthode proposée par [Modest, 2003] pour des plasmas isothermes (dans ce cas, le seul paramètre est le coefficient d'absorption à la température considérée).

[Modest, 2003] remarque que si deux plages de longueurs d'onde différentes présentant la même valeur de κ_λ (c'est-à-dire κ_i dans II. 49), on peut les rassembler au sein d'un seul intervalle spectral (et donc une seule équation de type P1) en sommant les paramètres $\kappa_i B_i$ et W_i sur ces deux intervalles. La Figure IV-14 montre un schéma de cette méthode de regroupement appliquée à une zone particulière du spectre. Pour une valeur donnée de l'absorption comprise entre κ_i et $\kappa_i + dk_i$, notée dk_i sur la Figure IV-14, on constate que plusieurs intervalles spectraux (8 sur la Figure IV-14) notés $\{d\lambda_{ij}\}$ correspondent. Sans pratiquer de regroupements, on aurait alors à résoudre l'équation du modèle P1 8 fois pour cette seule valeur de κ_i .

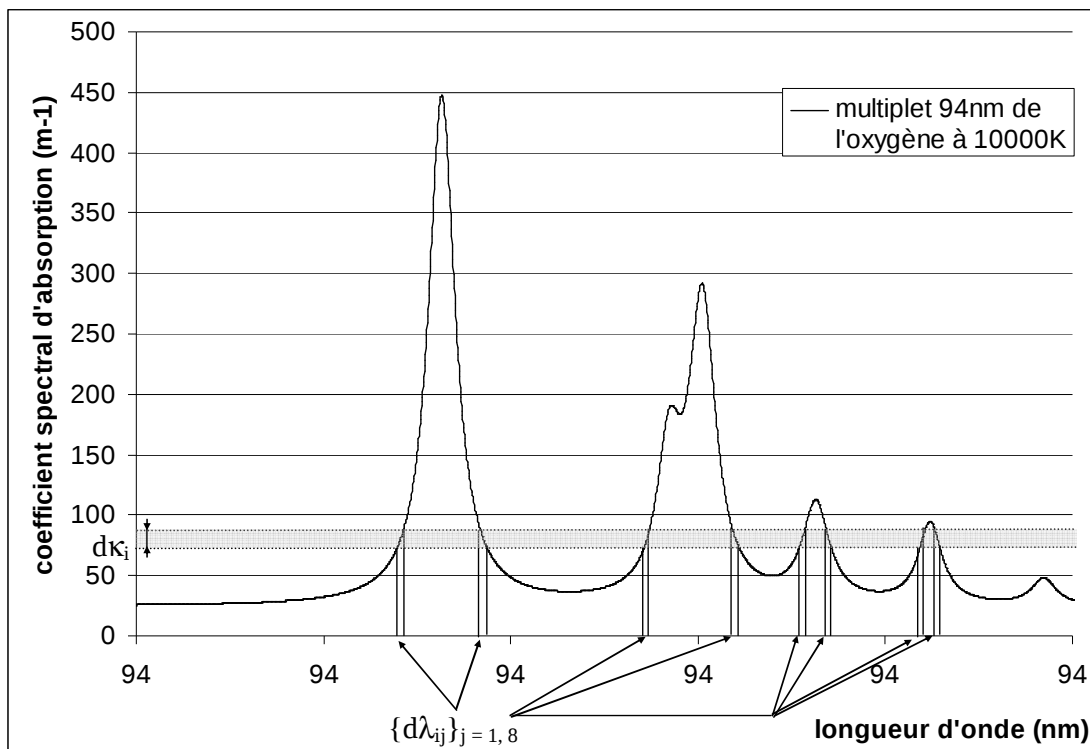


Figure IV-14 : illustration de la méthode de regroupement des intervalles spectraux proposée par Modest pour le multiplet O 94nm dans un milieu isotherme.

Dans un plasma isotherme, κ_i est constant dans tout le domaine et on peut résoudre l'ETR sur $\{d\lambda_{ij}\}$ avec une seule équation du modèle P1 de paramètres k_i' , $k_i' B_i'$ et W_i' tels que :

$$\kappa'_i = \frac{\sum_{j(i)}^{\lambda_{j+}} \int_{\lambda_{j-}}^{\lambda_{j+}} \kappa_\lambda d\lambda}{\sum_{j(i)} (\lambda_{j+} - \lambda_{j-})} \quad \text{IV. 5}$$

$$\kappa'_i B'_i = \sum_{j(i)}^{\lambda_{j+}} \int_{\lambda_{j-}}^{\lambda_{j+}} \kappa_\lambda B_\lambda d\lambda \quad \text{IV. 6}$$

$$W'_i = 2\pi \sum_{j(i)}^{\lambda_{j+}} \int_{\lambda_{j-}}^{\lambda_{j+}} B_\lambda d\lambda \quad \text{IV. 7}$$

Où bande i contient donc un nombre $j(i)$ d'intervalles spectraux (les $\{d\lambda_{ij}\}$) variable en fonction du nombre d'intervalles correspondant. On note λ_{j-} et λ_{j+} les bornes de ces intervalles spectraux $\{d\lambda_{ij}\}$.

Cette méthode permet de réduire de manière très importante le nombre d'équations du modèle P1 à résoudre. Cependant, les plasmas étudiés ici ne sont pas isothermes et on ne peut regrouper les intervalles du spectre que si le coefficient spectral d'absorption est identique dans tout le domaine, c'est-à-dire quelque soit la température.

On a donc recherché les critères permettant d'affirmer que deux intervalles du spectre ont le même coefficient spectral d'absorption pour toutes les valeurs de T considérée ici.

Soient de transition radiatives lié-lié 1 et 2 de coefficient spectral d'absorption $\kappa_{\lambda 1}$ et $\kappa_{\lambda 2}$. Supposons que ces deux raies aient la même absorption à leur longueur d'onde centrale à une température T_0 donnée :

$$\kappa_{\lambda 01}(T_0) = \kappa_{\lambda 02}(T_0) \quad \text{IV. 8}$$

On a par ailleurs, d'après II. 14 et II. 19 :

$$\kappa_\lambda(T) = \frac{\lambda_0^4}{8\pi c} A_{ul} n_u (e^{\beta h\nu} - 1) P(\lambda, T) \quad \text{IV. 9}$$

Avec $\beta = 1/(k_B T)$. Or, à l'ETL, la densité n_u du niveau haut suit la distribution de Boltzmann (II. 8) :

$$\kappa_\lambda(T) = \frac{\lambda_0^4}{8\pi c} A_{ul} \frac{P_0 g_u}{k T Q(T)} e^{-\beta E_u} (e^{\beta(E_u - E_l)} - 1) P(\lambda, T) \quad \text{IV. 10}$$

Exprimons le coefficient spectral d'absorption (IV. 9) en fonction de $\kappa_{\lambda 0}(T_0)$:

$$\kappa_\lambda(T) = \kappa_\lambda(T_0) \frac{T_0 Q(T_0)}{T Q(T)} \frac{P(\lambda, T)}{P(\lambda_0, T_0)} \frac{e^{-\beta E_l} - e^{-\beta E_u}}{e^{-\beta_0 E_l} - e^{-\beta_0 E_u}} \quad \text{IV. 11}$$

Il résulte trois conditions suffisantes permettant de déterminer si l'on peut traiter différentes raies d'un même élément (pour simplifier le terme $T.Q(T)$) à l'aide des mêmes équations du modèle P1 :

$$\kappa_{\lambda 01}(T_0) = \kappa_{\lambda 02}(T_0) \quad \text{IV. 12}$$

$$P_1(\lambda_1, T) = P_2(\lambda_2, T) \quad \text{IV. 13}$$

$$\frac{e^{-\beta E_{l1}} - e^{-\beta E_{u1}}}{e^{-\beta_0 E_{l1}} - e^{-\beta_0 E_{u1}}} = \frac{e^{-\beta E_{l2}} - e^{-\beta E_{u2}}}{e^{-\beta_0 E_{l2}} - e^{-\beta_0 E_{u2}}} \quad \text{IV. 14}$$

Ces trois critères ont été appliqués à 29 raies de l'argon susceptibles d'être absorbées dans une torche d'analyse. Les résultats sont présentés dans le Tableau IV-3. Les groupes de raies sont principalement définis à partir du premier critère. Il est relativement rare que des raies satisfaisant l'équation IV. 12 ne vérifient pas les deux autres critères.

Ainsi, le dernier critère représente (IV. 14) les populations relatives des niveaux hauts et bas des deux transitions. En supposant que la population des niveaux excités correspond à

une distribution de Boltzmann, cela revient à dire que les deux niveaux des deux raies doivent être proches en énergie. En pratique, l'application de ce critère ne permet de discriminer que les raies résonnantes des autres. En effet, leur niveau bas étant le fondamental, ce sont les seules transitions dont le niveau absorbeur a une population qui varie faiblement avec la température.

Le second critère (IV. 13), qui porte sur les profils des raies, indique que deux transitions qui ne sont pas perturbées de la même manière par les charges dans le plasma ne peuvent pas être traitées simultanément. Les profils sont définis par les phénomènes d'élargissement Doppler et collisionnels. Le premier est le même pour deux raies si la différence d'énergie entre les niveaux haut et bas est à peu près la même pour les deux transitions:

$$\Delta\lambda_D = \lambda_0 \sqrt{\frac{2kT \ln 2}{mc^2}} \quad \text{IV. 15}$$

$$\text{et } \lambda_0 = \frac{hc}{E_u - E_l} \quad \text{IV. 16}$$

Pour ce qui est de l'élargissement collisionnel, on a vu qu'il traduisait la perturbation des orbitales de la transition, et notamment l'orbitale haute (correspondant à l'énergie E_u) par les charges du plasma (libres ou celles des nuages électroniques des atomes). On peut donc obtenir des élargissements collisionnels proches pour deux transitions si leur niveau supérieur ont des énergies voisines.

Globalement, on observera des profils similaires pour deux raies si leurs niveaux hauts sont proches et si leurs niveaux bas sont proches. En pratique, il est rare de devoir séparer deux raies à cause de leurs profils.

Tableau IV-3 : Données spectroscopiques des transitions absorbées de l'argon. On montre aussi les groupes de raies mis en évidence par les critères (IV. 12, IV. 13, IV. 14).

Numéro du groupe	λ_0 (nm)	A_{ul} (s^{-1})	E_l (eV)	E_u (eV)	$\kappa_{\lambda_0}(10000K)$
1	1327,264	1,50E+07	13,302	14,236	1,14E+01
	1350,419	1,10E+07	13,095	14,013	1,36E+01
	1248,766	1,10E+07	13,076	14,068	1,41E+01
2	772,376	5,18E+06	11,548	13,153	1,81E+01
	696,543	6,39E+06	11,548	13,328	1,86E+01
	706,7217	3,80E+06	11,548	13,302	2,01E+01
	750,3868	4,45E+07	11,828	13,480	2,28E+01
	965,7786	5,43E+06	11,624	12,907	2,34E+01
	772,4207	1,17E+07	11,723	13,328	2,63E+01
	800,6156	4,90E+06	11,624	13,172	2,76E+01
	852,1441	1,39E+07	11,828	13,283	2,93E+01
3	826,4521	1,53E+07	11,828	13,328	3,01E+01
	751,4651	4,02E+07	11,624	13,273	3,61E+01
	738,398	8,47E+06	11,624	13,302	4,04E+01
	922,4498	5,03E+06	11,828	13,172	5,31E+01
4	801,4785	9,28E+06	11,548	13,095	6,08E+01
	912,2967	1,89E+07	11,548	12,907	8,50E+01
	794,8176	1,86E+07	11,723	13,283	9,18E+01
5	810,3692	2,50E+07	11,624	13,153	1,36E+02
	763,5105	2,45E+07	11,548	13,172	1,48E+02
	840,8209	2,23E+07	11,828	13,302	1,98E+02
6	842,4647	2,15E+07	11,624	13,095	2,94E+02
7	811,5311	3,31E+07	11,548	13,076	5,15E+02
8	86,9754	3,50E+07	0,000	14,255	3,93E+05
	87,9947	7,70E+07	0,000	14,090	8,83E+05
	106,666	1,19E+08	0,000	11,624	3,71E+06
	87,6058	2,70E+08	0,000	14,153	3,87E+06
	86,68	3,13E+08	0,000	14,304	4,34E+06
	104,822	5,10E+08	0,000	11,828	1,51E+07

Pour constituer des groupes de raies à partir de ces trois critères, on doit se donner une certaine marge d'erreur, faute de quoi on ne pourra pas réduire le problème. Plus cette marge est importante, plus les groupes de raies contiendront de transitions et moins les valeurs des paramètres κ_i , W_i et $\kappa_i B_i$ seront précises. On va donc faire un compromis entre la précision des bases de données et le nombre d'intervalles spectraux qu'on veut introduire dans le modèle P1.

Comme on le voit dans le Tableau IV-3, les 29 raies de l'argon traitées avec le modèle P1 ont été réduites à 8 groupes. On se ramène à un cas où 8 groupes de raies doivent être discrétisées en longueur d'onde ce qui permet de résoudre le modèle P1 sur environ 40 bandes. Chaque bande correspond alors à différents intervalles du spectre comme représenté sur la Figure IV-14.

La marge d'erreur pour obtenir une telle réduction est de 20%, c'est-à-dire que les valeurs du coefficient spectral d'absorption sont comprises dans l'intervalle correspondant la valeur moyenne $\pm 20\%$ (Figure IV-15). En se donnant une marge d'erreur plus faible, on ne pourrait réduire le problème dans la limite de 50 intervalles spectraux qu'on s'est fixée. De plus, la valeur de 20% est du même ordre que l'incertitude sur le calcul du coefficient spectral d'absorption. Les probabilités de transition de l'argon fournies dans la différente base de données du NIST sont connues à $\pm 25\%$ pour la plupart des raies. κ_λ étant proportionnel à A_{ul} , l'erreur relative sur κ_λ ne peut pas être inférieure à celle sur A_{ul} .

La Figure IV-15 montre la valeur du coefficient d'absorption maximum en fonction de la température pour chacune des trois transitions du groupe 4 (Tableau IV-3). La valeur moyenne pour le groupe avec une marge d'erreur de 20% y est aussi représentée.

Les valeurs de $\kappa_{\lambda 0}$ restent bien groupées autour de la moyenne mais on peut constater que l'évolution de $\kappa_{\lambda 0}$ avec la température n'est pas exactement la même pour toutes les raies. Dans la plage de température « utile » du point de vue des transferts radiatifs pour les torches inductives ([6000K, 11000K]), ces écarts sont suffisamment faibles à priori puisque toutes les valeurs de $\kappa_{\lambda 0}$ pour le groupe sont comprises dans l'incertitude de 25% imposée par les probabilités de transition.

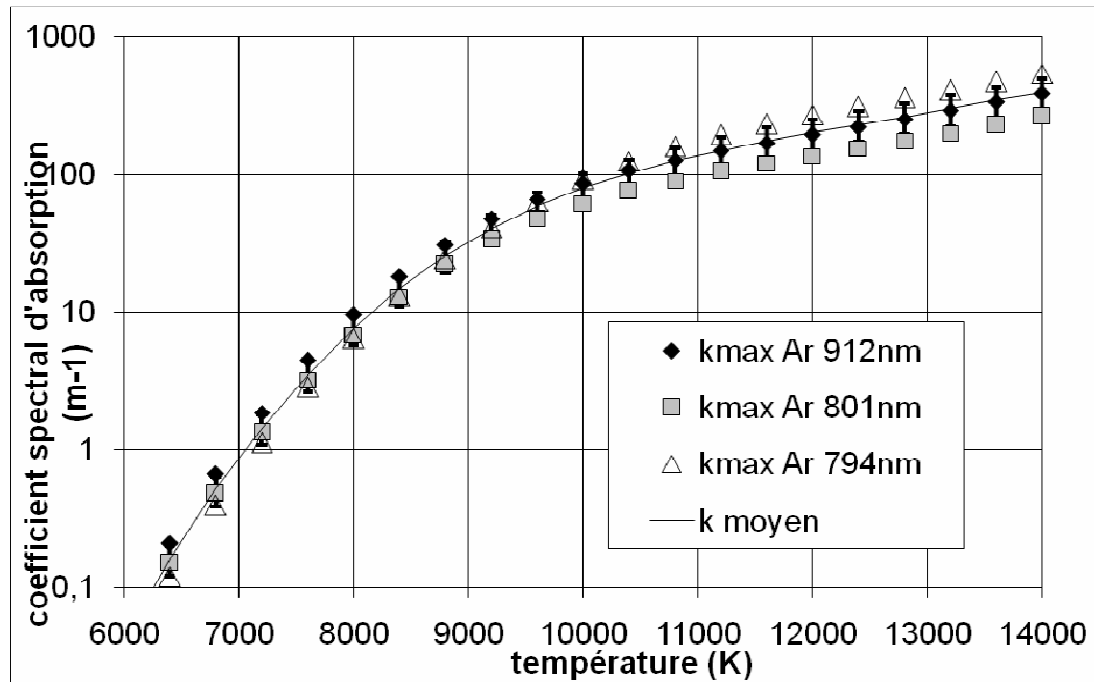


Figure IV-15 : absorption maximum pour les transitions Ar 912nm, Ar 814nm et Ar 794nm en fonction de la température et valeur moyenne de $\kappa_{\lambda 0}$.

Afin d'illustrer ce regroupement plus précisément, on a représenté sur la Figure IV-16 les profils de ces trois raies à deux températures.

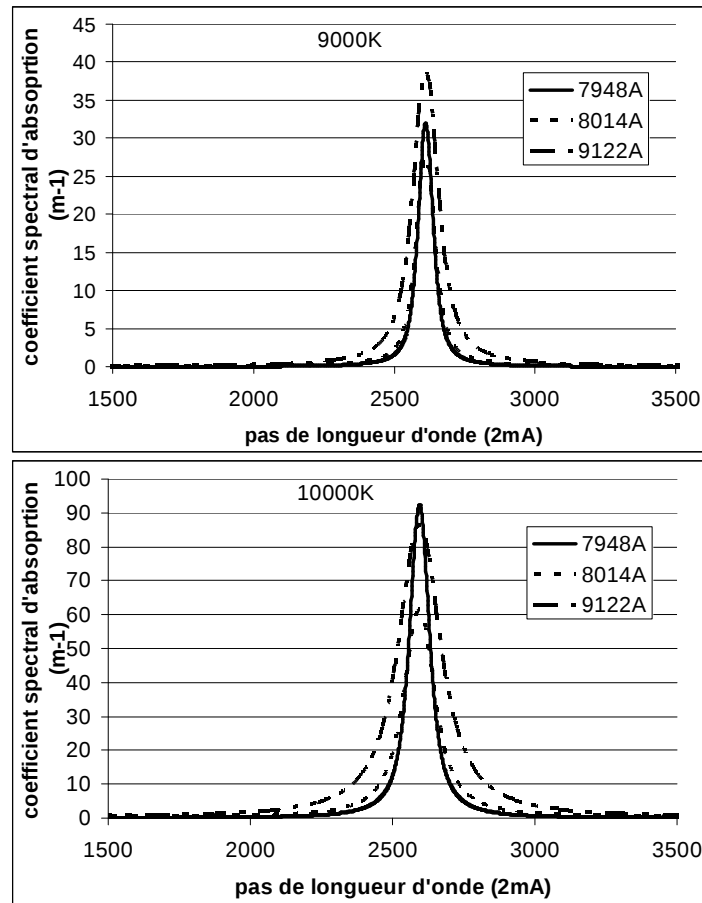


Figure IV-16 : profils des raies Ar 912nm, Ar 814nm et Ar 794nm à 9000K et 10000K.

On va donc traiter les trois raies du groupe 4 (Figure IV-16) comme une seule. On a ensuite affecté 3 bandes à ce groupe de raies pour les calculs de torche d'analyse, c'est-à-dire trois équations de type P1. Pour définir ces trois bandes, on se place à une température de référence (ici 10000K) et on a fixé l'ensemble des intervalles spectraux correspondant à chaque bande. On calcule ensuite les paramètres du modèle P1 à partir des différentes zones spectrales affectées à chaque bande en fonction de la température.

On a choisi de définir ces zones du spectre à partir de valeurs fixes du coefficient spectral d'absorption (les dk_i sur la Figure IV-14) comme on peut le voir dans le Tableau IV-4.

Tableau IV-4 : Définition de 3 bandes du modèle P1 à partir des profils des raies du groupe 4 à 10000K pour une torche d'analyse.

Groupe de raies & numéro de bande	Valeur des bornes de la bande à 10000K	Nombre d'intervalles spectraux par raie dans la bande
Gpe4/bande1	$[10m^{-1}, 30m^{-1}]$	2
Gpe4/bande2	$[30m^{-1}, 60m^{-1}]$	2
Gpe4/bande3	$>60m^{-1}$	1

Aucune bande, pour aucun groupe, n'est définie en dessous de $10m^{-1}$ à 10000K dans une torche d'analyse et de $4m^{-1}$ à 10000K dans une torche procédé. C'est la limite en dessous de laquelle on se ramène à une émission volumique.

Pour chaque groupe de raies, une bande est dévolue à la partie centrale des raies (sauf le groupe des raies résonnantes car leur partie centrale est à l'équilibre radiatif). Les équations

IV. 5, IV. 6 et IV. 7 incluent une pondération afin de lisser les écarts des coefficients spectraux d'absorption des différentes raies du groupe.

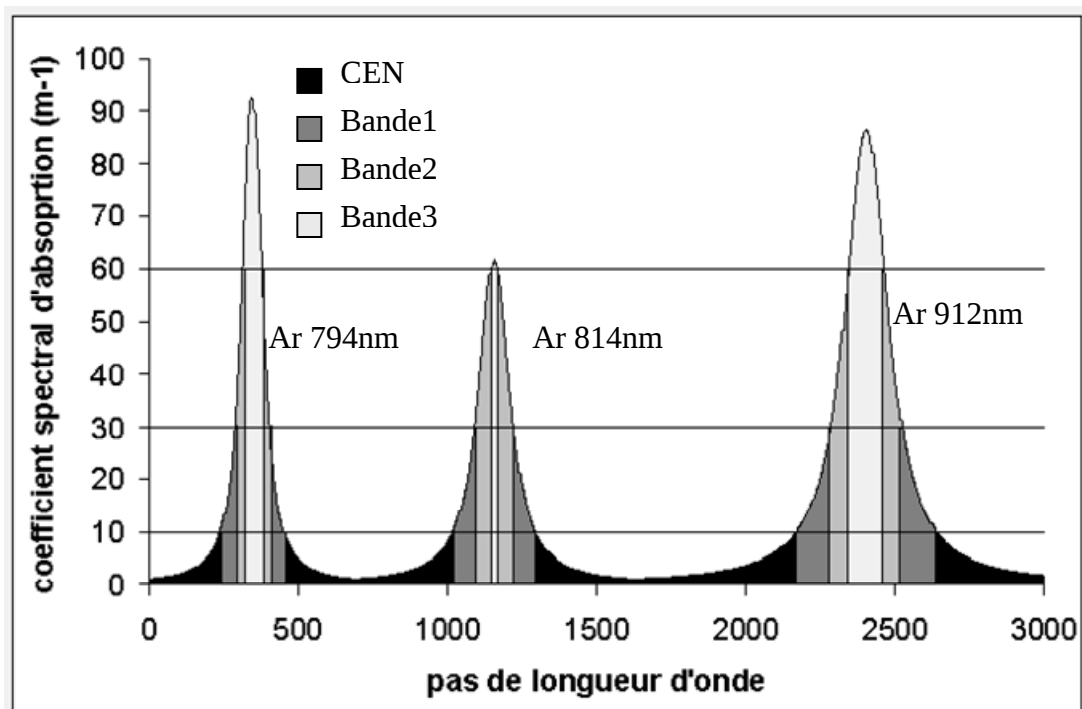


Figure IV-17 : Plages du spectre intégrées dans les différentes bandes du modèle P1 pour le groupe 4.

Cette procédure est répétée pour chaque groupe de raies, avec nombre de bandes pour chaque groupe qui dépend de la plage d'absorption couverte par les raies du groupe. Le nombre de bande par groupe est résumé dans le Tableau IV-5. Le groupe des raies résonnantes atteignant des absorptions de 25000m^{-1} , un grand nombre de bande est nécessaire pour le décrire.

Tableau IV-5 : nombre de bande pour chaque groupe de raie du modèle P1 dans une torche d'analyse (argon pur).

N° du groupe	1	2	3	4	5	6	7	8
Nombre de bandes	1	2	2	3	3	4	5	13

Le nombre de raies à traiter par cette procédure dépend de la taille de la torche considérée. Cette procédure sera donc répétée pour chaque géométrie considérée (torche d'analyse, torche procédé ou torche décrite dans la littérature).

La Figure IV-18 montre la valeur de κ_i en fonction de la température pour quelques bandes définies pour l'argon dans le cas d'une torche d'analyse ($R = 13\text{mm}$). On reconnaît les bandes issues du groupe de raies résonnantes à leur forte absorption à basse température (groupe 8 dans le Tableau IV-3).

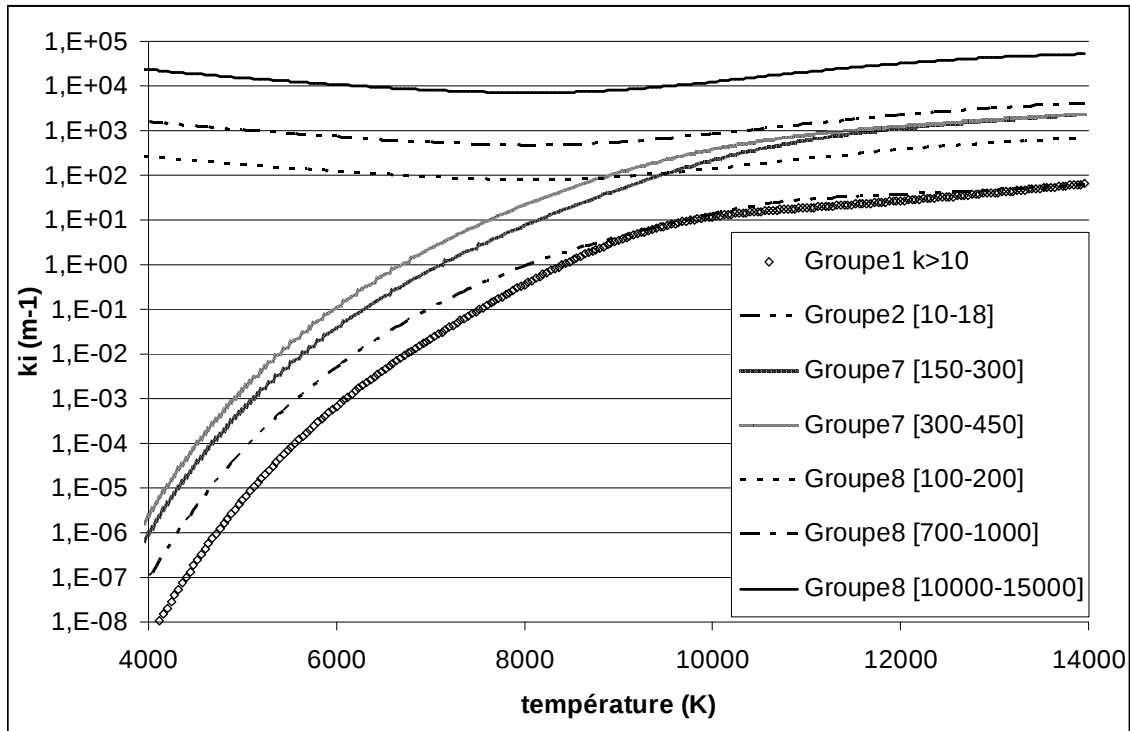


Figure IV-18 : paramètre κ_i en fonction de T pour quelques bandes du modèle P1 définies dans un plasma d'argon pur.

Etant donné que les flux et les termes sources obtenus lors des tests correspondaient à des épaisseurs optiques proches de 1, on a décidé de discrétiser plus finement les zones du spectre avec des coefficients spectraux d'absorption de l'ordre de 100m^{-1} . Cela explique qu'on ait des bandes recouvrant de large gammes d'absorption (ex : gpe8 [10000m^{-1} , 15000m^{-1}]). Ces bandes sont celles qui participent le moins au transfert radiatifs.

4.4. Bandes du modèle P1 pour le mélange argon-oxygène

4.4.1. Spectre UV d'un mélange 95%Ar, 5%O₂ molaire

On a déjà vu pour le continuum atomique (Figure IV-6) que la présence d'oxygène dans le plasma modifie la structure du spectre dans l'UV. Aux basses températures ($<4000\text{K}$), il existe en plus des transitions libre-libre et libre-lié dues à la présence de O₂ dans le mélange. Etant donné que le dioxygène disparaît pour les plus hautes températures, seul le problème de l'absorption par les transitions moléculaires se pose. [Naghizadeh, 1999] a calculé les valeurs du coefficient spectral d'absorption pour le continuum moléculaire de O₂ et pour les transitions lié-lié. Le calcul précis du spectre de ce type de transitions fait appel aux orbitales moléculaires et est très complexe. Par souci de simplicité, on a choisi de réutiliser les résultats publiés par [Naghizadeh, 1999]. La Figure IV-19 représente le coefficient spectral d'absorption de O₂ en fonction de la longueur d'onde et pour différentes températures. Les transitions lié-lié de O₂ ont été négligées mais les travaux de [Naghizadeh, 1999] montrent que leur émissivité est faible par rapport aux transitions lié-lié considérées ici. Etant donné la complexité du spectre moléculaire, il est difficile d'évaluer la possibilité de l'absorption de raies atomiques par ces transitions moléculaires et on a négligé cette possibilité.

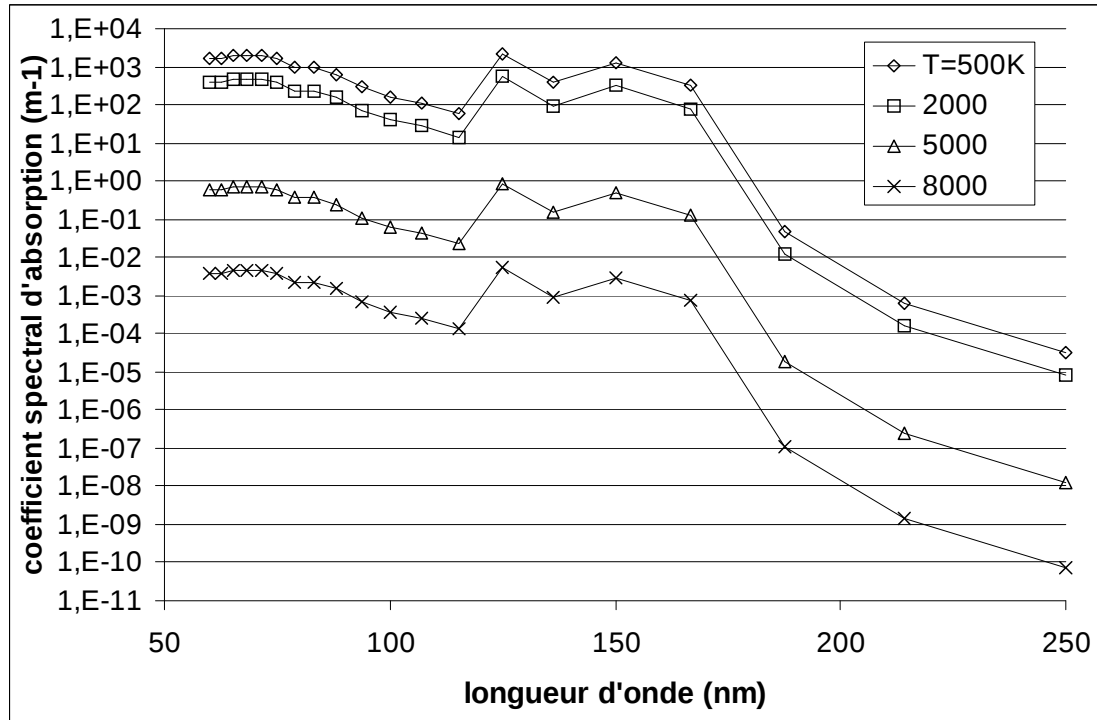


Figure IV-19 : coefficient spectral d'absorption du continuum moléculaire d'O₂ en fonction de la longueur d'onde et de la température.

Les données sur le continuum moléculaire ont été publiées pour une température de 300K. Afin de prendre en compte les variations du spectre moléculaire avec la température sans entrer dans les détails des transitions moléculaires, on a utilisé l'approximation proposée par [Cressault, 2001] :

$$\kappa_{mol}(\lambda, T) = \sigma(\lambda) n_{O_2}(T) \quad \text{IV. 17}$$

On obtient les sections efficaces d'absorption de photons par le spectre moléculaire à partir des valeurs à 300K. L'absorption à une température donnée s'obtient alors comme suit :

$$\kappa_{mol}(\lambda, T) = \kappa_{mol}(\lambda, 300K) \frac{n_{O_2}(T)}{n_{O_2}(300K)} \quad \text{IV. 18}$$

Dans le cas de mélanges argon-oxygène, le spectre moléculaire joue un rôle similaire au continuum atomique, on observe une forte absorption dans le domaine UV (Figure IV-19). Dans la zone UV, le continuum moléculaire va absorber aux basses températures et pour les longueurs d'onde <190nm. Le continuum atomique absorbe à des températures plus élevées et pour des longueurs d'onde <100nm.

La plupart des transitions résonnantes de l'oxygène (qui sont des multiplets) vont être absorbées, ainsi que toutes les transitions résonnantes de l'argon. La superposition de tous ces phénomènes radiatifs donne un spectre très complexe dans la zone UV pour les plasmas argon-oxygène. Il semble très difficile de décrire cette zone du spectre avec les méthodes exposées pour le modèle P1 sans dépasser la limite de 50 bandes. On doit donc simplifier le problème.

Pour cela on a choisi de traiter l'ensemble du spectre UV avec une seule bande en utilisant la méthode du CMA (II. 51, [Gleizes, 1997], [Cressault 2001] ou par une moyenne classique :

$$\langle \kappa \rangle_{\lambda_1-\lambda_2} = \frac{\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} (\kappa_{\lambda}^{\text{continuum}} + \kappa_{\lambda}^{\text{raies}}) d\lambda}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad \text{IV. 19}$$

On a donc moyenné le coefficient spectral d'absorption sur la zone [60nm, 190nm]. Cette dernière contient donc le spectre moléculaire d'O₂, la partie très absorbée du continuum atomique de l'oxygène et les transitions résonnantes de l'argon et de l'oxygène se situant à des longueurs d'onde inférieures à 190nm (les données concernant ces transitions sont regroupées dans le Tableau IV-6).

Tableau IV-6 : transitions absorbées par le continuum UV dans un mélange Ar95%, O₂5% en volume.

Wavelength (nm)	element	Aki (s ⁻¹)	Ei (eV)	Ek (eV)	Ji	Jk	gi	gk
92,495	O	7,22E+06	0	13,40443	2	3	5	7
92,495	O	1,81E+06	0	13,40443	2	2	5	5
92,495	O	2,01E+05	0	13,40443	2	1	5	3
92,6306	O	5,39E+06	0,0196224	13,40443	1	2	3	5
92,6306	O	3,00E+06	0,0196224	13,40443	1	1	3	3
92,6896	O	3,99E+06	0,0281416	13,40443	0	1	1	3
92,9517	O	1,06E+07	0	13,3385635	2	3	5	7
92,9517	O	2,66E+06	0	13,3385635	2	2	5	5
92,9517	O	2,96E+05	0	13,3385635	2	1	5	3
93,0257	O	6,90E+06	0	13,3279563	2	1	5	3
93,0886	O	7,95E+06	0,0196224	13,3385635	1	2	3	5
93,0886	O	4,42E+06	0,0196224	13,3385635	1	1	3	3
93,1482	O	5,88E+06	0,0281416	13,3385635	0	1	1	3
93,1628	O	4,12E+06	0,0196224	13,3279563	1	1	3	3
93,2225	O	1,37E+06	0,0281416	13,3279563	0	1	1	3
93,6629	O	1,66E+07	0	13,2372717	2	3	5	7
93,6629	O	4,15E+06	0	13,2372717	2	2	5	5
93,6629	O	4,61E+05	0	13,2372717	2	1	5	3
93,7841	O	1,11E+07	0	13,2201781	2	1	5	3
93,802	O	1,24E+07	0,0196224	13,2372717	1	2	3	5
93,802	O	6,88E+06	0,0196224	13,2372717	1	1	3	3
93,8625	O	9,16E+06	0,0281416	13,2372717	0	1	1	3
93,9235	O	6,63E+06	0,0196224	13,2201781	1	1	3	3
93,9841	O	2,21E+06	0,0281416	13,2201781	0	1	1	3
104,822	Ar	5,10E+08	0	11,8280704	0	1	1	3
86,68	Ar	3,13E+08	0	14,3036675	0	1	1	3
87,6058	Ar	2,70E+08	0	14,1525142	0	1	1	3
106,666	Ar	1,19E+08	0	11,623592	0	1	1	3
87,9947	Ar	7,70E+07	0	14,0899676	0	1	1	3
86,9754	Ar	3,50E+07	0	14,2550847	0	1	1	3

La méthode du CMA présentée par [Gleizes, 1997] a été modifiée pour représenter plus précisément la contribution des raies absorbées. En effet, le facteur de fuite Λ_r dans II. 52 représente le fait que pour les transitions résonnantes, seule une partie de la raie (les ailes) participe aux transferts radiatifs. D'après nos calculs, l'équilibre radiatif est atteint pour $\tau_{\lambda} > 250$. Tenir compte directement du centre des raies résonnantes (sans facteur de fuite) revient à augmenter le coefficient moyen d'absorption à cause de longueurs d'onde ne participant pas aux transferts. Plutôt que de tenir compte du phénomène par un facteur de fuite, on propose de simplement retirer de l'intégration (IV. 19) toutes les zones du spectre avec $\tau_{\lambda} > 250$.

Les valeurs du coefficient d'absorption obtenue avec les deux méthodes sur cette large plage du spectre en fonction de la température sont données sur la Figure IV-20. En utilisant

la méthode du CMA, on pondère le coefficient spectral d'absorption par la fonction de Planck.

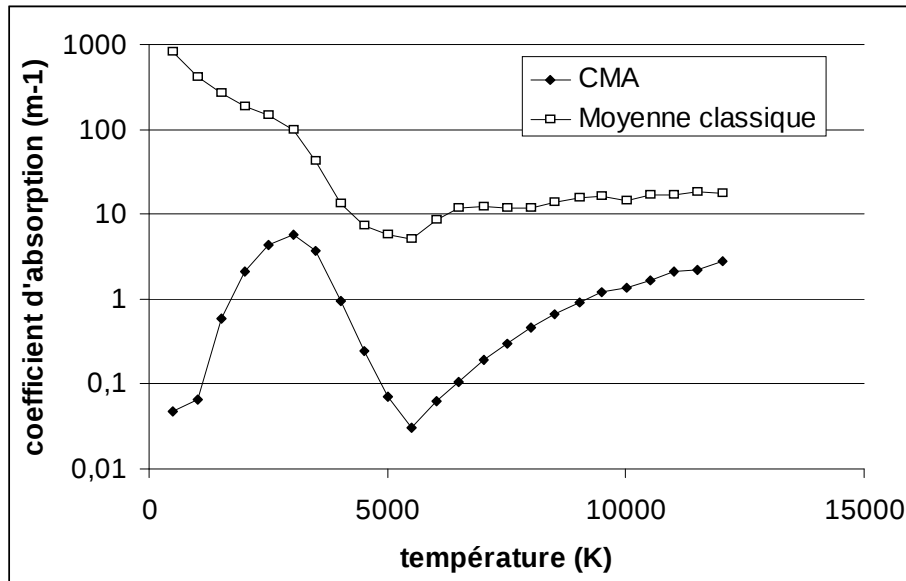


Figure IV-20 : coefficient d'absorption moyen sur la zone [60nm, 190nm] d'un plasma Ar-O₂ avec deux méthodes de calcul.

Traiter les raies résonnantes de l'argon à l'aide d'une seule bande du modèle P1 est une simplification assez forte mais elle permet de traiter les raies absorbées de l'oxygène en restant dans la limite des 50 bandes.

4.4.2. Bandes du modèle P1 dans le visible et l'IR pour un mélange 95%Ar, 5%O₂ molaire

Une fois la partie UV du spectre traitée, il reste, en plus raies partiellement absorbées de l'argon évoquées précédemment, les raies partiellement absorbées de l'oxygène. On en recense par exemple 33 pour une torche procédé de rayon 2cm (Tableau IV-7).

Pour le mélange de composition Ar95%, O₂ 5% en volume, on a donc cherché à appliquer la procédure de regroupement des raies décrite plus tôt, en restant dans la limite de 50 bandes initialement fixée.

L'oxygène présente de nombreux multiplets, c'est-à-dire des transitions avec le même niveau émetteur et des niveaux absorbeurs très proches ou avec le même niveau absorbeur et des niveaux émetteurs très proches. Dans les deux cas, les différentes raies d'un multiplet satisfont aux critères de regroupement définis dans ce chapitre (IV. 12, IV. 13, IV. 14) et sont systématiquement traitées avec le même ensemble de bandes (ou même groupe). Les groupes de raies de l'oxygène et les bandes affectées à chacun d'entre eux sont donnés dans le Tableau IV-7.

Comme pour l'argon, un grand nombre de bandes est affecté à la transition résonnante de l'oxygène qui n'est pas comprise dans la zone UV du spectre. Il s'agit du même multiplet (630nm) que celui décrit dans le paragraphe concernant la méthode CEN et qui est responsable d'une grande part du rayonnement des plasmas argon-oxygène à basse température (Figure IV-8). C'est le multiplet qui a plus d'effet sur les transferts radiatifs, ce qui justifie de tenter de le décrire plus précisément.

Les valeurs du paramètre κ_i en fonction de la température pour quelques bandes de l'argon et de l'oxygène dans un mélange Ar95%, O₂ 5% en volume sont donnés sur la Figure

IV-21. Le groupe 6 correspond aux raies du multiplet O630nm. C'est une raie résonnante et le coefficient κ_i augmente lorsque la température diminue comme pour les raies résonnantes de l'argon dans un plasma d'argon pur (Figure IV-18), jusqu'à 4000K environ. En dessous de cette valeur, κ_i diminue sous l'effet de la disparition de O en faveur d'O₂.

Les raies non résonnantes ont un comportement similaire que ce soit pour l'argon ou l'oxygène (Figure IV-21).

Tableau IV-7 : groupes de raies de l'oxygène dans un mélange 95%Ar, 5%O₂ en volume.

Nombre de bandes pour le groupe	λ_0 (nm)	A_{ul} (s ⁻¹)	E_l (eV)	E_u (eV)	J_l	J_u	$\kappa_{\lambda,0}$ (10000K)
1	3098,541	5,04E+06	12,35887	12,7590115	2	3	3,17E+00
	2893,519	4,10E+06	11,93039	12,358874	1	2	3,51E+00
	2764,789	4,29E+06	11,83761	12,286045	2	2	3,33E+00
	2763,875	4,30E+06	11,83761	12,286193	2	3	1,00E+01
	2652,049	6,44E+06	12,28619	12,7536965	3	4	5,29E+00
	2651,18	4,30E+06	12,28605	12,7537016	2	3	2,19E+00
1	1824,384	1,47E+07	12,08704	12,7664467	3	4	6,49E+00
	1824,354	1,31E+07	12,08703	12,7664467	2	3	3,87E+00
	1824,331	1,24E+07	12,08702	12,7664467	1	2	2,41E+00
	1802,151	1,01E+07	12,07864	12,766435	2	3	2,94E+00
	1802,111	1,23E+07	12,07863	12,766435	3	4	5,33E+00
1	1130,2378	1,25E+07	10,74093	11,837605	3	2	4,91E+00
	1129,7682	8,90E+06	10,74048	11,837605	2	2	3,73E+00
	1129,5103	5,34E+06	10,74022	11,837605	1	2	2,38E+00
	1128,6914	3,09E+07	10,98886	12,087037	2	3	6,18E+00
	1128,6317	2,32E+07	10,98879	12,087026	1	2	3,13E+00
	926,6006	4,45E+07	10,74093	12,078618	3	4	8,23E+00
	926,5932	1,48E+07	10,74093	12,078629	3	3	2,08E+00
	926,2776	2,97E+07	10,74048	12,078629	2	3	4,33E+00
	926,267	2,60E+07	10,74048	12,078644	2	2	2,56E+00
	926,0936	1,56E+07	10,74022	12,078644	1	2	3,69E+00
	926,0848	3,34E+07	10,74022	12,078657	1	1	4,48E+00
3	844,6758	3,22E+07	9,521363	10,988792	1	1	1,75E+01
	844,6359	3,22E+07	9,521363	10,988861	1	2	3,28E+01
	844,6247	3,22E+07	9,521363	10,988888	1	0	5,65E+00
3	777,5388	3,69E+07	9,146091	10,740224	2	1	3,01E+01
	777,4166	3,69E+07	9,146091	10,740475	2	2	5,40E+01
	777,1944	3,69E+07	9,146091	10,740931	2	3	7,41E+01
14	639,1733	8,60E+07	0,028142	1,967364	0	2	5,44E+06
	636,3776	3,39E+06	0,019622	1,967364	1	2	2,19E+05
	636,3776	1,82E+03	0,019622	1,967364	1	2	1,18E+02
	630,0304	2,11E+05	0	1,967364	2	2	1,49E+04
	630,0304	5,63E+03	0	1,967364	2	2	3,98E+02

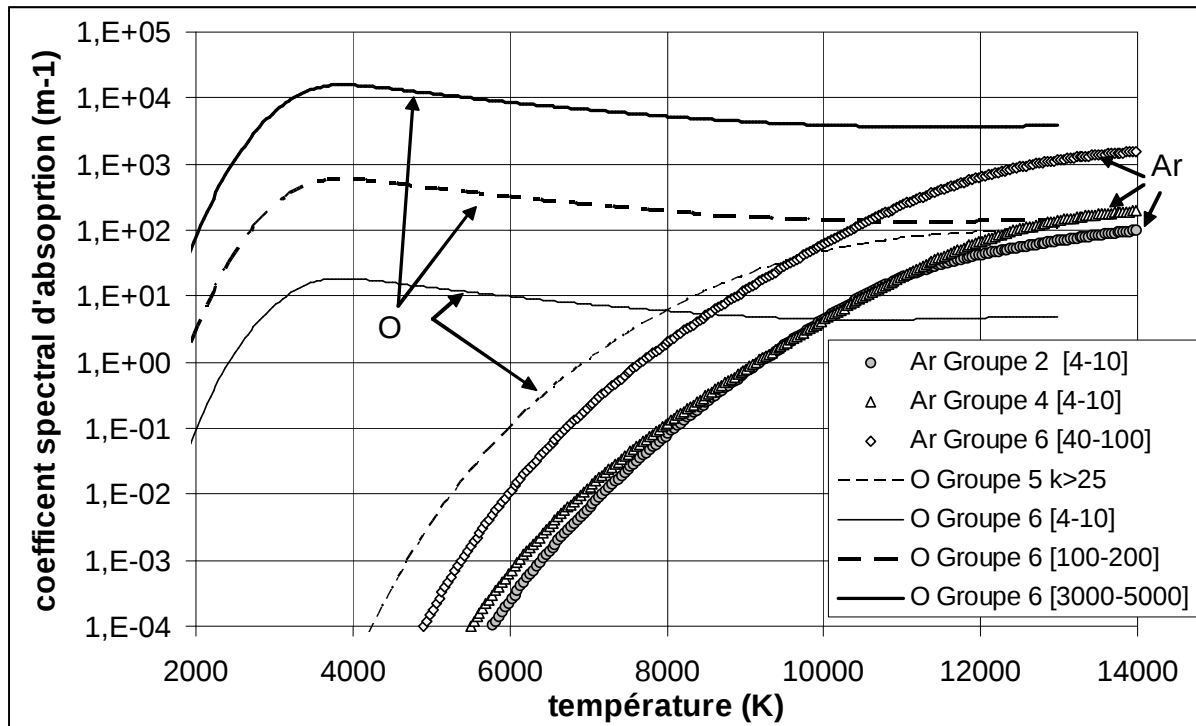


Figure IV-21: paramètre κ_i en fonction de T pour quelques bandes du modèle P1 définies dans un plasma Ar95%, O₂5% molaire.

Chapitre V. Résultats numériques

Après avoir présenté les différents modèles utilisés et les méthodes de calcul des propriétés radiatives et de transport, on va s'intéresser ici à leur intégration dans des simulations de différentes torches plasma. Ce chapitre va donc présenter les résultats numériques obtenus sur les différents cas d'étude. On s'attachera notamment à comparer les deux modèles de rayonnement P1 et CEN. Le cas de plasma issus de mélanges Ar-O₂ sera également abordé.

1. Implémentation des modèles

La méthode CEN est la plus simple à implémenter. Il suffit d'intégrer un terme source à l'équation d'énergie qui ne dépend que de la température. Avec un modèle DO, on peut décrire la répartition géométrique des ces pertes radiatives dans une géométrie donnée. Pour ce faire, on implémente le même terme source dans les équations du modèle DO (équation II.42), en le divisant par 4π car le modèle DO est directionnel. On résout alors une équation par direction de propagation qu'on s'est donnée. Dans ces équations, on doit forcer le coefficient d'absorption à 0 car les valeurs du CEN tiennent déjà compte de l'absorption du rayonnement sur un chemin optique de longueur R_p (rayon plasma).

Pour le modèle P1, on définit une équation de propagation de l'intensité radiative par bande spectrale. Les termes sources de toutes les équations du modèle P1 (II.51) sont sommés sur toutes les bandes et intégrées comme terme source de l'équation d'énergie. Comme ce terme source dépend de l'intensité radiative calculée par le modèle P1, on a un couplage fort entre l'énergie et le rayonnement.

2. Résultats et discussion

2.1. Torche d'analyse en argon pur

2.1.1. Remarques générales

Avant de s'intéresser en détail aux transferts radiatifs, on va présenter les résultats des autres modèles présentés au chapitre III : thermique, hydrodynamique, électromagnétisme et turbulence, en commençant par des torches d'analyses de faible puissance et en argon pur. Des résultats typiques pour les modèles cités plus hauts sont présentés sur les Figure V-1, Figure V-2, Figure V-3 et Figure V-4 avec le modèle d'émission nette (CEN, $R_p=1\text{cm}$) pour le rayonnement. Les résultats du modèle P1 pour les torches d'analyse en argon pur sont très semblables comme on le verra par la suite (2.1.2 et Figure V-5).

On peut observer que la puissance Joule se concentre dans une fine peau annulaire parfois appelée zone de couplage qui délimite la partie la plus chaude du plasma (Figure V-1), et concentre les plus fortes forces électromagnétiques. Le plasma ayant un faible rayon, tout le cylindre situé à l'intérieur de la zone de couplage est porté à haute température lorsque le débit injecteur est nul. Au contraire, les torches de plus grande taille peuvent donner une zone chaude annulaire (Figure III-4).

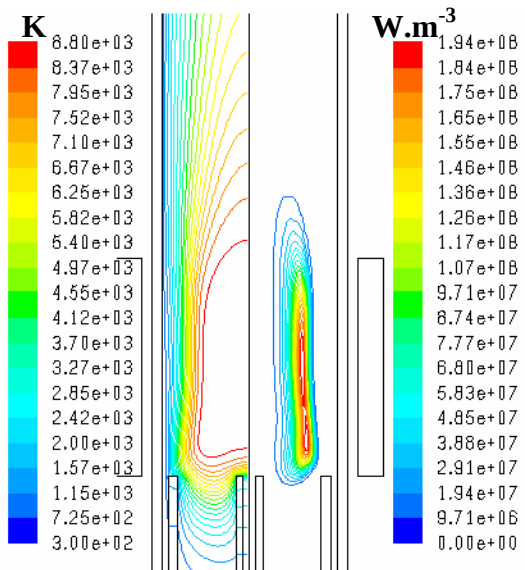


Figure V-1 : température (gauche) et puissance Joule (droite) typiques dans une torche d'analyse.

$P_{\text{ind}} = 800\text{W}$, $Q_3 = Q_2 = 0\text{L/min}$, $Q_1 = 13,5\text{L/min}$.

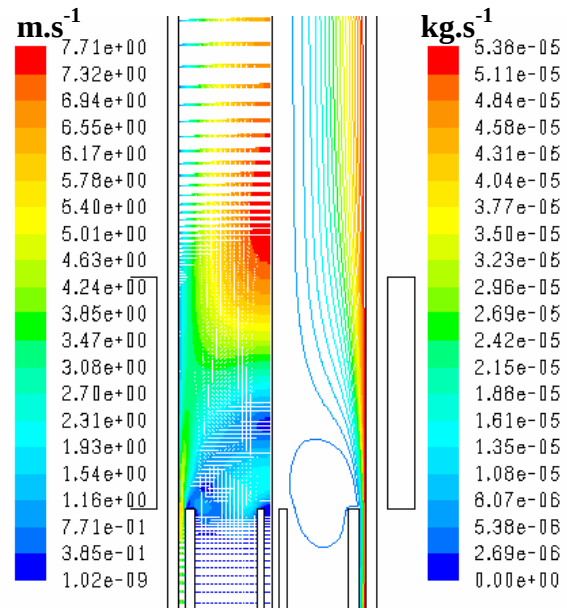


Figure V-2: vitesses (gauche) et lignes de courant (droite) typiques dans une torche d'analyse.

$P_{\text{ind}} = 800\text{W}$, $Q_3 = Q_2 = 0\text{L/min}$, $Q_1 = 13,5\text{L/min}$.

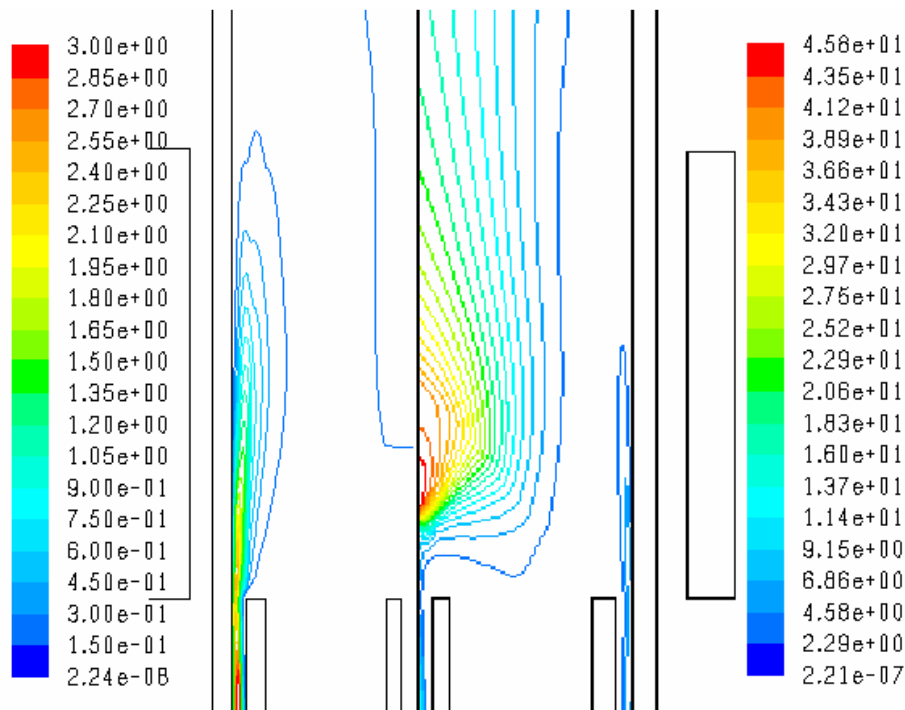


Figure V-3 : nombre de Reynolds turbulent dans une torche d'analyse.

(a, gauche) : $P_{\text{ind}} = 800\text{W}$, $Q_3 = Q_2 = 0\text{L/min}$, $Q_1 = 13,5\text{L/min}$.

(b, droite) : $P_{\text{ind}} = 2000\text{W}$, $Q_3 = 0,9\text{L/min}$, $Q_2 = 0\text{L/min}$, $Q_1 = 13,5\text{L/min}$.

On peut également observer une recirculation à la sortie des tubes (Figure V-2). Cette recirculation est caractéristique des torches à injection axiale. Elle a déjà été mise en évidence par d'autres modèles numériques [Boulos, 1980]. Dans la zone de l'inducteur, les lignes de courant s'écartent à mesure que le gaz chauffe se dilate sous l'effet du couplage électromagnétique. L'écoulement est peu turbulent de manière générale même si l'injection de gaz dans la partie centrale crée une zone où la turbulence intervient dans les transferts. Cependant l'importance de ces zones, et du modèle de turbulence utilisé sont difficiles à

interpréter dans la mesure où l'écoulement n'est ni complètement laminaire ni complètement turbulent.

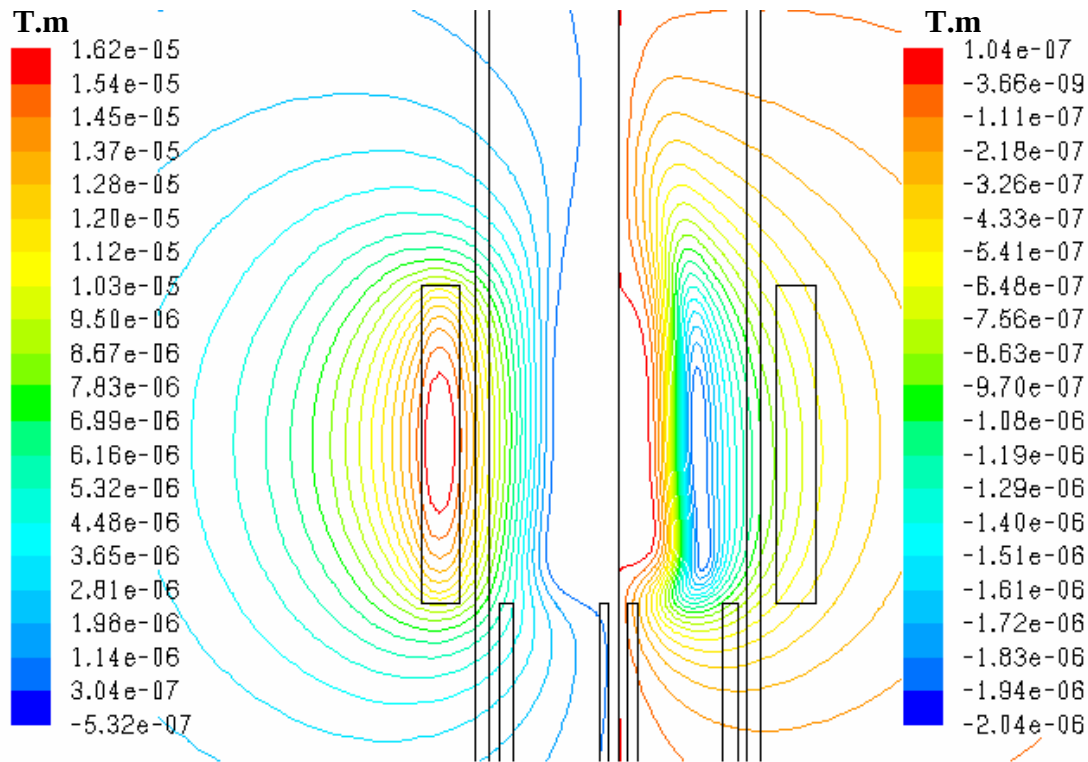


Figure V-4 : partie réelle (gauche) et imaginaire (droite) du potentiel vecteur typiques dans une torche d'analyse. $P_{\text{ind}} = 800\text{W}$, $Q_3 = Q_2 = 0\text{L/min}$, $Q_1 = 13,5\text{L/min}$.

Les plasmas de faible puissance sont utilisés le plus souvent pour l'analyse spectrochimique. La substance à étudier est injectée par le tube central de la torche. Cette injection centrale modifie les champs de température dans le plasma en refroidissant sa partie centrale (Figure V-5, à comparer avec la Figure V-1). L'injection centrale de gaz retarde l'échauffement du plasma dans sa partie centrale en maintenant la conductivité électrique à un niveau faible. Le volume disponible pour dissiper la puissance Joule est alors plus faible, ce qui a pour effet de confiner la chaleur dans un espace plus restreint, augmentant la température maximale du plasma.

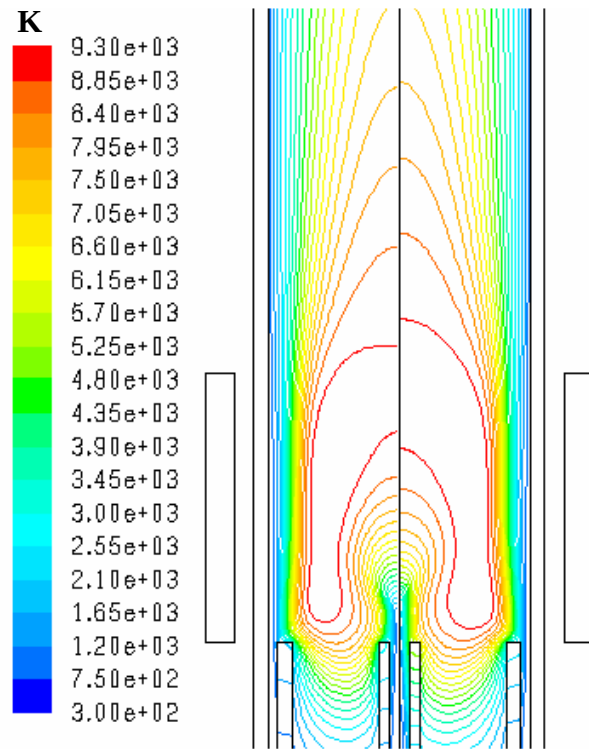


Figure V-5 : température calculées avec la méthode CEN (gauche) et avec le modèle P1 (droite).

$P_{\text{ind}} = 1400\text{W}$, $Q_3 = 0,9\text{L/min}$, $Q_2 = 0\text{L/min}$, $Q_1 = 13,5\text{L/min}$.

2.1.2. Etude des transferts radiatifs

Afin de valider le comportement de notre modèle P1 sur des cas connus, nous avons d'abord étudié des torches d'analyse de faible puissance fonctionnant en argon pur avec le modèle P1 d'une part et en n'utilisant que l'émission nette d'autre part. Les pertes radiatives sont représentées sur la Figure V-6, qui regroupe tous les points du domaine dans un plan émission volumique / température. Comme expliqué au chapitre IV, l'utilisation du modèle P1 est limitée aux grandes valeurs de τ_λ , en dehors de ces bandes nous calculons une émission volumique (qui est en fait un CEN limité aux plages du spectre pour lesquelles le plasma est optiquement mince). La perte totale est en bon accord avec les valeurs du CEN publiées dans la littérature, même si celle obtenue avec le modèle P1 présentent une légère dispersion autour de la courbe proposée par [Essoltani, 1994]. Cette dispersion provient du fait que le terme source du modèle P1 dépend non seulement de la température (via les paramètres d'émission et d'absorption), mais aussi de la quantité de rayonnement arrivant au point considéré, qui n'est pas prise en compte par le modèle CEN. La faible dispersion autour des valeurs du CEN montre que les phénomènes d'absorption sont limités dans un plasma de ce type ($P_{\text{ind}} = 1400\text{W}$, $Q_1 = 13,5\text{L/min}$, $Q_2 = Q_3 = 0\text{L/min}$), transitions résonnantes mises à part (ces transitions sont fortement auto-absorbées donc éliminées, dans les deux modèles).

Il apparaît donc que le modèle P1 permet de décrire correctement les flux radiatifs même pour des épaisseurs optiques faibles (jusqu'à 0,1). Ces résultats permettent également de supposer que la méthode de regroupement des raies proposée n'induit pas d'erreur systématique importante lorsqu'on l'applique à l'argon pur.

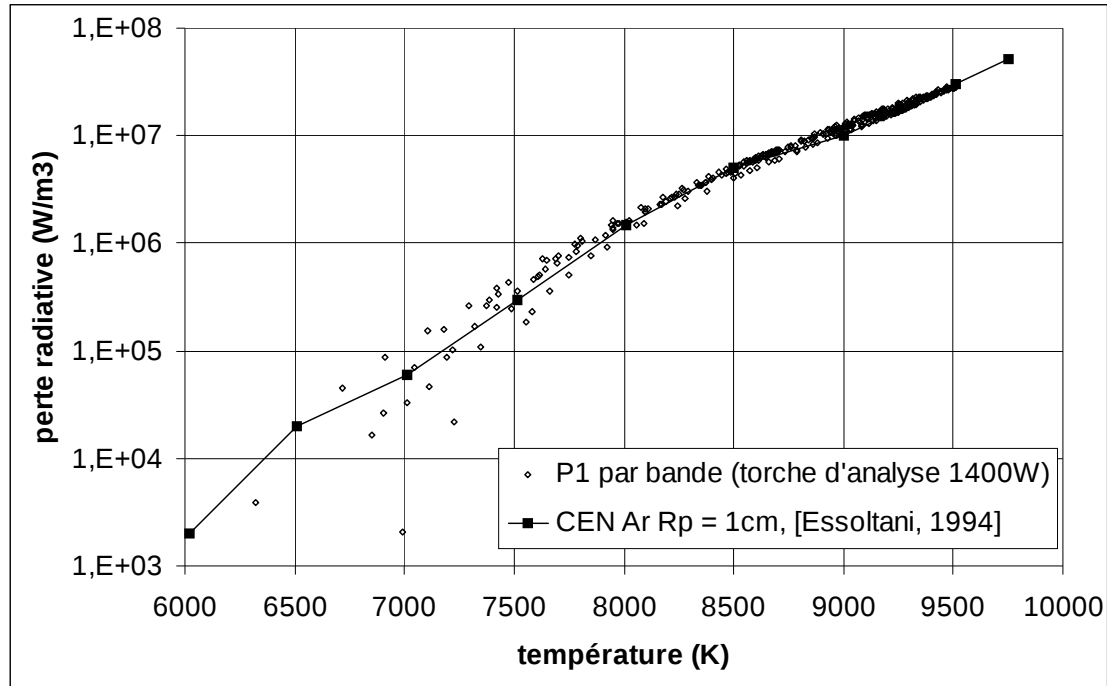


Figure V-6 : pertes radiatives en fonction de la température dans une torche d'analyse.

$P_{ind} = 1400W$, $Q_3 = Q_2 = 0L/min$, $Q_1 = 13,5L/min$.

Au vu des résultats généraux présentés ci-dessus, on peut remarquer que le chauffage par effet Joule engendre des puissances un ordre de grandeur supérieures au refroidissement par rayonnement (maxima de $2.10^8 W/m^3$ contre $2.10^7 W/m^3$, sur les Figure V-1 et Figure V-6 respectivement). Cela semble indiquer que la majeure partie de la chaleur induite dans le plasma est convectée vers l'aval. Pour vérifier cela, on a étudié les deux torches d'analyses (colonnes 1 et 2 du Tableau III-1), le débit de la torche de 27mm a été augmenté afin de pouvoir faire converger les calculs sur une plus large gamme de puissance ($Q_1 = 22,4L/min$). Les pertes radiatives en fonction de la puissance injectée pour les deux modèles de rayonnement étudiés sont données sur la Figure V-7. Il apparaît que le rayonnement est un mécanisme de refroidissement mineur pour les plasmas d'analyse. La plus grande partie de la puissance est en fait convectée hors de la torche sous forme de gaz chaud. Les pertes radiatives calculées avec le modèle P1 correspondent bien à celles obtenues avec la méthode CEN pour un rayon plasma de 1cm.

L'utilisation du modèle DO afin de localiser ces pertes radiatives montre que la plus grande partie du rayonnement atteint les tubes en quartz au niveau de la bobine (90% du total).

Quand la puissance induite augmente, la part des pertes radiatives croît elle aussi sous l'effet de l'augmentation de volume du plasma. La température maximum n'augmente en revanche pas de manière significative comme peut le voir sur la Figure V-9 et la Figure V-8. L'absorption étant limitée pour une torche de diamètre 18 ou 27mm, les pertes radiatives augmentent avec le volume du plasma sous l'effet de l'augmentation de la taille de la zone émettrice. Le rayonnement est plus sensible que la convection à un accroissement de volume et/ou de température de la zone plasma. En effet, le flux convecté est proportionnel à T , alors que rayonnement en dépend exponentiellement ou au moins à une puissance de T supérieure à 1. On peut mettre grossièrement cette tendance en évidence comme suit :

$$\int_S \rho V_z dS \approx \rho V_z S = c^{te} \quad \text{V. 1}$$

Avec V_z la vitesse axiale, ρ la masse volumique et S la surface de passage. Le flux de convection au travers de la surface de passage s'écrit ensuite :

$$\int_S \rho V_z H dS \approx \rho V_z H S \propto H$$

V. 2

Où H est l'enthalpie du gaz qui est proportionnelle à T dans la mesure où le C_p de l'argon est presque constant dans la gamme de température considérée ici.

La faible importance de l'absorption a pour autre conséquence que les pertes par rayonnement dépendent peu du rayon plasma choisi lorsqu'on utilise le modèle CEN. La fraction de la puissance injectée cédée par rayonnement varie de moins de 1% quand R_p passe de 0,3cm à 2cm (Figure V-10). On obtient cependant des résultats peu crédibles pour un rayon plasma nul car on ne tient alors plus compte de l'absorption des raies résonnantes. Ces dernières sont presque complètement absorbées pour $R_p > 1\text{mm}$.

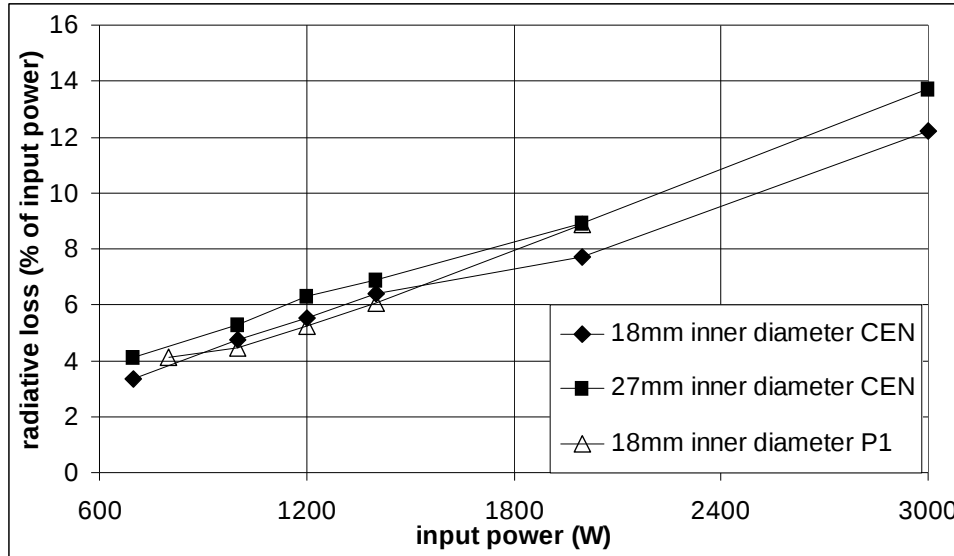


Figure V-7 : pertes radiatives en fonction de la puissance injectée pour deux torches d'analyses (torche d'analyse du laboratoire et système décrit par [Regt, 1995]) avec le modèle P1 et le modèle CEN ($R_p = 1\text{cm}$).

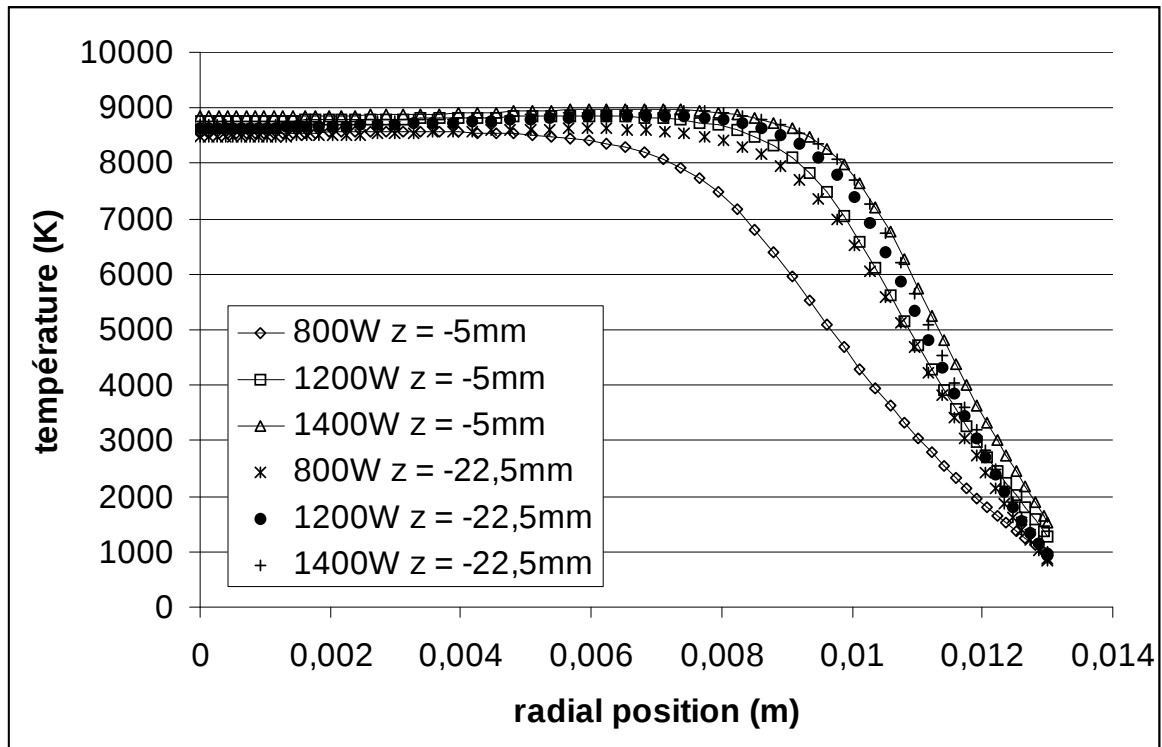


Figure V-8 : profils de températures radiaux à l'entrée ($z = -22.5\text{mm}$) et à la sortie ($z = -5\text{mm}$) de la zone de couplage en fonction de la puissance injectée.

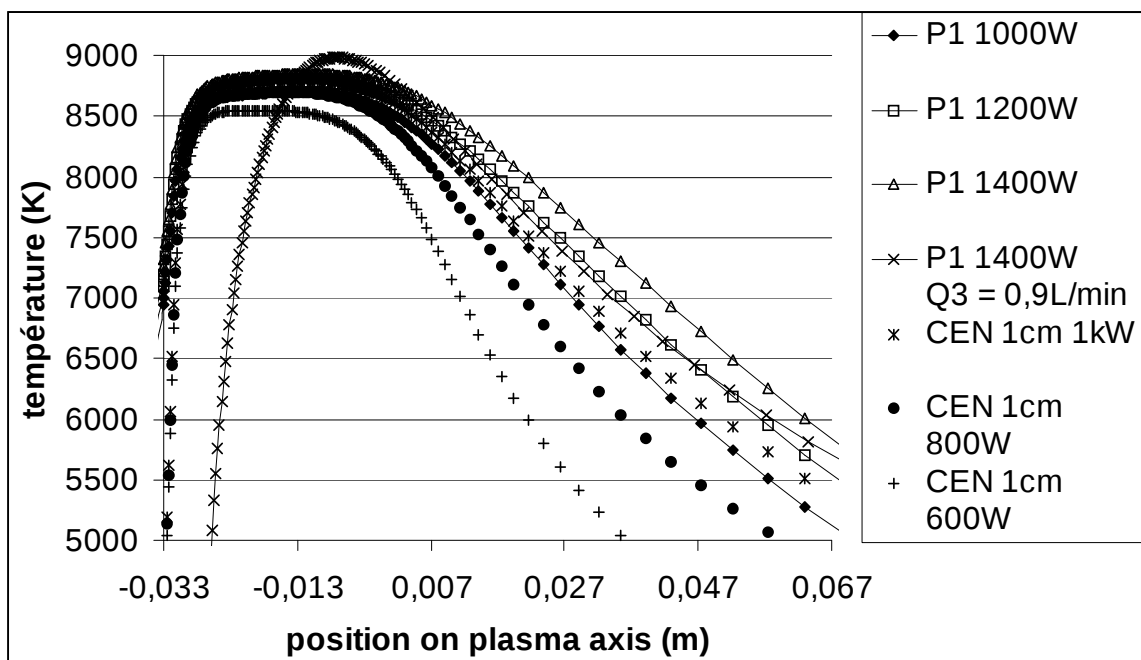


Figure V-9 : température sur l'axe du plasma en fonction de la puissance injectée.
 $Q_3 = 0\text{L/min}$, $Q_2 = 0\text{L/min}$, $Q_1 = 13,5\text{L/min}$ sauf information contraire.

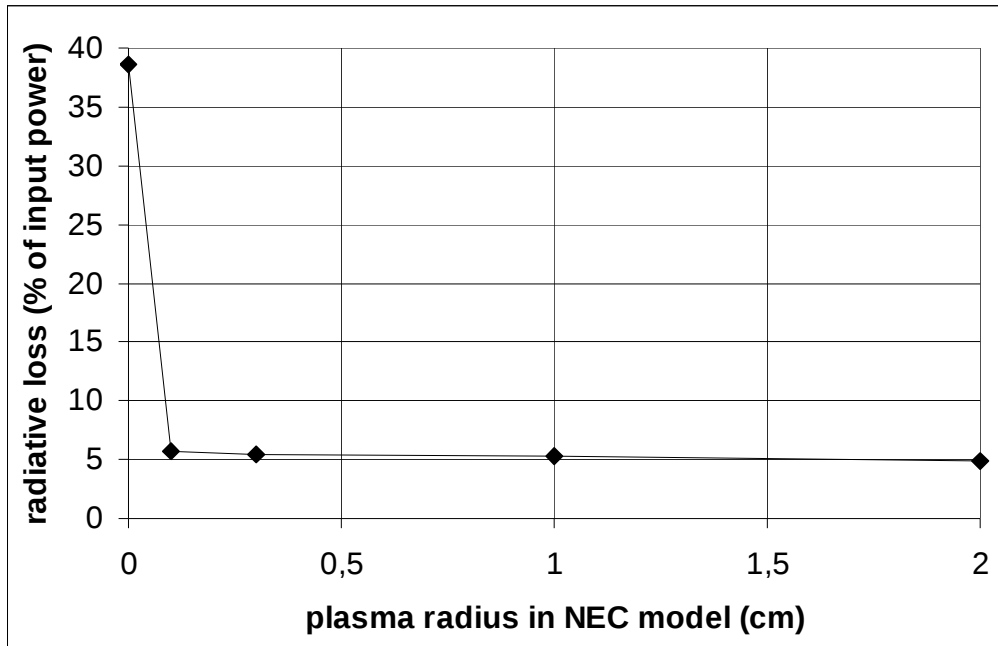


Figure V-10 : pertes radiatives en fonction du rayon plasma avec la méthode CEN.

$P_{\text{ind}} = 1000\text{W}$, $Q_3 = Q_2 = 0\text{L/min}$, $Q_1 = 13,5\text{L/min}$.

2.2. Torche d'analyse avec un mélange Argon-oxygène

L'utilisation des deux modèles de rayonnement en argon pur semble montrer la robustesse de la méthode et donne des résultats assez probants. On s'est donc donné une configuration pour étudier les mélanges argon-oxygène. On a choisi le dispositif décrit par [Huang, 1995]. Le tableau III-1 rappelle les données relatives à cette configuration.

L'injection de 5% d' O_2 en volume dans la torche modifie largement la thermique, comme on le voit sur la Figure V-11 qui montre les champs de températures obtenus avec la méthode CEN ($R_p = 1\text{cm}$) en argon pur et en Ar- O_2 .

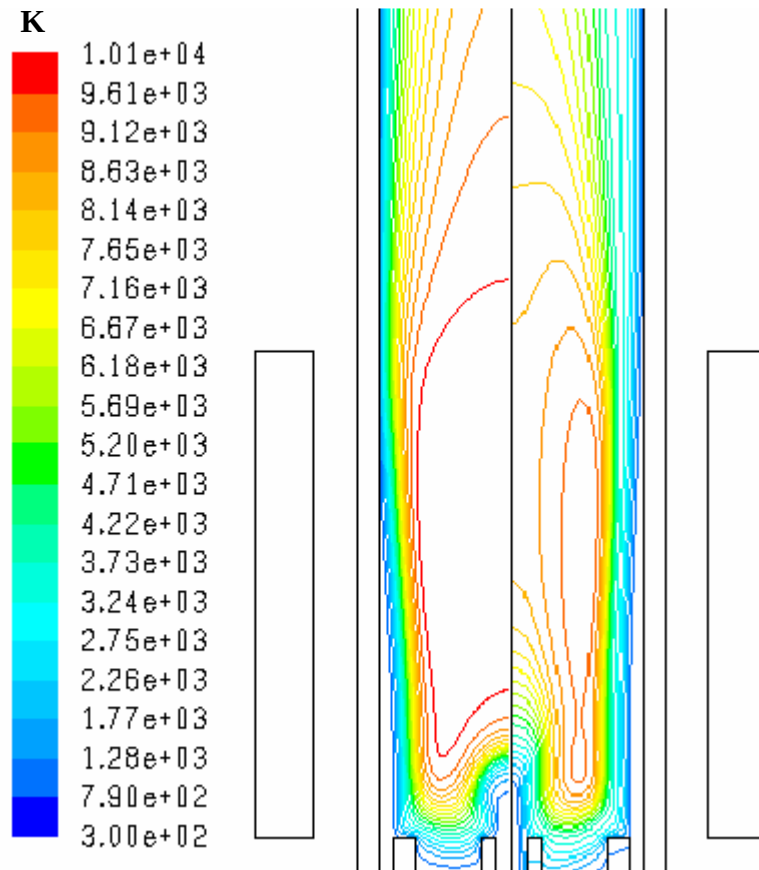


Figure V-11 : température obtenues avec le modèle CEN ($R_p = 1\text{cm}$) en argon pur (gauche) et avec un mélange Ar 95%, O₂ 5% molaire (droite). $P_{\text{ind}} = 2000\text{W}$, $Q_3 = 0,5\text{L/min}$, $Q_2 = 0,6\text{L/min}$, $Q_1 = 15\text{L/min}$.

L'injection d'oxygène refroidit grandement le plasma, notamment à cause de l'énergie consommée pour dissocier les molécules d'O₂ et des propriétés radiatives de l'oxygène (les atomes d'oxygène sont plus faciles à exciter que ceux d'argon et peuvent donc se refroidir plus facilement par rayonnement). Expérimentalement, la présence d'oxygène peut provoquer l'extinction du plasma à des puissances plus importantes qu'en argon pur.

On peut également noter que pour les faibles valeurs de la puissance induite ($<1\text{kW}$), il est très difficile d'obtenir un résultat en Ar-O₂ car le plasma s'éteint. Puisque les calculs sont réalisés à puissance induite imposée, on obtient de cette manière une zone chaude annulaire très réduite et très chaude qui est soufflée avant de se reformer dans la partie amont de la bobine. Ce type de fonctionnement du modèle a déjà été rapporté par [Pelletier, 2006] et a pu être observé en argon pur à basse puissance également.



Figure V-12 : torche d'analyse avec un plasma fonctionnant en mode annulaire à basse puissance.

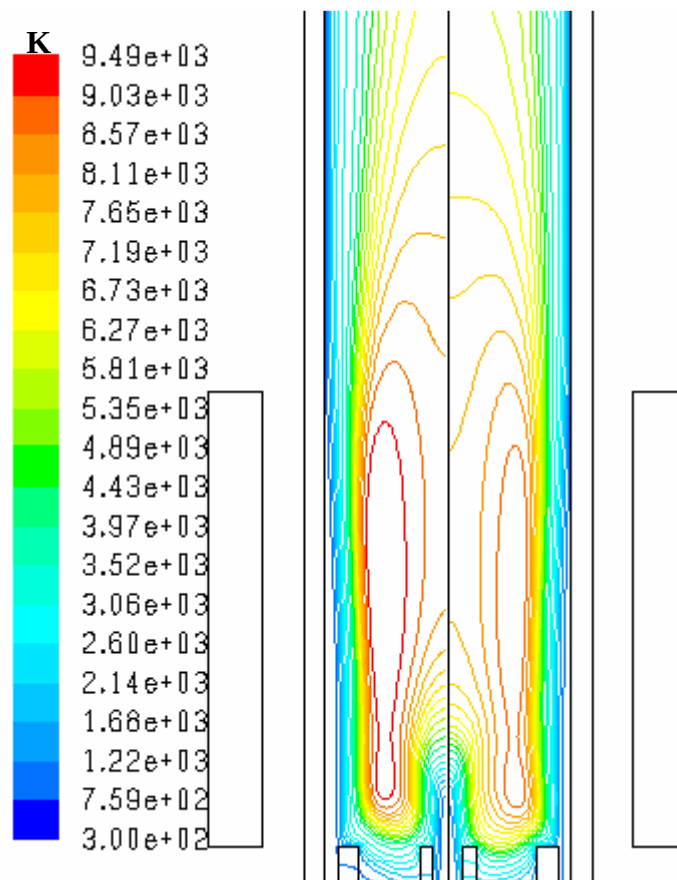


Figure V-13 : champs de température obtenus avec le CEN ($R_p = 1\text{cm}$, gauche) et le modèle P1 (droite) dans une torche d'analyse.

$P_{\text{ind}} = 2000\text{W}$, $Q_3 = 0,5\text{L/min}$, $Q_2 = 0,6\text{L/min}$, $Q_1 = 15\text{L/min}$.

Le même cas test de torche d'analyse en Ar-O₂ a été réalisé en utilisant le modèle P1. On observe alors des différences de températures entre les deux modèles, qui atteignent 500K dans la zone chaude. Cette différence s'explique par la valeur des termes sources obtenus (Figure V-14). Pour le modèle P1, on observe des pertes jusqu'à trois fois supérieures à celles obtenues avec un CEN pour les hautes températures. La raison de cet écart tient dans les hypothèses sur lesquelles repose la méthode du CEN. En fixant le rayon plasma, on suppose qu'il existe autour du point d'émission un milieu absorbant sphérique ayant les mêmes propriétés que le point d'émission et de dimension égale au rayon plasma. Dans la partie

chaude du plasma, cette condition n'est pas remplie de par les fortes variations de température.

L'erreur est plus importante dans le cas des mélanges Ar-O₂ qu'en argon pur, car, à l'erreur due à l'inhomogénéité de la température, s'ajoute celle due à la composition du plasma. Plus on s'éloigne de la région chaude et moins on trouve d'oxygène atomique, qui est la principale source de rayonnement. La méthode CEN va donc surestimer le phénomène d'absorption dans les zones les plus chaudes et on va prédire des pertes radiatives trop faibles.

On observe également une forte absorption aux environ de 5000K (l'oxygène est toujours dissocié à cette température). La conséquence est que les profils de température sont moins abrupts avec le modèle P1 : on refroidit plus fortement les zones chaudes et on réchauffe les zones de température intermédiaire.

Le terme de chauffage radiatif (source négative pour le modèle de rayonnement) est du même ordre de grandeur que le terme de refroidissement par rayonnement (source positive, cf. Figure V-14). Ceci montre donc que le phénomène d'absorption n'est plus négligeable dans une torche d'analyse avec un plasma d'Ar-O₂ comme c'était le cas en argon pur. La zone chauffée par rayonnement est localisée en périphérie de la zone chaude, là où le gradient de température est le plus important (Figure V-15).

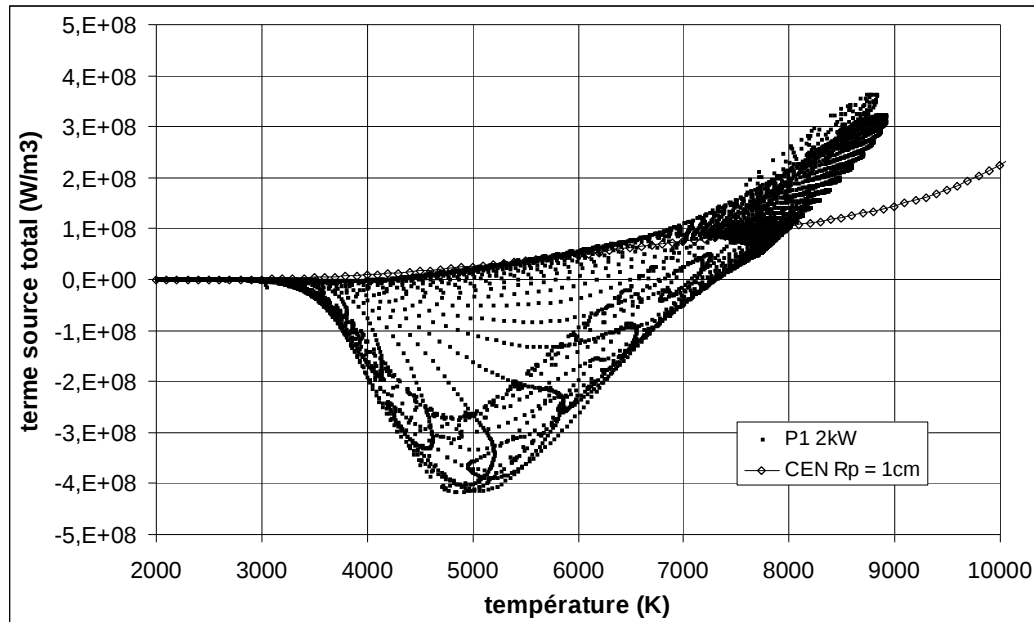


Figure V-14 : termes source radiatif pour un plasma d'analyse en Ar-O₂ avec le CEN (trait plein) et le modèle P1 (marques). $P_{\text{ind}} = 2000\text{W}$, $Q_3 = 0,5\text{L/min}$, $Q_2 = 0,6\text{L/min}$, $Q_1 = 15\text{L/min}$.

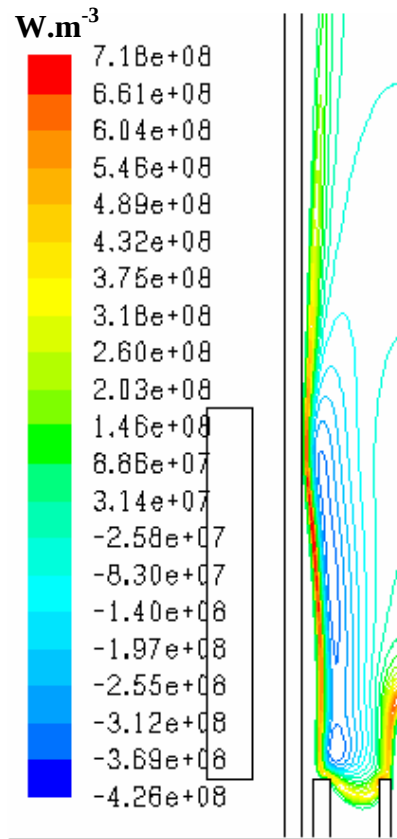


Figure V-15 : zones chauffées par rayonnement dans une torche d'analyse
 $P_{\text{ind}} = 4000\text{W}$, $Q_3 = 0,5\text{L/min}$,
 $Q_2 = 0,6\text{L/min}$, $Q_1 = 15\text{L/min}$.

On a décomposé le terme source du modèle P1 en ses deux membres (absorption et émission) sur la Figure V-16. La première remarque qu'on peut faire est que le terme source à injecter dans le modèle est bien plus petit que les termes dont il est issu (on fait la différence de grandeurs et cette différence est petite devant les termes de départ), ce qui est une source potentielle d'erreur. Cela montre que la plus grande partie des photons émis sont piégés dans le plasma (notamment à cause des ailes des transitions résonnantes). Il semble difficile de contourner cette limitation.

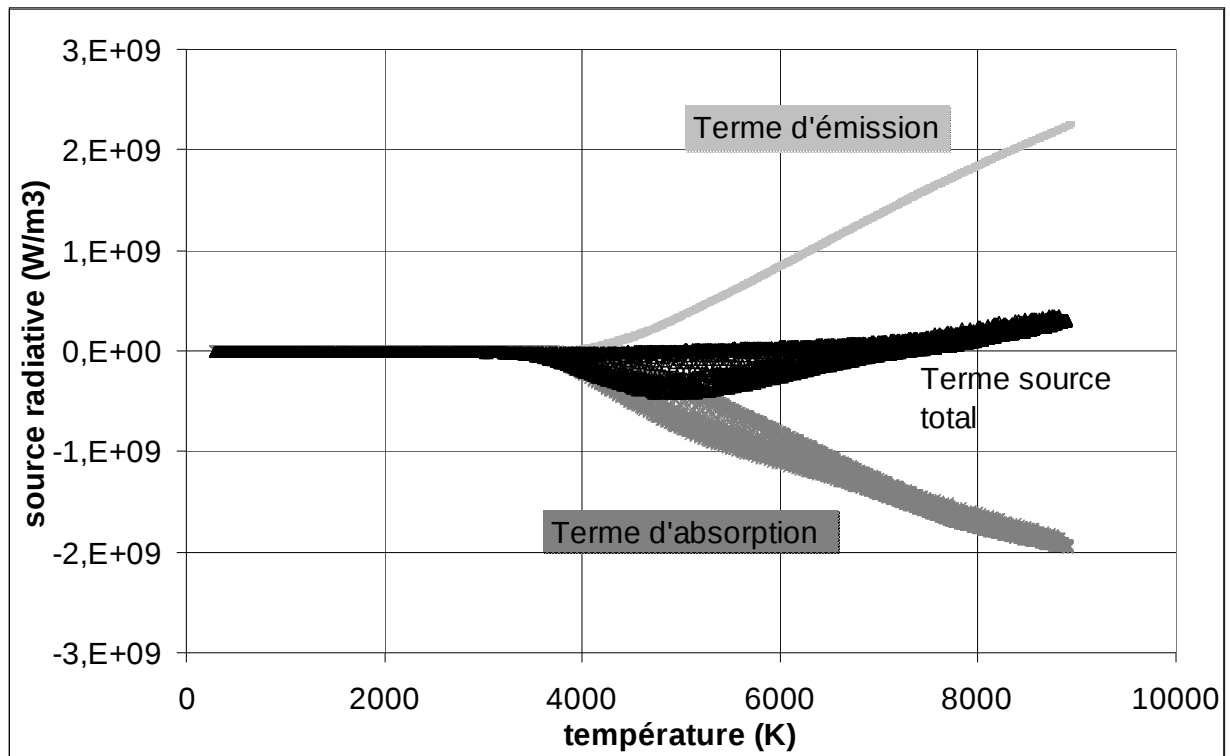


Figure V-16 : composantes du terme source radiatif calculé avec le modèle P1 : perte de chaleur en positif (afin de respecter le format des courbes CEN), chauffage radiatif en négatif

Les différences entre les termes sources radiatifs obtenus avec les deux modèles de rayonnement engendrent des différences sur les pertes radiatives globales (Figure V-17). Le modèle P1 prédit des pertes nettement moins importantes que la méthode CEN. Le phénomène d'absorption aux alentours de 5000K piège une grande partie de l'énergie rayonnée par la zone chaude, ce qui explique que le flux total soit plus faible qu'avec l'émission nette alors que les termes sources sont plus importants en zone chaude.

Cependant, pour les deux modèles, le rayonnement devient, en présence d'oxygène, le mécanisme de refroidissement principal du plasma, ce qui n'était pas le cas en argon pur (Figure V-17). Les multiplets facilement excitables de l'oxygène sont en grande partie responsables de ce phénomène.

Un autre résultat commun aux deux modèles et qui n'apparaît pas en argon pur est la diminution de la part du rayonnement lorsque la puissance augmente. C'est le phénomène inverse de ce qu'on observe en argon pur. Cela s'explique par l'importance de l'absorption dans les plasmas contenant de l'oxygène, cette puissance radiative réabsorbée augmentant fortement (Tableau V-1) lorsqu'on accroît la puissance injectée, alors que la puissance émise augmente plus lentement, principalement parce que le volume plasma augmente (comme en Argon pur). Une explication de ce phénomène pourrait être que l'absorption s'auto-entretient (plus un point donné du gaz absorbe plus il chauffe et plus il est susceptible d'absorber) alors que l'émission fonctionne en sens inverse (l'émission s'oppose au chauffage du point émetteur). Quand la puissance augmente, le chauffage par effet Joule augmente mais dans les zones émettrices, ce chauffage est contrebalancé par une augmentation de l'émission alors qu'un chauffage plus important des zones absorbantes a tendance à renforcer ce caractère absorbant. De ce fait, plus on injecte de puissance dans le plasma, plus on piège de rayonnement et moins les pertes radiatives permettent de refroidir le plasma.

Des remarques similaires peuvent être faites en argon pur. En effet, on a vu que le volume du plasma augmente avec la puissance induite. La température, augmentant dans une moindre mesure également. Cependant, l'absorption étant très faible en argon pur,

l'augmentation de volume du plasma et le chauffage des zones périphériques de la zone de couplage ne permet de piéger une grande quantité de rayonnement et il n'y a pas de phénomène permettant de compenser l'augmentation d'émissivité avec la puissance. Donc les pertes radiatives augmentent avec la puissance en argon pur, ce qui n'est pas possible en puissance d'oxygène à cause de la forte absorption qu'il engendre et de l'augmentation de volume du plasma.

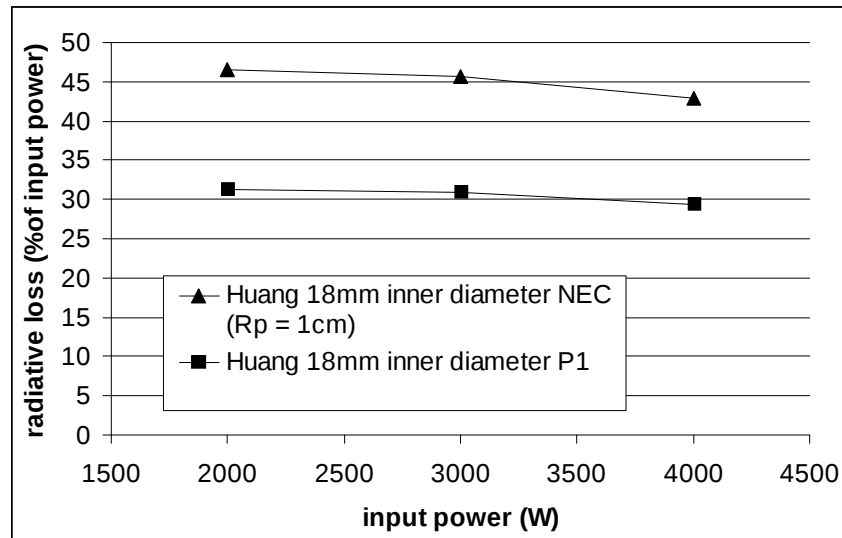


Figure V-17 : pertes radiative dans une torche d'analyse en Ar-O₂ en fonction de la puissance injectée.

Tableau V-1 : densité de puissance Joule, absorbée et émise en fonction de puissance induite dans une torche d'analyse (18mm) en Ar-O₂. Q₃ = 0,5L/min, Q₂ = 0,6L/min, Q₁ = 15L/min.

Gaz plasma	P _{ind} (W)	P _{j, max} = j ² /σ (W/m ³)	P _{rad, max} (chauffage, W/m ³)	P _{rad, max} (refroidissement, W/m ³)
Ar-O2	2000	1,2.10 ⁹	4,2.10 ⁸	3,6.10 ⁸
Ar-O2	3000	1,8.10 ⁹	5,8.10 ⁸	3,9.10 ⁸
Ar-O2	4000	2,3.10 ⁹	7,2.10 ⁸	4,3.10 ⁸

2.3. Torche procédé en argon pur

Nous allons maintenant présenter les résultats obtenus avec la torche de purification. Un résultat typique pour l'écoulement (vitesse et lignes de courant) est donné sur la Figure V-18. Dans ce calcul, on a modélisé la présence d'un creuset de 120mm contenant du silicium liquide (une surface à T imposée égale à la température de fusion du silicium). On observe le même type de recirculation en sortie de tube que dans une torche d'analyse. Des résultats typiques sur ce type de torche pour l'électromagnétisme ont déjà été donnés au chapitre III.

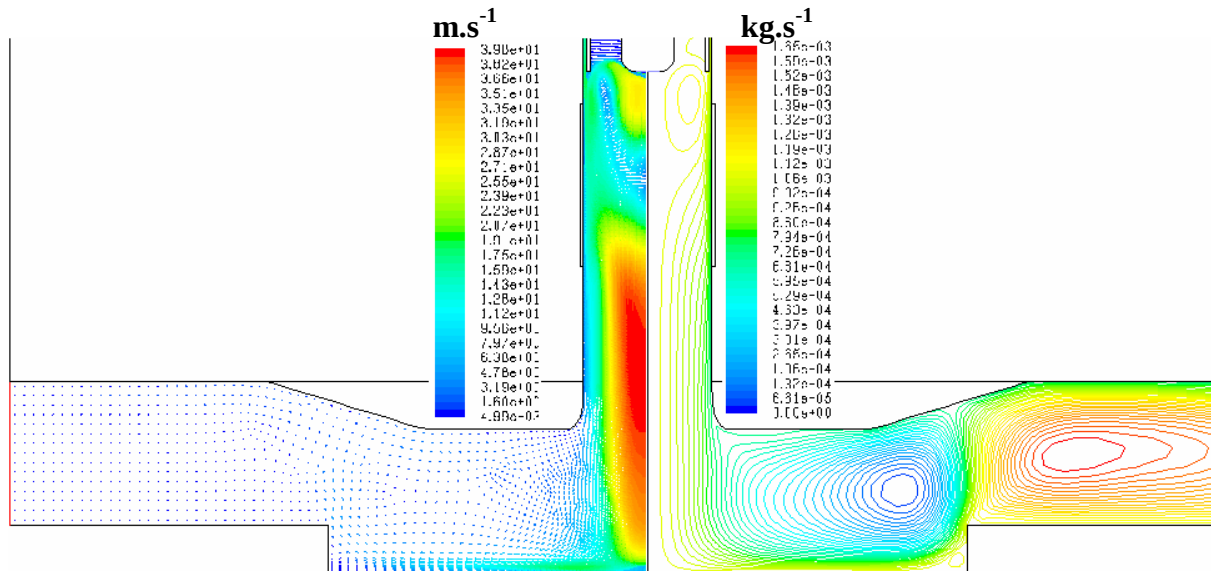


Figure V-18 : vecteurs vitesses (gauche) et lignes de courant (droite) dans une torche procédé avec un creuset 120mm. $P_{ind} = 12000W$, $Q_3 = 1L/min$, $Q_2 = 3,3L/min$, $Q_1 = 94L/min$.

Dans ce cas en argon pur, les deux modèles de rayonnement donnent à nouveau des résultats similaires, comme on le voit sur les cartes de température (Figure V-19). La différence principale entre les deux modèles est ici aussi un lissage des profils de température.

Dans cette géométrie, les termes sources obtenus avec les deux modèles de rayonnement sont en bon accord (Figure V-20). Néanmoins, le phénomène d'absorption est bien plus important que pour une torche d'analyse en argon pur. Pour une température donnée et selon la position dans le plasma, le terme source radiatif peut varier d'un facteur trois (de $1,4 \cdot 10^7$ à $5 \cdot 10^7$ W/m³ à 10000K par exemple). Les valeurs minimales de cette perte nette par rayonnement (la partie inférieure de l'enveloppe sur la Figure V-20) correspondent à la partie centrale de la torche. Dans cette zone, le plasma est susceptible d'absorber une grande quantité de photons car il est environné uniquement par ces zones chaudes émettrices. À l'inverse la partie supérieure de l'enveloppe (et donc les valeurs maximales de la perte radiative) correspond à la périphérie du plasma où le rayonnement incident est plus faible. Le phénomène d'absorption est donc moins important dans cette zone et la perte radiative augmente.

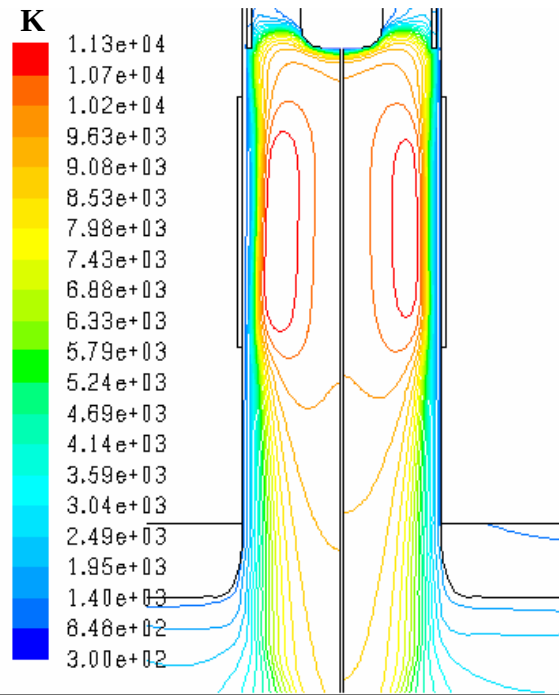


Figure V-19 : champ de température obtenu avec la méthode CEN ($R_p = 2\text{cm}$, gauche) et le modèle P1 (droite). $P_{\text{ind}} = 12000\text{W}$, $Q_3 = 1\text{L/min}$, $Q_2 = 3,3\text{L/min}$, $Q_1 = 94\text{L/min}$.

Une autre différence significative de ce cas d'étude par rapport aux torches d'analyse en argon pur est le rapport puissance Joule/puissance rayonnée. Le rapport était de l'ordre de 10 pour une installation de faible puissance. Il est de 3 environ dans une torche procédé (Figure V-22). Le rayonnement est donc un mécanisme de refroidissement beaucoup plus important dans ce cas de figure, comme en témoigne l'étude des pertes radiatives totales présentée sur la Figure V-23.

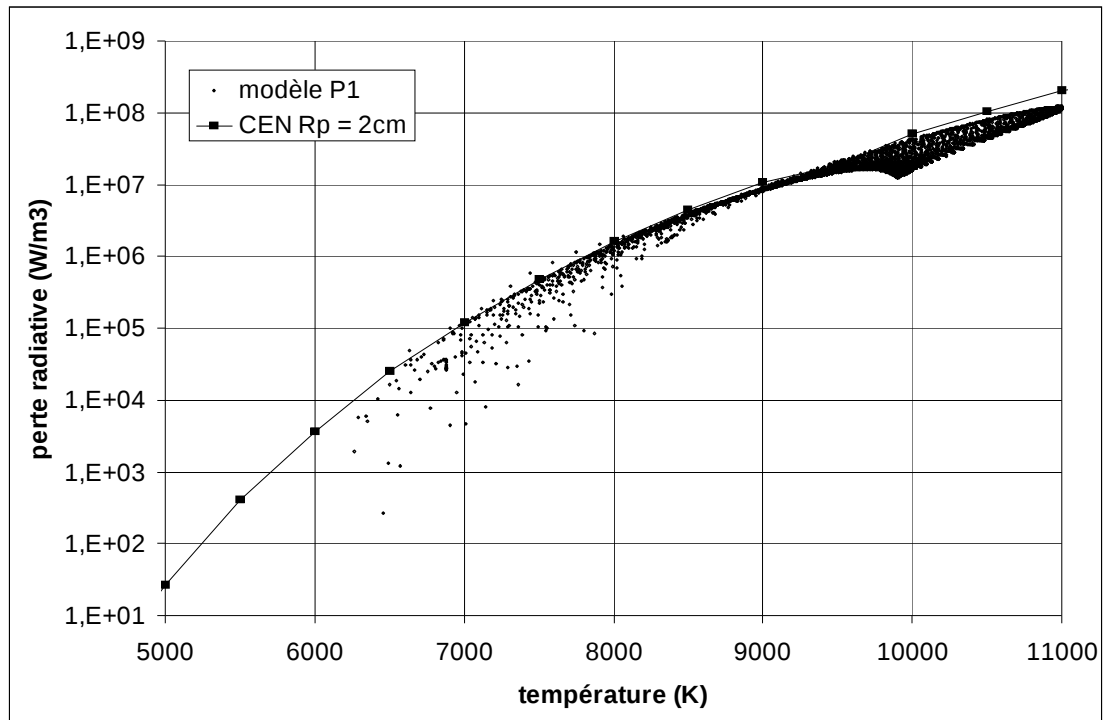


Figure V-20 : pertes radiatives en fonction de la température dans une torche procédé. $P_{\text{ind}} = 12000\text{W}$, $Q_3 = 1\text{L/min}$, $Q_2 = 3,3\text{L/min}$, $Q_1 = 94\text{L/min}$.

Deux nouvelles configurations apparaissent sur cette figure (introduites aux chapitres II et III). La torche de 32mm n'existe pas telle qu'elle mais représente un cas intermédiaire entre les torches d'analyse et de purification. La torche de 48mm correspond à celle utilisée à l'INES dans le cadre du pilote industriel. Les champs de température obtenus avec le modèle P1 et le CEN sur cette torche sont donnés sur la Figure V-21.

Quand le rayon de la torche augmente, on observe un saut dans la fraction de puissance perdue par rayonnement. Ainsi pour une puissance de 3kW on passe 14% de pertes radiatives dans une torche d'analyse à 22,5% quand le diamètre de la torche atteint 32mm (Figure V-23). Le même « saut » se produit lorsqu'on passe de 32mm pour le diamètre de la torche à 40mm. En revanche, ce phénomène ne se produit pas pour les plus grandes torches de 48mm, ni avec la méthode CEN ni avec le modèle P1.

Les champs de températures obtenus montrent un bon accord entre les deux modèles pour toutes les torches en argon pur (on montre les résultats sur celle de 48mm sur la Figure V-21). L'effet de lissage des températures induit par le modèle P1 apparaît également dans cette configuration.

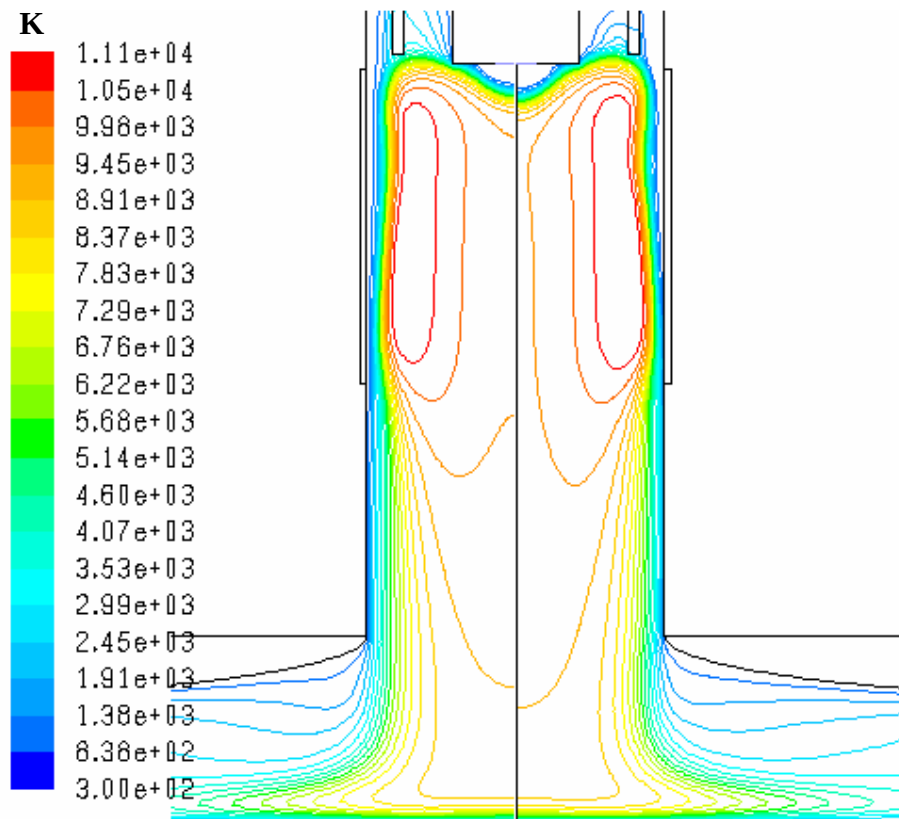


Figure V-21 : champs de température obtenus avec le modèle P1 (gauche), et le CEN ($R_p = 2\text{cm}$, droite) dans une torche de 48mm en argon pur $P_{\text{ind}} = 15000\text{W}$, $Q_3 = Q_2 = 0\text{L/min}$, $Q_1 = 166,7\text{L/min}$.

Pour tous les cas étudiés, on a observé que le rayonnement était un mécanisme de refroidissement mineur dans les configurations de faible taille (rayon $< 30\text{mm}$) et de faible puissance ($< 5\text{kW}$) alors qu'il devient le mécanisme de refroidissement principal pour les systèmes plus importants.

Plus précisément, on observe deux sauts des pertes par rayonnement sur la Figure V-23 : à 3kW quand on passe de 27mm à 32mm et pour 9et 12kW en passant de 32mm à 40mm. La fraction de pertes radiatives dans ces torches résulte d'une compétition entre convection des gaz chauds et émission de la zone plasma. On a identifié deux causes à ces sauts. Pour le premier, le débit augmente entre la le calcul sur la torche de 27mm et celui sur la torche de 32mm. Cette augmentation de débit crée un fort confinement sur la torche de 32mm (le

volume plasma est plus faible que pour celle de 27mm !) mais la zone plasma à une température moyenne plus élevée de plusieurs centaines de K, ce qui explique la part plus importante du rayonnement. Entre ces deux cas, la puissance convectée diminue quand on passe à la torche de plus grande dimension. En effet, la taille importante du plasma sur la petite torche force le passage du débit dans la zone chaude, ce qui crée une convection importante. En revanche, sur la torche de 32mm, le fort confinement de la zone chaude impose que la plus grande partie du débit reste froid, ce qui diminue la puissance convectée.

Pour le deuxième saut (entre la torche 32mm et celle de 40mm), il n'y a pas de modification du débit entre les deux calculs. Le changement de géométrie à débits et puissance constants cause une augmentation du volume plasma et une diminution des vitesses dans la zone de couplage. Cette baisse de la vitesse réduit la puissance convectée tandis que l'augmentation de la taille du volume plasma accroît les pertes radiatives (on n'a pas observé d'augmentation de température dans ce cas).

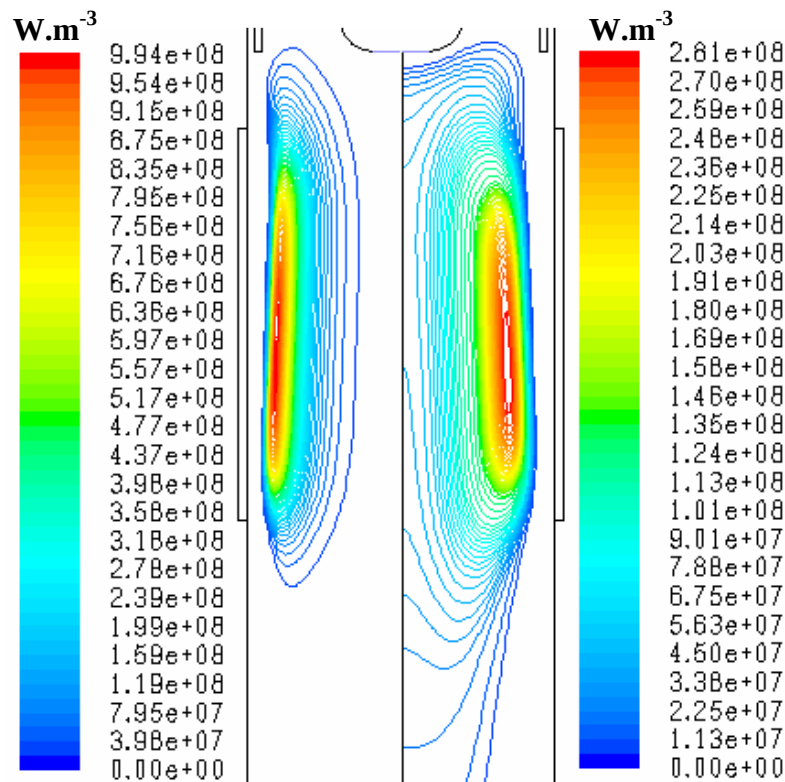


Figure V-22: Puissance Joule (gauche) et perte radiative (CEN, $R_p = 2\text{cm}$, droite) dans une torche procédé.

$P_{\text{ind}} = 15000\text{W}$, $Q_3 = 1\text{L/min}$, $Q_2 = 3,3\text{L/min}$, $Q_1 = 94\text{L/min}$.

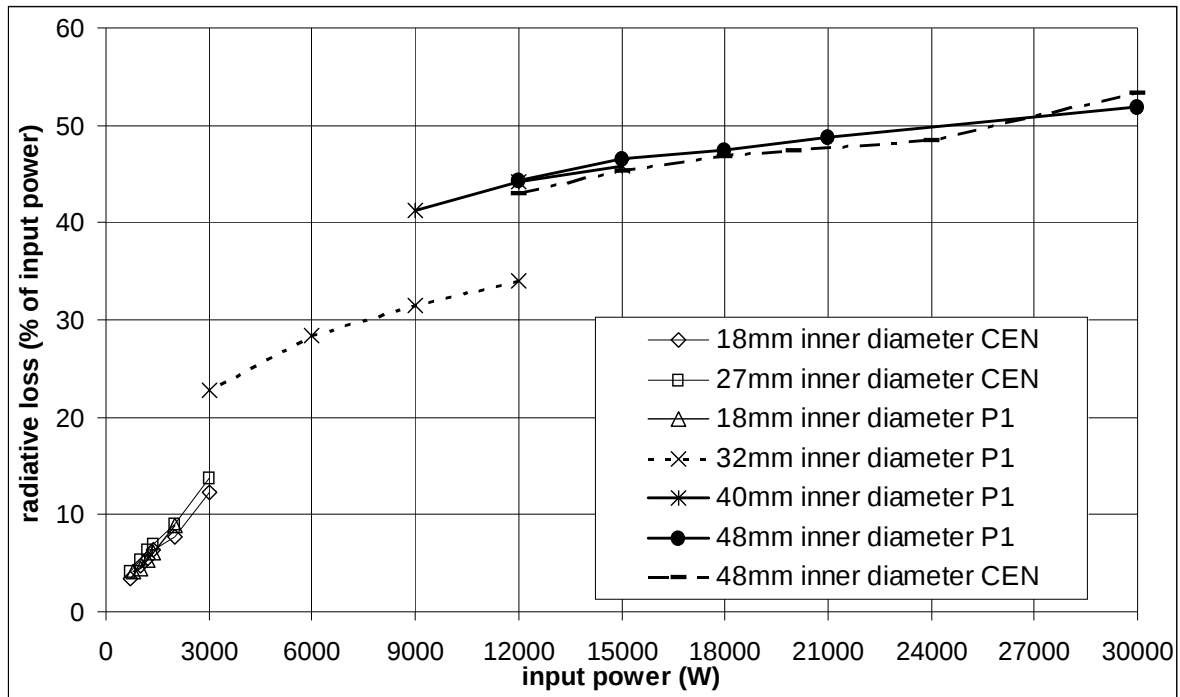


Figure V-23 : pertes radiative en fonction de la puissance injectée dans les différentes configurations de torche étudiées en argon pur.

2.4. Torche procédé en argon-oxygène

On a introduit de l'oxygène dans le plasma décrit au paragraphe précédent. Contrairement à ce qu'on a observé en argon pur, les deux modèles de rayonnement ne donnent pas les mêmes champs de température (Figure V-24). Dans les deux cas cependant, on obtient des températures plus faibles qu'en argon pur pour des conditions opératoires données.

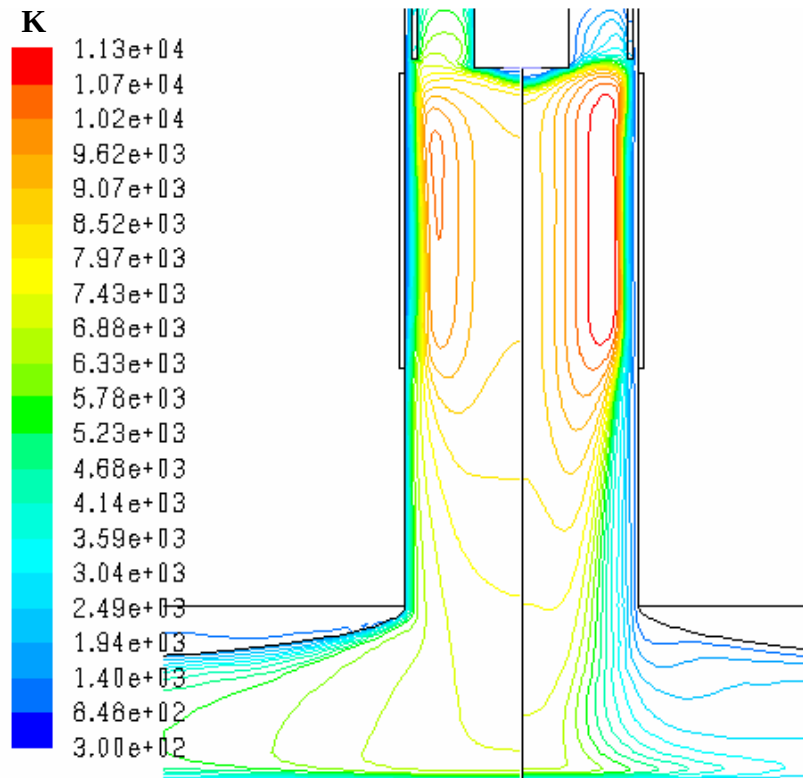


Figure V-24 : champ de température dans une torche procédé en argon-oxygène avec le modèle P1 (gauche) et le modèle CEN ($R_p = 2\text{cm}$, droite). $P_{\text{ind}} = 20000\text{W}$, $Q_3 = 2,9\text{L/min}$, $Q_2 = 3,3\text{L/min}$, $Q_1 = 94\text{L/min}$.

Le modèle P1 prédit des températures inférieures dans la partie la plus chaude du plasma. Mais cette différence tend à s'atténuer dans la partie aval de la torche. Les pertes radiatives prédites par le modèle P1 à haute température sont plus importantes, mais cette énergie est en partie réabsorbée dans les zones plus froides, ce qui ne peut pas être décrit par la méthode du CEN (Figure V-25). L'énergie est donc transportée dans la partie aval, ce qui explique que les différences de température s'atténuent.

Lorsque la puissance augmente les deux phénomènes d'émission et d'absorption s'amplifient et les écarts avec le CEN augmentent en même temps. Sur la Figure V-25, on n'a pas utilisé la méthode du CMA décrite par [Cressault, 2001] pour calculer les propriétés du continuum moléculaire. En pondérant les valeurs d'absorption par la fonction de Planck dans la gamme des faibles longueurs d'onde, on obtient des résultats très similaires au niveau de la température. Pour les termes source, on n'observe d'écart qu'à basse température où l'absorption devient négligeable en dessous de 2000K .

Pour ce qui est des pertes radiatives totales, le modèle P1 prédit une importance moindre du rayonnement, comme pour les torches d'analyse. La description du phénomène d'absorption dans le cadre du CEN doit ici aussi être remise en question. Une grande partie de l'énergie rayonnée par la zone chaude est piégée dans les zones de température intermédiaire, limitant ainsi la part du rayonnement atteignant les parois de l'enceinte.

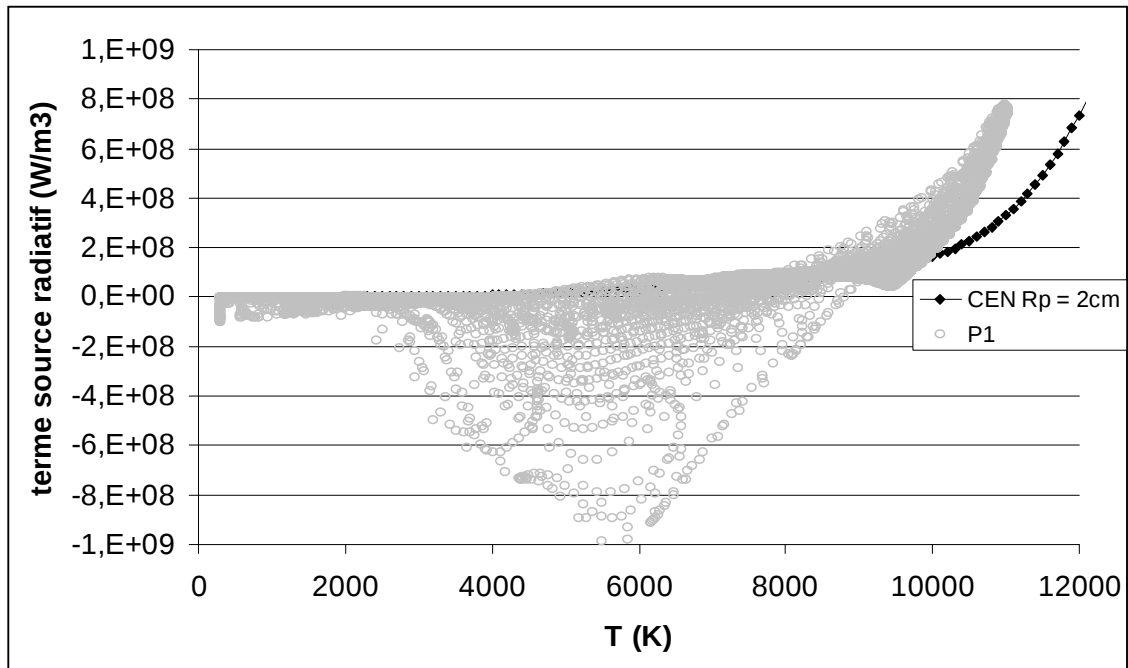


Figure V-25 : termes sources radiatifs correspondant aux deux calculs de la Figure V-24.

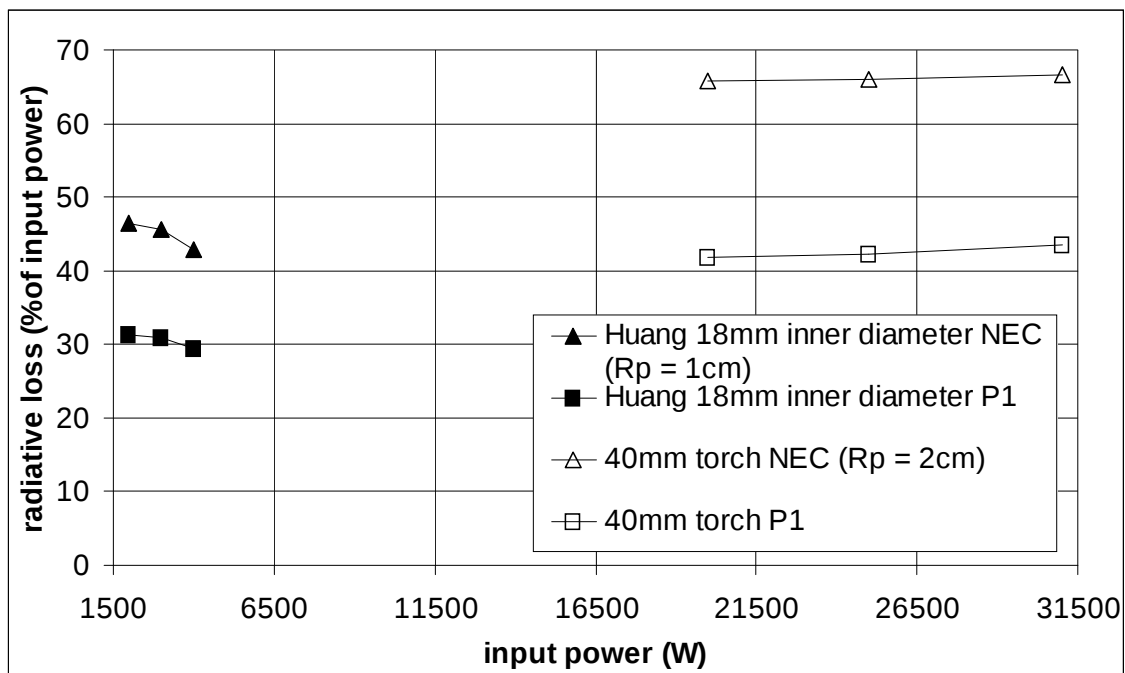


Figure V-26 : pertes radiative en fonction de la puissance injectée dans les différentes configurations de torche étudiées an argon-oxygène.

L'étude des transferts radiatifs dans des plasmas d'argon montre que les transferts radiatifs jouent des rôles bien différents selon le type de torche que l'on considère. On passe d'un mécanisme mineur dans une torche d'analyse à un mécanisme prépondérant pour les systèmes de plus grande dimension. Le phénomène d'absorption est peu important lorsque seul de l'argon est injecté, et ce pour les grandes torches comme pour les petites. Dans ce cas, la méthode CEN est bien adaptée à la modélisation du rayonnement.

En revanche, la présence d'oxygène augmente considérablement le part du rayonnement dans la thermique du plasma et les pertes radiatives deviennent le principal mécanisme de

refroidissement même dans les torches d'analyse. En plus d'augmenter l'émission du plasma, l'oxygène génère un important phénomène d'absorption dans les zones du plasma où le gradient de température est le plus fort. On observe avec le modèle P1 des termes de chauffages radiatifs largement significatifs qui ne peuvent pas être décrits par la méthode du CEN. Les écarts entre les deux modèles sont importants, tant au niveau du champ de température que des flux radiatifs et le CEN ne semble pas très approprié pour décrire des plasmas où l'absorption joue un rôle majeur.

Chapitre VI. Mesure des propriétés plasma par spectrométrie d'émission optique (OES)

Dans ce chapitre, la partie expérimentale de la thèse sera présentée. Le but de cette étude expérimentale est la validation des codes utilisés ou développés lors de l'étude numérique. Les méthodes de spectrométrie d'émission (OES) permettent notamment une évaluation de la température du plasma qui sera la base du processus de validation. Dans un premier temps, on a étudié une torche d'analyse, dispositif largement étudié dans la littérature [Mermet, 1975], [Huang, 1997], [Regt, 1995], [Van de Sande, 2002], etc.... afin de mettre au point la méthode et de valider certains aspects des modèles. Ensuite on a étudié une torche de puissance utilisée pour la purification de silicium afin d'étendre les mesures de températures à des dispositifs moins souvent décrits dans littérature. L'intérêt pour la validation des modèles est que sur ce type de torches, les températures simulées dépendent plus fortement du choix du modèle de rayonnement, ce qui n'est pas le cas pour les torches d'analyse, comme on le verra.

Avant de décrire les dispositifs expérimentaux, quelques rappels sur les méthodes de mesures par spectrométrie d'émission seront donnés. La méthodologie permettant de déduire les propriétés physiques du plasma à partir des mesures OES sera décrite. Enfin les résultats obtenus seront exposés et commentés.

1. Spectrométrie d'émission.

1.1. Principe des mesures et avantages

L'observation de transitions radiatives dans un plasma est susceptible de livrer de nombreuses informations sur les propriétés du milieu. Ces dernières proviennent de la désexcitation d'atomes du plasma. Pour un plasma collisionnel et dans l'hypothèse de l'ETL (cf. chapitre II), température et taux d'ionisation peuvent être reliés directement aux populations d'espèces excitées. Les mesures OES permettent de quantifier les espèces excitées dans un plasma et donc d'évaluer température et taux d'ionisation.

Ainsi, le fond continu du rayonnement est dû à des transitions radiatives mettant en jeu des électrons libres. L'observation et la quantification du continuum de rayonnement permet dès lors de déterminer le taux d'ionisation. De la même manière, l'intensité des raies est liée à la densité d'états excités émetteurs. On peut en déduire une température dans la mesure où l'on peut supposer que le peuplement de ces états excités est contrôlé principalement par les collisions entre les différents corps du plasma, la population des états excités est alors décrite par la distribution de Boltzmann (II. 8). Le profil des raies observées peut également fournir des informations. Dans le cas de raies dont le profil est dominé par l'effet Stark, la densité électronique peut être déduite de la largeur à mi-hauteur de la raie. Il est important de noter que si le peuplement des états excités n'est pas gouverné par les collisions, il est beaucoup plus difficile de relier les densités d'espèces excitées à la notion de température. Dans de tels cas, le lien peut être fait à partir de modèles d'équilibres collisionnels radiatifs (CRE) qui remplacent la loi de peuplement d'états excités en fonction de la température. Ces modèles sont en général complexes et ne sont pas étudiés ici.

Les mesures par OES fournissent une intensité radiative spectrale ($\text{photons.s}^{-1}.\text{m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\text{nm}^{-1}$) qui correspond au nombre de photons entrant dans le spectromètre par seconde alors que les théories sur les transitions radiatives relient le plus souvent les paramètres du plasma

(T, N_e) à une émissivité, qui correspond à une émission volumique de photons ($\text{photons.s}^{-1}.\text{m}^{-3}.\text{sr}^{-1}.\text{nm}^{-1}$). Il faut donc pouvoir déduire de l'intensité totale sur le chemin optique mesuré, l'émissivité locale dans le plasma. Cette conversion est problématique pour les plasmas d'analyse car ce sont des sources non ponctuelles et inhomogènes. Plusieurs méthodes permettent de réaliser cette conversion mais chacune demande qu'on prenne certaines précautions qui seront exposées plus loin.

L'avantage majeur des méthodes de mesures par émission est qu'elles ne sont pas intrusives. L'écoulement n'est pas perturbé pendant la mesure comme dans le cas d'une sonde et on peut observer les régions les plus chaudes du plasma, là où une sonde serait endommagée. En revanche la périphérie du plasma ainsi que son panache ne sont souvent pas assez lumineux pour qu'on y mesure les propriétés du milieu par émission optique.

1.2. Conversion intensité→émissivité : l'inversion d'Abel

Quelque soit le type de mesure optique qu'on souhaite réaliser, on rencontre nécessairement le problème de la conversion de la mesure en $\text{photons.s}^{-1}.\text{m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\text{nm}^{-1}$ en une grandeur volumique plutôt que surfacique et qui donne accès aux propriétés locales du milieu. La Figure VI-1 montre le schéma de principe du dispositif optique utilisé au cours de cette étude.

On place la lentille de telle sorte que l'image de l'axe de symétrie du plasma donne une image nette au niveau de la fente d'entrée, la fente du spectromètre permet de délimiter un volume de mesure symétrique par rapport à l'axe de la source. On mesure alors directement l'émission intégrée sur tout ce volume. Le miroir rotatif permet de déplacer le volume de mesure. L'image de la fente d'entrée au niveau du plasma décrit alors en toute rigueur un arc de cercle lorsqu'on fait tourner le miroir. Ceci ne constitue pas un problème dans la mesure où le miroir tourne avec un pas angulaire constant et que l'angle total de rotation est faible. En choisissant une distance focale grande devant les dimensions de la source on peut assimiler l'arc de cercle à une droite (représentée par l'axe x sur la Figure VI-1) et supposer que les différents faisceaux de mesure obtenus en faisant tourner le miroir sont parallèles au niveau de la source (Figure VI-2).

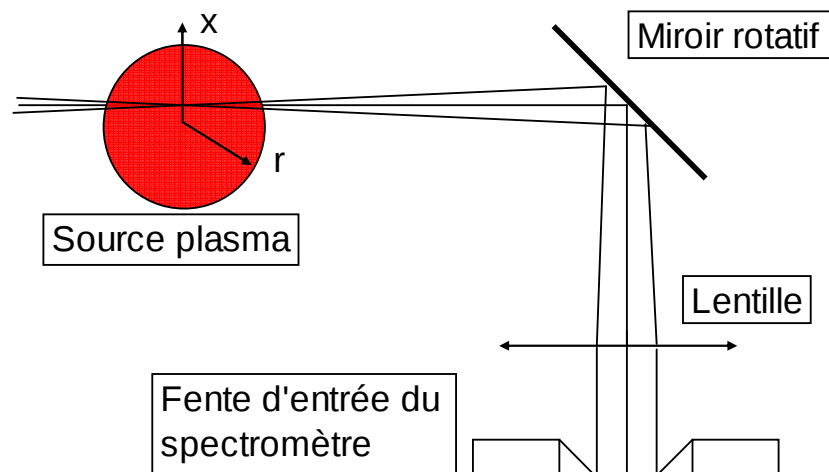


Figure VI-1 : schéma de principe du dispositif optique.

Du fait de l'étendue spatiale de la source, on observe l'émission de photons intégrée sur un volume. Ce volume est défini par la taille de l'image de la fente d'entrée au niveau du plasma, par la longueur de la corde de source visée et par l'ouverture du faisceau optique

(Figure VI-2). En supposant la symétrie axiale du plasma, on peut avec la transformée d'Abel reconstituer les émissivités locales $\varepsilon(r)$ à partir des intensités mesurées $I(x)$. L'idéal est d'avoir une faible ouverture optique, mais dans ce cas la luminosité sera faible et le bruit du signal important. Il faudra donc faire un compromis.

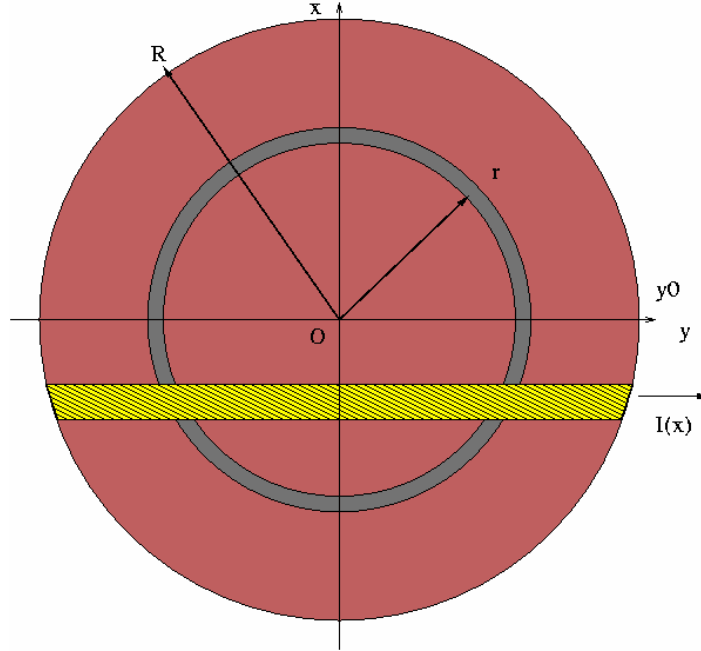


Figure VI-2: corde de source plasma visée lors d'une mesure par OES.

$$\varepsilon(r) = -\frac{1}{\pi} \int_r^R \frac{I'(x)}{\sqrt{x^2 - r^2}} dx \quad \text{VI. 1}$$

Avec $I(x)$ le profil de raie mesuré intégré sur les longueurs d'onde et $I'(x)$ sa dérivée par rapport à x . R est le rayon du plasma. Il existe différents algorithmes pour résoudre VI. 1. La méthode de Nestor et Olsen a été choisie [Nestor, 1960]. On obtient ainsi l'émissivité pour une acquisition de N points $I(x)$:

$$\varepsilon(r_j) = -\frac{2}{\pi \Delta x} \sum_{i=j}^N B_{j,i} I(x_i) \quad \text{VI. 2}$$

$$B_{j,i} = A_{j,i-1} - A_{j,i} \quad \text{pour } i \geq j+1 \quad \text{VI. 3}$$

$$B_{j,i} = -A_{j,i} \quad \text{pour } i = j \quad \text{VI. 4}$$

$$A_{j,i} = \frac{[(i+1)^2 - j^2]^{1/2} - [i^2 - j^2]^{1/2}}{2i+1} \quad \text{VI. 5}$$

Δx est la largeur du faisceau d'acquisition, c'est-à-dire l'image de la largeur de la fente au niveau de la source plasma. Les $A_{j,i}$ et $B_{j,i}$ sont des coefficients géométriques définis par les équations VI. 3, VI. 4 et VI. 5. j étant le nombre de points obtenus dans la direction radiale après l'inversion et

L'utilisation de cette technique peut être une source d'erreur. Comme le montre l'équation (VI. 1), la dérivée spatiale du signal mesuré est nécessaire à la reconstitution de grandeurs locales. La méthode est donc très sensible au bruit et il est nécessaire de lisser les mesures. [Pelletier, 2006] a étudié l'influence du bruit sur les résultats d'émissivité en injectant dans l'algorithme d'inversion un signal $I(x)$ dont on connaît analytiquement la transformée d'Abel :

$$I(x) = 1 - 2x^2 + x^4$$

VI. 6

Ce signal d'intensité a une forme voisine de nos signaux expérimentaux. L'émissivité correspondante est :

$$\varepsilon_{\text{theorique}}(r) = \frac{8}{3\pi(1-r^2)^{3/2}}$$

VI. 7

La Figure VI-3, extraite de [Pelletier, 2006], montre les résultats obtenus en inversant à l'aide de l'algorithme de Nestor-Olsen le signal $I(x)$ plus ou moins bruité.

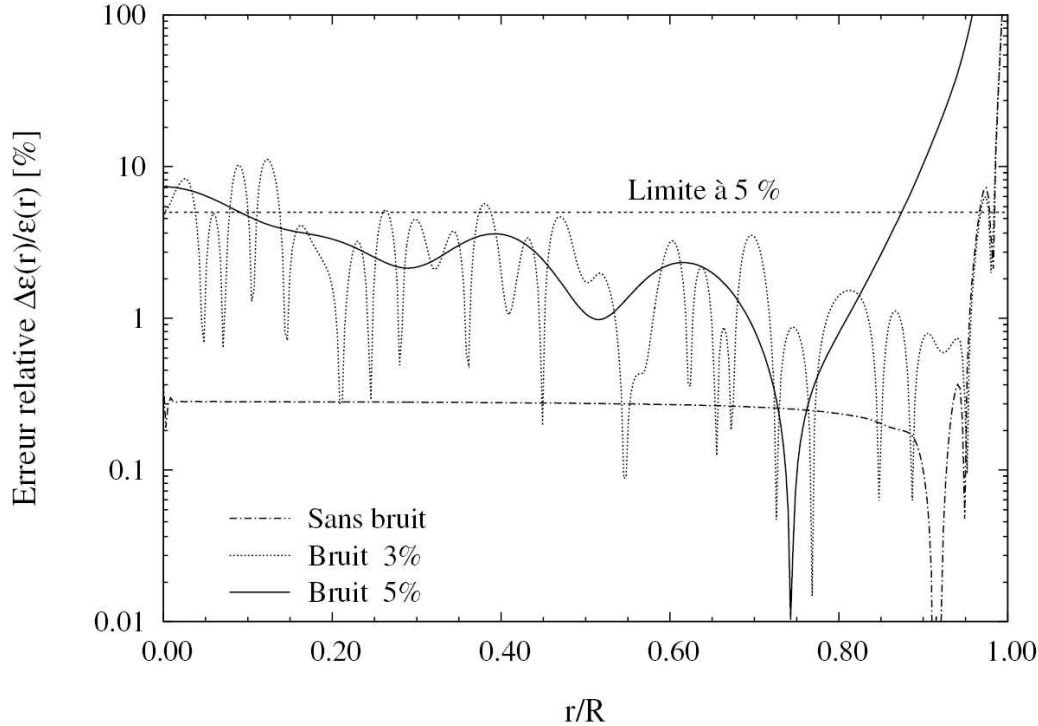


Figure VI-3 : estimation de l'erreur relative due à l'inversion d'Abel en fonction du rayon et du bruit contenu dans le signal.

Pour un signal non bruité, les erreurs du signal inversé numériquement par rapport à la transformée connue analytiquement sont très faibles jusqu'à $r/R \sim 0.9$. L'incertitude relative augmente ensuite très fortement (elle est due aux erreurs de troncature de la méthode de Nestor-Olsen, qui deviennent plus importantes que le signal dans cette zone peu lumineuse). Pour cette raison, on ne pourra pas considérer comme fiables les résultats obtenus expérimentalement au bord du plasma. La limite à partir de laquelle l'incertitude devient trop grande pour pouvoir se fier aux résultats diminue lorsqu'on bruite le signal. La qualité des résultats finaux dépend donc fortement du bruit résiduel dans les mesures de $I(x)$. Les méthodes pour limiter ce bruit seront décrites plus loin.

1.3. Théorie des transitions radiatives et hypothèses de mesures.

Les plasmas étudiés ici sont supposés en équilibre collisionnel. Étant donnée la fréquence du champ utilisé pour l'induction, seuls les électrons sont excités, les ions ont trop d'inertie pour réagir au champ dans le temps d'une demi période. Les particules lourdes sont chauffées par collisions avec les électrons même si le transfert d'énergie par ce type de choc est relativement peu efficace. À pression atmosphérique la fréquence de collisions est telle que l'on peut supposer que l'énergie cinétique moyenne de toutes les particules est la même.

Pour les mesures par OES, on suppose que les états excités sont peuplés suivant une distribution de Boltzmann (II. 8). Cette description ne tient pas compte de l'effet de la désexcitation radiative des atomes sur le peuplement des états excités. Cet effet est nul si une transition est à l'équilibre radiatif mais cette situation est l'exception plus que la règle. Dans le cas général, l'émission spontanée ou induite de photons va modifier les densités d'états. Le choix de transitions très intenses pour les mesures en OES est donc déconseillé puisque plus une raie émet intensément, plus son état émetteur risque d'être éloigné de la statistique de Boltzmann et plus l'évaluation de la température à partir de cette densité d'espèce sera faussée.

Différentes méthodes permettent de relier les émissivités mesurées aux densités électroniques ou directement à des températures. Toutes reposent cependant sur la statistique de Boltzmann.

1.3.1. Détermination de la température par mesure de l'intensité absolue des raies

Un spectromètre donne des mesures en photons.s^{-1} à une longueur d'onde donnée. A l'aide d'une lampe de luminance spectrale connue, on peut établir une conversion entre les photons.s^{-1} et une intensité radiative spectrale en $\text{W.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\text{nm}^{-1}$. Cette étape permet l'utilisation de deux méthodes dites « absolues » de détermination des paramètres du plasma. L'une est basée sur la mesure de l'intensité d'une raie et l'autre sur l'intensité du fond continu. L'étalonnage par une lampe spectrale de luminance spectrale connue sera exposé plus loin. Dans les deux cas, l'inversion d'Abel permettra d'obtenir les émissivités locales $\varepsilon(r)$.

Si l'on considère la mesure d'un profil de raie dans le cas où le dispositif optique a été étalonné, le lien entre densité de l'état excité et émissivité est direct :

$$\varepsilon_{ul}(T) = \frac{hc}{4\pi\lambda_0} A_{ul} n_u(T) \quad \text{VI. 8}$$

Avec ε_{ul} l'émissivité totale de la transition, λ_0 la longueur d'onde centrale et A_{ul} la probabilité de transition. On a donc pour les densités et la température:

$$n_u(T) = \frac{4\pi\lambda_0\varepsilon_{ul}}{hcA_{ul}} \quad \text{VI. 9}$$

$$T = \frac{-E_u}{k_B \ln \left(\frac{Q(T)n_u(T)}{g_u g_u \frac{P_0}{k_B T}} \right)} \quad \text{VI. 10}$$

L'équation (VI. 10), obtenue à parti des équations précédentes et de loi des gaz parfaits, peut être résolue de manière itérative. Dans VI. 9 et VI. 10, on doit utiliser l'intégrale sur le spectre du profil d'émission de la raie considérée.

La source n'étant pas ponctuelle, les photons émis en un point du plasma sont susceptibles d'être absorbés durant leur trajet jusqu'au spectromètre. On doit donc choisir la transition radiative à une longueur d'onde pour laquelle le milieu est optiquement mince. Si la transition choisie est auto-absorbée, on ne mesurera qu'une partie de l'énergie émise par le plasma et on en déduira par suite une température trop basse.

L'avantage majeur des méthodes « absolues » est que l'on utilise le logarithme du signal pour obtenir une température. Cela va significativement réduire l'incertitude de mesure. En

effet, à une variation d'un facteur 2 de l'émissivité, correspond une variation de quelques centaines de K de la température. Les résultats obtenus par ces méthodes sont en outre moins sensibles aux incertitudes sur les probabilités de transition que les méthodes dites « relatives ».

1.3.2. Cas particulier des multiplets

Ce type de mesure est semblable à la détermination de température à partir d'une raie mais nécessite un traitement particulier. Après intégration sur les longueurs d'onde de l'émissivité du multiplet, constitué de i raies, on obtient une émissivité totale ε_{Mul} qui a la forme suivante dans le cas de l'oxygène :

$$\varepsilon_{Mul}(T) = \frac{hc}{4\pi} \frac{P_0}{k_B T} \frac{x_0(T)}{Q_0(T)} \sum_{i \text{ raies}} \left(\frac{A_{ul,i} g_{u,i} \exp\left(\frac{-E_{u,i}}{k_B T}\right)}{\lambda_{0,i}} \right) = f(T) \quad \text{VI. 11}$$

Avec $x_0(T)$ la fraction volumique d'oxygène dans le mélange à la température T . Les mesures fournissent la valeur de ε_{Mul} , on obtient une évaluation de la température par itération, en recherchant les zéros de la fonction $f(T) - \varepsilon_{Mul}$.

1.3.3. Méthode absolue à partir du fond continu du rayonnement

Cette méthode fonctionne sur le même principe que la précédente sauf qu'on mesure l'émissivité du fond continu. Pour les plasmas étudiés ici, on peut montrer d'après les résultats de la littérature [Cressault, 2001] et nos propres calculs (Figure IV-5), qu'un phénomène est dominant pour le continuum de rayonnement. Il s'agit de la recombinaison radiative :



On rappelle l'émissivité pour ce type de transition radiative :

$$\varepsilon_v^{rec}(T) = C_1 \frac{n_e n_i}{Q_i(T)} \frac{z^2}{T^{1/2}} [1 - e(-\beta h\nu)] g_i \zeta_v(T) \quad \text{VI. 13}$$

Avec $C_1 = 5,44 \cdot 10^{-52}$ ($\text{W.m}^3 \cdot \text{K}^{1/2} \cdot \text{sr}^{-1}$), n_i , g_i et Q_i respectivement la densité, la dégénérescence du premier niveau et la fonction de partition de l'ion. $\zeta_v(T)$ est un facteur correctif dit de Biberman et décrit dans la littérature [Hofsaess, 1978, 1979]. Pour un gaz monoatomique, on peut en déduire la densité électronique et la température en résolvant :

$$n_e(T) = \left[\frac{\varepsilon_v^{rec}(T) Q_i(T) \sqrt{T}}{C_1 z^2 [1 - e(-\beta h\nu)] g_i \zeta_v(T)} \right]^{1/2} \quad \text{VI. 14}$$

$$n_e^2(T) = n_0 \frac{Q_i(T)}{Q(T)} \left(\frac{2\pi m k_B T}{h^2} \right)^{3/2} e(-\beta(E_i - \Delta E_i)) \quad \text{VI. 15}$$

Comme pour les mesures d'intensité absolue des raies, le milieu doit être optiquement mince pour le fond continu. On peut simplement remarquer que pour les longueurs d'onde visibles le fond continu du rayonnement n'est pas absorbé dans un dispositif tel que le notre et pour un plasma d'argon ou un mélange argon-oxygène.

Cette méthode n'a pas été utilisée dans cette étude mais a sa place dans une description des différentes manières d'évaluer les paramètres d'un plasma donné.

1.3.4. Méthode basée sur l'intensité relative des raies

Pour deux raies 1 et 2 dont les niveaux émetteurs correspondent au même degré d'ionisation on peut écrire dans l'hypothèse d'un équilibre collisionnel :

$$\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2} = \frac{g_1 \lambda_{02} A_{ul1}}{g_2 \lambda_{01} A_{ul2}} e(-\beta(E_1 - E_2)) \quad \text{VI. 16}$$

Avec ε_i l'émissivité de la raie i intégrée sur le spectre. Il vient alors :

$$T = \frac{E_1 - E_2}{k_B \left(\ln \left(\frac{g_1 \lambda_{02} A_{ul1}}{g_2 \lambda_{01} A_{ul2}} \right) - \ln \left(\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2} \right) \right)} \quad \text{VI. 17}$$

Cette méthode permet avant tout de se passer d'étalonnage du dispositif optique, même s'il est préférable de choisir deux raies proches en longueurs d'onde afin de s'affranchir des variations de réponse du photomultiplicateur et du spectromètre avec la longueur d'onde. La faiblesse de la méthode réside dans l'utilisation du rapport ($\varepsilon_1/\varepsilon_2$). Au bord du plasma, le signal étant faible, la méthode revient à diviser deux valeurs proches de zéro, ce qui mène à de grandes incertitudes. Elle est en outre sensible aux incertitudes sur les probabilités de transition.

On peut appliquer cette méthode à un groupe de plus de deux raies afin de tracer un diagramme de Boltzmann. En traçant $\ln \left(\frac{\lambda_0 \varepsilon}{g_u A_{ul}} \right) = f(E_u)$, on obtient une droite de pente $-1/k_B T$, pourvu que la population des niveaux excités suive une statistique de Boltzmann. Cette méthode requiert donc que le plasma soit proche de l'équilibre collisionnel. La température s'obtient par régression linéaire.

Le diagramme de Boltzmann donne des résultats plus précis si l'écart d'énergie entre les niveaux des différentes raies utilisées pour le tracer est important. Dans le cas de l'argon, les niveaux des raies non absorbées sont tous compris entre 12,5eV et 15,75eV environ. Cela ne permet pas de constituer un diagramme de Boltzmann très précis, d'autant que les probabilités de transitions de l'argon sont mal connues ($\Delta A_{ul} / A_{ul} \approx 25\%$). Pour cette raison, on injecte parfois de très faibles quantités de fer pour réaliser des diagrammes de Boltzmann [Pelletier, 2006]. Le fer présente de nombreux avantages : il rayonne beaucoup, on peut le détecter pour de faibles concentration car ses niveaux excités sont bas en énergies et donc facile à peupler et les probabilités de transitions sont bien connues. Les niveaux excités sont répartis sur une large gamme, ce qui permet de d'étaler les points sur le diagramme de Boltzmann. Le fait que le fer rayonne beaucoup peut également être un inconvénient : la population des niveaux ne suit pas nécessairement une statistique de Boltzmann et le plasma peut être refroidi par rayonnement si le fer est injecté en grande quantité.

2. Dispositifs expérimentaux

2.1. Torche d'analyse

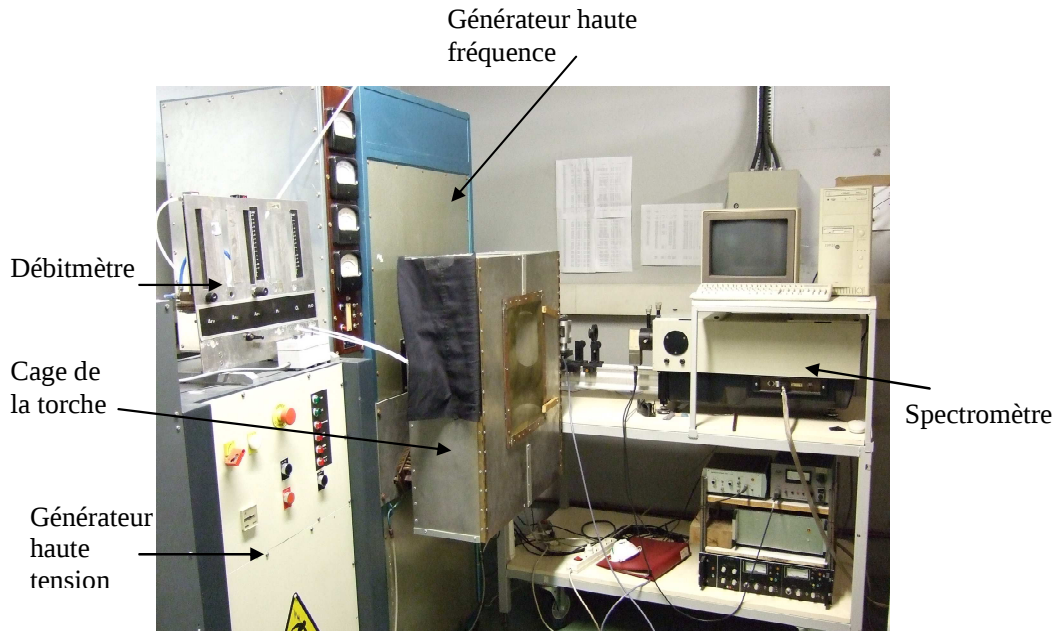


Figure VI-4 : ensemble du dispositif servant à la mesure des propriétés d'un plasma inductif.

Le dispositif expérimental (Figure VI-4) est constitué d'un générateur à haute fréquence de 40MHz qui comprend deux triodes de 2,5kW chacune (Figure VI-5). Sur ce générateur est montée une torche dont le schéma est donné sur la Figure VI-6. Les débits de gaz de la torche sont contrôlés par des débitmètres. L'inducteur a été réalisé au laboratoire et est constitué de 5 spires (Figure VI-7). L'acquisition des données se fait par un spectromètre équipé d'un monochromateur Czerny-Turner (longueur d'onde de travail entre 300nm et 700nm) et d'un photomultiplicateur.

2.1.1. Générateur haute fréquence

Le générateur, de marque Durr, est un modèle à lignes accordées fonctionnant à 40MHz. Son schéma électrique est donné sur la Figure VI-5, tirée de [Michaud, 1983]. La puissance induite par le générateur est réglable via la haute tension d'alimentation. Dans une telle installation, la fréquence est grossièrement imposée par la longueur l des lignes quart d'onde :

$$f = \frac{c}{4l} \quad \text{VI. 18}$$

c étant la vitesse de la lumière. Le circuit oscillant et notamment la capacité d'accord réglable permet de fixer la valeur précise de la fréquence.

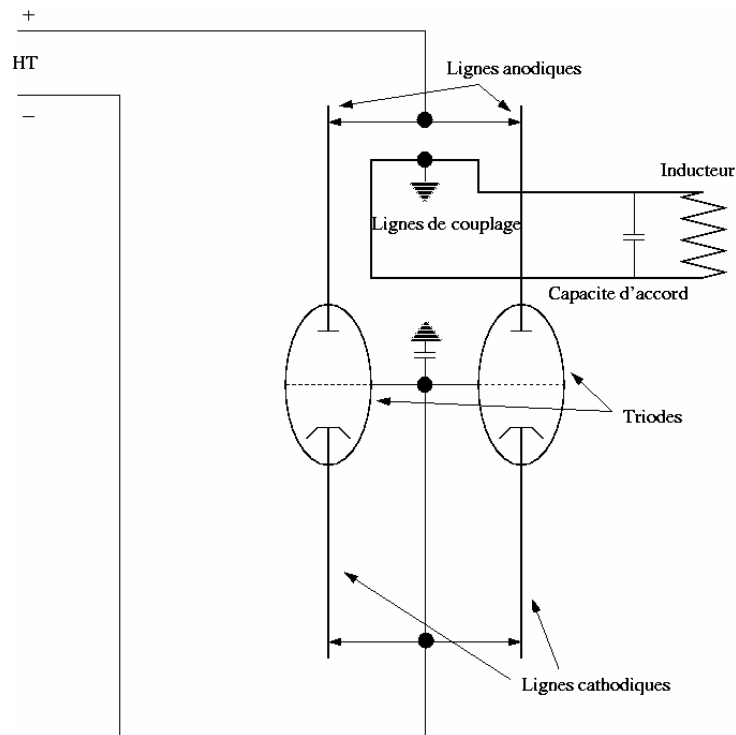


Figure VI-5 : schéma de principe du générateur HF.

2.1.2. Torche

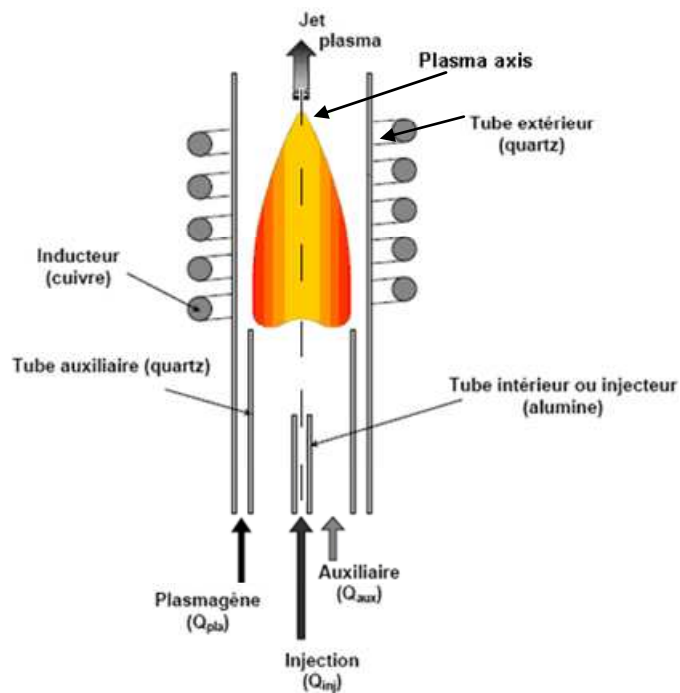


Figure VI-6: principe de fonctionnement d'une torche ICP.

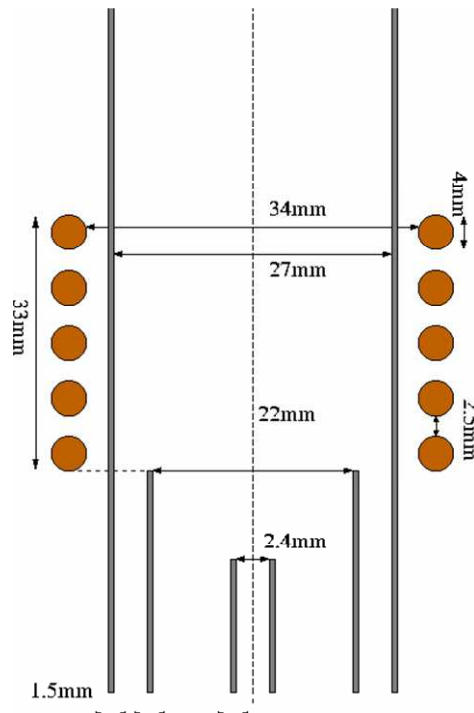


Figure VI-7 : schéma de la torche ICP utilisée au cours des expériences.

La torche permet de monter deux tubes concentriques de diamètres intérieur 27mm et 22mm (Figure VI-7). Les tubes utilisés sont en quartz. L'injecteur est solidaire de la torche. Le tube extérieur est monté rigidement sur la torche (et s'aligne ainsi avec l'injecteur). Le tube intermédiaire est aligné sur les deux autres à l'aide de deux vis de réglage placées à angle droit sur sa circonférence.

2.1.3. Dispositif d'acquisition

Le dispositif optique permettant la mesure par OES est représenté sur la Figure VI-8. Le miroir est monté sur une unité de rotation motorisée permettant de parcourir la source plasma dans les directions x et z . Les caractéristiques de l'unité de rotation motorisée (URM) entraînant le miroir sont données dans le Tableau VI-1. La distance torche/miroir (Figure VI-8) est de 780mm sur notre installation. Il est donc possible de réaliser jusqu'à 200 mesures distinctes et reproductibles en parcourant tout le diamètre de la torche. Un plus grand nombre de point donne de meilleurs résultats après la procédure de post-traitement décrite plus loin.

Tableau VI-1 : caractéristiques du plateau de rotation motorisé sur lequel est monté le miroir.

Pas/révolution du moteur	200
Répétabilité (°)	<0.02
Réduction	180 :1
Incrément d'angle (°)	0,01 à 0,03 selon les mesures

La distance focale de la lentille est de 200mm. La lentille est placée à 285mm de la fente d'entrée du monochromateur et le miroir à 135mm de la lentille (Figure VI-8). Ces distances sont telles que l'image de la fente d'entrée à travers la lentille corresponde à l'axe de symétrie de la source plasma. On fixe ces valeurs en réglant la netteté de l'image du plasma sur le fente d'entrée.

Pour l'ensemble du dispositif optique on obtient un grandissement G :

$$G = \frac{L_3}{L_1 + L_2} = 0,313 \quad \text{VI. 19}$$

Ceci correspond au grandissement de l'image de la fente d'entrée au niveau du plasma. Pour les mesures sur des raies atomiques, la fente d'entrée de taille variable a été réglée sur 0,5mm de hauteur et 15µm à 25µm de largeur selon les mesures. Les cordes sur lesquelles sont faites les acquisitions mesurent donc entre 50µm et 100µm de large et 1,6mm de haut. L'inducteur a donc été conçu de telle sorte que l'on puisse mesurer convenablement le signal entre les spires (étant donné les dimensions disponibles pour la fente d'entrée), sans que l'inducteur ne projette d'ombre sur la fente d'entrée. On peut également noter que les zones du plasma observées lors de deux mesures successives ne se recouvrent pas.

Pour toutes les mesures concernant la torche d'analyse, le photomultiplicateur a été alimenté avec 600V, un compromis entre amplification des signaux faibles et prévention de la saturation du signal. C'est en outre une valeur inférieure à la valeur du seuil de bruit d'amplification du PM.

Enfin, on place derrière la source plasma un fond noir afin de limiter les réflexions parasites et la lumière diffuse qui pourraient fausser la mesure.

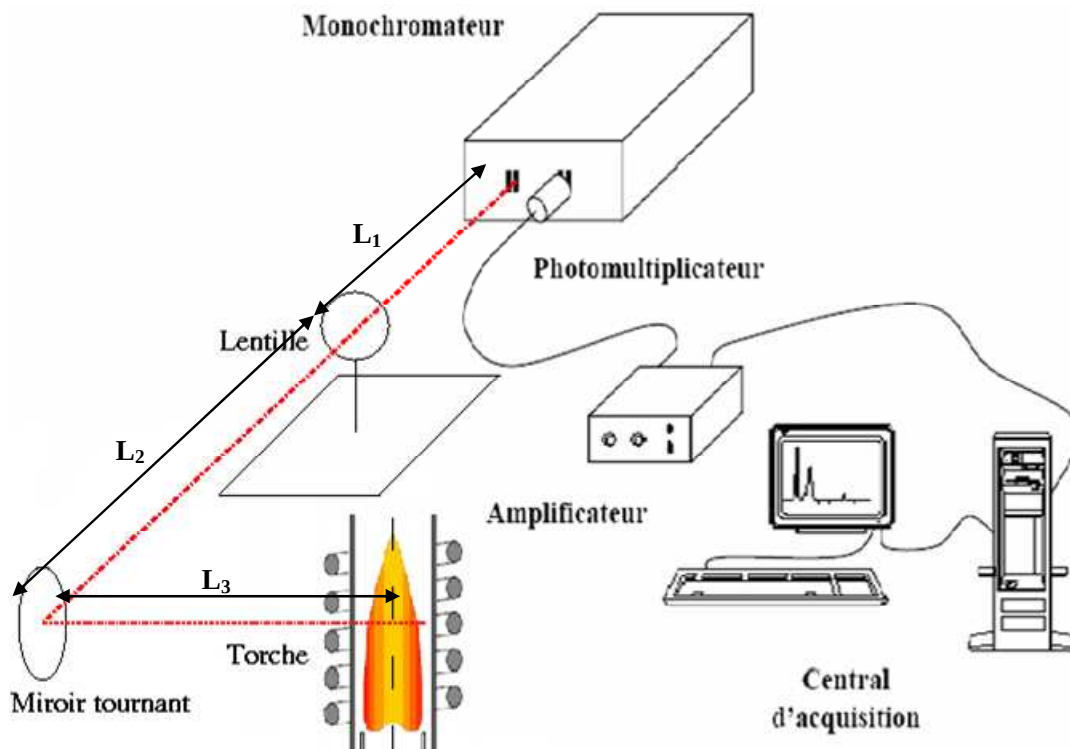


Figure VI-8 : Schéma général de l'ensemble du dispositif d'acquisition.

2.2. Torche de purification

2.2.1. Générateur HF et torche

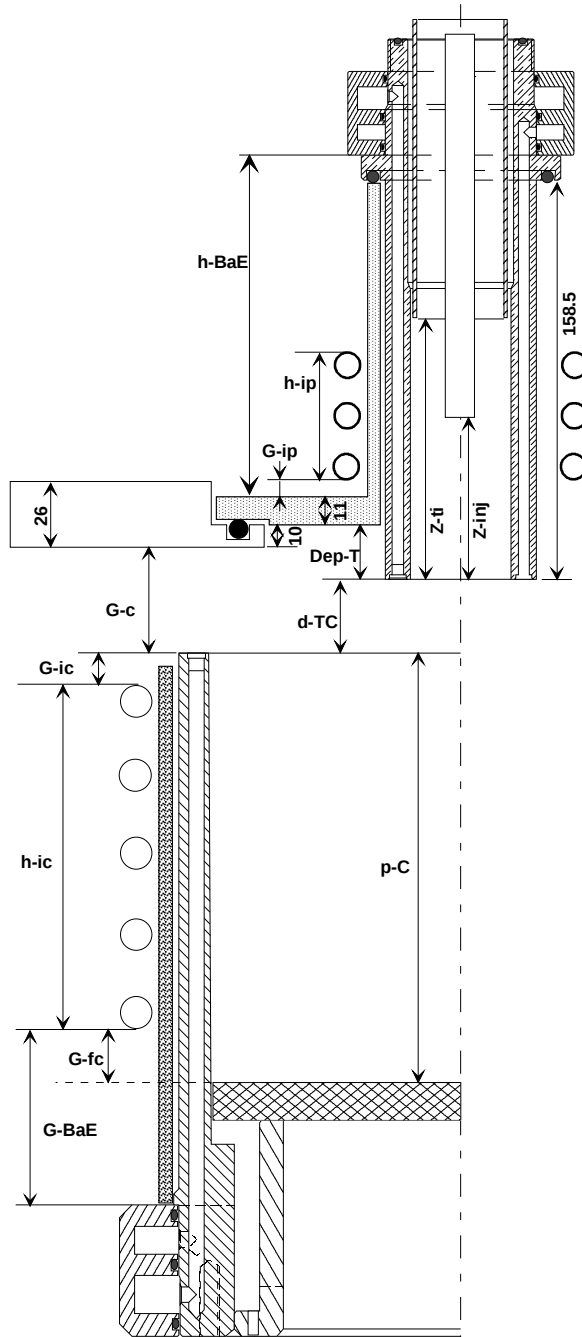
Le générateur, de marque Huttinger, a une puissance nominale maximum de 60kW. Il ne comporte qu'une triode. Des condensateurs à air sont connectés en parallèle avec l'inducteur plasma, et le circuit oscillant ainsi constitué fixe la fréquence à 3.5MHz.

La torche installée sur le réacteur de purification par plasma est conçue différemment de celle utilisée pour l'analyse. Elle comporte trois tubes concentriques (plasmagène, auxiliaire et injecteur), mais le tube extérieur est en fait une cage froide sectorisée (tube de cuivre refroidi, et découpé en secteurs par des fentes radiales). L'injecteur en cuivre est également refroidi à l'eau. L'injecteur se positionne à une hauteur variable et permet l'injection de gaz directement dans la zone de l'inducteur plutôt que en amont de l'injection du gaz extérieur comme c'est le cas sur la torche d'analyse.

.

Tableau VI-2 : cotes de la torche une fois installée dans le réacteur.

Torche	EPM40
D nominal	40
D tube intermédiaire	38
L cage froide	158,5
Entretoise	0
Injecteur	16-D2
Dext injecteur	16
D int	7
Platine	silice
Déport intérieur platine	10
Epaisseur platine	11
Inducteur HF	
nb spires	4
D int	77
h totale (h-ip)	51
Creuset	
D int	200
D ext	224
h secteurs	218,5
Inducteur MF	hélicoïdal
nb spires	5
D int (mm)	260
Géométrie :	
Torche	
Dépassement torche Dep-T	25
Z tube intermédiaire Z-int	100,6
Z injecteur Z-inj	78,9
Garde inducteur G-ip	0
Hauteur boîte à eau h-BaE	137
Creuset	
Profondeur utile p-C	
h totale inducteur h-ic	100
Garde inducteur G-ic	30
Garde creuset G-c	50
Global	
Dist. tube int - inducteur	
Distance T-C d-TC	40
Garde fond de creuset G-fc	
Garde boîte à eau	

**Figure VI-9 : schéma de la torche installée dans le réacteur de purification**⁵ Torche conçue par Chritian Trassy

Ces différences de conception s'expliquent par les flux de chaleur plus importants auxquels est soumise la torche lors de la purification du silicium (quelques kW ou dizaines de kW au lieu de quelques centaines de W). Le tube auxiliaire en revanche est en quartz. La Figure VI-9 montre le schéma de la torche une fois installée dans le réacteur. On y trouve les cotes régissant la position du creuset par rapport à la torche elle-même car la distance plasma-cible est importante dans le cadre de la purification de silicium ainsi que le schéma de l'inducteur moyenne fréquence servant au chauffage et au brassage du silicium. Les cotes non inscrites sur la figure sont variables et sont données dans le Tableau VI-2 pour un cas de fonctionnement typique. Les mesures par OES sur ce réacteur sont réalisées dans l'intervalle noté d-TC sur la figure puisqu'on ne peut pas faire de mesures à travers la cage froide qui est métallique. Lors des mesures par OES, il n'y a pas de silicium à purifier ni de creuset. De la même façon que dans le cas de la torche d'analyse on place un écran noir derrière la source plasma (ici une plaque en graphite) afin de limiter les réflexions sur les parois métalliques de l'enceinte qui pourraient augmenter artificiellement l'intensité mesurée.

Ces mesures doivent compléter celles faites sur la torche d'analyse.

2.2.2. Dispositif d'acquisition

Le dispositif optique utilisé pour l'acquisition est sensiblement identique à celui présenté dans la partie sur la torche d'analyse. La seule différence réside dans l'utilisation d'une fibre optique pour amener la lumière de la lentille jusqu'à la fente d'entrée du monochromateur. L'image du plasma est formée sur l'extrémité de la fibre et c'est cette extrémité qui délimite la zone d'observation.

Par ailleurs, la source étant plus grande dans le cas de la torche de purification, l'incrément d'angle utilisé est plus important. Ces modifications sont rassemblées dans le Tableau VI-3.

Tableau VI-3 : modifications du dispositif optique pour les mesures dans le plasma de purification.

L1	460
L2	75
L3	80 (hors fibre optique)
Incrément d'angle (°)	0,05 à 0,06 selon les mesures

3. Méthodologie et post traitement

Des mesures de température ont été réalisées avec les dispositifs décrits ci-dessus et en utilisant la méthode de l'intensité absolue des raies. On a étudié des plasmas d'argon pur sur les deux dispositifs et des plasmas Ar 95%, O₂ 5% molaire sur la torche procédé uniquement. En plus de l'étalonnage du dispositif, un certain nombre de précautions doivent être prises pour réaliser des mesures fiables.

3.1. Choix des raies atomiques

Comme le montre les équations VI. 9 et VI. 10, la probabilité de transition est une donnée importante pour la détermination de la densité d'état excité. Dans le cas de l'argon, la probabilité de transition des raies est souvent mal connue. En utilisant la base de donnée du NIST⁶, nous avons sélectionné les raies pour lesquelles les probabilités de transition sont données avec la plus faible incertitude (<25%). Comme nous l'avons dit au paragraphe 1.3.1, le milieu doit être optiquement mince pour les longueurs d'onde auxquelles on effectue les mesures. Dans le cas de mesures faisant intervenir la statistique de Boltzmann pour la détermination des paramètres physiques du plasma, on doit prendre soin de choisir des transitions dont le niveau haut n'est pas trop proche de l'ionisation. En effet, un écart à la statistique de Boltzmann peut apparaître à cause de l'équilibre d'ionisation prédit par l'équation de Saha (II. 9). Enfin, la raie doit être dans la plage de longueur d'onde utilisable par le monochromateur.

L'application de ces critères permet sélectionner certaines raies de l'argon dont les caractéristiques sont données dans le Tableau VI-4. Cette liste ne prétend pas être exhaustive et d'autres transitions de l'argon satisfont certainement ces critères.

Tableau VI-4 : données spectroscopiques pour les transitions de l'argon utilisées au cours des mesures.

λ_0 (nm)	A_{ul} (s ⁻¹)	ΔA_{ul} / A_{ul} (%)	g_u	E_u (eV)
420	9,67.10 ⁵	25	7	14,499
451	1,18.10 ⁶	25	1	14,576
687	2,78.10 ⁶	25	3	14,711
696	6.39.10 ⁶	25	1	13.328

La raie Ar 696nm a été placée dans le tableau car des mesures ont été effectuées à cette longueur d'onde à des fins de tests. D'après les calculs de spectre de l'argon (Tableau IV-3), cette raie devrait être auto-absorbée dans un plasma tel que celui qui a été utilisé pour ces mesures. On a donc cherché à vérifier si la même température est obtenue avec une raie auto absorbée et avec des raies non absorbées.

3.2. Etalonnage du dispositif

Cette étape est nécessaire pour réaliser des mesures par intensité absolue de raies. Elle a été réalisée à l'aide d'une lampe à ruban de tungstène dont la luminance spectrale a été déterminée au Laboratoire National d'Essai (LNE). La luminance théorique de la lampe est donnée sur la Figure VI-10. Y figurent aussi les intensités (en photons.s⁻¹) mesurées avec notre dispositif optique sur l'installation d'analyse spectrochimique.

On a placé le ruban de la lampe de telle sorte que l'axe de symétrie du ruban coïncide avec celui du plasma (Figure VI-11). Lors de la détermination de la luminance spectrale de la lampe au LNE, le ruban a été porté à 2330K ± 4K à l'aide d'une alimentation délivrant un courant de 14,3A ± 10mA. C'est cette valeur de courant qui a été reproduite lors de l'étalonnage du système optique grâce à une alimentation stabilisée disponible au laboratoire.

⁶ http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html

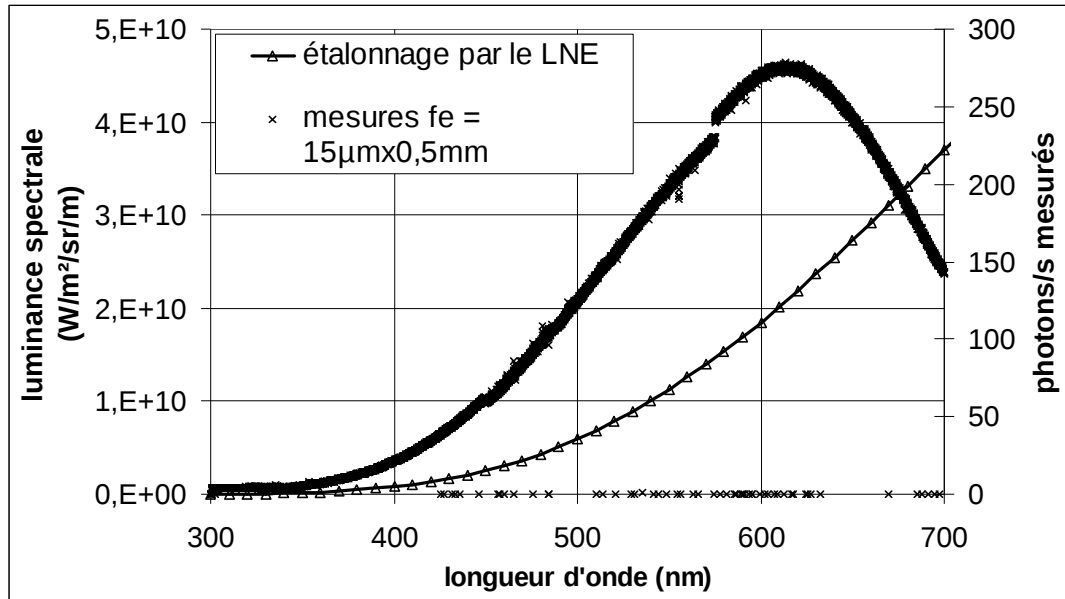


Figure VI-10 : Luminance spectrale théorique de la lampe à ruban de tungstène et intensité mesurée correspondante en fonction de la longueur d'onde.

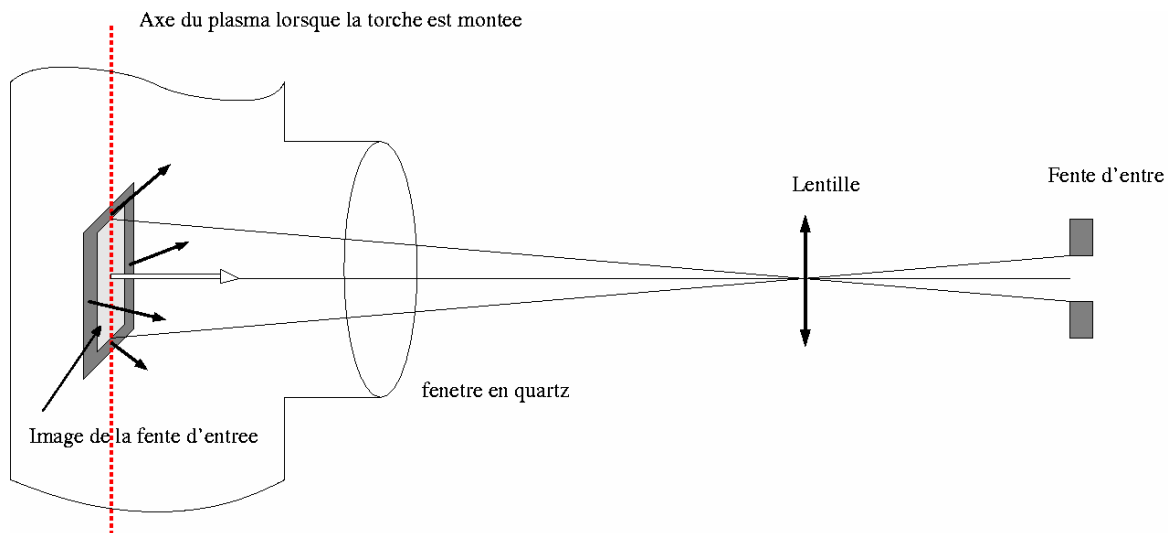


Figure VI-11 : configuration du dispositif optique lors de l'étalonnage de la chaîne de mesure.

La Figure VI-11 représente le montage réalisé pour l'étalonnage du dispositif optique. La fenêtre en quartz a une transmission $\tau = 0.92$. On a pris soin de placer cette fenêtre perpendiculairement à la ligne optique. Le miroir n'est pas représenté pour la lisibilité du schéma mais les distance fente/miroir et miroir/source sont les mêmes que sur des mesures.

L'intensité émise par la lampe par unité d'angle solide et de surface étant connue, on peut ramener l'émissivité du plasma à cette grandeur qui correspond également à une émissivité intégrée sur une longueur. En fait tout se passe comme si la lampe était un plasma dont toute la lumière sortirait d'une surface correspondant à celle du ruban de tungstène. Pour cette raison, il est important que l'image de la fente d'entrée soit intégralement contenue sur le ruban, puisque l'image de cette fente au niveau du plasma n'est jamais occultée lors des expériences. Les dimensions du ruban sont de 34mm x 1.3mm, ce qui est compatible avec la taille des fentes d'entrée et le grandissement du montage optique.

Les mesures effectuées avec la lampe à ruban et notre dispositif optique installé sur la torche d'analyse sont représentées sur la Figure VI-10. La réponse du système optique n'est pas constante avec la longueur d'onde. Pour les longueurs d'onde proche du rouge on observe

une chute de la réponse qui est due principalement au photomultiplicateur. En effet dans le rouge ou l'infrarouge, les photons ne sont plus assez énergétiques pour expulser les électrons de la bande de valence du matériau photoélectrique du détecteur et le signal observé est moindre pour un même nombre de photon. A partir des deux courbes de la Figure VI-10, on peut tracer la courbe d'étalonnage du dispositif optique. Cette courbe est valable à condition de ne pas changer les paramètres du système d'acquisition :

- distance entre les différents éléments du banc optique
- dimensions des fentes d'entrée et sortie
- tension aux bornes du photomultiplicateur

Une courbe d'étalonnage doit donc être tracée pour chaque jeu de paramètre d'acquisition utilisé. La courbe d'étalonnage correspondant à un jeu de paramètres habituel lors de nos mesures est donnée sur la Figure VI-12. On constate bien la diminution de la réponse du dispositif avec la longueur d'onde. Ainsi la valeur de l'intensité radiative mesurée correspond à $1/FT(\lambda)$ par photons.s⁻¹ mesuré.

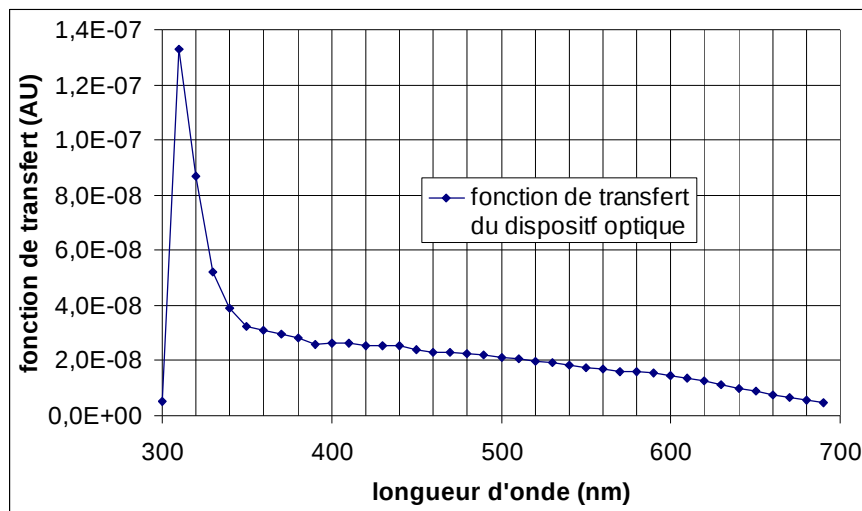


Figure VI-12 : courbe d'étalonnage de la chaîne d'acquisition ($FT(\lambda)$).
En W.Sr-1.m-2.m-1/(photon.s-1).

La même démarche a été réalisée sur la torche de purification et mène à des observations similaires.

3.3. Traitement des données

Une procédure doit être appliquée pour obtenir des températures à partir des intensités spectrales mesurées. Le premier objectif de cette procédure est de déterminer les émissivités locales à l'aide des intensités spectrales. Ensuite, il est aisé d'obtenir une température en faisant l'hypothèse de l'ETL. Comme nous l'avons vu, c'est l'inversion d'Abel qui permet de passer de mesures intégrées à des valeurs locales et cette dernière est très sensible au bruit présent dans le signal (Figure VI-2). On a donc utilisé différentes procédures permettant de limiter les erreurs dues au traitement inverse qu'est la transformée d'Abel.

La Figure VI-13 montre les différentes précautions nécessaires pour réaliser l'inversion avec un minimum d'erreur.

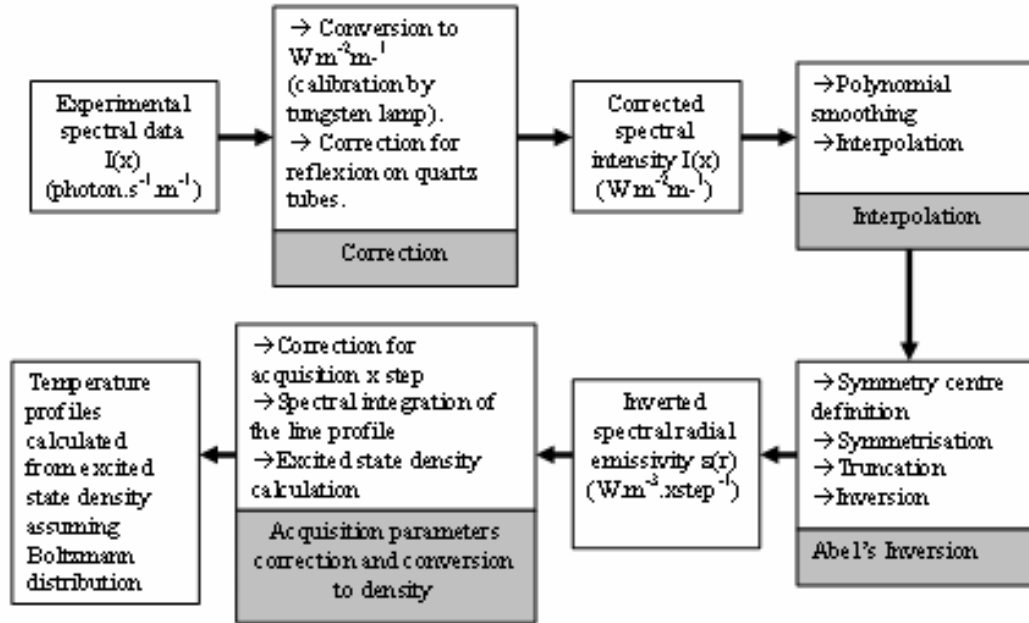


Figure VI-13 : organigramme de l'étape de traitement des données (d'après [Pelletier, 2006]).

3.3.1. Corrections des données expérimentales

La première étape du traitement des données est de convertir $I(x)$ en $\text{W.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\text{m}^{-1}$ à l'aide de la fonction de transfert (Figure VI-12). Ensuite, certaines corrections que nous détailleront plus loin dans ce paragraphe, doivent être faites pour s'affranchir de signaux parasites ou d'artefacts expérimentaux. La Figure VI-14 représente les intensités spectrales $I_\lambda(x)$ obtenue directement après la mesure (a) et après deux corrections différentes. Les courbes correspondent aux mesures faites à la longueur d'onde centrale de la raie Ar420nm sur toute la largeur de la torche d'analyse (de -13,5mm à 13,5mm) en $z = 0,5\text{mm}$ ($z = 0\text{mm}$ est pris à la sortie de l'inducteur). Etant donné la température de la paroi (quelques centaines de °K), aucun rayonnement ne devrait être mesuré pour $r = \pm 13.5\text{mm}$.

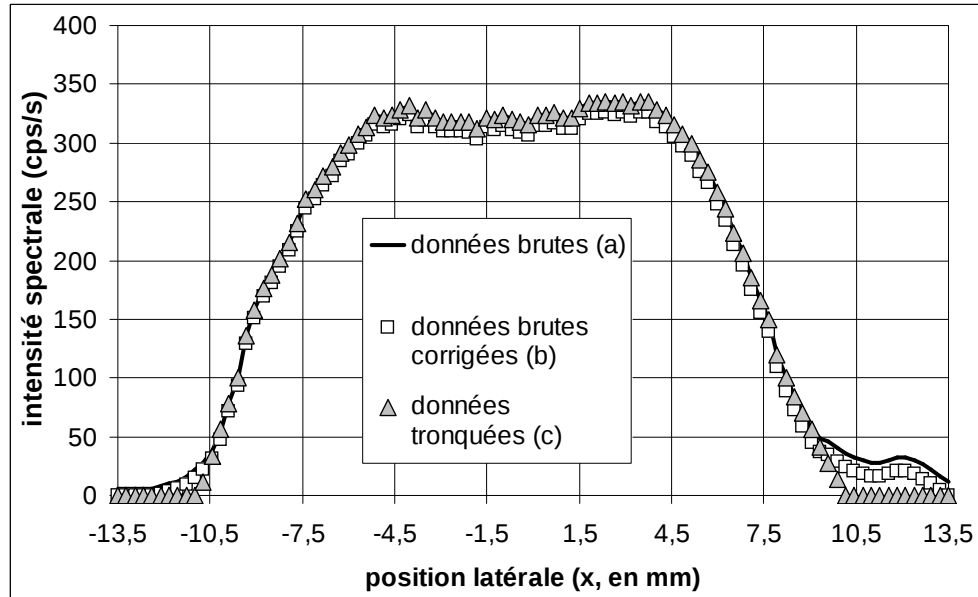


Figure VI-14 : intensités spectrales $I_{\lambda}(x)$ après les mesures et après différentes corrections. On s'est placé à la longueur d'onde centrale de la raie Ar420nm.

Les données brutes sur la Figure VI-14 présentent une intensité radiative non nulle au niveau des parois. Ceci met en évidence la diffusion optique parasite sur les tubes de quartz ou sur l'écran noir derrière la source dont il faut tenir compte avant d'inverser les mesures. L'intensité de ces réflexions est assez simple à déterminer au niveau des parois puisque le plasma ne devrait pas émettre à cette position. Cependant, rien ne permet de supposer que les réflexions parasites ont une intensité constante pour toutes les valeurs de x . Par exemple, la rupture de pente sur les données brutes aux alentours de $r = 12\text{mm}$ suggère que les réflexions parasites ne se limitent pas à l'intensité mesurée en $r = \pm 13,5\text{mm}$. Différentes corrections ont donc été faites et inversées afin de mesurer leur influence sur la température obtenue en dernier lieu. La courbe (b) correspond à une correction variant linéairement entre les valeurs d'intensité radiative au niveau des deux parois. L'intensité soustraite aux données brutes est donc :

$$I_{\text{soustraite}}(x) = \frac{I(13,5\text{mm}) - I(-13,5\text{mm})}{27}(x + 13,5) + I(-13,5\text{mm}) \quad \text{VI. 20}$$

En supposant que la rupture de pente observée à $r \sim 12\text{mm}$ est un artefact, on a tronqué les données brutes (courbe (c) sur la Figure VI-14) afin de maintenir une pente constante sur les bords du plasma. L'influence de cette correction sera détaillée dans la suite de cette partie (Figure VI-15). Après ces différentes corrections, les données ont été inversées (tous les autres paramètres de traitement étant identiques). Notons tout de même que ce genre d'artefact n'apparaît pas systématiquement lors des mesures.

La Figure VI-15 montre les températures obtenues avec les trois jeux de données de la Figure VI-14 et en intégrant sur le spectre pour obtenir l'émissivité totale de la raie.

Les acquisitions ont été faites sur une plage spectrale de $0,1\text{nm}$. Les émissivités obtenues après inversion d'Abel sont intégrées sur cette plage. Pour ce faire, il faut soustraire aux intensités mesurées le fond continu du rayonnement (que l'on obtient en mesurant l'intensité à une longueur d'onde éloignée du centre de la raie). Sur notre dispositif d'analyse, le fond continu mesuré avec des fentes fines de $15\mu\text{m}$ à $25\mu\text{m}$ était plusieurs centaines de fois moins intense que la raie Ar420nm et la soustraction du fond continu n'entraîne pas de modification notable des résultats.

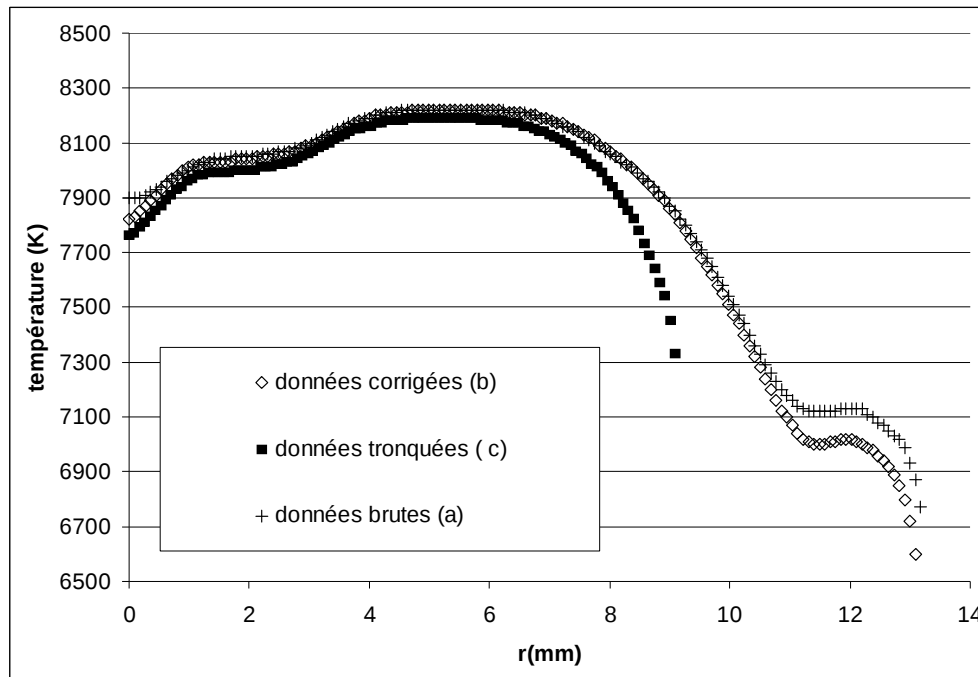


Figure VI-15 : températures déduite des densités d'état excité $E_u = 14,499\text{eV}$ à $z = 0,5\text{mm}$ en fonction du rayon et pour différentes méthode de traitement des données.

Tous les autres paramètres de post traitements sont les mêmes sur les trois courbes de la Figure VI-15 et seront détaillés plus loin. Comme on peut le constater sur les courbes (a) et (b), l'annulation de l'intensité radiative au niveau des parois n'influence pas les températures de manière significative dans la partie centrale. Les températures en bord de plasma sont par contre pus faibles mais la rupture de pente est toujours visible et semble peu crédible pour un plasma d'analyse. Pour $r = 13,5\text{mm}$ on mesurerait une température supérieure à 6000K , et le tube de quartz aurait fondu...

La troncature des données (c) permet d'éliminer cet artefact mais mène à une diminution importante de la température en partie externe.

Au final aucune solution ne semble vraiment satisfaisante. Les résultats les plus crédibles sont obtenus en annulant l'intensité radiative (b) et en ne tenant pas compte des résultats pour $r > 10,5\text{mm}$. Cette erreur pour les grandes valeurs de r est indépendante de l'erreur numérique induite par l'inversion d'Abel (Figure VI-3) puisque sa cause réside dans les données brutes obtenues. Elle est très probablement liée à la présence du tube de quartz et à l'ouverture non nulle du faisceau optique de mesure.

3.3.2. Lissage et symétrisation des données

Une fois les corrections faites pour supprimer ou mettre en évidence les artefacts expérimentaux, les mesures doivent être lissées avant de les inverser car l'inversion d'Abel fait intervenir la dérivée spatiale de l'intensité radiative. Le bruit inhérent aux mesures peut donc fausser les résultats.

Un lissage polynomial a été choisi pour lisser les données. Il est également possible d'interpoler entre les points. L'interpolation permet de minimiser le bruit « numérique » dû lié à l'algorithme d'inversion, et peut pallier en partie un manque de points expérimentaux. Inverser un profil d'intensité constitué de trop peu de point cause une distorsion du profil après inversion. Intercaler des points entre les mesures permet de contourner partiellement cette limitation. Etant donné le grand nombre de points qu'il est possible d'acquérir avec notre

dispositif expérimental, l'interpolation des données n'est pas une étape cruciale pour nos mesures. Son utilisation ou non n'influe pas significativement sur les résultats.

On a vu plus tôt que l'on doit réaliser une intégration dans le domaine des longueurs d'onde pour obtenir l'émissivité totale de la raie et remonter aux densités d'états puis aux températures. Il s'avère qu'en intégrant les intensités avant inversion plutôt que les émissivités après coup on obtient une procédure de lissage des données qui complète bien le lissage polynomial. Sur la Figure VI-16, on voit la forme d'un signal $I_\lambda(x)$ pris à une des longueurs d'onde de la raie Ar420nm. Ce signal est fortement bruité (en fait plus on s'approche de l'aile de la raie, plus il y a de bruit) et il peut être difficile de le lisser sans perdre d'information pertinente. En intégrant les données brutes ou corrigées sur le spectre, il est possible de travailler sur un signal plus propre et de minimiser le besoin de lissage.

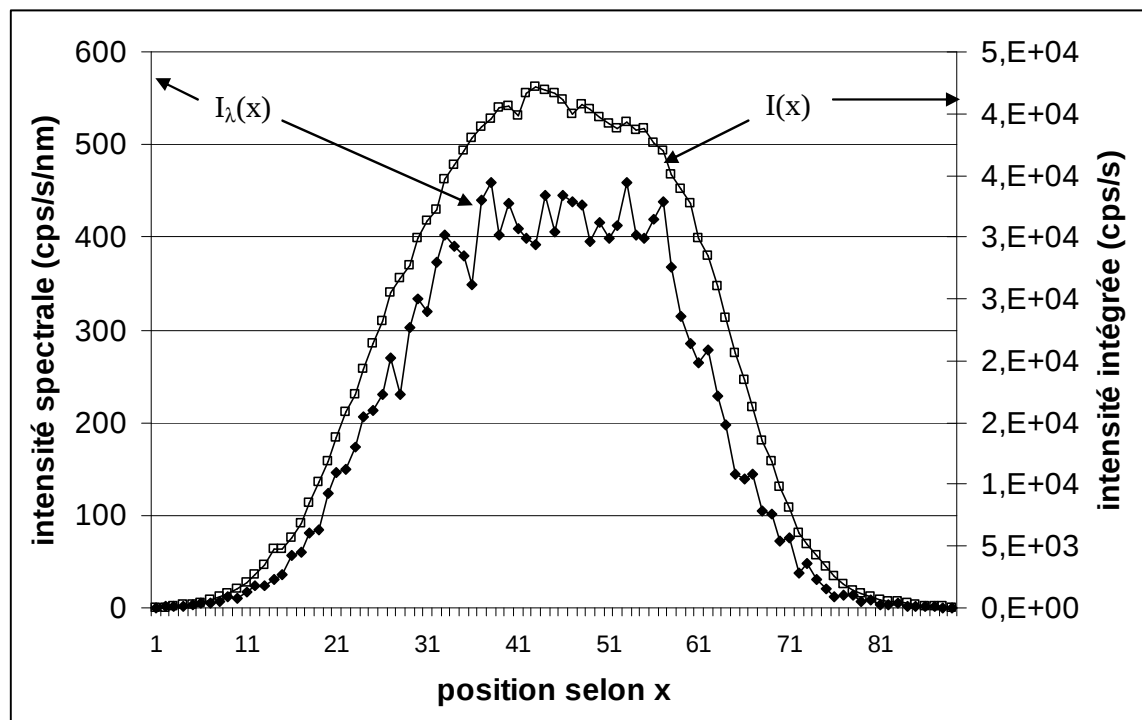


Figure VI-16 : lissage des données par intégration de l'intensité spectrale.

L'inversion d'Abel suppose que la source possède une symétrie de révolution. On va donc travailler à partir du profil d'intensité établi sur un rayon. Cependant, la source d'émission peut engendrer des profils $I(x)$ légèrement dissymétriques. On doit donc se ramener à une distribution radiale en moyennant les mesures de part et d'autre d'un axe à déterminer.

La détermination du centre du profil est faite par égalisation de l'intégrale de $I(x)$ de part et d'autre du centre de symétrie comme décrit sur la Figure VI-17. D'autres méthodes pourraient être envisagées. La source étant symétrique, il est possible de déterminer la position du centre du profil à partir de la recherche d'extrema de $I(x)$. Ces deux méthodes diffèrent lorsque $I(x)$ présente une dissymétrie importante (Figure VI-18). Les différentes solutions ont néanmoins donné des résultats semblables lors de nos expériences.

Il est à noter qu'en cas de dissymétrie notable la meilleure solution est de régler la géométrie de la torche !

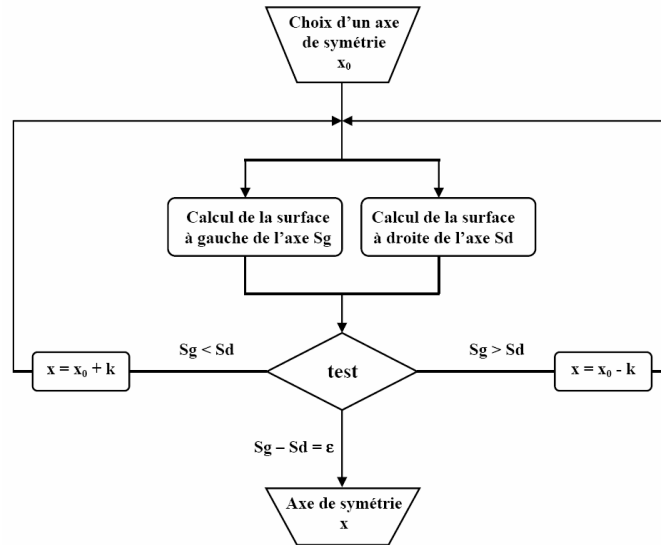


Figure VI-17 : algorithme de recherche de la position de l'axe de symétrie du plasma (tiré de [Pelletier, 2006]).

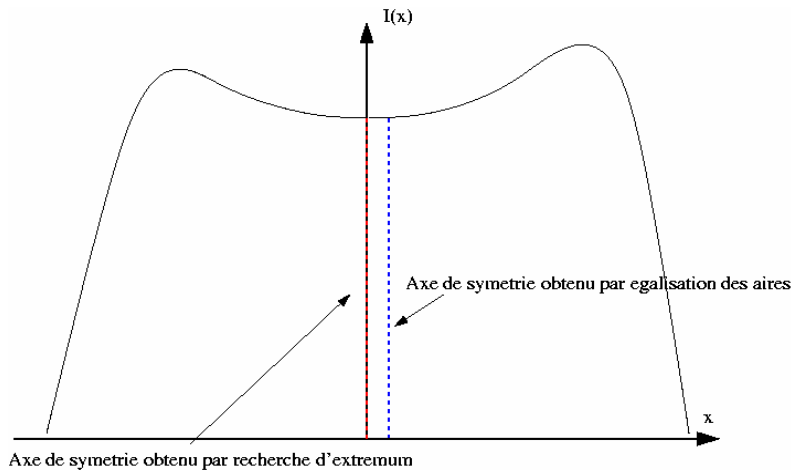


Figure VI-18 : axe de symétrie du plasma trouvé pour deux méthodes de détermination de la position de l'axe dans le cas d'un profil d'intensité fortement dissymétrique.

3.3.3. Estimation des incertitudes

Le calcul de l'imprécision sur la température obtenue après le traitement des données n'est pas simple en raison des nombreuses sources d'erreur dont il faut tenir compte. Les différentes sources d'erreur sont représentées sur la Figure VI-19. La dispersion des mesures est de l'ordre de 5% sur les données brutes $I(x)$. La courbe d'étalonnage mesurée avec le dispositif optique montre également une dispersion des mesures. Il y a notamment un saut de l'intensité radiative (Figure VI-10). L'erreur sur cette fonction de transfert est estimée à 5% également. En prenant des fentes d'entrée et de sortie aussi petite que le permettait la luminosité du plasma, on a pu supprimer presque entièrement le fond continu du rayonnement. Celui-ci étant de l'ordre du coup/s, pour une intensité de plusieurs centaines à la longueur d'onde centrale, on considère négligeable l'erreur qu'il engendre. Le traitement des réflexions et diffusions parasites sur les tubes est assez difficile comme on l'a vu précédemment. Il est probable que les réflexions parasites n'ont pas la même intensité en tout point de la zone d'observation. La réflexion parasite visible sur la Figure VI-14 (courbe (a),

$r \sim 12\text{mm}$) sert de référence pour le calcul de l'incertitude faute de meilleures données disponibles. Elle est de l'ordre de 10%. Pour affiner cette valeur, il faudrait d'une part connaître plus précisément les caractéristiques optiques des tubes en quartz et réaliser un calcul pour déterminer à priori le comportement de ces réflexions dans la torche.

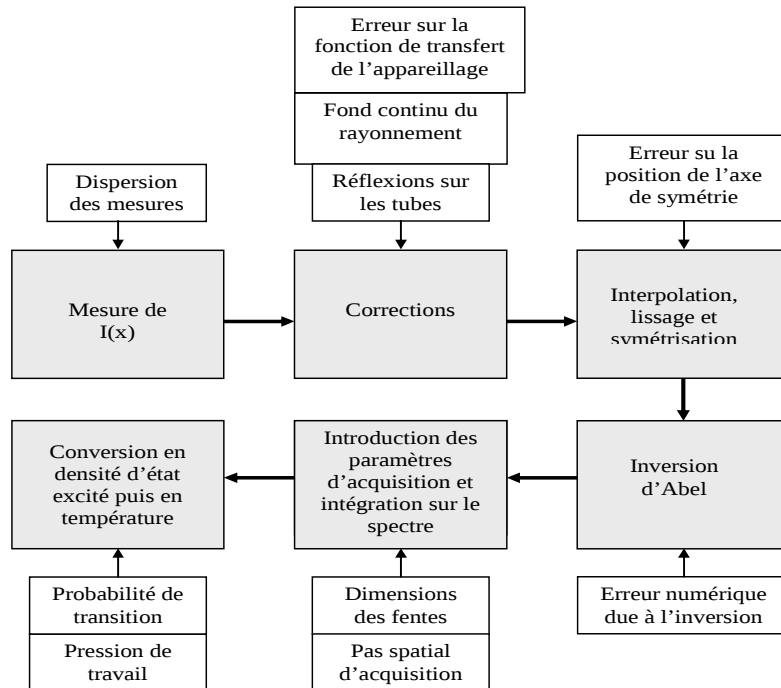


Figure VI-19 : les différentes étapes du traitement des données expérimentales et les sources d'erreur correspondantes.

Après avoir estimé les erreurs liées aux conditions opératoires, il convient de s'intéresser à celles liées au traitement des données. La position de l'axe de symétrie dépend de la manière dont on le définit. Cependant, les mesures effectuées présentaient toujours une bonne symétrie et aucune différence significative n'a été observée entre les différentes méthodes. On suppose donc que la recherche de l'axe de symétrie du plasma n'introduit pas d'erreur significative. L'erreur numérique due à l'inversion d'Abel dépend du rayon et constitue une source majeure d'incertitude. L'erreur relative pour des données expérimentales contenant un bruit de 5% dû à la dispersion des mesures est donnée sur la Figure VI-3. Le pas spatial d'acquisition est déterminé par les caractéristiques du système mécanique actionnant le plateau de rotation du miroir. Au vu de la grande précision de ce dispositif, le pas spatial est très régulier et connu avec une bonne précision. L'erreur sur le pas spatial d'acquisition est donnée par la mesure de la distance source/miroir qui est connue avec une précision $< 1\%$. On peut donc négliger l'incertitude qui en découle. Les dimensions des fentes jouent un rôle important dans le traitement des données. On fixe ces dimensions à l'aide de vis micrométriques. Le repérage de la largeur zéro des fentes est fait par extinction de signal d'une raie intense. On estime l'incertitude introduite par cette méthode à $\pm 1\mu\text{m}$, soit une erreur de 5% environ pour des fentes réglées entre $15\mu\text{m}$ et $25\mu\text{m}$. Cette erreur est liée à la diffraction qui rend non-linéaire la relation largeur-intensité aux très faibles valeurs.

Tableau VI-5 : Estimation de l'incertitude sur la mesure des densités d'état excité

Source d'erreur	Type d'erreur	Erreur relative estimée (%)	
Dispersion des mesures	constante	5	
Fonction de transfert	constante	5	
Fond continu du rayonnement	constante	~0	
Réflexions parasites	dépend de la position mais estimée par une valeur constante	10	
Symétrisation	constante	~0	
Inversion d'Abel	dépend de la position	De 1 à 10 pour $r/R < 0,75$	> ou >> 10 pour $r/R > 0,75$
Dimension des fentes	constante	5	
Pas spatial Δx	constante	~0	
Probabilité de transition	constante	25	
Pression de travail	constante	5	
Erreur totale (pour $R/R < 0,75$)	constante	40	

Le calcul des densités d'état et des températures à partir des émissivités radiales constitue une dernière source d'imprécision. Ce calcul fait intervenir la probabilité de transition des raies qui est connue à $\pm 25\%$ au mieux pour l'argon. Ceci est la deuxième source majeure d'erreur. Enfin, la pression de travail lors des expériences intervient dans le calcul de la température sous la forme de $n_0(T)$. On estime la pression de travail égale à 1 atmosphère à 5% près. Le Tableau VI-5 récapitule les différentes sources d'erreur ainsi que leur type. L'erreur globale sur les densités d'état y est également mentionnée.

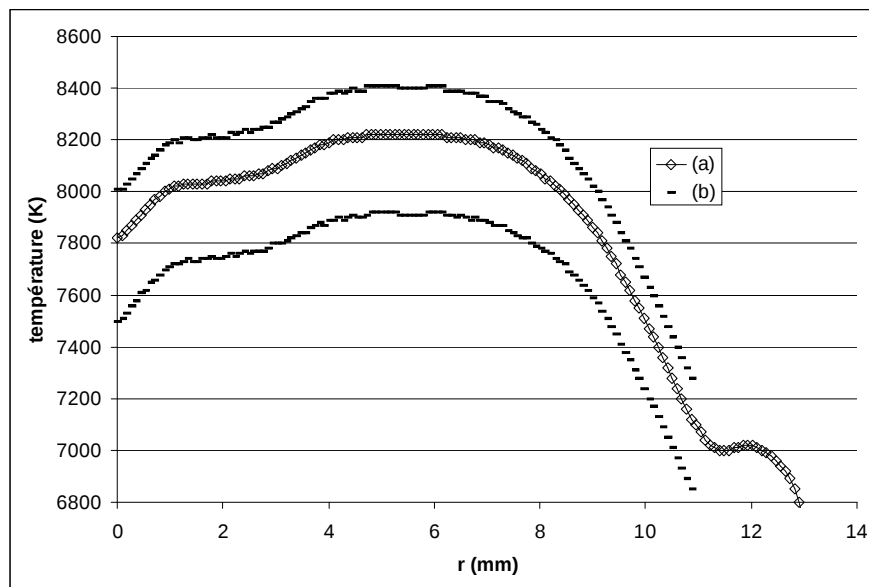


Figure VI-20 : température mesurée en fonction du rayon avec la raie Ar420nm en $z = 0,5\text{mm}$ (a) et limites de l'incertitude sur la température (b)

Sur la Figure VI-20 se trouve la température obtenue à partir des mesures sur la raie Ar420nm (Figure VI-14, (b)) avec la limite haute est basse de l'incertitude sur cette température. L'incertitude est importante sur la densité mais la méthode de l'intensité absolue des raies permet de limiter cette incertitude lorsqu'on détermine la température. Au final, la température est mesurée avec une incertitude de $\pm 300\text{K}$ environ jusqu'à $r \sim 10\text{mm}$. Au bord

du plasma, l'erreur numérique due à l'inversion d'Abel ainsi que la présence d'artefacts de mesures rendent l'incertitude beaucoup plus importante.

4. Résultats et discussion

La méthode de traitement des données ayant été exposée, on va à présent exposer les résultats obtenus.

4.1. Torche d'analyse

La géométrie de la torche a été décrite dans le chapitre III. Les paramètres qui ont été gardés constants au cours des différentes expériences sont donnés dans le Tableau VI-6. La ligne $P(W)$ correspond à la puissance électrique fournie par l'étage "courant continu" du générateur, et non la puissance effective fournie au plasma.

Tableau VI-6 : paramètres expérimentaux fixes pendant les expériences sur la torche d'analyse.

Q_1 (l/min)	13,5
Q_2 (l/min)	0
Q_3 (l/min)	0
$P(W)$	980
Gaz injecté	Ar
F (MHz)	40
Pression (atm)	1

4.1.1. Profils de températures pour différentes raies de l'argon

Des mesures de températures ont été effectuées avec différentes raies de l'argon (Tableau VI-4). Pour ces mesures on s'est placé en $z = 0,5\text{mm}$ ($z = 0\text{mm}$ en sortie de l'inducteur). Les fentes d'entrée et de sorties ont été réglées à $2\text{mm} \times 20\mu\text{m}$. Un étalonnage avec la lampe à ruban de tungstène a été réalisé avec des fentes identiques afin d'utiliser l'intensité absolue des raies pour obtenir la température. Pour le traitement des données, on a corrigé les données en supprimant l'intensité au bord du tube extérieur (Figure VI-15, (b)). Les mesures montrées ici ne présentaient pas d'artefact évident.

Les températures obtenues sont données sur la Figure VI-21. Au coeur du plasma ($r < 7,5\text{mm}$) les températures obtenues sont les mêmes pour toutes les raies étant donné l'incertitude de mesure, sauf $\text{Ar}696\text{nm}$, avec laquelle on obtient une température nettement plus faible. Ce résultat était attendu puisque les calculs de spectre ont montré que cette transition devrait être partiellement absorbée. On a mesuré une partie seulement de la lumière émise par cette transition, le reste étant piégé dans le plasma.

On observe en revanche de fortes différences sur les bords du plasma. Ces différences peuvent provenir de l'erreur numérique induite par l'inversion d'Abel mais d'autres causes pourraient exister. La différence majeure entre ces trois transitions est l'intensité radiative. $\text{Ar}420\text{nm}$ est plus intense qu' $\text{Ar}451\text{nm}$, elle-même plus intense qu' $\text{Ar}687\text{nm}$.

A cause de la faible intensité lumineuse au bord du plasma, on atteint la limite de détection du système optique pour des valeurs de $r < 13,5\text{mm}$ pour les raies $\text{Ar}687\text{nm}$ et $\text{Ar}451\text{nm}$. Dans ces deux cas, la limite du plasma est définie par la limite de détection du système et non par la température effective.

Pour Ar420nm, par contre on n'atteint pas cette limite de détection et $I(x) \neq 0$ quelque soit la valeur de r comme on l'a vu dans la partie 3.3.1. Pour cette raison, on suppose que les valeurs obtenues avec la raie Ar420nm sont plus vraisemblables qu'avec les deux autres transitions. On va donc utiliser cette raie pour toutes les mesures sur des plasmas d'argon par la suite.

L'erreur numérique sur l'inversion d'Abel ne permet pas d'interpréter l'ensemble des résultats. Même en supposant que les mesures sont très peu bruitées, ce qui est discutable, on ne peut pas analyser la partie de la courbe $T(r)$ pour $r > 10\text{mm}$. Cependant, il est important de pouvoir détecter du rayonnement même dans les zones où l'inversion d'Abel ne permet pas d'interprétation car les valeurs au centre du plasma après inversion dépendent en partie des mesures au bord.

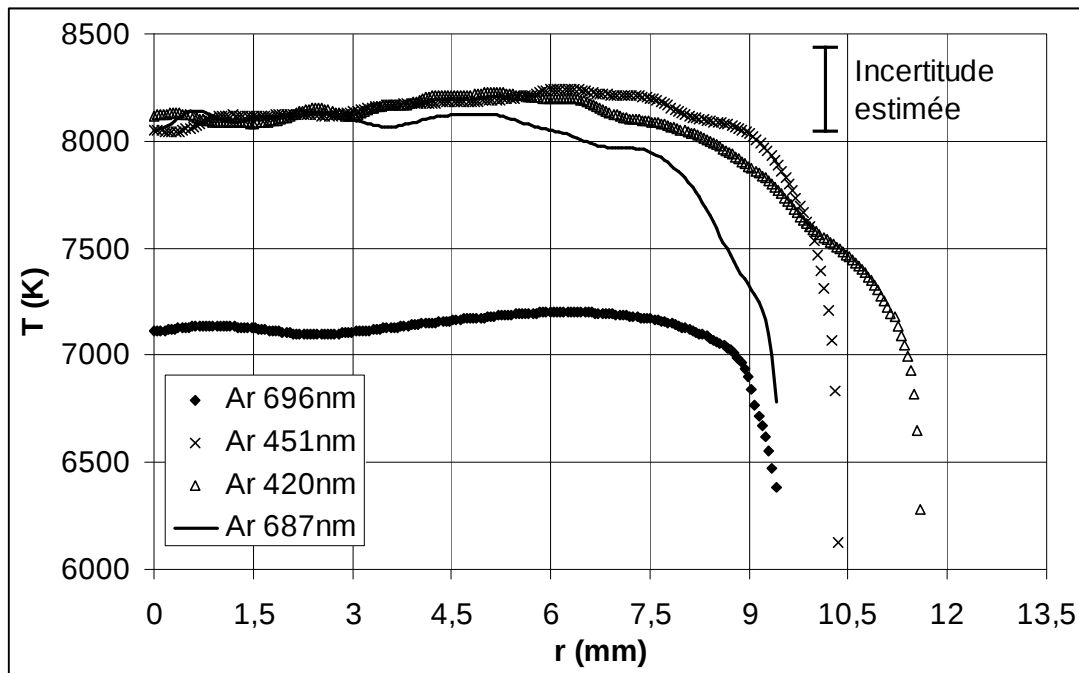


Figure VI-21 : température mesurée en $z = 0,5\text{mm}$ avec 4 raies de l'argon.

4.1.2. Mesures de températures en fonction de r et z

Des mesures de températures ont été effectuées en relevant l'émissivité de la raie Ar420nm à différentes cotes z . Pour chaque cote, un balayage latéral a été fait pour obtenir des profils radiaux de températures. Les cotes choisies pour ces mesures correspondent aux espaces entre les spires pour les valeurs négatives de z plus une mesure 0,5mm au dessus du sommet de l'inducteur. L'inducteur étant de constitué de 5 spires, 4 cotes z négatives ont été choisies ($z = -6,5\text{mm}$, $z = -13,5\text{mm}$, $z = -20,5\text{mm}$, $z = -27,5\text{mm}$) en plus de la cote $z = 0,5\text{mm}$. Le choix de ces positions vient de la nécessité de valider les modèles numériques développés au laboratoire et le modèle du rayonnement présenté ici (voire chapitre III.). On a donc choisi de réaliser des mesures dans la zone sensible pour les modèles numériques, c'est-à-dire la zone de couplage (de $z = 0$ à $z = -33\text{mm}$).

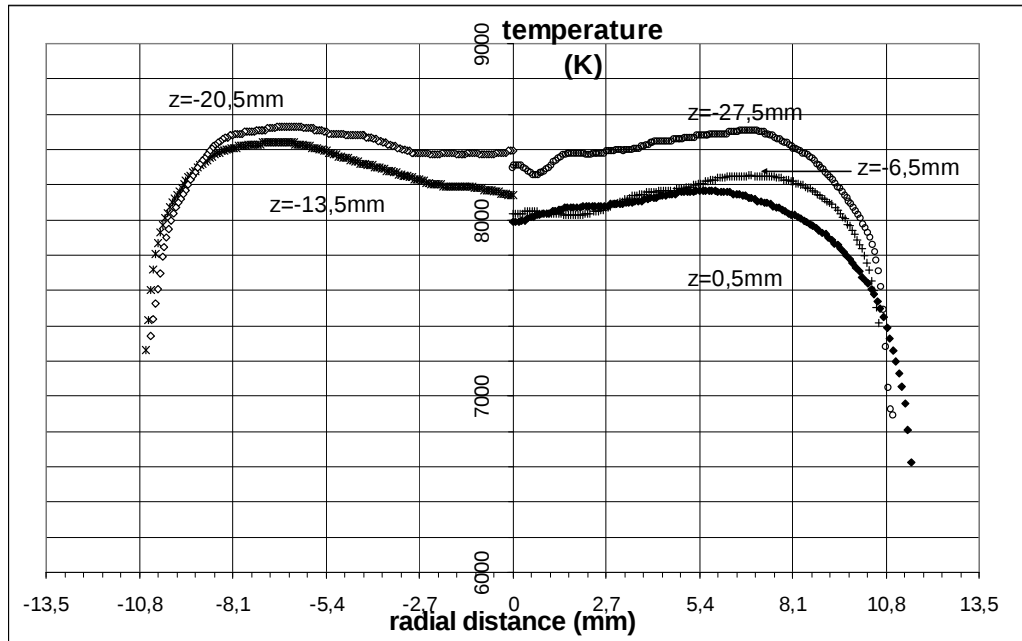


Figure VI-22 : mesures de températures réalisées par la méthode de l'intensité absolue sur la raie Ar420nm en fonction de la position radiale et à différentes valeurs de z.

Les différentes mesures réalisées sur la raie Ar 420nm sont assez homogènes entre elles. Les profils de températures présentent une double bosse ce qui indique la présence de la zone de couplage aux alentours de $r = 7$ mm quelque soit la valeur de z . Pour toutes les cotes, la chute température est amorcée à $r = 8$ mm, ce qui indique que le couplage est limité à une zone assez éloignée des parois.

Le profil de température reste relativement homogène pour $z < -6,5$ mm, soit la partie amont de la bobine. La température semble chuter pour les plus grandes valeurs de z , ce qui semble indiquer que le couplage a lieu majoritairement sur les premiers cm de la bobine.

Ces résultats sur la position de la zone de couplage et sur la valeur de la température dans la zone centrale du plasma fournissent des informations très utiles pour la validation des simulations. En revanche, il est difficile de se baser sur ces résultats pour déterminer le profil exact de température entre la paroi et la zone de couplage.

4.2. Torche procédé

4.2.1. Mesures en argon pur

Lors des mesures sur la torche de purification, on s'est intéressé à l'effet du débit injecteur sur les profils de température. Le tube extérieur de la torche de purification étant une cage froide en cuivre, il n'est pas possible de réaliser des mesures dans la zone de couplage. On s'est donc placé à 1 cm en aval de la cage froide. Pour les différences mesures, on a maintenu une puissance constante et des débits (intermédiaire et extérieur) constants. Le débit injecteur ainsi que la position de l'injecteur par rapport à la bobine sont les paramètres variables de cette partie de l'étude. Ces données sont rappelées dans le Tableau VI-7.

Tableau VI-7 : paramètres expérimentaux fixes pendant les expériences sur la torche de purification.

Q_1 (l/min)	83,3
Q_2 (l/min)	3,4
Q_3 (l/min)	variable
$P(W)$	28000
Gaz injecté	Ar
F (MHz)	27,440
Pression (atm)	1

Deux positions de l'injecteur ont été étudiées. D'abord une position dite 'haute', où l'injecteur est au niveau de l'amont de la bobine. Ce cas de figure a pour avantage d'être plus facilement reproductible numériquement. La deuxième est dite position 'basse' et dans ce cas l'extrémité de l'injecteur est située à peu près au milieu de la bobine. Ceci correspond plus au fonctionnement de la torche lors de la purification mais le modèle est plus difficile à faire converger. La Figure VI-22 représente ces deux positions dans la torche de 40 mm.

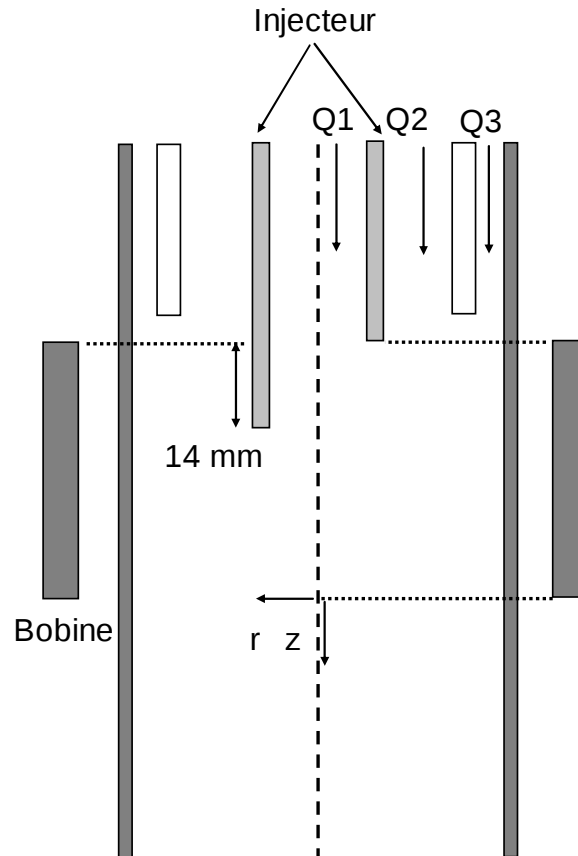


Figure VI-23 : torche de purification avec l'injecteur en position basse (gauche) et en position haute (droite).

Puisqu'on mesure la température en aval de la cage froide, le plasma n'est pas confiné dans un tube de taille connue comme c'était le cas sur la torche d'analyse avec le tube extérieur en quartz. Le plasma rayonne dans toute l'enceinte, ce qui donne un bruit de fond dû aux réflexions sur les parois du réacteur. Pour chaque mesure on détermine ce bruit de fond en visant loin de la source plasma (mais toujours dans l'axe de la plaque en graphite) à l'aide du miroir rotatif. On va ensuite corriger toutes les mesures de la valeur de ce bruit de fond. L'étendue spatiale est donc définie par la zone où l'on a $I(x) \neq 0$.

Les mesures de températures sont faites à l'aide de la raie Ar 420nm (Figure VI-24).

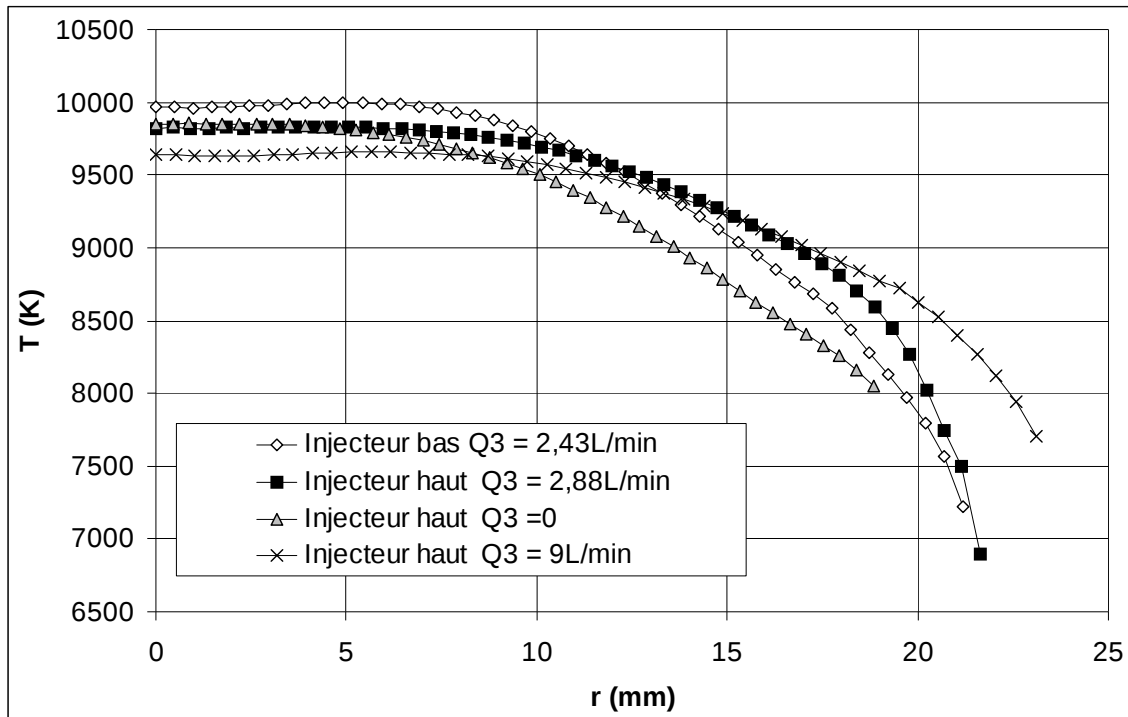


Figure VI-24 : mesure de température sur la torche procédé à partir de la raie Ar 420nm pour différents débits et positions de l'injecteur.

Les températures obtenues sur la torche procédé, en aval de la cage froide, sont supérieures à ce qu'on a mesuré dans la zone de couplage sur une torche d'analyse. Ceci s'explique par la densité de puissance induite qui est nécessairement plus importante lorsqu'on couple 28kW dans une torche de 40mm que quand on couple 1kW dans une torche de 27mm. En première approximation, étant donné le volume des zones de couplage et les puissances mises en jeu, on peut estimer que la densité de puissance Joule est 10 fois plus importante dans une torche procédé que dans une torche d'analyse, ce qui implique que la température soit plus élevée dans la torche de 40mm.

En analysant les courbes correspondant aux trois valeurs de débit central utilisées avec l'injecteur en position haute ($Q3 = 0, 2,43\text{L/min}$ et 9L/min), il apparaît que l'effet du débit injecteur est à la fois de refroidir la partie centrale du plasma et d'élargir la zone plasma. Plus on augmente le débit injecteur, plus la zone sur laquelle on observe une intensité lumineuse supérieure au bruit de fond est grande. L'injecteur en position basse semble également refroidir et élargir le plasma.

4.2.2. Mesures en argon-oxygène

Afin de réaliser des mesures dans des conditions plus proches de celles utilisées pour la purification du silicium, on a introduit de l'oxygène dans le plasma.

En général, l'oxygène est injecté dans le réacteur par un des tubes, les autres débits n'étant constitué que d'argon. Pour simuler une telle configuration, on a besoin d'un modèle de diffusion de l'oxygène dans l'argon car la composition du gaz à l'entrée de la torche n'est pas homogène. Le sujet de cette étude n'étant pas la démixtion, ou la diffusion des espèces issues de l'oxygène dans l'argon, on a utilisé un mélange homogène constitué de 95% d'argon et de 5% d' O_2 molaire. Le même mélange est injecté dans les différents tubes de la torche. De cette manière, on peut supposer que la concentration est celle donnée l'équilibre

thermodynamique, calculé ici par le code T&Twinner (chapitre III). Cela revient à négliger la démixture.

Afin de vérifier, au moins en partie cette hypothèse, on a mesuré la température, pour chaque jeu de paramètres, avec une raie d'argon (Ar420nm) et un multiplet de l'oxygène (O437nm, Tableau VI-8). Dans l'hypothèse de l'ETL et en négligeant la démixture, on doit trouver la même température à partir des raies d'argon et des raies d'oxygène.

Ce multiplet de l'oxygène a été choisi car il proche de la raie d'argon dans le spectre, ce qui permet d'avoir sensiblement la même réponse du photomultiplicateur (et donc le même facteur de conversion pour l'intensité absolue). Ensuite, d'après nos calculs de spectre, le multiplet n'est pas absorbé. Enfin il n'y pas de raie d'argon chevauchant le multiplet ce qui pourrait compliquer fortement le calcul des densités d'état excité.

Tableau VI-8 : données spectroscopiques pour le multiplet O437nm.

λ_0 (nm)	A_{ul} (s^{-1})	$\Delta A_{ul} / A_{ul}$ (%)	g_u	E_u (eV)	g_l	E_l (eV)
436,819	$7,56 \cdot 10^5$	10	1	12,35891	3	9,521
436,824	$7,59 \cdot 10^5$	10	5	12,35887	3	9,521
436,826	$7,58 \cdot 10^5$	10	3	12,35886	3	9,521

Dans cette partie de l'étude, on s'est intéressé à l'effet de la puissance induite sur la température en sortie de torche.

Tableau VI-9 : paramètres expérimentaux fixes pendant les expériences sur la torche de purification en Argon-O₂.

Q_1 (l/min)	83,3
Q_2 (l/min)	3,4
Q_3 (l/min)	0
P(W)	variable
Gaz injecté	Ar95% O ₂ 5% molaire
F (MHz)	3,4
Pression (atm)	1

Les mesures ont été réalisées pour deux puissances : 28kW et 35,5kW. La Figure VI-25 montre les températures obtenues pour une puissance de 28kW avec un mélange Ar-O₂. On a placé la mesure faite en argon pur, toutes les autres conditions opératoires étant identiques afin de visualiser l'effet de l'oxygène sur le plasma.

Dans le cas du mélange Ar-O₂, la température mesurée sur la raie Ar420nm correspond bien à la mesure faite à l'aide du multiplet O437nm jusqu'à $r = 12$ mm, étant donné l'incertitude expérimentale. Pour $r > 12$ mm, la température observée avec l'oxygène est plus faible. Il est cependant difficile de conclure car $r = 12$ mm correspond à la limite de fiabilité imposée par l'inversion d'Abel. On ne peut donc pas déterminer si cet écart est une erreur numérique ou un effet de démixture (l'oxygène se concentrerait alors dans la zone centrale ?).

En comparant ces résultats à ceux obtenus dans les mêmes conditions en argon pur, il apparaît que l'introduction d'oxygène refroidit un peu le plasma dans sa partie centrale (d'environ 300K) et diminue son rayon (d'environ 20%). Cela est cohérent avec le fait que l'oxygène augmente la conductivité thermique du plasma.

La Figure VI-26 présente les résultats obtenus en Ar-O₂ pour des puissances de 28kW et 35,5kW. Dans chaque cas la mesure avec la raie Ar420nm et le multiplet O437nm est donnée. On observe une augmentation de la température dans la partie centrale et une augmentation du volume du plasma.

Notons que même avec 35,5kW injectés, le plasma est plus petit qu'un plasma d'argon pur de 28kW.

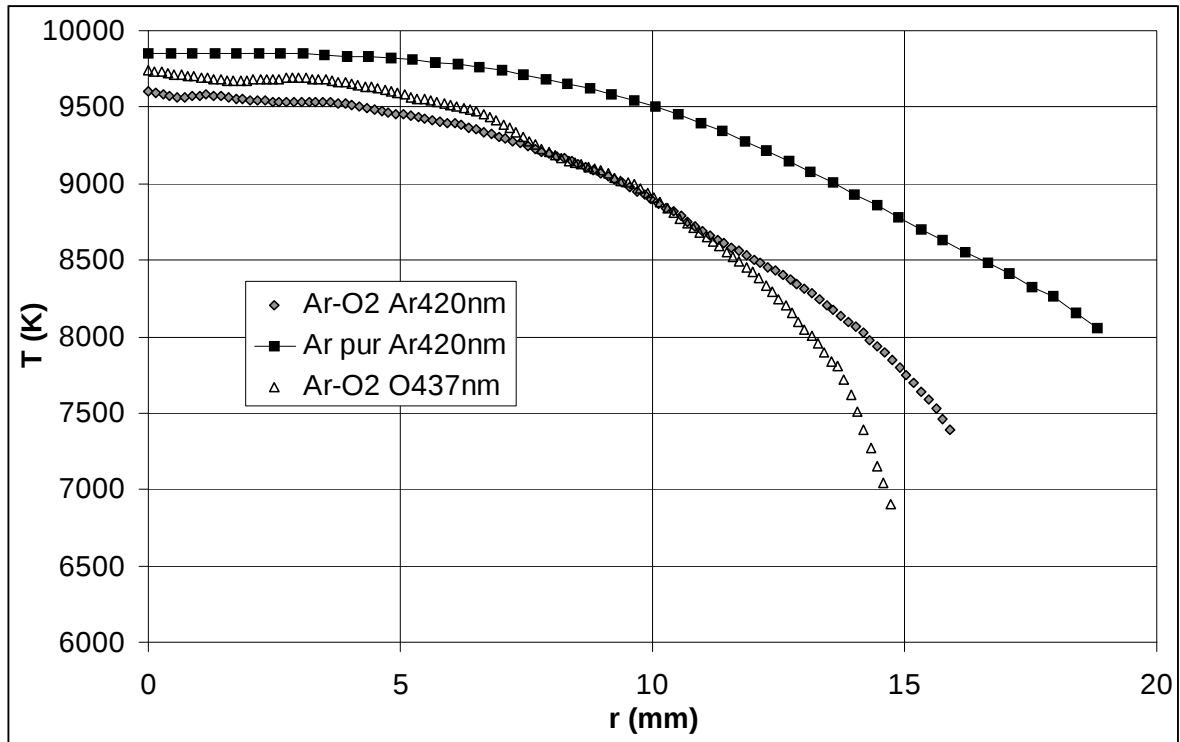


Figure VI-25 : température mesurée sur la torche procédé pour 28kW induits dans un plasma d'argon pur (trait plein) et d'argon-oxygène (marques).

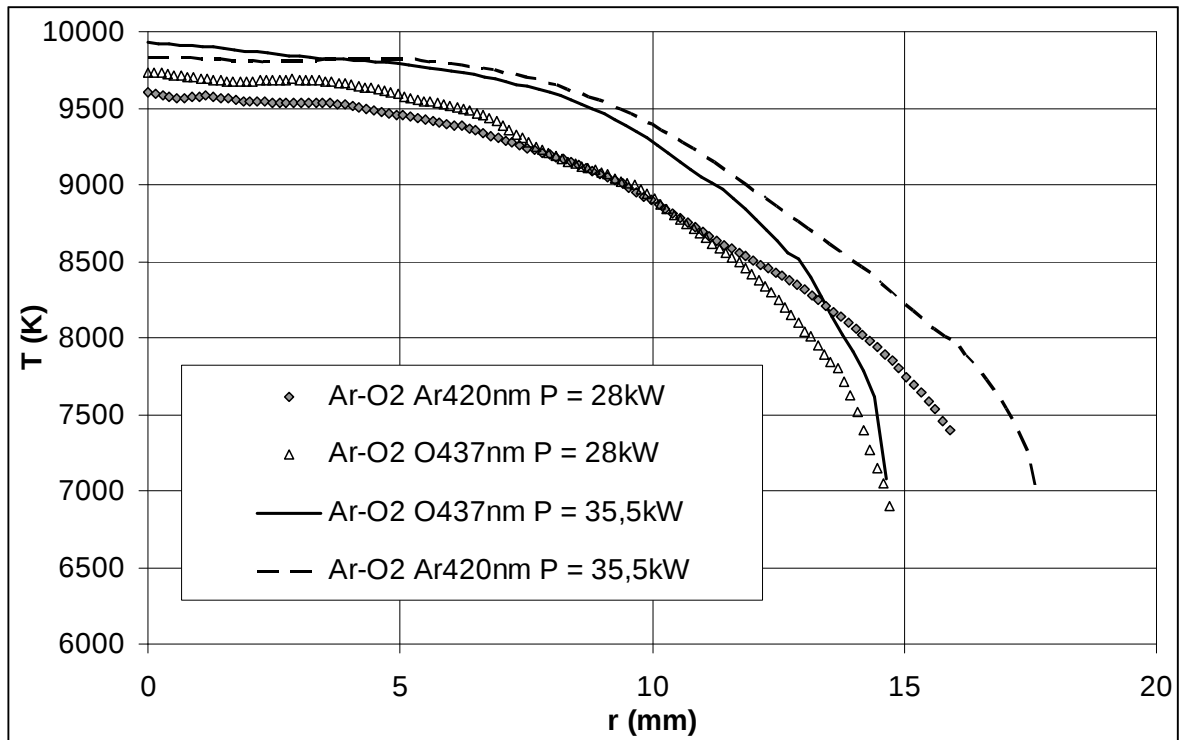


Figure VI-26 : température mesurée sur la torche procédé dans un mélange d'argon-oxygène en fonction de la puissance induite.

Les mesures présentées ici permettront, comme on le verra au dernier chapitre, de déterminer la précision des simulations présentées précédemment. Elles ont pour but d'évaluer la pertinence des hypothèses faites dans les modèles de montrer sur quels axes devront se concentrer les études suivantes afin de les améliorer.

De manière générale, ces mesures sont fiables quand on s'intéresse à la partie centrale du plasma mais très discutables sur la périphérie. On a pu mettre en évidence certaines tendances dans le comportement des plasmas inductifs thermiques d'argon et d'argon oxygène.

Les mesures de température mettent en évidence la zone de couplage pour les mesures à l'intérieur de la bobine tandis que le profil est plus monotone dans le panache. L'augmentation de la puissance induite élargit et réchauffe le plasma. Cet effet est inverse à celui de l'injection d'oxygène (qui refroidit et rétrécit donc le plasma).

La comparaison, dans des plasmas d'Ar-O₂, des mesures sur les raies d'argon et d'oxygène n'a pas permis de mettre en évidence le phénomène de démixtion. Cependant des mesures plus fines pourraient fournir des résultats différents sur ce point. Les différences obtenues entre les raies de ces deux espèces sont dans l'incertitude expérimentale, ce qui ne permet pas de conclure sur l'importance de la démixtion.

Chapitre VII. Confrontation des simulations aux expériences

1. Torches d'analyse

1.1. Expériences menées au laboratoire

On a modélisé numériquement les expériences sur la torche d'analyse (Figure VII-1) présentées dans le chapitre VI. Un article (fourni en annexe C) résume cette partie de l'étude.

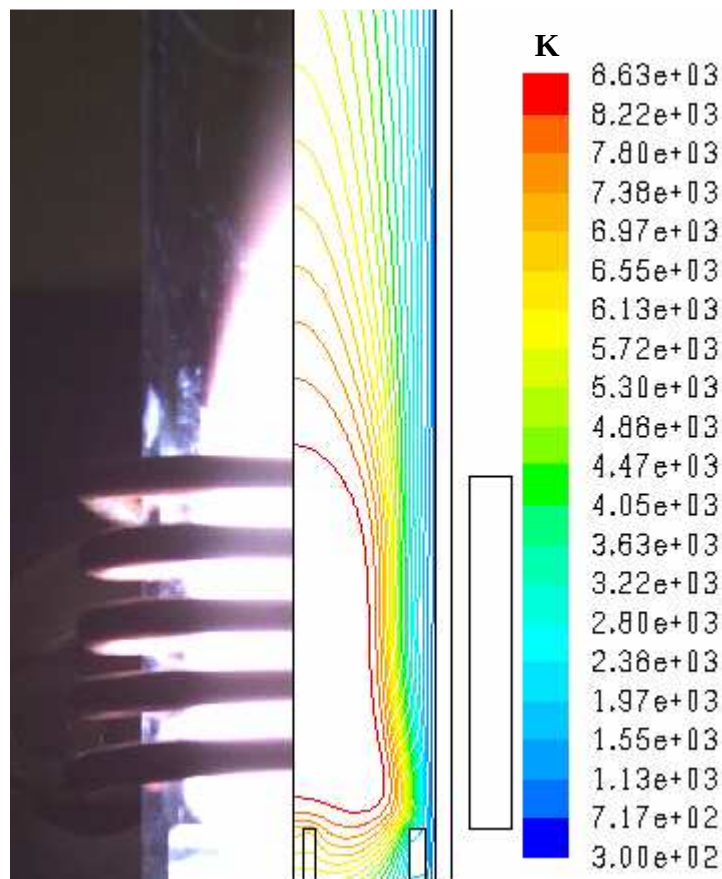


Figure VII-1 : image de l'expérience de mesure de température sur une torche d'analyse et simulation correspondante.

Pour réaliser les calculs correspondant aux expériences du chapitre VI, la principale difficulté est de déterminer la puissance effective cédée au plasma (voire chapitre II.). Comme il ne semble pas exister d'évaluations précises de l'efficacité de l'induction dans un gaz on s'est donné un rendement de couplage de 70% pour la simulation de ces expériences (donc 700W pour la colonne 1 du Tableau VII-1). Le modèle de rayonnement est ici le modèle P1. On rappelle ci-dessous les données relatives à la torche du laboratoire, ainsi que celles de la torche d'analyse de [Regt, 1995], utilisée à la partie suivante.

Tableau VII-1 : paramètres expérimentaux pour les mesures de références utilisées pour la validation des modèles.

	Present set-up	[Regt, 1995]
D_1 (mm)	27	18
D_2 (mm)	24	16
D_3 (mm)	1.2	1.2
Q_1 (L/min)	10	12
Q_2 (L/min)	0	0.3
Q_3 (L/min)	0	0.6
P (W)	1000	1200
F (MHz)	40	100
D_{coil} (mm)	32	26
H_{coil} (mm)	33	15

La comparaison des mesures et des simulations est donnée sur la Figure VII-2 pour la torche d'analyse du laboratoire. Les températures simulées dans la zone centrale du plasma sont en bon accord avec nos mesures (étant donnée l'incertitude expérimentale) pour toutes les valeurs de z même si des l'écart s'accroît lorsqu'on s'approche de l'aval de la bobine.

La partie externe du plasma en revanche est beaucoup moins bien reproduite par nos simulations. Même si l'erreur numérique liée à l'inversion d'Abel limite la comparaison aux valeurs de $r < 10\text{mm}$, celle-ci ne peut pas expliquer l'ensemble des différences que l'on observe.

Pour toutes les valeurs de z , la zone de couplage est trop près du centre et le plasma est trop fin. Le trop fort confinement du plasma pourrait aussi expliquer pourquoi dans la partie centrale la température simulée est supérieure à celle mesurée, même si ces écarts restent acceptables. En effet, en maintenant la zone de couplage près de l'axe du plasma, on confine aussi la puissance Joule et donc la densité volumique de chauffage va augmenter pour maintenir la puissance totale fournie au plasma. Ceci a pour effet d'augmenter la température dans les simulations. Cet effet semble plus important dans la partie aval du plasma ($z = 0,5\text{mm}$ et $z = -6,5\text{mm}$).

Une manière d'améliorer les résultats des simulations serait d'augmenter la puissance injectée, ce qui a pour effet de dilater le plasma (Figure V-8). Cependant, même en supposant un rendement de couplage de 1 (i.e. toute la puissance de l'étage continu du générateur est envoyée au plasma), ce qui est très peu crédible, le plasma simulé est toujours trop fin et la température près de l'axe est toujours légèrement surestimée par les simulations. On doit chercher la cause de ces écarts ailleurs que dans la puissance d'alimentation.

Notons par ailleurs que la méthode de traitement des données présentée sur la Figure VI-14 (b), consistant en une troncature des données en présence de réflexions parasites donnerait une meilleure corrélation entre calculs et expériences. Cependant, une telle démarche est difficile à justifier dans la mesure où les réflexions parasites n'apparaissent pas clairement sur les données brutes utilisées pour produire la Figure VII-2. L'utiliser reviendrait à supposer que les mesures au bord du plasma sont systématiquement bruitées, ce qui n'est pas évident.

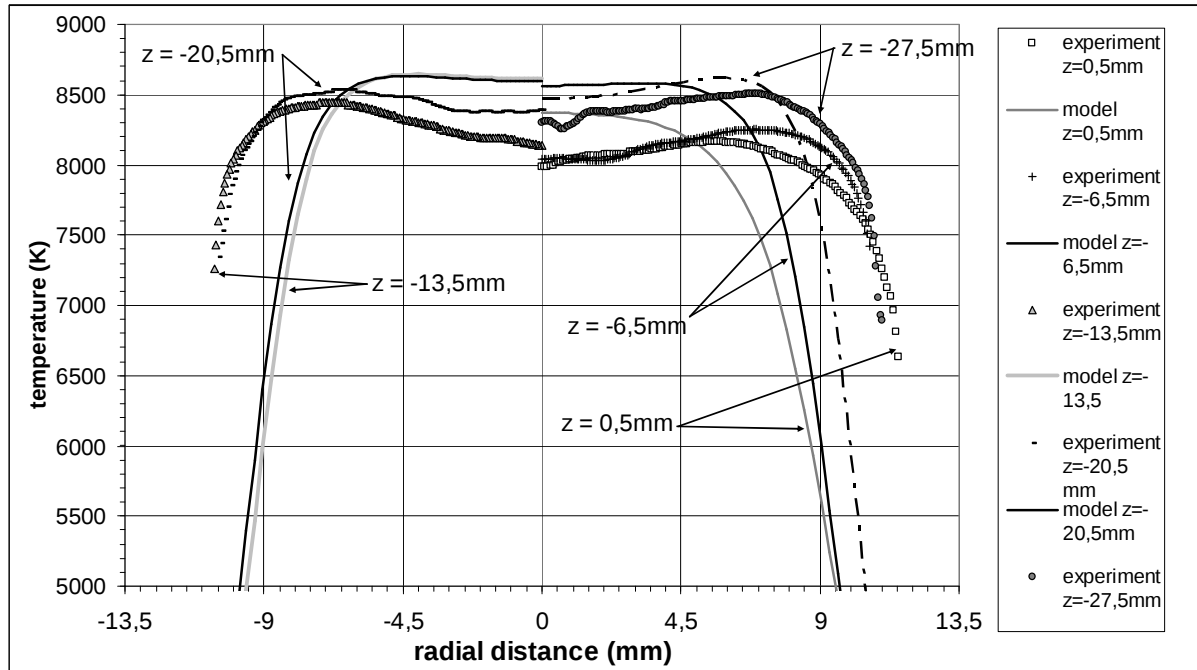


Figure VII-2 : comparaison des expériences aux simulations dans une torche d'analyse.

1.2. Expérience de référence de la littérature

Afin d'obtenir plus d'information sur la validité des modèles présentés au cours de cette étude, on a également reproduit certaines expériences de la littérature. On s'est intéressé aux travaux de [Regt, 1995].

Les mesures de températures publiées par [Regt, 1995] n'utilisent pas la technique OES. Il s'agit de dispersion Rayleigh (dispersion des photons par d'autres photons ou des particules électromagnétique de taille inférieure à la longueur d'onde) et Thompson (dispersion des photons par des particules chargées) sur les électrons du plasma qui permettent d'évaluer la température électronique. Nos simulations faisant l'hypothèse de l'ETL, on n'y distingue pas l'énergie cinétique moyenne des lourds et des électrons et on va comparer les mesures de températures électroniques directement aux températures simulées. Ces mesures ont été réalisées en aval de la bobine (alc dans [Regt, 1995] pour above load coil). Les données publiées couvrent à la fois la direction radiale et la direction axiale. Le Tableau VII-1 rappelle les paramètres expérimentaux introduits dans les simulations afin de reproduire les mesures publiées. Les résultats de ces simulations sont donnés sur la Figure VII-3.

Pour le calcul correspondant aux expériences de [Regt, 1995], on a représenté la température qui est notre grandeur de validation et la puissance Joule car c'est un paramètre important pour représenter ce plasma induit à très haute fréquence (100MHz au lieu de 40MHz pour la torche d'analyse du laboratoire). Cette très haute fréquence nécessite un maillage plus fin et pose des problèmes de convergence des calculs. En outre, l'hypothèse de l'ETL repose notamment sur le fait que les transferts d'énergie entre les électrons excités par le champ et les lourds sont complets dans le temps d'une alternance. Cette hypothèse est d'autant plus discutable que la fréquence d'induction est élevée (le temps d'une alternance diminue quand la fréquence augmente). La fréquence d'induction élevée sur ce calcul rend la zone de couplage (ou l'épaisseur de peau) plus fine. En conséquence, les densités de puissance Joule sont plus importantes (Figure VII-3).

Les comparaisons des mesures radiales et axiales de [Regt, 1995] avec nos calculs sont fournies sur la Figure VII-4 et la Figure VII-5 respectivement. Sur cette dernière on a également rapporté les mesures sur l'axe de symétrie du plasma du laboratoire présentée au paragraphe précédent.

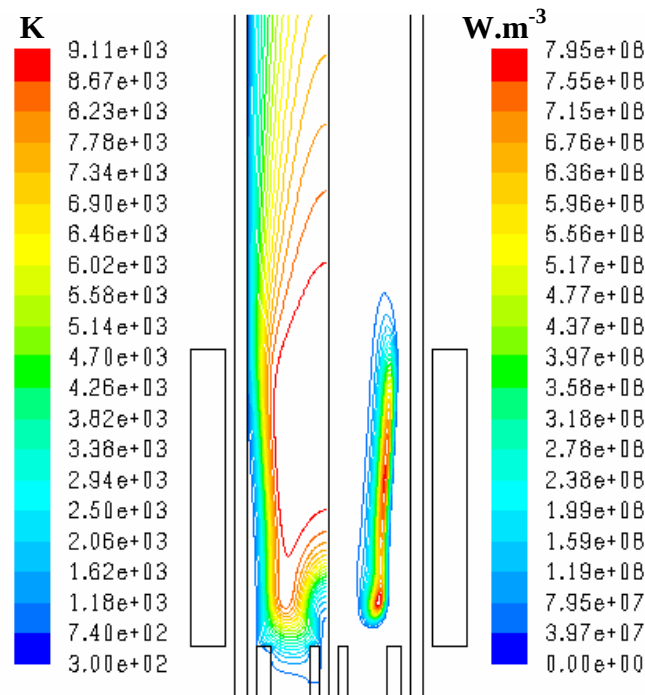


Figure VII-3 : résultats de la simulation de l'expérience de [Regt, 1995] : température (gauche) et puissance Joule (droite)

Les simulations prédisent la bonne gamme de température dans le plasma mais la forme du profil ne correspond pas. Le maximum de température est atteint, d'après les mesures pour $r \approx 4,5\text{mm}$ (ce qui correspond à la zone de couplage) alors que les simulations montrent un maximum au niveau de l'axe de symétrie.

A $z = 7\text{mm}$, la zone chaude du plasma semble trop fine dans nos calculs et la température au centre est surestimée par rapport aux mesures. Ceci pourrait provenir d'une mauvaise estimation de la position de la zone de couplage. Nous reviendrons sur ce point par la suite. Une autre possibilité est que les transferts de chaleur par conduction soient surévalués. Cela aurait pour conséquence d'uniformiser le profil de température. En effet en augmentant les transferts thermiques, la couche froide de gaz autour du plasma va se dilater trop rapidement, confinant ainsi le plasma dans la partie centrale de l'écoulement et augmentant par là même la température au centre.

En $z = 13\text{mm}$ les différences sont atténuées. A cette position, l'effet de la position de la zone de couplage est moins fort, ce qui pourrait expliquer pourquoi la zone chaude semble avoir la bonne taille, contrairement à ce qui est observé pour $z = 7\text{mm}$. La forme du profil n'est en revanche pas correctement reproduite ici aussi.

Pour les mesures axiales, on obtient de bons résultats en reproduisant les expériences de [Regt, 1995] pour $r = 4,5\text{mm}$ et z compris entre 7mm et 22mm . Les mesures réalisées sur l'axe du plasma au laboratoire montrent également que la température au centre du plasma est surestimée dans nos calculs, même si l'écart est faible. De manière générale, l'accord est meilleur lorsqu'on travaille à 40MHz qu'à 100MHz . Cette constatation amène à remettre en question la description de l'effet de peau électromagnétique dans les simulations.

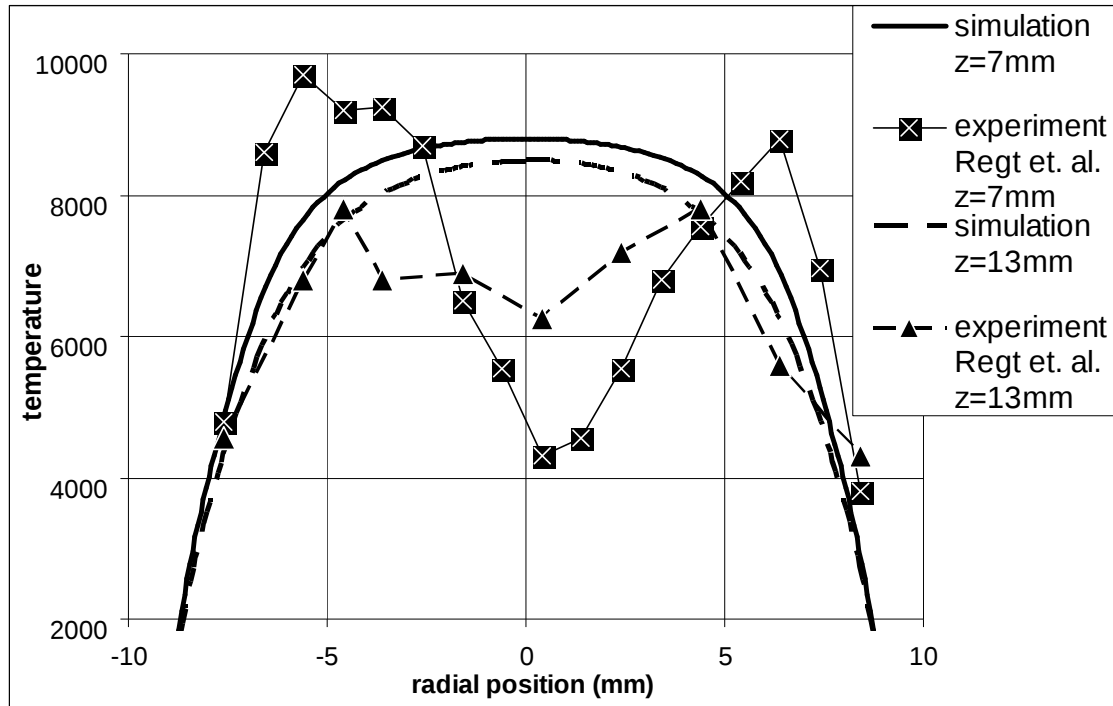


Figure VII-4 : radial temperature measurements by Regt et. al. and corresponding simulation.

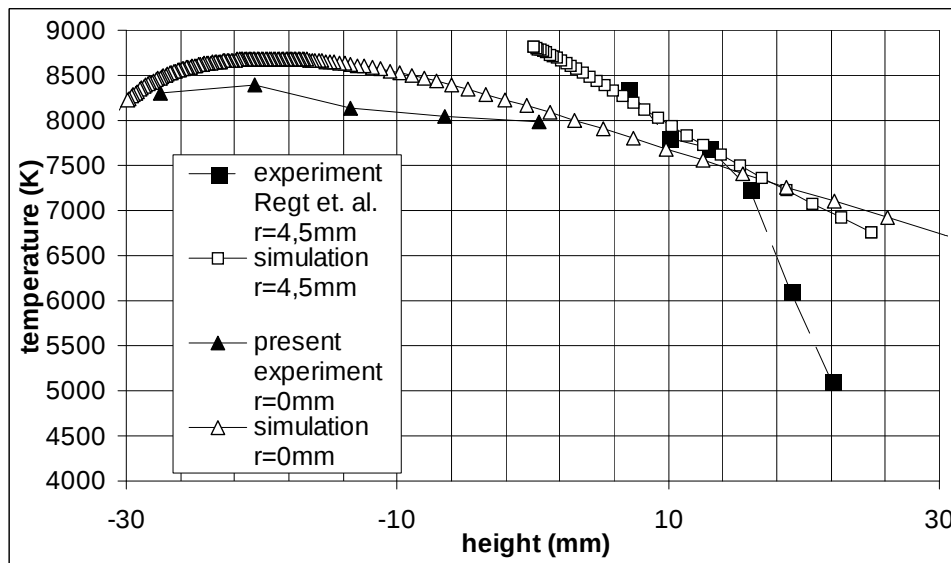


Figure VII-5 : axial temperature measurements and corresponding simulation for Regt et. al.'s set up ($r=4.5\text{mm}$) and Michaud's ($r=0\text{mm}$).

Afin d'expliquer les écarts entre les simulations et les mesures, on a envisagé différentes possibilités. L'hypothèse la plus incertaine pour les simulations est l'ETL, qui a un effet important sur les différentes propriétés de transport du plasma. On a donc réalisé une étude paramétrique en modifiant les propriétés de transport afin de déterminer les paramètres sensibles du modèle. Il est apparu que les calculs sont sensibles principalement à la conductivité électrique et à la conductivité thermique. La Figure VII-6 montre les résultats significatifs de cette étude. Le cas expérimental étudié est une mesure sur la torche d'analyse du laboratoire pour laquelle les conditions opératoires sont bien connues.

De manière générale, les différentes simulations prédisent la bonne température au centre du plasma. On s'intéresse donc plus particulièrement à la forme du profil de température. En utilisant les propriétés de transport calculées à l'ETL, on obtient une zone trop fine et légèrement trop chaude comme on l'a vu précédemment (Figure VII-6, (a)).

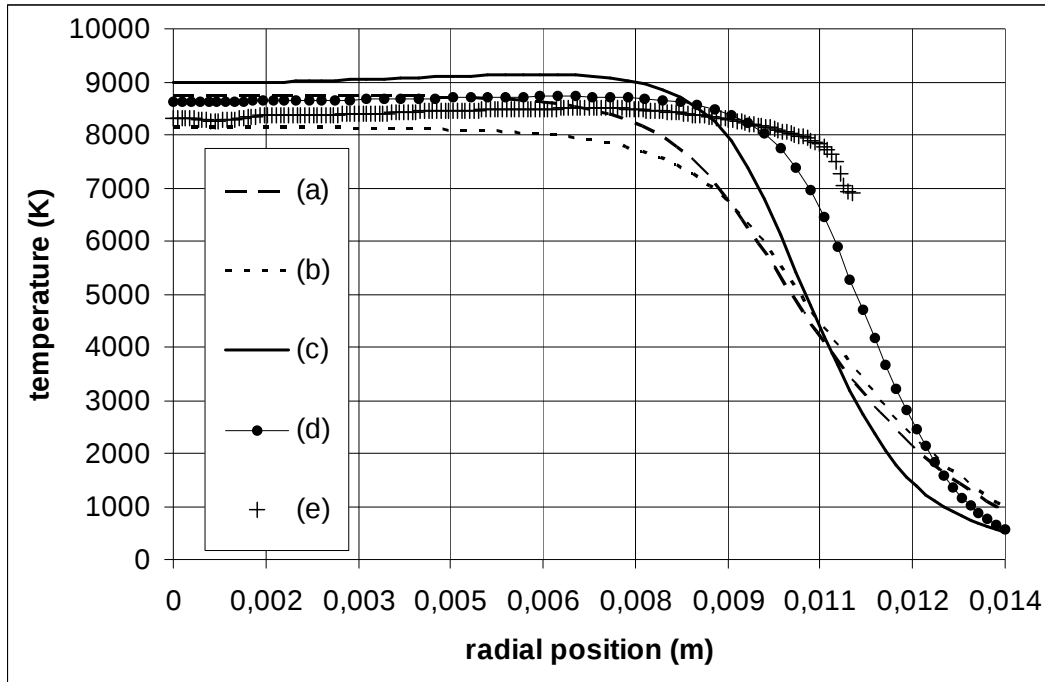


Figure VII-6 : Calculated radial temperature profiles at $z = -3\text{mm}$ for different simulation conditions:

- (a) LTE transport properties
- (b) Higher electrical conductivity
- (c) Lower thermal conductivity
- (d) Higher electrical conductivity and lower thermal conductivity.
- (e) Experiment with corresponding error bars.

Dans la zone de couplage règne un fort champ électrique qui permet aux électrons d'avoir une énergie cinétique moyenne supérieure à celle des lourds. Un supposant que cet écart n'est pas négligeable (contrairement à ce que suppose l'ETL), la plus grande énergie cinétique des électrons va déplacer l'équilibre de Saha (II.9) de manière à augmenter la densité électronique. Plus d'électrons dans la peau électromagnétique signifie que le champ dans la partie interne du plasma est plus écranté et que la conductivité électrique y est plus faible, et donc que le couplage diminue plus rapidement quand on s'approche de l'axe du plasma. Dans ce cas, l'hypothèse de l'ETL aurait pour effet de prédire un couplage dans des zones où le champ serait en réalité écranté. En résumé, si l'hypothèse de l'ETL n'est pas correcte dans la zone de couplage, on va sous estimer la conductivité électrique dans la peau électromagnétique et surestimer le couplage dans la partie interne du plasma.

Afin d'évaluer cette nouvelle hypothèse, on s'est basé sur des études numériques utilisant un modèle à deux températures publiées par [Mostaghimi, 1985] et [Mostaghimi, 1987]. Ces travaux ont mis en évidence un écart d'énergie cinétique entre les électrons et les lourds dans la zone de couplage correspondant à environ 500K. Afin de vérifier l'effet de cet écart, on a utilisé la conductivité électrique obtenue 1000K au-dessus de la température des lourds prédite par nos modèles (Figure VII-6, (b)). Les résultats montrent un élargissement de la zone chaude et une diminution de la température près de l'axe de symétrie. Cette perturbation de la conductivité électrique va donc dans le bon sens. Ces différences ne sont cependant pas assez importantes pour expliquer les écarts obtenus avec les mesures.

On a ensuite étudié l'effet de la conductivité thermique du plasma. La courbe (c) sur la Figure VII-6 montre le profil de température obtenu en divisant par deux la conductivité thermique. La température au centre du plasma augmente, ainsi que la taille de la zone chaude. L'effet n'est pas non plus suffisant pour rendre compte de l'ensemble des écarts avec l'expérience.

La courbe (d) de cette même figure montre le résultat du calcul combinant les deux modifications. C'est ainsi que l'on obtient le meilleur accord avec les données expérimentales. Il semble donc que l'utilisation de propriétés de transport calculées à l'ETL ne soit pas toujours adaptée lorsqu'on est en présence de forts champs électriques. L'augmentation de conductivité électrique peut s'expliquer par un écart à l'ETL. En revanche, la diminution de conductivité thermique est plus difficile à justifier. En effet, les écarts à l'ETL vont affecter cette propriété de transport à travers la conductivité thermique réactionnelle qui est due aux réactions chimiques. A l'ETL on suppose que les réactions chimiques sont instantanées. La prise en compte de la cinétique chimique met en évidence ([Pelletier, 2006]) une conductivité réactionnelle plus faible. Cependant la part de ce terme dans la conductivité thermique totale est faible en argon pur et ne peut justifier une division par deux de la conductivité thermique.

Il semble juste de dire que les transferts thermiques par conduction sont surestimés dans nos calculs, mais il est difficile de l'expliquer seulement en remettant en cause l'ETL.

Une dernière explication a été envisagée. Les travaux de [Tanaka, 2004] sur les plasmas d'argon hors équilibre chimique ont mis en évidence un phénomène de diffusion radiale des ions Ar^+ (et de chaleur) vers l'extérieur du plasma. Ne pas prendre en compte cette diffusion peut expliquer pourquoi on observe une zone centrale du plasma trop fine et trop chaude.

2. Torches procédé

2.1. Torche procédé 40mm en argon pur

Les expériences en argon pur sur la torche procédé de 40mm présentées au chapitre VI ont été reproduites. Ici aussi le rendement de couplage a été supposé égal à 70%, estimation discutable. La Figure VII-7 montre pour chaque mesure le profil de température calculé dans les mêmes conditions opératoires. On a utilisé le modèle P1 mais les calculs avec la méthode CEN donnent des résultats similaires. Dans ces calculs, la cible de silicium liquide n'est pas reproduite (elle était absente lors des mesures). On a donc gardé le même type de maillage en repoussant la cible plus en aval de l'écoulement et un imposant $T = 300\text{K}$ sur cette paroi..

Pour cette installation de forte puissance, la température calculée est sous-estimée dans toutes les conditions opératoires, contrairement à ce qui a été observé sur les torches d'analyse. L'écart est toutefois faible (500K au centre) et assez proche de l'erreur expérimentale estimée ($\sim 300\text{K}$).

En revanche, la zone chaude est toujours trop fine d'après les simulations. Il apparaît également que les variations de température causées par le débit d'injection ne sont pas reproduites par les calculs (Figure VII-8). Seule l'élévation de température causée par la descente de l'injecteur en position basse est reproduite précisément par la simulation.

L'effet de lissage des variations de température pourrait être en partie causé par la surestimation des transferts par conduction mais ne suffit pas à rendre compte de l'ensemble des écarts constatés. Lorsque le débit d'injection est important ($Q_3 = 9\text{L/min}$), on peut observer à l'œil nu la présence d'un canal froid au centre du plasma, qui apparaît également sur les données brutes (et sur le profil de température dans une moindre mesure). Ce canal froid témoigne du fait que le débit injecté reste confiné dans la partie centrale du plasma et la maintient à une température inférieure. Numériquement, ce canal froid n'a pas pu être reproduit et le débit d'injection est aspiré dans la recirculation présente à la sortie du tube auxiliaire.

Globalement les mêmes remarques peuvent être faites dans ce cas d'étude que pour les torches d'analyse mais les modifications proposées au paragraphe 1.2 ne rendent pas compte de l'ensemble des écarts constatés.

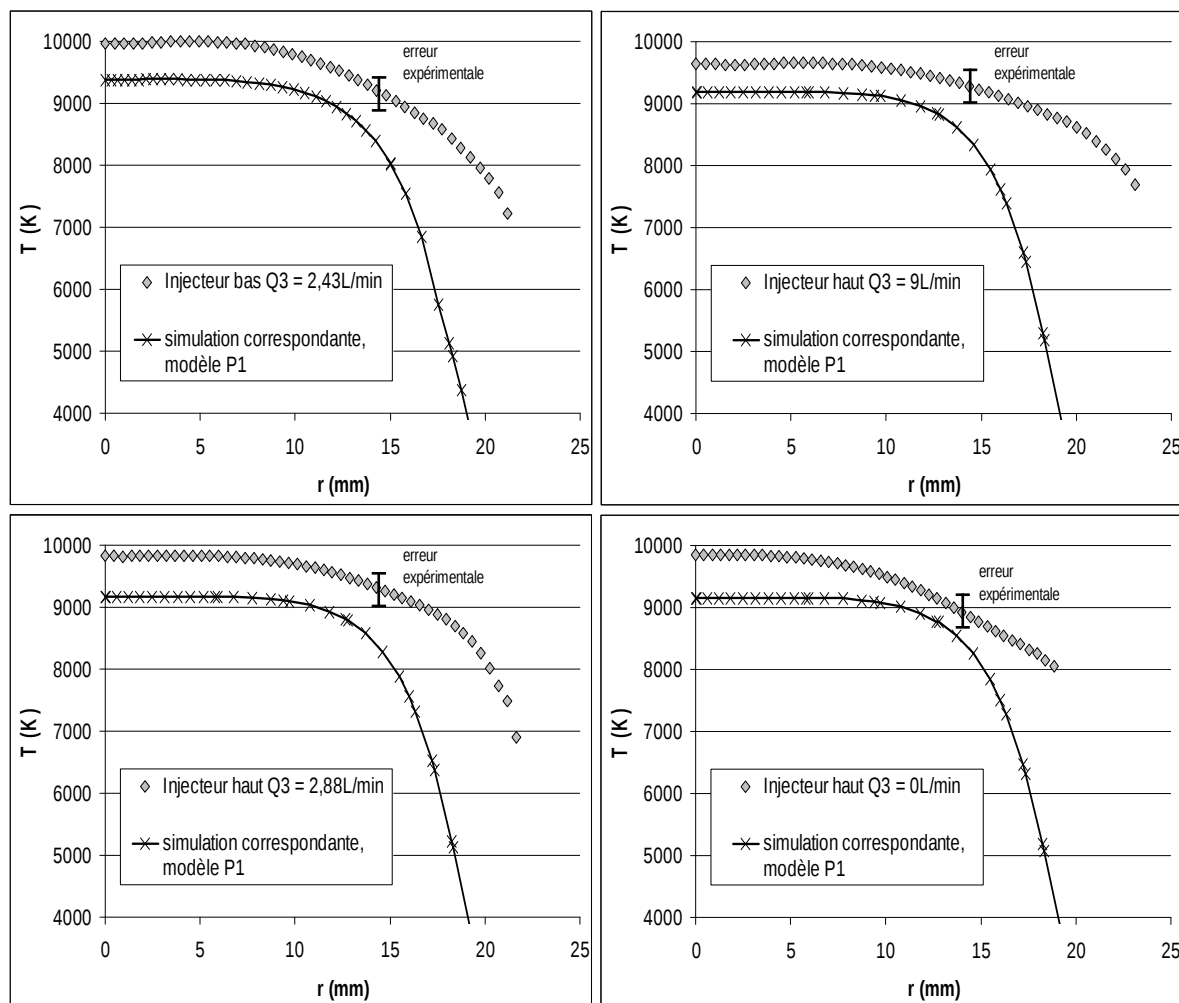


Figure VII-7 : comparaison calcul-expérience pour la torche procédé.

$P_{\text{ind}} = 19600\text{W}$ (soit 28kW expérimentalement), $Q_1 = 80\text{L/min}$, $Q_2 = 3,4\text{L/min}$.

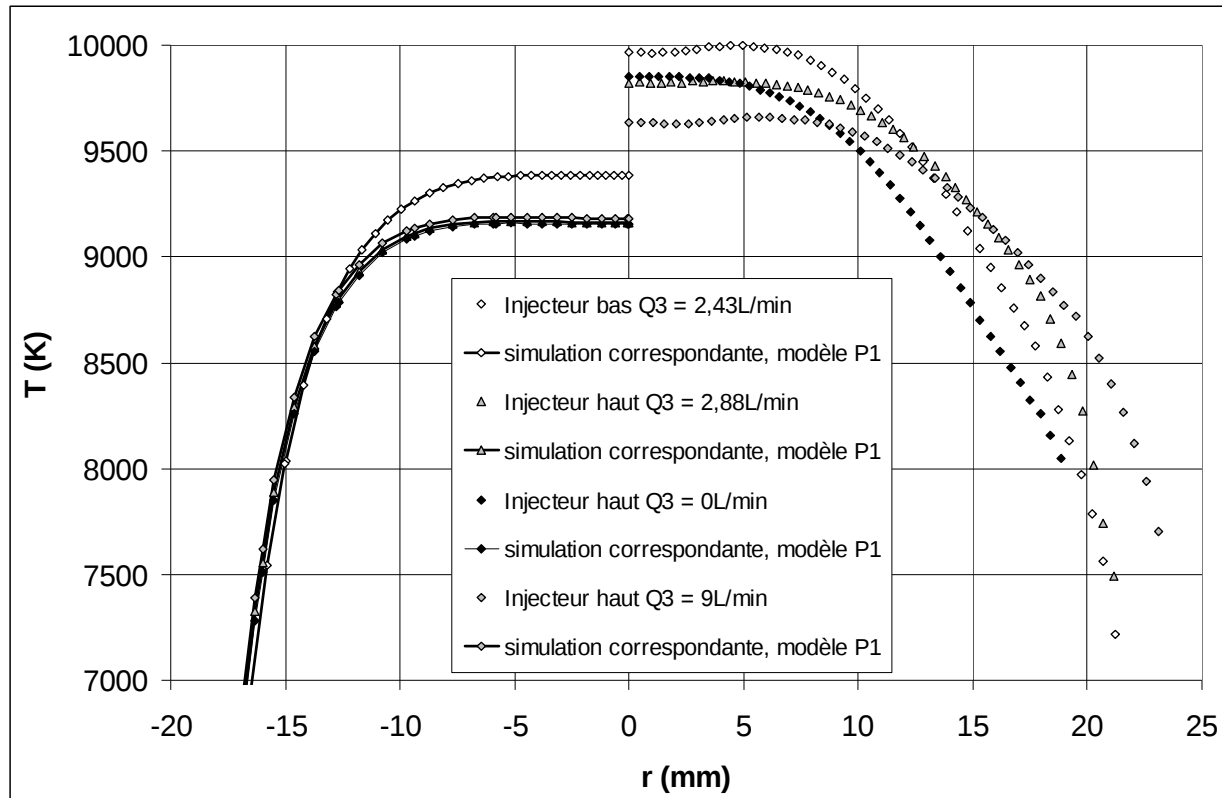


Figure VII-8 : variations avec le débit et la position de l'injecteur des profils de température mesurés (droite) et calculés (gauche) avec le débit et la position de l'injecteur à $z = 51\text{mm}$.

2.2. Torche procédé 40mm en argon-oxygène

Les mesures en argon-oxygène présentées au chapitre VI sur la torche procédé reprennent les conditions opératoires des expériences en argon pur ($Q_3 = 0\text{L/min}$, $Q_2 = 3,4\text{L/min}$, $Q_1 = 80\text{L/min}$), sauf pour la puissance, pour laquelle on s'est placée à 28kW électriques (19600W dans les calculs) et $35,5\text{kW}$ électriques (soit $24,85\text{kW}$ pour les simulations). La Figure VII-9 montre la comparaison pour cette première valeur de la puissance et la Figure VII-10 pour la deuxième.

La température est assez largement sous-estimée dans les calculs, de la même manière qu'en argon pur. L'écart est également plus important (2000K pour le mélange Ar 95%-O₂ 5 % molaire contre 500K en argon pur) et on ne peut plus conclure que le modèle décrit correctement les expériences. Par ailleurs, les deux modèles de rayonnement ne sont plus en accord dans ces conditions. La zone plasma semble trop fine lorsqu'on utilise le CEN alors que pour le modèle P1 le profil a la bonne forme même si la température est trop basse. Cet effet vient probablement du fait que les pertes radiatives sortent automatiquement du plasma avec le modèle CEN alors qu'elles sont transportées et éventuellement réabsorbées avec le modèle P1. On a vu que l'oxygène rendait très important le phénomène d'absorption dans des plasmas thermiques et c'est l'absorption radiative par l'oxygène qui « aplatit » les profils de températures avec le modèle P1.

Le fait que le profil de température ait la bonne forme dans les calculs (bien que la température maximale soit trop faible) semble indiquer que le phénomène d'absorption est bien pris en compte (dans le sens où la fraction du rayonnement piégée dans le plasma est correcte) et que ce serait l'émission qui serait surestimée par nos modèles de rayonnement.

Cette hypothèse est renforcée par le fait que le CEN prédit également une température trop faible et que les deux modèles sont basés sur les mêmes codes de calculs spectroscopiques.

A notre connaissance, aucun résultat de modèle prédisant les pertes radiatives n'a été publiée dans un mélange Ar-O₂ et il est difficile d'investiguer plus avant cette hypothèse.

On peut également remettre en cause les mesures mais une erreur de 2000K est très peu crédible étant donné les luminosités respectives d'un plasma d'argon et d'argon-oxygène. Les températures prédites numériquement sont pratiquement au niveau du seuil de détection du matériel optique pour les calibrations qui ont été faites (voire chapitre VI). Si les modèles prédisaient la bonne température, on observerait une luminosité significative en argon pur et presque rien en ajoutant de l'oxygène, ce qui ne s'est pas produit...

D'autres mesures sur des plasmas d'argon-oxygène pourraient éventuellement fournir des informations supplémentaires sur les phénomènes qui sont mal décrits par nos simulations. Ainsi, on a négligé la démixtion dans les calculs et pour les mesures, et les effets de la diffusion des produits de dissociation de l'O₂ ne sont pas connus. On a également supposé une distribution de Boltzmann des états excités. Un fort déséquilibre chimique pourrait ainsi fausser les mesures, tout comme les calculs.

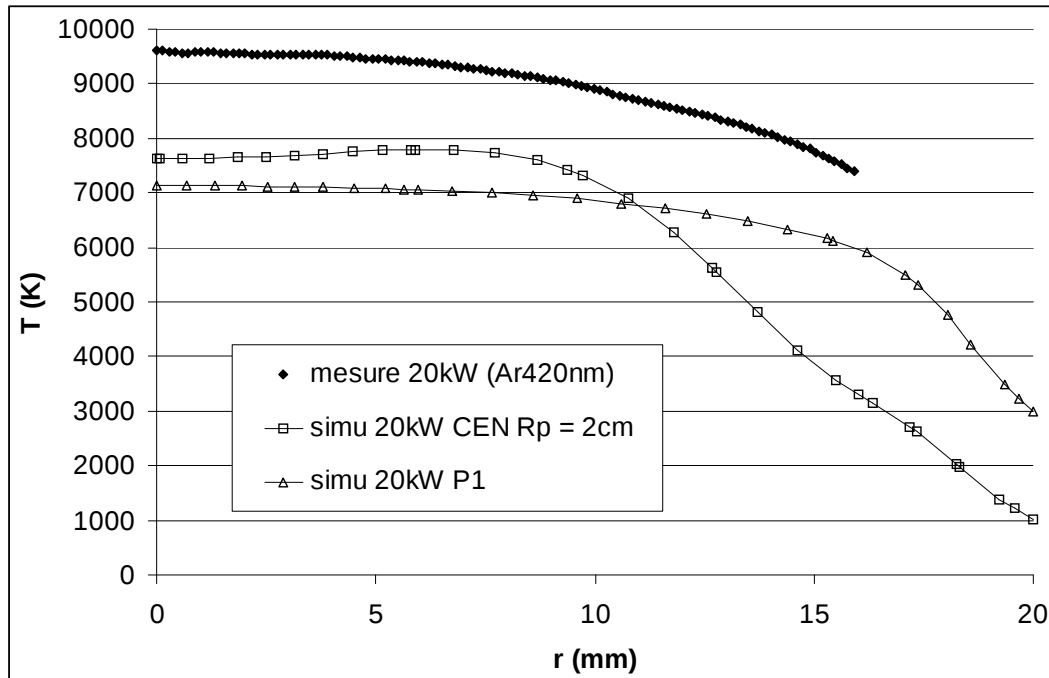


Figure VII-9 : comparaison calcul-expérience dans la torche procédé en argon-oxygène. Injecteur en position haute. $P_{ind} = 19600W$, $Q_1 = 80L/min$, $Q_2 = 3,4L/min$, $Q_3 = 0L/min$.

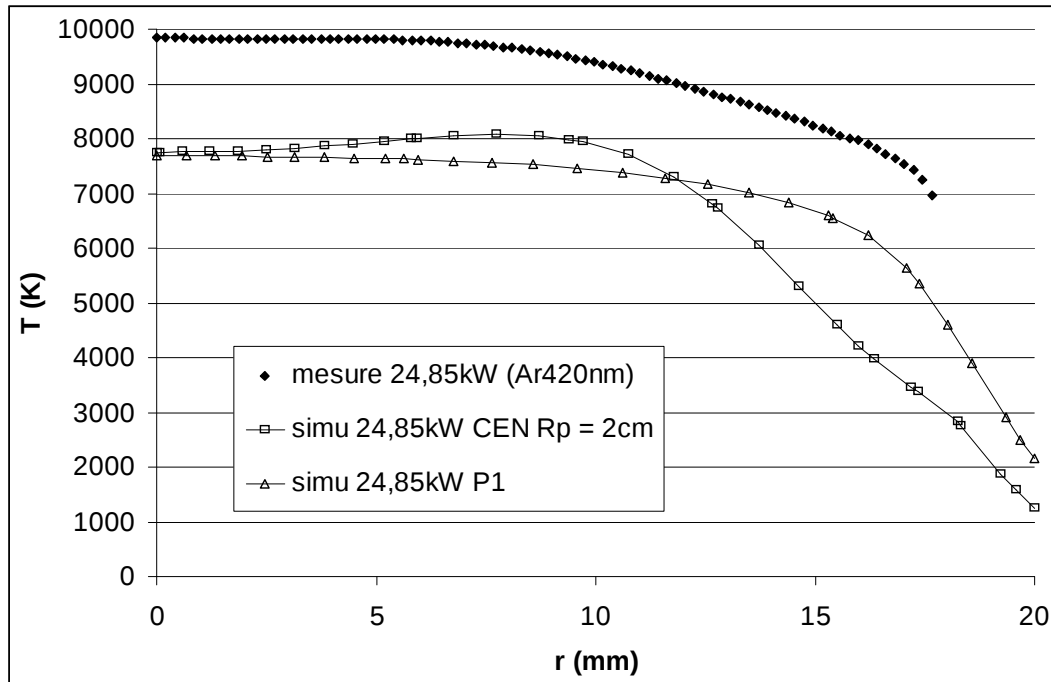


Figure VII-10 : comparaison calcul-expérience dans la torche procédé en argon-oxygène. Injecteur en position haute. $P_{ind} = 24850W$, $Q_1 = 80L/min$, $Q_2 = 3,4L/min$, $Q_3 = 0L/min$.

Cette série de comparaison a bien mis en évidence les qualités et les défauts de nos modèles. On parvient à représenter correctement les températures dans la partie centrale du plasma sur les deux types d'installations en argon pur. La forme des profils est par contre à améliorer et on a pu mettre en évidence le rôle des propriétés de transport dans la forme des profils simulés. Un bon axe d'amélioration des modèles serait probablement de remettre en cause l'utilisation de l'ETL en prenant en compte un excédent d'énergie cinétique des électrons, ou un déséquilibres chimique..

En présence d'oxygène, le problème s'inverse. On obtient des profils de températures ayant la bonne forme avec le modèle P1 mais la température semble largement sous-estimée. La forme des profils de température est déterminée, en argon pur, en bonne partie par les propriétés de transport. Avec l'oxygène, la forme de ce profil tient plus à l'absorption de rayonnement par les zones « tièdes » (5000K à 7000K). Ce phénomène étant assez bien décrit par le modèle P1, cela explique pourquoi la forme des profils est meilleure en présence d'oxygène. En revanche la non prise en compte des phénomènes de démixtion ou de déséquilibre chimique pourraient être la cause des forts écarts de températures observés.

Conclusion

Le premier objectif de ce travail de thèse est de développer un modèle de rayonnement adapté aux plasmas inductifs à pression atmosphériques constitués d'argon, éventuellement mélangés à des gaz réactifs mis en jeu dans un procédé de purification de silicium métallurgique. Le second objectif est d'analyser le fonctionnement d'une torche inductive servant à un procédé de purification de silicium : ce le modèle doit donc s'intégrer aux autres méthodes de simulations développées par le laboratoire pour décrire notamment la thermique, l'écoulement, la chimie et l'électromagnétisme.

Les contraintes imposées à ce modèle de rayonnement sont donc la possibilité de couplage avec la thermique et les temps de calculs (on a privilégié l'étude d'un grand nombre de cas au développement d'un modèle plus précis mais très chronophage). En outre, l'utilisation du logiciel Fluent© imposait de ne pas résoudre plus de 50 équations aux dérivées partielles pour décrire l'électromagnétisme et les transferts radiatifs.

L'hypothèse de l'équilibre thermodynamique local a été faite pour déterminer les propriétés de transport et les concentrations des différentes espèces du plasma (Ar , Ar^+ , O_2 , O , O^+ , e^- , etc....).

On a développé deux modèles de rayonnement et on les a appliqués à des plasmas d'argon pur, puis à un mélange constitué à 95% d'argon et à 5% de O_2 , molaire. Le premier modèle, largement décrit dans la littérature est le CEN. Il est très peu coûteux en temps de calcul mais ne permet pas de décrire précisément les phénomènes d'absorption.

Le second modèle, appelé modèle P1, permet dans sa version spectrale de décrire localement les phénomènes d'émission et d'absorption radiative, et propage l'intensité radiative à l'aide d'une approximation diffusive. Un modèle P1 avec discrétisation fine du spectre d'un plasma, dans un mode de couplage fort avec un code de mécanique des fluides, aboutirait à des calculs très longs et lourds (notre code commercial Fluent ne le permet pas en limitant le nombre d'équations utilisateur à 50). On a donc développé des méthodes pour réduire le nombre de bandes spectrales à traiter. Le modèle spectral de rayonnement est ainsi suffisamment léger pour s'intégrer à des calculs thermo-hydro-électromagnétique de torches ICP.

En remarquant que la méthode CEN est correcte en l'absence d'absorption (épaisseur optique $\tau < 0,1$) et que l'équilibre radiatif est atteint pour $\tau > 250$, on pu réduire les zones du spectre à traiter aux épaisseurs optiques intermédiaires. Ensuite, on a développé une méthode (déjà décrite pour des plasmas isothermes par [Modest, 2003]) permettant de regrouper plusieurs raies du spectre au sein d'un même jeu d'équation du modèle P1, divisant par environ 5 le nombre d'équations à résoudre.

Les deux modèles de rayonnement fonctionnent avec des temps de calcul relativement courts car la majeure partie des opérations est réalisée en amont des simulations qui elles n'utilisent que des fichiers de « propriétés radiatives ». La génération des propriétés radiatives demande de grand temps de calculs pour les modèles car ils reposent tous deux sur un calcul fin du spectre à toutes les températures considérées (de 300K à 12000K pour des plasmas ICP à pression atmosphérique). D'autres modèles de rayonnement (celui des caractéristiques partielles notamment) font également le choix du calcul très long fichiers de propriétés radiatives afin de pouvoir alléger les modèles dans les simulations qui font généralement

intervenir de nombreuses autres équations (thermique, écoulement, chimie, électromagnétisme, turbulence, etc....).

Afin de fournir une base d'évaluation de nos simulations, on a réalisé plusieurs séries d'expériences. D'abord sur des torches d'analyse avec de l'argon pur car les conditions expérimentales sont mieux maîtrisées sur des systèmes de faible puissance et parce que la littérature y afférent est plus abondante. On a ainsi pu mettre au point la méthode de mesure de la température (mesure par intensité absolue d'une raie) et la comparer aux résultats d'autres équipes sur des installations comparables. On a ensuite réalisé le même type de mesures sur une torche de purification de plus grande puissance avec la même méthode d'évaluation de la température. Lors de ces expériences on a utilisé de l'argon pur puis le mélange Ar-O₂ décrit précédemment. On a ainsi évalué l'influence du débit d'injection et de la puissance induite sur le profil de température en sortie de torche.

En confrontant les mesures et les simulations on a pu mettre en évidence certaines tendances qui nous semblent significatives.

D'abord, le phénomène d'absorption est relativement peu important dans un plasma d'argon pur et les deux modèles de rayonnement donnent des champs de températures très voisins pour les deux types de torches considérées. La méthode CEN semble donc suffisante pour décrire des plasmas d'argon pur. Par ailleurs, il est apparu que le rayonnement est un mécanisme de refroidissement mineur dans les torches d'analyses en argon pur (moins de 10% de la puissance injectée est rayonnée hors du plasma) alors qu'il est la principale perte d'énergie dans les torches de grande puissance (40 à 50%). Ceci est mis en évidence par les deux modèles.

Les champs de températures simulés sont en bon accord avec les mesures même si la forme du profil n'est pas toujours bien reproduite. On a pu montrer que l'utilisation de l'hypothèse de l'ETL pour le calcul de la conductivité thermique et électrique pouvait causer ces écarts entre les calculs et les mesures. Une autre source d'erreur possible est l'application de l'ETL à la chimie. Cette hypothèse ne permet pas de décrire la diffusion des espèces dans le plasma qui pourrait avoir un effet sur les champs de températures et le couplage électromagnétique (par exemple la diffusion radiale des ions Ar⁺ dans la zone de couplage).

En injectant de l'oxygène dans le plasma, on observe expérimentalement une forte augmentation du rayonnement à une température donnée, un refroidissement du plasma et une diminution de son volume. L'évolution est la même dans les calculs. L'analyse quantitative des calculs montre cependant que le rayonnement est surestimé en présence d'oxygène. Soit l'absorption est sous estimée, soit l'émission est surestimée. Une autre possibilité est que cet écart soit du aux déséquilibres chimiques, sous forme de retard à la recombinaison par exemple.

Le rayonnement devient la source principale de refroidissement dans les torches d'analyse en présence d'oxygène. Dans les torches procédé, la part de puissance perdue par rayonnement augmente aussi. La présence d'oxygène induit également un chauffage par rayonnement important dans les zones de fort gradient de température, ce qui ne peut pas être décrit par un modèle CEN. Il semble donc que la méthode CEN ne soit pas suffisamment précise pour décrire des plasmas contenant de l'oxygène. Cette imprécision vient du fait que l'oxygène possède des niveaux d'énergie proches du fondamental et faciles à peupler même à des températures « intermédiaires » (<5000K). La méthode CEN montrera donc probablement

la même limite avec toutes les espèces possédant des niveaux excités bas en énergie, c'est-à-dire tous les éléments sauf les gaz rares....

La mise en évidence de cette limite induit cependant une perspective intéressante. La plus grande part des transferts radiatifs en présence d'espèces réactives sont dus à quelques transitions dont le niveau absorbeur est proche du fondamental (mais différent du fondamental !). En décrivant très précisément ces quelques transitions importantes avec un modèle spectral et en traitant les autres avec une modélisation simple, on pourrait aboutir à une description légère et précise des transferts radiatifs dans les plasmas contenant des espèces réactives.

Nous n'avons pas pu identifier au cours de l'étude l'origine de la sous estimation de température moyenne des plasmas d'Argon-Oxygène. Il faut remarquer que la démixtion n'a pas été prise en compte ici et pourrait être une source importante d'erreurs, tout comme les autres phénomènes hors équilibre comme le déséquilibre chimique ou (par ses conséquences sur les distributions d'états excités), le surcroît d'énergie cinétique des électrons. Qualitativement, les simulations réalisées reproduisent bien les expériences et on peut envisager d'étendre ces méthodes de calculs à l'étude d'autres phénomènes que les transferts thermiques. L'étude de la photochimie en présence de la cible de silicium liquide est une voie de développement qui nous semble intéressante. Un modèle couplé de déséquilibre chimique-radiatif pourrait aussi être mis en place.

Pour lever les principales limites mises en évidence dans nos simulations (la forme du profil de température et la surestimation des pertes radiative en présence d'oxygène), il faudra s'affranchir du problème du rendement de couplage inductif. La méconnaissance de la puissance réellement transmise au plasma par l'inducteur rend bien plus difficile la confrontation des calculs et des expériences. Une étude poussée de l'électromagnétisme pourrait résoudre un certain nombre de problèmes en fournissant une meilleure évaluation du rendement de couplage et en nous éclairant sur l'effet du champ électrique sur les propriétés de transport ainsi que sur la validité de l'hypothèse de l'ETL dans la zone de couplage. Une telle étude compléterait bien les travaux déjà effectués au laboratoire sur les déséquilibres chimiques [Pelletier, 2006] et les mécanismes de transferts radiatifs abordés dans cette thèse.

Enfin, l'introduction d'autres espèces réactives dans les modèles de rayonnement (l'hydrogène pour commencer) fournirait une représentation très complète du procédé de purification de silicium qui est la source de cette étude. Les méthodes décrites tout au long de cette thèse peuvent très certainement être appliquées à tout type de plasma thermique à pression atmosphérique ou haute pression, comme les plasmas d'arc par exemple.

ANNEXE A : Prise en compte du recouvrement des raies.

Importance du phénomène

Dans un milieu émetteur et absorbeur, le phénomène d'absorption n'est pas linéaire s'il est significatif. Pour les plasmas étudiés ici, cela concerne surtout les raies intenses du spectre.

On a vu que les phénomènes d'élargissement des raies ont une grande importance pour le calcul des transferts radiatifs. Lorsque deux transitions sont proches en longueurs d'onde et sont suffisamment élargies, leurs profils peuvent se recouvrir. C'est presque systématiquement le cas pour les raies de l'oxygène qui se présentent sous forme de multiplets. Un multiplet apparaît lorsque qu'une levée de dégénérescence se produit. On a alors différentes transitions avec des propriétés spectroscopiques identiques, mis à part leur nombre quantique angulaire J . Un exemple de multiplet de l'oxygène est donné dans le tableau 1.

Elément	λ_0 (Å)	A_{ul} (s ⁻¹)	E_l (eV)	E_u (eV)	J_l	J_u	A_{stark}	W_{stark}
O	3947,295	4,91E+05	9,1460906	12,286193	2	3	0,014	6,26E-02
	3947,481	4,88E+05	9,1460906	12,286045	2	2	0,014	6,26E-02
	3947,586	4,87E+05	9,1460906	12,285961	2	1	0,014	6,26E-02
Ar	3947,505	5,60E+04	11,548353	14,688289	2	2	0	0

Tableau 1 :

Lorsqu'on traite les mélanges de gaz, il se peut que des raies isolées quand on considère des corps purs recouvrent les transitions issues d'autres atomes. La raie Ar 395nm en est un exemple puisqu'elle chevauche un multiplet de l'oxygène.

L'absorption n'étant pas linéaire, on ne peut pas négliger les phénomènes de recouvrements qui augmentent fortement la fraction d'énergie piégée sur une distance donnée. Par exemple, la valeur du CEN dans un mélange Ar-O2 peut augmenter d'un facteur 10 ou plus si l'on ne tient pas compte de la superposition des profils au sein des multiplets de l'oxygène.

Traitement du problème

Etant donnés les différents cas de figure amenant à la superposition de transition radiatives (multiplets ou raies isolées de différents atomes se superposant dans le cas des mélanges), on a mis en place une procédure systématique prenant en compte toutes les possibilités rencontrées dans le cadre de cette étude.

Il faut tout de même noter que l'absorption par le continuum n'entre pas dans la procédure décrite ici.

La Figure 1 décrit la manière dont sont traitées les données spectroscopiques pour pouvoir décrire la superposition des raies et générer ensuite la base de propriétés radiatives correspondant au modèle considéré (P1 ou CEN).

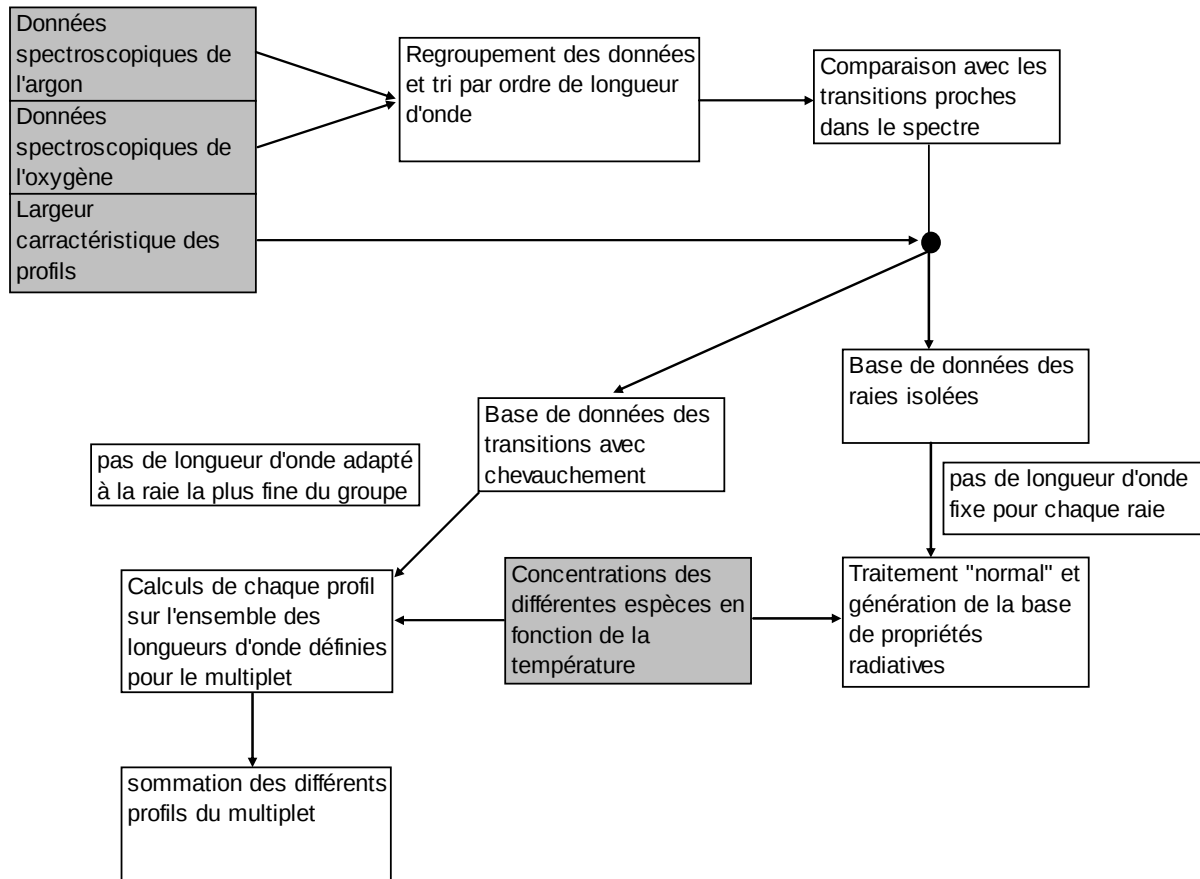


Figure 1 : traitement des raies dans le cas de mélanges de gaz avec chevauchement de certaines transitions.

La précision de cette méthode de traitement des chevauchements de raies a été testée dans le cas des raies d'argon et d'oxygène données dans le tableau 1. La comparaison des deux profils est présentée dans la Figure 2. Les largeurs à mi hauteur des profils obtenus sont de $0,45\text{\AA}$ et $0,47\text{\AA}$ pour la mesure et le calcul respectivement. Il semble donc que la procédure de traitement des recouvrements de raie présentée ici permette de bien rendre compte de la forme du spectre considéré. La température indiquée pour la mesure peut être considérée comme correcte à $\pm 300\text{K}$.

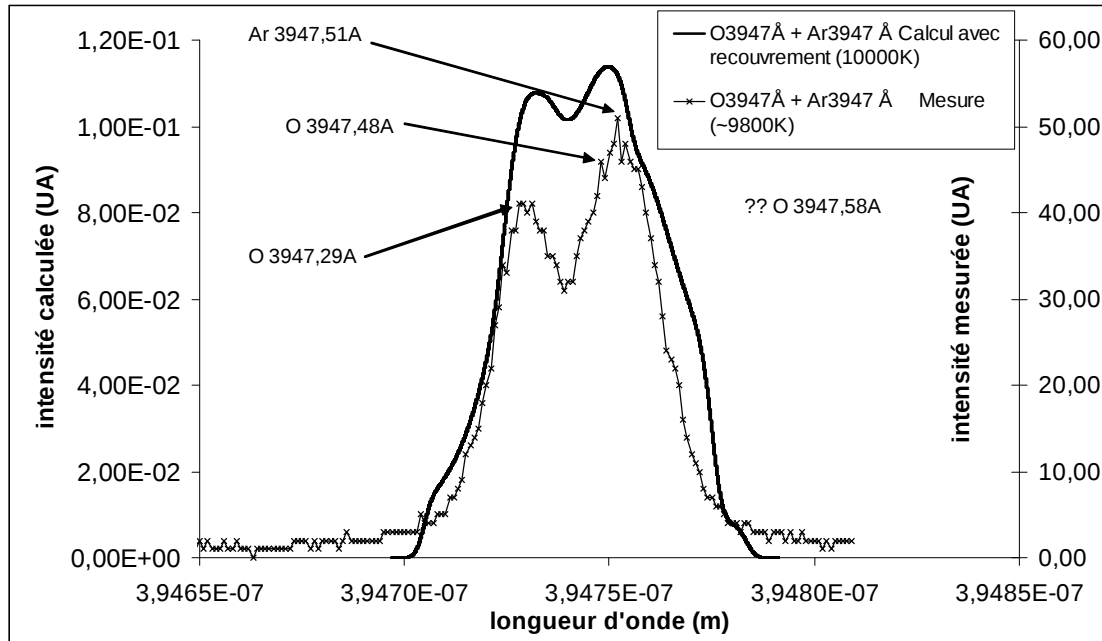


Figure 2 : calcul et mesure des transitions radiatives d'argon et d'oxygène se chevauchant dans la gamme de longueur d'onde 394,7-394,8nm.

On ne distingue sur cette figure que 3 des 4 pics attendus. Du fait du bruit et de la proximité en longueur d'onde des différentes transitions, il n'est pas toujours possible d'observer en détails le spectre d'un multiplet. Néanmoins les pics indiqués reviennent sur plusieurs mesures distinctes et semblent donc correspondre à la réalité du spectre. Si deux pics très proches ont des intensités très différentes, un d'eux peut se trouver noyé dans le profil du second et n'est dès lors plus observable par les moyens employés ici.

ANNEXE B : Calcul des paramètres SOM et ΔSim du modèle des caractéristique partielles.

La représentation que fait [Simonet, 1997] de cette méthode est très utile à sa compréhension, elle est reproduite ici dans ce but (figure 1).

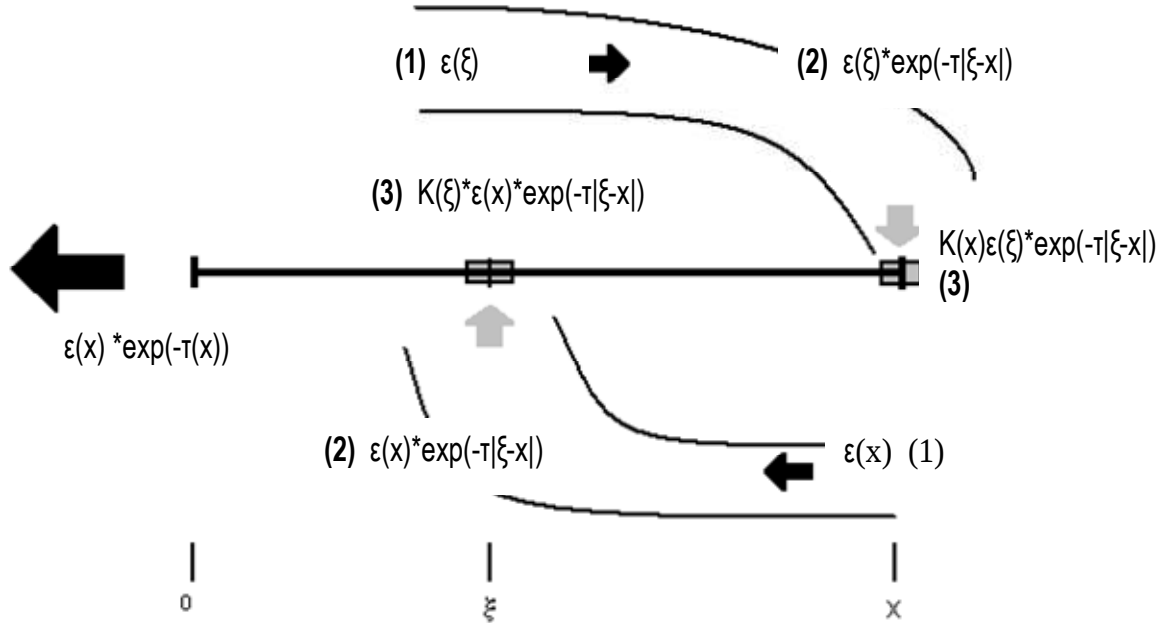


Figure 1 : description des transferts pris en compte lors de la résolution de l'ETR sur un segment par la méthode des caractéristiques partielles

- (1) Emission au point x (ou ξ)
- (2) Fraction de l'émission au point x (ou ξ) atteignant le point ξ (ou x)
- (3) Fraction de cette émission absorbée au point ξ (ou x), le reste est perdu hors du segment.

On obtient le flux radiatif par un bilan d'énergie radiative en un point x :

$$\nabla \cdot (I(x, \vec{e}_x) \cdot \vec{e}_x) = E_{in} - E_{out} \quad \text{II. 1}$$

On peut remarquer sur la figure 1 :

$$E_{out} = \int_0^x \kappa(\xi) \epsilon(x) e^{-(\tau|\xi-x|)} d\xi + \epsilon(x) e^{-\tau(x)} \quad \text{II. 2}$$

$$E_{in} = \int_0^x \kappa(x) \epsilon(\xi) e^{-(\tau|\xi-x|)} d\xi \quad \text{II. 3}$$

[Sevast'Yanenko, 1977] montre ensuite que (II.1) peut se mettre sous la forme :

$$\nabla \cdot (I(x, \vec{e}_x) \cdot \vec{e}_x) = \kappa(x) B(x) e^{-\tau(x)} - \int_0^x [B(\xi) - B(x)] \kappa(x) \kappa(\xi) e^{-(\tau|\xi-x|)} d\xi \quad \text{II. 4}$$

$$\nabla \cdot (I(x, \vec{e}_x) \cdot \vec{e}_x) = Som|_O^x - \int_0^x \Delta Sim(\xi, X) d\xi \quad \text{II. 5}$$

On peut alors faire apparaître l'intégrale sur le spectre :

$$Som|_O^X = \int_0^\infty B_{\lambda 0}(X) \kappa_\lambda(X) \exp\left(-\int_0^X \kappa_\lambda(\eta) d\eta\right) d\lambda \quad \text{II. 6}$$

$$\Delta Sim(\xi, X) = \int_0^\infty [B_{\lambda 0}(\xi) - B_{\lambda 0}(X)] \kappa_\lambda(\xi) \kappa_\lambda(X) \exp\left(-\int_0^X \kappa_\lambda(\eta) d\eta\right) d\lambda \quad \text{II. 753}$$

L'intégration sur le spectre dans Som et ΔSim est fonction du chemin optique du photon émis. C'est une opération longue, même lorsque le chemin optique est isotherme. Il est donc difficile de réaliser cette intégration à chaque itération et pour chaque profil de température rencontré lors du calcul. On va donc tabuler, avant la simulation proprement dite, les termes Som et ΔSim pour des profils de températures et de pression donnés. Lors du calcul on cherchera à interpoler les profils rencontrés pour se ramener à ceux qui ont été tabulés (figure 2)

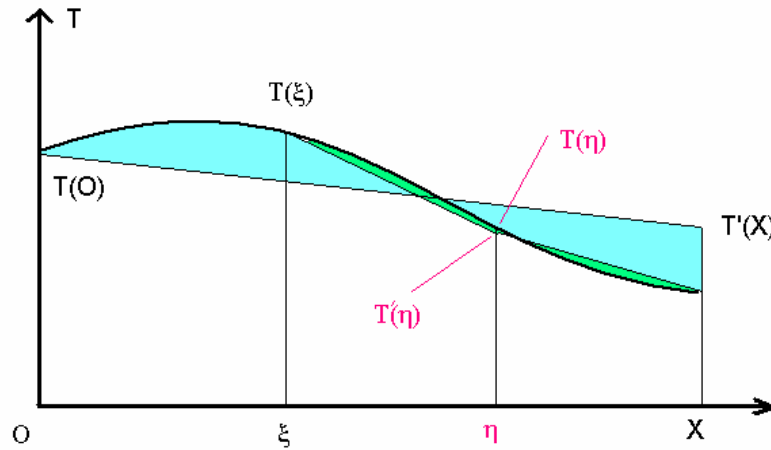


Figure 2 : interpolation du profil de température de manière linéaire pour SOM et bilinéaire pour SIM, les aires coloriées figurent la conservation de l'intégrale de T sur le chemin optique

Les valeurs de Som et ΔSim dépendent fortement des températures sur le segment [OX]. Le paramètre sensible est la température source (en O) pour Som et des températures en ξ et X pour ΔSim . Les profils de températures étant considérés comme linéaires, on va devoir interpoler le profil calculé tout en conservant les paramètres sensibles de chaque caractéristique partielle. Par ailleurs, [Soloukhin, 1984] insiste sur le fait que pour une plus grande précision on doit également conserver l'intégrale de la température sur le chemin optique $\int T d\eta$ pour Som et ΔSim . De ce fait on doit interpoler la valeur de Som à partir de la température calculée au point O et on doit calculer une température en X permettant de conserver $\int T d\eta$. La valeur de Som dépendant peu de la température en X, la valeur que choisira l'algorithme dans la base de données dépendra peu de l'approximation du profil de température choisi. Un profil simplement linéaire conviendra donc très bien [Soloukhin, 1984], (figure 2). Dans le cas de ΔSim , on doit conserver les deux paramètres sensibles $T(\xi)$ et $T(X)$ ainsi que $\int T d\eta$. Pour réaliser cela on doit utiliser un profil bilinéaire (figure 2), où $\eta = \frac{\xi - X}{2}$. [Soloukhin, 1984] et [Koval'skaya, 1984] montrent que ce type d'approximation donne de bons résultats.

Les paramètres Som et ΔSim sont longs à calculer. On se propose de réaliser, avant le calcul du rayonnement, une base de données de ces deux grandeurs en fonction de la pression, de la température et du gaz. Som et ΔSim contiennent une intégration sur la fréquence qui doit être faite raie par raie en tenant compte des différents mécanismes d'élargissement, puis,

séparément pour le continuum. Les bases ainsi constituées contiennent les valeurs de S_{om} et ΔS_{im} sur les segments $[\xi X]$ qui sont contenus dans $[OX]$. On récupère la valeur de ces grandeurs sur tout le segment en additionnant ou en intégrant les données contenues dans la base sur $[OX]$. $[OX]$ doit donc être décomposé en segments plus petits sur lesquels on peut interpoler S_{om} et ΔS_{im} à partir de la base de donnée [Koval'skaya, 1984].

A partir de cette base de données, le calcul du rayonnement par interpolation des valeurs calculées précédemment est beaucoup plus rapide. Cependant, l'interpolation se fait avec l'hypothèse d'une variation linéaire de la température sur $[Ox]$, qui convient mal aux forts gradients de T .

Notons par ailleurs que si la température ne varie pas entre O et x , le terme S_{om} correspond exactement au coefficient d'émission nette et ΔS_{im} est nul [Koval'skaya, 1984], [Simonet, 1997].

Il conviendrait également d'étudier la manière de passer du flux sur un segment à un flux volumique. Cette étape d'intégration, qui ressemble un peu à ce que fait le modèle DO ne semble pas évidente. En chaque point du calcul, on doit évaluer la divergence du flux radiatif selon un nombre donné de directions (10 à 20 selon [Erraki, 1999]). La détermination de ces directions peut se faire aléatoirement mais il peut être judicieux de les prédéterminer ([Erraki, 1999] [Comte, 1997]). De plus, [Erraki, 1999] montre qu'un découpage de chaque direction (ou segment $[Ox]$) en une vingtaine de tronçons est un bon compromis entre précision et temps de calcul.

ANNEXE C : [Lacombe, 2008]

Lacombe J.G. et. al.

J. Phys. D: Appl. Phys. 41 (2008) 165204 .

C'est un article reprenant les comparaisons calcul-expérience dans les torches d'analyse.

The role of radiation in modelling of argon inductively coupled plasmas at atmospheric pressure.

J G Lacombe, Y Delannoy and C Trassy

SIMAP/EPM, UMR CNRS 5614, Institut National Polytechnique de Grenoble, 1340 rue de la piscine 38402 Saint Martin d'Heres

E-mail: Yves.Delannoy@inpg.fr

Abstract. Modelling of inductively coupled plasma at atmospheric pressure has been developed for years, integrating fluid dynamics, electromagnetism and heat transfer. In the present work, special attention has been devoted to the radiation transfer. Two radiation models have been implemented: the net emission coefficient and the P1 model. These models have been run with different torch geometries and input powers. The parametric study shows they are very sensitive to parameters such as thermal and electrical conductivity of the gas, and input power. The temperature distributions have been compared with measurements available in literature. The spectral P1 model is more accurate at the expense of the computing time. The radiative heat losses are below 5% in small torches like those used in spectro-chemical analysis, but can overcome 40% in large torches (40mm diameter or more), becoming the main cooling mechanism.

PACS category50

Submitted to Journal of Physics D: Applied Physics

1. Introduction

Inductively coupled plasmas (ICP) are used in a wide range of industrial applications like high purity silica synthesis, nanopowder synthesis, spectrochemical analysis or recent developments in silicium purification process for photovoltaic applications [1]. Numerical modelling is a useful tool to understand phenomena in plasmas. The first one-dimensional models were developed in the late 1960's in the aim to calculate radial temperature profiles [2, 3]. Miller and Ayen were able to calculate the two dimensional temperature field in a torch by solving two-dimensional energy equation and one-dimensional electromagnetic field equations [4]. Barnes *et al.* modified the Miller's model and applied it to the argon and nitrogen spectrochemical ICP [5, 6]. They were able to predict the plasma continuum and the analyte emission profile. An empirical expression was used for the radiant power, based upon experimental measurements by Schreiber *et al.* [7]. Mostaghimi *et al.* have also developed a computer model for the calculation of the two dimensional emission pattern for a spectrochemical ICP [8, 9], focussing their attention on the analyte emission and assuming the plasma to be optically thin. Yang and Barnes [10] have simulated a low power oxygen plasma, but without improving the radiation model. They have also compared the simulation results with electron and excitation temperature measurements [11]. More recently, Proulx and his collaborators [12, 13, 14] have published ICP simulations coupling fluid mechanics and electromagnetism. However, the radiation model was not precisely described.

All these works were carried out in the frame of specific applications, like spectrochemical analysis or powder treatment. These models can be convenient for "in flight" processes, but they are more descriptive than predictive. They are not well adapted to the scale-up of industrial processes. Then, there is a need for more general and more accurate modelling of the radiation in plasmas.

In this paper, numerical methods to simulate ICP developed in our laboratory are presented. A particular attention has been paid to radiation models because radiative heat fluxes may have a great importance in the flux balance of large ICP discharges with high input power. Many authors like Essoltani [13], Gleizes [15] or Cressault [16] have used the NEC (Net Emission Coefficient) model to determine the behaviour of radiative heat fluxes in the plasmas. This model is known to give a good prediction of temperature [13] but the radiative losses strongly depend on the chosen plasma radius (R_p), which is an arbitrary choice. A spectral P1 model [17] has been developed by Modest which is

thought to be more accurate than the NEC method and does not require the use of an arbitrary parameter. The P1 model was used to compute radiative intensities and fluxes at wavelengths for which the plasma is not optically thin, that is to say optical thickness (τ_λ) is greater than unity.

If many measurements on low power plasmas like used in chemical analysis are available in literature [11, 19-24], only few can be found on ICP discharges of high power for industrial applications (>10kW input power, >20mm radius torches). Therefore, code validations have first been carried out on analytical ICP by simulating analytical torches presented in literature [19, 23].

Generally, the plasma is supposed to be axisymmetric and in Local Thermodynamic Equilibrium (LTE). The test cases are argon ICP of small size (analytical systems) with various frequencies (27MHz to 100MHz), flow rates, input powers and torch sizes.

A parametric study is presented to determine to which parameters the calculations are the most sensitive, under the assumption of local thermodynamic equilibrium. The effect of transport properties, and input power are investigated.

2. Physical and numerical models

2.1 Flow calculation and fluid properties

Standard models contained in the commercial software Fluent[®], specialized in fluid mechanics, are used to describe the fluid flow (Reynolds-Averaged Navier-Stokes equations, with a fluid density function of temperature but not of pressure), the turbulent friction and heat flux (RNG k- ϵ model with two-layer law-of-the wall), the coupled heat transfer problem (conduction, convection and radiation, the latter described by specific models, described below).

The electromagnetic force is imposed as a volume source for momentum equations, and the induction heating as a volume source in the energy equation. These source terms are calculated by the induction model, described in the following paragraph.

The properties of argon at high temperatures and atmospheric pressure (introduced in Fluent as temperature-dependant tables) were calculated with the T&Twiner thermodynamics code [25]. This code calculates the composition of the mixture Ar, Ar⁺, Ar⁺⁺, e⁻ by minimization of the Gibbs free energy under LTE hypothesis. Density, specific enthalpy and heat capacity of the mixture are deduced, and transport properties are obtained (viscosity, electrical conductivity, heat conductivity) from the kinetic theory of gases. The heat conductivity and enthalpy include the effect of chemical reactions (here, the ionization).

2.2 Inductive coupling

The electromagnetic problem is solved using a harmonic A-V formulation, with an imposed current density $\vec{j}_c(t)$ in the coil. This induction module has already been described [1]. Only the main features are recalled here.

Using the hypothesis of axisymmetry, the electric current $\vec{j}$ and the vector potential $\vec{A}$ have only one component, along θ , so that there is no need for an electrical potential V to close the current loops, except in the coil where a gradient $\vec{G}$ of electric potential is present in the θ direction. The magnetic field $\vec{B} = \nabla \times \vec{A}$ is contained in the r - z plane, and the current density can be written, using the electric conductivity σ :

$$\vec{j} = \sigma(\vec{G} - \frac{\partial \vec{A}}{\partial t}) \quad (1)$$

The electromotive force due to the motion of the plasma has been neglected in the Ohm's law (1). The magnetic Reynolds number, at a characteristic velocity $U_0 \sim 40 \text{ m/s}$, $R_m = \mu \cdot \sigma \cdot U_0 \cdot R \sim 0.003$ is small compared to the shield parameter $R_\omega = \mu \cdot \sigma \cdot \omega R^2 \sim 200$ (where $R = D_i/2$ is the internal radius of the torch, μ is the magnetic permeability of vacuum and $\sigma \sim 4000 \Omega^{-1} \text{ m}^{-1}$ is the maximum electrical conductivity of the plasma). Furthermore, $R_m \ll 1$ so that the magnetic vector potential $\vec{A}$ is the solution of a purely diffusive induction equation (coming from the Ohm's law, the Maxwell-Ampere equation $\nabla \times \vec{B} = \mu \vec{j}$

and a gauge condition $\nabla \cdot \vec{A} = 0$, that can be written in harmonic cases using the complex amplitudes A_θ , j_θ and G_θ (and $i = \sqrt{-1}$):

$$0 = \Delta A_\theta - \mu\sigma \frac{A_\theta}{r^2} + \mu\sigma G_\theta - \mu\sigma i\omega A_\theta \quad (2)$$

This complex equation has to be solved in the whole domain, including a part of the surrounding atmosphere large enough to enable the magnetic lines to close freely. We choose here a cylindrical domain of height and diameter equal to $30R$, R being the torch radius. The boundary conditions are $A_\theta = 0$ on the outer surface and $\partial A_\theta / \partial r = 0$ on the axis. A_θ and its derivatives are continuous at internal boundaries between materials, because there is no ferromagnetic material, and the source term $\mu\sigma G_\theta$ is zero except in the coil, where the two last terms in equation (3) are replaced by μj_c . j_c is the imposed current density in the coil (G_θ can then be reconstructed from the calculated A_θ in the coil).

The induction equations (real and imaginary parts of (2)) were implemented in Fluent, using user-defined scalar transport equations and user-defined functions to program the source terms and to provide the necessary interface [1]. The solution $A_\theta(r, z)$ was used to calculate the current density (1), the electromagnetic force $\vec{f} = \vec{j} \times \vec{B}$ per unit volume, and the joule heat source $\psi = j^2 / \sigma$ per unit volume. Those latest two fields are not harmonic, but as product of two harmonic functions, they have a mean part $\vec{f} = \text{Re}(\vec{j} \times \vec{B}^*) / 2$ and $\psi = \vec{j} \cdot \vec{j}^* / \sigma$, where $*$ denotes the complex conjugate and $\text{Re}()$ the real part. The fluctuating parts of $\vec{f}$ and ψ are not taken into account because of the high frequency and the inertia of the fluid.

The coil is represented by a hollow copper cylinder, in which a uniform current density is imposed. The value of this current density is modified at each iteration, using the linearity of (2), to retrieve the power input (integral of ψ in the plasma) specified as a calculation parameter.

2.3 Radiation model

Two models have been developed to take radiation into account: NEC and P1.

2.3.1 NEC model

This model has been largely described in literature [13]. The sink term for radiation in the energy equation is calculated as a function of temperature using the Planck blackbody function B_λ^0 , the spectral absorption coefficient κ'_λ and a "plasma radius" R_p , representing the size of the absorbing medium (assumed isothermal) around the point to be considered:

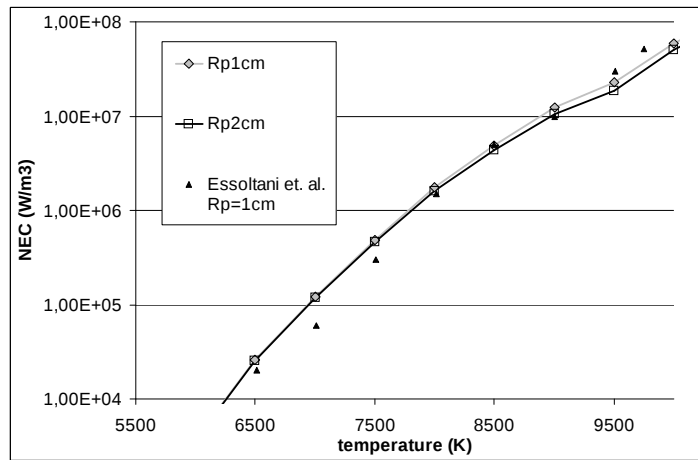


Figure 3 : NEC calculated for different plasma radii compared to published NEC.

$$4\pi\epsilon_n(T) = 4\pi \int_0^\infty B_\lambda^0 \kappa'_\lambda \exp[-\kappa'_\lambda R_p] d\lambda \quad (3)$$

The argon spectral absorption coefficient κ'_λ was calculated for lines and continuous radiation. The calculation of the continuous spectrum takes radiative recombination and Brehmstrahlung into account. Other phenomena responsible for continuous radiation were found negligible in the temperature range of the plasmas studied here, as one can find in literature [16]. Line profile is an important parameter for NEC calculation. Doppler, Van der Waals and Stark broadening were taken into account. The theories used to calculate line broadening have already been described [26]. The NEC calculated for the present work (figure 1) is in good agreement with the values published by Essoltani et. al. [13, 18].

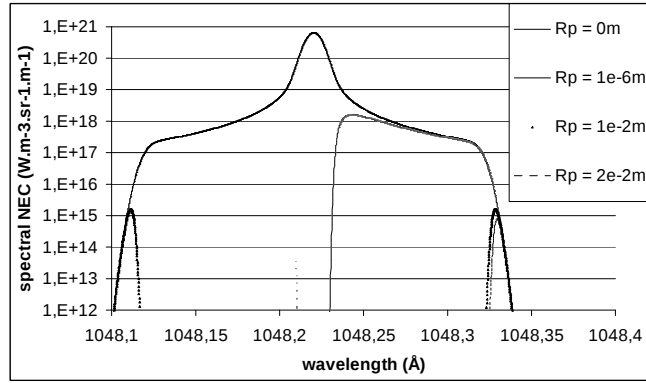


Figure 2: Spectral NEC for Ar104,8nm resonance line for several plasma radii (m). Logarithmic scale.

for central part of resonance lines when R_p reaches the order of magnitude of 1mm. For large plasma radii, the fraction of radiative losses due to the resonance lines becomes weak (5% for 1cm R_p at 9500K) and most of the losses come from lines with weak absorption (75% for 1cm R_p at 9500K). For the central part of these lines, τ_λ ranges from a few units to a few hundreds.

2.3.2 P1 spectral model

The P1 model is meant to reproduce the absorption phenomenon more precisely.

2.3.2.1 Definitions and conditions of use

Three cases of optical thickness in plasmas have been defined: optically thin, optically thick and intermediate.

When the plasma is optically thin ($\tau_\lambda \ll 1$), the exponential term in (3) where R_p is involved equals unity, and the absorption is negligible, whatever the temperature along the optical path. NEC calculations are well adapted when there is almost no absorption. NEC was used for optical depth, τ_λ , $< 0,2$. The calculation of optical thickness is based on torch radius and spectrum calculations described above.

The plasma is said optically thick when radiative equilibrium is reached. Test cases used to calculate radiative intensity between two walls with an absorbing medium between them show that black body radiation occurs when $\tau_\lambda > 2500$. It is the case for the central part of resonant lines. Near central wavelength, optical thickness is larger than 2500 and there is no radiative heat transfer at these wavelengths. They are not included in the radiation models. We have to point out that the wings of resonance lines do influence radiative heat transfers and can not be neglected.

When the optical thickness is intermediate, the use of an arbitrary plasma radius is a source of error. The wings of resonance lines and a few tens of argon lines are in this case and have a great influence on radiative heat transfers. Therefore, they have to be precisely taken into account.

The spectral P1 model does not require any arbitrary parameter and describes well the absorption phenomenon [17]. It is a diffusive model:

$$\frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\partial G_\lambda}{3\kappa_\lambda \partial z} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial G_\lambda}{3\kappa_\lambda \partial r} \right) = -\kappa_\lambda (4\pi B_\lambda - G_\lambda) \quad (4)$$

Where G_λ is the radiative intensity integrated over solid angle at the wavelength λ and B_λ the black body intensity. (4) is written in cylindrical coordinates.

In the case of optically thin lines, NEC and P1 are convenient; at the expense of calculation time for P1. The principal limit of the P1 model appears to be treatment of opaque surfaces at low optical thickness. When the characteristic propagation length at a given wavelength is small compared to the mesh size, radiation behaves in a diffusive manner whereas radiation should propagate more or less on a straight line when the absorption length is large (1mm to 1cm). Errors may appear at low optical thickness when opaque obstacles are present: radiation would “diffuse” around the obstacle instead of creating a “shadow” behind the obstacle.

In the case of argon plasma in torches of a few centimetres of diameter, the influence of plasma radius is weak, as soon as it is different from zero. This can be seen on figure 1: NEC values are close for $R_p = 1\text{cm}$ and $R_p = 2\text{cm}$.

Figure 2 shows the spectral NEC ($\varepsilon_n(\lambda, T) = B_\lambda^0 \kappa'_\lambda \exp[-\kappa'_\lambda R_p]$) values for an argon resonance line and for several plasma radii. The spectral NEC does not vary much for plasma radii close to macroscopic scales (torch radius, hot zone characteristic dimension ...). This corresponds to the fact that optical thickness $\tau_\lambda = R_p \kappa_\lambda$ becomes $\gg 1$

2.3.2.1 Solving the P1 equations

When P1 is used as a spectral model, the plasma spectrum has to be discretized. As absorption coefficient of argon varies strongly with the wavelength, the spectral model is justified.

Each P1 equation has to be solved on a spectral interval with constant absorption coefficient. This would cause prohibitive number of equations when discretizing separately tens of lines (the ones with intermediate optical thickness). To simplify, lines with similar spectral absorption coefficient may be regrouped, discretized and solved with a unique set of equations.

Modest [17] has proposed a method to regroup several intervals of the spectrum in an isotherm case. The method consists in solving two spectrum intervals with the same equation, by adding emissivities, if they have the same absorption coefficient. This method was generalized to non isothermal plasmas.

In a non isothermal radiating medium, two spectral intervals can be solved with the same P1 equation, provided they have the same absorption coefficient for any considered temperature.

The absorption coefficient for a line can be written (in m^{-1}):

$$\kappa'(\lambda, T) = \frac{\lambda_0^4}{8\pi c} A_{ul} n_l \frac{g_u}{g_l} (1 - e^{-(E_u - E_l)/kT}) P(\lambda, T) = \kappa'_{\text{int}} P(\lambda, T) \quad (5)$$

Where $P(\lambda)$ is the line profile, g the degeneracy of the level, A_{ul} the transition probability and n_l the absorbing level density. κ'_{int} is the integrated absorption coefficient. If several lines have the same integrated absorption coefficient and the same profile in the considered temperature range, they can be grouped together. Variations of the integrated absorption coefficient with temperature mainly depend on the absorbing level number density: $n_l = n_0 \exp(-E_l/kT)$. Two lines can not have the same integrated absorption coefficient on a wide temperature range if their lower energy level E_l is not close.

For a given element, collisional broadening depends on the excitations levels and Doppler broadening depends on the energy difference between these levels. So, to obtain identical profiles for any temperature, two lines must have their upper and lower energy level close to each other.

In the end, to group two lines, one has to find transition with a similar absorption coefficient at their central wavelength and for a given temperature. Then, if both lines have energy levels close to each other, they may be grouped together when using the P1 model.

Table 1: Example of argon lines that can be regrouped when using a spectral P1 model. J is the angular quantum number for a given energy level

Central wavelength (Å)	Lower level E_l (eV)	Upper level E_u (eV)	J_l	J_u	Transition probability (s^{-1})	$\kappa(\lambda_0, T_0)$ (m^{-1})
8408	11,82	13,30	1	2	$2,23 \cdot 10^7$	178
8103	11,54	13,17	2	2	$2,45 \cdot 10^7$	148
7635	11,62	13,15	1	1	$2,50 \cdot 10^7$	136

A difference of about 15% in the line absorption coefficient was considered as acceptable when applying those criteria. For example the lines in table 1 may be grouped together with the method presented here. The reference temperature T_0 is 10000K. Those criteria were tested for some of the predicted groups of lines between 6000K and 10000K. Absorption and emission are weak for temperatures below 6000K in the case of argon, with the obvious exception of resonant lines.

It appeared that line profiles effectively remain within 15% of error in this temperature range, which is of interest for radiation calculations.

Lines in table 1 were regrouped and then spectrally discretized. 5 or 6 P1 equations (depending on geometry) were devoted to solving radiation transfers due to those three lines. Note that some lines could not be regrouped and were treated on their own with several P1 equations. Resonance lines can only be regrouped with other resonance lines because their absorption coefficient decreases, a bit, with temperature when other lines have increasing absorption coefficient with temperature.

This method enables to reduce by a factor 5 to 10 the number of P1 equations to be solved compared to separate line discretization.

Boundary conditions for P1 equations are detailed in [17]. The boundary condition involves a balance between the wall emissivity, the radiative intensity $I(\vec{r}, \vec{s})$ integrated over solid angle $G(\vec{r})$ at the boundaries and the radiative heat flux reaching the wall. It is thus a mixed boundary condition (6, 7)

$$G + 2\vec{q} \cdot \vec{n} = 4 \int_{\vec{n} \cdot \vec{s} > 0} I_w(\vec{s}) \cdot \vec{s} \cdot \vec{n} d\Omega = 4J_w \quad (6)$$

G is the P1 unknown; J_w is the wall's radiosity and $\vec{q} = \vec{\nabla}G / 3\kappa$ is the radiative heat flux.

[17] shows that eq. (6) can be written as follows when using the P1 model :

$$\vec{q} \cdot \vec{n} = (\vec{\nabla}G / 3\kappa) \cdot \vec{n} = \frac{\varepsilon}{2(2 - \varepsilon)} (4\pi I_{bw} - G) \quad (7)$$

Where ε is the wall emissivity assumed to be constant over the whole spectrum (gray bodies). Radiation is coupled to the energy equation through wall heat fluxes and radiation balance in a cell $(-\kappa_\lambda(4\pi B_\lambda - G_\lambda))$ which is introduced as a source term in the energy equation.

3. Calculation of radiative heat fluxes for different torch configurations

One of the goals of this study is to predict radiative heat fluxes in plasmas for industrial applications, the size of which is greater than for analytical ICP. Both torches have been simulated. They are of the same type (figure 4) and the data representing them is given in table 2. Note that for analytical ICP, flow is upward whereas it is downward in the case of larger plasmas (figure 3).

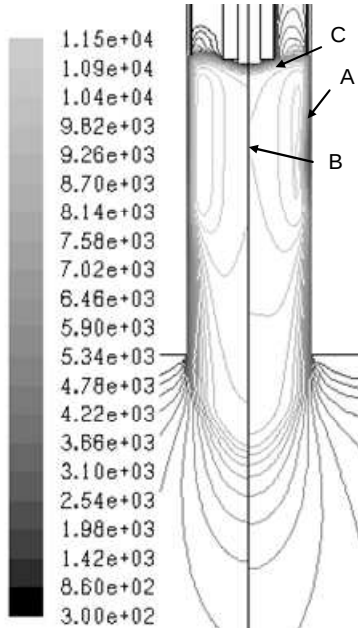


Figure 3: Temperature fields calculated with NEC (left) and P1 (right) radiation model on a 19,6kW, 40mm torch. For A, B and C, see the text.

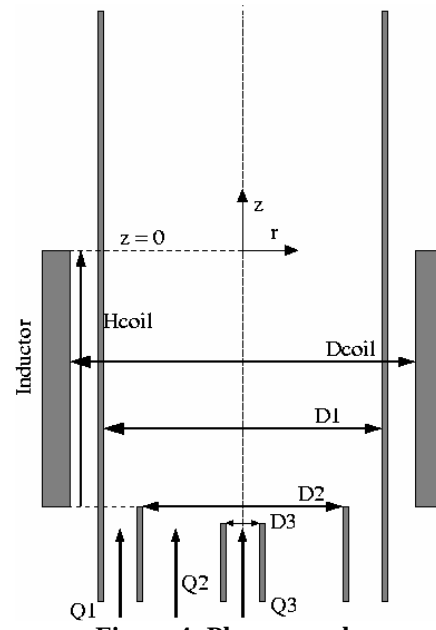


Figure 4: Plasma torch.

Radiative heat fluxes and overall radiative losses have been calculated in those two different geometries with the NEC model and the P1 spectral models (figure 3). The data for this geometry are given in table 2.

The first result is that in large plasmas, the choice of the radiation model does influence temperature profiles (figure 3) and radiative heat fluxes. This can not be observed in analytical discharges [27]. As a consequence of this, temperature measurements on large plasma discharges may enable one to demonstrate the interest of the radiation model. If there are lots of simulations of large torches [8, 9, 14], to the author's knowledge, no temperature measurements were published on such devices. Adapting temperature measurements to large plasma reactors is the next step of the present study.

Table 2: Input parameters for ICP devices simulations.

	Michaud [8]	Regt et. al. [2]	32mm torch	Process torch
D ₁ (mm)	27	18	32	40
D ₂ (mm)	24	16	30	38
D ₃ (mm)	1.2	1.2	7	7
Q ₁ (L/min)	10	12	60	90
Q ₂ (L/min)	0	0.3	3.3	3.3
Q ₃ (L/min)	0.17	0.6	3	3
P(W)	1750	1200	3000 to 12000	12000 to 20000
F(MHz)	40	100	3,46	3,46
D _{coil} (mm)	32	26	34	40
H _{coil} (mm)	30	15	51	65

Comparing local energy sinks calculated with P1 and NEC models shows the larger size of the medium makes it possible to absorb large amounts of radiation. Figure 5 shows the local energy sink as a function of temperature in the two torch geometries described here (analytical ICP of 1200W and process torch of 12000W). The absorption effect depends on local temperature and on radiation around the point considered. In some areas of the plasma (noted C in figures 3 and 5), absorption is greater than emission and radiation will warm up such zones. This cannot be represented with a NEC model. The use of the P1 can be of importance as the “warm-up” term can reach 10% of the maximum radiation sink term. Note that the phenomenon is significant only in large torches (A and B on figure 5). In small torches, departures from the sink terms calculated with NEC can be observed but they are not significant. In this case, the sink term calculated with P1 model is very close to the one obtained by [13] with NEC.

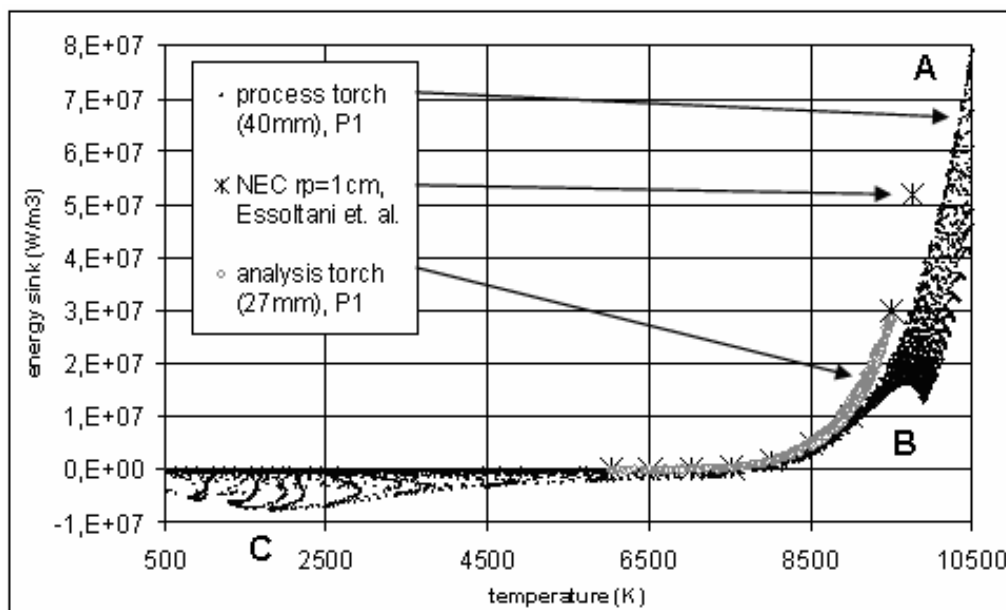


Figure 5: Energy sink calculated with the P1 spectral model in two different geometries and compared to NEC calculations found in literature. Points A, B and C are represented on figure 3.

Heat fluxes have been calculated with both radiation models for several torches of different size and for various input powers. Using torch radius as R_p value in NEC calculations, leads to calculated heat fluxes up to 10% lower than with the P1 model. This can be explained by the fact that the size of the absorbing medium, the plasma, is smaller than the torch radius. Indeed, it is difficult to determine the “effective” plasma diameter. The heat fluxes obtained with the P1 model are summarized in figure 6 for various torch size and input power.

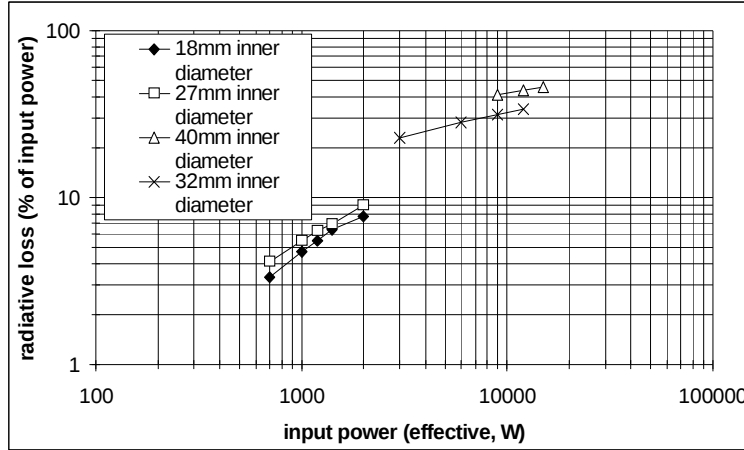


Figure 6: Evolution of radiative loss as a function of input power in several configurations with the P1 model.

limits are reached, the increase in radiation loss with power is “blocked”. This phenomenon explains the discontinuity observed on figure 6 between low and large torch diameter and for a given power between two different torch sizes. These variations can be reproduced with both radiation models, although calculations with P1 model are probably more accurate when studying heat fluxes.

4. Validity and sensitivity of the simulations.

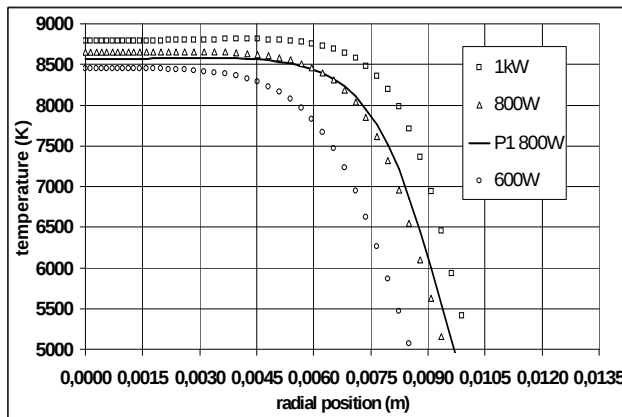


Figure 7: Temperature simulated along a plasma radius at $z=-5,5\text{mm}$.

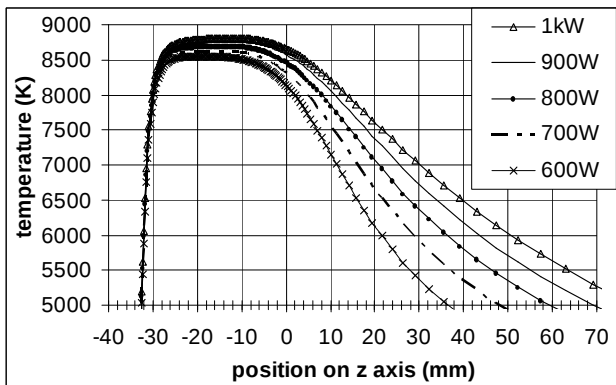


Figure 8: Temperature simulated along the plasma axis.

smooth temperature profiles (figure 7).

In analytical ICP, the heat injected in the plasma by Joule effect appears to be mainly removed by convection of the hot gases. Radiation causes only 5 to 10% of heat loss in such a case. By contrast, in a large torch, radiation seems to be the most important cooling mechanism (figure 6). An increase in power results mainly in an increase of the plasma size, the variation of the maximum temperature remaining quite limited. The increase in plasma diameter is limited by the physical torch diameter. As soon as these

To discuss the validity of the simulation techniques described above, some experimental devices described in literature [19, 23] were simulated. Such a validation process requires some precautions. Temperature was chosen as a validation basis these simulations.

4.1 Input power

Plasma volume and thus temperature profiles depend on the input power. Thus, the first condition to validate the models presented here is to determine the effective power injected into the plasma. Generally, the electric input power in the inductor is well known but the efficiency of the coupling with the plasma is not.

According to what can be found in literature, this efficiency is believed to be about 70% [23]. Simulations of a 40MHz analytical ICP discharge were carried out with power input in the plasma set between 600W and 1000W (figure 7). Plasma volume increases significantly with input power (figure 7 and 8) and a correct evaluation of the coupling efficiency is important for the accuracy of the validation process.

The P1 radiation model was tested in the same configuration. Temperature profile is not significantly affected by the P1 radiation model although radiative heat fluxes are [27]. The use of a P1 radiation model tends to

When simulating experimental apparatus, input power in the plasma has been set to 70% of the electric power used by the generator.

4.2 Reference experiments

Results published by [23] were obtained by relative intensity measurements on iron lines introduced in the centre of the plasma. Among those results, the axial temperatures measured on the plasma axis were found most interesting. The parameters for those measurements are recalled in table 2.

The experiments by [19] were chosen because they rely on different measurement technique: Rayleigh and Thomson scattering. The torch itself is of the same type as the one on figure 3 except for the inductor which is made of 2 turns only and works at 100MHz. The work published by Regt et. al. ([19]) contains both axial (at $r = 4,5\text{mm}$) and radial (at $z = 7\text{mm}$ and 13mm) temperature measurements which are used for validation of our simulations. Parameters for this set up are also available in table 2. $z = 0\text{mm}$ stands for the downstream limit of the coil (figure 4).

Regt et. al. carried out electronic temperature measurements. Due to the LTE hypothesis, the temperature calculated with our model should also be the electronic temperature although this assumption is questionable. A central flow is used (Q_3 in table 2) along with an auxiliary flow between the injector and the inner tube (Q_2). Central injection cools down the axial part of the plasma. Measurements were made only above the coil ($z > 0$). This set-up was simulated (figure 9 and 10).

At $z=7\text{mm}$, the calculated maximum temperature is in good agreement with measures but the hot zone is thinner. Temperature in the centre of the plasma is overestimated in the calculations. The difference could be due to an inadequate estimation of the position of the electromagnetic coupling zone in the induction model. This point will be discussed later.

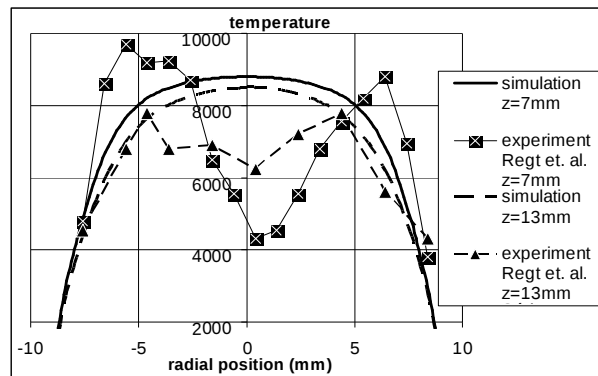


Figure 9: Radial temperature measurements by Regt et. al. and corresponding simulation. Input power in simulation is $0,7 \times 1200\text{W}$.

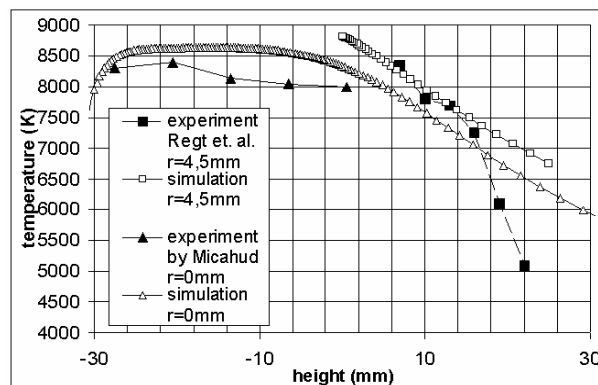


Figure 10: Axial temperature measurements and corresponding simulation for Regt et. al.'s set up ($r=4.5\text{mm}$) and ours ($r=0\text{mm}$).

The fact that heat transfer towards the outer cold gas layer and towards plasma axis is over estimated should also be investigated. Overestimating heat transfer will cause the cold flow surrounding the plasma zone to warm up and expand too fast, contracting the coupling zone. Tests are presented in the following to determine whether the two effects are linked or not.

A better agreement is obtained at large z values ($z=13\text{mm}$ on Figure 9). At such a downstream position, the effect of the position of the coupling zone is low, which can explain why the hot zone does not appear too thin. However, the shape of the temperature profile in the centre shows the same type of discrepancy than at $z = 7\text{mm}$. Axial temperature profiles taken from [19] at $r=4,5\text{mm}$ (i.e near the coupling zone) and above the inductor are reproduced accurately in our simulations (figure 10).

The measurements by [23] along the plasma axis ($r=0\text{mm}$) between the turns of the inductor ($z < 0\text{mm}$) are shown on figure 10. The corresponding simulations are in good agreement even if the temperature in the centre is overestimated. The simulations results are within the error margin ($\pm 300\text{K}$). The discrepancy is lower in this case at 40MHz than in the case of the experiment by [19] which runs at 100MHz . As the skin effect increases with frequency, it is

possible that its representation is not accurate in our simulations.

4.3 Transport properties

The numerical simulation of these experiments showed some limitations of the modelling techniques described here. The reasons for these discrepancies observed have been investigated through a parametric study. To carry out this parametric study, simulation results need to be compared to temperature measurements made in well controlled ICP and under well known conditions. Therefore, experiments were made in the laboratory, using the same plasma torch as the one described in column one of table 2 [18, 26].

The LTE hypothesis is the most debatable assumption in the models developed here. It plays an important role in the calculation of transport properties. We have introduced various kinds of perturbations in order to investigate the sensitivity of the results to these properties. The simulation results were found sensitive to thermal and electrical conductivity. So the model has been run combining modified electrical and thermal conductivities (figure 11).

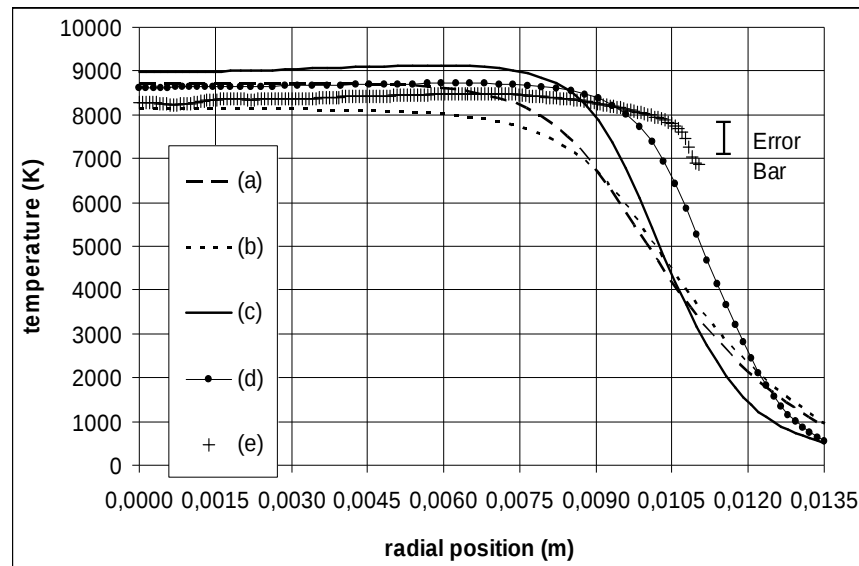


Figure 11: Calculated radial temperature profiles at $z = -3\text{mm}$ for different simulation conditions:

- (a) LTE transport properties
- (b) Higher electrical conductivity
- (c) Lower thermal conductivity
- (d) Higher electrical conductivity and lower thermal conductivity.
- (e) Experiment with corresponding error bars.

The temperature profiles calculated for various simulation parameters reproduce well the temperature measured in the centre of the plasma. However, the radial position of the coupling zone is too close to the axis when using LTE properties (curve (a) on figure 11). In the coupling zone electrons are excited by the electric field. This causes the mean kinetic energy of electrons to be higher than the heavy particles one. In such zones departure from LTE will displace Saha's equilibrium, increasing electron density above its LTE value, which leads to greater shielding effect. Then, the use of underestimated electrical conductivity may displace the coupling towards inner plasma zones that should not be heated by Joule effect. Two temperatures simulations of ICP have been published by Mostaghimi et. al. ([8, 9]). They have shown that the difference between heavy and electron "temperature" was found is $\sim 500\text{K}$. For this reason, simulations were carried out with electrical conductivity calculated at higher temperature, 1000K above the heavy particles temperature (curve (b) on figure 11). This leads to a larger coupling zone and lower temperature in the central part of the plasma. The effect is significant but not enough to explain the discrepancies observed in our simulations.

The over estimation of heat transfer has then been investigated. Simulations are presented (curve (c) on figure 11 where thermal conductivity was divided by two. The temperature profile is in much better agreement with measurements. Measured temperature profiles are reproduced in the best way when the two modifications are applied (curve (d) on figure 11). To explain this, the question of chemical equilibrium could be raised. When calculating heat conduction coefficient with the LTE code

T&Twiner [25], reactional conductivity is introduced to represent heat transfers occurring with chemical reactions: in argon plasma, the ionisation. LTE calculations of transport properties assume that the kinetics of chemical reactions is instantaneous. Pelletier ([28]) shows that, the effect of kinetics is to delay chemical reactions (ionisation as well as recombination). This results in lower reaction conductivity for the plasma. In the end the use of LTE to calculate electron density has to be put into question but it is not obvious that it could cause large variations of the heat conduction coefficient.

Furthermore, thermal and chemical non-equilibrium calculations by Tanaka [29] have put into evidence a strong radial diffusion of Ar^+ ions around the coupling zone. This radial diffusion transports ions, and heat, towards the outer part of the plasma. Not taking this phenomenon into account might be a cause of the thin hot zone that appears in our calculations.

The main limitation of these models may be due the LTE hypothesis used to calculate transport properties. It seems that the electric field could be the main source of the discrepancies we have observed.

5. Conclusion

Comparing the NEC model and the P1 model, we have shown that there is a dramatic difference in radiative losses as a function of the size of the torch and of the injected power. Both models indicate that radiation is a minor cooling mechanism in analytical ICP whereas it becomes the major cooling process in larger plasmas. The fraction of losses due to radiation may change from 5% in low power ICP to more than 40% in high power devices. From this point of view, the main interest of the P1 model is to permit the calculation of radiative heat fluxes without the use of arbitrary parameters. In high power ICP, absorption phenomenon is large enough to make observable zones heated by radiation. The P1 model only may reproduce this phenomenon.

The validity of the results obtained with NEC model is linked to the choice of the R_p value. It will be the main difficulty in scaling up industrial processes. Using the P1 model permits to overcome this problem and so it is possible to calculate local heat fluxes in the plasma reactor.

Simulations of experimental devices published in literature have enabled the validation of some aspects of the numerical methods presented here although the shape of the calculated temperature profiles has to be improved.

As the choice of the radiation model gives significant differences only in large torches, it will be necessary in a next study to carry out temperature measurements on plasma torches of industrial size.

Acknowledgments

French Research and Education Ministry is acknowledged for its financial support.

Nicolas Blind who helped in the development of the NEC calculation program is also gratefully acknowledged.

References

- [1] Delannoy Y., Alemany C., Li K.-I., Proulx P., and Trassy C., 2002, *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* **72** 69.
- [2] Rovinskii R. E. and Sobolev A. P., 1969, *Generatory Nizkotemp. Plazmy, Tr. Vses. Nauch.-Tekh. Konf., 3rd, (Meeting Date 1968)*, 315.
- [3] Pridmore-Brown D. C., 1970, *J. Appl. Phys.*, **41**, 3621.
- [4] Miller R. C. and Ayen R. J., 1969, *J. Appl. Phys.*, **40**, 5260.
- [5] Barnes R. M. and Schleicher R. G., 1975, *Spectrochim. Acta*, **30B**, 109.
- [6] Barnes R. M. and Nikdel S., 1975, *Appl. Spectrosc.*, **29**, 477.
- [7] Schreiber P. W., Hunter, A. M. and Benedetto K. R., 1973, *AIAA J.*, **10**, 815.
- [8] Mostaghimi J., Proulx P., Boulos M. I. and Barnes R. M., 1985, *Spectrochim. Acta*, **40B**, 153.
- [9] Mostaghimi J., Proulx P. and Boulos M I 1987 *J.Appl.Phys.*, **61**, 1753.
- [10] Yang P. and Barnes R., 1989, *Spectrochim. Acta*, **44B**, 1081.
- [11] Yang P. and Barnes R., 1989, *Spectrochim. Acta*, **44B**, 1093.
- [12] Proulx P., Mostaghimi J. and Boulos, M., 1991, *Can. Int. J. Heat Mass Transfer*, **34**, 2571.
- [13] Essoltani A., Proulx P., Boulos M. I. and Gleizes A., 1994 *Plasma Chem. Plasma Processing*, **14**, 473.
- [14] Xue S., Proulx P. and Boulos M. I., 2002, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **35**, 1123.
- [15] Gleizes A., Gonzalez J. J., Liani B. and Raynal G., 1993, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **26**, 1921.
- [16] Cressault Y., 2001. PhD Thesis, University Paul Sabatier, Toulouse, France.

- [17] Modest M., 2003, *Radiative Heat transfer* (Academic Press) p465.
- [18] Lacombe J.-G., Delannoy Y. and Trassy C., 2007, *Proc. Int. Conf. on Phenomena in Ionised Gases* (Prague, Czech Republic) p209.
- [19] Regt J. M., Engeln R. A. H., de Groote F. P. J. and Van der Mullen J. A. M., 1995, *Rev. Sci. Instrum.*, **66**, 3228.
- [20] Van de Sande M. J., Van Eck P., Sola A. and Van der Mullen J. A. M., 2002, *Spectrochim. Acta* **57B**, 829.
- [21] Huang M., Hanselman D. S., Yang P. and Hieftje G. M., 1992, *Spectrochim. Acta*, **47B**, 765.
- [22] Huang M., Lehn S. A., Andrews E. J. and Hieftje G. M., 1997, *Spectrochim. Acta*, **52B**, 1173.
- [23] Michaud E., 1983, *Influence des Paramètres Géométriques et Aérodynamiques d'une Torche à Plasma Haute Fréquence sur les Performances Spectroanalytiques*, PhD Thesis, INSA, Lyon, France.
- [24] Barnes R. M., Genna J. L., 1981, *Spectrochim. Acta*, **36B**, 299.
- [25] Pateyron B., Delluc G., Calve N., 2005, *Mécanique and Industries*, **6**, 651.
- [26] Trassy C., and Tazeem A., 1999, *Spectrochim. Acta*, **54B**, 581.
- [27] Dixon C. M., Yan J. D. and Fang M. T. C., 2004, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **37**, 3309.
- [28] Pelletier D., 2006, *Modélisation de la Cinétique Chimique dans les Plasmas Inductifs – Application aux procédés*, PhD Thesis, INP Grenoble, France.
- [29] Tanka Y., 2004, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **37**, 1190.

Références bibliographiques

Alder J.F., Bombelka R.M., Kirkbright G.F.

‘Electronic excitation ionisation temperature measurements in a high frequency inductively coupled argon plasma source and the influence of water vapour on plasma parameters.’
Spectrochimica Acta, **35B**, p163, 1980

Alemanly C., Delannoy Y., Fautrelle Y.

‘Impurity transport in a silicon molten bath under electromagnetic stirring’
Proceedings of the Third International Symposium on Electromagnetic Porcessing of Materials (EPM 2000), Nagoya, Japan, I.S.I.J, p265, 2000

Apruzese J. P., Davis J., Duston D., Whitney K.G.

‘Direct solution of equation of transfer using frequency and angle averaged photon escape probabilities with application to a multistage multilevel aluminium plasma.’
JQSRT, **23**, p479, 1980

Babat G.

‘Electrodeless discharges and some applied problems.’
Journal of the Institute of Electrical Engineers, PartIII, **94**(27), p27, 1947

Barnes R.M., Genna J.L.

‘Gas flow dynamics of an inductively coupled plasma discharge.’
Spectrochimica Acta, **36B** (4), p299, 1981

Barnes R.M., Schleicher R.G.

‘Computer simulation of RF induction heated argon plasma discharges at atmospheric pressure for spectrochemical analysis’.
Spectrochimica Acta, **30B**, p109, 1975

Behringer K., Thoma P.

‘Measurement of the Ar continuum radiation in the near vacuum UV’.
JQSRT, **16**, p671, 1976

Biberman L.M., Norman G.E., Ulyanov N.

‘On the calculation of photoionisation absorption in atomic gases.’
Opt. Spect., **10** (5), p297, 1961

Biberman L.M., Norman G.E.

‘On the calculation of photoionisation absorption.’
Opt. Spect., **8**, p230, 1960

Bottin B.

‘Aerothermodynamic model of an Inductively Coupled Plasma wind tunnel - Numerical and Experimental determination of the facility performance’,

Thèse de Doctorat, Université de Liège, Belgique, 1999

Boulos M.I., Fauchais P., Pfender E.

‘Thermal Plasmas, Fundamentals and Applications’, 1, chap. 8, Plenum Publishing Corporation, New York, 1994.

Boulos M.I., Gagne R., Barnes R.

‘Effect of swirl confinement on the flow and temperature field in an ICP RF plasma.’
The Canadian Journal of Chemical Engineering, 58, 367, 1980

Burgess A., Seaton M.J.

‘Cross sections for photoionisation from Valence electron states.’
Reviews of Modern Physics, **30** (3), p992, 1958
‘A general formula for the calculation of atomic photo-ionization cross sections.’
Royal Astronomical Society, **120**, p121, 1959

Burm K.T.A.L.

‘Visible Continuum Radiation in high pressure argon and argon mercury plasmas.’
J. Plasma Physics, **71** (4), p379, 2005

Cabannes F., Chapelle J.

‘Spectroscopic plasma diagnostic in reaction under plasma conditions’, **1**, Chap. 7, Wiley Interscience, New-York, Ed Venugopalan, 1971.

Chauveau S., Deron C., Perrin M-Y.

‘Radiative transfer in LTE air plasmas for temperatures up to 15; 000 K.’
JQSRT, **77**, 113, 2003

Comte A.

‘Synthèse des travaux d’EDF sur la méthode des caractéristiques partielles.’
Réunion Groupe de Projet sur la modélisation de l’arc de coupure dans le SF6. 1997.

Cressault Y.

‘Propriétés des plasmas thermiques dans des mélanges argon-hydrogène-cuivre.’
Thèse de doctorat de l’Université Paul Sabatier, Toulouse III (2001)

Delannoy Y., Alemany C., Li K.I., Proulx P., Trassy C.

‘Plasma refining process to refine solar-grade silicon.’
Sol. Energy Mater. Sol. Cells, **72**, p69, 2002

Deron C., Rivière P., Perrin M-Y., Soufiani A.

‘Modelling Radiative properties of LTE air atmospheric plasmas.’
XV° Conference on Gases Discharges and their Applications, Toulouse, France, septembre 2004

Devoto R.S., Bauder U.H., Cailleteau J., Shires E.

‘Air transport coefficient from electric arcs measurements.’
Phys. Fluid. 21, (**4**), p552, 1978

Dixon C. M., Yan J.D., Fang T.C.

‘A comparison of three radiation models for the calculation of nozzle arcs.’
J. Phys. D: Appl. Phys. **37**, 3309–3318, 2004

Dolbec R., Bolduc M., Fan X., Guo J., Jurewicz J., Xue S., Boulos M.I.

‘Synthesis of Nanopowders and Their Production at the Industrial Scale Using the Inductively-Coupled Plasma Technology.’
11° Annual Conference NSTI Nanotech, Boston, USA, juin 2008.

Dresvin S. et. al.

‘Physics and Technology of low-temperatures plasmas’ (Ed. H.V.Eckert) Iowa State University Press, Ames, Iowa, 1977

Eby S. D. et. al.

‘Modelling radiative transfer in SF6 circuit-breaker arcs with the P-1 approximation.’
J. Phys. D : Applied Phys., **31**, p1578, 1998

Einhaus R., Sarti D., Hässler C., Trassy C., Delannoy Y., DeWolf S., Ferrazza F., Martinuzzi S., Warta W.

‘Purification of low quality silicium feedstock for solar cell fabrication.’
IEEE Conference on Photovoltaïque Applications, Anchorage, USA, p221-4, 2000
Proceedings of the International Conference 21° European Photovoltaic Solar Energy Conference, Dresden, Germany, 4 - 8 September 2006

El-Hage M., Mostaghimi J., Boulos M.I.

‘A turbulent flow model for the RF inductively coupled plasma.’
J. Appl. Phys., **65**, 4178, 1989

Erraki A.

‘Etude des transferts radiatifs dans les plasmas thermiques : application au SF6 et au mélange argon-fer.’, Thèse de doctorat de l'Université Paul Sabatier, Toulouse III (1999)

Essoltani A., Proulx P., Boulos M.I.

‘Effect of the presence of iron vapours on the volumetric emission of Ar/Fe and Ar/Fe/H2 plasmas.’
Plasma Chemistry and Plasma Processing, **14** (3), p301, 1994

Freton P., Gleizes A., Gonzalez J-J., Razafinimanana M.

‘Plasma characteristics in a cutting plasma torch.’
J. Phys. D: Appl. Phys., **35**, p115, 2002

Foley H.M.

‘The pressure Broadening of spectral lines.’
Physical Review, **69** (11, 12), p616, 1945

Fujimoto T.

‘A collisional-radiative model for helium and its application for a discharge plasma.’
J.Q.S.R.T., **21**, 439, 1979

Gleizes A., Erraki A., Naghizadeh-Kashani Y., Riad H.

‘Experimental measurements on a DC plasma torch : comp with theoretical model.’
XXIII^o ICPIG proceedings, Toulouse, France, july 1997

Gleizes A., Rahmani B., Gonzalez J-J., Liani B.

J. Phys. D : Applied Phys., **24**, p1300, 1991

Gleizes A., Gonzalez J-J., Liani B., Raynal G.

J. Phys. D : Applied Phys., **26**, p1921, 1993

Gongassian M.

‘Etude théorique du rayonnement émis par un plasma d’hexafluorure de soufre’, Thèse de l’université Paul Sabatier de Toulouse, n°67, 1986.

Grant I.P.

‘Calculations of Gaunt factors for free free transitions near positive ions.’
Mon. Not. R. Astron. Soc., **118**, p241, 1958

Griem H.R.

‘Spectral line broadening by plasmas.’, Academic Press, New York, 1974

Hofsaess D.

‘Emission continua of rare gas plasma.’

J.Q.S.R.T., **19**, p339, 1978

‘Photoionisation cross sections calculated by scaled thomas-fermi potential method.’
Atomic Data and Nuclear Data Tables, **24**, p285, 1979

Huang M., Hanselman D.S., Pengyuan Y., Hieftje G.M.

‘Isocontour maps of e- temperature and number density and gas kinetic temperature in the Ar ICP obtained by laser light Thomson and Rayleigh scattering.’

Huang M., Lehn S.A., Andrews E.J., Hieftje G.M.

Spectrochimica Acta, **47B** (6), 765, 1992

‘Comparison of electron temperatures gas kinetic temperatures and excitation temperatures in argon ICPs’

Spectrochimica Acta, **52B**, p1173, 1997

Juquois F.

‘Marche du solaire photovoltaïque en France 1992-2004’, rapport de l’ADEME, 2005

Kannappan D., Bose K.

‘Transport properties of a two T argon plasma.’

The Physics of Fluids, **20** (10), p1668, 1977

Kornblum G.R., De Galan L.

‘Spatial distribution of the temperature and the number densities of electrons and atomic and ionic species in ICP RF plasma.’

Spectrochimica Acta, **32B**, p71, 1977

Koval'skaya G.A., Sevast'Yanenko V.G., Soloukhin R.I.

‘Radiant Heat Transfer in a Hydrogen Plasma.’

Inzhenerno-Fizicheskii Zhurnal, **45**, 6, 1983

Inzhenerno-Fizicheskii Zhurnal, **42**, p1424, 1984

Kurucz

<http://cfa-www.harvard.edu/amdata/ampdata/kurucz23/sekur.html>

Lange R., Schlüter D.

‘Free Free Emission Continuum of weakly non ideal argon plasmas.’

J.Q.S.R.T., **48** (2), 153, 1992

Launder B. E., Spalding D. B.

‘The numerical computation of turbulent flows.’

Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering **3**, 269, 1974

Liani B., Rahmouni M., Belbachir A.H., Riad H., Gleizes A.

‘Computation of NEC of CH₄-H₂ thermal plasmas.’

J. Phys. D : Applied Phys., **30**, p2694, 1997

Lindholm E.

‘Pressure Broadening of Spectral Lines’

Arkiv för Matematik Astronomi och Fysik, **32A** (17), p1, 1945

Lowke J. J.

JQSRT, **9**, 839, 1969

‘Prediction of arc temperature profiles using approximate emission coefficients for radiation losses.’

JQSRT, **14**, 111, 1974

Menart J.

‘Radiative transport in a 2D axisymmetric thermal plasma using S-N DO method a line-by-line basis.’

J. Phys. D : Applied Phys., **33**, 257, 2000

Mermet J.M.

‘Comparaison des temp et densites d'e- mesurees sur le plasmagene et des elements excites dans un plasma HF.’

Spectrochimica Acta, **30B**, p383, 1975

Michaud E.

‘Influence des Paramètres Géométriques et Aérodynamiques d’une Torche à Plasma Haute Fréquence sur les Performances Spectroanalytiques’, Thèse de l’INSA Lyon, France, 1983

Modest M. F.

‘Radiative Heat Transfer’, Second Edition
Academic Press, 2003

Modest M. F. , Sikka K.K.

‘Stepwise gray P-1 approximation for multidimensional radiative transfer in molecular-gas-particulate mixtures.’

J.Q.S.R.T., **48** (2), p159, 1992

Mostaghimi M., Boulos M.I.

‘Effect of frequency on LTE conditions in ICP Ar plasma at atmospheric pressure.’

J. Appl. Phys., **68** (6), 2643, 1990

Mostaghimi M., Proulx P., Boulos M.I.

‘A 2-temperature model for the inductively coupled RF plasma.’

J. Appl. Phys. **61** (5), p1753, 1987

‘An analysis of the computer modelling of the flow and temperature fields in an inductively coupled plasma.’

Numerical Heat Transfer, **8**, 187, 1985

‘Parametric study of the flow and temperature fields in an inductively coupled rf plasma torch.’

Plasma Chemistry and Plasma Processing, **4** (3), p199, 1984

Naghizadeh-Kashani Y., Cressault Y., Gleizes A.

‘Net emission coefficient of air thermal Plasmas.’

J. Phys. D: Appl. Phys., **35**, p2925, 2002

Naghizadeh-Kashani Y.

‘Calcul du transfert radiatif dans un plasma d’air’, Thèse de l’université Toulouse 3, Toulouse, France, 1999

Nestor O., Olsen H.

‘Numerical methods for reducing line and surface probe data.’

SIAM Reviews, 2(3), p200, 1960

NIST

http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html

Pasquiers S.

‘Removal of pollutants by plasma catalytic processes.’

14th International Colloquium on Plasma Processes (CIP 2003), Antibes Juan les Pins (29 juin - 3 juillet 2003). Abstracts, SFV éditions, p.147-149.

Pateyron B., Delluc G., Calvé N.

‘T&Twinner, la chimie et les propriétés de transport en ligne, dans l’intervalle de 300K à 20000K.’

Mécanique et Industries, **6**, p651, 2005

Pateyron B. Katsonis C.

‘Propriétés thermodynamiques et coefficients de transport.’

Journées du Réseau Plasmas Froids, Le Tolosan (31), 2-3 juin 2003

Paul K .C.

‘Predicted Results of a HID DC Current Lamp Considering a P-1 Radiation Model.’

IEEE Transaction on Plasma Science, **32** (1), p118, 2004

Pelletier D.

‘Modélisation de la cinétique chimique dans les plasmas inductifs – Applications aux procédés’,
Thèse de l’Institut National Polytechnique de Grenoble soutenue le 08 septembre 2006

Raynal G. et Gleizes A.

‘Radiative transfer calculation in SF6 arc plasmas using , partial characteristics.’

Plasma Sources Science and Technology, **4**, 152, 1995

Reed T.

‘Induction coupled plasma torch.’

Journal of Applied Physics, **32**(5), p821, 1961

Regt J.M., Engel R.A.H., de Groote F.P.J., van der Müllen J.A.M., Schram D.C.

‘Thomson scattering experiments on a 100 MHz inductively coupled plasma calibrated by Raman scattering.’

Rev. Sci. Instrum. **66** (5), 1995

Schlüter D.

‘Gaunt factors for free free transitions in the field of the first ions of rare gases.’

Z. Phys. D - Atoms, Molecules and Clusters, **6**, p249, 1987

‘Gaunt factors for free free transitions in the field of positive ions of C,N,O calculated in the Scaled Thomas Fermi potential.’

Z. Phys. D - Atoms, Molecules and Clusters, **11**, p273, 1989

Sevast’Yanenko V. G.

‘Radiant Heat Transfer in a Real Spectrum.’

Heat Transfer Soviet Research, **9** (5), p36, 1977

‘Radiant Heat Transfer in a Real Spectrum : integration over frequency.’

Inzhenerno-Fizicheskii Zhurnal, **36** (2), p218, 1979

‘Radiant Heat Transfer in a Real Spectrum : integration with respect to the frequency and angles.’

Inzhenerno-Fizicheskii Zhurnal, **38** (2), 1980

Simonet F.

‘Optimisation du calcul du flux spectrique dans les lampes à décharge haute pression. Applications’, Thèse de doctorat de l’Université Paul Sabatier soutenue le 18 décembre 1997, n° : 2883

Soloukhin R.I.

‘Handbook of Radiative Heat Transfer in High Temperature Gases’, Hemisphere Publishing Corp, 1984

Soric A.

‘Influence de la polarisation sur la purification du silicium par plasma thermique. Etude du transfert de matière et contrôle du procédé en ligne par OES et de la pureté par LIBS’, Thèse de doctorat de l’Université Pierre et Marie Curie soutenue le 14 décembre 2006.

T&Twinner, 2006

Code de calcul des propriétés thermodynamiques d’un gaz, 2006

http://ttwinner.free.fr/welcome_fichiers/page0001.htm#white

Tanaka Y.

‘Two temperature chemicaly non equilibrium of high power Ar N2 ICP at atmospheric pressure.’ J. Phys. D: Appl. Phys., **37**, 1190, 2004

Tazeem A.

Diagnostic spectroscopique d’un procédé de dépôt de couche diamant assisté par plasma à pression atmosphérique.’, Thèse de doctorat de l’INSA de Lyon soutenue en 1999.

Trassy C. et Tazeem A.

‘Simulation of atomic and ionic absorption and emission spectra for thermal plasma diagnostics: application to a volatilisation study in a plasma jet.’ Spectrochimica Acta Part B, **54**, 581, 199

Traving G.

‘Interpretation of line broadening and line shift’, in: W. Lochte-Holtgreven Ed. Plasma Diagnostic, North Holland Publishing Company, Amsterdam, 1968, Chap. 2.

Van der Heijden H. W.

‘Modelling of Radiative Transfer in Light Sources’, Thèse de Doctorat, Université de Eindhoven, 2003

Van de Sande M.J., van Eck P., Sola A., van der Mullen J.

The relation between internal and external parameters of a spectrochemical inductively coupled plasma.’ Spectrochimica Acta Part **57B**, p829–842, 2002

Xue S., Proulx P., Boulos M.I.

‘Extended field electromagnetic model for ICP.’ J. Phys. D : Appl. Phys. **34**, p1897, 2001

‘Modelling the effect of ferrite on an ICP torch I : infinite ferrite permeability.’

J. Phys. D : Appl. Phys. **35**, p1123, 2002

‘Modelling the effect of ferrite on an ICP torch II : finite ferrite permeability.’

J. Phys. D : Appl. Phys. **35**, p1131, 2002

Yang P., Barnes, R.M.

‘A low power oxygen ICP for spectrochemical analysis I-Computer analysis.’

Spectrochimica Acta, 44B (11), p1093, 1989

