



HAL
open science

Etude d'un micro-jet de plasma à pression atmosphérique

Claire Douat

► **To cite this version:**

Claire Douat. Etude d'un micro-jet de plasma à pression atmosphérique. Autre [cond-mat.other].
Université Paris Sud - Paris XI, 2014. Français. NNT : 2014PA112028 . tel-00960400

HAL Id: tel-00960400

<https://theses.hal.science/tel-00960400>

Submitted on 17 Apr 2014

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.

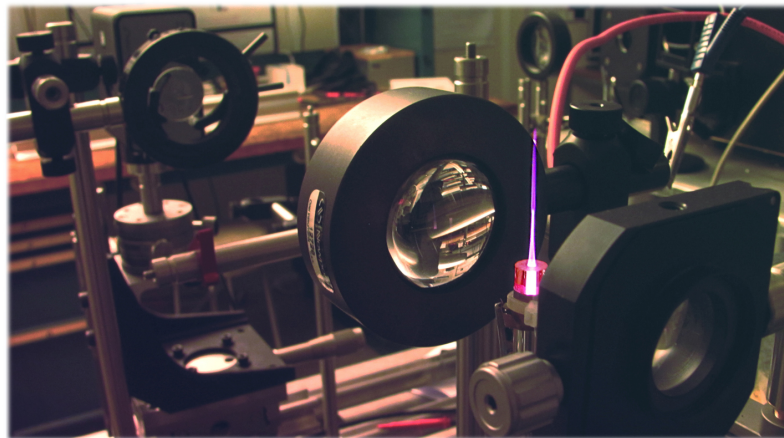
L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Université Paris-Sud
Ecole doctorale Ondes et Matière
Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas
Discipline : Physique des Plasmas

Thèse de Doctorat
Soutenue le 17 février 2014
par

Claire DOUAT



Étude d'un micro-jet de plasma à pression atmosphérique

Composition du jury

Directeur de Thèse	Vincent Puech	Dir. de recherche au CNRS, LPGP, Orsay
President du jury	Jean-Marcel Rax	Prof. à l'université Paris Sud XI, LOA, Palaiseau
Rapporteurs	Christophe Laux	Prof. à l'Ecole Centrale Paris, EM2C, Châtenay-Malabry
	Jean-Michel Pouvesle	Dir. de recherche au CNRS, GREMI, Orléans
Examineurs	Pierre-Marie Girard	Chargé de recherche au CNRS, Institut Curie, Orsay
	Leanne Pitchford	Dir. de recherche au CNRS, LAPLACE, Toulouse
	Nader Sadeghi	Dir. de recherche au CNRS, LiPhy, Grenoble

*Je dédicace cette thèse à mon ami défunt Guillaume,
à mon Vincent,
à mes parents
et à mes sœurs*

Remerciements

Cette thèse représente le résultat de plus de trois ans de travail. Durant cette période, j'ai rencontré beaucoup de gens, qui m'ont tous aidé de manière plus ou moins directe, et je tiens à tous les remercier.

Je souhaite tout d'abord remercier Vincent Puerch, qui sans lui, l'élaboration de ce travail n'aurait pas eu lieu. S'il n'y avait eu beaucoup de chance de l'avoir comme directeur. Tu m'as beaucoup appris. S'il est également été surpris par la constance que tu m'as accordée : toutes les conférences où je me suis rendu m'ont beaucoup apporté et m'ont permis de faire la connaissance de chercheurs issus du monde entier. S'il a aussi eu beaucoup de chance au niveau technique, grâce à ton savoir-faire, tu as toujours su me procurer le matériel scientifique nécessaire pour mener à bien mes expériences. Merci aussi pour ta gentillesse et ta disponibilité.

Je voudrais ensuite remercier Jean-Michel Fauvestre et Christophe Laux d'avoir accepté d'être rapporteur de ma thèse, et Leanne Albertgard, Nadir Sadeghi, Pierre-Marie Girard et Jean-Marc Rax d'avoir fait partie de mon Jury.

De plus, je souhaite remercier Nadir pour m'avoir accueillie à Grenoble et m'avoir fait découvrir le monde de la spectroscopie, et Pierre-Marie pour m'avoir initié à l'univers de la biologie.

Merci à Soad, avec qui j'ai partagé le bureau durant quasi toute ma thèse. Tu as été comme un grand frère : toujours à l'écoute que ce soit au niveau scientifique ou personnel, et à me donner des bons conseils. Merci d'avoir été en moi. S'espère que l'avenir nous permettra de travailler de nouveau ensemble, cela ne pourrait pas me faire plus plaisir.

S'il a beaucoup apprécié travailler au sein de l'équipe DREBIO et s'il aimerait remercier chacun de ses membres : Stéphane P. (merci de toujours avoir eu la patience de répondre à toutes mes questions), Nicole, Michel (merci d'avoir toujours été présent), Gérard (merci pour ta disponibilité et ton écoute), Marc, Pascal, Bernard (toutes mes discussions vont me manquer), Pierre T., Sandrine et François. Je voudrais aussi remercier les non permanents de l'équipe : Virginie, Xavier A., Thierry K., Sabrina, Wilfried, Olivier Guya, Sara, Pierre L. et Alexis C., et également les stagiaires avec qui j'ai travaillé : Guillaume C., Alexis T. et Martin.

S'aimerais aussi remercier l'ensemble du laboratoire, et particulièrement Thierry D pour toutes les discussions que nous avons eues, Nicolas pour les bons jeux-rires au badminton, Stefano pour nos chaussettes, Sean pour nos débats et Carolina pour la gentillesse et ton écoute.

Durant cette période, j'ai également effectué un travail de montage, qui m'a indirectement beaucoup aidé, car j'ai découvert un autre monde, qui est celui de l'enseignement. Merci à tous mes étudiants et à mes encadrants : Pierre Tardiveau, Clément Cabot et Catherine Kroegh. S'aimerais également remercier Daniel Nuharoff, qui fut mon tuteur durant ce masterat. Merci pour toutes les discussions qui vont rarement me manquer.

Se souhaiterais aussi remercier les amis étrangers, avec qui j'ai passé de bons moments : Ilya, Guillaume M, Aurora, Bob, Yoann, Michael P, et également tous ceux que j'ai pu rencontrer lors des différentes conférences.

Merci aussi à mes amis : Capino, SuPlan, Jérôme, Stefano I, Stefano D, Maximilien, Thibo, Axel et particulièrement Xavier G : tu as toujours été là pour m'écouter dans les bons comme dans les mauvais moments. Ta bonne humeur et ton soutien m'ont toujours donné le goût et le moral.

S'aimerais aussi remercier quelqu'un qui n'était pas là physiquement, mais que j'ai toujours senti près de moi. Depuis ton départ je sais que tu veilles sur moi et que tu es guidé mes pas. Tu étais et tu resteras ma lumière. Merci Guillaume.

Merci aussi à ma famille d'avoir toujours cru en moi et de m'avoir soutenu, merci à mes parents de m'avoir donné la possibilité d'en arriver jusqu'à là, merci à mes sœurs d'avoir toujours été là et merci à ma bonne Maman pour ses encouragements.

Pour finir j'aimerais remercier Mon Vincent qui a toujours été présent quel que soit les circonstances. Sans toi cette vie ne se serait pas aussi bien passée.

Résumé

Ces dernières années un nouveau type de décharges hors équilibre thermodynamique, aptes à générer des micro jets de plasma se propageant en atmosphère libre, a suscité beaucoup d'intérêt dans la communauté scientifique. Ces micro jets, produits dans des structures type décharge à barrière diélectrique, ont des propriétés particulièrement intéressantes, tant sur le plan de la physique des plasmas que sur celui des applications, en particulier pour des applications biomédicales ou de traitement de surface.

Dans ce travail de thèse il est démontré que ces jets de plasma correspondent à la propagation à grande vitesse d'un front d'ionisation sans déplacement de matière. Une caractérisation des propriétés des jets (vitesse et distance de propagation) a été effectuée en fonction de la tension appliquée, du débit, de la composition du gaz, et de la géométrie de la décharge. La distribution spatio-temporelle des espèces réactives produites par le jet a été mesurée, et en particulier celle de l'état métastable He (23S) mesuré par absorption laser. Des densités comprises entre 1.1012 et 5.1013 cm⁻³ ont été obtenues pour l'état He (23S). Sa distribution est annulaire à la sortie de la structure de la décharge et se referme le long du jet. La densité maximale est obtenue à une distance correspondant à la moitié de la zone où les atomes métastables sont présents, ce qui est en contradiction avec les modèles actuels. De plus, afin de mieux comprendre la physique des jets de plasma, nous avons fait interagir deux jets placés l'un en face de l'autre. L'étude de la contre propagation de deux jets révèle qu'il existe une distance minimale d'approche laissant entre eux une zone exempte de plasma. Après l'extinction des deux plasmas, une seconde décharge s'amorce exactement dans cette zone. Une étude détaillée couplant diagnostics électrique, imagerie ultra-rapide et spectroscopie d'émission nous a permis de montrer que cette décharge secondaire est due à une inversion de polarité conduisant à la création transitoire d'un piège à électrons.

Dans le but d'aborder l'étude des applications des jets de plasma au domaine biologique, nous avons également étudié la dégradation de l'ADN plasmidique par un jet de plasma. Nous avons mis en évidence que ce type de plasma induit majoritairement des cassures simples et doubles brins, alors que très peu d'oxydations de base ou de sites abasiques sont observés, ceci même avec l'ajout de quelques pourcents d'oxygène dans le gaz.

Abstract

Micro plasma jets operating at atmospheric pressure in free atmosphere have recently attracted great attention because of their numerous advantages. In fact, micro plasma jets can be operated stably at atmospheric pressure and propagated over some centimeters in a free atmosphere. Moreover, these jets are non-thermal plasmas and create numerous reactive species. These properties allow to use this kind of plasma in many applications, such as surface treatment, decontamination, and plasma medicine.

In this work it is shown that these micro plasma jets correspond to the fast propagation of an ionization front with no displacement of matter. A characterization of the plasma properties (e.g. distance and velocity of propagation) has been done as a function of the applied voltage, gas flow, gas composition and discharge geometry. The spatiotemporal distribution of the reactive species created by the plasma has been measured, with a special focus on the helium metastable atoms which have been measured by absorption laser spectroscopy. The helium metastable atom densities obtained are in the range of 1.10^{12} to 5.10^{13} cm^{-3} . Thanks to a very good spatiotemporal resolution, we have done a time-resolved full cartography of the plasma. This allowed us to show that the helium metastable atom distribution is annular near the nozzle and becomes circular as the plasma propagates. The maximum helium metastable atoms density has been measured at about half of the distance where the helium metastable atoms are present. This observation is in contradiction with results reported by numerical models. To gain further insight into the physical processes of the plasma, we have placed two micro plasma jets face to face. This study showed that both plasmas interact in such a way that they never come into contact, leaving a space free of plasma between them. Moreover, we revealed that after the extinction of the plasmas, a second discharge is ignited in the previously free space. Fast imaging, spectroscopy diagnostics and electrical measurements showed that this second discharge is due to a polarity reversal, which creates an electron trap. Aiming the study of the application of micro plasma jets in the plasma medicine field, we have studied the degradation of plasmid DNA by our plasma jet. We observed that the plasma treatment leads mostly to single and double strands breaks, and to very little base oxidation and abasite site, even when oxygen is added into the gas mixture.

Index

ADN : acide désoxyribonucléique

C : « Cicular » : ADN sous forme circulaire

CCD : Charge-Couple-Device

COV : Composé Organique Volatile

DBD : Décharge à Barrière Diélectrique

HT : Haute Tension

ICCD : « Intensified Charge Couple Device »

L : « Linear » : ADN sous forme linéaire

LIF : Laser Induced Fluorescence

MBMS : « Molecular Beam Mass Spectrometry »

mM : millimolaire = mmol/L

Pampa : Plasmas : Micro-jets à Pression Atmosphérique

PBS : « phosphate buffered saline » : Tampon Phosphate Salin

pH : Potentiel Hydrogen

pKa : Constante d'acidité d'un équilibre acido-basique

Re : Nombre de Reynolds

RF : Radiofréquence

RNS : Reactive Nitrogen Species

RONs : Reactive Oxygen and Nitrogen Species

ROS : Reactive Oxygène Species

SC : « Supercoiled » : ADN sous forme superenroulé

sccm : « Standard Cubic Centimeters per Minute ».

slm : « Standard Liter per Minute ».

TALIF : Two-photons absorption laser-induced fluorescence spectroscopy

UV : Rayonnement ultra violet

Elément chimique**Ar** : Argon**CF₄** : tétrafluorure de carbone**HCl** : Acide chlorhydrique**He** : Hélium**He*** : Etat excité de l'azote (radiatif ou métastable)**He^m** : atome métastable d'hélium**HNO₂** : Acide nitreux**HNO₃** : Acide nitrique**N₂** : Azote**N*** : Etat excité de l'azote atomique (radiatif ou métastable)**N₂*** : Etat excité de l'azote moléculaire (radiatif ou métastable)**NaCl** : Chlorure de Sodium**NaOH** : Hydroxyde de Sodium : Soude**Ne** : Néon**NO** : Monoxyde d'azote**O₂** : Oxygène**O₂*** : Etat excité de l'azote moléculaire (radiatif ou métastable)**O*** : Etat excité de l'azote atomique (radiatif ou métastable)**OH** : Radical Hydroxyde

Table des matières

Remerciements.....	5
Résumé	7
Abstract	9
Index.....	11
Table des matières	13
Chapitre 1 : Introduction des micro-jets de plasma : de la physique aux applications	19
1.1 Généralité sur les plasmas	19
1.2 Les plasmas de décharge.....	20
1.2.1 Généralités	20
1.2.2 Mécanisme de création d'une décharge.....	20
1.2.2.1 Claquage de type Townsend	22
1.2.2.2 Décharge de type Streamer	24
1.2.2.2.1 L'avalanche électronique.....	24
1.2.2.2.2 Propagation du streamer	25
Streamer positif ou dirigé vers la cathode	25
Streamer négatif ou dirigé vers l'anode	26
1.2.2.2.3 Création du filament ou de l'arc.....	27
1.2.2.3 Décharge à pression atmosphérique	27
1.3 Les micro-plasmas.....	28
1.4 Etat de l'art des micro-jets de plasma.....	29
1.4.1 Historique.....	29
1.4.2 Type d'excitation	30
1.4.3 Décharges kHz	31
1.4.4 Le «balle de plasma»	33
1.4.4.1 Historique.....	33
1.4.4.2 Vitesse de propagation du plasma	35
1.4.4.3 Un streamer guidé.....	35
1.4.5 Polarité	37
1.4.6 Structure annulaire	38
1.4.7 Densité des espèces	39
1.5 Objectif et plan de la thèse.....	40

Chapitre 2 : Dispositif expérimental	43
2.1 La décharge	43
2.2 Diagnostics	46
2.2.1 Diagnostics électriques.....	47
2.2.1.1 Oscilloscope.....	47
2.2.1.2 Sonde de tension.....	47
2.2.1.3 Sonde de courant	47
2.2.1.3.1 Mesure du courant de décharge.....	48
2.2.1.3.2 Courant dans le jet.....	50
2.2.1.4 Mesure de l'énergie	51
2.2.2 Imagerie	52
2.2.2.1 Caméra CCD	52
2.2.2.2 Imagerie ultra-rapide	54
2.2.2.3 Mesure de la vitesse de propagation du front d'ionisation	56
2.2.2.4 Imagerie filtrée en longueur d'onde	56
2.2.2.5 Coupe axiale et transversale	58
2.2.3 Spectroscopie d'émission.....	58
2.2.3.1 Principe physique.....	59
2.2.3.2 Dispositif.....	60
2.2.3.3 Détermination de la température du gaz.....	61
2.2.4 Spectroscopie d'absorption	63
2.2.4.1 Loi de Beer-Lambert.....	63
2.2.4.2 L'élargissement de la raie	65
2.2.4.2.1 Cause de l'élargissement spectral	65
Elargissement Doppler.....	65
Elargissement de pression résonant.....	66
Elargissement de pression non résonant (élargissement de Van der Waals)66	
2.2.4.2.2 Mesure de l'élargissement de la raie	67
2.2.4.3 Calcul théorique de la densité moyenne de He ^m	70
2.2.4.4 Dispositif expérimental	71
2.2.4.5 Résolution spatiale de la mesure.....	72
2.2.4.6 Traitement du signal	72
2.2.4.7 Inversion d'Abel.....	73
2.2.4.7.1 Méthode n°1 : Inversion d'Abel par l'algorithme BD.....	75
2.2.4.7.2 Méthode n°2 : Inversion d'Abel contraire.....	78
Etape n°1 :.....	78
Etape n°2 :.....	78
Etape n°3 :.....	79
Fiabilité de la méthode :	80
2.2.4.7.3 Comparaison des deux méthodes.....	82

Chapitre 3 : Caractérisation des jets de plasma : imagerie et mesures électriques	85
3.1 Pourquoi avoir étudié des décharges différentes ?	85
3.1.1 L'histoire	85
3.1.2 Dimension des trois décharges	86
3.1.3 Jets de plasma pour différents gaz rares.....	86
3.1.4 Toutes les décharges étudiées sont-elles comparables ?.....	91
3.2 Tension appliquée	92
3.3 Débit de gaz.....	96
3.4 Ajout de gaz moléculaire	101
3.5 Position des électrodes	106
3.5.1 Dimension de la décharge	106
3.5.2 Diagnostics d'imagerie	107
3.5.3 Diagnostics électriques.....	110
3.5.3.1 Courant capacitif	110
3.5.3.2 Courant de décharge	112
3.6 Conclusion	115
Chapitre 4 : Distribution spatio-temporelle des états excités	117
4.1 Introduction.....	117
4.2 Dispositif expérimental.....	118
4.3 Résultats expérimentaux	119
4.3.1 Profil de l'absorbance au cours du temps	119
4.3.2 Modélisation de la cinétique dans une décharge d'hélium	123
Paramètres électriques.....	125
Sections efficaces et composition du gaz.....	126
Réactions cinétiques	127
4.3.3 Mesure de la densité d'atomes métastable d'hélium	136
4.3.4 Imagerie filtrée en longueur d'onde.....	146
4.4 Conclusions	153
Chapitre 5 : Interaction de deux jets de plasma.....	155
5.1 Objectif et état de l'art.....	155
5.2 Dispositif.....	157
5.3 Deux débits de gaz séparés.....	158
5.4 Un débit de gaz unique	164
5.4.1 Imagerie du plasma.....	164
5.4.2 Evolution spatio-temporelle du plasma.....	166
5.4.3 Décharge secondaire.....	171

Chapitre 6 : Etude de dommages induits par un jet de plasma sur de l'ADN plasmidique	179
6.1 Etat de l'art.....	180
6.2 Quelques notions de biologie	181
6.2.1 L'ADN	181
6.2.2 Les plasmides	182
6.2.3 Solutions Tampons	183
6.3 Diagnostics	184
6.3.1 Electrophorèse.....	184
6.3.2 Enzymes de modification de l'ADN : les glycosylases et AP endonucléase 184	
6.4 Dispositif	185
6.5 Quels sont les agents susceptibles d'induire des dommages à l'ADN ?.....	186
Les UV	186
Les espèces réactive de l'oxygène et de l'azote.....	186
Les atomes métastables d'hélium et ses dérivés (He^m , He_2^m ,...)	187
Le champ électrique	187
Les électrons	187
Les ions.....	187
6.6 Résultats.....	187
6.6.1 Premiers résultats	187
6.6.2 Choix de la solution tampon.....	190
6.6.3 Variation du pH.....	192
6.6.4 Comparaison d'un jet immergé et en effleurement	194
6.6.5 Ajout d'oxygène.....	195
6.7 Résumé, conclusion et perspectives.....	198
 Conclusions et perspectives	 199
 Bibliographie	 203

Chapitre 1 : Introduction des micro-jets de plasma : de la physique aux applications

1.1 Généralité sur les plasmas

C'est en 1928, que le mot plasma fut introduit pour la première fois par Ivring Langmuir pour désigner un gaz ionisé [1]. Il le nomma ainsi par analogie aux plasmas sanguins à cause du transport des particules qui lui rappelait celui des cellules sanguines dans le plasma sanguin. Les plasmas, dit « physiques », sont communément appelés « le quatrième état de la matière », dont les trois autres sont l'état solide, liquide et gazeux. Les plasmas représentent 99% de la matière connue dans l'univers : la plupart des objets célestes sont composés de plasma, comme les étoiles, les nuages interstellaires et les comètes. Par contre à notre échelle, sur Terre, il en existe très peu à l'état naturel. Les rares endroits où il est possible d'en rencontrer sont les aurores boréales, les éclairs et les flammes.

Aujourd'hui les plasmas sont utilisés dans divers domaines et constituent désormais une branche active et innovante de la physique appliquée. Ils sont largement utilisés dans le domaine de la microélectronique. Par exemple pour créer des micro-composants, tels que des microprocesseurs : certains réacteurs à plasma sont capables de graver des motifs ayant des tailles de l'ordre du micromètre. D'autres sortes de réacteurs quant à eux, permettent de déposer de très fines couches pouvant aller jusqu'à des épaisseurs de l'ordre du nanomètre, un atout très utilisé pour la fabrication des semi-conducteurs. Mais les plasmas sont aussi largement utilisés dans le domaine de la combustion, de la propulsion spatiale et de l'éclairage (tube fluorescent et écran à télévision plasma).

A l'heure actuelle, les plasmas sont encore très étudiés et nous promettent encore de nouvelles technologies. Par exemple, un grand projet du moment est celui du projet ITER, dont le but est d'obtenir une nouvelle source d'énergie en utilisant la fusion thermonucléaire. Si les objectifs de ce projet ambitieux sont atteints, cela permettrait de fournir l'énergie nécessaire à la Terre durant plus de 1000 ans [2].

A l'inverse, d'autres sortes de plasmas, dits « froids », nous réservent d'autres applications très prometteuses comme la stérilisation et les applications biomédicales. Ces types de plasmas sont capables d'interagir avec la matière vivante sans la brûler et offrent alors un ensemble d'applications possibles, particulièrement dans le domaine de la cancérologie, de l'odontologie et de la dermatologie. Ce nouveau domaine suscite un intérêt croissant depuis quelques années.

Le plasma est un gaz ionisé. C'est-à-dire qu'il est composé d'ions et d'électrons. A la différence d'un gaz, dans un plasma, certains électrons ne sont plus liés à leur atome, ils peuvent se déplacer librement. On les nomme alors « électrons libres ». Ces électrons quittent le potentiel attractif de l'atome si une énergie suffisante y est apportée. Cette énergie peut être soit d'origine thermique (le soleil), lumineuse (nuages interstellaires) ou électrique (décharge). Mais il ne suffit pas à un gaz d'avoir un électron libre pour se nommer plasma. Il faut que la densité électronique soit suffisamment importante par rapport à la densité totale des espèces pour qu'il se produise un comportement collectif et une certaine réactivité ($\alpha \approx 10^{-5}$) [2]. Le paramètre représentant ce rapport est le coefficient d'ionisation, qui est un des paramètres importants du plasma. Il représente le rapport de la densité électronique n_e sur la densité totale d'électrons et d'espèces non ionisé n_n (nommés « neutre »).

$$\alpha = \frac{n_e}{n_e + n_n} \quad (1)$$

Généralement on répartit les plasmas en deux catégories : les plasmas chauds et les plasmas froids. Les plasmas chauds sont pour la plupart des plasmas totalement ionisés, c'est-à-dire que le coefficient d'ionisation « α » est très proche voire égale à 1. Dans ce cas, il n'y a plus de neutres et la température des espèces chargées s'élève bien souvent à des températures au-delà du million de degrés. Le soleil en est un exemple, où la température interne s'élève à 15 millions de kelvin. A l'inverse les plasmas froids, sont des plasmas faiblement ionisés ($\alpha \ll 1$). La température des ions et des neutres est de l'ordre de la température ambiante ($T_i \approx T_n = 100-1000$ K), qui est elle même très inférieure à la température électronique, qui est de l'ordre de 10^4 à 10^5 K. Dans ce cas, on dit que le plasma est alors hors équilibre thermodynamique. Le plasma étudié au cours de cette thèse fait partie de cette catégorie.

1.2 Les plasmas de décharge

1.2.1 Généralités

Les plasmas de décharges, qui sont généralement des plasmas hors équilibres thermodynamiques (excepté les arcs), constituent un large domaine de recherche. Ils sont largement étudiés et sont utilisés dans diverses applications, comme dans la production de semi-conducteurs [3] et de l'éclairage [4]–[7]. Ce sont des plasmas dits « froids », car bien souvent la température électronique est largement supérieure à la température des ions et des neutres, qui est de l'ordre de la température ambiante (100 à 1000 K).

1.2.2 Mécanisme de création d'une décharge

Friedrich Paschen a mis en évidence que la tension de claquage, qui représente la tension pour laquelle le plasma est quasi entretenu, pour un gaz donné dépend du produit pd , où p représente la pression du gaz et d la distance inter-électrodes.

L'évolution de cette tension selon le produit pd est nommée courbe de Paschen ; quelques exemples pour différents gaz sont présentés à la Figure 1-1.

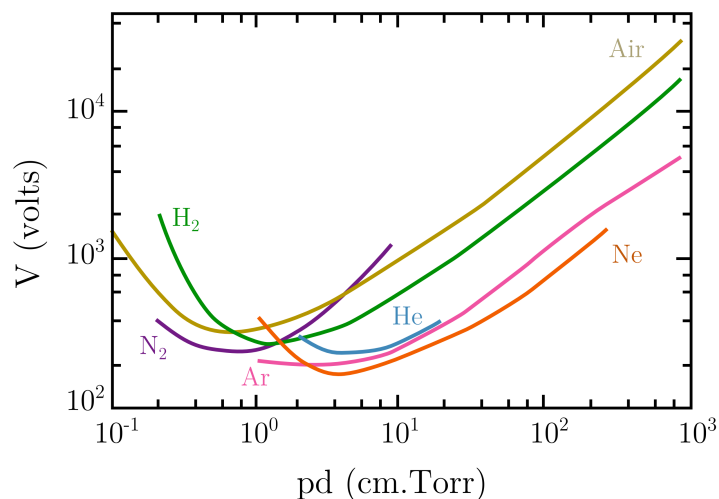


Figure 1-1 : Tension de claquage pour différents gaz selon le produit pd , où les deux électrodes sont planes et parallèles (courbes de Paschen) [8].

Pour chaque courbe de Paschen il existe une valeur pd pour laquelle la tension de claquage est minimale. L'évolution de cette courbe peut s'expliquer de la manière suivante : pour un produit pd faible, le libre parcours moyen des électrons est très grand, rendant alors la probabilité de collision ionisante faible. L'augmentation de la tension, et par conséquent du champ électrique permet d'augmenter cette probabilité. A l'inverse pour des produits pd élevés, les électrons n'emmagasinent pas suffisamment d'énergie entre deux collisions pour ioniser. Afin d'augmenter cette énergie, il est nécessaire d'augmenter le champ électrique et donc la tension aux bornes des deux électrodes. Pour une tension inférieure à celle du minimum de la courbe de Paschen, le plasma ne peut pas s'amorcer, quelque soit les conditions : pression et distance inter-électrode [2].

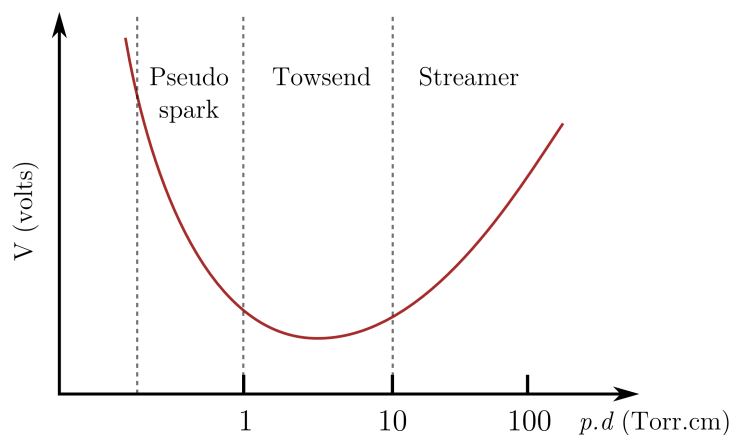


Figure 1-2 : Zoom de la courbe de Paschen.

Depuis la courbe de Paschen, trois types de claquages peuvent être distingués : le claquage de type Townsend, rencontré au niveau du minimum de la courbe de Paschen, le claquage de type streamer, rencontrée pour des produits pd élevés, et le claquage de type pseudo-spark, pour des produits pd faibles. Dans la suite, seuls les claquages de type streamer et Townsend seront présentés, car ce sont les deux qui nous intéressent.

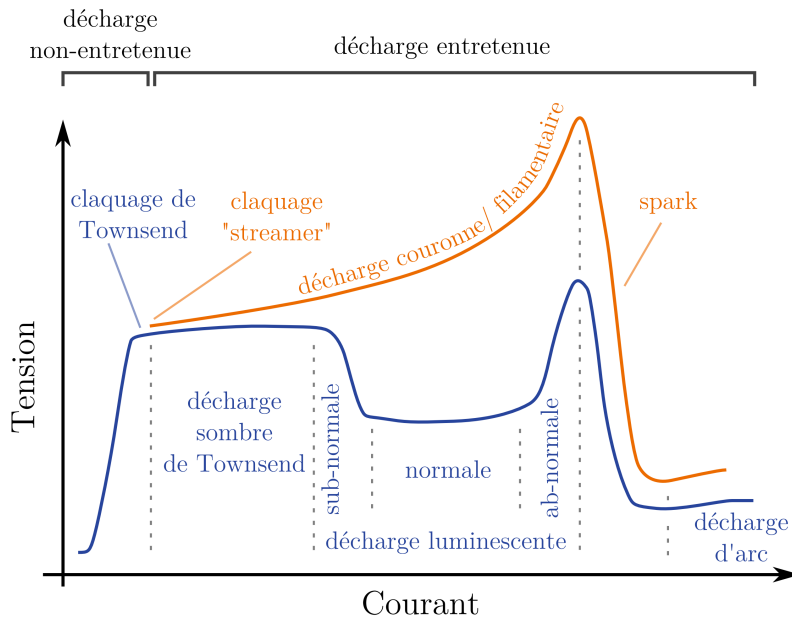


Figure 1-3 : Caractéristique courant-tension pour une décharge entre deux électrodes planes parallèles. La courbe bleue correspond aux décharges «basse pression» (< 1 mbar) et la courbe orange aux décharges observées à haute pression (autour de la pression atmosphérique). A haute pression, la décharge est généralement de type filamentaire [8]–[11].

Quel que soit le type de décharge, l'origine du processus est une avalanche électronique, dont le principe est expliqué au paragraphe 1.2.2.1. Si cette dernière n'est pas suffisamment importante, la décharge n'est pas entretenue, sauf s'il y a une source extérieure ionisante. A l'inverse, si cette avalanche est suffisamment importante, la décharge claque selon un claquage soit de type Townsend, soit de type Streamer, et la décharge est capable de s'auto-entretenir sans l'aide d'une source extérieure. La Figure 1-3 représente la courbe caractéristique courant-tension pour une décharge à haute pression (courbe orange) et à basse pression (courbe bleue). Selon le courant qui traverse le plasma différents régimes de décharge sont distinguables.

1.2.2.1 Claquage de type Townsend

A basse pression ou pour des valeurs basses du produit pd , où p représente la pression du gaz et d la distance interélectrode, le processus de claquage est de type Townsend [11].

Soient deux électrodes planes placées l'une en face de l'autre et espacées d'une distance d : une différence de potentiel V est imposée entre les deux électrodes, ce qui a comme conséquence d'engendrer un champ électrique considéré comme homogène :

$$E = \frac{V}{d} \quad (2)$$

Les électrons germes provenant soit de sources naturelles (Principalement dû à la radioactivité interne de la Terre ou aux rayons cosmiques [12]), soit d'une source externe artificielle, vont être accélérés vers l'anode. Grâce à l'accélération due au champ électrique, les électrons vont emmagasiner de l'énergie cinétique. Si lors d'une collision avec un neutre cette énergie est suffisamment grande, ce dernier est ionisé. Le nouvel électron, issu de l'ionisation, est alors lui aussi accéléré par le champ et va à son tour ioniser d'autres neutres déclenchant alors une avalanche électronique. Cette réaction en cascade est schématisée sur la Figure 1-4 (avalanche primaire). Le coefficient de Townsend α décrit la génération de cette avalanche électronique. Il définit le nombre moyen de paires électron-ion créées par unité de longueur [2].

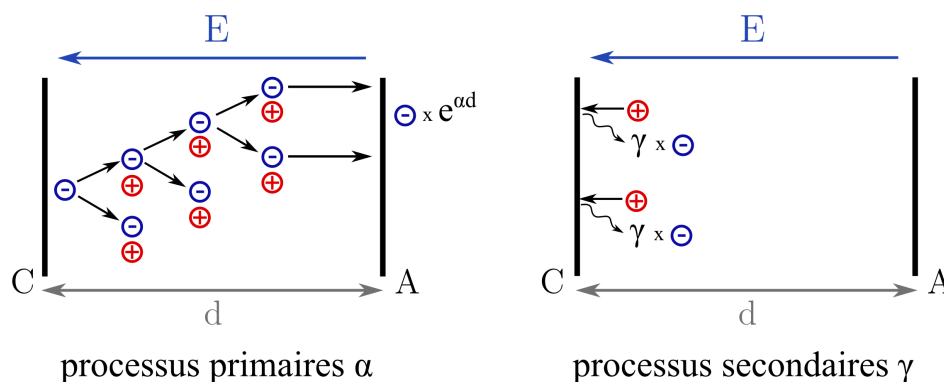


Figure 1-4 : Schémas explicatifs du mécanisme d'une décharge de type Townsend. La figure de gauche schématise les processus primaires de la décharge et, celle de droite les secondaires.

Les ions créés par l'avalanche électronique sont ensuite attirés vers la cathode, et y arrachent γ électrons. Cette situation est schématisée sur la Figure 1-4 de droite. où γ représente le second coefficient de Townsend : la valeur dépend de la nature de l'électrode et du gaz [2].

La décharge claque lorsque la tension aux bornes des électrodes atteint une tension seuil de telle sorte que l'amplification du courant tend vers l'infini, c'est-à-dire que la décharge est capable de s'entretenir par elle-même, et que les processus externes d'ionisation ne sont plus nécessaires à son entretien. Le nombre d'électrons créés est alors égal au nombre d'électrons absorbés au niveau de l'anode.

Une fois la tension de claquage atteinte, la décharge est capable de s'entretenir et selon le courant différentes catégories de décharges peuvent être distinguées (courbe bleue de la Figure 1-3) :

- **Décharge sombre de Townsend** : elle représente le premier type de décharge entretenue. Elle est caractérisée par son très faible courant (0,1 nA – 100 nA) et est nommée ainsi, car l'ionisation au sein du gaz est trop faible pour émettre une lumière notable.
- **Décharge luminescente** : elle est composée de trois sous régimes : sub-normal, normal et ab-normal. L'ionisation du gaz est causée par les électrons arrachés à la cathode par les ions (processus secondaire γ). Le courant passant à travers ce genre de décharge se situe entre 1-100 mA. C'est un plasma faiblement ionisé et hors équilibre.
- **Décharge d'arc** : Pour des courants encore plus élevés, la décharge passe en régime d'arc. Ce régime est caractérisé par son très fort courant, qui est bien souvent supérieur à la dizaine d'ampères. A l'inverse la tension est relativement faible et est inférieure à 100 V. Par rapport aux décharges luminescentes, les électrons sont émis par émission thermique ou par effet de champ. La transition entre la décharge luminescente et d'arc est souvent discontinue.

1.2.2.2 Décharge de type Streamer

Lorsque le produit « pd » (pression x distance inter-électrode) est relativement grand, l'évolution de l'avalanche électronique n'est plus simplement contrôlée par le champ extérieur. Au moment où la décharge est amorcée, les densités ioniques et électroniques deviennent si importantes qu'elles créent un champ de charge d'espace du même ordre de grandeur que le champ externe, ce qui va alors considérablement modifier le mode de propagation de l'avalanche par rapport à une décharge de type Townsend.

D'après le critère de Loeb-Meek, lorsque le nombre d'électrons créés par l'avalanche électronique dépasse un seuil critique de $N_{cr} = 10^8$, il se crée un champ de charge d'espace du même ordre de grandeur que celui du champ externe et le claquage s'amorce sous un claquage de type streamer [11]. Ce claquage est beaucoup plus rapide que celui de Townsend, car il ne nécessite pas d'attendre la migration des ions jusqu'à la cathode.

Ce mécanisme est composée de trois étapes : d'une avalanche primaire, de la propagation du ou des streamers et de la création d'un filament ou d'un arc.

1.2.2.2.1 L'avalanche électronique

Pour un produit pd élevé, l'avalanche électronique est très intense et rapide (de l'ordre de la nanoseconde), ne laissant pas le temps aux ions de migrer vers la cathode. L'évolution de cette avalanche est schématisée à la Figure 1-5 pour des temps consécutifs. A la tête de l'avalanche se trouvent les électrons, tandis que les ions sont à l'arrière. Ce dipôle électrique donne alors naissance à un champ de charge d'espace E' , qui devient significatif, lorsque le nombre d'électrons au sein de l'avalanche atteint 10^8 (critère de Loeb-Meek). A partir de cette valeur seuil, le champ E' , est du même ordre de grandeur que le champ externe, E_0 , et le champ au niveau de la tête de l'avalanche est alors déformé. La modification de ce champ accentue la vitesse de propagation de

l'avalanche vers l'anode. Cette particularité permet de distinguer un claquage de type streamer par rapport au type Townsend.

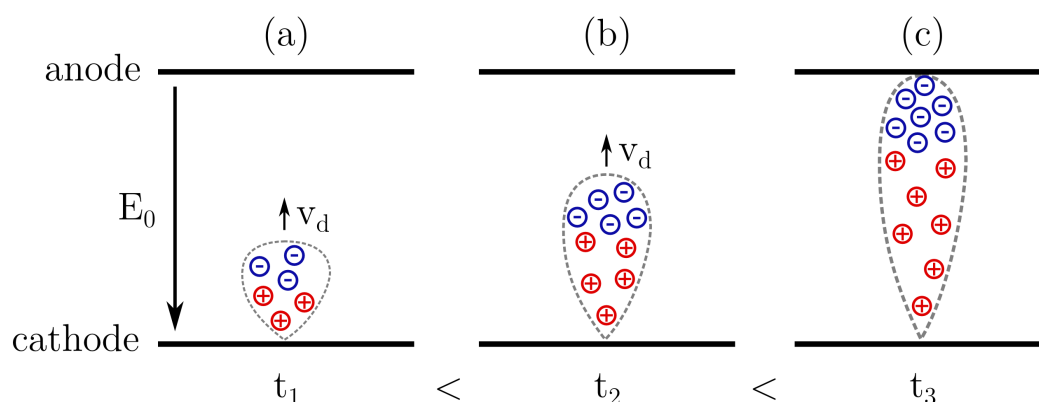


Figure 1-5 : Schéma d'une avalanche électronique.

Selon l'amplification de l'avalanche, cette dernière n'atteint pas dans tous les cas l'anode.

1.2.2.2 Propagation du streamer

Si l'avalanche électronique atteint l'anode (configuration (c) sur la Figure 1-5), les électrons sont alors absorbés par l'anode, laissant à l'arrière une nappe d'ions. Un streamer positif est alors initié et se propage vers la cathode. Si par contre l'avalanche électronique devient suffisamment importante avant d'arriver à l'anode (configuration (b) sur la Figure 1-5), c'est-à-dire, si le nombre d'électrons atteint 10^8 , alors de cette avalanche se propage deux streamers : un négatif se dirigeant vers l'anode et un positif vers la cathode. Si l'avalanche électronique est suffisamment importante avant de quitter l'anode (configuration (a)), alors un streamer négatif s'en dégage et se propage jusqu'à l'anode.

Streamer positif ou dirigé vers la cathode

Le principal mécanisme de la propagation d'un streamer positif repose sur la photoionisation, dont le principe est schématisé à la Figure 1-6. Une fois que l'avalanche secondaire arrive au niveau de l'anode, les électrons sont absorbés, laissant une nappe d'ion au niveau de l'électrode. Certaines espèces excitées durant l'avalanche primaire sont capables d'émettre un photon suffisamment énergétique pour ioniser un neutre (c'est le cas de l'azote avec l'oxygène). Les nouveaux électrons sont alors accélérés par le champ électrique total ($E_0 + E'$) vers la tête du streamer, déclenchant alors une seconde avalanche électronique. Une fois que les électrons ont atteint la tête du streamer, cette dernière est neutralisée, et les ions laissés à l'avant forment la nouvelle tête du streamer, qui va à son tour ioniser son voisinage par photoionisation et créer une nouvelle avalanche secondaire, et ainsi de suite.

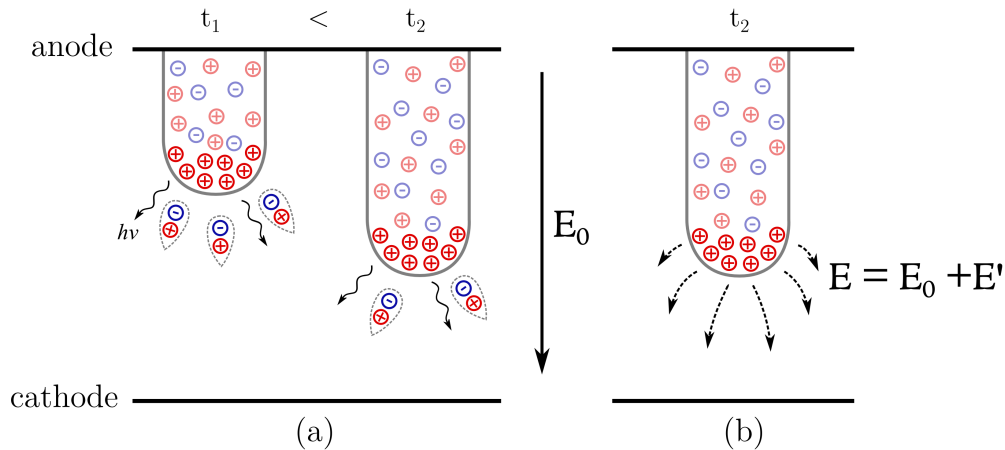


Figure 1-6 : Représentation d'un streamer positif entre deux électrodes planes. (a) Streamer positif à deux moments consécutifs. Les flèches ondulées représentent les photons responsables de la création des électrons germes. (b) Représentation des lignes de champ électrique. Les lignes en pointillées représentent la somme du champ électrique externe E_0 (ligne continue) et du champ de charge d'espace E' .

Streamer négatif ou dirigé vers l'anode

Si le critère de Meek est atteint aux alentours de la cathode, alors un streamer négatif se forme. Ce streamer est composé d'une tête négative, et se propage dans le même sens que les électrons, à la différence du streamer positif. Comme le montre la Figure 1-7, le champ électrique au niveau de la tête du streamer est relativement important et accélère les électrons. Tandis que ceux à l'arrière, où le champ est faible, contribuent à la neutralisation du canal conducteur. Bien que la photoionisation ne soit pas un paramètre nécessaire à la formation de ce streamer, elle peut être la source d'avalanches secondaires.

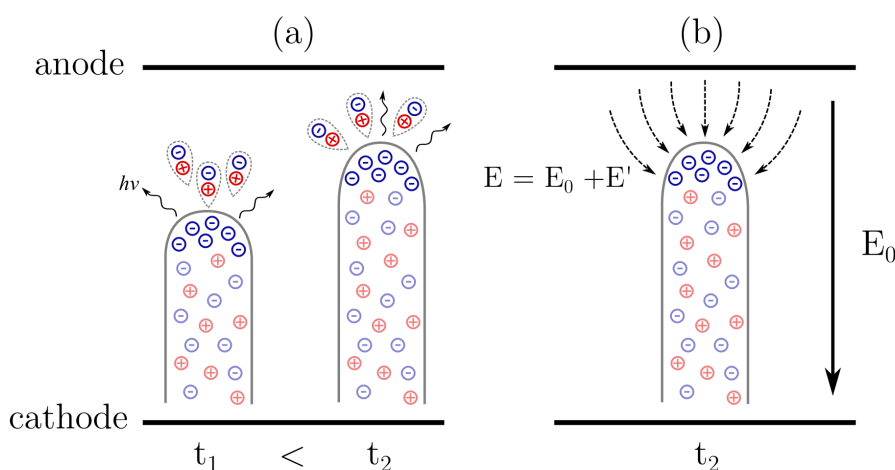


Figure 1-7 : Schéma de la propagation d'un streamer négatif. (a) Evolution de la propagation du streamer pour deux moments consécutifs. Les flèches ondulées représentent les photons émis par la tête du streamer. (b) Le champ externe, E_0 , est représenté par la flèche continue, tandis que le champ total, $E_0 + E'$ aux alentours de la tête du streamer est représenté par les flèches en pointillés. .

1.2.2.2.3 Création du filament ou de l'arc

Une fois que le ou les streamers ont atteint l'électrode opposée, un canal conducteur est créé entre l'anode et la cathode, comme schématisé à la Figure 1-8. La température du gaz augmente rapidement, et à haute pression le plasma peut être considéré comme étant à l'équilibre thermodynamique. Si le régime d'arc ne peut être atteint, par exemple dans une décharge à barrières diélectriques, le canal conducteur créé par la propagation des streamers est alors nommé filament et sa durée de vie est de l'ordre de quelques nanosecondes.

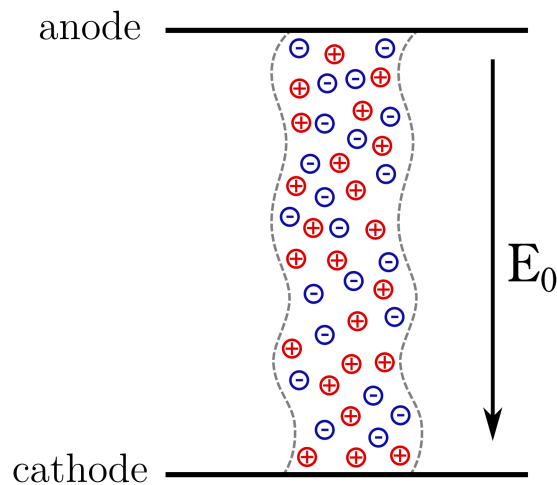


Figure 1-8 : Schéma d'un arc ou d'un filament.

1.2.2.3 Décharge à pression atmosphérique

Comme nous venons de le voir, à pression atmosphérique, généralement le plasma est peu stable et, est composé de streamers qui finissent par former des arcs électriques. Dans beaucoup d'applications, ces arcs doivent être évités, car ils possèdent d'une part une température relativement élevée, ce qui induit une détérioration des électrodes et, d'autre part ces événements sont peu contrôlables. Afin d'éviter leur création, il existe différentes solutions qui sont présentées ci-dessous.

- **La pré-ionisation du gaz** permet de créer suffisamment d'électrons germes pour que les têtes d'avalanche se recouvrent, afin d'annuler le champ de charge d'espace [13]. Malheureusement l'emploi d'une telle technologie est onéreuse et ne peut être utilisée que pour des applications à forte valeur ajoutée.
- **Les impulsions haute tension répétitives nanosecondes** permettent de générer un champ électrique important pour ioniser le gaz de manière efficace. La courte durée de l'impulsion permet de stopper le champ électrique avant que l'avalanche devienne considérable [14], [15].
- **Les décharges à barrières diélectriques (DBD)** consistent à placer une barrière diélectrique devant au moins une des deux électrodes. Cette technique permet de limiter le courant de décharge et donc le passage à l'arc. Par contre, à

cause de la présence des barrières diélectriques, les charges qui s'y déposent créent un second champ électrique, E'' , opposé au champ externe, E_0 , comme le montre la Figure 1-9. Lorsque E'' est du même ordre que E_0 , la décharge est étouffée et le plasma s'éteint. Pour contrer ce problème, il est nécessaire d'alimenter la décharge par une tension sinusoïdale ou impulsionnelle afin de libérer les barrières diélectriques de ces charges [16].

■

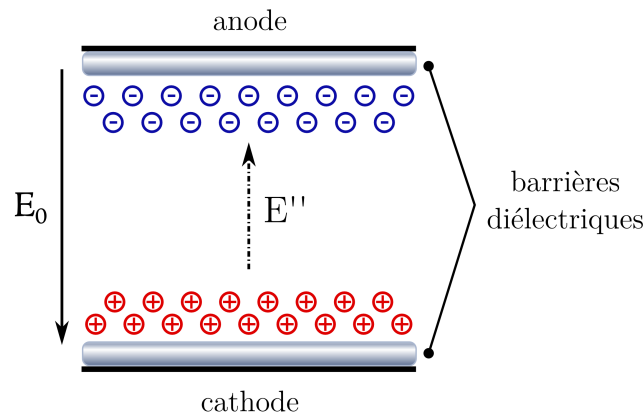


Figure 1-9 : Schéma d'une DBD à double barrière. Le champ E_0 représente le champ induit par les électrodes. E'' représente le champ créé par les charges déposées sur les barrières diélectriques.

- **Micro-plasmas** : d'après la courbe de Paschen (Figure 1-1), il est possible d'avoir un produit pd pour lequel la tension de claquage est la plus faible possible. A pression atmosphérique, la distance inter-électrodes doit donc être de l'ordre du micromètre pour atteindre ce minimum [17]. Par exemple en hélium, le minimum de la courbe de Paschen, se situe pour une distance inter-électrode de la dizaine de micromètres.

1.3 Les micro-plasmas

Comme évoqué précédemment, les micro-plasmas font références aux décharges pour lesquelles les dimensions sont inférieures au millimètre [17]. Ce terme est apparu durant les années 50 [18], mais ce n'est que depuis une quinzaine d'années qu'ils connaissent un fort intérêt de la part de la communauté scientifique qui se traduit par l'apparition de nombreuses configurations différentes.

L'un des avantages majeurs de ces plasmas est leur stabilité à pression atmosphérique. La plupart des plasmas amorcés à haute pression ne sont pas stables et passent rapidement à l'arc. La création de plasmas stables à pression atmosphérique présente différents avantages, comme le fait de ne plus utiliser de système onéreux de pompage. Ils sont alors utilisés et étudiés dans de nombreux domaines, comme par exemple dans le traitement de surface [19], la stérilisation [20], l'éclairage [4]–[7], la dépollution [21], [22], la production d'ozone, la combustion et l'amorçage [23] et la destruction de composés volatiles (COV).

1.4 Etat de l'art des micro-jets de plasma

1.4.1 Historique

Depuis quelques années, les micro-jets de plasma à pression atmosphérique connaissent un fort intérêt à cause de leurs nombreux avantages. Ils possèdent d'une part l'avantage des micro-plasmas d'être stables à pression atmosphérique et, d'autre part l'attribut de pouvoir se propager sur de longues distances dans une atmosphère libre. De plus, ce sont des plasmas non thermiques capables de créer de nombreuses espèces réactives. Ces propriétés permettent d'utiliser ces jets dans diverses applications, comme par exemple le traitement de surface pour nettoyer ou déposer des couches minces [24]–[41], la décontamination et les applications biomédicales [25], [42]–[63].

Le premier jet de plasma à pression atmosphérique fut réalisé en 1991 par Koinuma et al [64]. La décharge était un réacteur capacitif radiofréquence (RF) alimenté par un mélange gazeux composé principalement d'hélium. L'ajout en faible quantité de gaz, comme du tétrafluorure de carbone, CF_4 , avait pour objectif de graver des composés en silicium et d'étudier son effet sur le plasma. Malgré cette découverte, ce n'est qu'à partir des années 2000 que les jets de plasma à pression atmosphérique ont été reconnus comme utiles pour la société.

En 2002, Stoffels et al [19] instaurent un nouveau système permettant de générer un micro-plasma non thermique à pression atmosphérique. Comme le montre la photographie (a) de la Figure 1-10, le plasma est confiné autour de l'électrode centrale et possède une longueur de quelques millimètres. Ils démontrent que ce plasma, amorcé par une excitation RF, est bien adapté pour des applications biomédicales. Ce plasma représente les prémices des micro-jets. Car bien que ce dernier ne puisse pas être considéré comme tel, sa découverte a incité de nouvelles recherches dans ce domaine, donnant alors naissance aux micro-jets.

En 2005, Lu et Laroussi [65] et Förster et al [66] démontrent qu'une alimentation haute tension impulsionnelle avec une fréquence de répétition de 1 à 25 kHz est capable d'amorcer un micro-jet de plasma en hélium (b) ou en argon (c). Ce dernier est initié dans une décharge à barrière diélectrique capillaire, créant un jet de plusieurs centimètres de long. Par la suite, diverses équipes ont alors étudié ces micro-jets de plasma possédant chacun leur propre géométrie, comme celle de Teschke et al [67], Zhang et al [68], Walsh et al [69], Cheng et al [70], Kim et al [71] et Hong et al [72].

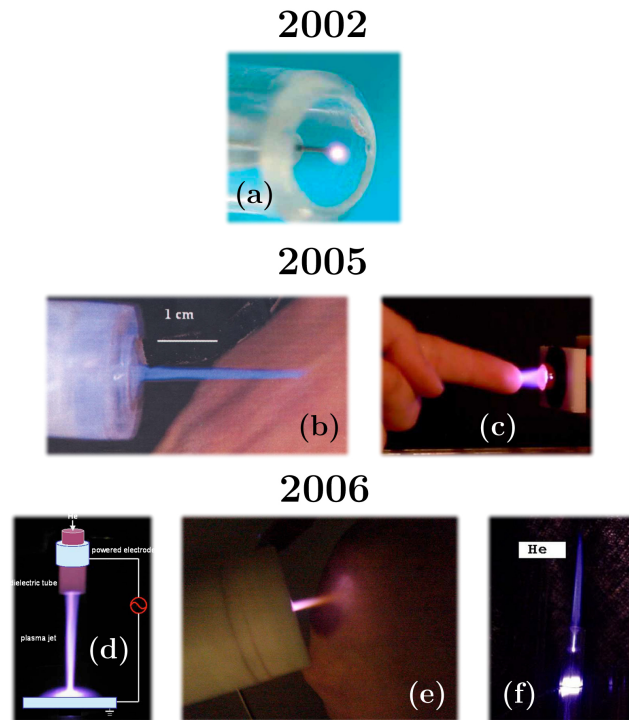


Figure 1-10 : Photographies des premiers jets de plasma à pression atmosphérique. (a) E. Stoffels et al [19], (b) Lu et Laroussi [65], (c) Forster et al [66], (d) Walsh et al [69], (e) Hong et al [72] et (f) Zhang et al [68].

1.4.2 Type d'excitation

Depuis les années 2000, l'intérêt des micro-jets de plasma n'a fait que de croître et, le nombre de publications par an sur ce sujet depuis dix ans a vu une augmentation de 150% [73]. Le grand nombre d'équipes étudiant les micro-jets a pour conséquence de générer une multitude de géométries différentes, qui peuvent être classées selon leur type d'excitation.

1. **Tension Impulsionnelle ou alternée (AC) avec une fréquence de quelques kHz.** Lorsque ce genre d'excitation est employé dans une DBD, le passage à l'arc est inhibé. Les jets de plasma amorcés par une telle excitation représentent un plasma à part entière, c'est-à-dire qu'il est composé d'électrons et d'ions. La puissance délivrée au plasma est relativement faible (<1 W), et permet d'obtenir une température de gaz souvent très proche de la température ambiante, ce qui présente un avantage pour les applications biomédicales.
2. **Alimentation RF.** La plupart des jets obtenus selon ce mode d'excitation ne représentent en général pas un plasma, mais une post-décharge. Le plasma est créé au sein de la structure de décharge, et le flux de gaz pousse à l'extérieur les espèces issues de la décharge. D'autre part, ce genre d'alimentation a le

désavantage de détériorer les électrodes et de demander un réglage fin au niveau de la puissance injectée. Un système de refroidissement est souvent nécessaire afin d'éviter la surchauffe du générateur.

3. **Micro-onde.** Peu d'équipes utilisent cette excitation pour amorcer des micro-jets. L'avantage de ce système est l'absence d'électrodes, ce qui évite leur détérioration. Par contre, le couplage entre l'onde micro-onde et le plasma demande une mise au point plus fine que pour une alimentation RF. De plus, la température du gaz est bien souvent plus importante par rapport à celles des décharges RF, dû à une puissance plus élevée (1-100 W). Ce type de plasma ne peut donc pas être utilisé pour des applications qui demandent une température proche de la température ambiante.

La plupart des micro-jets de plasma étudiés sont alimentés par un gaz rare (hélium, argon ou néon), mais il est possible pour certaines géométries de décharge et de conditions d'amorcer un jet de plasma d'azote ou d'air [74]–[77]. Dans ce cas, le jet n'est pas un plasma, mais une post-décharge. Dans la suite, nous allons nous focaliser sur les décharges capables d'amorcer des jets de plasma alimentés en gaz rares, car la décharge étudiée dans cette thèse fait partie de cette catégorie.

1.4.3 Décharges kHz

Cette partie est consacrée à la présentation des différentes géométries de décharges kHz les plus couramment étudiées. Ces dernières, comme le schématise la Figure 1-11, peuvent être classées selon trois types [78] :

- **Type n°1** : Les deux électrodes ne sont jamais au contact du plasma, et sont protégées par une barrière diélectrique. Par abus de langage, nous nommons ce genre de décharges : **DBD à double barrière diélectrique**, bien que ce nom ne soit pas complètement correct, car certains cas une barrière unique recouvre les deux électrodes (Figure 1-11 (a)). L'avantage de ce système est de ne jamais passer à l'arc, même si une cible conductrice est placée en face de la décharge. La géométrie (a) est un tube diélectrique où sont enroulés autour deux électrodes. Plusieurs équipes utilisent ce genre de géométrie, comme Teschke et al [67], Urabe et al [79], et Jiang et al [80]. La géométrie (b) possède toujours l'électrode de masse autour du diélectrique, par contre l'électrode haute tension est une aiguille, placée au centre du dispositif et recouverte d'une surface diélectrique. Cette configuration permet d'augmenter le champ électrique le long de la direction radiale, amorçant alors des jets plus grands [81], [82]. Beaucoup d'équipes [69], [80], [83]–[88] utilisent des géométries du type (a) et (b) mais sans électrode de masse. Dans ce cas, un jet de plasma est également présent, mais ce dernier est moins long. La dernière géométrie de ce type, (c), est celle développée par Lu et Laroussi [65]. Les deux électrodes sont des disques percés au centre, où se situent entre elles deux disques diélectriques également percés afin de laisser le gaz circuler

- **Type n°2** : Cette géométrie est proche du type n°1, à la différence près que l'une des deux électrodes est en contact direct avec le plasma. Elle présente les mêmes avantages que le type n°1, à l'exception du fait qu'il y a un risque de passage à l'arc si une cible conductrice est utilisée. Car dans ce genre de situation, l'électrode haute tension peut amorcer un arc avec la cible, ce qui peut être contraignant pour certaines applications. Vu que seule une des électrodes est protégée par une barrière diélectrique, ce type de décharge est nommé **DBD à simple barrière diélectrique**. La décharge étudiée dans cette thèse fait partie de ce type et, est schématisé sur la figure (d). D'autres équipes utilisent cette même géométrie, comme Jiang et al [89], Cao et al [83] et Robert et al [90]. La géométrie (f) étudiée par Léveillé et al [91] et Shashuin et al [92] est la même que la géométrie (d) sauf que l'électrode haute tension n'est pas en contact avec le diélectrique, ce qui permet d'avoir deux arrivées de gaz, dont l'une qui peut être utilisée pour le gaz rare et l'autre pour un gaz réactif. L'électrode haute tension de la configuration (e) représente quant à elle une aiguille et, est placée au centre du système.
- **Type n°3** : Ce type de décharges est le même que celui du type n°2 à la différence qu'il n'y a pas d'électrode de masse. Le tube diélectrique, s'il est présent, n'est alors plus utilisé comme barrière diélectrique, mais comme guide pour le gaz [83], [93]. La présence d'une seule électrode qui est en contact direct avec le plasma, nous permet de nommer ce type de décharge : **Décharge à une électrode nue**. Afin de contrer le problème du passage à l'arc, Lu et al [94] ont développé un système, présenté en (j), permettant de contrôler le courant de décharge et la tension par le biais d'une résistance et d'un condensateur dans le but de rendre plus sûr l'utilisation de tels plasmas.

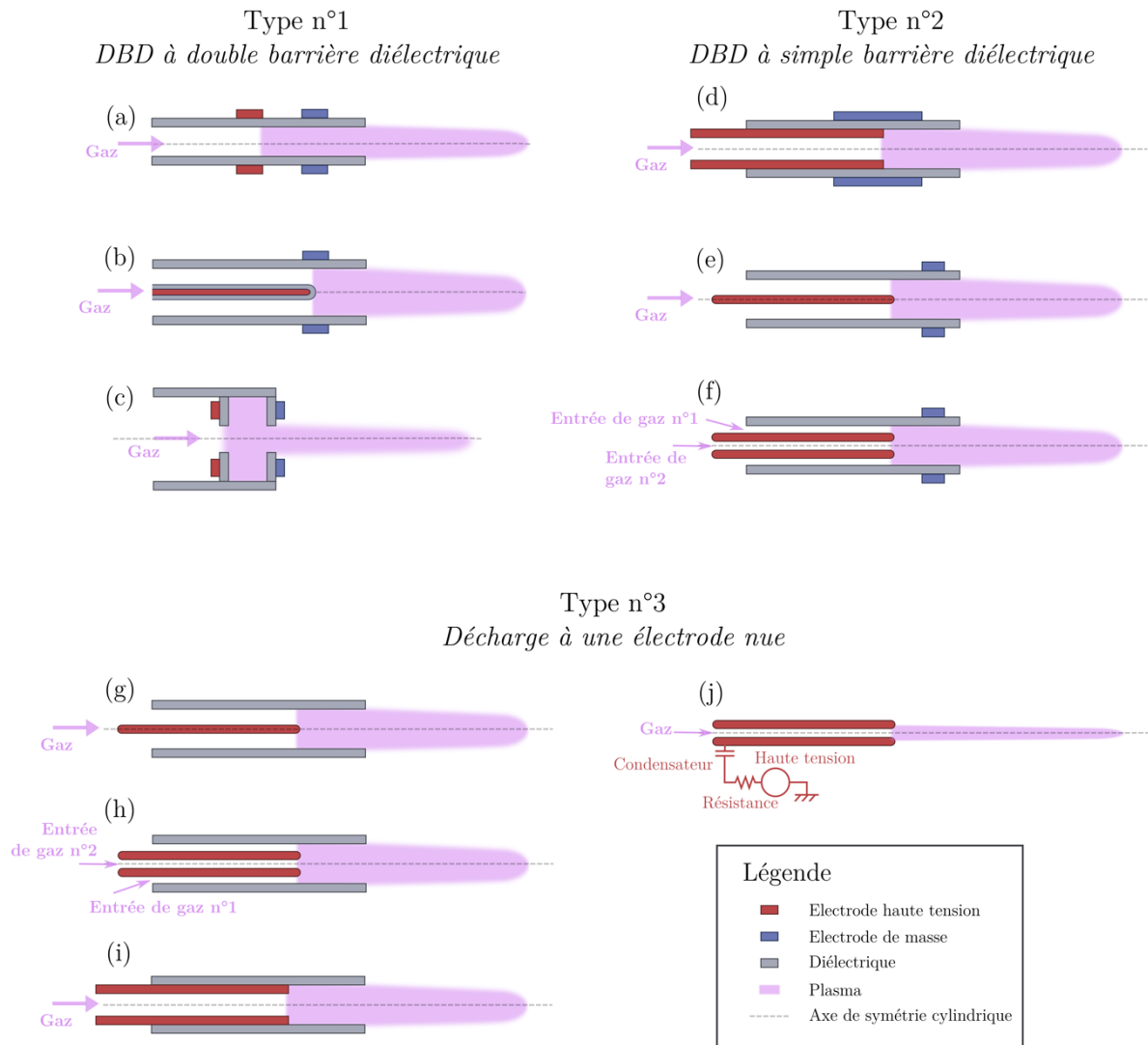


Figure 1-11 : Schéma des micro-jets kHz.

1.4.4 Le «balle de plasma»

1.4.4.1 Historique

Comme le montre les différentes photographies de la Figure 1-10, le plasma apparaît continu et stationnaire à l’œil nu, or ce n’est pas le cas. Des photographies faites avec une caméra rapide intensifiée (ICCD), présentées à la Figure 1-12, indiquent que le jet de plasma, tel qu’on l’observe à l’œil nu, correspond à l’intégration temporelle du mouvement d’un plasma de faible volume.

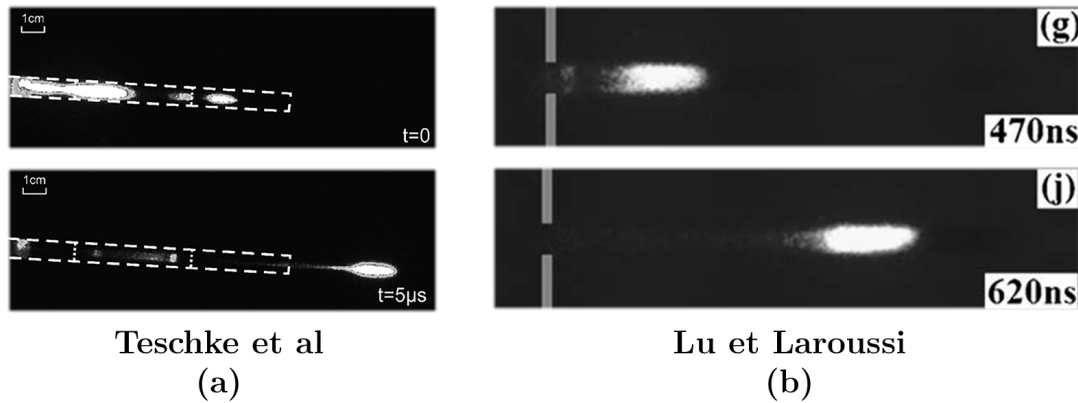


Figure 1-12 : Premières photographies de la « balle » de plasma. (a) Teschke [67] (temps de pause : 100 ns). (b) Lu et Laroussi [95] (temps de pause : 50 ns).

C'est en 2005, que ce phénomène fut observé pour la première fois par Teschke et al [67] : “*It can be seen, that the jet is not constant in time. In fact, it is a “plasma bullet,” coming out of the tube with a velocity that is much higher than the gas velocity.*” (cf Figure 1-12 (a)). En 2006, Lu et Laroussi [95] mettent à leur tour en évidence la présence de cette « balle de plasma » au sein de leur jet : “*Fast photography shows that the plume is more like a bullet formed by a small and well-confined plasma volume that travels from the exit aperture of the device and terminates at some distance in the surrounding air*”. (cf Figure 1-12 (b)). Dès les premières observations, Lu et Laroussi proposèrent un modèle basé sur la propagation d'un streamer positif pour tenter d'expliquer le développement de cette « balle » [95]. Le principe reposait sur les travaux de Dawson et Winn, dont la modèle décrit la propagation d'un streamer dans un champ électrique faible basé sur la photoionisation [96].

Quelques années plus tard, en 2009, Laroussi et al proposèrent une autre explication basée sur la propagation d'un soliton d'ionisation [97]. Un soliton est une onde solitaire de forte amplitude capable de se déplacer sur de longues distances sans se déformer [98]. Un exemple de telles ondes dans la nature est le raz-de-marée. Ce type d'onde est rencontré dans divers domaines de la physique, notamment en physique des plasmas. Cette « balle » de plasma possède des caractéristiques similaires aux solitons : elle est capable de se propager sur de grandes distances (quelques centimètres) par rapport à la dimension de son diamètre, qui est de l'ordre du millimètre. A cause de cette propriété, Mericam-Bourdet et Laroussi avaient suggéré que la « balle » de plasma pouvait se propager de manière similaire à un soliton d'ionisation de Vladimirov [99].

Depuis divers modèles numériques ont été réalisés afin de tenter d'expliquer la propagation de cette « balle ». Le premier à proposer un modèle numérique fut Naidis, qui présenta en 2009, ses premiers résultats durant la 19^{ème} conférence internationale « Plasma Chemistry » [100], qu'il publia un an après [101]. Ses travaux révélèrent que la propagation de la « balle » de plasma est liée à une propagation du type streamer. Ce résultat fut par la suite confirmé par Breden et al [102][103] et Bœuf et al [104].

L'utilisation du terme « balle de plasma » (en anglais « plasma bullet ») est très controversée par la communauté scientifique, car il ne décrit pas de manière correcte le phénomène auquel il correspond. Une « balle » suggère un déplacement de matière, or ce n'est pas le cas ici, car il s'agit d'un déplacement d'un front d'ionisation. D'après les différentes études et résultats obtenus ces dernières années, la communauté scientifique est aujourd'hui d'accord pour affirmer que sa propagation est de type streamer positif. Par la suite afin d'éviter l'utilisation du terme « balle de plasma », nous la nommerons soit « front d'ionisation », qui est le terme le plus correct, soit « streamer ».

1.4.4.2 Vitesse de propagation du plasma

Dès les premières observations du front d'ionisation, communément appelé « balle de plasma », Teschke et al [67] et Lu et al [95] mesurèrent sa vitesse de propagation. Celle mesurée par Lu et al est présentée Figure 1-13. Pour leur décharge respective Teschke et Lu mesurent une vitesse de propagation de 10 à 100 km/s, ce qui est largement supérieur à la vitesse du gaz, qui est quant à elle, de l'ordre de la dizaine de m/s. Ceci démontre que les processus liés à la propagation de ce front ne sont pas de nature hydrodynamique, mais électrique, confirmant le fait que la « balle de plasma » ne représente pas un déplacement de matière.

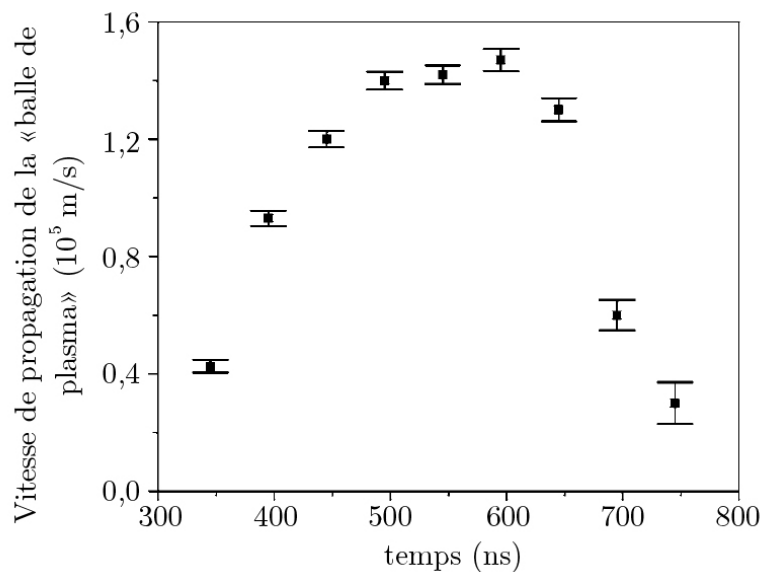


Figure 1-13 : Vitesse de propagation du front d'ionisation, communément appelé « balle de plasma », au cours du temps mesuré par Lu et al [95].

1.4.4.3 Un streamer guidé

D'après les propositions de Lu et de Laroussi [95], de Sand et al [105] et de Walsh et al [106], qui sont confirmés par des modèles suivants [101]–[104], [107], la « balle de plasma » correspond à la propagation d'un front d'ionisation dont la propagation est basée sur les mécanismes d'un streamer positif. Initialement la décharge, à cause de sa

géométrie, est initiée comme une décharge de surface [104], comme le montre la Figure 1-14 (a). Le plasma va principalement se propager le long de la paroi interne du tube diélectrique, à la différence des DBD de surfaces classiques, Figure 1-14 (b), où le plasma est présent des deux côtés du diélectrique. Ceci est dû à la répartition du gaz : la décharge est placée dans un environnement d'air où s'écoule à l'intérieur un flux d'hélium. La tension de claquage dans l'air étant plus importante que dans l'hélium (Figure 1-1), le plasma ne s'amorce qu'à l'intérieur du tube contenant le gaz rare.

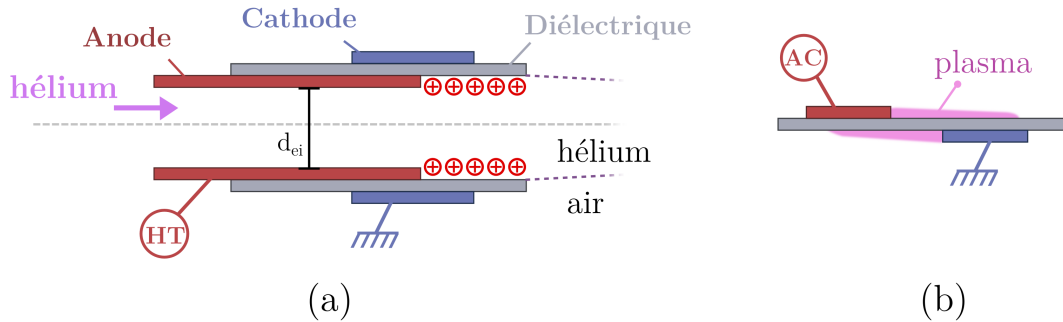
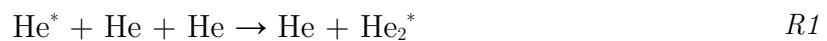


Figure 1-14 : (a) Schéma de la micro-décharge étudiée au cours de cette thèse. (b) Schéma d'une décharge de surface classique.

Les ions sont alors répartis le long de la paroi du tube et leur distribution forme un anneau. Nous discuterons plus en détail de cet anneau au paragraphe 1.4.6. Afin de simplifier la suite des explications, il sera supposé que la distribution des ions est selon une sphère et non un anneau, mais la physique qui en résulte est la même. Comme il a été précédemment expliqué dans le paragraphe 1.2.2.2, un streamer positif est capable de se propager seulement s'il y a présence d'électrons germes à l'avant de sa tête. Dans notre cas, ces électrons germes peuvent provenir soit du détachement, soit de la photoionisation [108]. La photoionisation est principalement due à l'absorption de la rayonnement VUV, émis par l'excimère de l'état He_2^* , par les espèces de l'azote et de l'oxygène. He_2^* est produit dans la tête du streamer par la réaction à trois corps avec les atomes d'hélium (réaction R1).



Une partie, moins importante que celle issue de la photoionisation, des électrons germes peut aussi être produite par détachement dû à la présence des ions négatifs O_2^- à l'avant de la tête. Par collision avec d'autres espèces du gaz l'ion O_2^- peut alors perdre un électron. La présence d' O_2^- est due à la grande fréquence de répétition de l'impulsion de la tension. Cette dernière étant supérieure à 1 kHz, les ions O_2^- sont encore présents au sein du gaz et représentent alors une source d'électrons germes [108].

L'une des différences majeures par rapport aux streamers positifs classiques est l'absence de ramifications. Comme l'explique Bœuf et al [104] et Breden et al [103], le streamer est confiné dans le canal d'hélium et n'est pas capable de se propager dans

l'air ambiant. La Figure 1-15 montre le résultat numérique lorsque la décharge est amorcée dans un environnement d'hélium (a) et dans un environnement d'air (b). Dans le cas de l'hélium, le plasma ne forme pas un jet et se propage le long du diélectrique.

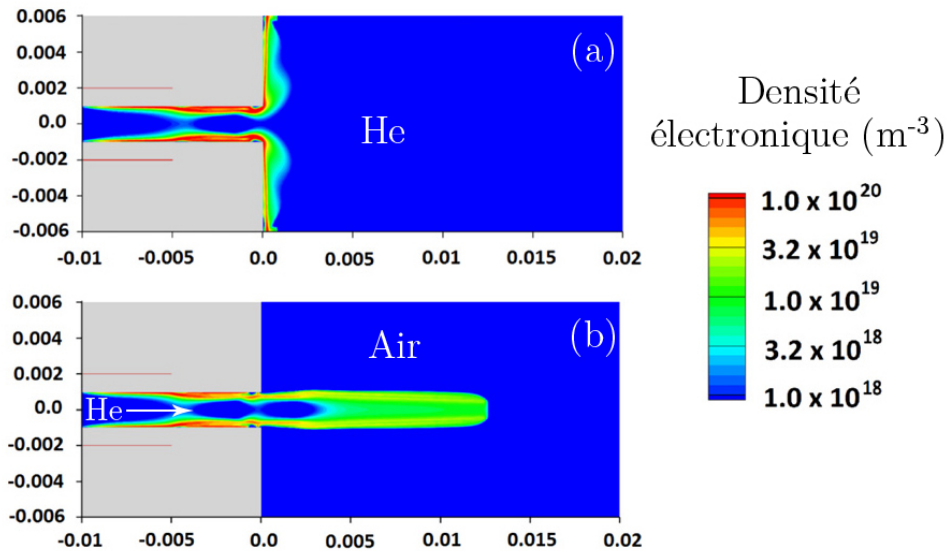


Figure 1-15 : Comparaison de la densité électronique d'un plasma d'hélium dans un environnement d'hélium (a) et dans un environnement d'air (b) [103].

D'autre part, il faut garder en tête que ce front d'ionisation est seulement présent pour des décharges ayant une fréquence de répétition inférieure à quelques MHz. Si la fréquence de répétition est supérieure à la fréquence de recombinaison des électrons, qui s'élève à quelques MHz, alors le plasma ne peut pas s'éteindre entre deux cycles. L'énergie alors apportée n'est pas exploitée pour amorcer un plasma, mais va être utilisée pour chauffer les électrons. Le plasma ne s'éteignant pas entre deux cycles, il va se développer un plasma homogène où le champ électrique est quasi nul. Dans ces conditions, la création d'un nouveau streamer à chaque cycle n'est pas possible, car le champ local doit être suffisamment important pour amorcer un streamer [109].

1.4.5 Polarité

Le descriptif présenté au paragraphe précédent est seulement valable pour une polarité positive, c'est-à-dire pour une impulsion de tension positive. Si la polarité est inversée, le processus de propagation devient alors différent. Comme l'ont montré expérimentalement plusieurs équipes [79], [89], [106], [110], la morphologie du jet de plasma est sensible à la polarité. La taille du jet en polarité négative est inférieure à celle en polarité positive. De plus, les diagnostics d'imagerie ultra rapide montrent qu'en polarité positive le plasma a la forme d'une « balle », alors qu'en polarité négative il est de forme oblongue. Les différents diagnostics effectués ont montré que la propagation du plasma est analogue à celle d'un streamer dirigé vers la cathode en polarité positive et inversement à celle d'un streamer dirigé vers l'anode en polarité négative. Naidis a validé cette hypothèse en comparant les résultats issus de son

modèle avec ceux des résultats expérimentaux. Il a montré qu'un modèle basé sur la théorie standard des streamers est adéquate pour décrire les caractéristiques typiques de la dynamique et de la structure du jet de plasma selon les deux polarités de l'impulsion de tension [111].

1.4.6 Structure annulaire

Expérimentalement plusieurs équipes ont montré que la distribution lumineuse du plasma, lorsqu'il est observé de face, est annulaire [67], [112]–[115], comme le montre en exemple la photographie en fausses couleurs de la Figure 1-16. Cette structure est différente de celle des streamers classiques.

D'une part, les résultats expérimentaux montrent que cette distribution est très sensible à la composition du gaz [116][113]. L'ajout d'azote ou d'argon au sein de la décharge a pour conséquence de refermer l'anneau, car les électrons germes proviennent de la photoionisation de l'argon ou de l'azote par l'hélium, rendant la structure plus homogène, alors qu'en hélium pur, la photoionisation est seulement possible au niveau de l'interface entre l'air et l'hélium.

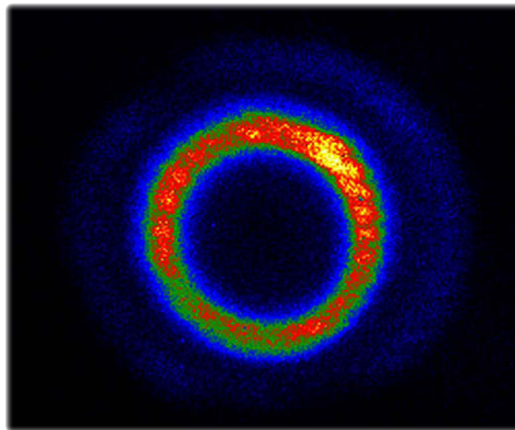


Figure 1-16 : Photographie en fausse couleur du jet de plasma vu de face. [114]

D'autre part, les modèles numériques [102]–[104], [107] montrent que la distribution du champ électrique est annulaire le long de la propagation du plasma. Cette distribution, comme l'explique Bœuf et al [104] est dû à la géométrie de la décharge. Lors de l'initiation de cette dernière, le plasma se développe principalement sur la surface du diélectrique sous le même principe qu'une décharge de surface, générant alors un champ électrique annulaire.

D'après les résultats expérimentaux et des modèles numériques, cette structure est sensible à la composition du gaz et au champ électrique. Cette distribution annulaire doit probablement provenir de ces deux effets.

1.4.7 Densité des espèces

A la pression atmosphérique, les diagnostics de sonde sont relativement délicats à mettre en œuvre. De plus, vu les dimensions des jets de plasma, une sonde viendrait perturber la mesure et par conséquent la fausser. Les mesures pour ce type de plasma se limitent alors aux diagnostics spectroscopiques. D'autre part, ces derniers doivent posséder une résolution spatiale et temporelle suffisamment élevée, car les dimensions du jet s'élèvent entre quelques centaines de μm à quelques mm, et les échelles de temps sur lesquelles se déroulent les phénomènes physiques sont extrêmement courtes et demandent une résolution de l'ordre de la nanoseconde. Il est donc nécessaire d'employer des diagnostics de pointe possédant une résolution spatiale et temporelle très fine.

Comme nous l'avons vu au paragraphe 1.4.3, il existe beaucoup de géométries différentes. Les résultats obtenus pour chaque géométrie sont donc difficilement comparables. A l'heure actuelle, quelques équipes ont mesuré certaines espèces au sein d'un jet de plasma kHz.

Qian et al [117] et Xiong et al [118] ont mesuré la densité électronique dans leur jet de plasma. La géométrie de leur décharge est respectivement de type (f) et de type (b) sans électrode de masse (Figure 1-11) et est alimentée respectivement par un gaz d'argon et d'hélium. En face de la décharge, est placée une troisième électrode reliée à la masse. Le jet se propage de la décharge jusqu'à la plaque. Grâce à la mesure de l'élargissement de la raie H_{β} , ils ont obtenu, selon leurs conditions, une densité de l'ordre de 10^{14} cm^{-3} . Cette densité est sensible à la tension appliquée et augmente selon ce paramètre.

D'autre part, Karakas et al [119] ont mesuré une densité électronique dans leur plasma de quelques 10^{10} cm^{-3} à partir des mesures du courant dans le jet. Cette valeur de densité possède un écart de quatre ordres de grandeur par rapport aux mesures précédemment présentées. De plus, comme nous l'expliquerons au paragraphe 2.2.1.3.2, ce genre de mesure est très délicat, car elle perturbe le plasma, ce qui doit induire des erreurs de mesure. La mesure de la densité électronique, qui est un paramètre important, représente donc un véritable défi, car son estimation est difficile.

Par ailleurs, Urabe et al [79] et Sands et al [120] ont mesuré respectivement la densité des atomes métastables d'hélium et d'argon dans un jet d'hélium. Afin de mesurer ceux de l'argon Sands et al ont ajouté 5% d'argon dans le mélange gazeux. La géométrie de la décharge d'Urabe est de type (a) (Figure 1-11), et celle de Sands de type (a) sans électrode de masse. Ils ont réalisé ces mesures par absorption laser et ont trouvé une densité d'atomes métastables d'hélium comprise entre 0,5 et $5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ pour Urabe et d'argon pour Sands de quelques 10^{12} cm^{-2} sur une ligne de visée. L'état de l'art de la mesure des atomes métastables est présenté plus en détail au chapitre 4.

D'autre part, Yonemi et al [121] ont mesuré la densité de OH par fluorescence induite par laser (LIF). La géométrie de leur décharge est également de type (a) (Figure 1-11) et est alimentée en hélium. Ils mesurent une densité à la sortie de la décharge de

$2.10^{12} \text{ cm}^{-3}$ sans ajout de vapeur d'eau et de $5.10^{13} \text{ cm}^{-3}$ avec 200 ppm de vapeur d'eau ajouté à l'hélium. Cette densité diminue le long de l'axe du jet.

D'autre part, les modèles numériques prédisent que la densité électronique se situe entre 10^{12} et 10^{14} cm^{-3} [103], [104], [107], [111], [122], [123]. Tandis que la densité des atomes métastables d'hélium prévue est comprise entre quelque 10^{12} cm^{-3} à quelques 10^{13} cm^{-3} [102], [124]. De plus, Naidis montre, que la densité d'OH, après plusieurs cycles est stable et est comprise entre 2.10^{13} et $8.10^{13} \text{ cm}^{-3}$ [124] et, que la densité de $\text{N}_2(\text{C})$ est de quelques 10^{11} cm^{-3} [107]. Par ailleurs, Breden et al ont calculé que la densité de l'ion He^+ doit être de quelques 10^{13} cm^{-3} [102].

A partir de ces résultats il est difficile d'en déduire des informations quantifiées correspondant aux conditions expérimentales, car tous ces modèles comportent des hypothèses simplifiées qui ne permettent pas de reproduire de manière exacte une expérience donnée.

1.5 Objectif et plan de la thèse

L'étude des micro-jets de plasma à pression atmosphérique est un domaine de recherche jeune. Ces micro-jets sont étudiés depuis seulement quelques années. La physique sous-jacente est donc encore loin d'être totalement comprise et l'association des résultats expérimentaux et théoriques est nécessaire pour l'avancée de ce domaine de recherche.

L'objectif premier de cette thèse était d'apporter les éléments nécessaires à la compréhension de cette physique par le biais de différents diagnostics et d'outils expérimentaux. Comme il a été dit un peu avant, le comportement physique du front d'ionisation (*ie* « balle de plasma ») était encore très mal compris en 2010, date à laquelle a débuté cette thèse. Des questions restaient sans réponse comme le comportement de cette « balle », et plus particulièrement les paramètres pouvant influencer sa vitesse et sa distance de propagation. D'autre part en vue des applications qu'offre ce plasma, il était nécessaire de le caractériser selon différents paramètres, comme la tension appliquée et le débit de gaz.

Une partie de ces travaux de recherche a été réalisée dans le cadre du projet ANR blanc, nommé Pampa (Plasmas : Micro-jets à Pression Atmosphérique) réunissant les laboratoires suivants : la LAPLACE et l'ISAE à Toulouse, le GREMI à Orléans, Le LiPhy à Grenoble et le LPGP à Orsay. D'autre part, les travaux concernant la dégradation de l'ADN par plasma ont été réalisés en collaboration avec l'institut Curie d'Orsay.

Ce manuscrit est organisé de la manière suivante :

- Le **chapitre 2** présente le dispositif expérimental et les outils utilisés au cours de cette thèse qui ont permis de diagnostiquer le plasma.
- Le **chapitre 3** est une étude principalement basée sur l'imagerie du plasma. Nous avons fait varier quatre paramètres : tension appliquée, débit de gaz, ajout de gaz moléculaire et position des électrodes, afin de déterminer quelle

influence avait ces derniers sur la distance et la vitesse de propagation du plasma.

- Au **chapitre 4**, nous nous sommes focalisés sur la mesure d'une espèce en particulier : les atomes métastables d'hélium. Cette mesure a été réalisée grâce à de l'absorption laser. De plus, afin de compléter ces mesures, nous avons effectué des diagnostics d'imagerie filtrée en longueur d'onde afin de connaître la distribution spatiale des principales raies et bandes d'émission du plasma.
- Au **chapitre 5**, nous avons étudié, grâce à des diagnostics d'imagerie, de spectroscopie et électriques, la contre propagation de deux jets de plasma placés l'un en face de l'autre, afin d'étudier leur interaction.
- Le **chapitre 6** est consacré à l'étude des dommages que subit de l'ADN plasmidique dû à l'interaction avec un micro-jet de plasma.
- Pour finir une **conclusion** qui résume les résultats majeurs de cette thèse et présente les différentes perspectives possibles.

Chapitre 2 : Dispositif expérimental

Ce chapitre présente le dispositif expérimental et l'ensemble des diagnostics utilisés pour caractériser et analyser le plasma étudié au cours de cette thèse. Ces diagnostics réunissent les mesures électriques, l'imagerie et la spectroscopie d'émission et d'absorption.

2.1 La décharge

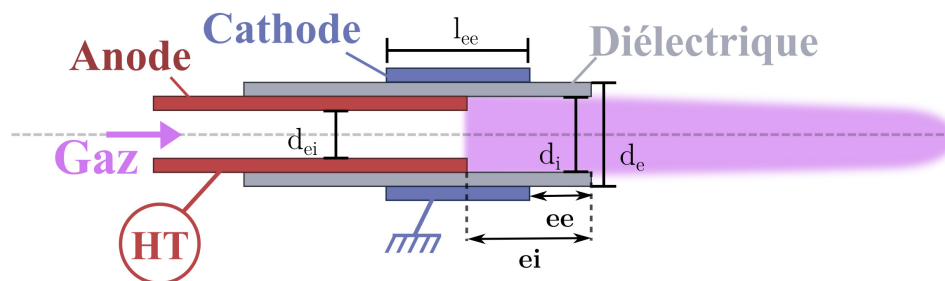


Figure 2-1 : Schéma de la décharge.

La décharge étudiée est composée d'un tube constitué d'un matériau diélectrique (quartz, verre ou composé organique), dont les diamètres externes et internes sont respectivement représentés par d_e et d_i sur la Figure 2-1.

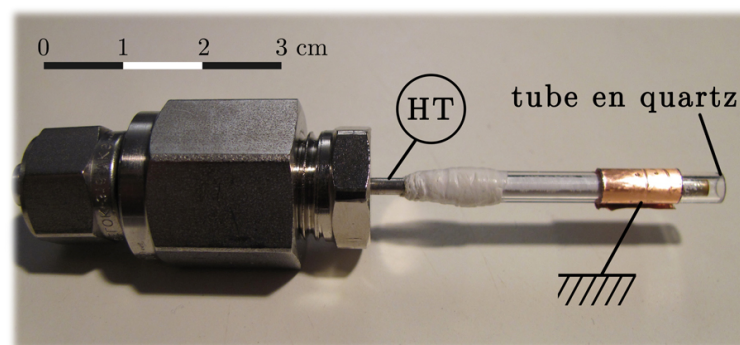


Figure 2-2 : Photographie de la décharge. L'électrode haute tension est une aiguille en acier inoxydable insérée dans un tube en quartz. L'électrode de masse est un ruban en cuivre enroulé autour du quartz.

À l'intérieur du tube diélectrique est insérée une aiguille en acier inoxydable, reliée au générateur haute tension, dont le diamètre interne est représenté par d_{ei} , tandis que l'électrode de masse est enroulée autour du diélectrique et possède une largeur l_{ce} de 10 mm, excepté pour l'étude présentée au chapitre 6 où elle est de 60 mm. De l'hélium est injecté au travers de l'aiguille avec un débit de 30 à 10 000 sccm (Standard Cubic

Centimeters per Minute). Ce débit est contrôlé par des débitmètres massiques de Brooks Instrument.

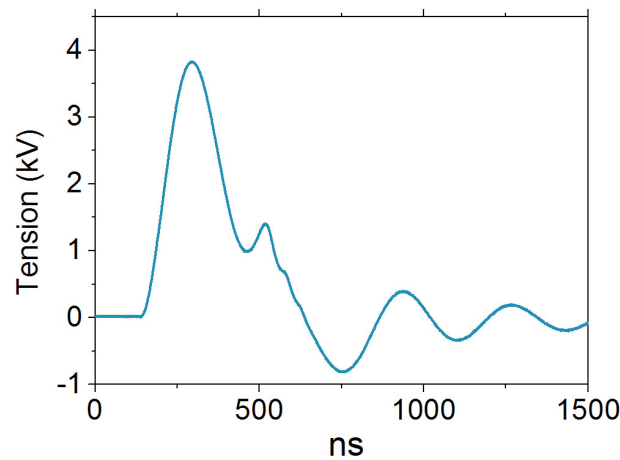


Figure 2-3 : Signal de l'impulsion haute tension.

L'électrode interne est alimentée par une haute tension impulsionnelle, représentée à la Figure 2-3. Cette impulsion est caractérisée par un temps de montée de 130 ns (10-90% de la valeur crête) et par une largeur d'impulsion à mi-hauteur de 200 à 300 ns, dont la valeur exacte dépend de l'amplitude de la tension.

Cette impulsion de tension est créée à partir d'un générateur d'impulsion haute tension développé au LPGP, dont le principe de fonctionnement est schématisé sur la Figure 2-5. Il permet d'atteindre des tensions crêtes de 10 kV. Son principe de fonctionnement est basé sur du découpage de tension qui est ensuite amplifiée. Pour obtenir une telle impulsion, on utilise une alimentation primaire qui délivre une tension continue variable de 0 à 300 V, et un courant maximal de 450 mA. Cette tension est découpée à l'aide d'un transistor MOS de puissance que l'on fait fonctionner en mode « bloqué – saturé » (cf « T » sur la Figure 2-5). Ce transistor peut être assimilé à un interrupteur entre le drain et la source commandée par l'entrée « gate » (signal jaune sur la Figure 2-4). Ce type de transistor présente une capacité importante entre la « gate » et la source, matérialisée sur le schéma par C. Pour que le transistor sature rapidement, la capacité C doit être chargée le plus rapidement possible. Il est donc nécessaire d'introduire entre le signal de commande (signal rouge sur la Figure 2-4) et la « gate » une électronique capable de délivrer un courant élevé avec un dV/dt important. Le transistor se referme lorsque la tension « gate » est appliquée. A cet instant, la tension de drain chute à zéro (signal vert sur la Figure 2-4) et l'impulsion de tension, provenant du déchargement de la capacité « A », initialement chargée par l'alimentation primaire, est transmise au transformateur. Dans notre cas le transformateur élévateur de tension possède un rapport 30. La forme arrondie de l'impulsion de tension de sortie est due aux inductances et aux capacités (parasites ou non) du circuit (courbe bleue sur la Figure 2-4). Il est possible de modifier la fréquence de cette impulsion de tension en faisant varier la fréquence du signal de commande. La

plage de fréquence accessible se situe entre 1 Hz et 50 kHz. Tous les résultats présentés dans ce manuscrit ont été obtenus pour une fréquence fixée à 20 kHz.

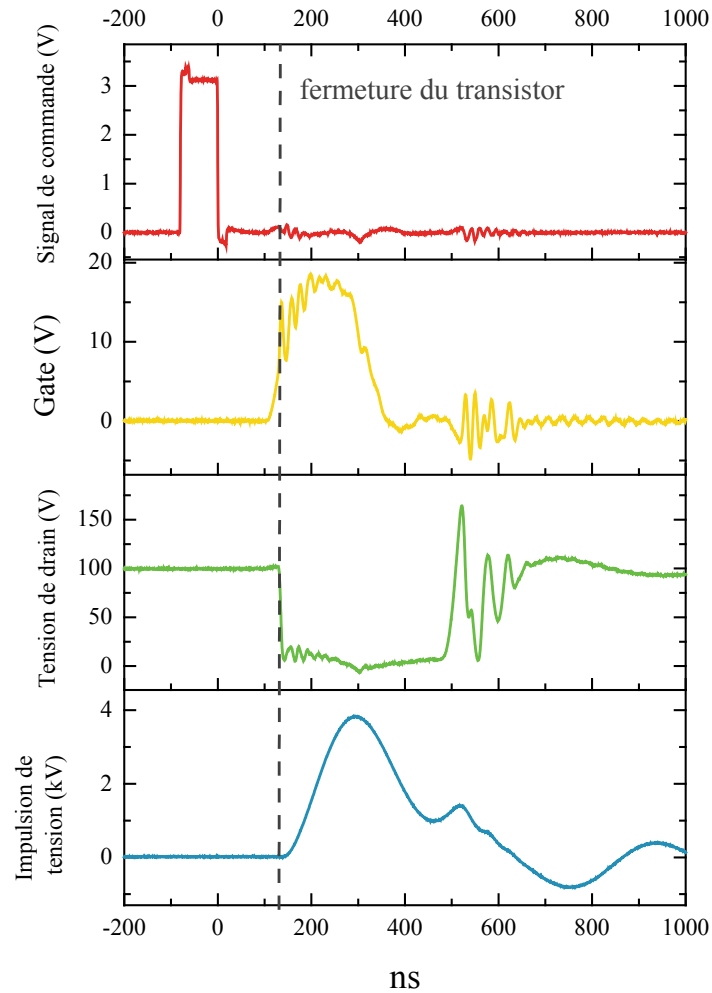


Figure 2-4 : Signaux de commande, de « gate », de tension de drain et de l'impulsion de tension.

Notons que, sur la Figure 2-4, les quatre signaux ne sont pas synchronisés : le créneau du signal de commande (rouge) et du signal de « gate » (jaune) ne se déclenchent pas simultanément. Ce décalage est dû au délai nécessaire à l'information à se propager dans le circuit électronique.

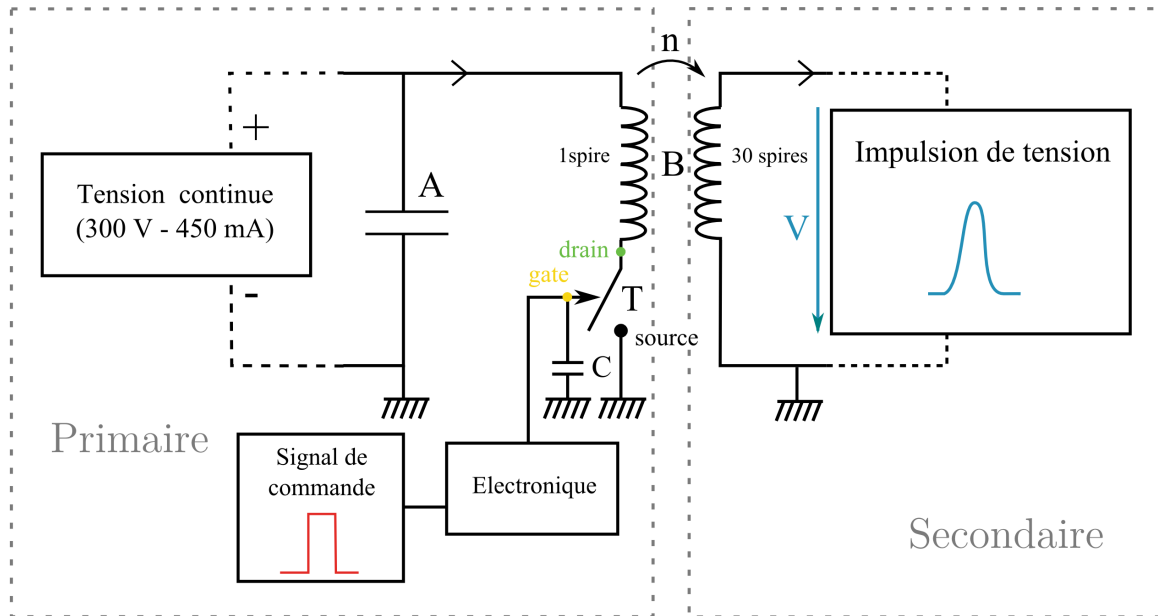


Figure 2-5 : Schéma simplifié du générateur d'impulsion.

2.2 Diagnostics

Ce paragraphe présente les différents diagnostics utilisés au cours de cette thèse et qui ont permis de sonder le plasma. La Figure 2-6 schématise le dispositif expérimental utilisé. Par souci de clarté au niveau du schéma, le dispositif expérimental destiné à la mesure de la densité d'atomes métastables d'hélium n'a pas été représenté ici (il est détaillé à la Figure 2-25). Chaque diagnostic est présenté dans la suite de cette section.

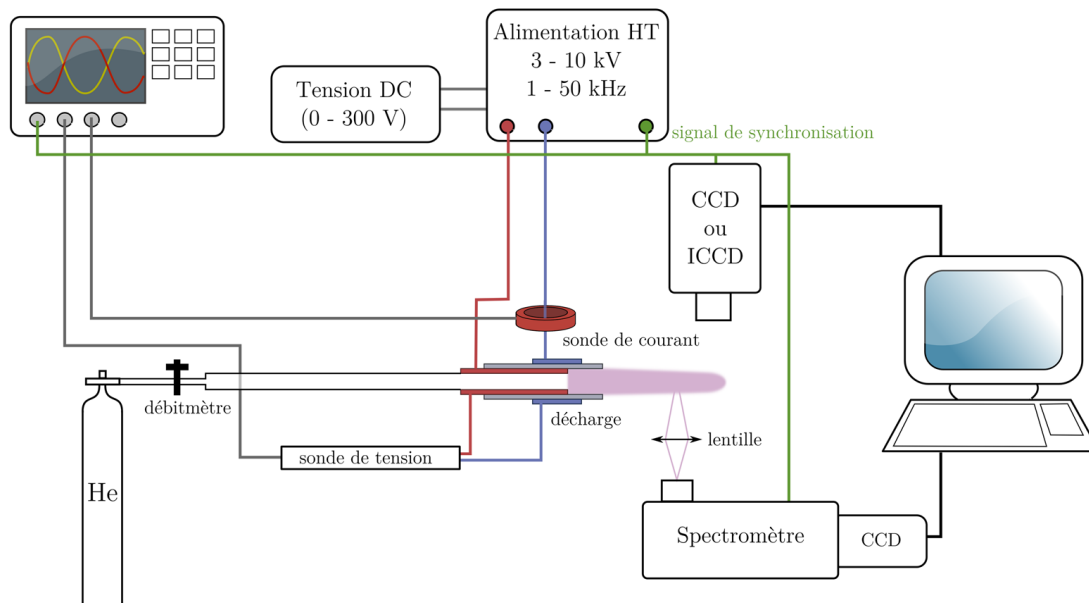


Figure 2-6 : Schéma du dispositif expérimental.

2.2.1 Diagnostics électriques

Les diagnostics électriques permettent de contrôler la tension appliquée à la décharge et de mesurer le courant. Pour des décharges impulsionnelles nanosecondes, la mesure des paramètres électriques est difficile car les signaux sont très souvent perturbés par des parasites électromagnétiques générés par les diverses parties du circuit électrique qui se superposent aux signaux à mesurer via des couplages capacitifs. Ces parasites peuvent être en partie contrôlés en blindant les câbles électriques ou en y plaçant des ferrites.

2.2.1.1 Oscilloscope

L'oscilloscope utilisé durant cette thèse est un oscilloscope LeCroy Wave Runner 64Wi-A possédant une bande passante de 600 MHz avec une fréquence d'échantillonnage de 10 GS/s. Ces caractéristiques permettent de suivre correctement la dynamique des phénomènes physiques mis en jeu lors de l'évolution de la décharge.

Cet oscilloscope possède quatre voies d'entrée qui permettent de mesurer simultanément le signal de synchronisation, la tension et le courant. La quatrième est utilisée selon les besoins de l'expérience menée. Ce qui a été le cas notamment, pour visualiser la porte de la caméra ICCD ou le signal reçu par une photodiode.

2.2.1.2 Sonde de tension

Deux sondes haute tension sont utilisées pour mesurer la tension appliquée à la décharge. La première est une sonde capable de mesurer des tensions allant jusqu'à 6 kV, et la seconde jusqu'à 20 kV. L'emploi de l'une ou de l'autre dépend des conditions expérimentales.

Toutes deux sont des sondes haute tension Lecroy[®] possédant une bande passante de 400 MHz pour la sonde 6 kV et de 100 MHz pour la sonde 20 kV. Elles fonctionnent sur le principe d'un diviseur de tension basé sur un réseau de résistances et de condensateurs.

2.2.1.3 Sonde de courant

Dans nos conditions expérimentales, la mesure du courant s'est révélée être la mesure la plus délicate. Diverses sondes ont été testées : sonde à effet Hall (LCP031), transformateur de courant de différents fournisseurs et de différentes caractéristiques en terme de diamètre et de sensibilité. Sauf mention contraire les résultats présentés ont été obtenus avec une sonde Pearson Electronic[®] modèle 2877, dont la sensibilité est de 1 V/A. Le principe de fonctionnement est basé sur la mesure de la variation temporelle du flux du champ magnétique :

$$e = -\frac{d\Phi_B}{dt} \quad (3)$$

où e représente le potentiel généré par la force électromotrice et Φ_B le flux du champ magnétique.

La sonde, schématisée Figure 2-7, est composée d'un tore, appelé « noyau », autour duquel est enroulé de manière hélicoïdale, un fil conducteur. Ce noyau, dans notre cas, est composé d'un matériau ferromagnétique.

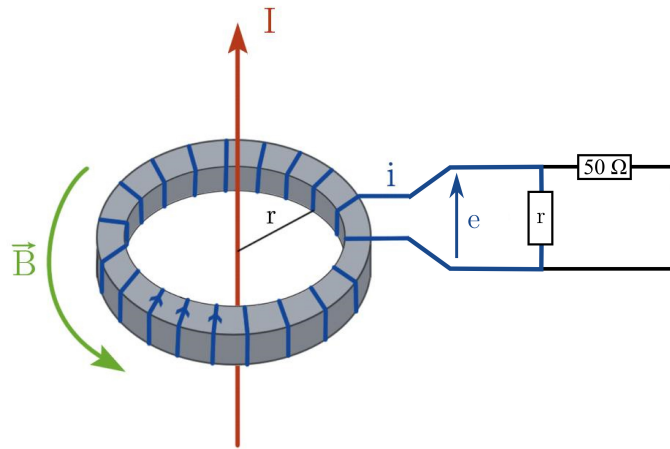


Figure 2-7 : Schéma d'une sonde de mesure de courant. En rouge est représenté le courant mesuré I , en vert le champ magnétique \vec{B} généré par le courant I , et en bleu le bobinage autour du tore où circule le courant i . Une résistance r est branchée en sortie de la sonde : sa valeur dépend du type de la sonde. Et en série est ajoutée une résistance de 50Ω qui permet d'adapter l'impédance du signal au circuit électronique.

La sonde ne peut être utilisée pour mesurer des courants ayant une valeur crête supérieure à 100 A et un courant efficace excédant 2,5 A (l'expression du courant efficace est indiquée par l'équation (4)). Nos conditions respectent ces contraintes, car le courant crête mesuré est de l'ordre de la centaine de milliampères, et le courant efficace est de quelques milliampères.

$$I_{\text{efficace}} = \sqrt{\frac{1}{T} \int_{t_0}^{t_0+T} i^2(t) \cdot dt} \quad (4)$$

De par leur principe de fonctionnement, les sondes de courant ne permettent que de mesurer des courants variables dans le temps. Leur principal avantage est de posséder des bandes passantes très élevées (GHz) permettant des temps de réponse très brefs. Ainsi la sonde Pearson 2877 est donnée pour un temps de réponse de 2 ns suffisant pour analyser correctement l'évolution temporelle du courant dans nos conditions expérimentales. D'autre part, sa fréquence basse d'utilisation s'élève à 300 Hz, signifiant que cette sonde ne peut être utilisée que pour mesurer des signaux d'une durée inférieure à 3 ms. L'échelle de temps des signaux mesurés n'excédant pas quelques μs , cela nous autorise à utiliser ce type de sonde.

2.2.1.3.1 Mesure du courant de décharge

Comme mentionné ci-dessus, la mesure du courant de décharge est une tâche relativement délicate du fait de la présence de parasites électromagnétiques, d'éventuelles décharges annexes (décharges corona dans les parties du dispositifs où

règnent des champs électriques très intenses telles que les bords des électrodes : ce phénomène sera plus développé au chapitre 3), et de la très faible amplitude des courants à mesurer liée à la valeur basse (quelques pF) de la capacité propre de notre dispositif. De plus dans une décharge capacitive, le courant de décharge ne s'obtient généralement pas directement, car il est nécessaire de retrancher le courant de déplacement du courant total.

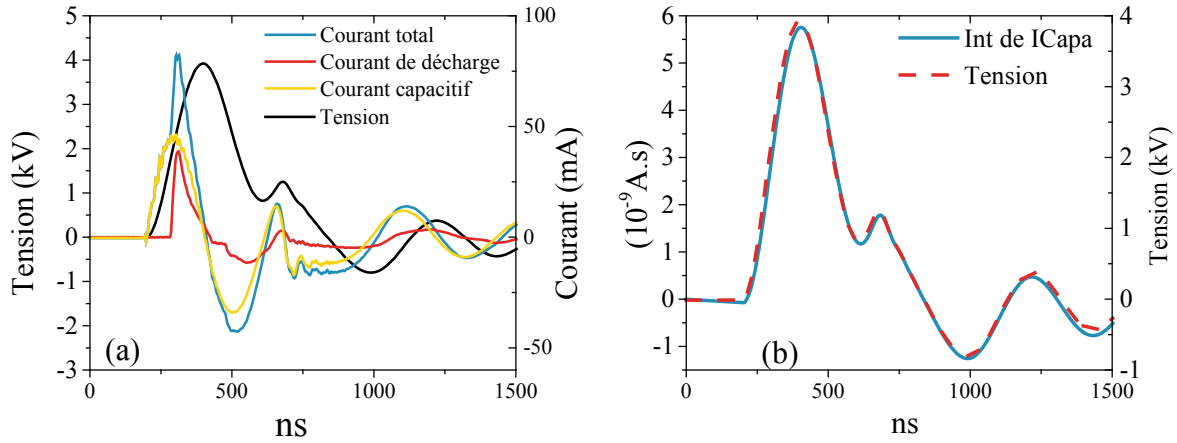


Figure 2-8 : (a) Signaux électriques de la décharge, où est représenté en noir la tension appliquée, en bleu le courant total, en rouge le courant de décharge et en jaune le courant capacitif. (b) Comparaison du profil de tension (rouge) et de l'intégrale du courant capacitif (bleu).

En l'absence d'hélium, le plasma ne s'amorce pas. Néanmoins, nous mesurons un courant comme le montre la courbe jaune de la Figure 2-8 (a). La Figure 2-8 (b) montre que ce courant est principalement un courant capacitif propre au système car l'évolution temporelle de l'intégrale du courant est sensiblement proportionnelle à l'évolution temporelle de la tension. Toutefois, un léger déphasage peut être observé, indiquant la présence de quelques pertes résistives, probablement situées au niveau du module haute tension.

Le coefficient de proportionnalité entre l'intégrale du courant et la tension donne la valeur de la capacité du dispositif (capacité propre de la DBD + capacité parasite), et s'exprime par la relation suivante :

$$I_{Capa} = C \cdot \frac{dU}{dt}$$

$$C = \frac{\int I_{Capa} \cdot dt}{U} \quad (5)$$

A partir des signaux représentés sur la Figure 2-8 (b) nous obtenons une valeur de la capacité propre du dispositif de 1,5 pF. Cette valeur dépend de la géométrie de la décharge étudiée, c'est-à-dire de l'épaisseur du diélectrique, de la position et de la taille

des électrodes. Pour les différentes décharges étudiées au cours de cette thèse, la valeur de la capacité varie entre quelques pF et une dizaine de pF.

Une fois le courant capacitif obtenu (courbe jaune sur la Figure 2-8 (a)), ce dernier est retranché au courant mesuré lorsque le plasma est allumé (courbe bleue de Figure 2-8 (a)) afin d'obtenir le courant de décharge (courbe rouge de la Figure 2-8 (a)).

2.2.1.3.2 Courant dans le jet

La mesure locale du courant au cours de la propagation du jet de plasma serait une mesure très intéressante car elle permettrait de connaître la densité électronique si la vitesse de dérive des électrons est connue, et inversement pour la vitesse de dérive si la densité électronique est connue. La détermination de la densité électronique serait très intéressante car les valeurs proposées dans la littérature [117], [118] varient de plus de deux ordres de grandeur pour des dispositifs en apparence similaires. Nous avons tenté de mesurer le courant dans le jet en faisant traverser la sonde de courant par le plasma, comme schématisé sur la Figure 2-9.

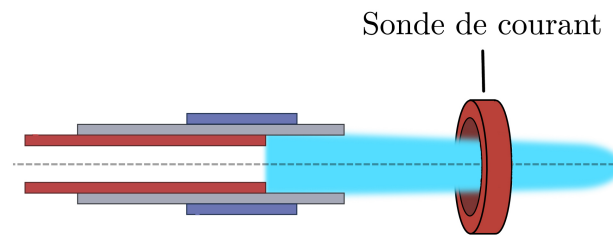


Figure 2-9 : Schéma de la mesure du courant au sein du jet de plasma.

La Figure 2-10 présente ces mesures pour différentes positions axiales. Ces mesures ont été réalisées avec une sonde de courant LeCroy CP031, dont la largeur de 6 mm est inférieure à celle des diverses sondes de courant, offrant ainsi une meilleure résolution spatiale qui nous permet de mesurer le courant en trois positions : au début, au milieu et en extrémité du jet. Les signaux, Figure 2-10, nous permettent de visualiser clairement la propagation du courant au cours du temps. Mais la valeur absolue du courant est très difficile à déterminer avec certitude. Le simple fait de positionner une sonde de courant autour du jet modifie l'environnement électromagnétique et en particulier la répartition spatiale des masses électriques. Ceci induit une perturbation des caractéristiques du jet, telle que par exemple la longueur de propagation et la vitesse du front d'ionisation. De plus, le couplage capacitif entre le jet de plasma et la sonde génère un courant non négligeable par rapport au courant à mesurer. Nous avons testé diverses sondes de courant. Les évolutions temporelles des signaux étaient similaires mais les valeurs absolues des courants différaient de près d'un ordre de grandeur. La mesure du courant dans le jet reste donc un véritable challenge

instrumental et un regard très critique peut être porté sur les résultats publiés [89], [92], [125].

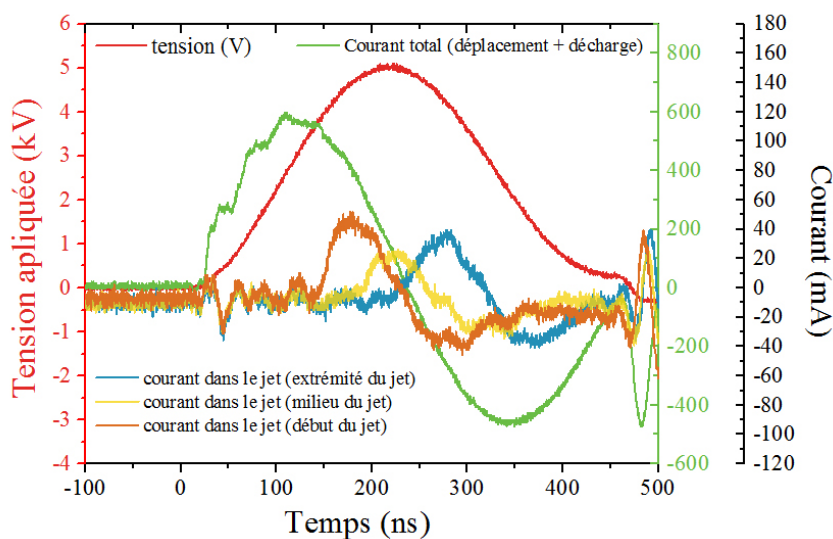


Figure 2-10 : Tension (rouge) et courants mesurés aux bornes de la décharge (vert) et au sein du jet avec une sonde LeCroy CP031, pour trois positions différentes. L'échelle de gauche représente l'échelle de tension, tandis que celles de droites du courant. Les courbes marron, jaune et bleue sont associées à l'échelle noire.

2.2.1.4 Mesure de l'énergie

La capacité propre du système est très faible (quelques pF). L'énergie transférée au plasma l'est donc également, de telle sorte que les pertes résistives parasites présentes dans la boucle du courant reliant le secondaire du transformateur HT à la décharge peuvent ne pas être négligeables. Pour les estimer, nous mesurons l'énergie, E , lorsque le plasma est éteint. Cette valeur est ensuite soustraite de la valeur de l'énergie mesurée en présence du plasma. L'énergie délivrée au temps t par l'alimentation est obtenue par intégration des mesures de tension $U(t)$ et de courant $I(t)$ au moyen de la relation suivante.

$$E(t) = \int_0^t U(t).i(t).dt \quad (6)$$

L'énergie délivrée par une impulsion est donnée par $E = E(t_{fin}) - E(0)$, où $E(0)$ et $E(t_{fin})$ sont pris respectivement avant le déclenchement de la décharge et à la fin de l'impulsion lorsque la tension et le courant sont revenus à des valeurs nulles. La Figure 2-11 montre l'évolution de l'énergie délivrée au cours du temps en l'absence (courbe rouge) et en présence du plasma (courbe bleue). L'énergie mesurée n'est pas nulle en l'absence de plasma, confirmant que le système n'est pas purement capacitif : 2,5 μ J sont consommés probablement par le module haute tension. En présence du plasma, l'énergie en fin d'impulsion s'élève à 6 μ J. La différence de ces deux valeurs

fournit l'énergie réellement délivrée au plasma, qui est ici de $3,5 \mu\text{J}$. De manière générale, selon les différentes décharges utilisées, l'énergie délivrée au plasma varie de quelques μJ à quelques dizaines de μJ .

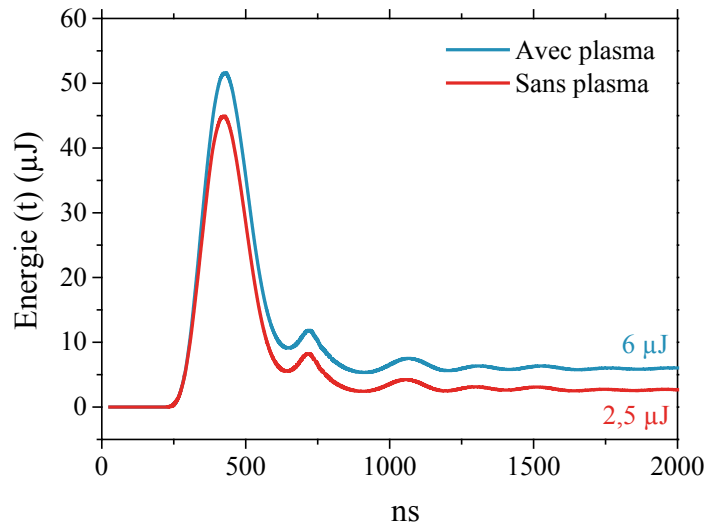


Figure 2-11 : Signaux de l'énergie capacitive et totale en fonction du temps.

D'autre part, cette figure montre que le couplage énergétique entre le plasma et le système est très faible. En effet, sur les $50 \mu\text{J}$ injectables par l'alimentation couplée à ce dispositif de décharge, seulement $3,5 \mu\text{J}$ sont déposés dans le plasma.

2.2.2 Imagerie

Des diagnostics d'imagerie du plasma ont été réalisés au cours de cette thèse afin de connaître la distribution spatiale et temporelle de l'émission lumineuse des espèces en présence. Nous avons utilisé deux sortes de caméras : une caméra CCD (Charged-Couple-Device) classique et une ICCD (Intensified Charge Coupled Device). La différence principale entre ces deux caméras réside dans le temps d'exposition. Les caméras CCD ne permettent de prendre des photos qu'avec un temps de pause supérieur à la milliseconde, alors que les ICCD permettent d'obtenir des temps inférieurs à la nanoseconde. D'autre part, l'utilisation d'une caméra CCD permet d'obtenir des images intégrées dans le temps avec un bruit de fond inférieur à celle d'une caméra ICCD, dû à l'absence de l'intensificateur.

2.2.2.1 Caméra CCD

Les initiales « CCD » signifient « Charge-Coupled-Device », qui se traduit par Dispositif à transfert de charges. Elles permettent de convertir de manière proportionnelle le nombre de photons reçus en électrons [126], [127]. La caméra utilisée est une CoolSNAP monochromatique. Elle est composée d'une matrice de 1392×1040 px, dont chaque pixel a une résolution de $4.65 \times 4.65 \mu\text{m}$. A chaque pixel est associée une photodiode, mais la surface de cette photodiode ne représente que 25 à

40% de la surface du pixel, réduisant alors la sensibilité par rapport à d'autres types de matrices CCD (ex : CCD plein cadre et CCD à transfert de trame). Les photodiodes de cette CCD couvrent le domaine du visible allant de 300 nm à 850 nm (Figure 2-12).

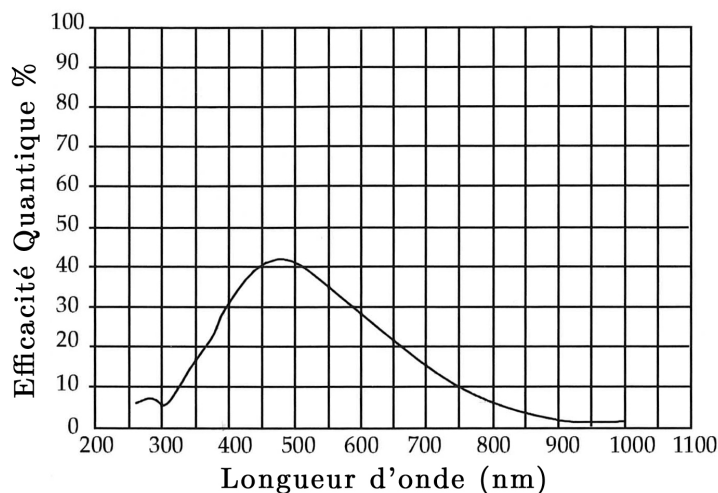


Figure 2-12 : Courbe de réponse de la caméra CCD CoolSNAP en fonction de la longueur d'onde.

Lorsqu'un photon arrive au niveau d'un photosite (*ie* un pixel), ce dernier va être converti en électrons par effet photoélectrique. Le nombre d'électrons stockés dans chaque photosite est proportionnel au nombre de photons reçus. Chaque pixel peut stocker un nombre maximal de photons qui dépend de la profondeur du puits de potentiel.

A la fin de l'exposition, les charges électriques sont transférées de photosite en photosite, jusqu'à parvenir au registre horizontal, afin d'être ensuite converties en un signal électrique proportionnel au nombre d'électrons (Figure 2-13) [128]. La rapidité de ce processus est de quelques images par seconde. La résolution de cette conversion dépend du nombre de bits du convertisseur. Dans notre cas, la caméra Cool Snap possède un convertisseur 12 bits permettant de travailler sur 4096 niveaux. La rapidité du convertisseur est de quelques images par seconde. D'autre part, afin de réduire le bruit thermique cette caméra est refroidie à 5°C par effet Peltier.

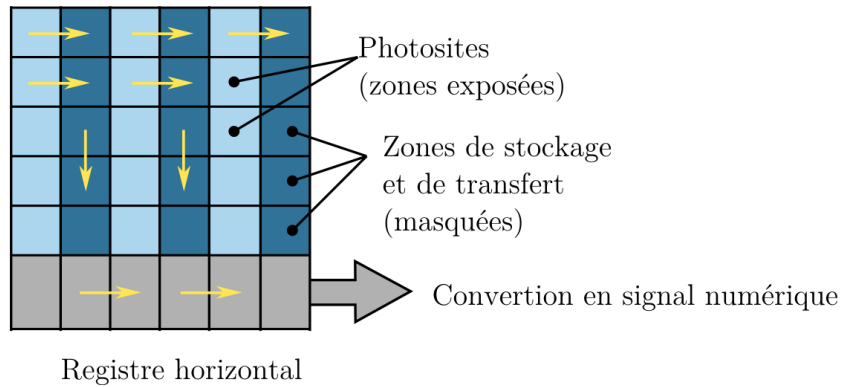


Figure 2-13 : Schéma du processus de transfert de charge d'une matrice CDD.

2.2.2.2 Imagerie ultra-rapide

Les caméras CCD sont donc limitées au niveau du temps d'exposition et ne peuvent descendre en dessous de quelque millisecondes. Pour l'étude des micro-jets de plasma, il est indispensable de descendre à des temps d'exposition de l'ordre de la nanoseconde, ce qui nécessite donc une technologie différente de celle employée dans les caméras CCD classiques.

Les caméras ICCD sont des caméras CCD présentant un intensificateur d'image devant la CCD. Celui-ci est composé de trois éléments placés l'un après l'autre dans l'ordre suivant : une photocathode, une galette de micro-canaux (MCP : « micro channel plate ») et un écran fluorescent. Un schéma du dispositif est présenté à la Figure 2-14.

Lorsque les photons parviennent à la photocathode, ils sont convertis en photoélectrons. Ces derniers sont ensuite accélérés dans la galette de micro-canaux dû à la présence d'une différence de potentiel entre l'entrée et la sortie de la galette. Lorsque les photoélectrons percutent la paroi des micro-canaux, ils provoquent l'émission de nouveaux électrons, qui sont à leur tour accélérés et qui génèrent de nouveaux électrons en percutant la paroi, déclenchant alors une amplification par cascade. La différence de potentiel entre la photocathode et la galette permet de contrôler le gain de la caméra [128]. Une fois arrivés sur l'écran fluorescent, ces photoélectrons sont de nouveau convertis en photons, puis sont transportés vers la CCD par le biais de fibres optiques ou de lentilles.

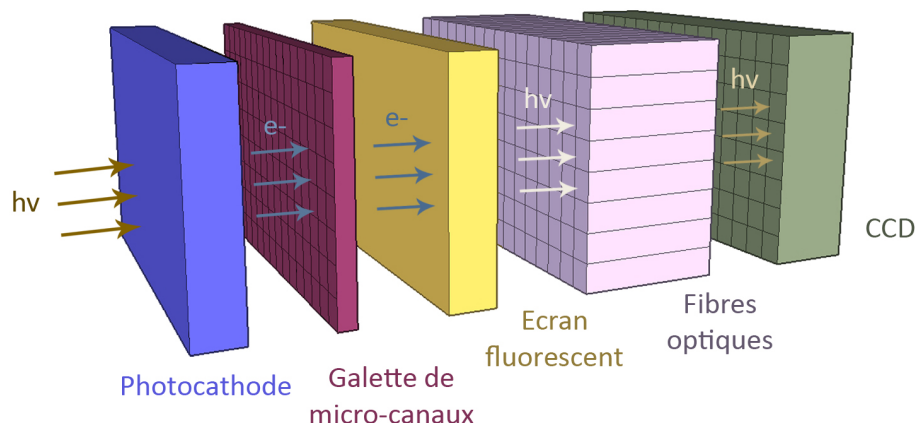


Figure 2-14 : Schéma d'une caméra ICCD

Cet intensificateur joue aussi le rôle d'obturateur : lorsque la tension de contrôle entre la photocathode et la galette de micro-canaux est négative, le champ électrique est inversé et les photoélectrons ne sont plus capables de se propager à travers la galette en direction de l'écran fluorescent. La CCD ne détecte alors pas de photons et l'obturateur est fermé.

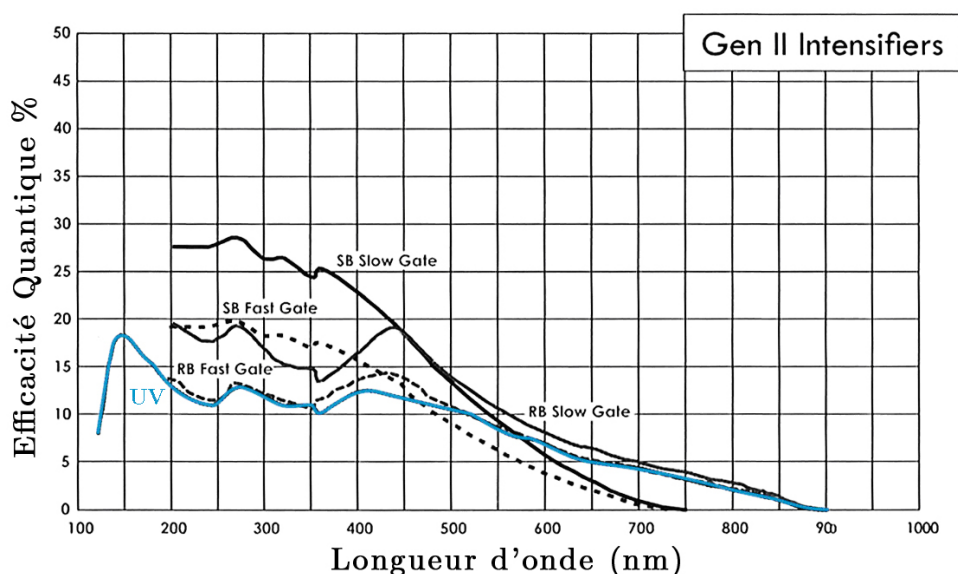


Figure 2-15 : Courbe de réponse de l'intensificateur de la ICCD PIMAX[®]3 System.

Cette tension, appliquée au niveau de la photocathode, peut être appliquée en mode impulsionnel, ce qui permet de descendre à des temps d'exposition très courts. La caméra utilisée durant ces travaux de thèse est une PIMAX[®]3 System de Princeton Instruments équipée d'une carte subnanoseconde autorisant des expositions minimales de 350 ps.

La réponse de l'intensificateur dépend de la longueur d'onde reçue. La Figure 2-15 présente différentes courbes de réponses pour différents intensificateurs de la génération Gen II. La courbe bleue correspond à l'intensificateur Gen II UV employé. Le

convertisseur de la CCD de la PIMAX 3 fonctionne sur 16 bits avec une fréquence de 16 MHz, ce qui permet de capturer au mieux 26 images par seconde en l'absence de binning. Cette fréquence est largement inférieure à la fréquence de répétition de la décharge, 20 kHz, utilisée dans ce travail. Les images présentées correspondent donc toutes à des décharges individuelles différentes. La reconstitution des évolutions temporelles n'est possible que grâce au jitter très faible, inférieur à la nanoseconde, du déclenchement de la décharge, et à la reproductibilité des plasmas créés. Ceci a été vérifié en comparant les images prises un grand nombre de fois pour des conditions expérimentales identiques.

2.2.2.3 Mesure de la vitesse de propagation du front d'ionisation

Comme expliqué au chapitre 1, à chaque impulsion de tension un streamer est créé par la décharge et se propage dans l'air ambiant. Grâce à la reproductibilité de ce plasma, par le biais d'une caméra ICCD, il est possible de mesurer la vitesse de propagation du front d'ionisation de ce streamer.

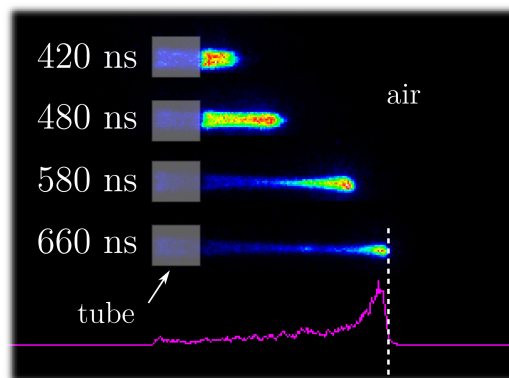


Figure 2-16 : Photographies prises avec une caméra ICCD à différents instants. La valeur des temps représente le temps depuis le front de montée du signal de synchronisation. La courbe en violet représente la coupe transversale le long de l'axe du jet pour 660 ns.

La Figure 2-16 montre des images successives de la propagation du front d'ionisation. Chaque image montre le plasma à une impulsion de tension différente. La courbe violette représente la coupe transversale de l'intensité lumineuse à 660 ns. Nous utilisons ces coupes pour définir la position du front d'ionisation que nous prenons par convention comme étant l'abscisse pour laquelle l'intensité lumineuse vaut 10 % de sa valeur maximale. La vitesse de propagation du jet est alors déterminée par l'évolution de la position du front au cours du temps.

2.2.2.4 Imagerie filtrée en longueur d'onde

L'imagerie filtrée en longueur d'onde permet de connaître la répartition spatiale de la densité des différentes espèces avec une résolution de 10 nm. Cette mesure est réalisée par le biais de filtres interférentiels.

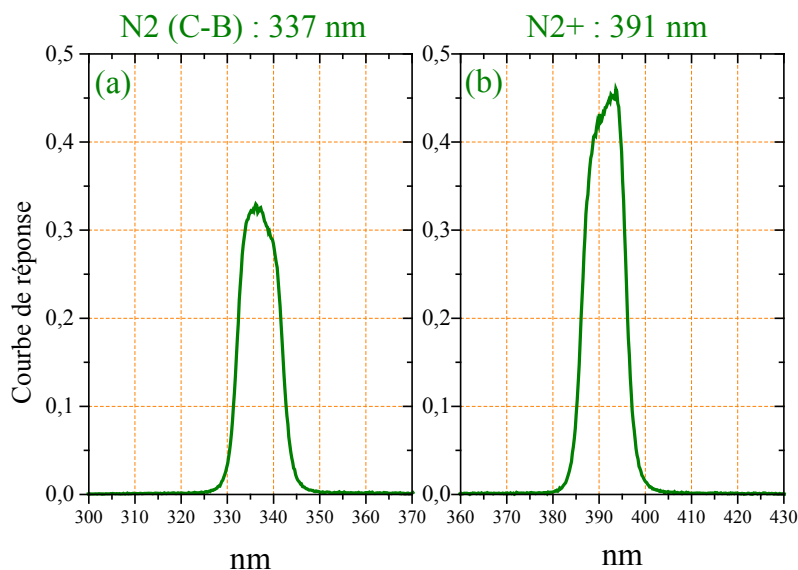


Figure 2-17 : Courbe de réponse de deux filtres interférentiels Oriel. (a) Filtre dont la longueur d'onde centrale est à 337 nm avec un facteur de transmission de 32% et une largeur à mi-hauteur de 10 nm. (b) Filtre dont la longueur d'onde centrale est à 391 nm avec un facteur de transmission de 45% et une largeur à mi-hauteur de 10 nm.

Ces filtres, dont les courbes de réponse sont données sur la Figure 2-17 pour deux d'entre eux, sont placés devant l'objectif de la caméra. Le tableau ci-dessous liste les filtres utilisés en fonction de la longueur d'onde. Il faut noter que, selon le filtre utilisé, le pourcentage de transmission n'est pas identique, comme le montre la Figure 2-17 pour les filtres à 337 nm et 390 nm. La réponse de la caméra dépend aussi de la longueur d'onde du photon qu'elle reçoit.

λ du filtre	λ de la transition	Transition	Transmission du filtre à la λ de la transition	Réponse Cool Snap	Réponse de l'intensificateur PIMAX 3.
307 nm	309 nm	OH (A-X) (0-0)	13%	6%	12%
337 nm	337 nm	N ₂ (C-B) (0-0)	32%	10%	11%
380 nm	380 nm	N ₂ (C-B) (0-2)	35%	25%	12%
390 nm	391 nm	N ₂ ⁺ (B-X) (0-0)	44%	28%	13%
589 nm	587 nm	He* (³ P ₀ - ³ D)	52%	30%	7,5%
710 nm	706 nm	He* (³ P ₀ - ³ S)	13%	15%	4%
730 nm	728 nm	He (¹ P ₀ - ¹ S)	58%	15%	4%
780nm	777 nm	O* (⁵ S ₀ - ⁵ P)	58%	6%	3%

La prise en compte du temps d'exposition, du pourcentage de transmission du filtre, et la courbe de réponse de la caméra (Figure 2-12 et Figure 2-15) permet de calculer les intensités relatives émises pour chaque longueur d'onde.

2.2.2.5 Coupe axiale et transversale

A partir des images obtenues par la caméra, il est possible de remonter aux distributions axiale et transversale de l'intensité lumineuse émise par le jet de plasma. Ceci peut être fait tant pour la lumière totale que pour les émissions spécifiques de certains états excités grâce à l'utilisation des filtres interférentiels.

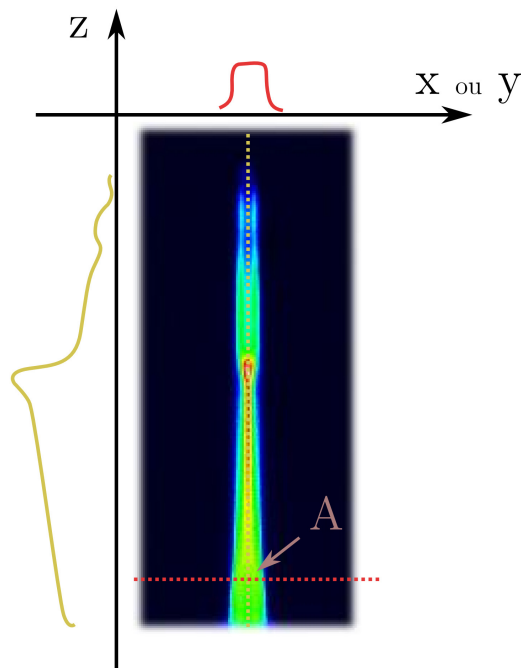


Figure 2-18 : Schéma d'une coupe transversale (rouge) et axiale (jaune) au point A.

La Figure 2-18 représente une photographie du jet de plasma à partir de laquelle les distributions axiale (courbe jaune) et transversale (courbe rouge) de l'intensité lumineuse ont été déterminées. La distribution transversale est particulièrement utile car elle permet de connaître la symétrie du jet, et de vérifier que cette dernière est bien de symétrie cylindrique dans les cas où l'on voudra effectuer des inversions d'Abel pour passer des intensités intégrées le long des lignes de visée aux distributions radiales. Plus de détails sur l'inversion d'Abel sont donnés au paragraphe 2.2.4.7.

2.2.3 Spectroscopie d'émission

La spectroscopie d'émission permet de connaître la répartition spectrale de la lumière émise avec une résolution bien meilleure que celle obtenue avec l'emploi de filtres interférentiels.

2.2.3.1 Principe physique

Le plasma étudié au cours de cette thèse est un plasma partiellement ionisé, composé d'atomes, de molécules, d'ions et d'électrons. Une de ses principales caractéristiques est son émission lumineuse. Celle qui nous intéresse particulièrement est l'émission lumineuse discrète des raies due aux transitions entre les niveaux d'énergie des atomes et des molécules. L'énergie d'un électron, quand il n'est pas libre, prend seulement des valeurs discrètes, qui sont déterminées par la résolution de l'équation de Schrödinger et caractérisées par les nombres quantiques principaux, orbitaux et de spin (n , l et s) [129].

L'excitation d'un atome ou d'une molécule se traduit par le déplacement d'un électron sur un niveau supérieur : autour d'un atome ou d'une molécule se trouve un certain nombre d'électrons, qui sont rangés selon un remplissage successif de couches électroniques qui respecte la règle de Klechkowsky [129]. Le dernier électron de ce remplissage va être le premier susceptible de changer d'état lorsque de l'énergie est apportée au système.

Dans un gaz atomique, les différents états sont tous de nature électronique, à la différence des gaz moléculaires pour lesquels des états vibrationnels et rotationnels s'ajoutent. Ceci a pour conséquence la création de bandes moléculaires. Un exemple est présenté sur la Figure 2-19, où l'on peut observer la raie de l'hélium à 667,8 nm et une bande moléculaire correspondant à la détection, dans le second ordre du spectromètre, de la distribution rotationnelle de la transition $v' = 0 - v'' = 0$ du second système positif de l'azote dont la tête de bande se situe à 337 nm.

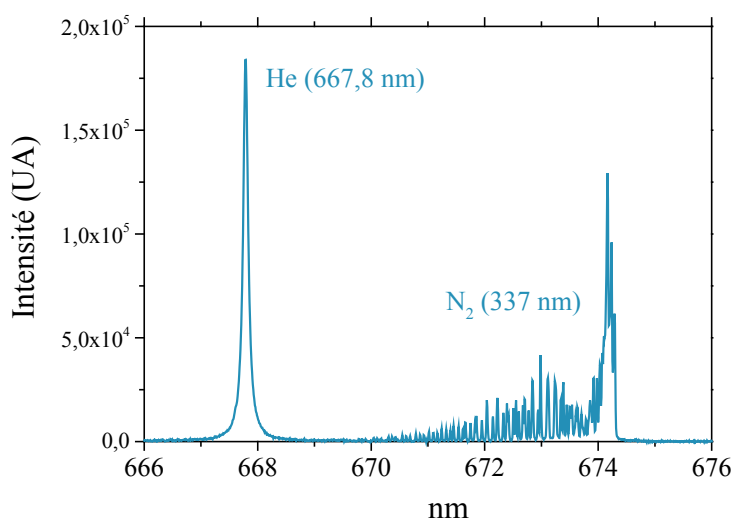


Figure 2-19: Exemple d'un spectre du plasma autour de 671 nm, sur lequel est visible une raie de l'hélium à 667,8 nm et une bande moléculaire de l'azote ($N_2(C-B,0-0)$ dont la tête de bande est à 337 nm) observée dans le second ordre.

2.2.3.2 Dispositif

Un spectromètre permet de disperser la lumière afin de déterminer les différentes longueurs d'onde qui la compose. Plus la lumière sera dispersée, plus la résolution du spectromètre sera bonne :

- Le réseau joue un rôle important au niveau de la résolution : plus le nombre de traits est grand, plus la lumière sera dispersée, mais ceci a pour conséquence de diminuer la plage de longueurs d'onde observée lors d'une acquisition. Chaque réseau possède un angle de blaze définissant la longueur d'onde pour laquelle l'efficacité est maximale.
- La distance focale du miroir est aussi un paramètre important : plus elle est grande, meilleure est la résolution.

Deux spectromètres ont été utilisés au cours de cette thèse, dont les caractéristiques sont présentées dans le tableau ci-dessous.

	Acton SP2300	Spectra Pro 2750
Distance focale	300 mm	750 mm
Réseau n°1	1200 traits/mm Angle de blaze : 500 nm	1800 traits/mm Angle de blaze : 500 nm
Réseau n°2	600 traits/mm Angle de blaze : 150 nm	1200 traits/mm Angle de blaze : 750 nm
Réseau n°3	300 traits/mm Angle de blaze : 300 nm	600 traits/mm Angle de blaze : 500 nm

Les deux spectrographes utilisés sont du type « Czerny-Turner », dont le principe est schématisé en Figure 2-20. La lumière polychromatique (A) traverse une fente d'entrée (B), placée au point focal du collimateur (D), qui capable de s'ouvrir de 0 à 2000 μm . La lumière arrive ensuite sur un miroir (C) qui l'envoie sur un collimateur (D). Le collimateur dans notre cas est un miroir sphérique, qui renvoie tous les rayons lumineux parallèles entre eux. Ils arrivent ensuite sur le réseau (E). La lumière est ensuite diffractée et envoyée sur un second miroir sphérique (F), qui va la focaliser au niveau du plan focal de la caméra. L'image obtenue est ensuite traitée afin d'obtenir un spectre.

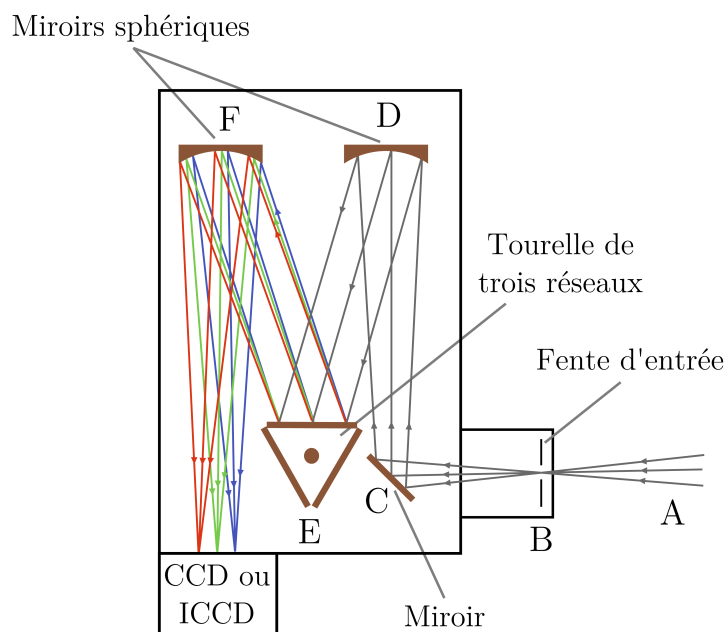


Figure 2-20 : Schéma d'un spectrographe de type Czerny-Turner.

Deux caméras différentes ont été utilisées : une PIXIS 400 de Princeton Instrument, dont le principe de fonctionnement est exactement le même que celui de la caméra CoolSnap présentée au paragraphe 2.2.2.1. Les différences majeures résident au niveau de la température de refroidissement qui est de -70°C , afin de diminuer le plus possible le bruit et de la dynamique du convertisseur : 16 bits pour la PIXIS contre 12 bits pour le Cool Snap. L'autre caméra est la caméra ICCD PIMAX 3, dont le fonctionnement a été détaillé au paragraphe 2.2.2.2. Elle a été utilisée pour faire des mesures résolues temporellement.

2.2.3.3 Détermination de la température du gaz

Les mesures de la température du gaz dans le jet d'hélium ont été faites en collaboration avec Nader Sadeghi du laboratoire LiPhy (Laboratoire Interdisciplinaire de Physique) de Grenoble.

La détermination de la température du gaz est effectuée à partir de l'analyse de la distribution rotationnelle de la bande $C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$ ($v'=0$; $v''=0$) du second système positif de l'azote. Nous utilisons cette bande car son intensité est relativement importante et que la présence de raies à cette longueur d'onde est faible, comme le montre la Figure 2-19.

La détermination de la température du gaz à partir de la température rotationnelle du second système positif de l'azote suppose que l'état $C^3\Pi_u$ soit en équilibre thermodynamique avec le gaz environnant. Cette condition est vérifiée si le temps caractéristique du transfert rotation-translation pour tous les rotationnels J' de $N_2(C)$, $\tau(C)_{R-T}$, est plus court que la durée de vie, $\tau(C)$, de l'état $N_2(C)$. Alors la population rotationnelle des états $C^3\Pi_u$ se thermalise avant que l'émission ne se produise et on

peut alors écrire que $T_{\text{rot}}(C) = T_{\text{gaz}}$ [130]. La durée de vie de l'état $C^3\Pi_u$ est donné par $\tau(C)^{-1} = \tau_{\text{rad}}^{-1} + \tau_Q^{-1}$, où τ_{rad} est le temps de vie radiatif (~ 40 ns pour l'état vibrationnel $v' = 0$ [131]) et où τ_Q^{-1} est l'inverse du taux de quenching de cet état par collisions avec les électrons et les espèces du gaz environnant, qui sont de l'hélium à la pression atmosphérique dans lequel un peu d'air a rétrodiffusé. Dans ces conditions, le quenching est très majoritairement dû aux collisions avec l'hélium. Nous n'avons pas trouvé de détermination exacte de la valeur du coefficient de quenching de l'état $N_2(C)$ par l'hélium, mais cette valeur doit vraisemblablement être du même ordre de grandeur que celle mesurée pour le quenching par l'argon, $k=5 \cdot 10^{-13} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$ [132], ce qui donne un taux de destruction de $1,25 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$. La durée de vie effective de l'état $N_2(C)$ est dans ces conditions de 25 ns, ce qui est largement supérieur au temps caractéristique de la thermalisation qui est, quant à lui, de l'ordre de la nanoseconde [130]. Ces estimations montrent que, pour nos conditions expérimentales, la condition d'égalité des températures rotationnelle et translationnelle est bien vérifiée, et qu'il est donc légitime, pour les plasmas d'hélium à pression atmosphérique, de déduire la température du gaz par l'analyse du spectre rotationnel du second système positif de l'azote.

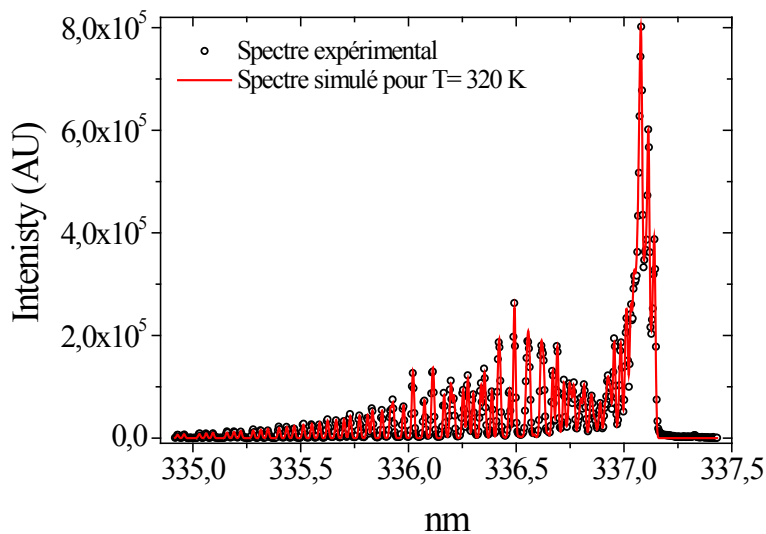


Figure 2-21 : Comparaison du spectre expérimental (points noirs) et simulé à 320 K pour le second système positif de l'azote (courbe noire).

La mesure de la transition : $v' = 0 - v'' = 0$ du second système positif de l'azote, dont la tête de bande se situe à 337,1 nm a été effectuée dans le second ordre du réseau 1800 traits/mm du spectromètre Acton Spectra Pro 2750, permettant d'obtenir une résolution spectrale de 24 pm avec une largeur de fente de 20 μm . La température est alors déterminée en comparant la distribution rotationnelle du spectre mesuré avec celles de spectres synthétiques calculés, pour diverses températures, à l'aide d'un code mis au point par Nader Sadeghi et Esmail Eslami [130], [133]. Un exemple de

comparaison entre un spectre expérimental et un spectre simulé est représenté sur la Figure 2-21 qui montre qu'un excellent accord peut être obtenu. Lorsque le spectre mesuré est de bonne qualité, la précision de cette mesure est estimée à $\pm 20\text{K}$

2.2.4 Spectroscopie d'absorption

La spectroscopie d'absorption laser est une méthode très puissante permettant de mesurer des densités absolues d'espèces [134] en appliquant la loi de Beer Lambert qui relie l'intensité lumineuse transmise à une longueur d'onde donnée à la densité moyenne des espèces absorbantes. Afin de mesurer la densité des atomes métastables $\text{He}(2^3\text{S})$ présents dans nos jets de plasma, nous avons utilisé l'absorption à 1083 nm correspondant à la transition $\text{He}(2^3\text{S}_1 \rightarrow 2^3\text{P}_J)$. L'utilisation d'une diode laser accordable en longueur d'onde de 1081,05 à 1084,50 nm [135] permet de scanner les diverses composantes $J = 0, 1$ et 2 de la transition du triplet $\text{He}(2^3\text{S}_1 \rightarrow 2^3\text{P}_J)$. Les différentes transitions sont schématisées sur la Figure 2-22.

Cette méthode fournit la densité moyennée le long du trajet optique. Lorsque le système possède une symétrie cylindrique, ce qui est le cas du jet étudié, il est possible de remonter à la densité locale absolue par le biais d'une inversion d'Abel.

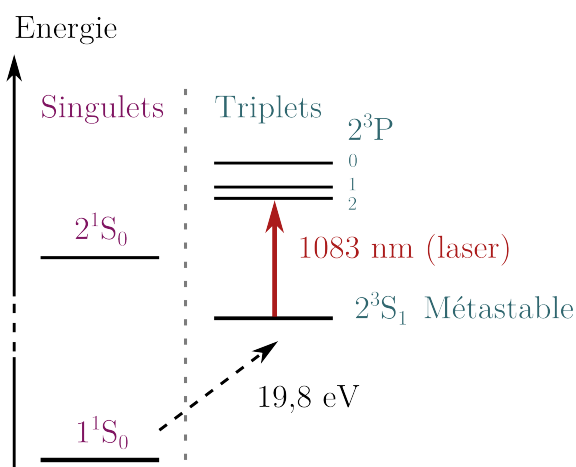


Figure 2-22: Niveau d'énergie de l'hélium montrant la transition laser à 1083 nm [136]

La mesure de cette espèce a été faite en collaboration avec le laboratoire du LiPhy à Grenoble et plus particulièrement avec Nader Sadeghi.

2.2.4.1 Loi de Beer-Lambert

La loi de Beer-Lambert, permet d'exprimer l'intensité d'un faisceau après avoir traversé un milieu absorbant. Le rapport entre l'intensité transmise et l'intensité incidente est donné par l'équation suivante :

$$\frac{I(\nu)}{I_0(\nu)} = \exp\left(-\int_0^l \alpha(\nu, x) dx\right) \quad (7)$$

Où $I_0(\nu)$ représente l'intensité du faisceau à la fréquence ν avant l'absorption, $I(\nu)$ l'intensité après absorption, l la distance sur laquelle le faisceau est absorbé par le milieu et $\alpha(\nu, x)$ le coefficient d'absorption [134].

La validité de cette loi est soumise à plusieurs conditions :

- Le faisceau traversant le milieu doit être monochromatique. Pour cela, il faut que la largeur spectrale du laser soit inférieure à la largeur de la raie d'absorption. Dans notre cas, la largeur spectrale du laser est inférieure à 100 MHz tandis que la largeur de la raie d'absorption est à 13 GHz (la mesure de cette largeur est expliquée au paragraphe 2.2.4.2.2). On peut donc en conclure que le faisceau laser est monochromatique.
- Le profil de la raie d'absorption doit être homogène dans le milieu absorbant. Cela signifie que la pression, la température du milieu et la composition du gaz perturbateur doivent être homogènes, car le profil de la raie d'absorption dépend de ces paramètres. Dans les jets de plasma que nous cherchons à caractériser, les gradients de température et de pression sont extrêmement faibles, de telle sorte que ces grandeurs peuvent être considérées comme constantes le long d'une ligne de visée. Par contre ce n'est pas le cas pour la composition du gaz, en raison de la diffusion de l'air dans le canal d'hélium. Nos mesures ont révélé qu'en présence de 1% d'air, les atomes métastables d'hélium ne sont plus mesurables, car ils sont détruits par les molécules d'air. La mesure de la largeur d'absorption en hélium pur et pour 1% d'air n'a montré aucune différence significative. Ce qui permet donc de supposer que, dans nos conditions expérimentales, le profil de la raie d'absorption est homogène.

Pour une seule raie (une raie atomique ou une seule raie rotationnelle), le coefficient d'absorption, $\alpha(\nu, x)$, est donné par :

$$\alpha(\nu, x) = k_0 \phi(\nu) (N_l(x) - \frac{g_l}{g_u} N_u(x)) \quad (8)$$

Où $N_l(x)$ et $N_u(x)$ représentent la densité de population dans l'état inférieur et supérieur de la transition, respectivement, l et u (« lower » et « upper »), g le poids statistique de ces niveaux, $\phi(\nu)$ le profil de la raie normalisée, ($\int \phi(\nu) d\nu = 1$) et k_0 est un paramètre relié à l'absorption qui vaut [134] :

$$k_0(\nu) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{\pi e^2}{m_e c} f_{lu} \quad (9)$$

Où ϵ_0 représente la permittivité du vide ($8,85 \cdot 10^{-12}$ F/m), m_e la masse de l'électron ($9,1 \cdot 10^{-31}$ kg), c la vitesse de la lumière dans le vide ($3 \cdot 10^8$ m/s), e la charge électronique élémentaire ($1,6 \cdot 10^{-19}$ C) et f_{lu} la force d'oscillateur de la transition considérée.

Une modélisation cinétique présentée au chapitre 4 montre que dans nos conditions expérimentales, la relation $N_u \ll N_l$ est toujours vérifiée, ce qui permet de simplifier l'équation (8) et d'écrire :

$$\alpha(\nu, x) \approx k_0 \phi(\nu) \cdot N_l(x) \quad (10)$$

Ce qui permet d'exprimer l'équation (7) de la manière suivante :

$$\frac{I(\nu)}{I_0(\nu)} = \exp\left(-\int_0^l k_0 \phi(\nu) \cdot N_l(x) \cdot dx\right) = \exp\left(-k_0 \phi(\nu) \int_0^l N_l(x) \cdot dx\right) \quad (11)$$

Où

$$\int_0^l N_l(x) \cdot dx = N_l^{moy} \cdot l \quad (12)$$

Où N_l^{moy} représente la densité moyenne de l'état inférieur le long de la longueur d'absorption, l .

Soit, S , la surface de la raie d'absorption (S est exprimée en GHz) :

$$S = \int_0^\infty \ln\left(\frac{I_0(\nu)}{I(\nu)}\right) \cdot d\nu = \int_0^\infty \ln\left(\frac{1}{\exp(-k_0 \cdot \phi(\nu) \cdot N_l^{moy} \cdot l)}\right) \cdot d\nu \quad (13)$$

$$S = \int_0^\infty k_0 \cdot \phi(\nu) \cdot N_l \cdot d\nu = k_0 \cdot N_l^{moy} \cdot l \quad (14)$$

$$N_l^{moy} = \frac{4\varepsilon_0 m_e c S}{l e^2 f_{lu}} = \frac{S}{l \cdot f_{lu}} \cdot 3,8 \cdot 10^{14} \quad (15)$$

Où les densités sont exprimées en m^{-3} et l en m. Nous nous intéressons aux transitions $2^3\text{S}_1 \rightarrow 2^3\text{P}_J$, où $J=1$ et 2 . A pression atmosphérique et à température ambiante, l'écart entre ces deux raies est de 2,3 GHz [137], [138]. Il est nécessaire de mesurer expérimentalement le profil de ces transitions pour nos conditions expérimentales.

2.2.4.2 L'élargissement de la raie

2.2.4.2.1 Cause de l'élargissement spectral

A pression atmosphérique, et à faible densité électronique, les principales causes de l'élargissement de la raie sont l'élargissement Doppler et l'élargissement de pression.

Élargissement Doppler

Le mouvement des atomes radiatifs crée un élargissement de la raie observée. Cet élargissement se nomme « élargissement Doppler » et possède un profil gaussien.

Sa largeur à mi hauteur s'exprime par la relation suivante [139] :

$$\Delta\lambda_{1/2}^D = 2 \left(\frac{2kT \ln 2}{M(kg)c^2} \right)^{1/2} \lambda_0 = 7,16 \cdot 10^{-7} \lambda_0 \sqrt{\frac{T}{M}} \quad (16)$$

Où la largeur à mi hauteur, $\Delta\lambda_{1/2}^D$, et la longueur d'onde de la transition, λ_0 , sont exprimées en Angstrom, la température du gaz, T , en Kelvin et la masse de l'émetteur, M , en unité atomique.

Élargissement de pression résonant

L'élargissement de pression est dû aux collisions entre les atomes perturbés et les espèces environnantes. Le profil spectral lié à cet élargissement est décrit par une fonction de Lorentz. L'élargissement de pression est dit résonant, lorsque ces deux conditions sont vérifiées :

- L'atome perturbé doit être de la même nature que les atomes perturbateurs.
- Un des niveaux de la transition doit être relié au niveau fondamental.

La largeur à mi-hauteur de la lorentzienne correspondant à cet élargissement est donnée par la formule suivante [139] :

$$\Delta\lambda_{1/2}^R = 8,6 \cdot 10^{-30} (g_i / g_k)^{1/2} \lambda^2 \lambda_r f_r N_i \quad (17)$$

Où λ et λ_r représentent respectivement la longueur d'onde de la transition observée et de la transition de résonance, toutes deux exprimées en Å, f_r , la force d'oscillateur de la transition résonnante, λ_r , la longueur d'onde de la transition de résonance, g_i et g_k , les poids statistiques des niveaux supérieurs et inférieurs de la transition résonnante et N_i , la densité des atomes à l'état fondamental et qui sont de même nature que l'émetteur qui s'exprime en cm^{-3} .

Élargissement de pression non résonant (élargissement de Van der Waals)

L'élargissement de Van der Waals résulte des interactions dipolaires d'un atome excité avec des neutres à l'état fondamental et induit un profil lorentzien. La largeur à mi hauteur du profil de Van der Waals est la suivante [139] :

$$\Delta\lambda_{1/2}^W = 3,0 \cdot 10^{-15} \lambda^2 (C_6)^{2/5} (T_g / \mu)^{3/10} N \quad (18)$$

Où $\Delta\lambda_{1/2}^W$ est exprimé en nm, μ représente la masse réduite du système, N la densité d'atomes perturbateur en cm^{-3} , T_g la température du gaz en K et C_6 est le coefficient de Van der Waals.

$$C_6 = C_k - C_i \quad (19)$$

Où C_k est le coefficient du niveau supérieur de la transition observée et C_i est celui du niveau inférieur. C_k et C_i sont donnés par la relation générale:

$$C_u = 9,8 \cdot 10^{-10} \alpha_p R_u^2 \quad (20)$$

Où R_u est exprimé en rayon de Bohr a_0 et où α_p est la polarisabilité de l'atome perturbé, exprimée en cm^3 .

$$\alpha_p = \frac{\alpha}{4\pi\epsilon_0} \approx 6,7 \cdot 10^{-25} \left(\frac{3I_H}{4E^*} \right)^2 \quad (21)$$

Où I_H est l'énergie d'ionisation de l'hydrogène et E^* est l'énergie du premier niveau excité de l'atome perturbé. Dans le cas de l'hélium, la polarisabilité vaut : $\alpha_p(\text{He}) = 0,205 \cdot 10^{-24} \text{cm}^3$.

Où R_u s'exprime de la manière suivante :

$$R_u^2 = R_j^2 - R_i^2 \quad (22)$$

Avec $R_{i,j}$ [140] :

$$R_{i,j}^2 = 2,5 \cdot \frac{I_H}{I - E_u} \left[1 + \frac{I_H - E_{i,j}}{5I_H} (1 - 3l_{i,j}(l_{i,j} + 1)) \right] \quad (23)$$

Où E_i et l_i sont l'énergie et le moment orbital de l'état i .

2.2.4.2.2 Mesure de l'élargissement de la raie

La mesure de l'élargissement de la raie, due aux transitions $2^3\text{S}_1 \rightarrow 2^3\text{P}_1$ et $2^3\text{S}_1 \rightarrow 2^3\text{P}_2$, a été obtenue en faisant varier la fréquence du laser. Le maximum de l'absorbance (l'absorbance est définie par $\ln(I_0/I)$) en fonction du temps a été mesuré pour chaque fréquence. Puis ces mesures ont été normalisées par la valeur de l'absorbance au centre de la raie. Ces valeurs sont reportées à la Figure 2-23, où elles sont comparées à des profils théoriques. La courbe continue noire, qui constitue la somme des trois raies : $J = 0, 1$ et 2 (courbes bleue, rouge et jaune), représente le meilleur accord avec les points expérimentaux (ronds verts), dont la largeur à mi hauteur s'élève à 13 GHz. Toutes ces raies (courbes bleue, rouge et jaune) sont calculées selon un profil de Voigt, qui est clairement dominé par la composante Lorentzienne. Les composantes $J = 1$ et 2 possèdent une séparation spectrale de 2,3 GHz, avec un rapport d'intensité de 3/5, et $J = 0$ et 2 possèdent une séparation spectrale de 30,7 GHz et un rapport d'intensité de 1/5. La partie gaussienne des raies résulte de l'élargissement Doppler, calculé à partir de l'équation (16) qui dépend de la température du gaz. Cette température a été mesurée à partir de la bande $C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$ ($v' = 0$; $v'' = 0$) du second système positif de l'azote selon le principe expliqué au paragraphe 2.2.3.3. Ces résultats sont présentés à la Figure 2-24 pour deux conditions : (a) pour un plasma en hélium pur, (b) et avec 0,1% d'azote ajouté. Les courbes bleues représentent le spectre expérimental et les rouges, le spectre théorique.

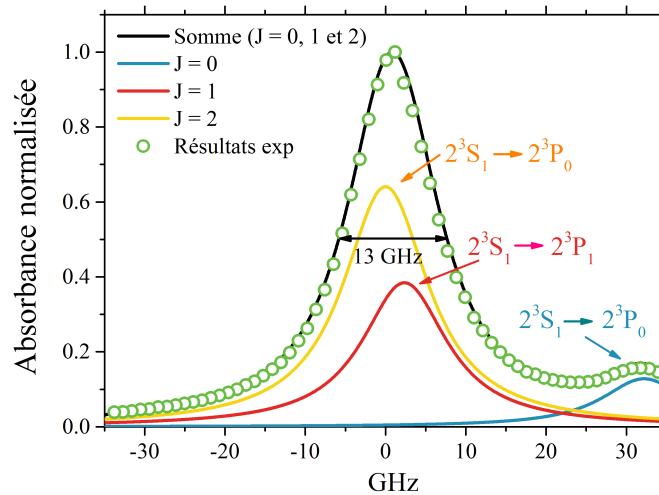


Figure 2-23 : Profil normalisé de la raie $2^3S_1 \rightarrow 2^3P_J$. Les deux raies $J = 1$ et 2 sont confondues, et la largeur à mi-hauteur est de 13 GHz. Les points verts représentent le maximum normalisé d'absorbance en fonction de la fréquence. Les courbes bleue, rouge et jaune sont les profils théoriques respectifs pour $J = 0, 1$ et 2 calculés pour une température de 350 K. La courbe noire est la somme des trois profils.

La comparaison avec le spectre théorique montre que la température rotationnelle de l'azote est à $320 \text{ K} \pm 20\text{K}$ lorsque la décharge est alimentée en hélium. Par contre, pour cette condition, l'azote est principalement présent en périphérie du plasma. La température mesurée dans ces conditions représente alors la température sur le bord du jet. L'ajout de 0,1% d'azote augmente l'intensité de la bande d'un facteur 10, prouvant que l'émission de ce spectre est émise au cœur du plasma et non sur le bord. Dans ce cas, la comparaison avec le spectre théorique révèle que la température du gaz est de $350 \text{ K} \pm 20\text{K}$, ce qui correspond à un élargissement Doppler de 1,86 GHz. D'autre part, pour cette valeur de température, la composante Lorentzienne est mesurée à 12,7 GHz, ce qui correspond à un élargissement de 14 GHz à pression atmosphérique pour une température de 300 K [141]. Cette valeur est comparable à celles mesurées au sein de micro-jet de plasma (tableau ci-dessous), dont la valeur s'élève à $12,75 \pm 1,55 \text{ GHz}$.

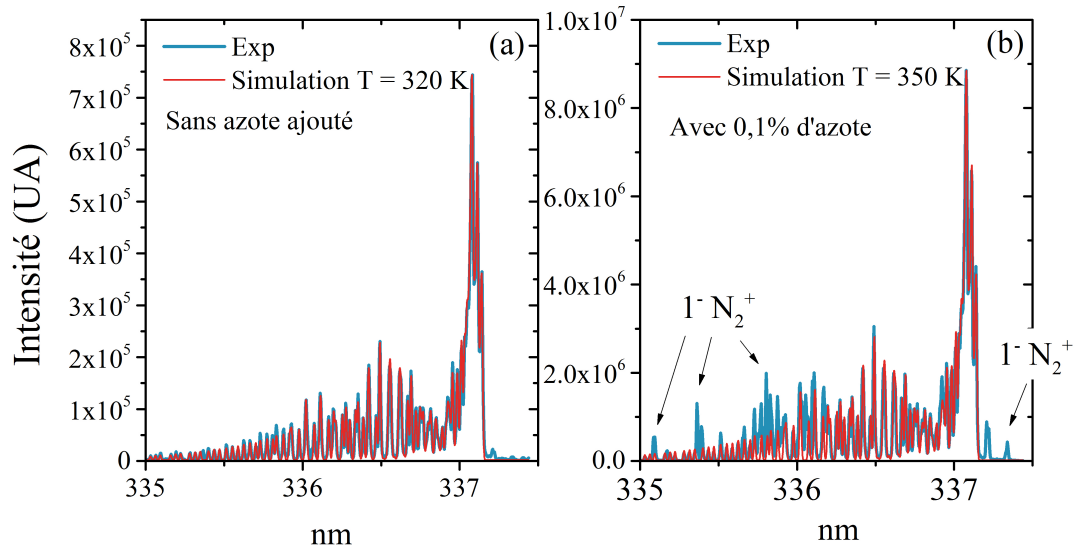


Figure 2-24 : Comparaison du spectre expérimental (courbe bleue) et du spectre simulé (courbe rouge) pour différents mélanges de gaz : (a) le flux de gaz est composé seulement d'hélium, (b) le flux de gaz est composé d'hélium et de 0,1% d'azote. Le débit total est de 4,5 slm et la tension appliquée de 5 kV.

$\Delta\nu_p$ (GHz) (à Pa et 300 K)	Plasma	Pression	Température	Méthode	Ref
14	Electrode en grillage	1 atm	Supposé à 300 K, mais pourrait être 400 K	LAS*	[142]
18,5		1 atm	310 K	Théorie	[143]
19,5	DBD en verre	1 atm	Supposé 300 K	LAS*	[79]
11,2	Micro-jet RF	1 atm	Supposé 300 K	LAS*	[144]
14,3	Micro-jet RF	1 atm	340 K par $N_2(2^+)$	LAS*	[145]
18	DBD	1,1 atm	295 K par $N_2(2^+)$	LAS*	Mesuré par Nader Sadeghi.

* LAS : Laser Absorption Spectroscopy

Par contre, l'élargissement mesuré dans des DBD a une valeur de $18,75 \pm 0,75$ GHz, ce qui est très éloignée de celle mesurée au sein de notre plasma et des jets de plasma. Cette disparité est peut être due à l'effet Stark, qui ne serait pas négligeable les DBD [146].

2.2.4.3 Calcul théorique de la densité moyenne de He^m

La surface de la raie, S , intervenant dans l'équation (9) est définie par intégrale, sur toutes les fréquences, du profil de la raie, $f(\nu)$:

$$S = \int_0^{\infty} f(\nu) \cdot d\nu \quad (24)$$

On peut donc écrire :

$$S = \int_0^{\infty} f(\nu) \cdot d\nu = \int_0^{\infty} \ln(I_0 / I)(\nu) \cdot d\nu$$

$$f(\nu) = \ln(I_0 / I)(\nu) \quad (25)$$

Le profil normalisé par la surface de la raie, s'écrit alors :

$$f_{norm}(\nu) = \frac{\ln(I_0 / I)(\nu)}{S} \quad (26)$$

Vu la différence entre les largeurs gaussienne et lorentzienne, on peut supposer que la raie ($2^3S_1 \rightarrow 2^3P_J$, avec $J = 1$ et 2) a un profil purement lorentzien. L'amplitude maximale d'une fonction lorentzienne $L(x)$, dont la surface est normalisée à 1, vaut

$$L(x_0) = \frac{2}{\pi \Delta \nu_L} \quad (27)$$

Où x_0 représente le centre de la lorentzienne.

Ce qui revient à écrire dans notre cas :

$$\frac{\ln(I_0 / I)(\nu_0)}{S} = \frac{2}{\pi \cdot \Delta \nu_L}$$

$$S = \frac{\pi \Delta \nu_L}{2} \cdot \ln(I_0 / I) \quad (28)$$

Où ν_0 représente la fréquence au centre de la raie.

On peut alors exprimer la densité moyenne (exprimée en m⁻³) d'atomes absorbants, équation (15), en fonction de $\Delta \nu_L$.

$$N_l^{moy} = \frac{\pi \cdot \Delta \nu_L}{2} \cdot \frac{1}{l \cdot f_{lu}} \cdot 3,8 \cdot 10^{14} \cdot \ln(I_0 / I) \quad (29)$$

Comme les deux transitions ($2^3S_1 \rightarrow 2^3P_J$, où $J = 1$ et 2) sont confondues, la force d'oscillateur f_{lu} équivalente est égale à la somme des forces d'oscillateur des deux transitions ($f_{11} = 0.1797$ et $f_{12} = 0.2994$ [137]). L'équation (29) s'exprime alors de la manière suivante :

$$N_i^{moy} = \frac{\Delta \nu_L}{l} \cdot 1,24 \cdot 10^{15} \cdot \ln(I_0 / I) \quad (30)$$

Où N_i représente la densité moyenne d'atomes métastable d'hélium sur une longueur d'absorption l .

2.2.4.4 Dispositif expérimental

Une diode laser DL 100 DFB Toptica a été utilisée pour diagnostiquer les atomes métastables d'hélium dans le micro-jet de plasma. La diode laser est accordable en longueur d'onde par le biais d'une alimentation qui fait varier la température et le courant de cette dernière.

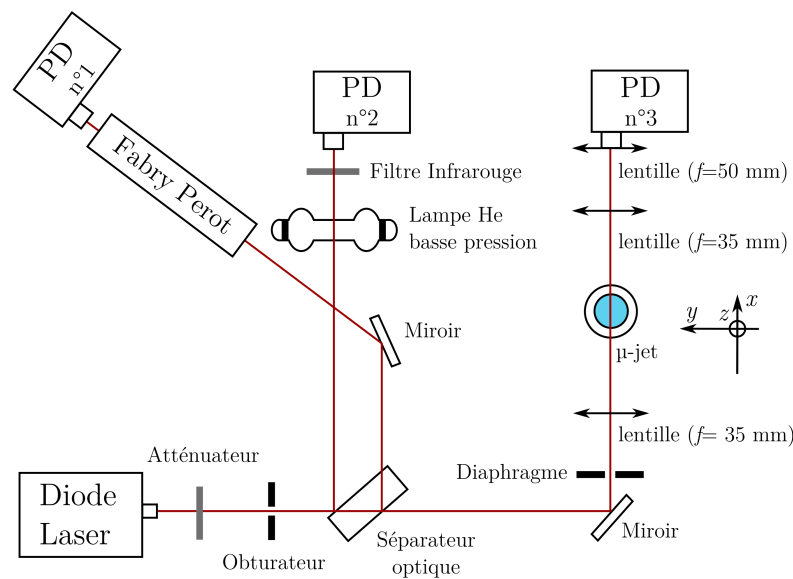


Figure 2-25: Dispositif expérimental de la mesure des atomes métastables d'hélium.

Les diodes laser sont composées de semi-conducteurs capables d'émettre un rayonnement optique cohérent lors du passage d'un courant. La modification de la température de la diode et du courant permet de faire varier la longueur d'onde du laser.

Le schéma du dispositif expérimental est présenté Figure 2-25. Un atténuateur est placé en sortie de la diode laser afin d'éviter la saturation des photodiodes et la saturation optique dans le plasma. A la suite est placé un obturateur qui permet d'enregistrer séparément les signaux d'émission et d'absorption du plasma suivant qu'il se trouve en position « fermé » ou « ouvert ». Le faisceau laser est ensuite divisé en trois faisceaux grâce à un séparateur optique. Les deux premiers faisceaux sont utilisés pour le réglage du laser. Le premier est envoyé à travers une lampe basse pression d'hélium, afin d'observer la raie d'absorption et de caler la longueur d'onde du laser au centre de celle-ci. Le second faisceau est envoyé à travers un interféromètre Fabry-Perrot, qui permet de contrôler la structure en mode du laser, de façon à s'assurer que l'absorption

est monomode, et que le balayage du laser se fait sans saut de mode. Finalement, le dernier faisceau est utilisé pour mesurer la densité d'atomes métastables dans le jet de plasma. Le détecteur est un détecteur New Focus dont la photodiode est en InGaAs (Indium Gallium Arsenide). La courbe de réponse de cette photodiode, présentée en Figure 2-26, se situe entre 900 et 1700 nm. Ce détecteur possède un temps de réponse de 3 ns.

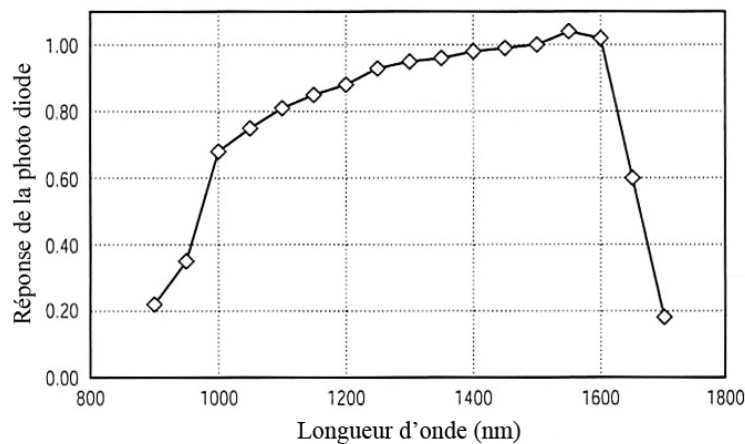


Figure 2-26 : Courbe de réponse du détecteur New Focus InGaAs

2.2.4.5 Résolution spatiale de la mesure

Pour déterminer la résolution spatiale du laser, nous avons cherché à connaître le diamètre du laser pour lequel on obtient 50% de l'intensité du signal laser au niveau de la décharge, qui est situé au point focal de la première lentille (Figure 2-25). Pour cela nous avons placé un masque verticalement et horizontalement afin de connaître respectivement la résolution spatiale selon la direction « y » et « z ». En se déplaçant respectivement selon la direction « y » et « z », nous avons alors cherché à déterminer les positions pour lesquelles on obtenait 25 et 75% du signal total du laser. Pour les deux directions la résolution obtenue est de 20 μm . Si ces mesures sont faites en prenant 10 et 90% du signal total du laser, la résolution obtenue est de 40 μm . La résolution du laser est donc comprise entre 20 μm et 40 μm , ce qui permet de sonder le plasma avec une résolution suffisamment précise pour effectuer une inversion d'Abel.

2.2.4.6 Traitement du signal

Pour calculer la densité des atomes métastables d'hélium nous avons besoin de connaître, d'après l'équation (30), les signaux I_0 et $I(t)$ correspondant respectivement à l'intensité du faisceau laser avant et après absorption.

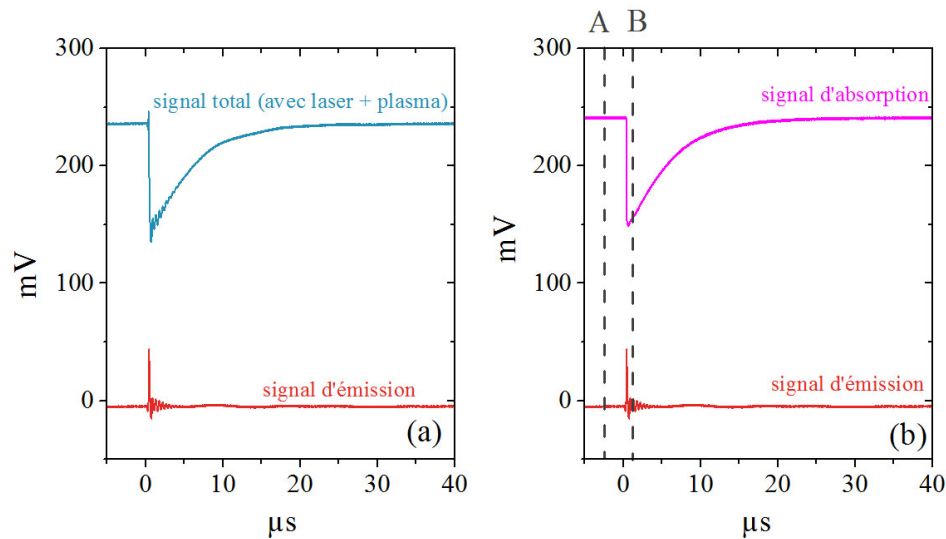


Figure 2-27 : Exemples de signaux obtenus : en bleu le signal lorsque le plasma et le laser sont allumés, en magenta le signal d'absorption et en rouge le signal d'émission.

La Figure 2-27 est un exemple des signaux obtenus par la photodiode. Pour obtenir le signal d'absorption (courbe magenta) il est nécessaire de soustraire le signal d'émission (qui inclut le bruit dû aux parasites électromagnétiques (courbe rouge) du signal total (courbe bleue).

Dans nos conditions, l'émission du plasma n'est en fait pas détectable, et la mesure du signal en l'absence de laser (lorsque l'obturateur de la Figure 2-25 est en position «fermée») est essentiellement destinée à acquérir le bruit ce qui permet par soustraction, d'obtenir un signal d'absorption très propre. Ceci est particulièrement important pour les faibles signaux d'absorption. A partir de ce signal d'absorption, on peut alors calculer soit la densité moyenne d'atomes métastables par le biais de la relation (30), soit la densité locale par le biais d'une inversion d'Abel, dont la méthode est expliquée ci-après.

2.2.4.7 Inversion d'Abel

Le signal obtenu en spectroscopie d'absorption, est un signal intégré le long du trajet que parcourt le laser à travers le milieu absorbant. A partir de cette mesure, on ne peut déduire qu'une densité moyenne d'absorbants. Il est souvent souhaitable d'obtenir la densité absolue de l'espèce. Cette information est impossible à obtenir, sauf si la répartition des espèces possède une symétrie particulière. Dans le cas d'une symétrie cylindrique correspondant à nos configurations, la densité radiale des espèces peut être déterminée par inversion d'Abel [147].

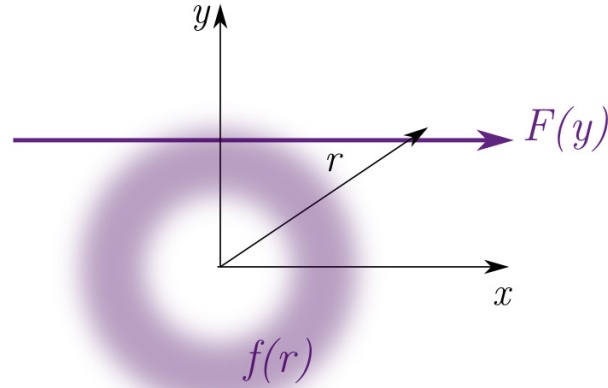


Figure 2-28: Interpolation géométrique de l'inversion d'Abel en deux dimensions

Soit une fonction $f(r)$, représentée en niveaux de violet sur la Figure 2-28 et $F(y)$, l'intégrale de $f(r)$ le long de la direction « x » pour un « y » fixe :

$$\begin{aligned}
 F(y) &= \int_{-\infty}^{+\infty} f(r) dx \\
 r &= \sqrt{x^2 + y^2} \\
 x &= \sqrt{r^2 - y^2} \\
 dx &= \frac{r \cdot dr}{\sqrt{r^2 - y^2}} \\
 F(y) &= 2 \int_y^{\infty} \frac{f(r) \cdot r \cdot dr}{\sqrt{r^2 - y^2}} \quad (31)
 \end{aligned}$$

En effectuant une inversion, la fonction $f(r)$ est donnée par [148]:

$$f(r) = -\frac{1}{\pi} \int_r^{\infty} \frac{dF}{dy} \frac{dy}{\sqrt{y^2 - r^2}} \quad (32)$$

Deux méthodes différentes ont été utilisées pour remonter à la distribution radiale des atomes métastables d'hélium à partir de la mesure de la densité intégrée le long d'une ligne de visée.

Dans la mesure où nous souhaitons faire une cartographie 2D détaillée de l'évolution spatio-temporelle de la densité des états métastables He(2³S), nous avons sondé le milieu avec des pas de 50 μm dans la direction transverse (*ie*, « y ») et de 500 μm dans la direction axiale (*ie*, « z »), ce qui représente, pour une condition expérimentale de débit et de tension, un total de 1600 points de mesure pour une longueur de jet sondé de 20 mm. Les signaux étant acquis sur des temps de 50 μs, l'analyse, avec une résolution de 5 ns, de l'évolution temporelle à chaque position spatiale requiert l'étude de 10 000 temps différents, soit un nombre total de signaux à analyser de 1,6 10⁷. Vu le nombre de signaux à traiter, il a été nécessaire d'automatiser le traitement des

données, La principale difficulté a été de trouver un algorithme fiable pour l'inversion d'Abel qui est la partie la plus délicate du traitement. Nous avons utilisé le programme développé par Beniaminy et Deutsch [149] (que nous nommerons algorithme BD) dont nous avons vérifié la robustesse avant de l'utiliser de manière systématique. Dans certain cas, cet algorithme fournit des solutions manifestement aberrantes. Pour traiter ces cas là et vérifier la robustesse générale de ce programme, une seconde méthode de calcul a été développée.

2.2.4.7.1 Méthode n°1 : Inversion d'Abel par l'algorithme BD

L'inversion d'Abel fait appel à la dérivée de $\ln(I_0/I)(y)$. Un faible écart entre deux points peut engendrer un écart important lors de la dérivation de $\ln(I_0/I)(y)$, entraînant une forte marge d'incertitude. Pour éviter cet inconvénient, le programme extrapole la courbe afin que cette dernière soit la plus lisse possible tout en respectant le profil expérimental.

Par le biais du programme d'inversion d'Abel, on obtient la fonction du coefficient d'absorption, $f(r)$, à partir de l'équation (32) [79] :

$$f(r) = -\frac{1}{\pi} \int_r^\infty \frac{d(\ln(I_0/I))}{dy} \frac{dy}{\sqrt{y^2 - r^2}} \quad (33)$$

A partir de l'équation (30), on peut exprimer $N(He^m)_{total}(y)$, le nombre total d'atomes métastables d'hélium le long de l'axe y :

$$N(He^m)_{total}(y) = N_l \cdot l = \Delta \nu_L \times 1,24 \cdot 10^{15} \cdot \ln(I_0/I) \quad (34)$$

On peut écrire que

$$\begin{aligned} \ln(I_0/I)(y) &= \int_{-\infty}^{\infty} f(r) \cdot dx \\ N(He^m)_{total}(y) &= \int_{-\infty}^{\infty} [He^m](r) \cdot dx \\ \int_0^{\infty} [He^m](r) \cdot dx &= \Delta \nu_L \times 1,24 \cdot 10^{15} \cdot \int_{-\infty}^{\infty} [He^m](r) \cdot dx \\ \int_0^{\infty} [He^m](r) \cdot dx &= \int_{-\infty}^{\infty} \Delta \nu_L \times 1,24 \cdot 10^{15} \times [He^m](r) \cdot dx \end{aligned} \quad (35)$$

Et on en déduit que la densité d'atomes métastables d'hélium s'exprime par la relation suivante :

$$[He^m](r) = f(r) \cdot \Delta \nu_L \times 1,24 \cdot 10^{15} \quad (36)$$

Où $[He^m]$ est en m^{-3} et $\Delta \nu_L$ en GHz.

Ce programme d'inversion d'Abel propose trois méthodes différentes pour effectuer l'inversion d'Abel [149].

$$\text{Méthode n°1 : } f_1(r) = -\frac{1}{\pi} \int_r^\infty \frac{dI(y)}{dy} (y^2 - r^2)^{-1/2} dy \quad (37)$$

$$\text{Méthode n°2 : } f_2(r) = -\frac{1}{\pi} \frac{d}{dr} \int_r^\infty [I(y)y(y^2 - r^2)^{-1/2} dy] \quad (38)$$

$$\text{Méthode n°3 : } f_3(r) = -\frac{1}{\pi} \left\{ [I(1) - I(r)](1 - r^2)^{-1/2} + \int_r^1 [I(y) - I(r)]y(y^2 - r^2)^{-3/2} dy \right\} \quad (39)$$

Pour ces trois équations le rayon de la source est normalisé à 1.

Dans notre cas si on compare ces trois méthodes, on obtient des résultats identiques à l'exception du dernier point (Figure 2-29), dont la valeur est négative pour la méthode n°2 et 3. Ces résultats ont également été inversés selon la méthode détaillée au paragraphe 2.2.4.7.2 (courbe bleue) et son résultat est similaire à celui de la méthode n°1. Cette dernière a donc été utilisée pour traiter tous les signaux.

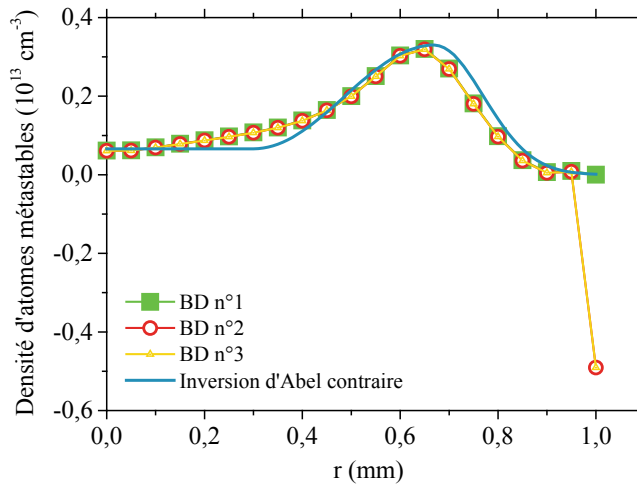


Figure 2-29 : Comparaison des différentes méthodes utilisées par le programme d'inversion d'Abel de Beniaminy et Deutsch [149] selon la méthode utilisée (courbes verte, rouge et jaune). Ceci est comparé avec la méthode d'inversion d'Abel contraire (courbe bleue) présentée au paragraphe 2.2.4.7.2.

Afin d'estimer la robustesse du programme d'inversion, à partir d'un échantillon de données, nous avons fait varier aléatoirement la valeur de chaque point de plus ou moins 10%. Nous avons pris cinq échantillons de données (Figure 2-30).

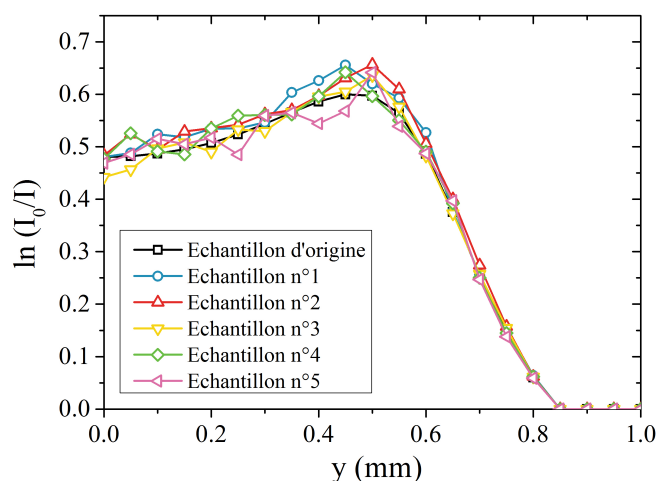


Figure 2-30 : Cinq échantillons de données, où les valeurs ont été prises aléatoirement dans un intervalle de plus ou moins 10% de la valeur d'origine.

Ces échantillons ont ensuite été traités par l'algorithme BS.

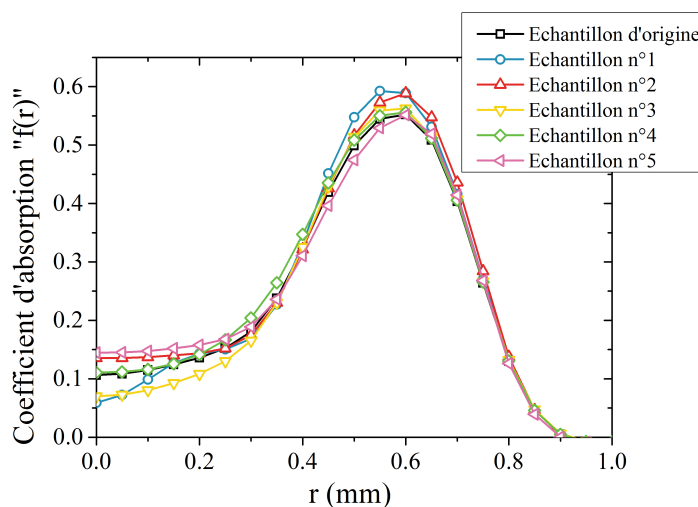


Figure 2-31 : Résultats de l'inversion d'Abel pour les cinq échantillons de données.

L'erreur maximale entre l'échantillon d'origine et les autres est reportée dans le tableau suivant, et montre que ce programme est relativement robuste, et possède une marge d'erreur ne dépassant pas 10%, sauf exception traitée au paragraphe 2.2.4.7.3.

Echantillon n°1	Echantillon n°2	Echantillon n°3	Echantillon n°4	Echantillon n°5
10%	8%	7%	5%	8%

2.2.4.7.2 Méthode n°2 : Inversion d'Abel contraire

Cette méthode se nomme « inversion d'Abel contraire », car au lieu de partir de la distribution du signal $\ln(I_0/I)(y)$ pour parvenir à la densité d'atomes métastables $[He^m](r)$, nous partons d'une densité d'atomes métastables ayant un profil hypothétique $[He^m](r)_{supposé}$, pour simuler, par application à la formule (31), un signal $\ln(I_0/I)(y)_{simulé}$. Ce signal simulé est ensuite comparé au signal mesuré.

Cette méthode comporte trois étapes :

1. choix d'un profil $[He^m](r)_{supposé}$
2. Intégration du profil $[He^m](r)_{supposé}$ selon la direction x
3. Comparaison et amélioration du profil intégré par méthode récursive

Prenons un exemple afin d'illustrer cette méthode. L'exemple en Figure 2-32 représente le signal d'absorption à reproduire en fonction de la position y .

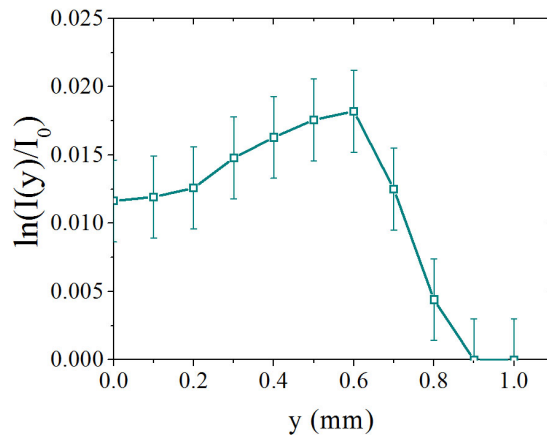


Figure 2-32 : Distribution de l'absorbance en fonction de la direction « y ».

Etape n°1 :

Afin de simuler un profil qui puisse se rapprocher autant que possible de la réalité, il est nécessaire de disposer de quelques informations au préalable, afin de pouvoir estimer son allure générale. En effet, on risque de perdre beaucoup de temps lors de la troisième étape, si le profil simulé est très loin de la réalité.

Différentes équipes expérimentales ont montré que la distribution lumineuse du plasma était annulaire à la sortie de la décharge et que l'anneau se refermait au cours de la propagation du jet [97]-[28]. On peut supposer, comme point de départ, que la distribution des métastables présente une topologie voisine. On partira donc d'une distribution annulaire

Etape n°2 :

On intègre ce profil hypothétique le long de la direction x (Figure 2-33).

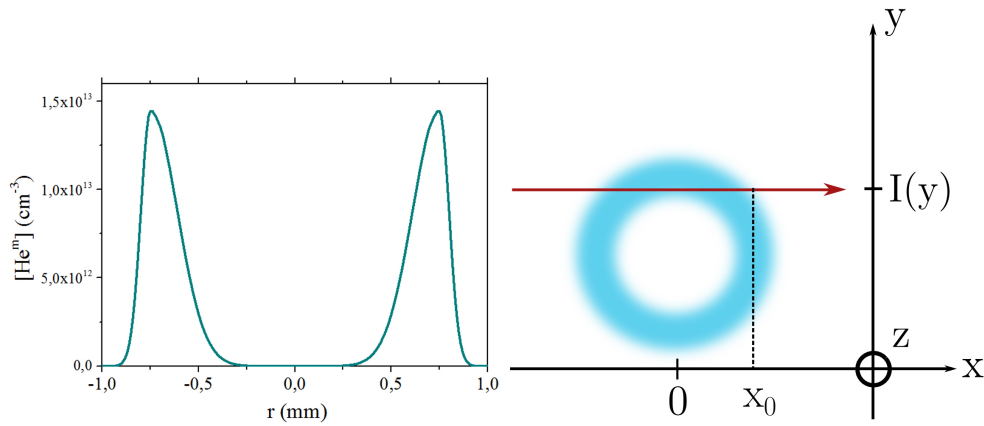


Figure 2-33: A gauche : profil de He^m simulé, à droite : schéma de l'intégration du signal.

Pour passer de ce profil de densité des atomes métastables d'hélium au signal d'absorption, il faut prendre en compte l'équation (30).

En premier lieu, on intègre $[He^m](r)_{supposé}$ le long de la direction « x » (équation(31))

$$He_m^{Total}(y) = 2 \int_y^{\infty} \frac{[He^m](r)_{supposé} \cdot r \cdot dr}{\sqrt{r^2 - y^2}} \quad (40)$$

Le résultat de cette intégration donne le nombre d'atomes métastables d'hélium le long de « x ».

Grâce à l'équation (30), on peut aussi exprimer cette somme de cette manière:

$$He_m^{total}(y) = l \cdot [He_m^{moyen}](y) = \Delta \nu_L \cdot 1,24 \cdot 10^{15} \cdot \ln(I_0 / I) \quad (41)$$

Et on en déduit

$$\ln(I_0 / I) = \frac{2}{\Delta \nu_L \times 1,24 \cdot 10^{15}} \cdot \int_y^{\infty} \frac{f(r) \cdot r \cdot dr}{\sqrt{r^2 - y^2}} \quad (42)$$

Etape n°3 :

Les profils simulés et expérimentaux sont alors maintenant comparables. En faisant varier l'amplitude, le front de montée, la hauteur du creux et de la valeur centrale du pic du profil de $[He^m](r)$, on cherche à obtenir le meilleur accord possible entre le profil d'absorption mesuré et celui simulé. Lorsque le profil n'est plus annulaire, il se rapproche d'une gaussienne, mais la procédure de traitement reste la même. Pour les différents traitements de données, il n'y a pas eu d'autres formes de distribution à simuler.

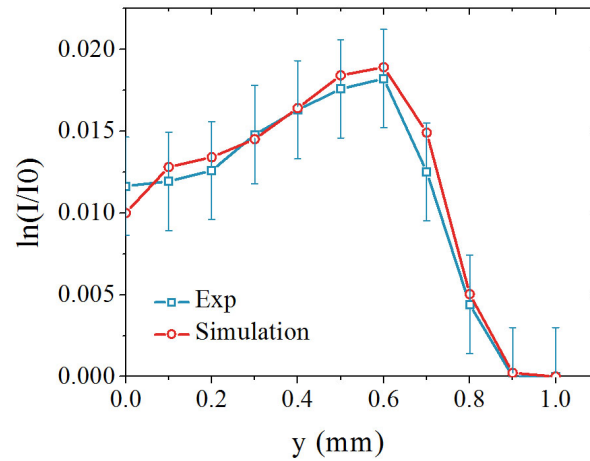


Figure 2-34: Comparaison du profil d'absorption expérimental (bleu) et du profil simulé (rouge).

La Figure 2-34 compare le signal expérimental, donné en exemple Figure 2-32, avec celui obtenu par cette méthode.

Fiabilité de la méthode :

Afin de déterminer la sensibilité de la méthode, nous avons fait varier chaque paramètre (amplitude, position centrale du pic,...). Pour les deux configurations de

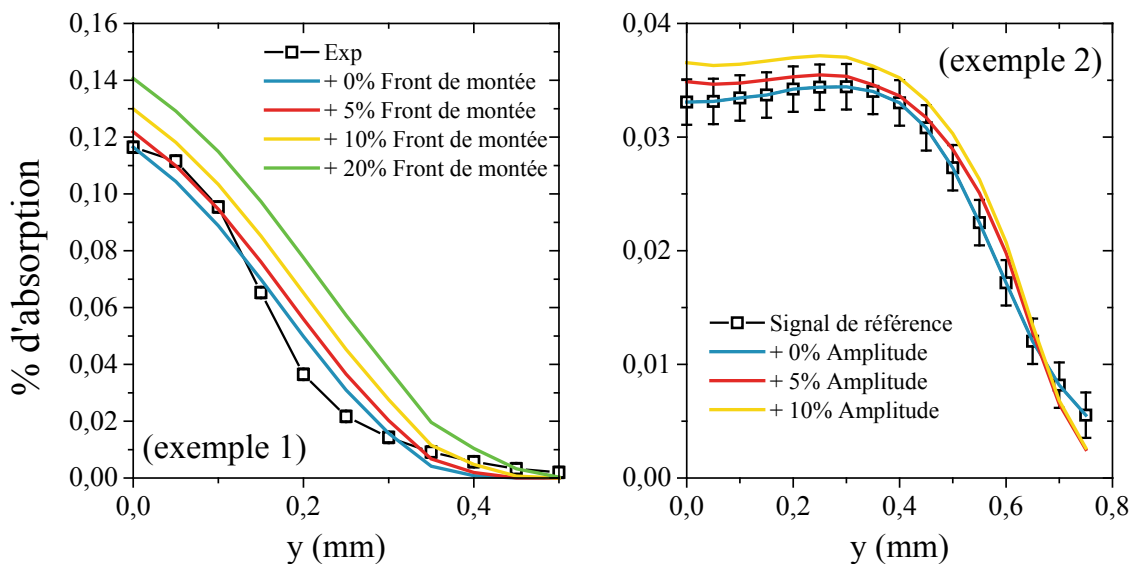


Figure 2-35: Comparaison du signal expérimental avec le signal simulé. Exemple 1 (distribution gaussienne) : le front de montée est modifié de 5 à 20%. Exemple 2 (distribution annulaire) : l'amplitude est modifiée de 5 à 10%.

signaux rencontrés : distribution annulaire et distribution proche d'une gaussienne. Des exemples d'études de sensibilité sont présentés en Figure 2-35.

Pour chacun des paramètres, nous avons estimé le pourcentage limite, c'est-à-dire, le pourcentage à partir duquel la simulation n'est plus en accord avec la mesure. Pour les deux exemples présentés ici ces valeurs sont reportées dans le tableau ci-dessous.

	Exemple 1	Exemple 2
Amplitude	10%	10%
Front de montée	10%	20%
Hauteur du creux	X	30%
Valeur centrale du pic	X	10%

Nous avons ensuite tracé le profil en faisant varier chaque paramètre du pourcentage limite reporté dans le tableau ci-dessus. Ces résultats sont reportés en Figure 2-36.

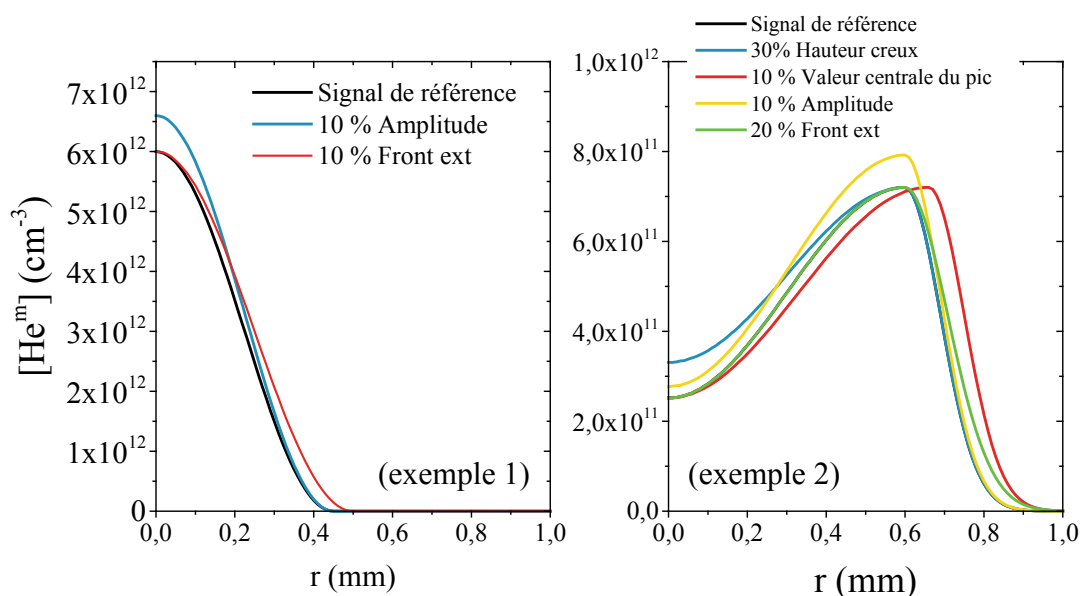


Figure 2-36: Comparaison du signal de référence avec les profils où un des paramètres a été modifié par son pourcentage limite pour les exemples 1 et 2.

Pour déterminer l'erreur de cette méthode, nous mesurons en différents endroits la différence maximale existant entre tous les profils, que nous comparons ensuite à l'amplitude maximale du signal de référence. Ces valeurs ont été reportées dans le tableau suivant :

Exemple 1		Exemple 2	
r = 0 mm	10%	r = 0 mm	11%
r = 0,25 mm	5%	r = 0,6 mm	11%
r = 0,4 mm	8%	r = 0,8 mm	10%

On en conclut que l'erreur liée à cette méthode s'élève à environ 10%. Cette méthode est probablement plus fiable que la méthode n°1, car elle ne fait pas intervenir la dérivée

de $\ln(I_0/I)(y)$. Par contre, son utilisation est manuelle et ne permet pas de l'employer de manière automatique comme la méthode n°1.

2.2.4.7.3 Comparaison des deux méthodes

Afin de connaître la concordance entre ces deux méthodes, il est nécessaire de les comparer entre elles. Sur la Figure 2-37, les deux méthodes sont comparées pour différentes positions correspondant respectivement en sortie de diélectrique (courbe bleue), au milieu de la zone où les atomes métastables d'hélium sont détectables (courbe rouge) et à la distance maximale où ils sont encore détectables (courbe jaune).

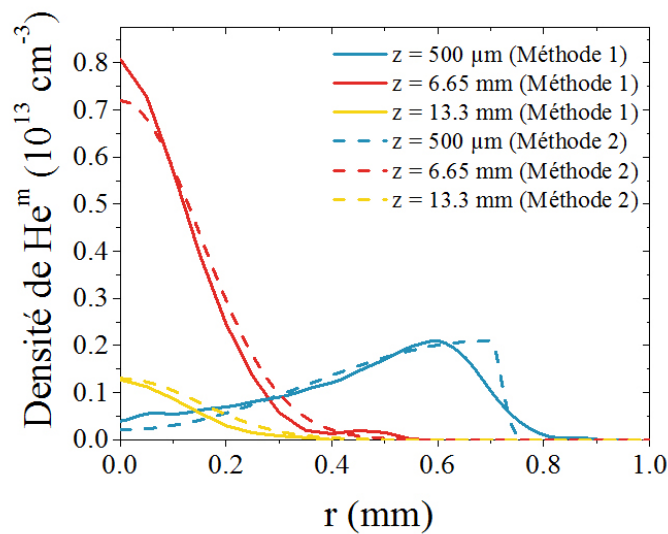


Figure 2-37 : Comparaison des deux méthodes d'inversion d'Abel pour 3 profils différents. Les courbes pleines correspondent à la méthode 1 : inversion d'Abel classique, et les courbes en pointillées correspondent à la méthode 2.

Ces deux méthodes donnent des résultats équivalents. Les amplitudes et les profils radiaux de densité sont similaires. En général ces deux méthodes fournissent des résultats analogues, mais il arrive que pour certains cas particuliers, la méthode n°1 (emploi automatique de l'algorithme BS) donne des résultats douteux. La Figure 2-38 présente l'exemple d'un cas particulier où les deux méthodes donnent des résultats sensiblement différents.

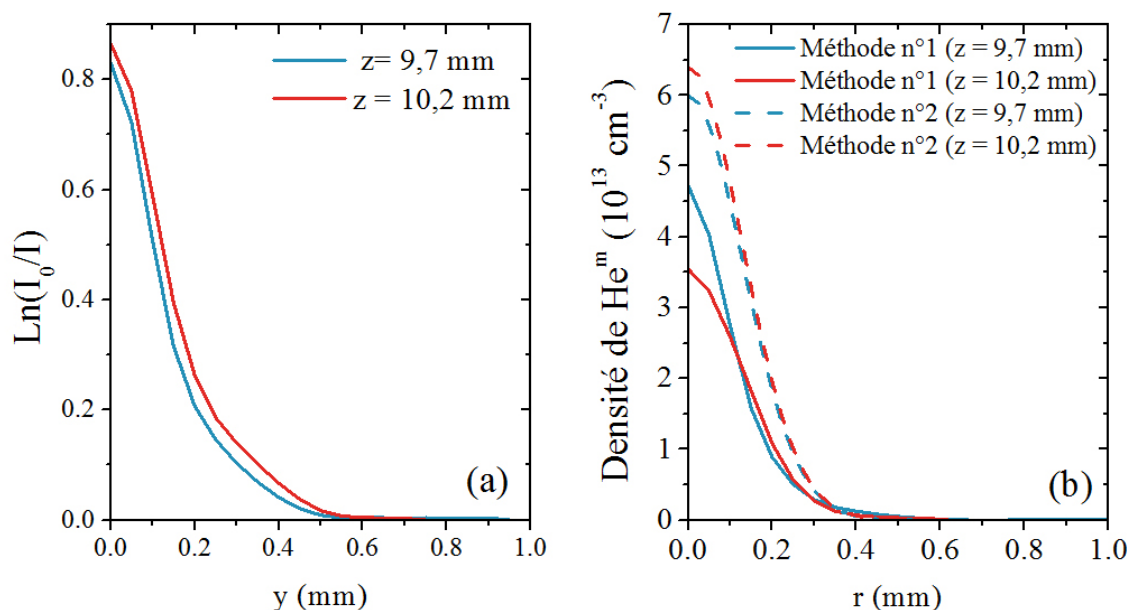


Figure 2-38 : Comparaison des deux méthodes d'inversion d'Abel pour un cas ambigu. (a) Absorption selon y pour deux positions axiales proches. (b) Comparaison des profils déduits de l'application des deux méthodes d'inversion.

La Figure 2-38 (a) présente l'absorption selon y pour deux positions axiales très proches. Les profils sont très similaires, pourtant, comme le montre la Figure 2-38 (b), l'inversion obtenue avec la méthode n°1 donne des résultats différents (courbes pleines). Dans ce cas, afin de vérifier la fiabilité de ces résultats, la méthode n°2 est employée. L'inversion selon cette méthode donne des valeurs de densités locales très proches l'une de l'autre pour les deux valeurs de « z », mais ces valeurs diffèrent de celles obtenues par la méthode BS de plus de 50%. L'inversion d'Abel est très sensible à la dérivée du profil, et dans certains cas, une petite fluctuation peut induire des effets importants sur le profil inversé. Dans les cas douteux, la méthode n°2 a été utilisée afin de valider ou d'invalider le profil obtenu par la méthode n°1.

Cet exemple montre que dans certains cas les résultats obtenus par la méthode n°1 ne sont pas toujours corrects et diffèrent de la méthode n°2. Dû à cet effet, nous ne pouvons affirmer avec exactitude la valeur de ces densités à moins d'un facteur 2, ce qui nous permet d'avoir seulement une évolution qualitative de la densité des atomes métastables. Pour cette raison, nous n'avons pas tracé les barres d'erreurs des profils inversés dans le chapitre 4, à l'exception du cas à 5 kV et à 4,5 slm, dont les données ont été inversées selon les deux méthodes. Dans ce cas, les deux méthodes donnent des résultats similaires à 10%. Notons que l'erreur due à la reproductibilité d'une mesure est très faible (<5%).

Chapitre 3 : Caractérisation des jets de plasma : imagerie et mesures électriques

Ce chapitre présente les résultats expérimentaux obtenus par le biais de diagnostics d'imagerie. Ces derniers sont effectués grâce à des caméras CCD et ICCD, dont le principe de fonctionnement est expliqué au chapitre 2. Cette étude présente l'évolution de la longueur du jet et de la vitesse de propagation du plasma en fonction de la tension appliquée, du débit, de l'ajout de gaz moléculaire et de la position des électrodes, dans le but de connaître les principaux paramètres responsables de leur variation. Dans certains cas, des mesures électriques et des diagnostics strioscopiques viendront compléter certaines études.

3.1 Pourquoi avoir étudié des décharges différentes ?

3.1.1 L'histoire

Nous avons fait évoluer la géométrie de la décharge au cours de ce travail de thèse. Le point commun entre toutes les décharges étudiées, est la géométrie générale. C'est-à-dire que l'électrode haute tension est emboîtée dans un tube diélectrique autour duquel est enroulé une électrode de masse. Les caractéristiques différentes d'une décharge à une autre furent la disposition des électrodes, leur taille, le diamètre du diélectrique et son matériau.

Au cours de la première année de thèse, le diélectrique de la décharge étudiée était un matériau organique. La fabrication de ces décharges était relativement simple et peu onéreuse. Mais au cours de différentes études, il s'est avéré que l'utilisation d'un tel matériau possédait l'inconvénient de polluer le gaz. Aspect relativement contraignant pour les applications biomédicales, car la libération de certains composés chimiques, comme le formaldéhyde, sont capables d'interagir avec la cible biologique, et alors de fausser les résultats expérimentaux, car le plasma n'est plus le seul agent capable d'agir.

Pour cette raison, à partir de la fin de la première année il a été décidé d'employer des matériaux inertes comme le verre et le quartz. La réalisation des décharges devient alors plus complexe, car le verre et le quartz ne possèdent pas les caractéristiques élastiques des composés organiques, et le diamètre externe de l'aiguille haute tension devait parfaitement correspondre au diamètre interne du tube diélectrique. Dues aux dimensions millimétriques du système, il a été observé que certaines décharges n'étaient pas parfaitement symétriques, ce qui interdisait l'utilisation de l'inversion d'Abel, et donc de connaître la distribution locale de l'intensité lumineuse et de la densité des

atomes métastables d'hélium. Lors de la dernière année, la décharge retenue a été une décharge dont la géométrie permettait d'obtenir un plasma le plus symétrique possible.

3.1.2 Dimension des trois décharges

Durant cette étude, trois décharges ont été utilisées, dont les caractéristiques sont présentées dans le tableau ci-dessous. La fréquence de répétition de l'impulsion de tension a été fixée à 20 kHz. Pour la décharge n°1 et n°3 le débit de gaz était respectivement de 900 sccm et de 4,5 slm, tandis que pour la décharge n°2, nous avons fait varier le débit de 1 à 6 slm.

	Décharge n°1	Décharge n°2	Décharge n°3
Composant	Organique	Quartz	Quartz
Diamètre int. diélec. (di)	1 mm	2,3 mm	2,1 mm
Diamètre ext. diélec. (de)	3 mm	4 mm	7,1 mm
Position électrode int. (ei)	-3 mm	Variable	-7 mm
Position électrode ext. (ee)	-3 mm	Variable	-5 mm
Diamètre int. élec. HT (d _{ei})	0,7 mm	1,6 mm	1,6 mm

3.1.3 Jets de plasma pour différents gaz rares

Comme mentionné par Lu et al [78] il est possible d'amorcer un jet de plasma à pression atmosphérique dans différents gaz. Pour la géométrie de la décharge étudiée au cours de cette thèse, seul un gaz rare peut permettre la formation d'un jet. Il est possible d'amorcer des jets de plasma d'azote ou d'air, mais dans ce cas, la géométrie est différente [78]. Nous avons testé trois gaz rares : hélium, néon et argon. Les plasmas obtenus pour chacun de ces gaz sont représentés Figure 3-1.

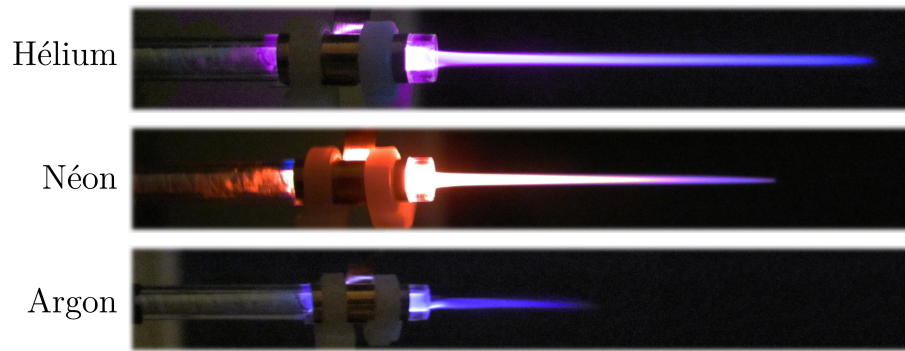


Figure 3-1 : Photographies en vraies couleurs du jet de plasma alimenté pour trois gaz rares différents : hélium, néon et argon pour une tension appliquée de 6 kV. (Décharge n°2)

Les principales différences entre ces trois jets sont la couleur et la longueur du plasma. Nous discuterons plus en détail de la différence de longueur un peu plus loin. Les plasmas d'hélium et d'argon présentent respectivement aux alentours du diélectrique une couleur rosée et orangée, qui est dû dans le cas de l'hélium, comme nous le verrons au chapitre 4, aux états radiatifs du premier système négatif de l'azote, de l'oxygène et de l'hélium, tandis que pour le néon elle est principalement due aux états radiatifs du néon. D'autre part, le jet d'argon et les extrémités des jets d'hélium et de néon sont de couleur violette. Les jets de plasma se propageant dans l'air ambiant, et interagissent alors avec les molécules d'azote et d'oxygène. La couleur violette, pour les trois gaz, est principalement due à la désexcitation des états radiatifs de l'azote.

Pour chacun de ces gaz, la distance de propagation du plasma a été mesurée, Figure 3-2, en fonction de la tension appliquée. Les débits affichés dans le cartouche représentent la valeur du débit utilisé pour chacun des gaz. Nous avons volontairement utilisé des débits de différentes valeurs afin d'obtenir des conditions hydrodynamiques relativement similaires pour chacun des gaz. Pour chaque décharge nous avons utilisé le débit pour lequel la distance de propagation du plasma était la plus grande possible tout en restant dans un régime laminaire. Afin de vérifier que nous étions dans des conditions similaires et donc comparables, nous avons calculé la valeur du nombre de Reynolds qui est obtenu à partir de l'équation (43).

$$\text{Re} = \frac{VL}{\nu} \quad (43)$$

Où L représente la dimension caractéristique du système, que nous avons défini dans notre cas comme le diamètre interne du diélectrique, qui est de 1 mm pour cette décharge. V représente la vitesse du fluide et ν , la viscosité cinématique qui dépend de la nature du gaz. Les valeurs du nombre de Reynolds, pour ces trois conditions, sont présentées dans le tableau ci-dessous et révèlent que les conditions d'écoulement sont relativement proches.

Gaz	Débit	Viscosité cinématique ν (m ² /s) [150]	Re (à partir de d_i)
Argon	100 sccm	1,25.10 ⁻⁵	170
Néon	300 sccm	3,5.10 ⁻⁵	183
Hélium	900 sccm	1,1.10 ⁻⁴	174

Les résultats de la Figure 3-2 montrent que la longueur apparente du jet de plasma augmente avec la tension appliquée quel que soit le gaz utilisé. Cette particularité sera discutée plus en détail dans le paragraphe 3.2. Ici, nous allons principalement nous focaliser sur la différence entre les trois gaz. La longueur apparente du plasma en hélium et en néon sont relativement voisines, alors qu'elle est deux fois plus faible en argon. Il est possible que cette différence soit en partie due à l'effet Penning (Réaction R1), qui est une réaction ionisante par transfert d'excitation [151].



Dans notre cas M représente un atome métastable, tandis que A représente les molécules d'oxygène ou d'azote. Cette réaction est possible en néon et en l'hélium, car leur niveau métastable possède une énergie suffisante (les niveaux métastables du néon et de l'hélium se situent respectivement à 17 eV et 20 eV) pour ioniser les molécules d'azote (15,6 eV) et d'oxygène (12,1 eV). Par contre, les états métastables de l'argon (environ 11 eV) ne sont pas suffisamment énergétiques pour ioniser de telles molécules. L'obtention d'un jet en argon, montre que cette réaction n'est pas nécessaire au développement du jet, comme l'avaient suggéré certaines équipes [112], [115], mais possède une certaine influence sur la propagation du plasma, ce qui a été confirmé par différents modèles numériques [103], [107].

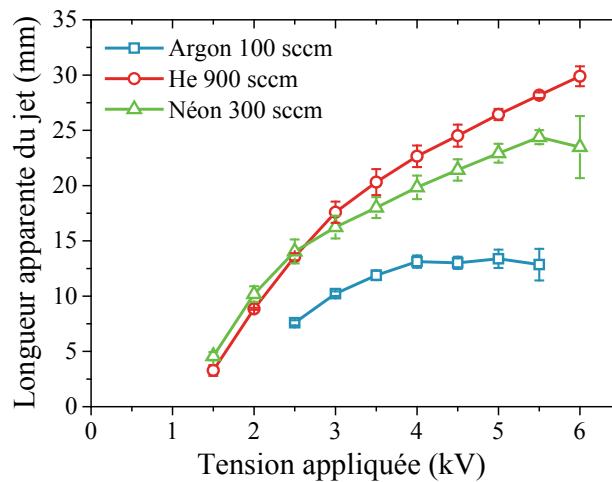


Figure 3-2 : Longueur du jet de plasma en fonction de la tension appliquée pour trois gaz rares différents. Géométrie de la décharge : $d_i = 1 \text{ mm}$, $d_e = 3 \text{ mm}$. Matériau : composé organique. (Décharge n°1)

D'autre part, Bœuf et al [104] prédisent grâce à leur modèle numérique que le champ électrique est compris entre 50 et 100 Td. Pour ces valeurs d'énergie, comme le montrent les résultats de la Figure 3-3, qui ont été obtenus à partir du solveur BOLSIG+ [152], le coefficient d'ionisation en hélium et en néon est plus important qu'en argon. Ce qui pourrait expliquer les différences de longueur entre l'argon et les deux autres gaz.

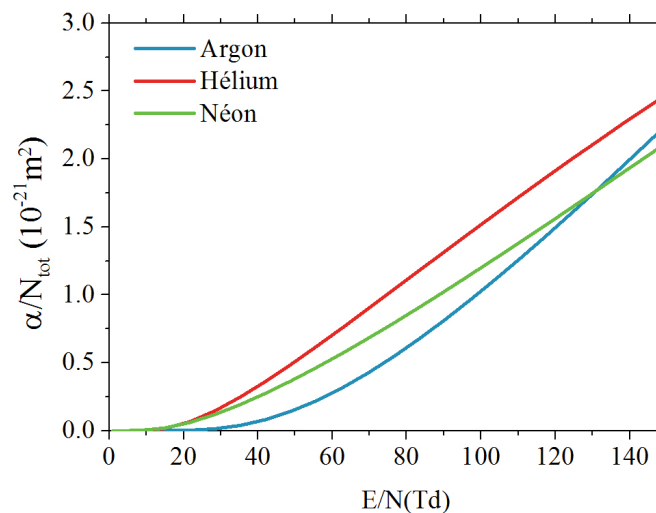


Figure 3-3 : Coefficient d'ionisation en fonction du champ réduit pour différents gaz rares. Ces données ont été calculées à partir de BOLSIG+ [152].

Pour ces trois jets, nous avons observé la propagation du plasma à l'aide d'une caméra ICCD, dont le principe de fonctionnement est détaillé au paragraphe 2.2.2.2 et 2.2.2.3. La Figure 3-4 présente des photographies du plasma pour trois temps successifs et pour

trois gaz rares. Quel que soit le gaz utilisé, nous observons la propagation d'un front d'ionisation.

A partir de ces photographies, comme expliqué au chapitre 2, il est possible de déduire la position du front d'ionisation en fonction du temps et, ainsi la vitesse de propagation du plasma. Les vitesses obtenues pour ces trois gaz sont présentées Figure 3-5. Pour les trois conditions, la vitesse de propagation est comprise entre 1.10^5 et $2,5.10^5$ m/s, et l'évolution selon l'axe du jet (*ie*, «z») est similaire : augmentation de la vitesse de 0 à 5 mm, puis diminution pour $z > 5$ mm.

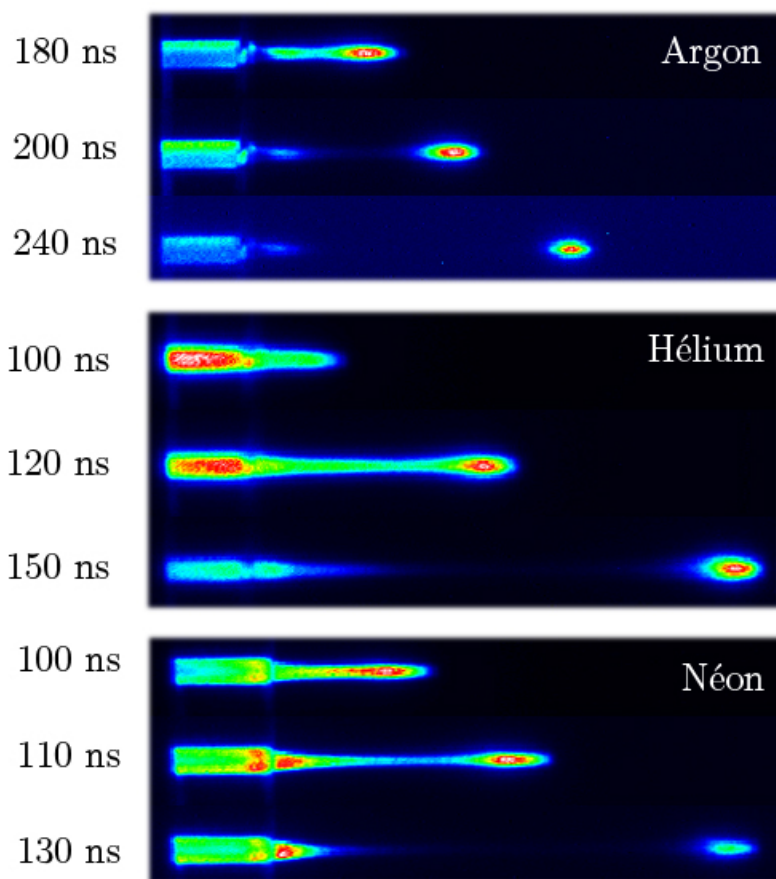


Figure 3-4 : Photographies du plasma obtenues avec une caméra ICCD pour différents gaz. L'origine des temps est prise à partir du front de montée du signal de synchronisation. Conditions : 5 kV, 100 sccm d'argon, 900 sccm d'hélium et 300 sccm de néon. (Décharge n°1). Temps d'exposition : 5 ns.

Ces études ont montré que quel que soit le gaz rare utilisé, un jet de plasma est obtenu, dont la comportement présente des similitudes pour les trois gaz : variation analogue de la distance de propagation selon la tension, présence d'un front d'ionisation et profils de vitesses de propagation similaires.

Dans la suite, nous avons choisi d'étudier les caractéristiques de cette décharge pour un gaz d'hélium, car ce dernier possède l'avantage d'être moins onéreux que le néon, et

permet d'obtenir un jet d'une longueur relativement importante par rapport à l'argon, ce qui représente un avantage pour certaines applications.

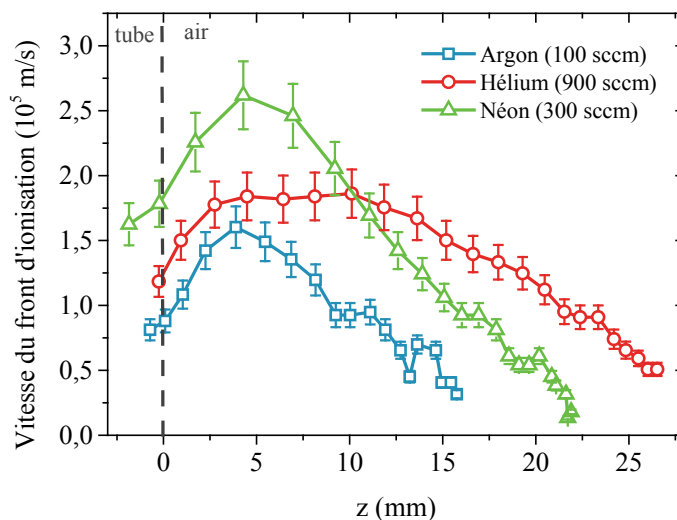


Figure 3-5 : Vitesse du front d'ionisation en fonction de l'axe du jet pour différents gaz rares, pour une tension appliquée de 5 kV. Géométrie de la décharge : $d_i = 1$ mm, $d_e = 3$ mm. Matériau : composé organique. (Décharge n°1).

3.1.4 Toutes les décharges étudiées sont-elles comparables ?

Pour chacune des décharges étudiées, la caractérisation complète n'a pas été à chaque fois effectuée. Par exemple, l'ajout de gaz moléculaire a seulement été étudié pour la décharge n°1. Afin de savoir si les conclusions générales obtenues pour chacune des sous études de ce chapitre sont valides quelle que soit la décharge étudiée, nous avons comparé, Figure 3-6, le profil de la vitesse de propagation du streamer de chacune des décharges pour des conditions proches. La tension appliquée pour les trois décharges s'élève à 5 kV. Par contre, comme le diamètre interne de chaque décharge est différent, nous avons varié le débit pour obtenir une vitesse de gaz identique. Afin d'être dans des conditions similaires, nous avons choisi un débit qui permettait d'obtenir une vitesse d'écoulement du gaz à l'intérieur du tube du même ordre de grandeur : 19 m/s pour la décharge n°1, 24 m/s pour la décharge n°2 et 22 m/s pour la décharge n°3.

La Figure 3-6 présente les profils de vitesse pour les trois décharges en valeur absolue (a) et en valeur normalisée par rapport au maximum (b). La Figure 3-6 (a) montre que la vitesse de propagation est comprise entre $0,5 \cdot 10^5$ et $2 \cdot 10^5$ m/s, ce qui est en accord avec les valeurs de vitesse publiées dans la littérature [89], [95], [97], [112], [153]–[155]. D'autre part la Figure 3-6 (b) révèle que les profils de vitesse sont semblables pour les trois décharges. Exceptés pour les premiers millimètres pour la décharge n°3, la vitesse augmente dès la sortie du tube jusqu'à une valeur qui dépend de la décharge, puis diminue ensuite jusqu'à s'annuler.

Par ailleurs, on peut noter que la vitesse de propagation du plasma est plus importante pour la décharge n°1 (courbe bleue) par rapport aux deux autres décharges. Le diamètre interne de la décharge n°1 est de 1 mm, tandis que ceux de la décharge n°2 et de la décharge n°3 valent respectivement 2,3 mm et 2,1 mm. La vitesse du streamer augmente lorsque le rayon du tube diminue, ce qui confirme les résultats des modèles [103], [156].

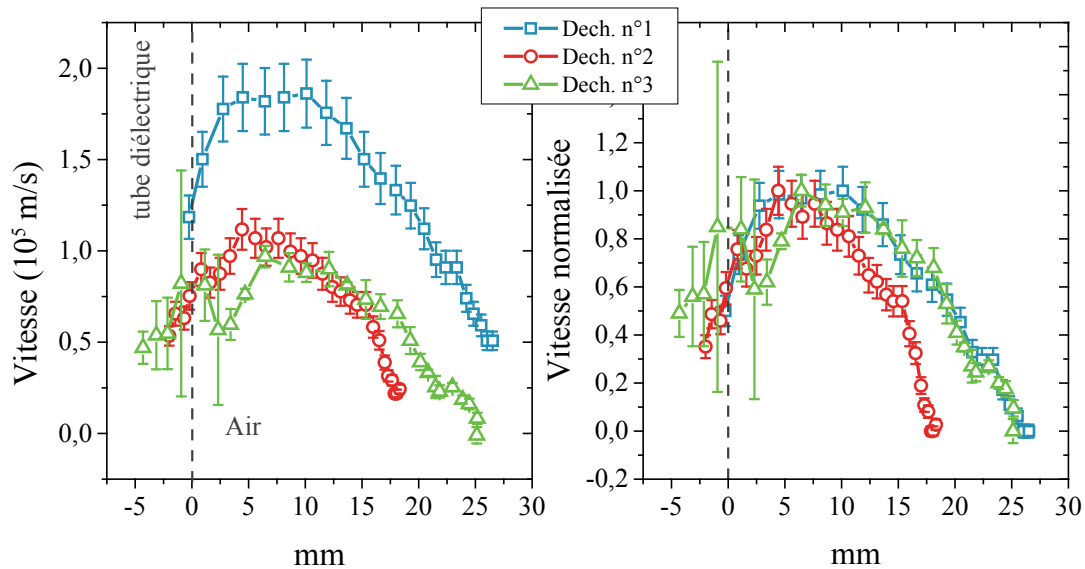


Figure 3-6 : Vitesse de propagation, en valeur absolue en (a) et normalisée en (b), du front d'ionisation pour différentes décharges. Conditions : 5 kV. Position des électrodes pour la décharge n°2 : $e_i = -4$ mm et $e_e = -2,3$ mm.

Ces résultats montrent que pour des décharges différentes, les profils de vitesse sont similaires pour des conditions proches de tension et d'écoulement de gaz. Ceci nous permet de supposer que ces trois décharges doivent se comporter de manière analogue lorsque qu'un paramètre (tension, débit, composition du gaz et position des électrodes) est modifié.

3.2 Tension appliquée

La tension appliquée est un des paramètres contrôlant la longueur du jet de plasma. Nous avons mesuré cette longueur, Figure 3-7, pour deux décharges différentes par le biais d'une caméra CCD. L'évolution de cette longueur pour la décharge n°1 est représentée par la courbe bleue, tandis que celle de la décharge n°3 est représentée par la courbe rouge. Pour ces deux décharges, la taille du jet augmente avec la tension appliquée, ce qui confirme les résultats de Karakas et al [157] et de Xiong et al [158], qui montrent également que la longueur augmente avec la tension.

D'autre part, ces résultats nous apprennent qu'il existe une tension minimale, V_{\min} , pour laquelle le plasma est capable de se propager dans l'air ambiant. Par extrapolation, V_{\min} s'élève à 1 kV pour la décharge n°1 et à 2,5 kV pour la

décharge n°3. Ces valeurs de V_{\min} sont du même ordre de grandeur que celle obtenue par le modèle numérique de Boeuf et al [104] et qui s'élève à 2,75 kV.

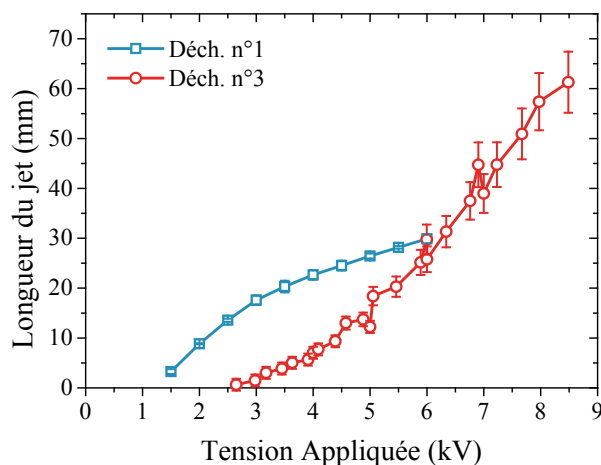


Figure 3-7 : Longueur du jet de plasma en fonction de la tension appliquée pour deux décharges différentes. Conditions de la courbe bleue : tube constitué en un composé organique, 0,9 slm, $d_e = 3$ mm et $d_i = 1$ mm (décharge n°1), et en rouge : tube en quartz, 4,5 slm, $d_e = 7$ mm, $d_i = 2,1$ mm (décharge n°3).

Par ailleurs, Boeuf et al ont également montré que le potentiel dans la tête du streamer diminue au cours de sa propagation selon une loi linéaire. Dans notre cas, l'augmentation de la longueur en fonction de la tension est linéaire seulement à partir de 3 kV pour la décharge n°1 et de 5 kV pour la décharge n°3. Dans cette zone de linéarité, la chute de potentiel s'élève à 2500 V/cm pour la décharge n°1, tandis qu'elle s'élève à 700 V/cm pour la décharge n°3. Ces valeurs sont supérieures à celle calculée par Boeuf et al en hélium pur qui s'élève à 500 V/cm. Cette différence est probablement due à la présence d'impuretés au sein du gaz et à la diffusion de l'air dans le canal d'hélium. De plus, la différence de chute de potentiel entre la décharge n°1 et 3 est due aux canalisations de gaz. Pour la décharge n°1, une partie de des canalisations étaient en composé organique. Un tel matériau n'est pas complètement inerte et ajoute des impuretés dans le gaz. Par contre pour la décharge n°3, tout le système de canalisation était en acier inoxydable, ce qui assurait un taux d'impureté plus faible. Ceci a été confirmé par la mesure des atomes métastables d'hélium au sein du plasma. Comme nous le montrerons au chapitre 4, cette mesure est très sensible au taux d'impuretés. Et dans le cas de la décharge n°1 cette mesure n'a pas été possible, alors qu'elle l'a été pour la décharge n°3. Ceci révèle que le gaz provenant de la décharge n°1 doit être plus pollué, ce qui a pour conséquence d'augmenter la résistivité du plasma et donc d'accroître la chute de potentiel.

Lors de la propagation du streamer la valeur du potentiel dans la tête diminue selon une décroissance qui dépend des conditions expérimentales. Lorsque ce potentiel atteint

V_{\min} , la propagation du plasma est arrêtée. La distance de propagation du plasma est donc reliée à la valeur du potentiel de départ. La valeur de ce potentiel dépend de la tension appliquée : plus elle est importante, plus il est grand. Dans notre cas, comme l'électrode interne n'est pas recouverte par un diélectrique la valeur de ce potentiel est égale à la tension appliquée [104].

Par la suite, nous nous sommes intéressés à la vitesse de propagation du streamer pour différentes tensions appliquées. Ces résultats sont présentés Figure 3-8 et ont été tracés selon l'axe du jet (a) et au cours du temps (b). La vitesse de propagation est comprise entre $0,25$ et $1,5 \cdot 10^5$ m/s et est du même ordre de grandeur que celles publiées dans la littérature [89], [95], [97], [112], [153]–[155].

D'autre part, ces résultats montrent que la vitesse augmente avec la tension appliquée. Bœuf et al [104] montrent grâce à leur modèle numérique que l'augmentation de la tension appliquée induit un accroissement du champ électrique au sein de la tête du streamer, ce qui a pour conséquence d'augmenter la vitesse de propagation [104] : ils prédisent que la vitesse de propagation pour une tension de 6 kV est deux fois plus importante que pour 4 kV, ce qui est confirmé par les résultats expérimentaux de la Figure 3-8.

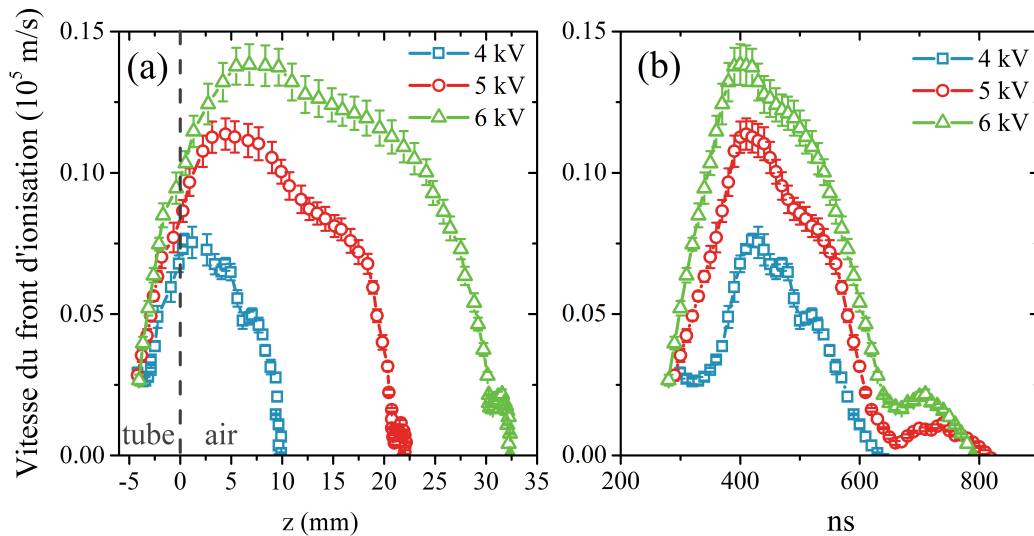


Figure 3-8 : Vitesse de propagation du front d'ionisation en fonction de la position selon l'axe (a), et en fonction du temps (b). L'origine des temps est prise à partir du front de montée du signal de synchronisation. Conditions : 4 slm, $d_e = 4$ mm, $d_i = 2,3$ mm, $e_e = -7$ mm, $e_i = -5$ mm (décharge n°2).

D'autre part, nous avons observé que plus la tension appliquée est importante, plus la décharge s'amorce tôt. Elle démarre à 290 ns pour 4 kV, et à 250 ns pour 7 kV. Ceci s'explique par la forme du signal de tension. Comme nous l'avons vu au paragraphe 2.1, le front de montée est constant selon la tension appliquée (130 ns pour aller de 10 à 90% de la valeur maximale). Si la tension appliquée augmente, alors la pente du front s'accroît, et la tension de claquage est atteinte plus rapidement. Pour

ces conditions, la tension de claquage s'élève à 1,6 kV et ne varie pas quelque soit la tension appliquée.

Par ailleurs, nous observons sur la Figure 3-8 (b) que l'extinction du streamer se produit au alentour du temps $t = 800$ ns, excepté pour 4 kV. A cet instant, comme le montre la Figure 3-9, la tension appliquée vaut 1,3 kV. Cette figure compare au cours du temps le profil de vitesse de la Figure 3-8 (b) à 6 kV (courbe verte) avec le signal de tension. Pour le cas où la tension appliquée est de 4 kV, la Figure 3-8 (b) montre que le plasma s'éteint à 650 ns. A ce temps, la tension appliquée est inférieure à 1,3 kV, ce qui explique pourquoi le plasma s'éteint à 650 ns. Alors que pour 5 kV et 6 kV, la valeur du minimum local à 650 ns est supérieure à 1,3 kV, ce qui permet au plasma de continuer sa propagation lors de la seconde remontée de tension (ie $t > 650$ ns).

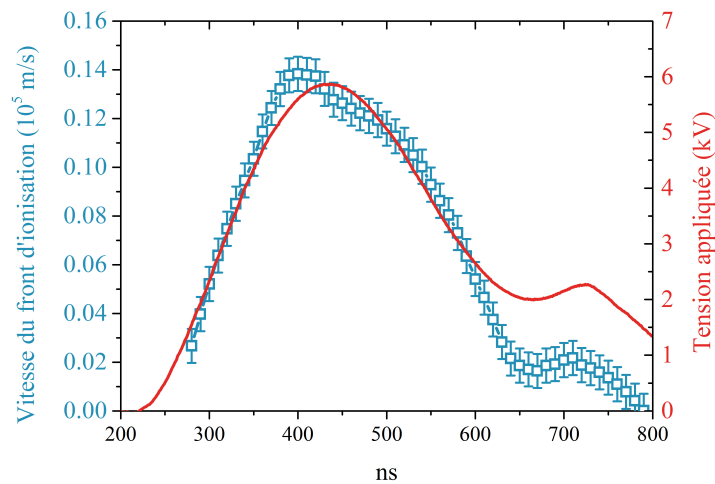


Figure 3-9 : Comparaison de la vitesse de propagation du front d'ionisation et de la tension appliquée au cours du temps. L'origine des temps est prise à partir du front de montée du signal de synchronisation. Condition : 6 kV, 4 slm, $d_e = 4$ mm, $d_i = 2,3$ mm, $e_i = -7$ mm, $e_e = -5$ mm (décharge $n^{\circ}2$).

D'autre part, notons que le profil de vitesse est similaire à celui de la tension appliquée. A partir de 300 ns la vitesse augmente, tout comme la tension, jusqu'à 450 ns, puis diminue ensuite jusqu'à 650 ns. On observe une seconde remontée à 650 ns de la tension appliquée qui se traduit par une légère augmentation de la vitesse. Ce résultat démontre que la tête du streamer reste constamment connectée à la décharge lors de sa propagation et permet d'exclure l'hypothèse suggérée par [105], [159] que le front d'ionisation est isolé de la décharge. Ceci démontre que le terme historique «balle de plasma» n'est pas un terme correct pour décrire ce phénomène, car d'une part vu la vitesse de propagation du plasma il ne s'agit pas d'un déplacement de matière et, d'autre part cette «balle» n'en est pas isolée, mais est constamment connectée à la décharge par un canal conducteur, visible sur la Figure 3-4, qui transmet

instantanément à la tête du streamer les variations du potentiel appliqué sur l'électrode haute tension.

3.3 Débit de gaz

Le débit de gaz est un autre paramètre capable d'induire des modifications au niveau de la structure du jet et de sa taille. La Figure 3-10 présente différentes photographies du plasma selon le débit pour la décharge n°1. On observe qu'en fonction du débit, la structure du jet varie. A 70 sccm, le jet possède une longueur de 5 mm et sa forme est relativement diffuse. Pour 300 sccm, la longueur du jet est fortement augmentée et le plasma est confiné sur un diamètre plus petit. De plus on peut noter que pour cette valeur de débit, le plasma remonte légèrement à son extrémité. Ceci est dû au poids moléculaire de l'hélium qui est plus léger que l'air. Pour cette décharge, la longueur maximale est atteinte à 900 sccm. Par contre pour un débit plus élevé, c'est-à-dire 1100 sccm, l'écoulement du gaz ne semble plus être entièrement laminaire, et le plasma prend une forme en zigzag à l'extrémité du jet. Ce changement de régime en fonction du débit a également été observé par Mericam-Bourdet et al [112].

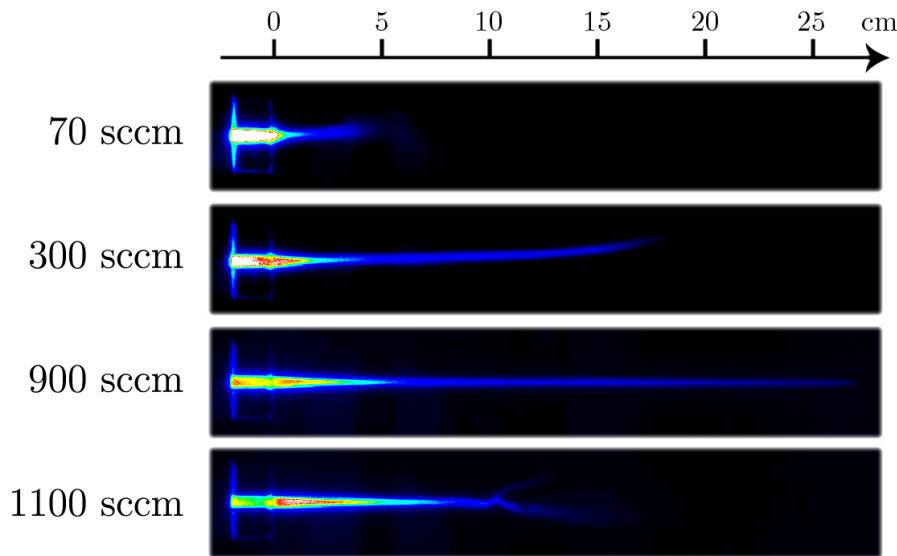


Figure 3-10 : Photographies en fausses couleurs du jet de plasma pour différents débits d'hélium pour une tension appliquée de 5 kV. Géométrie de la décharge : $d_i = 1 \text{ mm}$, $d_e = 3 \text{ mm}$. Matériau : composé organique (décharge n°1).

La distance de propagation du plasma mesurée sur la Figure 3-10 a été reportée sur le graphe de la Figure 3-11 (a). Cette mesure a également été faite pour les décharges n°2 et 3, dont les résultats sont présentés à la Figure 3-11 (b). Pour la décharge n°1 (courbe bleue) la longueur du jet augmente avec le débit jusqu'à 900 sccm (ie 0,9 slm), puis décroît par la suite. L'évolution de la longueur du plasma suit alors un profil en forme de « cloche ». La diminution de la longueur observée pour des débits supérieurs à 900 sccm est probablement due au fait que l'écoulement du gaz passe d'un régime

laminaire à turbulent, ce qui a pour conséquence de réduire la longueur de la colonne de gaz où est capable de se propager le streamer. Un profil en forme de « cloche » est également observé pour la décharge n°2 pour $e_i = -6$ mm (courbe rouge) et la décharge n°3 à 7 kV (courbe rose).

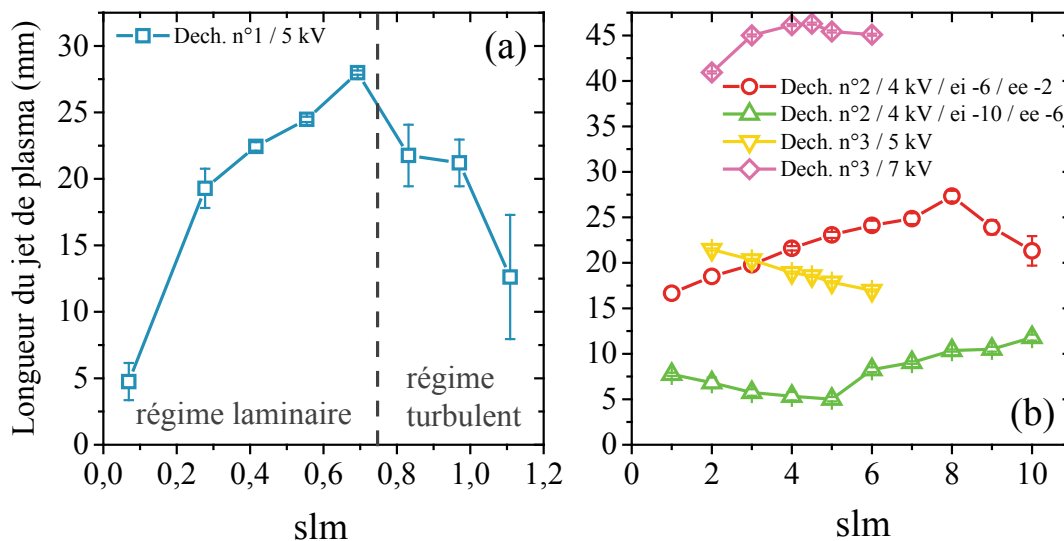


Figure 3-11 : Longueur du jet pour différentes décharges en fonction du débit d'hélium.

Par contre, la Figure 3-11 (b) révèle que pour le cas de la décharge n°2 avec $e_i = -10$ mm (courbe verte) et pour la décharge n°3 à 7 kV (courbe jaune) le comportement du plasma vis-à-vis du débit est différent de celui de la décharge n°1 (courbe bleue) et possède un profil en forme de « creux ». De 1 à 5 slm, la longueur du plasma diminue, alors que les diagnostics d'imagerie ne révèlent pas de turbulence comme pour le cas à 1100 sccm sur la Figure 3-10. De plus, pour la courbe verte, après une diminution de la longueur de 1 à 5 slm, cette dernière augmente pour des débits plus grands. Un tel comportement a également été observé par Li et al [86]. Ils ont montré qu'il existait deux régimes différents : la longueur du jet en fonction du débit possède un profil soit en forme de « cloche », soit en forme de « creux ». Ils expliquent cette différence à la présence ou non d'un second plasma en amont de la décharge se propageant dans le sens contraire à la propagation du gaz, qui perturberait l'écoulement du gaz. Dans notre cas, il n'a pas été possible de confirmer cette hypothèse, car nous ne pouvons pas vérifier la présence ou non de ce plasma, car cette zone était masquée par un tube opaque.

D'autre part, la comparaison de la courbe rose et jaune montre qu'une modification de la tension appliquée induit un changement de comportement du plasma face au débit alors que la décharge est la même : pour 7 kV (courbe rose) le profil de la longueur en fonction du débit possède une forme en « cloche », alors que pour 5 kV (courbe jaune) le profil est en forme de « creux ». Ceci démontre que la tension appliquée et par conséquent le plasma doit induire des modifications au niveau de l'écoulement du gaz. Afin de clarifier l'influence que peut avoir le plasma au niveau de l'hydrodynamique,

une collaboration avec l'ISAE et le laboratoire Laplace à Toulouse a été menée [264]. L'objectif de cette collaboration était de visualiser le gradient de la densité du flux de gaz par strioscopie. Cette méthode est basée sur la déviation de la lumière due au changement d'indice de réfraction, dont le gradient est directement relié à celui de la densité du flux. La lumière déviée est comparée à la lumière non déviée sur un écran, ce qui permet de visualiser l'écoulement du fluide. Cet écoulement a été visualisé pour la décharge n°2, Figure 3-12, et pour la décharge n°1, Figure 3-13, en l'absence et en présence de plasma et selon le débit pour la décharge n°2 et pour deux tensions appliquées différentes pour la décharge n°1.

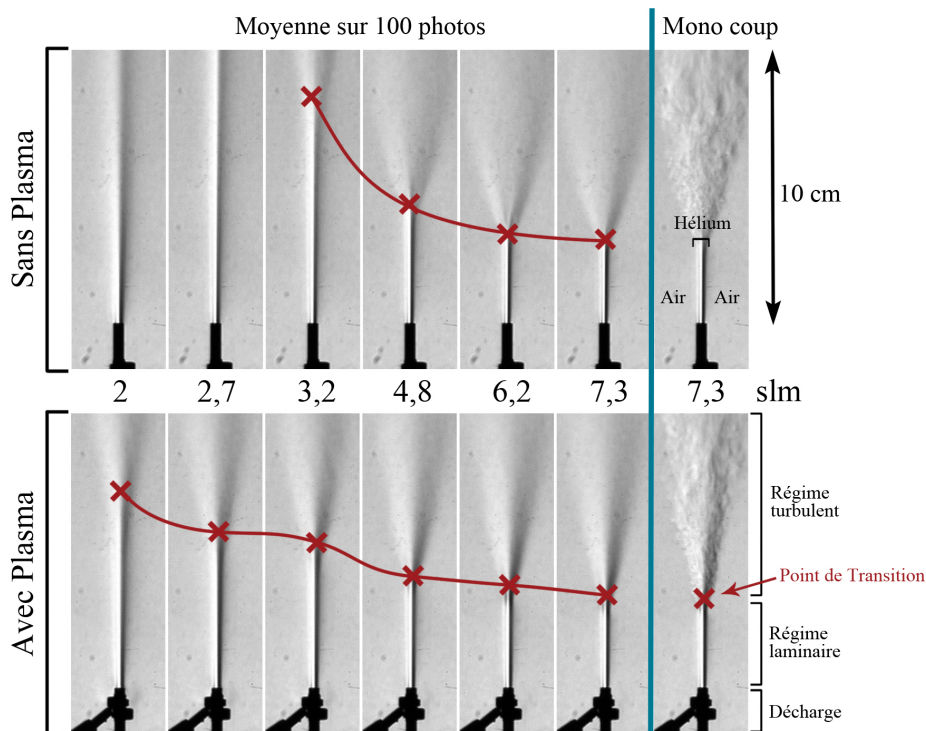


Figure 3-12 : Photographies obtenues selon un diagnostic strioscopique montrant la zone laminaire et turbulente du flux de gaz en l'absence et en présence du plasma pour différents débits de gaz. Condition : 5,5 kV (Décharge n°2) [264].

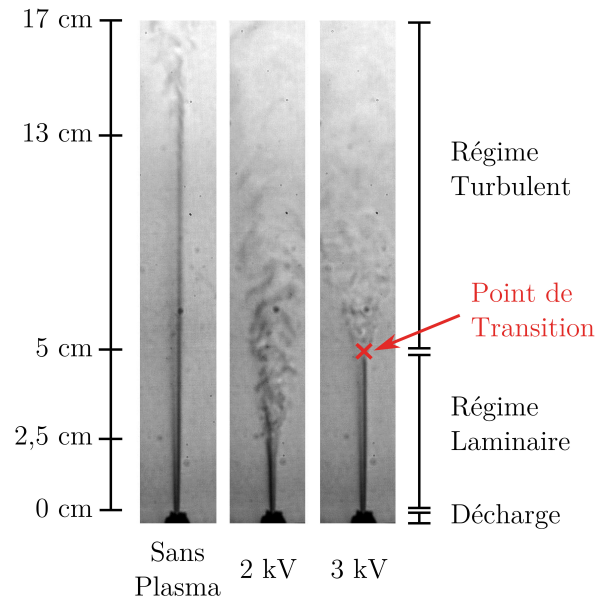


Figure 3-13 : Photographies obtenues selon un diagnostic strioscopique montrant la zone laminaire et turbulente du flux de gaz en l'absence et en présence du plasma. Conditions : $d_e = 3 \text{ mm}$, $d_i = 1 \text{ mm}$, $e_i = -3 \text{ mm}$ et $e_e = -3 \text{ mm}$, 1000 sccm He , (décharge n°1) [264].

Lorsque de l'hélium passe au travers d'un tube et entre dans l'air ambiant, deux régions peuvent être distinguées, comme le montre en exemple l'image de droite sur la Figure 3-13 : à la sortie du tube diélectrique, une zone laminaire est visible. Au-delà de cette zone, il existe un point de transition qui sépare la zone laminaire et turbulente. Si le débit de gaz injecté dans le tube augmente, le point de transition se rapproche de la décharge comme le montre la Figure 3-12.

Dans le cas présenté Figure 3-13, en l'absence de plasma, la longueur de la zone laminaire s'élève à 13 cm. Par contre, la présence du plasma modifie drastiquement l'écoulement du gaz : la longueur de la zone laminaire est fortement diminuée. De plus, le comportement de l'écoulement face à un changement de débit est modifié selon la présence ou non du plasma, comme le montre la Figure 3-12. L'évolution du point de transition vers le tube diélectrique est plus rapide sans plasma qu'avec plasma en fonction du débit de gaz. Ces résultats démontrent qu'il y a une forte interaction entre les phénomènes hydrodynamiques et électriques. A l'heure actuelle, cette interaction est encore mal comprise et demande à être étudiée plus en détail.

Par ailleurs, la Figure 3-13 révèle que la variation de la tension appliquée modifie également l'écoulement du gaz. La longueur de la zone laminaire s'élève à 2,5 cm pour 2 kV et à 5 cm pour 3 kV. Ce phénomène pourrait expliquer pourquoi nous observons deux types de profil selon le débit (Figure 3-11 (b)) lorsque la tension appliquée est modifiée. Par contre, il faut noter que pour la décharge n°2 (résultats non montrés), l'augmentation de la tension appliquée induit au contraire une diminution de la zone laminaire et, donc un rapprochement du point de transition par rapport à l'extrémité du tube.

Par la suite nous avons mesuré la vitesse de propagation du plasma pour différents débits de gaz. Ces résultats sont présentés Figure 3-14 pour la décharge n°2. Ils démontrent que la variation du débit de gaz modifie peu le profil et la valeur absolue de la vitesse.

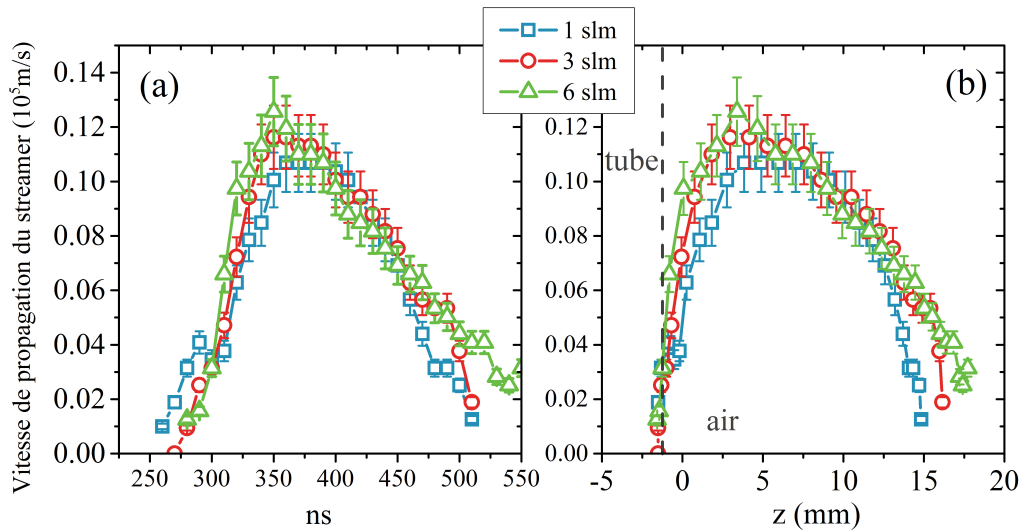


Figure 3-14 : Vitesse du front d'ionisation en fonction du temps (a) et de la position selon l'axe du jet (b) pour différents débits de gaz. Conditions : 4 kV, 1 slm, $d_e = 4$ mm, $d_i = 2,3$ mm, $e_e = -2$ mm, $e_i = -2$ mm (décharge n°2). L'origine des temps est prise à partir du front de montée du signal de synchronisation.

D'autre part, nous avons observé que plus le débit d'hélium est important, plus la décharge s'amorce tard, ce qui signifie que la tension de claquage varie en fonction du débit. Afin de mesurer précisément cette tension, nous avons enregistré les signaux de tension et de courant en fonction du débit. La mesure du courant de décharge permet de connaître l'instant pour lequel la décharge s'amorce, et ainsi d'en déduire la tension de claquage.

Nous avons mesuré, Figure 3-15, la tension de claquage pour la décharge n°2 pour $e_e = -2$ mm pour deux positions de l'électrode interne : $e_i = -2$ mm (courbe bleue) et $e_i = -6$ mm (courbe rouge).

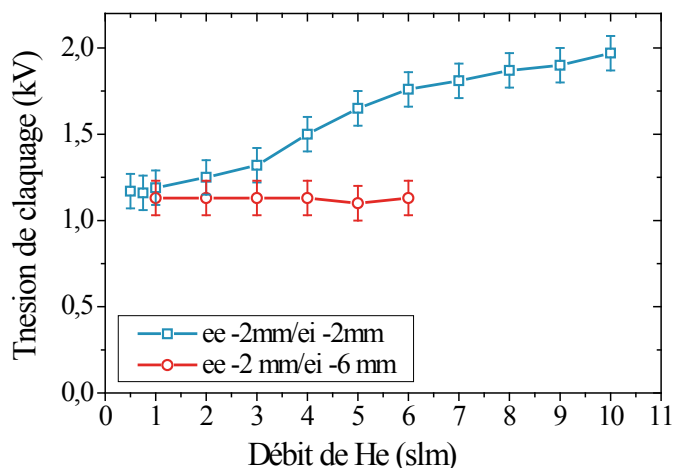


Figure 3-15 : Tension de claquage en fonction du débit d'hélium. Conditions : 4 kV, $d_e = 4$ mm, $d_i = 2,3$ mm. (Décharge n°2).

Pour $e_i = -2$ mm (courbe bleue), la tension de claquage augmente avec le débit, alors qu'elle reste constante pour $e_i = -6$ mm (courbe rouge). Lorsque $e_i = -2$ mm, l'électrode interne est relativement proche de la sortie du tube et une partie de l'air environnant rétro diffuse à l'intérieur de la décharge entraînant alors une modification de la composition du gaz. La tension de claquage de l'air à pression atmosphérique est plus élevée que celle en hélium [104] ; l'ajout d'air au sein de la décharge doit donc augmenter la tension de claquage. Bien qu'intuitivement on puisse penser que la hausse du débit doit permettre une évacuation plus efficace de l'air vers l'extérieur du tube, cela va au contraire accroître le phénomène de rétrodiffusion de l'air dans le tube, et ainsi augmenter la proportion d'air, expliquant pourquoi la tension de claquage augmente avec le débit pour $e_i = -2$ mm. Par contre pour $e_i = -6$ mm, l'électrode interne est trop éloignée de la sortie du tube pour subir la rétrodiffusion de l'air, et la tension de claquage reste constante selon ce paramètre.

Afin de quantifier plus en détail le rôle que peut jouer la présence d'air au sein de la décharge, dans la partie suivante nous nous sommes intéressés à l'étude des effets qu'implique l'ajout de gaz moléculaires.

3.4 Ajout de gaz moléculaire

Dans cette partie, nous avons étudié les effets que peut induire l'ajout de gaz moléculaire au sein de la décharge. Nous nous sommes intéressés à trois gaz différents : l'oxygène, l'azote et l'air. L'ajout de ces gaz peut amener à la formation d'espèces réactives de l'oxygène (ROS) et de l'azote (RNS), qui sont des espèces possédant des propriétés intéressantes dans diverses applications des jets de plasma. Il est donc important de connaître les effets qu'induisent l'ajout de gaz moléculaire sur la longueur et la vitesse de propagation du plasma, afin de pouvoir utiliser à l'avenir cette décharge dans le domaine bio médical ou de l'industrie.

Nous nous sommes tout d'abord intéressés à l'évolution de la longueur du jet en fonction du pourcentage de gaz moléculaire injecté au sein de la décharge. Ces résultats sont présentés Figure 3-16 pour la décharge n°1 (a) et pour la décharge n°2 (b). Sur la Figure 3-16 (b), l'ajout de 0 à 1% de gaz moléculaire induit une augmentation de 50% de la longueur de propagation du plasma. Pour cette gamme de gaz moléculaire, ces impuretés sont présentes en très faible quantité et doivent faciliter l'amorçage de la décharge. Nous avons vu au paragraphe 1.4.4.3 que la photoionisation, qui représente un paramètre essentiel à la propagation des streamers positifs, est principalement due à l'absorption VUV par les espèces de l'azote et de l'oxygène. La présence de ces impuretés est donc importante pour l'amorçage du plasma. Par contre, pour un pourcentage de gaz moléculaire supérieur à 1%, la longueur de propagation diminue en fonction de ce paramètre, ce qui signifie que le taux d'impureté est désormais trop élevé. L'ajout de ces gaz augmente alors le nombre de processus faisant intervenir des électrons de faibles énergies ($<1\text{eV}$). Une partie de l'énergie totale est alors perdue dans ces réactions, laissant une énergie plus faible pour l'ionisation et donc pour la propagation du plasma [103]. Dans le cas de la décharge n°1, Figure 3-16 (a), nous n'observons pas d'augmentation de la longueur de propagation pour l'ajout de 1% de gaz moléculaire. Ceci est probablement dû à la composition du gaz. Les canalisations de la décharge n°1 ne permettaient pas d'obtenir un taux d'impureté aussi faible que pour le cas de la décharge n°2.

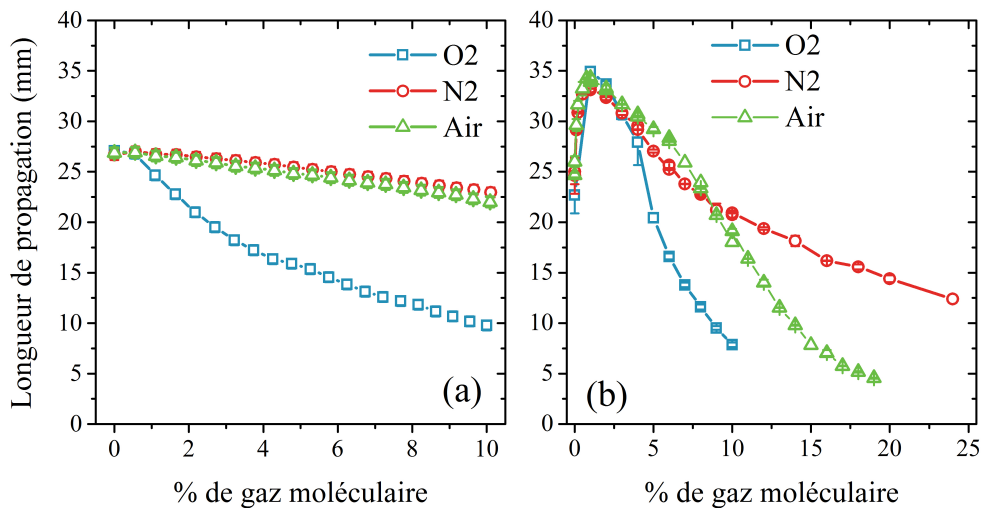


Figure 3-16 : Longueur apparente du jet en fonction du pourcentage de gaz moléculaire. (a) Géométrie de la décharge : $d_i = 1\text{ mm}$, $d_e = 3\text{ mm}$. Matériau : composé organique. Tension appliquée : 5 kV , un débit total de 900 sccm (décharge n°1). (b) Géométrie de la décharge : $d_i = 2,3\text{ mm}$, $d_e = 4\text{ mm}$, $e_i = -7\text{ mm}$, $e_e = -5\text{ mm}$. Matériau : quartz. Tension appliquée : 5 kV , un débit total de 2100 sccm (décharge n°2)

D'autre part, on peut noter que quelque soit la décharge, l'ajout de plus d'1% d'oxygène dans la composition du gaz induit une diminution importante de la longueur de propagation du plasma. Ceci est probablement dû à la nature électronégative de ce

gaz, ce qui a pour conséquence de réduire la densité électronique au sein du plasma et donc sa conductivité. Le plasma se propage alors plus difficilement pour une même énergie. Par ailleurs, l'influence de 1 à 10% d'azote ou d'air est très similaire. Au-delà, de 10% une différenciation se fait entre l'ajout d'air et d'azote, ce qui est probablement due à la présence de l'oxygène qui devient suffisamment importante pour avoir un effet sur la longueur de propagation du plasma.

De manière générale, à l'exception de de 0 à 1% pour la décharge n°2, l'ajout de gaz moléculaire doit induire une augmentation de la résistivité au sein de la colonne du plasma qui relie la décharge à la tête du streamer. Si cette colonne n'est plus conductrice, alors la tête du streamer est déconnectée de la décharge et le streamer ne peut plus se propager. Les photographies de la Figure 3-17 montrent que l'intensité de cette colonne diminue avec l'ajout de gaz moléculaire. Notons que les photographies paraissent saturées, bien que ce ne soit pas le cas ; ceci est dû à l'échelle de l'intensité lumineuse. Cette dernière a été choisie de telle sorte que les intensités soient comparables d'une photographie à l'autre. En hélium pur, de la lumière est émise dans toute la colonne de plasma jusqu'à l'intérieur de la décharge. Pour 4% d'azote, l'intensité lumineuse dans la décharge est très faible et n'est pas visible sur la photographie. L'ajout de 4% d'air diminue drastiquement l'intensité lumineuse de la colonne de plasma, sans vraiment diminuer l'intensité lumineuse dans la tête du streamer. Par contre l'ajout de 4% d'oxygène diminue l'intensité lumineuse de la colonne et de la tête du streamer. Notons que pour chacun de ces cas, la colonne de plasma est toujours présente, bien que sur ces photographies elle n'est pas, pour tous les cas, visible, ce qui est dû au contraste de l'image.

Cette diminution de l'intensité lumineuse est en partie due à la destruction des espèces excitées à longues durées de vie par les molécules d'air, d'azote ou d'oxygène. Comme nous le verrons au chapitre 4, les atomes métastables d'hélium, qui représentent une des espèces du plasma à longue durée de vie, sont très sensibles à la présence d'impuretés. Quelques ppm de gaz moléculaire sont suffisants pour détruire en grande partie ces atomes métastables. Cette espèce est en grande partie responsable du peuplement des états excités de l'ion d'azote et de l'oxygène atomique, qui représentent, comme nous le verrons au chapitre 4, les principaux niveaux radiatifs responsables de l'émission lumineuse du plasma. D'autre part, l'oxygène étant un gaz électronégatif, ce dernier va diminuer la densité électronique. Ce qui explique pourquoi en présence de 4% d'air, l'intensité lumineuse du canal d'ionisation est plus faible qu'à 4% d'azote. De la même manière l'intensité lumineuse du plasma est plus importante pour 4% d'air que pour 4% d'oxygène.

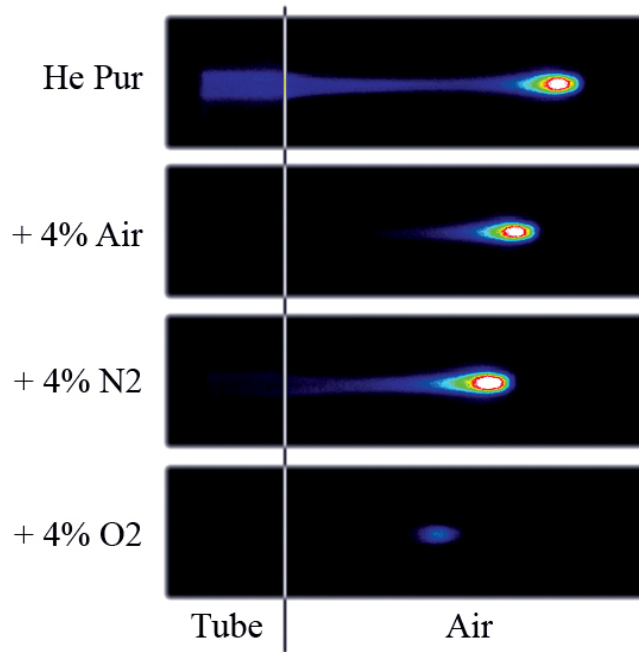


Figure 3-17 : Images prises avec une caméra ICCD 140 ns après le front de montée du signal de synchronisation. L'échelle d'intensité est la même pour toutes les photographies. Conditions : 5 kV, 900 sccm d'hélium, $d_e = 3$ mm, $d_i = 1$ mm (décharge n°1).

D'autre part, nous nous sommes également intéressés à la vitesse de propagation du streamer pour différents pourcentages de gaz moléculaire. Ces résultats sont représentés Figure 3-18. La mesure de la vitesse de propagation du front d'ionisation a été faite pour un pourcentage d'azote et d'air de 6 et 8%, tandis que pour l'oxygène nous avons effectué cette mesure pour 2 et 4%. Pour un pourcentage plus élevé d'oxygène, il était difficile de mesurer convenablement la vitesse de ce streamer, car la structure de sa tête était très diffuse, ce qui induisait des barres d'erreur trop importantes pour en déduire une vitesse de propagation.

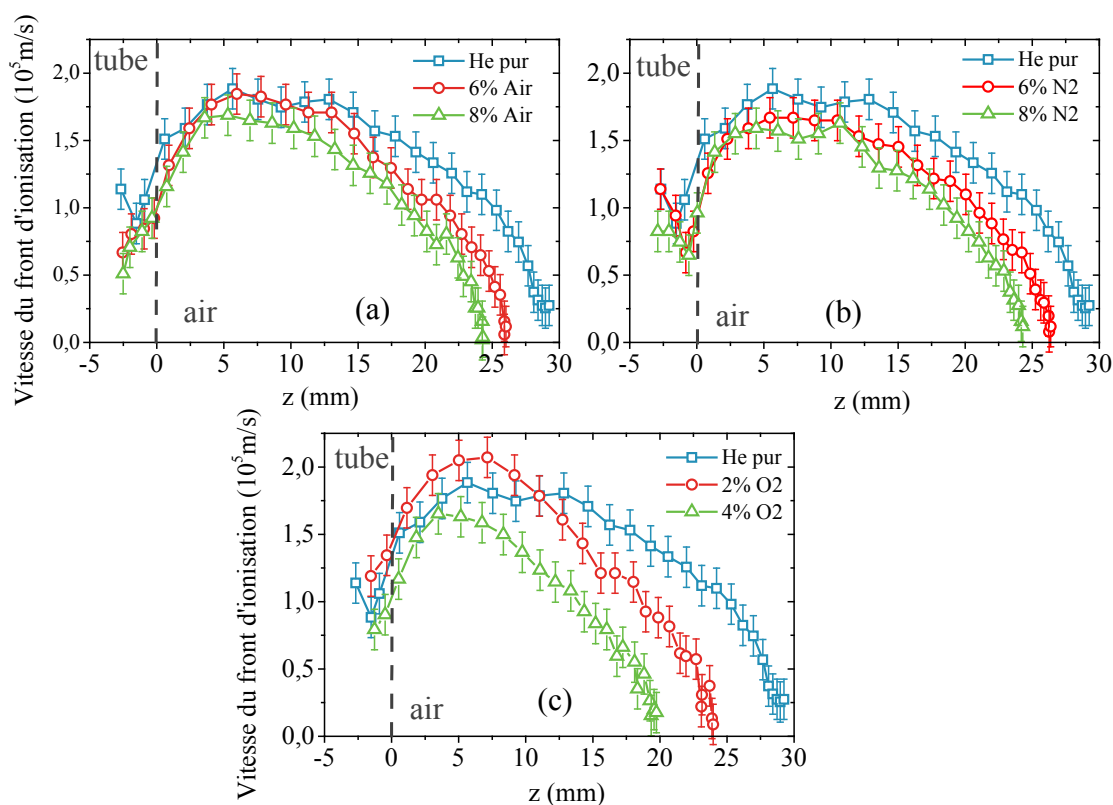


Figure 3-18 : Vitesse de propagation du front d'ionisation pour différents mélanges gazeux : (a) ajout d'air, (b) ajout d'azote et (c) ajout d'oxygène. Tension appliquée : 5 kV, un débit total de 900 sccm, $d_e = 3$ mm et $d_i = 1$ mm (décharge $n^{\circ}1$).

Nous observons que l'ajout de quelques pourcents de gaz moléculaire modifie peu la valeur et le profil de vitesse, ce qui confirme les résultats numériques de Breden et al [103]. La vitesse du streamer dépend du coefficient d'ionisation : plus ce coefficient d'ionisation est important, plus la vitesse du streamer le sera. La Figure 3-19 présente la valeur de ce coefficient en fonction du champ réduit pour différents mélanges gazeux. Pour une valeur de champ réduit inférieure à 400 Td, le coefficient d'ionisation en hélium est plus important qu'en air, en oxygène ou en azote. Par contre, pour des valeurs de champ réduit élevées, la tendance s'inverse et le coefficient d'ionisation en hélium est moins important. Les différents modèles numériques dérivant la propagation du jet de plasma calculent un champ réduit compris entre 50 et 100 Td [100], [104]. Pour ces valeurs de champ réduit, l'hélium peut être ionisé tandis que ce n'est pas le cas en air, en azote et en oxygène pur.

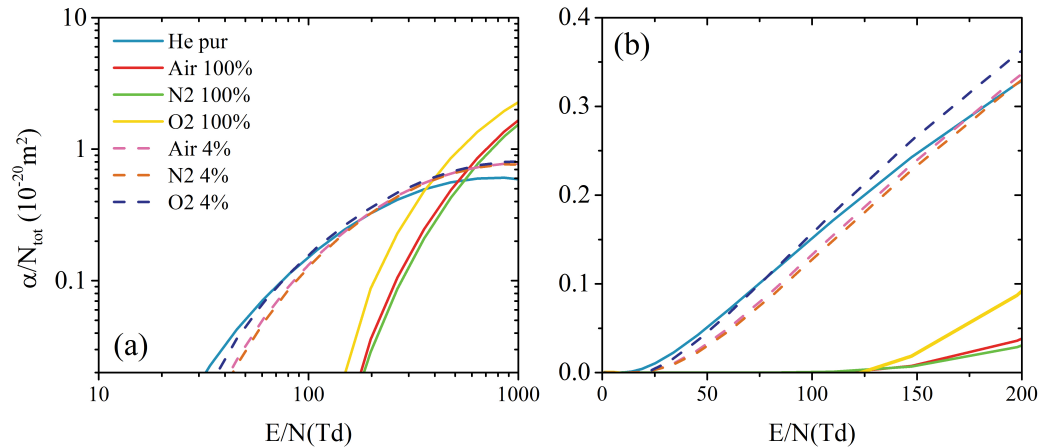


Figure 3-19 : Coefficient d'ionisation réduit en fonction du champ réduit pour différents mélanges gazeux. (a) selon une échelle logarithmique. (b) Zoom de (a) selon une échelle linéaire. Ces données ont été calculées à partir de BOLSIG+ [152].

D'autre part l'ajout de 4% d'oxygène (courbe bleue marine), d'azote (courbe orange) ou d'air (courbe rose) modifie peu l'évolution du coefficient d'ionisation en fonction du champ réduit par rapport à celle en hélium pur (courbe bleue), ce qui pourrait expliquer pourquoi la vitesse de propagation du streamer est peu modifiée lorsque quelques pourcents de gaz moléculaire sont ajoutés à la composition gazeuse.

3.5 Position des électrodes

L'objectif du travail présenté dans cette partie était de fournir une base de données expérimentale pouvant être utilisée comme base de comparaison pour les modélisations numériques, telles que celles effectuées au LAPLACE à Toulouse [104].

3.5.1 Dimension de la décharge

Pour cette étude, seule la décharge n°2 a été étudiée. Le schéma de cette dernière est représenté Figure 3-20. Seules les positions des électrodes internes (ie) et externe (ee) sont modifiées dans cette partie de notre étude.

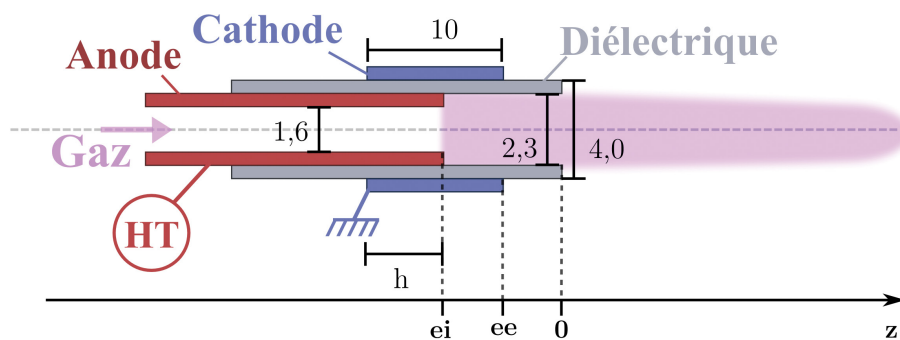


Figure 3-20 : Schéma de la décharge. Les dimensions sont en millimètres.

Le modèle numérique du LAPLACE étant limité au niveau de la taille de la grille, la longueur du jet ne devait pas excéder 25 mm. La valeur de la tension appliquée a donc

été choisie selon cette contrainte et a été prise à 4 kV. Pour cette tension appliquée, selon la position des électrodes, la longueur du jet n'excède jamais 25 mm.

3.5.2 Diagnostics d'imagerie

Nous nous sommes tout d'abord intéressés à l'évolution de la longueur du jet en fonction du débit de gaz et de la position des électrodes. Les résultats sont présentés Figure 3-21 et Figure 3-22. Sur la Figure 3-21, pour chaque graphe la position de l'électrode interne est fixe, et est située à -2 mm pour le graphe (a), à -6 mm pour la graphe (b) et à -10 mm pour le graphe (c). La Figure 3-21 révèle que quelle que soit la position de l'électrode externe, l'évolution de la longueur du jet augmente avec le débit d'hélium pour $e_i = -2$ mm et -6 mm et, doit probablement se situer dans la catégorie où l'évolution a une forme de « cloche » (cf paragraphe 3.3). Tandis que pour $e_i = -10$ mm, la longueur du jet diminue de 1 à 5 slm (excepté pour 1 slm pour $e_e = 2$ mm), et augmente pour un débit supérieur à 5 slm. Ce comportement rappelle celui en forme de « creux » observé au paragraphe 3.3.

D'autre part, notons que pour une position de l'électrode interne fixe (e_i), l'évolution de la longueur du jet en fonction du débit est relativement similaire. C'est-à-dire que les variations (diminution et augmentation) de la longueur s'effectuent pour les mêmes débits. Le déplacement de l'électrode interne doit produire une modification de l'écoulement du gaz et ainsi modifier la distribution spatiale de l'hélium dans l'air, et par conséquent modifier la longueur de la zone où le plasma est capable de se propager. De plus, la Figure 3-21 nous révèle également que plus l'électrode externe (e_e) est proche de l'extrémité du tube diélectrique, plus la longueur du plasma est grande. L'électrode externe doit probablement guider le plasma en augmentant le champ électrique local et ainsi faciliter sa propagation, car l'augmentation du champ augmente le taux d'ionisation et ainsi la densité électronique, ce qui permet au plasma de se propager plus dans l'espace. Ceci est confirmé par l'utilisation du micro-jet étudié au chapitre 6. Pour ce dernier, l'électrode interne est très en arrière et se situe à 47 mm de l'extrémité du tube diélectrique. L'électrode externe, d'une longueur importante, permet au plasma de se propager jusqu'à l'air ambiant.

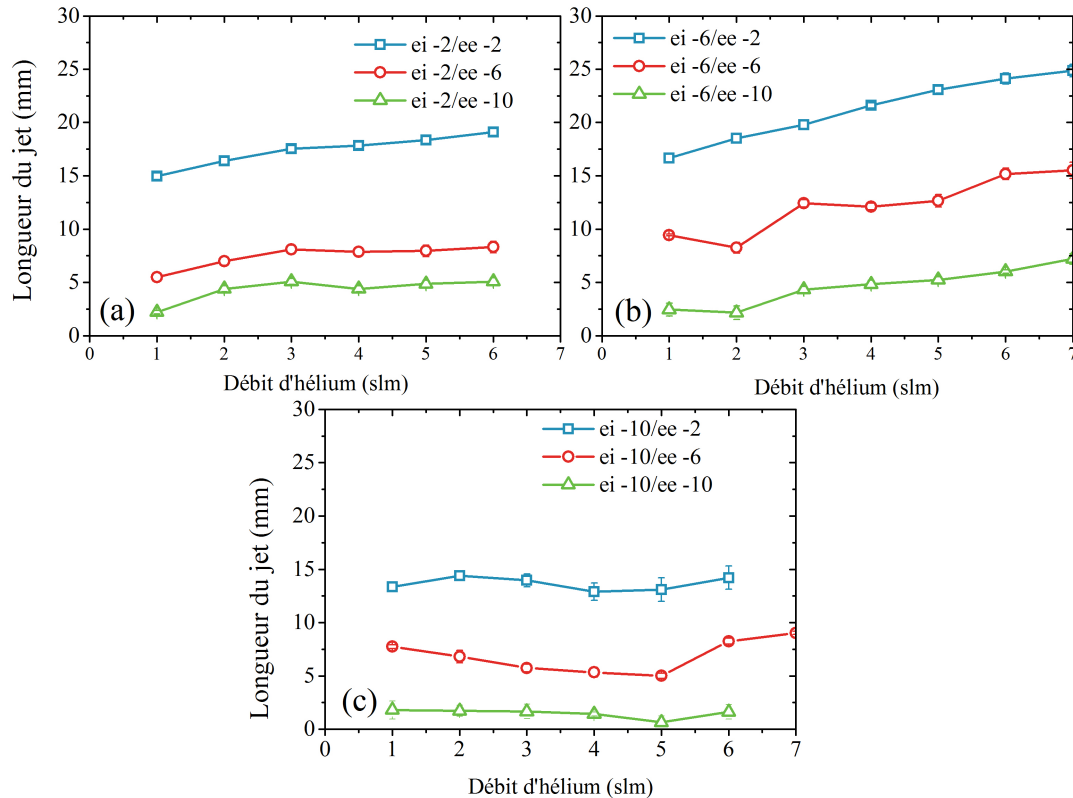


Figure 3-21 : Longueur du jet de plasma selon le débit et la position des électrodes. La tension appliquée est à 4 kV. La position de l'électrode interne (ei) est fixée à -2 mm pour (a), -6 mm pour (b) et -10 mm pour (c).

La Figure 3-22 expose les mêmes résultats que la Figure 3-21, mais présentés différemment : pour chaque graphe la position de l'électrode externe est fixe et vaut respectivement pour les trois graphes (a), (b) et (c), $ee = -2$ mm, $ee = -6$ mm et $ee = -10$ mm. Ces résultats nous apprennent que quelque soit la position de l'électrode externe, la longueur du jet est la plus grande pour $ei = -6$ mm, excepté de 1 à 3 slm lorsque $ee = -10$ mm. A l'inverse, la longueur est la plus faible pour $ei = -10$ mm. Pour cette géométrie de décharge, la configuration optimale pour laquelle la longueur du jet est la plus grande est obtenue pour $ei = -6$ mm et $ee = -2$ mm.

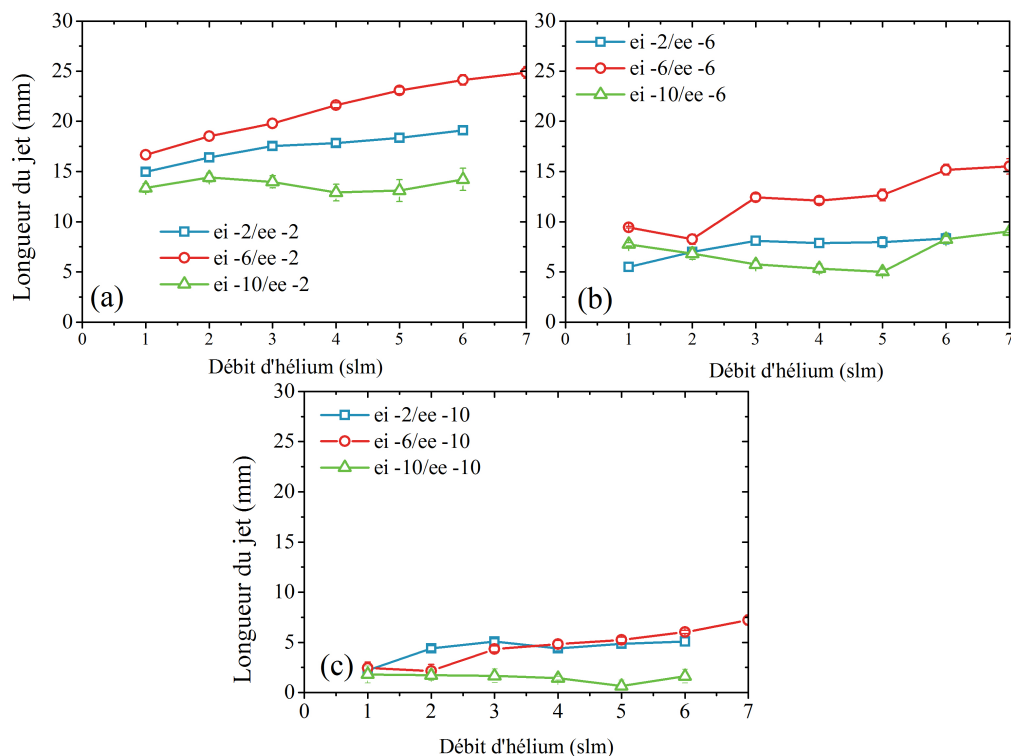


Figure 3-22 : Longueur du jet de plasma selon le débit et la position des électrodes. La tension appliquée est à 4 kV. La position de l'électrode externe (ee) est fixée à -2 mm pour (a), -6 mm pour (b) et -10 mm pour (c).

Par la suite, nous avons cherché à connaître l'influence que peut avoir le déplacement des électrodes au niveau de la vitesse de propagation. La Figure 3-23 représente cette vitesse pour différentes positions de l'électrode externe (-2, -6 et -10 mm) et pour une position de l'électrode interne à -6 mm depuis l'extrémité du tube et pour un débit de 1 slm d'hélium. Ces résultats montrent que plus l'électrode externe est proche de l'extrémité du tube diélectrique, plus la valeur absolue de la vitesse augmente. Ceci est également vrai pour d'autres conditions de débits et lorsque $ei = -10$ mm. Par contre, les mesures de vitesse pour $ei = -2$ mm révèlent que la vitesse reste relativement constante lorsque l'électrode externe est déplacée. Le déplacement des électrodes doit probablement induire une modification du champ électrique et par conséquent du taux d'ionisation et de la densité électronique dans la tête du streamer et ainsi faire varier la vitesse de propagation du plasma, mais seul un modèle complet prenant en compte la géométrie de la décharge permettra d'affirmer ou d'infirmer cette hypothèse.

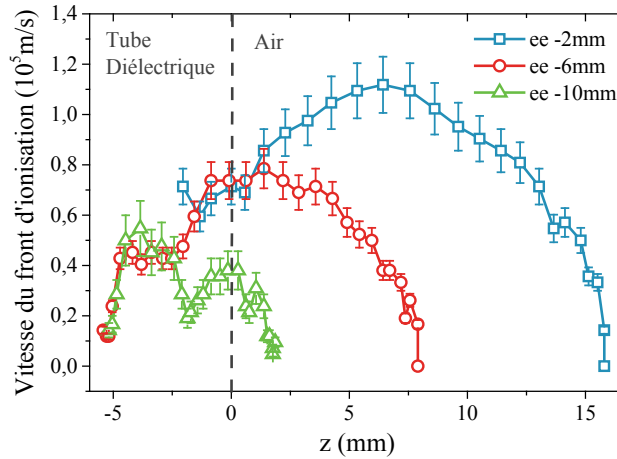


Figure 3-23 : Vitesse du front d'ionisation pour un débit de 1 slm d'hélium et une position de l'électrode interne à -6 mm. Tension appliquée : 4 kV

3.5.3 Diagnostics électriques

Afin de compléter cette étude, nous avons effectué des mesures électriques. Plus particulièrement nous nous sommes intéressés à la mesure du courant de décharge et de l'énergie délivrée au plasma.

3.5.3.1 Courant capacitif

Comme nous l'avons vu au paragraphe 2.2.1.3.1, la mesure du courant de décharge demande de connaître le courant capacitif. La Figure 3-24 présente les courants mesurés pour diverses positions des électrodes en l'absence d'hélium. Pour chaque graphe, la position de l'électrode interne est fixe, et s'élève à -2 mm pour (a), -6 mm pour (b) et -10 mm pour (c).

Sur la Figure 3-24 (a), le courant est très peu modifié lorsque l'électrode externe est déplacée. Ceci est également vrai pour la Figure 3-24 (b) lorsque $ee = -6$ et -10 mm. Notons que dans ce cas, l'électrode externe se situe à l'arrière et au niveau de l'électrode interne, c'est-à-dire que $ee \leq ei$. A l'inverse lorsque $ee > ei$, le courant diminue en fonction de ei . Ce qui équivaut à dire, que ce courant varie en fonction de la longueur de recouvrement, h , (cf Figure 3-20) des deux électrodes. Ce comportement rappelle celui d'un courant capacitif, car la valeur de la capacité dépend directement de la longueur h (cf équation (45)). Lors de ces mesures, il n'était pas possible d'exclure complètement l'absence de décharges couronnes. Le courant mesuré était donc la somme du courant capacitif et du courant induit par les décharges couronnes. Afin de savoir si ces décharges couronnes étaient négligeables, et si ce courant pouvait être considéré au premier ordre comme un courant capacitif, nous avons calculé à partir de ces signaux (Figure 3-24), la valeur de la capacité.

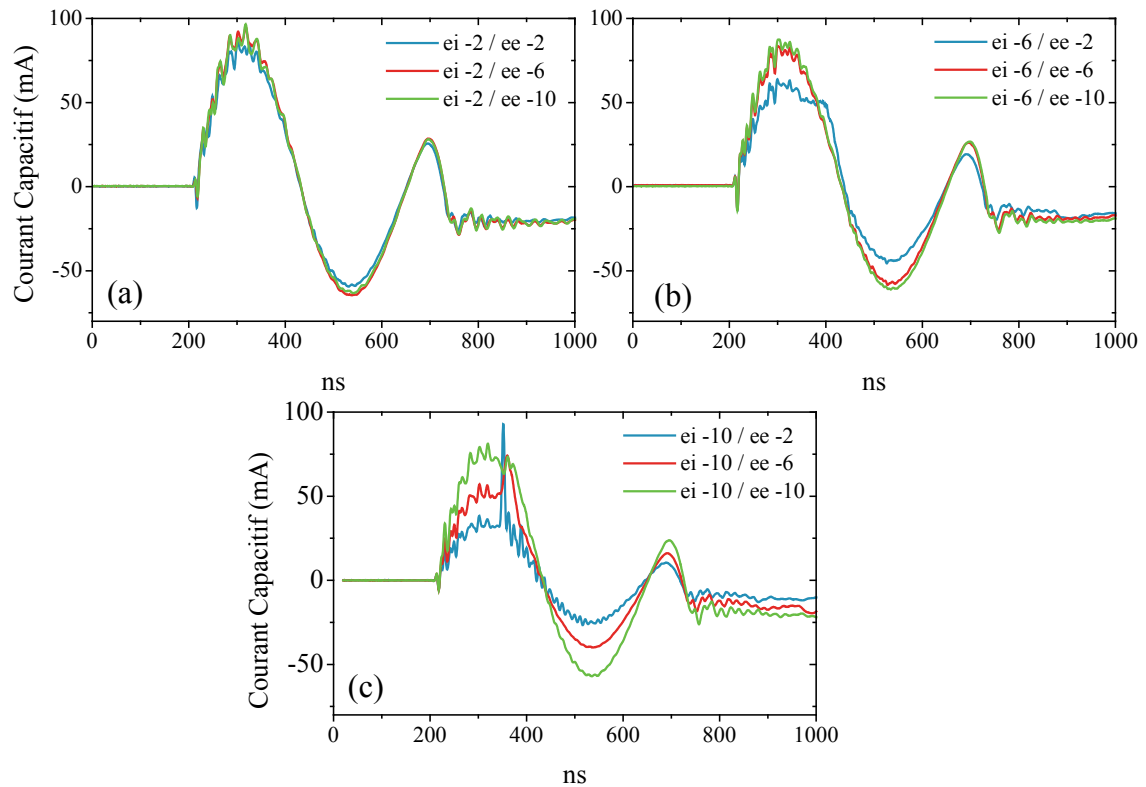


Figure 3-24 : Courant mesuré en l'absence d'hélium en fonction de la position des électrodes. (a) pour $ei = -2$ mm, (b) pour $ei = -6$ mm et (c) pour $ei = -10$ mm. Conditions : 4 kV.

Cette dernière est obtenue à partir de l'équation suivante :

$$C = \frac{\int_0^t i(t).dt}{U(t)} \quad (44)$$

Où $i(t)$ représente le courant de décharge, et $U(t)$ la tension appliquée au cours du temps. Les résultats obtenus sont présentés sur la Figure 3-25 par les symboles en couleurs. On constate que la capacité de la décharge est relativement constante pour $ee \leq ei$, ce qui correspond aux conditions où h est constante est vaut 10 mm. Pour $ee \geq ei$, la valeur de la capacité diminue de manière linéaire en fonction de ee .

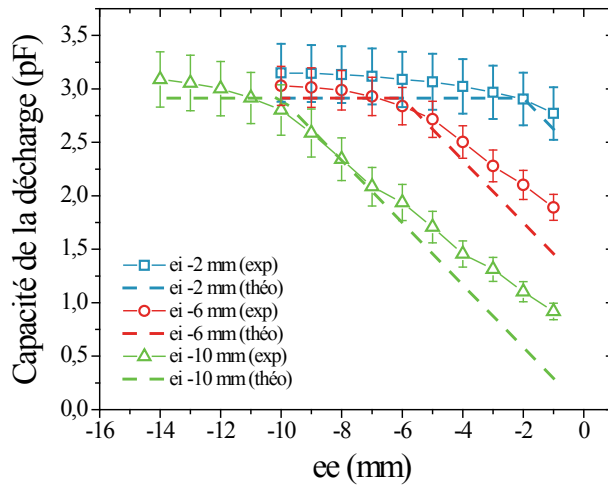


Figure 3-25 : Comparaison de la capacité de la décharge théorique (lignes pointillées) avec celle mesurée (lignes continues). Conditions : 4 kV.

A partir de ces résultats nous avons pu déduire la permittivité relative du tube diélectrique depuis la formule suivante, qui représente la capacité d'un condensateur cylindrique :

$$C = \frac{2\pi\epsilon_0\epsilon_r h}{\ln(R_2 / R_1)} \quad (45)$$

Où ϵ_0 représente la permittivité du vide ($8,85 \cdot 10^{-12}$ F/m), h , la longueur de recouvrement des deux électrodes, R_1 et R_2 représentent respectivement le rayon interne et externe du diélectrique, et ϵ_r , la permittivité relative. Pour connaître ϵ_r , nous nous avons pris comme référence la valeur de la capacité mesurée expérimentalement lorsque $ee \leq ei$, et nous en avons déduit une permittivité relative de 2,9, ce qui représente une valeur cohérente car la permittivité du quartz s'élève en général à 3,9 [160]. A partir de cette permittivité, nous avons calculé l'évolution de la capacité « théorique » en fonction de ee . Ces résultats sont représentés par les lignes en pointillées sur la Figure 3-25. L'évolution de la capacité « théorique » est similaire à celle mesurée expérimentalement, mis à part une légère différence pour $ee \leq ei$, qui est probablement dû aux effets de bords qui ne sont pas pris en compte par la formule (45). Ce résultat nous permet de conclure que le courant mesuré dans de telles conditions peut être considéré au premier ordre comme un courant capacitif.

3.5.3.2 Courant de décharge

Le courant de décharge est obtenu en soustrayant au courant total le courant capacitif. Ces résultats sont présentés Figure 3-26 pour différentes positions d'électrode et pour un débit de 1 slm. Pour chaque graphe, la position de l'électrode interne est fixe. Notons que lorsque l'électrode externe se situe en arrière ou au même niveau de

l'électrode interne, c'est-à-dire lorsque $ee \leq ei$, il apparaît à chaque fois aux extrémités des électrodes des décharges couronnes. Ces décharges, à la différence de celles qui pouvaient apparaître lors de la mesure du courant capacitif, sont beaucoup trop importantes pour en déduire un courant de décharge correct, comme le montrent les signaux des cas suivants : $ei = -2 \text{ mm}/ee = -6 \text{ mm}$, $ei = -6 \text{ mm}/ee = -6 \text{ mm}$ et $ei = -10 \text{ mm}/ee = -10 \text{ mm}$.

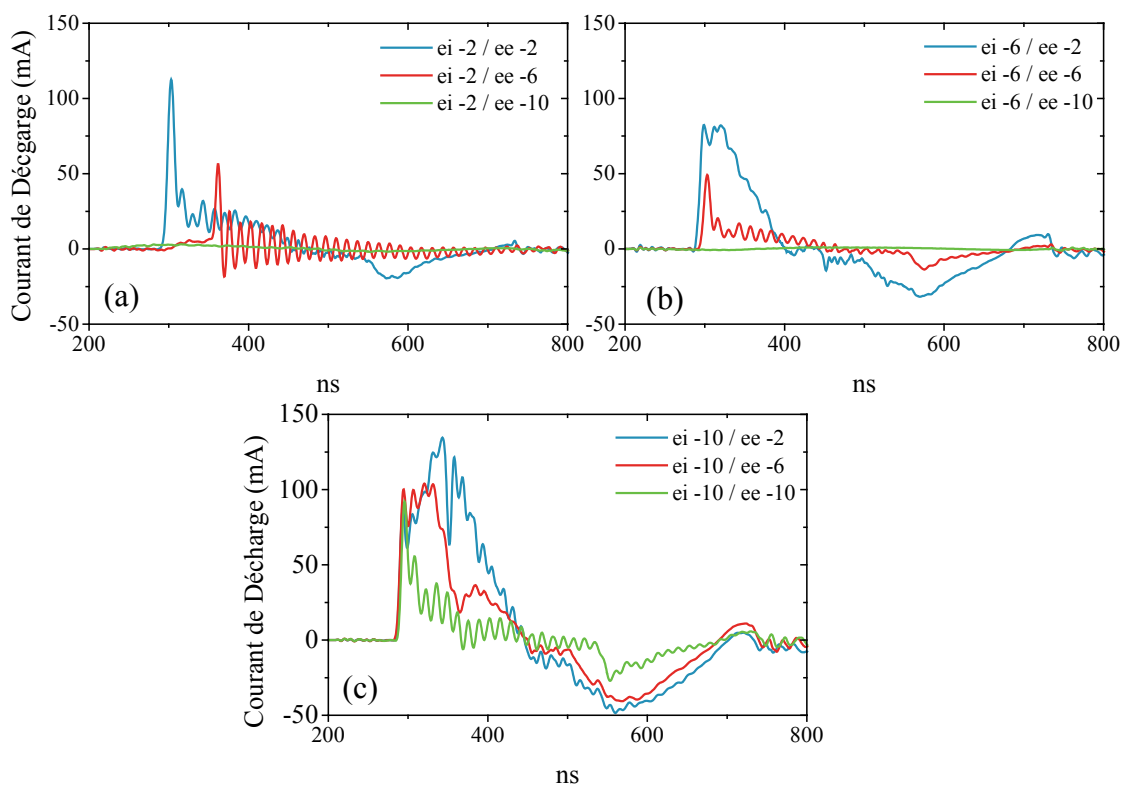


Figure 3-26 : Courant de décharge selon la position des électrodes. (a) pour $ei = -2 \text{ mm}$, (b) pour $ei = -6 \text{ mm}$ et (c) pour $ei = -10 \text{ mm}$. Conditions : 4 kV et 1 slm .

D'autre part, notons que plus l'électrode externe est proche de l'extrémité du tube diélectrique, c'est-à-dire lorsque h diminue, plus la largeur du pic et l'amplitude du courant augmente. Notons que ce comportement est contraire à celui du courant capacitif. Par ailleurs, pour $ei = -2 \text{ mm}/ee = -10 \text{ mm}$ et pour $ei = -6 \text{ mm}/ee = -10 \text{ mm}$, le courant de décharge est très faible et n'a pas pu être mesuré correctement, à cause de la trop faible différence entre le courant capacitif et le courant total. Et pourtant, comme le montre la Figure 3-21 le plasma s'amorce et, est capable de se propager dans l'air ambiant.

A partir des mesures de courant de décharge qui ne sont pas perturbées par des décharges couronnes, c'est-à-dire lorsque $ee \geq ei$, nous avons calculé la charge transférée au plasma lors de la propagation du streamer et lors d'un cycle complet (*ie*, entre deux impulsions de tension). Comme le montre la Figure 3-14, qui représente la vitesse de propagation pour la décharge n°2, la propagation du plasma s'arrête au temps

$t = 500$ ns. La charge transférée au plasma lors de la propagation du streamer correspond alors à l'intégration du courant de décharge jusqu'à 500 ns, ce qui correspond à la surface du premier pic de courant, Figure 3-27 (a). Par contre pour connaître la charge transférée totale, il suffisait d'intégrer le signal de 0 à 2000 ns (b), car au-delà de 2000 ns, le courant de décharge était quasi nul. Le résultat de ces intégrations en fonction de la position de l'électrode externe (ee) est présenté Figure 3-28.

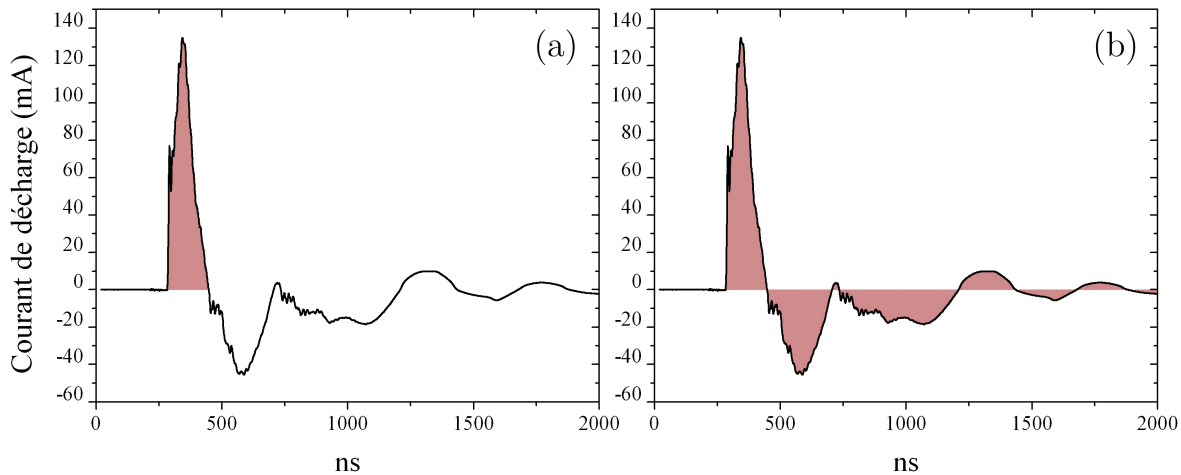


Figure 3-27 : (a) Intégration du premier pic courant de décharge et (b) du courant de décharge total.

D'une part, ces résultats nous apprennent que la charge totale transférée au plasma est nulle quelque soit la position des électrodes (courbes jaune et verte), ce qui est en accord avec le système, car en sortie d'un transformateur la charge transférée totale est toujours égale à zéro. D'autre part, la charge transférée correspondant au premier pic de décharge augmente de manière linéaire avec la position de l'électrode externe.

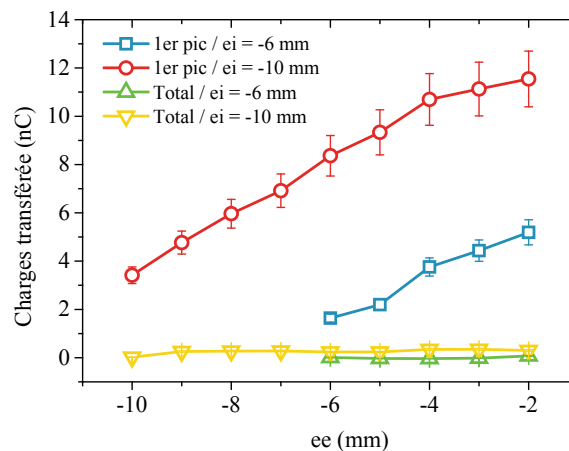


Figure 3-28 : Valeur de la charge transférée au plasma selon la position de l'électrode externe.

Par ailleurs, à partir des signaux de courant et de tension, nous avons mesuré l'énergie totale transférée au système. Pour cela, nous avons retranché à l'énergie totale obtenue avec plasma, celle sans plasma (Plus de détails sont fournis sur cette méthode au paragraphe 2.2.1.4). Cette mesure a été réalisée seulement pour $e_e \geq e_i$, car comme nous l'avons vu sur la Figure 3-26, pour $e_e \leq e_i$ les signaux électriques sont parasités par des décharges couronnes et ne permettent pas de déduire un signal de courant correct. L'énergie transférée mesurée pour $e_e \geq e_i$ est présentée Figure 3-29. Pour $e_i = -10$ mm (courbe orange) et -6 mm (courbe rose), l'énergie augmente linéairement selon la position de l'électrode externe (e_e). En effet, le couplage entre l'alimentation et le plasma est amélioré lorsque l'électrode externe est proche de l'extrémité du tube. Ce résultat pourrait expliquer en partie l'augmentation de la vitesse de propagation du plasma selon la position de l'électrode externe (pour $e_i = -6$ et -10 mm). L'accroissement de l'énergie déposée dans le plasma doit induire une augmentation de la densité électronique, ce qui a pour conséquence d'augmenter le champ réduit et ainsi la vitesse de propagation.

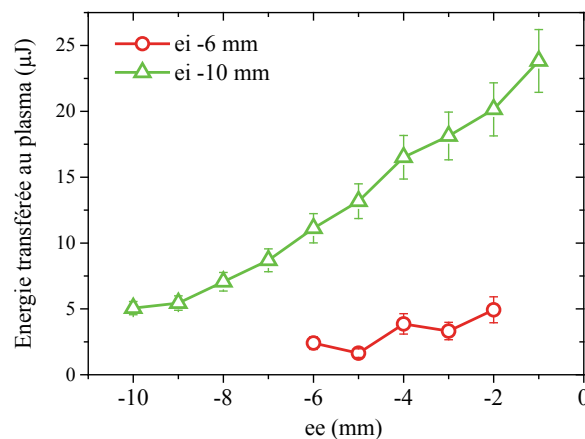


Figure 3-29 : Énergie transférée au plasma pour une tension appliquée de 4 kV et un débit de 1 slm.

3.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié différents paramètres capables d'induire une modification de la longueur et de la vitesse de propagation du plasma afin de connaître les grandeurs qui les contrôlent. Grâce à des diagnostics d'imagerie rapide, nous avons pu mesurer cette vitesse, et ainsi montrer qu'elle est comprise entre $0,5 \cdot 10^5$ et $2 \cdot 10^5$ m/s. Les mesures électriques nous ont également appris que l'évolution de cette vitesse au cours du temps est liée à celle de la tension appliquée, ce qui confirme expérimentalement que la tête du streamer n'est pas déconnectée de la décharge durant sa propagation.

Le premier paramètre que nous avons fait varier fut la tension appliquée. Ceci nous a permis de montrer que son augmentation est capable d'induire un accroissement de la

longueur et de la vitesse de propagation du plasma. De plus, ces mesures nous ont appris qu'il existe une tension minimale, comprise entre 1 et 3 kV, pour laquelle le plasma est capable de se propager hors de la structure de décharge.

Par la suite, nous nous sommes intéressés à la variation d'un autre paramètre : le débit d'hélium injecté au sein de la décharge. Les diagnostics d'imagerie et la strioscopie nous indiquent que la variation du débit modifie le régime de l'écoulement du gaz et sa composition au sein de la décharge, ce qui a pour conséquence de modifier la longueur du jet. Par contre, la vitesse de propagation du plasma est peu affectée par la variation de ce paramètre.

Afin de clarifier quels sont les effets de la présence de gaz moléculaire au sein de la décharge, nous avons ajouté 1 à 10% d'air, d'azote et d'oxygène. L'ajout de ces gaz induit une diminution de la longueur du plasma, mais affecte peu la vitesse de propagation du plasma.

Le dernier paramètre étudié fut la position des électrodes. Le déplacement de ces dernières induit une modification de la longueur et de la vitesse de propagation. Plus l'électrode externe est proche de l'extrémité du tube diélectrique, plus la longueur, la vitesse de propagation et l'énergie transférée sont importantes, alors que la capacité de la décharge diminue. Ce dernier point reste encore inexplicé, et doit être étudié plus en détail. Seule une modélisation détaillée prenant en compte l'ensemble des paramètres (géométrie, forme de la tension appliquée,...) permettrait d'identifier avec précision l'origine physique des évolutions observées.

De plus, cette étude a également montré que les propriétés de l'écoulement peuvent être affectées par la présence du plasma. Cette interaction entre l'électrodynamique et l'hydrodynamique est complexe comme nous le verrons plus en détail au chapitre 5.

Chapitre 4 : Distribution spatio-temporelle des états excités

4.1 Introduction

Un atome métastable est un atome excité, dont aucune transition radiative dipolaire électrique vers un état inférieur n'est autorisée [129]. La transition radiative est alors de nature dipolaire magnétique ou quadripolaire électrique. Ces transitions ont des probabilités de transition très inférieures à celle de la dipolaire électrique, de telle sorte que la durée de vie radiative des états métastables est très longue. L'atome d'hélium possède deux états métastables, dont les durées de vie radiative sont respectivement de 20 ms pour le singulet 2^1S et d'environ 2h pour le triplet 2^3S [161]–[163] ; valeurs à comparer aux durées de vie des états excités supérieurs qui sont de quelques dizaines de nanosecondes. Les durées de vie radiative des états métastables sont également largement supérieures aux temps caractéristiques d'évolution des phénomènes physiques se déroulant dans ce plasma, qui sont quant à eux de l'ordre quelques nanosecondes pour la création et la propagation du plasma, et de quelques microsecondes pour sa relaxation. Les principaux processus de perte de ces états métastables sont alors la diffusion en dehors de la décharge et les collisions avec les autres espèces du plasma [164]. Bien que la décharge soit alimentée en hélium, le jet de plasma, se propageant dans l'air ambiant, ne contient pas que des atomes excités de l'hélium. En effet de l'oxygène, de l'azote, et de la vapeur d'eau, issus de l'air environnant, rétrodiffusent progressivement à l'intérieur du canal de gaz, et interagissent avec les états excités de l'hélium, créant de nombreuses espèces réactives de l'azote (RNS : Reactive Nitrogen Species) ou de l'oxygène (ROS : Reactive Oxygen Species). Ces RONS (Reactive Oxygen and Nitrogen Species), qui sont majoritairement créés par transfert d'excitation à partir des états métastables de l'hélium, jouent un rôle fondamental dans l'interaction des jets de plasmas froids avec la matière vivante. Il est donc essentiel, en particulier pour cette application émergente qui motive en très grande partie le développement actuel des recherches sur les micro-jets de plasmas, de comprendre la dynamique spatio-temporelle d'évolution de la densité des atomes métastables d'hélium produits dans les jets de plasmas.

Les premières mesures d'atomes métastables dans un micro-jet de plasma à pression atmosphérique remontent à 2010. Depuis plusieurs équipes ont effectué ces mesures, mais il n'est pas évident de comparer de manière directe les différents résultats, car les géométries de décharge sont différentes, de même que les excitations électriques. La

plupart des décharges étudiées sont soit des décharges radiofréquences (RF), soit des décharges impulsionnelles ayant des fréquences de répétition de l'ordre du kilohertz.

A l'exception du travail de Xiong et al [165], dans lequel la densité des différents atomes métastables d'argon a été mesurée en utilisant une méthode basée sur l'analyse des élargissements auto absorbés des profils spectraux de raies émises par le plasma, toutes les autres mesures ont été effectuées par absorption laser.

Le tableau ci-après fait la synthèse des différents travaux qui sont classés selon le mode d'initiation du plasma et du gaz utilisé.

	Mesure de Ar ^m Gaz : Ar	Mesure de Ar ^m Gaz : He + Ar	Mesure de He ^m Gaz : He + Ar	Mesure de He ^m Gaz : He
RF	X	Niermann et al [164], [166], [144]	Niermann et al [164], [144]	Niemi et al [145] Niermann et al [164], [167]
kHz	Xiong et al [168] Bussiahn [169]	Sands et al [120]	X	Urabe et al [79]

Dans le cas de l'hélium, gaz principalement utilisé dans ce travail, Niemi et Niermann ont mesuré les densités moyennes de métastables au cours d'une période RF et obtenus des valeurs de l'ordre de 10^{11} cm⁻³. Ils ont mis en évidence le rôle très important que pouvaient jouer les impuretés présentes dans le flux de gaz. D'autre part, Urabe et al ont mesuré la densité des atomes métastables dans un micro-jet impulsionnel, et ont également obtenu des densités de quelques 10^{11} cm⁻³, avec des temps de décroissance de leurs signaux d'absorption sont inférieurs à 200 ns. Par ailleurs, ils ont montré que la distribution spatiale des atomes métastables était annulaire en sortie de la décharge, et que le diamètre de l'anneau diminuait avec la distance au cours de la propagation du jet de plasma. Ce dernier résultat est en bon accord avec les prédictions des modèles numériques développés par Naidis [124] et Breden et al [102].

4.2 Dispositif expérimental

Bien que le dispositif expérimental ait été décrit de manière détaillée dans le chapitre 2, nous reproduisons ci-dessous un schéma du dispositif de la décharge utilisée pour cette partie de l'étude, avec les dimensions exactes des divers éléments. En effet comme discuté au chapitre 3, la géométrie exacte (épaisseur et nature du diélectrique, longueur et position respective des électrodes) influe de manière significative sur les propriétés du jet, et donc vraisemblablement sur les densités d'atomes métastables produites.

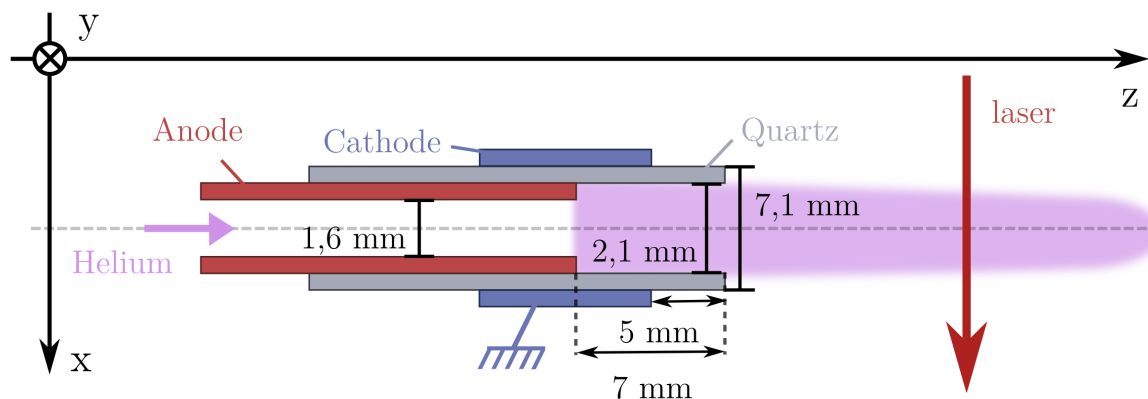


Figure 4-1 : Schéma de la décharge.

Dans ce chapitre la décharge est du type n°3 comme définit au paragraphe 3.1.2. Les paramètres que nous avons fait varier, sont la tension appliquée (4-7 kV) et le débit d'hélium (2 à 6 litres par minute).

4.3 Résultats expérimentaux

4.3.1 Profil de l'absorbance au cours du temps

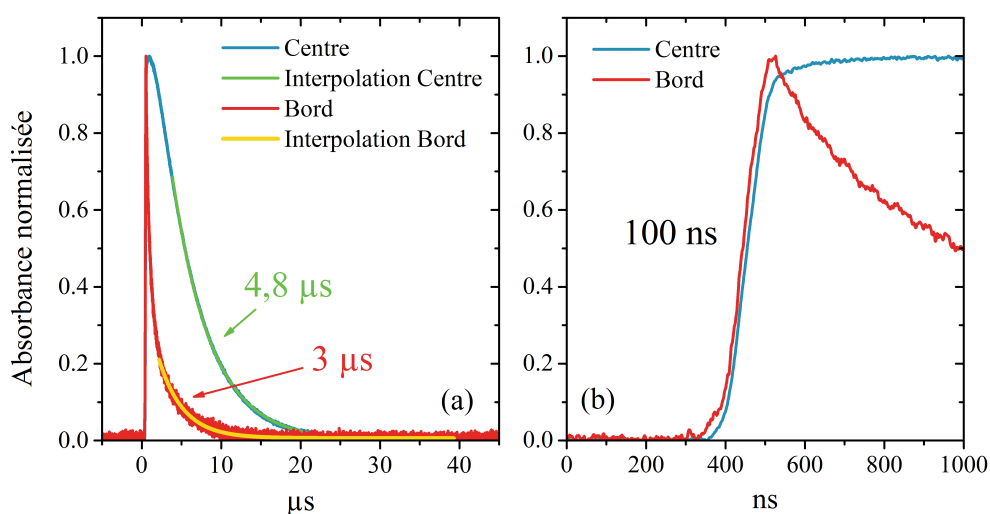


Figure 4-2: (a) Signaux d'absorbance au cours du temps. Les signaux bleu et rouge représentent l'absorbance normalisée respectivement au centre et sur le bord du jet. Les signaux vert et jaune sont leur interpolation mono exponentielle respective. (b) Zoom de la figure (a) de 0 à 1000 ns.

La Figure 4-2 représente des signaux de l'absorbance, $\ln(I_0/I)$, mesurée pour deux positions transverses (ie, « y », la correspondance des axes « x », « y » et « z » est schématisée sur la Figure 4-1) : une au centre du jet (courbe bleue) et une au bord du jet (courbe rouge). La Figure 4-2 (b), qui est un zoom de la figure (a), permet de mesurer un temps de montée de 100 ns pour les deux positions (au centre et sur le bord du plasma). Nous avons défini ce temps de montée, comme étant le temps pour lequel

le signal passe de 10 à 90% de sa valeur maximale. Selon les conditions expérimentales et la zone sondée par le laser, ce temps peut varier d'un facteur 2 à 3, sa valeur restant comprise entre 60 et 250 ns. Par ailleurs, signalons que ce temps de montée n'est pas toujours simple à définir, car dans de nombreux cas un comportement non monotone peut apparaître comme illustré sur la Figure 4-3. Par exemple pour $z = 11,2$ mm (courbe jaune), dans un premier temps, le signal d'absorbance monte très rapidement, puis dans un second, il continue à augmenter mais selon une croissance plus lente. Il en est de même pour $z = 8,2$ mm (courbe rouge) et $z = 10,2$ mm (courbe verte).

D'autre part, la Figure 4-2 (a) nous apprend que la décroissance des signaux d'absorbance suit une loi mono exponentielle avec un temps caractéristique de $4,8 \mu\text{s}$ au centre et de $3 \mu\text{s}$ sur le bord. Pour une position « z » donnée, les réactions de destruction sont beaucoup plus lentes au centre du plasma que sur les bords. Ce qui est dû à la rétro diffusion de l'air dans le canal d'hélium : les molécules d'air entrent en collision avec les atomes métastables d'hélium, ce qui va avoir comme conséquence de les détruire plus rapidement. Ce temps caractéristique de destruction, comme nous le verrons en détail au paragraphe 4.3.2, est sensible à la composition du gaz : plus le taux d'impuretés dans le jet d'hélium est important, plus ce temps est faible.

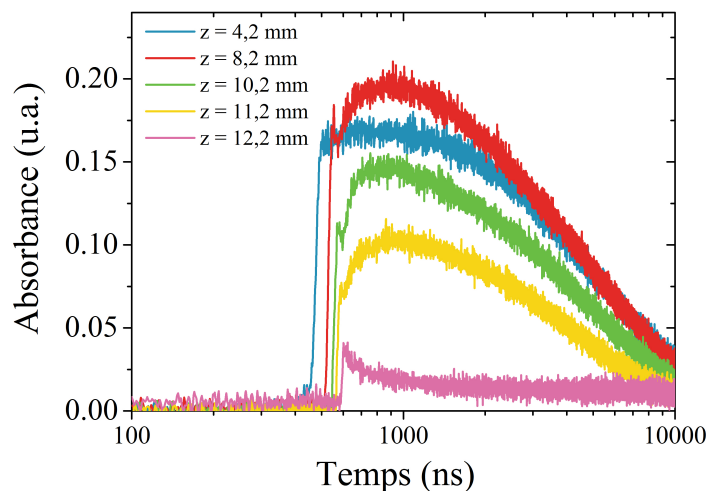


Figure 4-3 : Evolution temporelle de l'absorbance au centre du jet pour diverses positions axiales indiquées dans le cartouche. Tension appliquée: 5 kV, débit: 4.5 slm.

Nous avons mesuré ce temps caractéristique de décroissance au centre du jet selon l'axe de propagation (*ie*, « z ») ; les résultats sont présentés Figure 4-4. Ce temps caractéristique est constant de 0 à 11 mm et s'élève à $4,6 \pm 0,4 \mu\text{s}$. Puis à partir de 11 mm, il chute brutalement et, est quasi nul à 16 mm.

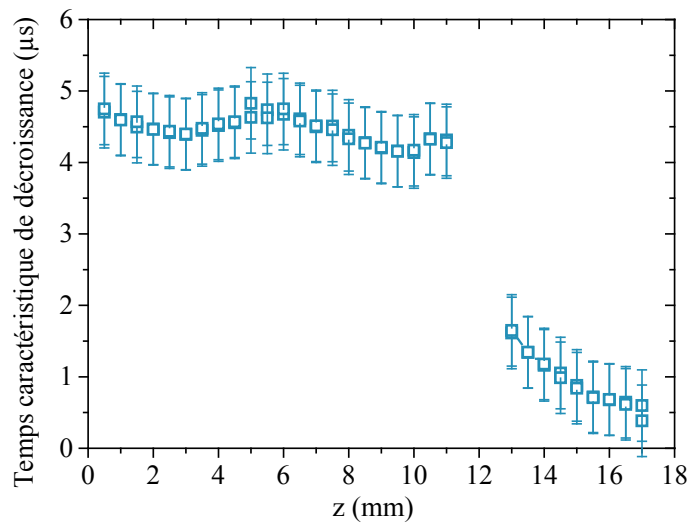


Figure 4-4: Temps caractéristique de décroissance selon z au centre du jet (ie $y = 0$ mm), pour un débit de 4,5 slm et une tension appliquée de 5kV.

Nous avons également fait ces mesures pour d'autres conditions de débit et de tension appliquée, afin de connaître la longueur de la zone où le temps caractéristique est constant. Ces valeurs sont reportées, Figure 4-5, en fonction du débit (a) et de la tension appliquée (b). La longueur de cette zone augmente selon ces deux paramètres, excepté pour 4,5 slm sur (a). Ce point n'est pas une erreur de mesure, car la mesure de cette longueur est très reproductible d'une prise de donnée à l'autre, et l'écart de sa valeur par rapport à celles mesurée à 4 et 5 slm doit probablement être dû à un effet hydrodynamique. Ces résultats montrent que la variation de la tension et du débit modifie la distribution du gaz, car le temps caractéristique de décroissance est très sensible à la composition du gaz. Cette observation confirme les résultats obtenus au chapitre 3 sur l'interaction entre les effets hydrodynamiques et le plasma.

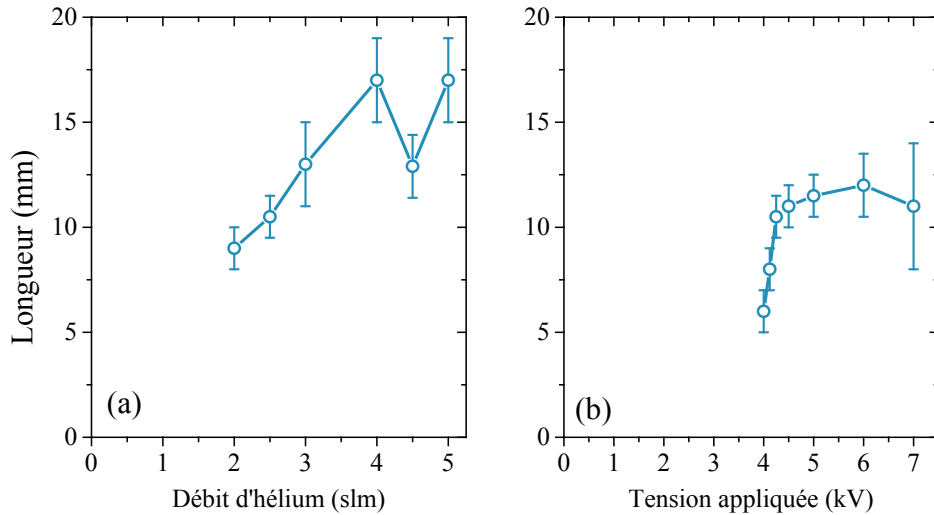


Figure 4-5 : Longueur de la zone où le temps caractéristique de décroissance est constant. (a) selon le débit pour une tension de 5 kV. (b) selon la tension appliquée pour un débit de 4,5 slm.

Par ailleurs, nous avons également mesuré ce temps caractéristique de décroissance, Figure 4-6, selon la direction « y » pour différents « z ». Au centre du jet, ce temps est relativement constant et forme un plateau. Ce résultat démontre que la composition du gaz est inchangée au centre du jet, c'est-à-dire que le taux d'impuretés reste constant. Par contre, sur les bords du plasma, qui est la zone où l'air rétrodiffuse dans le canal d'hélium, ce temps chute rapidement à zéro. La valeur du plateau reste constante de $z = 0$ à $z = 12$ mm ce qui est en accord avec les résultats de la Figure 4-4. A partir de $z = 12$ mm, l'évolution du temps caractéristique de décroissance passe d'une forme de plateau à « pseudo gaussienne », et sa valeur maximale diminue selon « z », ce qui démontre que le taux d'impuretés pour $z > 12$ mm augmente.

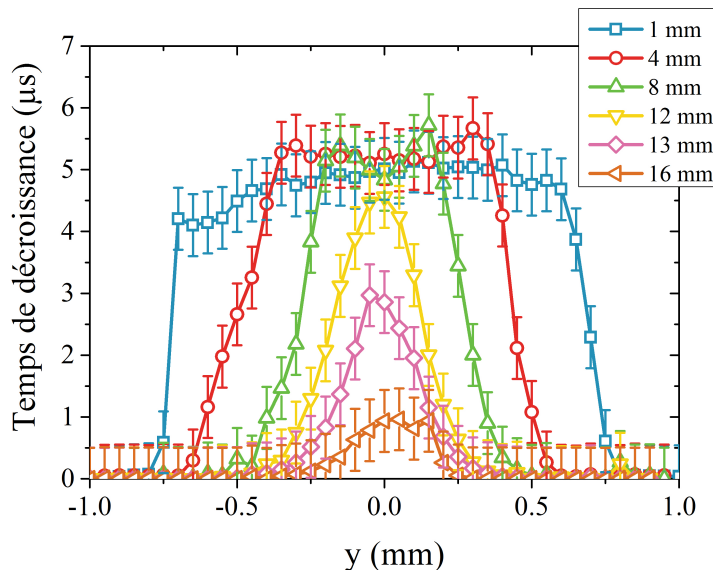


Figure 4-6: Temps caractéristique de décroissance selon « y » pour différents « z » pour une tension de 5 kV et un débit de 4,5 slm.

Le rayon de ce plateau est tracé, Figure 4-7, selon l'axe du jet, et permet de visualiser la zone pour laquelle le temps caractéristique de décroissance vaut $4,7 \pm 0,5 \mu\text{s}$. Cette zone correspond à la région où la composition du gaz est inchangée et où la proportion d'hélium par rapport aux impuretés est la plus élevée. Le rayon de ce plateau diminue avec « z », formant ainsi un cône depuis la sortie du diélectrique (*ie*, $z = 0 \text{ mm}$) où le temps caractéristique de décroissance vaut $4,7 \pm 0,5 \mu\text{s}$. Nous nommons « cône d'hélium pur », la zone où le taux d'impuretés est le plus faible (cf, zone rose sur la Figure 4-7).

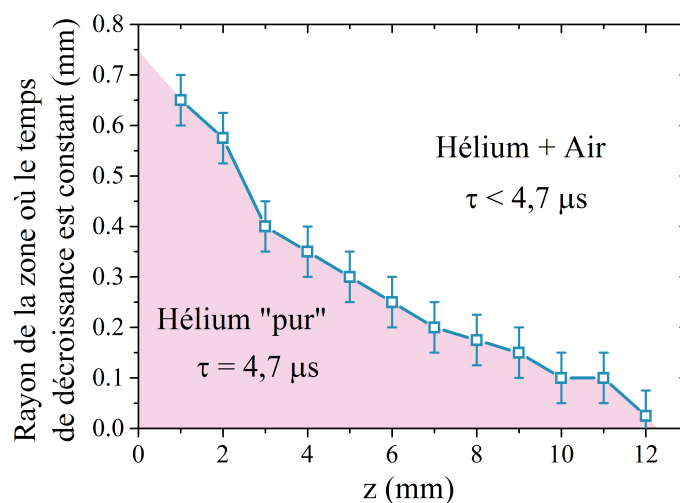


Figure 4-7: Rayon de la zone où le taux de décroissance est constant.

4.3.2 Modélisation de la cinétique dans une décharge d'hélium

Les mesures présentées précédemment nous ont montré que les temps de montée de l'absorbance sont généralement non monotones. Leur valeur moyenne est de 150 ns et représente le temps caractéristique de la création des atomes métastables d'hélium. Ce temps est notablement plus grand que celui du temps de passage du streamer dans le volume focal du laser (quelques nanosecondes). D'autre part, les temps caractéristiques de décroissance sont inférieurs ou égaux à $5 \mu\text{s}$, alors que le temps caractéristique de la destruction à trois corps des atomes métastables d'hélium en hélium pur à pression atmosphérique et pour une température de 320 K (nous avons mesuré au paragraphe 2.2.4.2.2 que la température du plasma au bord du jet est de 320 K, tandis qu'au centre elle est à 350 K) s'élève à $12,7 \mu\text{s}$ (et à $15,1 \mu\text{s}$ pour 350 K).

Une étude détaillée de l'évolution temporelle de la densité locale des états métastables pour nos conditions expérimentales (prenant en compte la géométrie exacte de la structure de décharge, et la forme exacte de l'évolution temporelle de la tension appliquée) requiert le développement d'un modèle complet de propagation d'un

streamer positif dans un canal dont la fraction molaire hélium/air varie continûment au cours de la propagation. Le développement d'un tel modèle était largement au-delà des objectifs de ce travail. Pour analyser nos résultats expérimentaux, et comprendre la dynamique d'évolution de la densité des états métastables, nous avons alors développé un modèle très simplifié supposant que le plasma présent dans la tête du streamer pouvait être assimilé en première approximation à un plasma homogène créé dans un petit volume par une impulsion brève de courant à champ électrique à peu près constant. Les modèles développés par Naidis [107], [111], [170], Breden [102], [103] et Bœuf [104] prédisent des valeurs de champ électrique sur l'axe de l'ordre de 10 à 20 kV/cm, soit un champ électrique réduit de 50 à 100 Td.

Nous avons donc tenté d'utiliser un modèle de décharge préalablement développé au LPGP pour l'étude des décharges photodéclenchées [171]. Ce modèle a été validé par comparaison avec des études expérimentales effectuées pour de nombreux mélanges gazeux à pressions élevées (lasers excimères [172], laser HF/DF [173], mélanges air + polluants [174]). Les décharges photodéclenchées correspondent à l'excitation d'une décharge homogène en volume par décharge capacitive. Le couplage entre le plasma et la capacité de stockage de l'énergie s'effectue via une inductance et une résistance comme présenté sur la Figure 4-8.

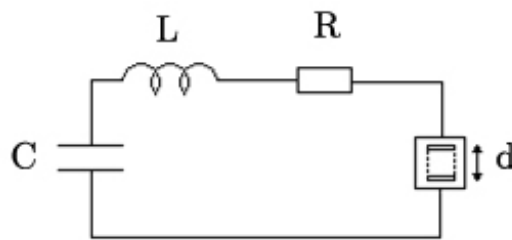


Figure 4-8 : Circuit électrique équivalent de la décharge photodéclenchée.

Ce modèle couple de façon auto-cohérente le circuit électrique et la cinétique réactionnelle via la résolution de l'équation de Boltzmann pour les électrons. Ce modèle repose sur deux hypothèses fortes. La première est de supposer que la décharge est homogène, de telle sorte que seules les variations temporelles seront prises en compte et les gradients spatiaux éventuels négligés. Le modèle est donc un modèle 0D. La seconde hypothèse du modèle consiste à supposer que le temps de relaxation de la fonction de distribution en énergie des électrons (FDEE) vers un état d'équilibre stationnaire est le mécanisme de relaxation possédant la fréquence la plus rapide. Cette hypothèse, appelée Approximation de Champ Local (APL) est généralement valable pour des décharges générées à des pressions élevées [175]. Cette seconde hypothèse, permet de pouvoir découpler partiellement la résolution de l'équation de Boltzmann du calcul des évolutions cinétiques. La résolution de l'équation de Boltzmann étant la partie du code la plus coûteuse en temps de calcul, cette hypothèse permet d'éviter cette résolution à

chaque pas de temps, le calcul de la fonction de distribution en énergie des électrons n'étant effectué que lorsque la variation relative du champ électrique réduit est supérieure à une certaine valeur fixée en fonction de la précision souhaitée.

La structure du modèle est présentée sur la Figure 4-9. Le code de calcul possède trois parties distinctes : les paramètres d'entrée, le bloc de programmes et les données de sortie du calcul. Ces blocs sont interdépendants : des paramètres de sortie de calcul peuvent être réinjectés comme données d'entrée, c'est le cas, par exemple de la densité électronique, de la température du gaz ou de celle des électrons

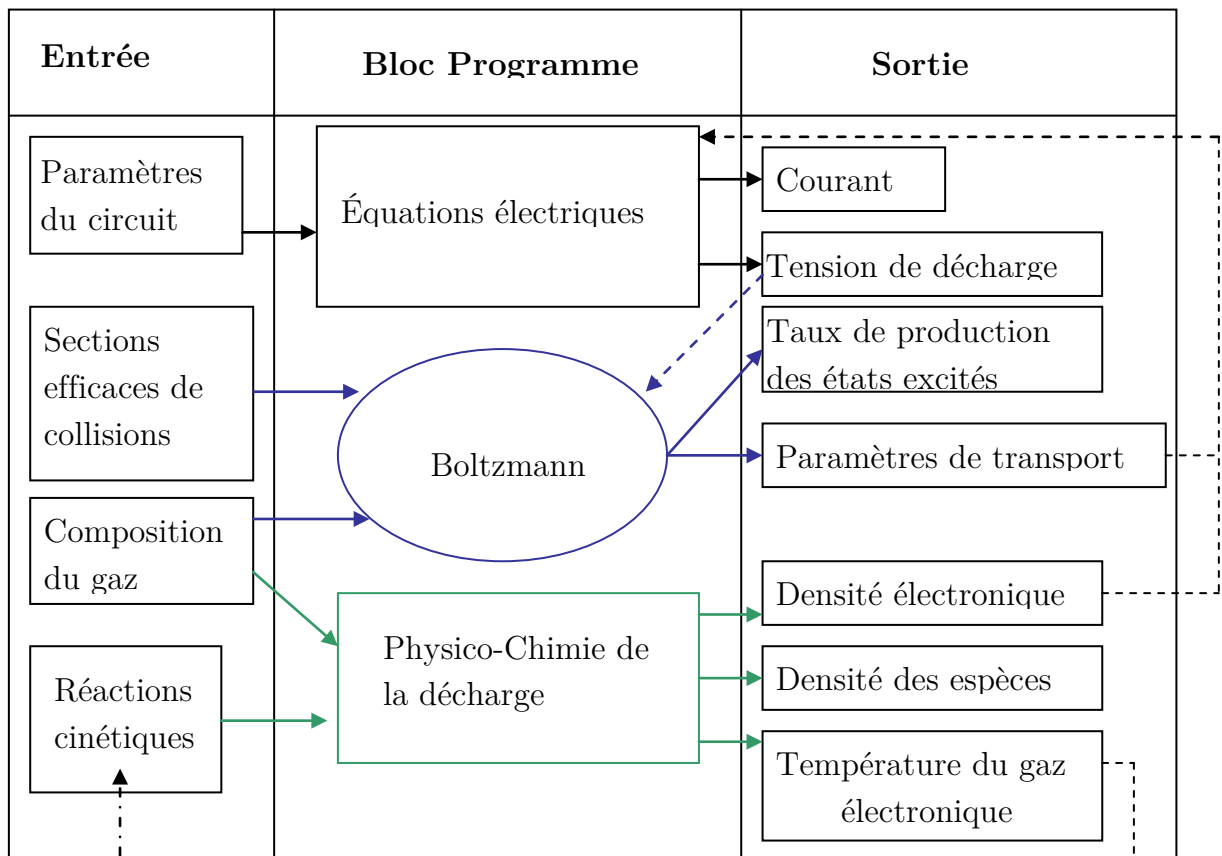


Figure 4-9 : Structure du programme de calcul.

Paramètres électriques

Pour obtenir une excitation d'une durée de quelques nanosecondes produite par un champ électrique de 50 à 100 Td, nous avons supposé que la plasma était généré par la décharge d'un condensateur de 8 pF chargé sous 250 V, qui se décharge ensuite via une inductance de 12,5 nH et une résistance en série nulle (Figure 4-8) dans de l'hélium pour une distance inter-électrode de 100 μm . La Figure 4-10 représente l'évolution temporelle des paramètres électriques induits par ce circuit. Le temps de montée et la largeur à mi-hauteur de l'impulsion de courant sont tous deux égaux à 1,2 ns. Le passage du courant se traduit par une chute de la tension plasma, qui passe d'une valeur initiale de 250 volts, correspondant à un champ électrique réduit de 100 Td, à

125 V (soit $E/N=50$ Td) au moment où le courant est maximal. Soulignons que les paramètres du circuit sont totalement arbitraires, ils permettent simplement de générer facilement une impulsion unique de courant de largeur à mi-hauteur nanoseconde, censé représenter le passage d'un front d'ionisation au travers du volume sondé par le faisceau laser.

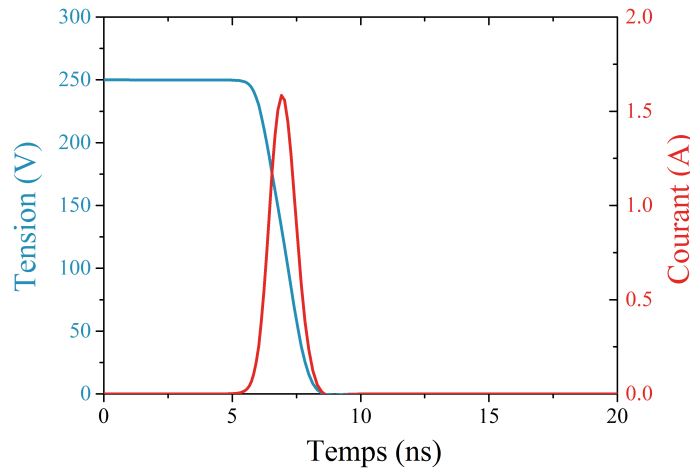


Figure 4-10 : Evolution temporelle de la tension et du courant générés par la décharge, dans de l'hélium à pression atmosphérique et sur une longueur interélectrodes de $100 \mu\text{m}$, d'un condensateur de 8 pF via une inductance de $12,5 \text{ nH}$.

Sections efficaces et composition du gaz

Nous supposons que la décharge se produit dans de l'hélium à pression atmosphérique et qu'elle peut éventuellement contenir comme impuretés de l'azote, de l'oxygène et de la vapeur d'eau. La composition du mélange est un paramètre variable de la modélisation.

Pour chacun des gaz il est nécessaire de connaître les sections efficaces de collisions électrons atomes/molécules. Pour les collisions entre les électrons et l'hélium dans son état fondamental nous avons choisi d'utiliser les sections efficaces de Biaggi [176], qui sont proposées sous forme tabulée dans la base de données LXCAT [177], pour des énergies comprises entre 0 et 1000 eV, et dont la validité pour la modélisation des plasmas hors équilibre a été analysée par Alves et al [178]. Les sections efficaces des collisions super élastiques sont automatiquement générées par le programme par applications des relations de micro réversibilité. En ce qui concerne les collisions entre les électrons et les états excités, nous avons utilisé les sections efficaces proposées par Ralchenko et al [179]. Nous avons pris en compte de manière individuelle les 9 premiers états excités de l'hélium atomique et regroupé les états supérieurs dans un état effectif. Pour l'azote et l'oxygène nous avons utilisé une version réduite des sections efficaces de collision proposées par Phelps [180], [181]. Dans la mesure où nous ne nous

intéresserons qu'à l'effet de ces gaz introduits en très faible quantité (0-1000 ppm) sur l'évolution temporelle de la densité des atomes métastables d'hélium, et non à la cinétique des états excités de l'azote ou de l'oxygène, le choix des jeux de sections efficaces utilisés pour les impuretés n'est pas critique. Une discussion complète sera trouvée dans Rozoy et al [174].

Réactions cinétiques

La cinétique des décharges dans l'hélium à haute pression a fait l'objet de nombreux travaux dans les années 1980-1990 [182]–[187] et, elle est maintenant bien établie. Nous avons utilisé le modèle proposé par Emmert et al [188] en 1988 qui fait la synthèse des travaux antérieurs. Par rapport à ce modèle, nous avons simplement apporté une modification sur la façon dont sont prises en compte les collisions entre les électrons et les divers états excités de l'hélium. N'ayant pas à sa disposition de jeux de sections efficaces pour ces collisions, Emmert les traite de manière macroscopique au moyen de coefficients de réaction qui supposent implicitement que la fonction de distribution en énergie des électrons est maxwellienne, ce qui est une hypothèse non vérifiée pour les plasmas hors équilibre de gaz rare à pression élevée [189]. Nous avons préféré utiliser les sections efficaces de Ralchenko et al [179] qui permettent un traitement microscopique plus précis grâce à leur prise en compte dans le calcul de la fonction de distribution en énergie des électrons. A l'exception des réactions superélastiques automatiquement générées par le programme, l'ensemble des réactions prises en compte dans le modèle est donné dans le Tableau 2.

Nous avons pris en compte les 10 premiers niveaux de l'hélium, qui sont représentés sur la Figure 4-11, et He(10) regroupe tous les niveaux supérieurs à l'état He(9).

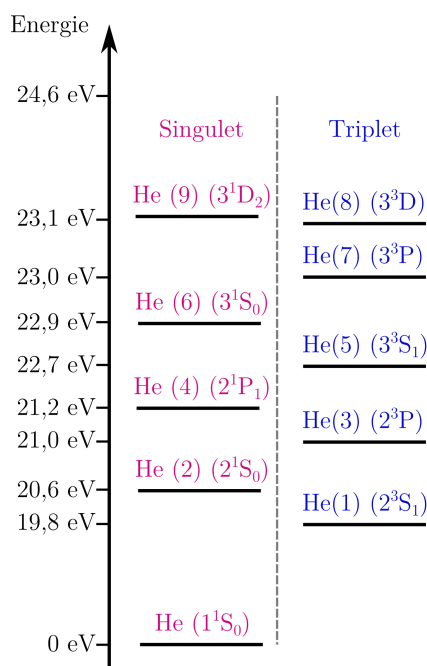


Figure 4-11 : Diagramme en énergie des premiers niveaux de l'hélium. L'axe des énergies n'est pas à l'échelle.

Numéro	Réaction	Coefficient
	Collision électrons - atomes	k
1	$e + \text{He} \rightarrow e + \text{He}(1)$	calculé par Boltzmann
2	$e + \text{He} \rightarrow e + \text{He}(2)$	calculé par Boltzmann
3	$e + \text{He} \rightarrow e + \text{He}(3)$	calculé par Boltzmann
4	$e + \text{He} \rightarrow e + \text{He}(4)$	calculé par Boltzmann
5	$e + \text{He} \rightarrow e + \text{He}(5)$	calculé par Boltzmann
6	$e + \text{He} \rightarrow e + \text{He}(6)$	calculé par Boltzmann
7	$e + \text{He} \rightarrow e + \text{He}(7)$	calculé par Boltzmann
8	$e + \text{He} \rightarrow e + \text{He}(8)$	calculé par Boltzmann
9	$e + \text{He} \rightarrow e + \text{He}(9)$	calculé par Boltzmann
10	$e + \text{He} \rightarrow e + \text{He}(10)$	calculé par Boltzmann
11	$e + \text{He} \rightarrow 2e + \text{He}^+$	calculé par Boltzmann
12	$e + \text{He}(1) \rightarrow e + \text{He}(2)$	calculé par Boltzmann
13	$e + \text{He}(1) \rightarrow e + \text{He}(3)$	calculé par Boltzmann
14	$e + \text{He}(1) \rightarrow e + \text{He}(4)$	calculé par Boltzmann
15	$e + \text{He}(1) \rightarrow e + \text{He}(5)$	calculé par Boltzmann
16	$e + \text{He}(1) \rightarrow e + \text{He}(6)$	calculé par Boltzmann
17	$e + \text{He}(1) \rightarrow e + \text{He}(7)$	calculé par Boltzmann
18	$e + \text{He}(1) \rightarrow e + \text{He}(8)$	calculé par Boltzmann
19	$e + \text{He}(1) \rightarrow e + \text{He}(9)$	calculé par Boltzmann
20	$e + \text{He}(1) \rightarrow e + \text{He}(10)$	calculé par Boltzmann
21	$e + \text{He}(1) \rightarrow 2e + \text{He}^+$	calculé par Boltzmann
22	$e + \text{He}(2) \rightarrow e + \text{He}(3)$	calculé par Boltzmann
23	$e + \text{He}(2) \rightarrow e + \text{He}(4)$	calculé par Boltzmann
24	$e + \text{He}(2) \rightarrow e + \text{He}(5)$	calculé par Boltzmann
25	$e + \text{He}(2) \rightarrow e + \text{He}(6)$	calculé par Boltzmann
26	$e + \text{He}(2) \rightarrow e + \text{He}(7)$	calculé par Boltzmann
27	$e + \text{He}(2) \rightarrow e + \text{He}(8)$	calculé par Boltzmann
28	$e + \text{He}(2) \rightarrow e + \text{He}(9)$	calculé par Boltzmann
29	$e + \text{He}(2) \rightarrow e + \text{He}(10)$	calculé par Boltzmann
30	$e + \text{He}(3) \rightarrow e + \text{He}(4)$	calculé par Boltzmann
31	$e + \text{He}(3) \rightarrow e + \text{He}(5)$	calculé par Boltzmann
32	$e + \text{He}(3) \rightarrow e + \text{He}(6)$	calculé par Boltzmann
33	$e + \text{He}(3) \rightarrow e + \text{He}(7)$	calculé par Boltzmann
34	$e + \text{He}(3) \rightarrow e + \text{He}(8)$	calculé par Boltzmann

35	$e + \text{He}(3) \rightarrow e + \text{He}(9)$	calculé par Boltzmann
36	$e + \text{He}(3) \rightarrow e + \text{He}(10)$	calculé par Boltzmann
37	$e + \text{He}(4) \rightarrow e + \text{He}(5)$	calculé par Boltzmann
38	$e + \text{He}(4) \rightarrow e + \text{He}(6)$	calculé par Boltzmann
39	$e + \text{He}(4) \rightarrow e + \text{He}(7)$	calculé par Boltzmann
40	$e + \text{He}(4) \rightarrow e + \text{He}(8)$	calculé par Boltzmann
41	$e + \text{He}(4) \rightarrow e + \text{He}(9)$	calculé par Boltzmann
42	$e + \text{He}(4) \rightarrow e + \text{He}(10)$	calculé par Boltzmann
43	$e + \text{He}(5) \rightarrow e + \text{He}(6)$	calculé par Boltzmann
44	$e + \text{He}(5) \rightarrow e + \text{He}(7)$	calculé par Boltzmann
45	$e + \text{He}(5) \rightarrow e + \text{He}(8)$	calculé par Boltzmann
46	$e + \text{He}(5) \rightarrow e + \text{He}(9)$	calculé par Boltzmann
47	$e + \text{He}(5) \rightarrow e + \text{He}(10)$	calculé par Boltzmann
48	$e + \text{He}(6) \rightarrow e + \text{He}(7)$	calculé par Boltzmann
49	$e + \text{He}(6) \rightarrow e + \text{He}(8)$	calculé par Boltzmann
50	$e + \text{He}(6) \rightarrow e + \text{He}(9)$	calculé par Boltzmann
51	$e + \text{He}(6) \rightarrow e + \text{He}(10)$	calculé par Boltzmann
52	$e + \text{He}(7) \rightarrow e + \text{He}(8)$	calculé par Boltzmann
53	$e + \text{He}(7) \rightarrow e + \text{He}(9)$	calculé par Boltzmann
54	$e + \text{He}(7) \rightarrow e + \text{He}(10)$	calculé par Boltzmann
55	$e + \text{He}(8) \rightarrow e + \text{He}(9)$	calculé par Boltzmann
56	$e + \text{He}(8) \rightarrow e + \text{He}(10)$	calculé par Boltzmann
57	$e + \text{He}(9) \rightarrow e + \text{He}(10)$	calculé par Boltzmann
58	$e + \text{N}_2 \rightarrow e + \text{N}_2^+ + e$	calculé par Boltzmann
59	$e + \text{O}_2 \rightarrow \text{Produits}$	calculé par Boltzmann
60	$e + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{Produits}$	calculé par Boltzmann

Formation des molécules		k	
61	$\text{He}^+ + 2\text{He} \rightarrow \text{He}_2^+ + \text{He}$	$1.00.10^{-43}$	
62	$\text{He}_2^+ + 2\text{He} \rightarrow \text{He}_3^+ + \text{He}$	$0.17.10^{-43}$	
63	$\text{He}_3^+ + \text{He} \rightarrow \text{He}_2^+ + 2\text{He}$	$0.15.10^{-15}$	
64	$\text{He}(1) + 2\text{He} \rightarrow \text{He}_2(1) + \text{He}$	$1.50.10^{-46}$	
65	$\text{He}(3) + 2\text{He} \rightarrow \text{He}_2(1) + \text{He}$	$1.60.10^{-44}$	
Recombinaisons		k₁	k₂
66	$\text{He}^+ + e + e \rightarrow \text{He}(1) + e$	$1.14.10^{-32}$	$4.00.10^{+00}$

67	$\text{He}^+ + e + e \rightarrow \text{He}(2) + e$	$3.60.10^{-33}$	$4.00.10^{+00}$
68	$\text{He}^+ + e + e \rightarrow \text{He}(3) + e$	$3.36.10^{-32}$	$4.00.10^{+00}$
69	$\text{He}^+ + e + e \rightarrow \text{He}(4) + e$	$1.14.10^{-32}$	$4.00.10^{+00}$
70	$\text{He}_2^+ + e \rightarrow \text{He}(2) + \text{He}$	$0.00.10^{+00}$	$5.00.10^{-01}$
71	$\text{He}_2^+ + e \rightarrow \text{He}(1) + \text{He}$	$3.00.10^{-14}$	$5.00.10^{-01}$
72	$\text{He}_2^+ + e + \text{He} \rightarrow \text{He}(3) + \text{He} + \text{He}$	$7.50.10^{-39}$	$2.00.10^{+00}$
73	$\text{He}_2^+ + e + \text{He} \rightarrow \text{He}(4) + \text{He} + \text{He}$	$2.50.10^{-39}$	$2.00.10^{+00}$
74	$\text{He}_2^+ + e + e \rightarrow \text{He}_2(1) + \text{He} + e$	$3.00.10^{-32}$	$4.00.10^{+00}$
75	$\text{He}_2^+ + e + e \rightarrow \text{He} + \text{He} + e$	$1.00.10^{-32}$	$4.00.10^{+00}$
76	$\text{He}_3^+ + e \rightarrow \text{He}(1) + \text{He} + \text{He}$	$0.70.10^{-12}$	$4.00.10^{+00}$

Cinétique des neutres**k**

77	$\text{He}(10) \rightarrow \text{He}(8) + h\nu$	$3.30.10^{+07}$
78	$\text{He}(10) + \text{He} \rightarrow \text{He}(9) + \text{He}$	$3.50.10^{-17}$
79	$\text{He}(9) \rightarrow \text{He}(7) + h\nu$	$3.30.10^{+07}$
80	$\text{He}(9) + \text{He} \rightarrow \text{He}(8) + \text{He}$	$3.50.10^{-17}$
81	$\text{He}(8) \rightarrow \text{He}(6) + h\nu$	$3.30.10^{+07}$
82	$\text{He}(8) + \text{He} \rightarrow \text{He}(7) + \text{He}$	$3.50.10^{-17}$
83	$\text{He}(7) \rightarrow \text{He}(5) + h\nu$	$3.30.10^{+07}$
84	$\text{He}(7) + \text{He} \rightarrow \text{He}(6) + \text{He}$	$3.50.10^{-17}$
85	$\text{He}(6) \rightarrow \text{He}(4) + h\nu$	$3.30.10^{+07}$
86	$\text{He}(6) + \text{He} \rightarrow \text{He}(5) + \text{He}$	$3.50.10^{-17}$
87	$\text{He}(5) \rightarrow \text{He}(3) + h\nu$	$3.30.10^{+07}$
88	$\text{He}(5) + \text{He} \rightarrow \text{He}(4) + \text{He}$	$3.50.10^{-17}$
89	$\text{He}(4) \rightarrow \text{He}(2) + h\nu$	$1.00.10^{+05}$
90	$\text{He}(4) + 2\text{He} \rightarrow \text{He} + \text{He} + \text{He}$	$1.80.10^{-43}$
91	$\text{He}(3) \rightarrow \text{He}(1) + h\nu$	$1.00.10^{+07}$
92	$\text{He}(2) + 2\text{He} \rightarrow \text{He} + \text{He} + \text{He}$	$1.30.10^{-45}$
93	$\text{He}(1) + \text{N}_2 \rightarrow \text{He} + \text{N}_2^+ + e$	$5.00.10^{-17}$
94	$\text{He}(1) + \text{O}_2 \rightarrow \text{Produits}$	$2.60.10^{-16}$
95	$\text{He}(1) + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{Produits}$	$8.44.10^{-16}$

Penning**k**

96	$2\text{He}(1) \rightarrow \text{He}^+ + e + \text{He}$	$2.25.10^{-16}$
97	$2\text{He}(1) \rightarrow \text{He}_2^+ + e$	$5.25.10^{-16}$
98	$2\text{He}(2) \rightarrow \text{He}^+ + e + \text{He}$	$2.25.10^{-16}$

99	$2\text{He}(2) \rightarrow \text{He}_2^+ + e$	$5.25 \cdot 10^{-16}$
100	$\text{He}(1) + \text{He}(2) \rightarrow \text{He}^+ + e + \text{He}$	$4.50 \cdot 10^{-16}$
101	$\text{He}(1) + \text{He}(2) \rightarrow \text{He}_2^+ + e$	$1.05 \cdot 10^{-15}$
102	$\text{He}_2(1) + \text{He}_2(1) \rightarrow \text{He}_2^+ + 2\text{He} + e$	$7.50 \cdot 10^{-17}$
103	$\text{He}_2(1) + \text{He}(1) \rightarrow \text{He}_2^+ + \text{He} + e$	$7.50 \cdot 10^{-17}$
104	$\text{He}_2(1) + \text{He}(2) \rightarrow \text{He}_2^+ + \text{He} + e$	$1.50 \cdot 10^{-16}$

Tableau 2: Réactions cinétiques (hors collisions super élastiques) prises en compte dans le modèle. Les valeurs des constantes de réaction binaire sont exprimées en unités MKSA ($m^{-3}s^{-1}$ pour les réactions binaires, $m^{-6}s^{-1}$ pour les réactions à trois corps, et s^{-1} pour les transitions radiatives). Pour les réactions de recombinaison, le coefficient de réaction est donné par $k=k_1 \cdot (T_g/T_e)^{k_2}$, où T_g et T_e sont respectivement la température du gaz et la température électronique, et où $k_1(i)$ et $k_2(i)$ sont les deux coefficients donnés dans le tableau pour chaque réaction de recombinaison.

Les Figure 4-12 (a) et (b) représentent l'évolution temporelle de la densité des atomes métastables $\text{He}(2^3\text{S})$ pour deux conditions de mélange gazeux. Sur la Figure 4-12 (a) l'abscisse est linéaire, ce qui permet une visualisation correcte de l'évolution en temps longs, temps déterminés par les processus de destruction, mais qui ne permet pas d'appréhender les mécanismes de production qui se déroulent avec des temps caractéristiques inférieurs à la microseconde. Afin de mettre en évidence la dynamique de production, l'évolution temporelle de la population de l'état $\text{He}(2^3\text{S})$ est représentée avec une échelle de temps logarithmique sur la Figure 4-12 (b).

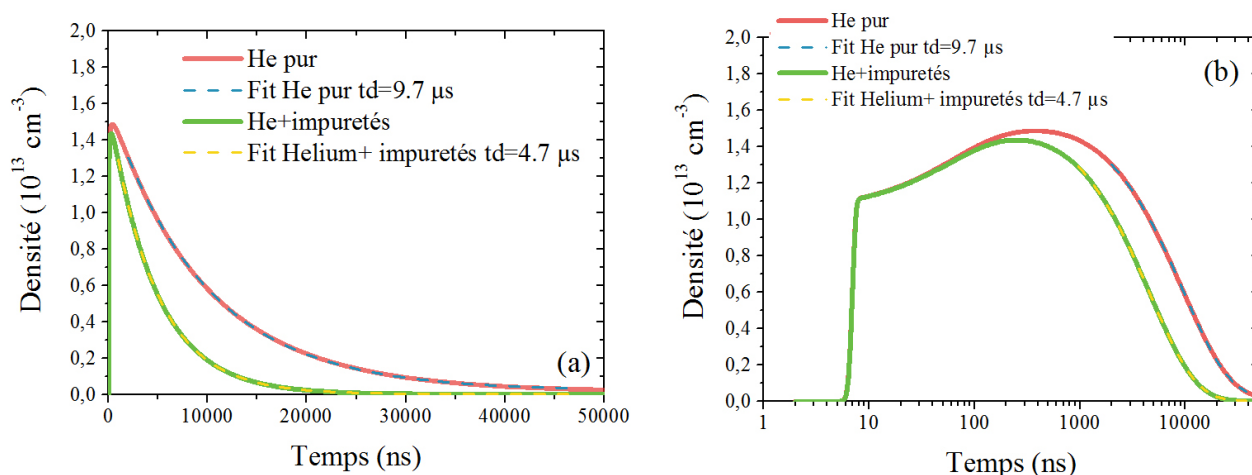


Figure 4-12 : Evolution temporelle de la densité de l'état $\text{He}(2^3\text{S})$ pour deux conditions de mélange gazeux : hélium pur ou hélium + impuretés. Les évolutions sont représentées soit avec une échelle de temps linéaire (a), soit avec une échelle de temps logarithmique (b).

La Figure 4-12 montre qu'en hélium pur, la décroissance de la densité de $\text{He}(2^3\text{S})$ suit une loi mono exponentielle dont la constante de temps est de $9,7 \mu\text{s}$ (Ce temps de décroissance prend en compte toutes les réactions présentées dans le Tableau 2. D'où le fait qu'elle soit plus faible que celle calculée en ne prenant en compte que la réaction à

trois corps entre l'hélium métastable et l'hélium fondamental). Cette constante de temps est beaucoup plus longue que celles mesurées (Figure 4-2 et Figure 4-3). Cette différence est due à la présence d'impuretés dans le flux d'hélium qui induit des réactions de désexcitation collisionnelle (quenching). L'hélium utilisé dans nos expériences est, sauf mention contraire, de qualité Alfagaz I pour laquelle, selon les spécifications d'Air Liquide, la teneur maximale en impuretés est de 3 ppm de vapeur d'eau, de 2 ppm d'oxygène, et de 0,5 ppm d'hydrocarbure. Les principales réactions de quenching de l'état métastable He (2^3S) par ces impuretés sont indiquées dans le tableau ci-dessous.

Réaction	Constante de réaction	Référence
$\text{He}^* + 2\text{He} \rightarrow \text{He}_2^* + \text{He}$	$1.5 \cdot 10^{-34} \text{ cm}^6/\text{s}$	[190]
$\text{He}^* + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2^+ + \text{He} + \text{e}$	$2,6 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$	[191]
$\text{He}^* + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{He} + \text{H}_2\text{O}^+ + \text{e}$	$6,6 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$	[191]
$\text{He}^* + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{He} + \text{OH}^+ + \text{H} + \text{e}$	$1,5 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$	[191]
$\text{He}^* + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{He} + \text{OH} + \text{H}^+ + \text{e}$	$2,6 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$	[191]
$\text{He}^* + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{HeH}^+ + \text{OH} + \text{e}$	$8,5 \cdot 10^{-12} \text{ cm}^3/\text{s}$	[191]
$\text{He}^* + \text{N}_2 \rightarrow \text{N}_2^+ + \text{He} + \text{e}$	$5 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$	[192]
$\text{He}^* + \text{CH}_4 \rightarrow \text{Produits}$	$6 \cdot 10^{-13} \text{ cm}^3/\text{s}$	[193]
$\text{He}^* + \text{C}_2\text{H}_2 \rightarrow \text{Produits}$	$1,01 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}$	[193]
$\text{He}^* + \text{C}_2\text{H}_4 \rightarrow \text{Produits}$	$2,9 \cdot 10^{-12} \text{ cm}^3/\text{s}$	[193]
$\text{He}^* + \text{cyclo-C}_3\text{H}_6 \rightarrow \text{Produits}$	$1,7 \cdot 10^{-12} \text{ cm}^3/\text{s}$	[193]

Tableau 3 : Liste des réactions susceptibles de détruire les atomes métastables d'hélium.

Ce tableau montre que la probabilité de désexcitation par les hydrocarbures est inférieure de plus d'un ordre de grandeur à celle induite par la vapeur d'eau, l'oxygène ou l'azote. En prenant en compte les teneurs maximales en impuretés contenues dans les bouteilles, on obtient des temps caractéristiques de décroissance de 5,9 μs , valeur supérieure à celles mesurées. Toutes les expériences effectuées ont montré que, quelque soit le débit de gaz et la tension appliquée, il faut impérativement laisser le gaz s'écouler dans les canalisations plusieurs dizaines de minutes avant d'obtenir des valeurs stables des temps de décroissance et de l'absorbance, et, ce, qu'elles que soient les conditions de pression et d'hygrométrie de l'environnement d'air dans lequel se propage le flux d'hélium. Il est donc légitime de supposer que le flux de gaz induit, dans les canalisations, une désorption d'impuretés. Cette hypothèse est confortée par le fait que les résultats sont très sensibles à la nature du matériau constitutif des canalisations. Seule l'utilisation des canalisations en acier inoxydable depuis le manomètre détendeur jusqu'à l'électrode haute tension permet l'obtention de résultats reproductibles. Evidemment la nature exacte de ces impuretés n'est pas connue, mais

il est vraisemblable que la pollution par la vapeur d'eau et la désorption de l'oxygène par les canalisations jouent un rôle important. Dans le modèle, nous avons donc simplement ajusté la concentration en vapeur d'eau pour obtenir une valeur de la constante de temps de décroissance de la population de He(2^3S) égale à celle, 4.7 μs , qui représente la valeur moyenne mesurée. Exprimée en ppm, la composition du gaz retenue pour la suite de cette analyse est la suivante: He/N₂/O₂/H₂O=999991/2/2/5.

La Figure 4-12 (b) montre que, contrairement à la décroissance, la production des états métastables He(2^3S) n'est que peu affectée par la présence des impuretés, qui n'induisent une diminution de la densité maximale de He(2^3S) que de 3 %. L'effet le plus notable est le décalage du temps auquel est atteint ce maximum de densité : 387 ns dans le cas de l'hélium pur, mais seulement 235 ns dans le mélange avec impuretés. Cette valeur est voisine de celles obtenues expérimentalement au centre du jet. La Figure 4-12 (b) fait apparaître une cinétique de production assez complexe, caractérisée par une première phase de production très rapide au cours de laquelle la densité des métastables He(2^3S) passe d'une valeur nulle à une valeur de $1,1 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ en 3 ns, suivie d'une croissance beaucoup plus lente durant laquelle la densité passe de $1,1 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ à $1,5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ en 230 ns. La comparaison de la Figure 4-3 et de la Figure 4-12 montre que les prédictions du modèle sont en très bon accord qualitatif avec les observations expérimentales.

Afin d'identifier les processus responsables de cette dynamique nous devons analyser l'évolution temporelle des divers termes de production et de destruction de l'état He(2^3S). L'évolution temporelle des termes dominant la cinétique est représentée sur la Figure 4-13 dans laquelle les termes de production correspondent aux courbes en traits pleins, et ceux de destruction aux courbes en tirets. Les numéros indiqués dans le cartouche correspondent aux numéros des réactions répertoriées dans le Tableau 2.

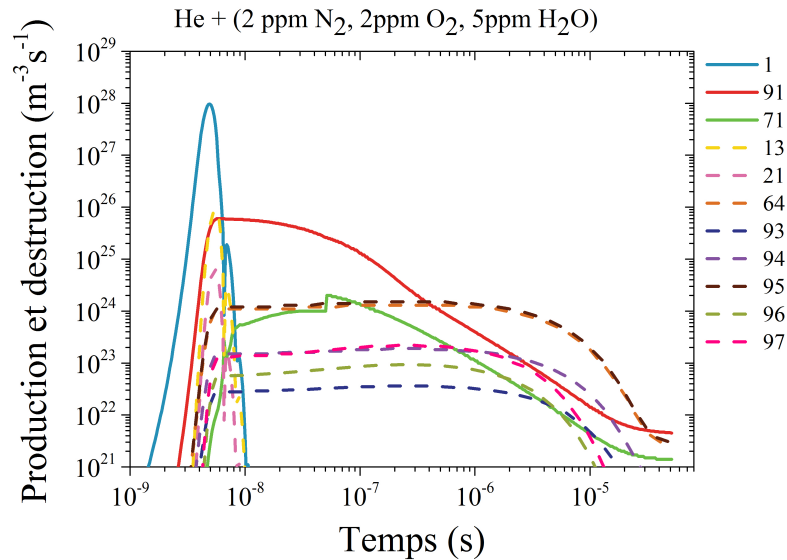


Figure 4-13 : Evolution temporelle des principaux termes de production et de destruction de l'état $\text{He}(2^3\text{S})$. Les numéros du cartouche correspondent aux numéros des réactions rassemblées dans le Tableau 2. Composition du gaz : Hélium + 2 ppm N_2 + 2 ppm O_2 + 5 ppm H_2O .

La Figure 4-13 montre que l'excitation directe de l'état métastable $\text{He}(2^3\text{S})$ par collision électronique est le processus dominant pendant les premières nanosecondes (réaction n°1). Mais dès la fin de l'impulsion de courant, la production de cet état est assurée par la cascade radiative à partir de l'état $\text{He}(2^3\text{P})$ (réaction n°91) qui est connectés à l'état $\text{He}(2^3\text{S})$ par la transition radiative à 1083 nm (cf Figure 2-22). Cette figure montre également que la production de l'état $\text{He}(2^3\text{S})$ par la recombinaison des ions He^+ et He_2^+ est très faible (réaction n°71). Pendant plus de 200 ns le taux de production par la cascade radiative est supérieur à la somme des taux de destruction. Pour les conditions du mélange étudié, le terme de quenching dû à la vapeur d'eau est sensiblement égal à celui correspondant à la destruction de $\text{He}(2^3\text{S})$ par collision à trois corps, réaction qui conduit à la formation des molécules excimères. L'importance relative des principaux mécanismes de production peut être estimée en comparant les prédictions du modèle complet à celles des modèles dans lesquels sont supprimés la production (ou la destruction) par les réactions que l'on veut tester. Les résultats d'une telle comparaison sont représentés sur la Figure 4-14, qui montre que la suppression des recombinaisons des ions He^+ et He_2^+ , réactions 66-76, n'induit qu'une faible modification de la densité des états métastables $\text{He}(2^3\text{S})$, qui ne chute que de 5% avec un léger déplacement temporel du maximum de densité qui passe de 235 ns à 165 ns. Par contre, le changement est drastique lorsque l'on supprime le peuplement de l'état $\text{He}(2^3\text{S})$ par la cascade radiative à partir de l'état $\text{He}(2^3\text{P})$ (réaction 91). Le maximum de densité est alors atteint immédiatement après la fin de l'impulsion de courant ($t=8$ ns), et la densité maximale est réduite de 22 %.

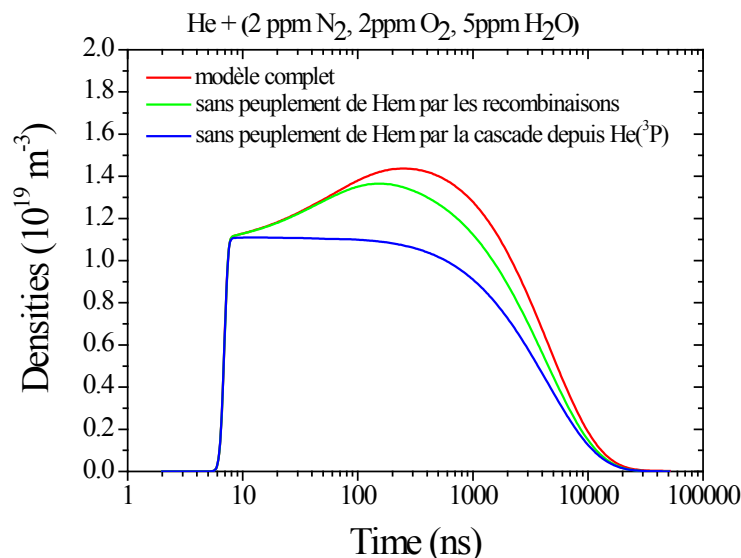


Figure 4-14 : Comparaison des évolutions de la densité de l'état $He(2^3S)$ prédites par : le modèle complet (courbe rouge), un modèle sans le peuplement par la recombinaison (courbe verte), et un modèle sans la cascade radiative (courbe bleu)

Ces résultats montrent sans ambiguïté que les temps de montée mesurés (Figure 4-3) sur les signaux d'absorption sont déterminés par la cascade radiative couplant les états $He(2^3S)$ et $He(2^3P)$. Mais cette cascade ne contribue que pour 22% de la production totale des états $He(2^3S)$, l'essentiel de la production est due à l'excitation directe par collision électronique. Cette excitation se produit en moins de 3 ns, et correspond dans l'expérience au passage de l'onde d'ionisation dans le volume sondé par l'absorption laser. Cette étude nous a également permis de mettre en évidence les problèmes liés à la présence d'impuretés dans le gaz plasmagène. L'ajout d'impuretés (de seulement quelques ppm) contenues dans les bouteilles et provenant du dégazage des canalisations alimentant le jet, suffit à modifier de manière très importante l'évolution temporelle de la densité des états métastables $He(2^3S)$ mesurables par absorption laser. Il semble que ce point ait été largement sous-estimé dans les diverses expériences précédentes [79], [145], [164], [167] de mesures des densités de métastables d'hélium. Ceci est particulièrement vrai pour les résultats publiés par Urabe et al [79] qui mesurent des temps caractéristiques de décroissance inférieurs à 200 ns correspondant à des taux d'impuretés supérieurs à 2000 ppm. De même Niermann et al [164], [167] mesurent des temps de décroissance compris entre 0,3 à 6 μ s qui dépendent du débit de gaz. Il n'est pas facile de savoir si dans leur expérience, ces variations sont dues au dégazage des canalisations ou de la décharge, à de la rétrodiffusion de l'air ambiant dans le canal d'hélium, ou à un entraînement d'impuretés par un effet venturi au niveau d'éventuelles micro-fuites. Le temps de décroissance de la densité des atomes métastables d'hélium est ainsi un très bon indicateur du taux d'impuretés présent dans le gaz. Bien qu'il soit illusoire de vouloir réduire ce taux à zéro, le contrôle de la valeur

de la constante de temps de décroissance permet de travailler dans des conditions fiables et reproductibles. Tous les résultats présentés dans ce chapitre ont été obtenus pour des conditions donnant une constante de temps de décroissance du signal d'absorbance de $4,7 \pm 0,5 \mu\text{s}$ au centre du jet et à 1 mm de l'extrémité du diélectrique.

4.3.3 Mesure de la densité d'atomes métastable d'hélium

Dans le paragraphe 4.3.1, nous nous sommes intéressés aux signaux d'absorbances. Comme nous l'avons vu au chapitre 2, à partir de ces signaux, il est possible de connaître la densité d'atomes métastables d'hélium. Dans un premier temps, nous avons étudié l'évolution de la densité correspondant au maximum de l'absorbance selon « z » et « y » en fonction de la tension appliquée et du débit de gaz. Puis dans un second temps, nous sommes intéressés à l'évolution spatio-temporelle de la densité des atomes métastables d'hélium pour deux conditions de tensions.

Nous nous sommes tout d'abord intéressés à l'évolution de la densité moyenne selon une ligne de mire au centre du jet, c'est-à-dire pour $y = 0 \text{ mm}$, selon la direction axiale (ie, « z »). Pour cela nous avons tracé sur la Figure 4-15, l'évolution du maximum d'absorbance en fonction de « z ». Ces résultats nous indiquent que cette dernière augmente de 0 à 10 mm, puis chute rapidement de 10 à 12 mm. Cette chute est en phase avec celle du temps caractéristique de décroissance observée à la Figure 4-4.

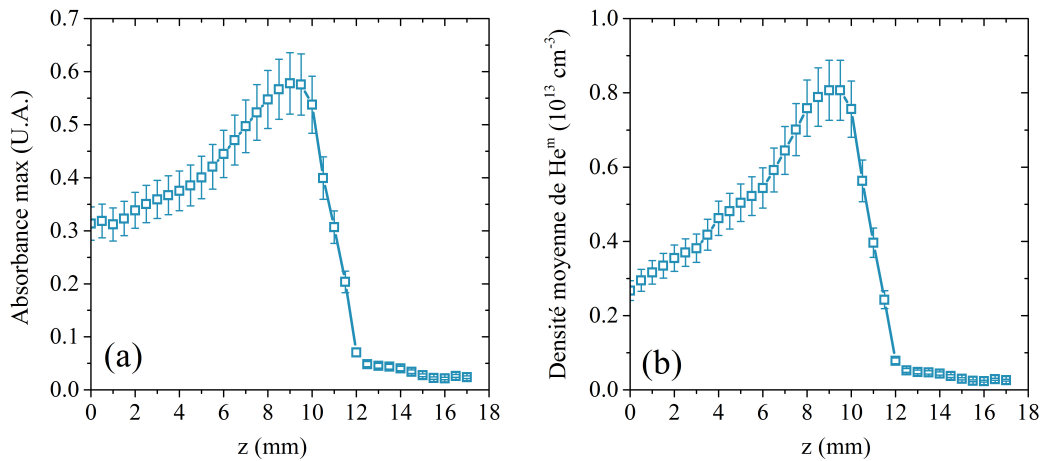


Figure 4-15: (a) Absorbance maximale et (b) densité moyenne des atomes métastables d'hélium selon une ligne de mire au centre du jet selon l'axe. Conditions : 4,5 slm et 5 kV.

A partir des résultats de la Figure 4-15 (a), et de l'équation (30) nous avons déduit la densité moyenne d'atomes métastables d'hélium selon une ligne de visée. Cette étape nécessite de connaître la longueur d'absorption, l . Cette longueur a été mesurée à partir des signaux d'absorbance : ces derniers nous ont permis de connaître la zone pour laquelle un signal d'absorbance est mesurable et ainsi d'en déduire la longueur d'absorption, l , selon « z ». A partir de ces résultats, nous avons calculé la densité

moyenne d'atomes métastables d'hélium correspondant au maximum d'absorption pour $y = 0$ mm. Ces résultats sont reportés Figure 4-15 (b). Ils montrent que la densité d'atomes métastables moyenne est comprise entre 1.10^{12} et 9.10^{12} cm^{-3} . Ces valeurs largement supérieures à celles mesurées par Urabe et al [79]. Cette différence est probablement due au taux d'impuretés au sein du gaz. Comme nous l'avons fait remarquer, leur taux d'impuretés est largement supérieur au nôtre, ce qui a probablement comme conséquence d'annihiler une partie de la création des atomes métastables et d'augmenter les réactions de quenching et, ainsi de réduire la valeur absolue de la densité mesurée. Par ailleurs, notons que la densité moyenne (Figure 4-15 (b)) possède un profil similaire à l'absorbance (Figure 4-15 (a)), mis à part une faible différence au niveau de l'augmentation du signal selon «z». Dans le cas de l'absorbance, il y a une augmentation de $z = 0$ mm à 10 mm de 100%, alors qu'elle est de 170% pour la densité. Ceci est dû au rétrécissement de la longueur d'absorption selon «z». Par contre, cette augmentation n'est pas observée par Urabe et al [79]. Dans leur cas, la densité d'atomes métastable d'hélium est maximale à la sortie du tube diélectrique et diminue selon «z». La différence entre les mesures d'Urabe et les nôtres peut s'expliquer d'une part par la différence au niveau du taux d'impuretés du gaz et, d'autre part, par le fait que les géométries de décharge ne sont pas les mêmes. Par ailleurs, Naidis [107], [111] et Breden et al [102], [103] prédisent par le biais de leur modèle numérique que la densité des atomes métastables d'hélium est comprise entre 1.10^{12} cm^{-3} et 1.10^{14} cm^{-3} . Nos résultats confirment donc ces valeurs. Par contre, la distribution de cette espèce le long de l'axe (*ie*, «z») n'est pas en accord avec nos résultats expérimentaux. Ces modèles prévoient que la densité est maximale à la sortie du diélectrique et qu'elle diminue ensuite selon «z». Or dans notre cas, comme le montre la Figure 4-15 (b), la densité croît jusqu'à $z = 10$ mm, où elle atteint sa valeur maximale, puis chute ensuite rapidement sur 2 mm.

Par ailleurs, le modèle de Boeuf et al [104] prédit que la puissance est constante spatialement. Dans notre cas, la durée de l'impulsion de tension est finie, ce qui nous permet de supposer que l'énergie dissipée par la décharge est constante le long de l'axe du jet, et ainsi que l'énergie au sein de la tête du streamer est invariante au cours de sa propagation. D'après cette hypothèse et la mesure du diamètre du jet selon «z» obtenue à partir des diagnostics d'imagerie, il est possible d'évaluer la densité d'énergie au sein de la tête du streamer au cours de sa propagation. Comme nous ne connaissons pas la valeur exacte de l'énergie dissipée dans la décharge, nous avons tracé, Figure 4-16, la densité d'énergie normalisée par rapport au maximum. Cette dernière est comparée à la densité d'atomes métastables d'hélium moyenné le long d'une ligne de visée, dont les valeurs ont également été normalisées par rapport au maximum. Cette comparaison montre qu'il y a une bonne corrélation entre la densité d'énergie et celle des atomes métastables. Ces deux paramètres augmentent de manière identique de 0 à 9 mm. L'augmentation de la densité des atomes métastables selon «z» dépendrait donc de la densité d'énergie au sein du streamer.

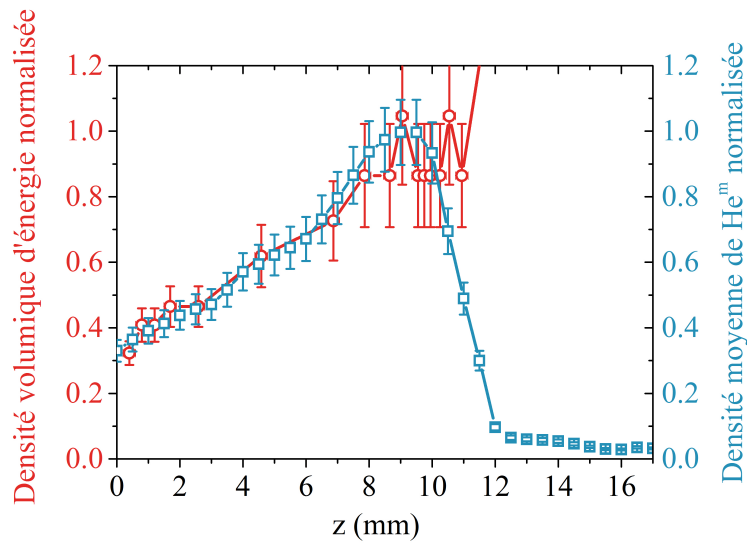


Figure 4-16 : Comparaison de l'évolution de la densité volumique d'énergie (rouge) avec la densité moyenne d'atomes métastables d'hélium au centre, $y = 0$ mm, le long de la direction « z » (bleu).

Les résultats de la Figure 4-15 (b), montrent qu'à partir d'une valeur supérieure à 10 mm, la densité moyenne chute brutalement. En effet, le temps caractéristique de décroissance diminue également à partir de cette distance (Figure 4-4), révélant une augmentation du taux d'impuretés au sein du gaz. Dans de telles conditions, les atomes métastables sont rapidement détruits et ne sont pas mesurables. Ce qui explique pourquoi, la densité moyenne d'atomes métastable chute promptement à partir de 10 mm.

Par la suite, nous avons également réalisé ces mesures pour des tensions appliquées et des débits différents. La Figure 4-17 (a) présente la densité moyenne des atomes métastables d'hélium au centre du jet (*ie*, $y = 0$ mm) selon « z » pour différentes tensions appliquées, tandis que la Figure 4-17 (b) présente cette densité pour différents débits d'hélium. Pour toutes les conditions présentées, la densité augmente jusqu'à une valeur de « z » qui dépend des conditions de tension et de débit, puis chute rapidement sur quelques millimètres, excepté pour la condition à 2 slm et 5 kV (courbe bleue de la Figure 4-17 (b)), où la densité moyenne diminue dès la sortie du tube diélectrique.

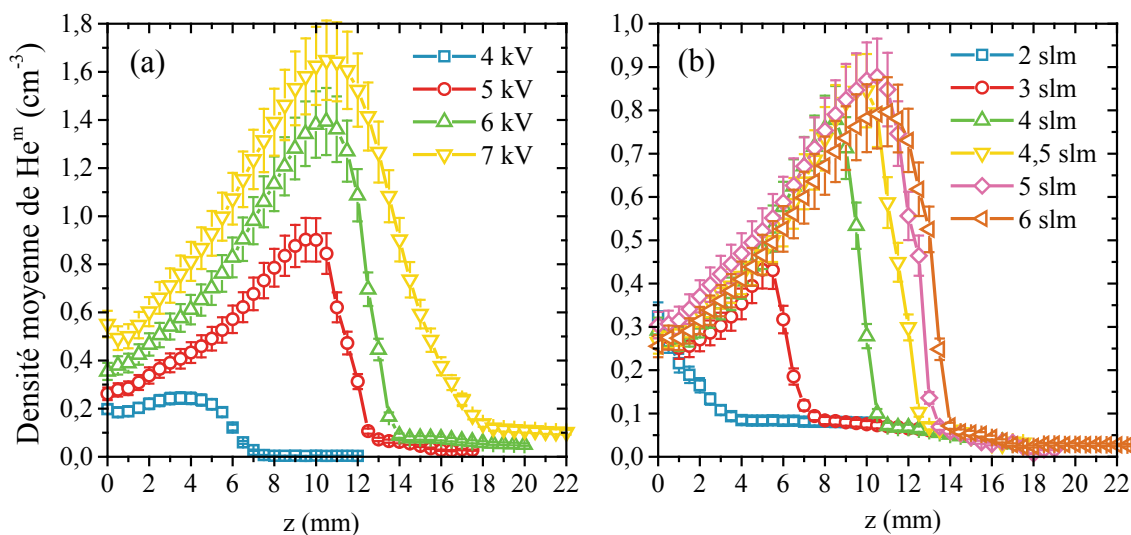


Figure 4-17: Distribution axiale de la densité moyenne d'atome métastables au centre du jet pour un débit de 4,5 slm et différentes tensions appliquées (a) et pour une tension appliquée de 5 kV et différents débits d'hélium (b).

La zone, où les atomes métastables d'hélium sont mesurés, voit sa longueur varier en fonction de la tension appliquée et du débit d'hélium. Cette longueur augmente selon ces deux paramètres. Pour une variation de 4 à 7 kV, la longueur de cette zone croît d'un facteur 3, tandis qu'elle double pour une variation de 3 à 6 slm. D'autre part, la valeur de la densité moyenne augmente avec la tension appliquée : la variation d'un facteur 2 de la tension augmente d'un facteur 10 la densité. Tandis que le débit d'hélium a peu d'influence sur la valeur de cette densité.

L'évolution de la densité moyenne d'atomes métastables selon une ligne de visée nous a permis de visualiser l'évolution globale des atomes métastables le long de la propagation du plasma. Dans la suite, afin de connaître la distribution radiale de cette espèce, nous avons effectué une inversion d'Abel, ce qui est possible dans notre cas car le système possède une symétrie cylindrique. Pour cela le plasma a été sondé par le laser selon les directions « y » et « z » (cf Figure 2-25), puis les signaux selon « y » ont été inversés. Le détail de cette méthode est présenté au paragraphe 2.2.4.7. Par contre, comme il l'a été dit au chapitre 2, la plupart des résultats présentés dans ce chapitre ont été inversés selon la méthode n°1, qui est une méthode basée sur un algorithme. Les valeurs de densités obtenues par cette méthode ne sont correctes qu'à un facteur 2 près. Pour cette raison, afin que les résultats soient lisibles, les barres d'erreur n'ont pas été tracées. Par contre, pour la condition : 5 kV et 4,5 slm, présentée Figure 4-18, les données ont été inversées selon les deux méthodes présentées au chapitre 2 et, ont donné des résultats équivalents, ce qui nous a permis d'évaluer l'erreur à 10 %. La méthode n°2 étant relativement longue à appliquer, nous n'avons pas pu l'utiliser pour vérifier les résultats obtenus par la méthode n°1 pour toutes les conditions présentées dans ce chapitre.

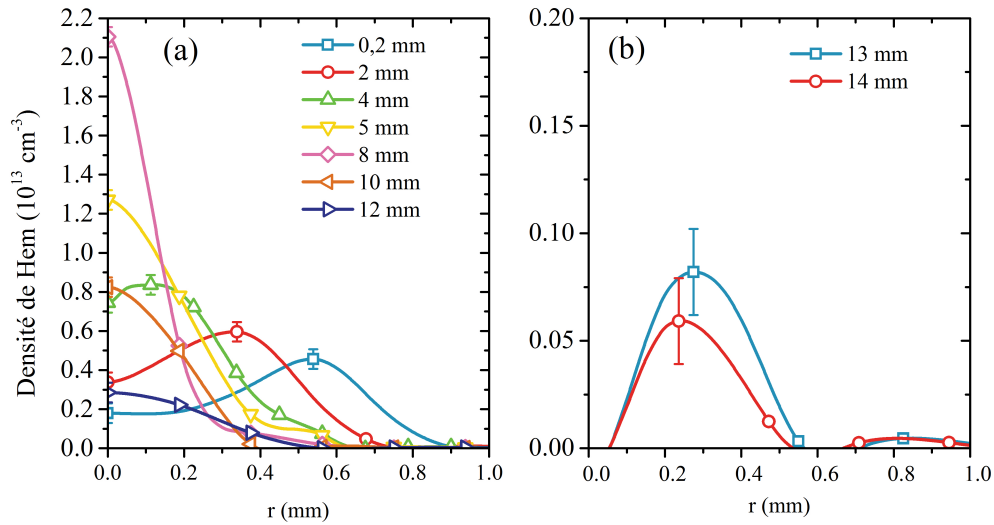


Figure 4-18: Densités radiales des atomes métastables d'hélium pour différentes positions axiales, pour 4,5 slm d'hélium et une tension appliquée de 5 kV. (a) Distribution radiale pour différentes positions axiales depuis l'extrémité du tube jusqu'à 12 mm. (b) Densité radiale pour $z = 13$ et 14 mm.

A la sortie du tube diélectrique, à $z = 0,2$ mm (courbe « carrés bleus »), la distribution des atomes métastables d'hélium suit un profil annulaire. Le rayon de cet anneau diminue selon la direction axiale et finit par complètement se refermer à $z = 5$ mm (courbe « triangles bas jaune »). Ceci représente un résultat nouveau, car Urabe et al [79], qui ont, eux aussi mesuré la densité d'atomes métastables d'hélium localement, n'ont pas observé la fermeture de cet anneau. Leurs conditions expérimentales ne leur ont probablement pas permis de sonder le plasma pour des « z » suffisamment élevés dû à un taux d'impuretés important.

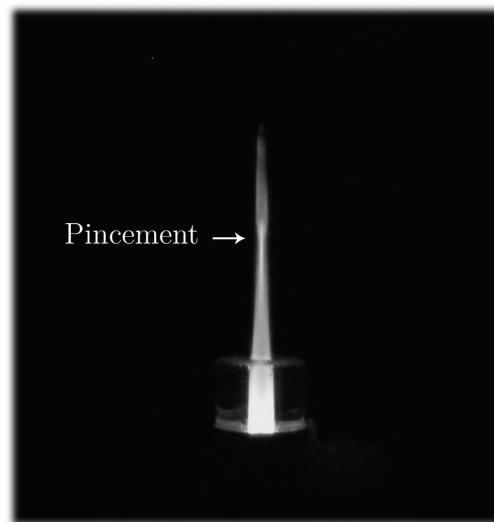


Figure 4-19 : Photographie en noir et blanc du jet de plasma pour une tension de 5 kV et 4,5 slm.

D'autre part, ces résultats confirment également les modèles numériques de Naidis [194] et de Breden et al [102], qui ont annoncé que la distribution est annulaire en sortie de décharge et se referme selon l'axe du jet. De plus, comme observé précédemment sur la Figure 4-15 et la Figure 4-17, la densité selon l'axe augmente : de $z = 0,2$ mm à 8 mm, il y a une augmentation de 400%. D'autre part, à partir de 13 mm, la distribution de la densité change brutalement et devient de nouveau annulaire. Notons que cette nouvelle apparition de la forme annulaire n'est pas un artéfact dû au processus d'inversion d'Abel. Les deux méthodes décrites au chapitre 2 donnent des résultats identiques. Au niveau de cette zone de transition, où la distribution passe de circulaire à annulaire, le plasma subit un pincement. Comme le montre la photographie de la Figure 4-19, le diamètre du plasma est relativement fin et s'élargit ensuite rapidement. Ce changement de forme est probablement lié au profil de la densité des atomes métastables d'hélium pour $z = 13$ et 14 mm. Nous reviendrons plus en détail sur cette structure lors de la mesure de la distribution spatiotemporelle de cette espèce.

Afin de savoir si une variation de la tension appliquée et du débit de gaz affecte cette distribution, nous avons mesuré la densité locale des atomes métastables d'hélium pour différentes conditions de tension et de débit. La Figure 4-20 présente ces résultats selon la direction radiale pour différentes positions selon z et pour quatre tensions appliquées : 4, 5, 6 et 7 kV. A chaque tension, la densité a été mesurée pour six positions axiales différentes : une première à la sortie du tube diélectrique ($z = 200$ μ m, carrés bleus), une autre un peu avant la limite de détection (triangles «gauche» oranges : « max ») et quatre autres entre ces deux valeurs, prises à $\frac{1}{4}$ (ronds rouges), $\frac{1}{3}$ (triangles «haut» verts), $\frac{1}{2}$ (triangles «bas» jaunes) et $\frac{3}{4}$ (losanges roses) de la position du dernier point ($z =$ « max »).

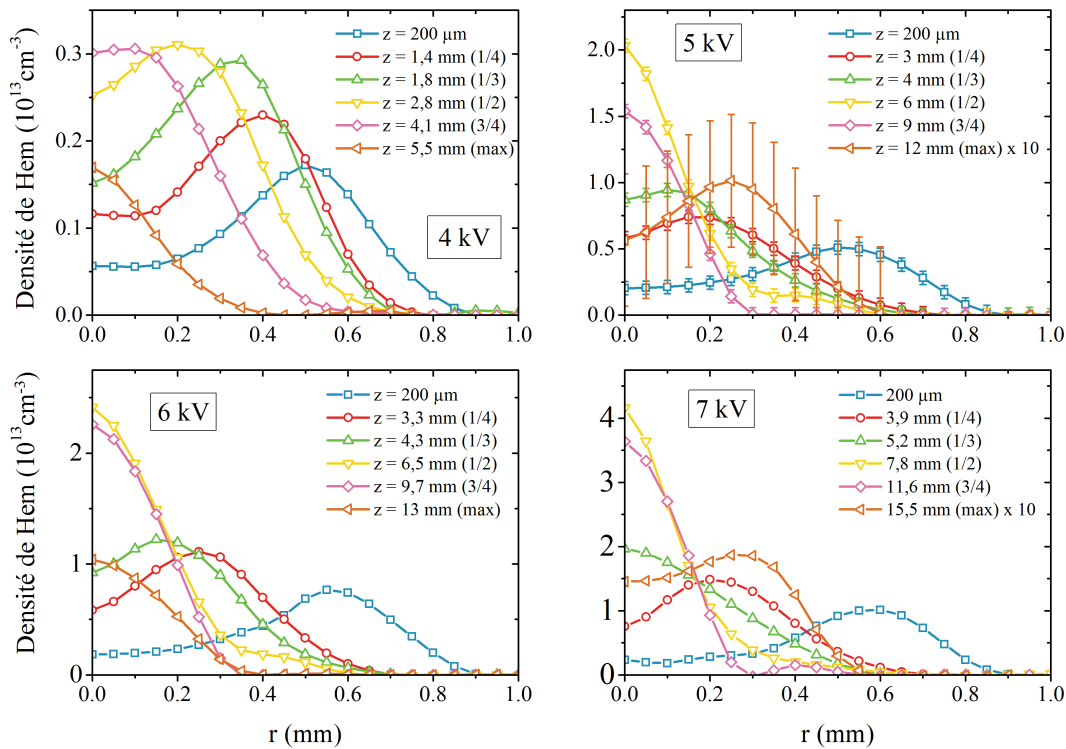


Figure 4-20: Distribution radiale de la densité d'atomes métastables d'hélium pour différentes tensions appliquées : 4, 5, 6 et 7 kV. Débit : 4,5 slm. Pour une meilleure clarté, les signaux « $z = \text{max}$ », courbes orange, pour 5 et 7 kV ont été multipliés par 10.

Tout d'abord, pour toutes les tensions, la distribution est annulaire en sortie de décharge, puis l'anneau se referme selon la direction radiale et finit par se refermer complètement. D'autre part, comme observé sur la Figure 4-17 (a), la variation de la tension induit une augmentation importante de la densité locale. A « $z = \frac{1}{2} \text{ max}$ », la densité est maximale pour les quatre tensions, et son amplitude varie d'un facteur 10 pour une variation de tension de 4 à 7 kV. D'autre part, notons que nous observons également pour la condition à 7 kV, l'apparition d'un profil annulaire au « $z \text{ max}$ » (triangles «gauche» orange). Sur la Figure 4-20, l'apparition de cet anneau n'est pas visible pour 4 et 6 kV. Ceci est dû à l'estimation du « $z \text{ max}$ ». Comme nous l'avons observé sur la Figure 4-18, la distribution de la densité change brutalement et l'estimation de la position axiale la plus lointaine, à partir de laquelle les atomes métastables ne sont plus mesurables, est difficile à évaluer. Une variation de moins d'un millimètre peut avoir comme conséquence d'être, soit dans la zone où la densité a un profil circulaire, soit dans la zone où la densité a un profil annulaire.

La Figure 4-21 présente, quant à elle, les distributions radiales pour différents débits allant de 2 à 6 slm. La variation du débit n'a pas d'influence sur la forme générale. Cette dernière est annulaire en sortie du tube diélectrique, puis se referme le long de l'axe du jet. De plus ces résultats confirment que le débit n'a pas une grande influence sur la valeur absolue de la densité des atomes métastables d'hélium. Pour chaque débit,

le maximum de densité est également obtenu à la moitié de la zone où les atomes métastables sont mesurables (courbes orange) et sa valeur maximale est comprise entre 1.10^{13} et 2.10^{13} cm^{-3} . De plus, il est également observé pour 2, 3 et 4 slm la reformation d'un anneau à la position « max » (triangles orange « gauches »).

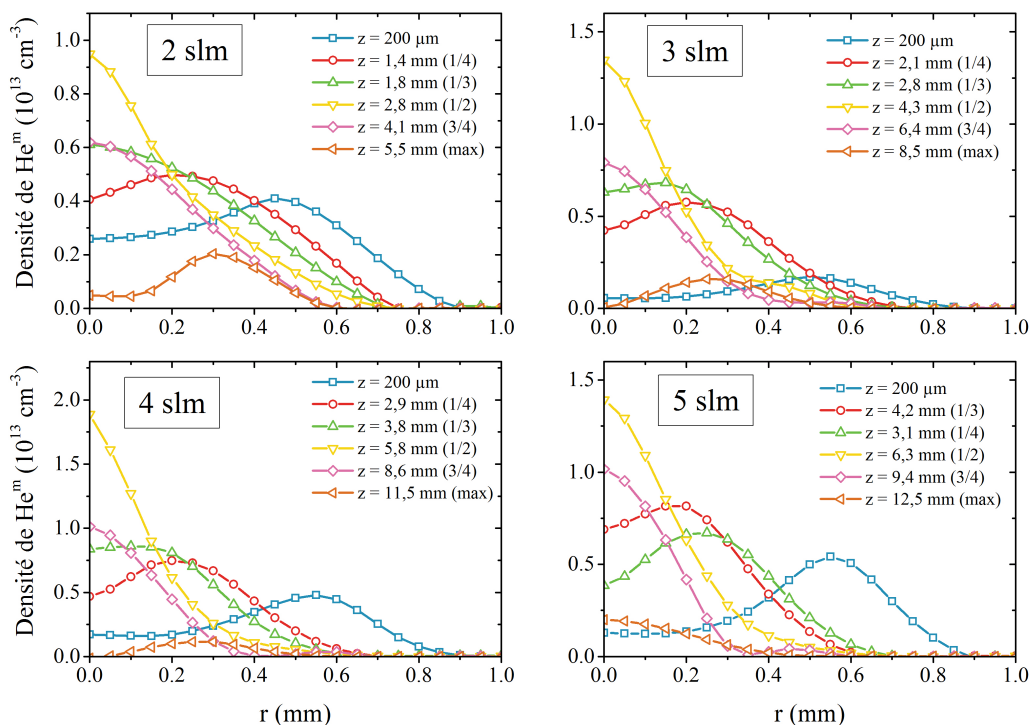


Figure 4-21: Distribution radiale de la densité de He^m pour différentes positions selon « z » à différents débits : 2, 3, 4 et 5 slm, et pour une tension de 5 kV.

Afin d'avoir une approche plus fine de la distribution des atomes métastables d'hélium, nous avons également mesuré l'évolution temporelle de cette distribution. Pour cela nous n'avons pas seulement calculé la densité correspondant au maximum de l'absorbance, mais pour différents temps. Ces résultats sont présentés Figure 4-22 pour un débit de 4,5 slm et pour deux tensions appliquées différentes : 4 et 6 kV.

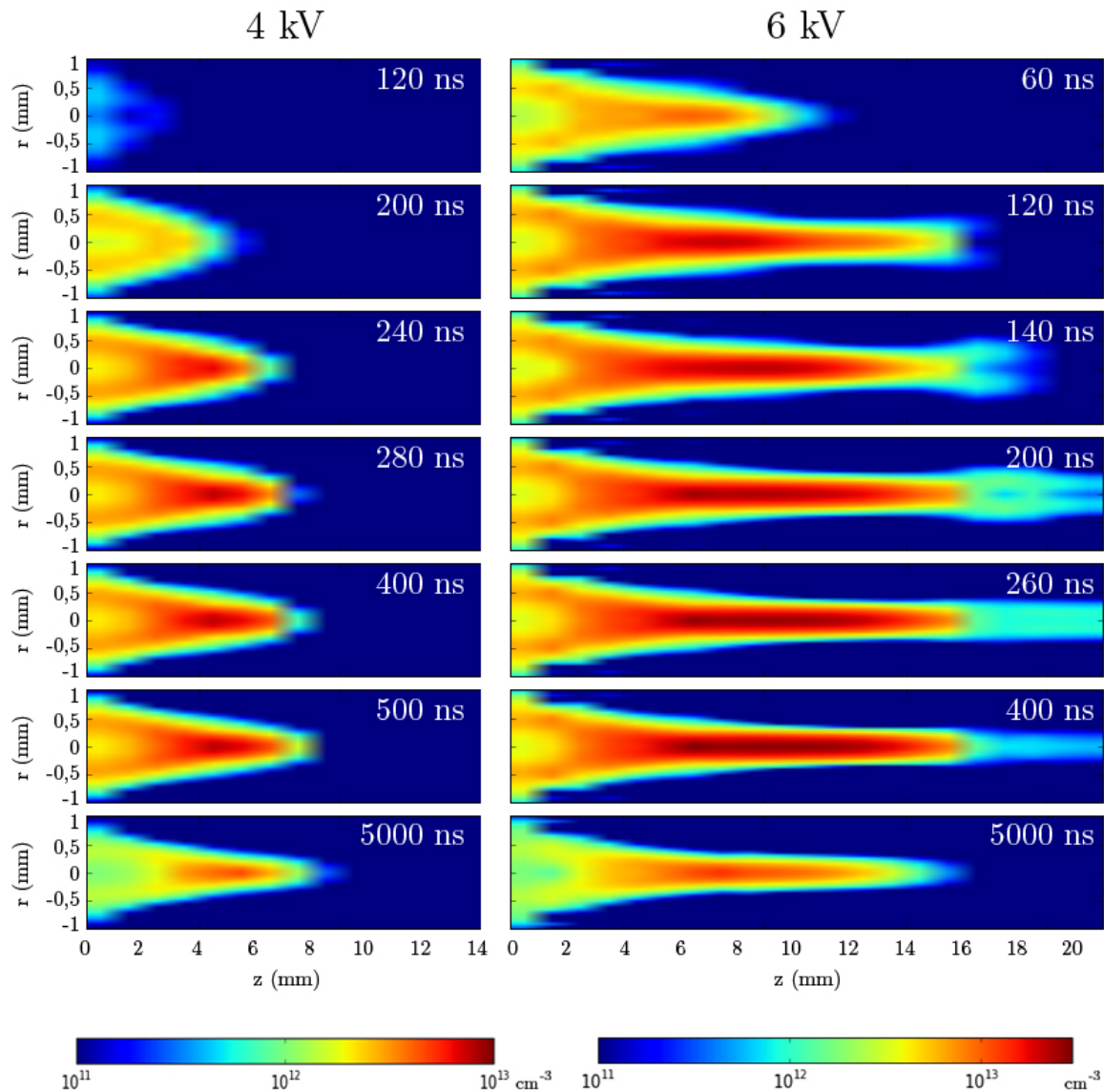


Figure 4-22 : Distribution spatio-temporelle de la densité d'atomes métastables d'hélium pour une tension de 4 et de 6 kV et un débit de 4,5 slm. L'origine des temps correspond au front de montée du signal de synchronisation, et l'échelle de couleur représente la densité selon une échelle logarithmique.

Pour les deux conditions de tension appliquée, on aperçoit pour les premiers instants (120 ns pour 4kV et 60 ns pour 6 kV) la formation d'une distribution annulaire à la sortie du diélectrique (*ie*, «z» voisin de 0 mm). Puis au cours du temps on observe la propagation du plasma : les atomes métastables d'hélium sont produits de plus en plus loin. Pour des « z » voisins de 0 mm, c'est-à-dire proche du tube, la distribution est annulaire, puis selon « z » cet anneau se resserre et finit par être totalement refermé. Au cours du temps la valeur de la densité évolue, mais la forme de la distribution n'est pas modifiée et reste annulaire à la sortie du tube et circulaire pour des « z » élevés. D'autre part, pour 6 kV, au temps $t = 120$ ns, pour $z > 16$ mm, la distribution des atomes métastables forme de nouveau une structure annulaire, comme nous l'avons

déjà fait remarquer dans la discussion de la Figure 4-20 et Figure 4-21. Grâce à la distribution spatiotemporelle, nous pouvons suivre l'évolution de ce second anneau au cours du temps. De 120 ns à 260 ns, cet anneau est de plus en plus diffus et fini par complètement se refermer à 260 ns. La structure de ce second anneau n'est pas donc pas stationnaire, à la différence de celui observé à la sortie de la décharge.

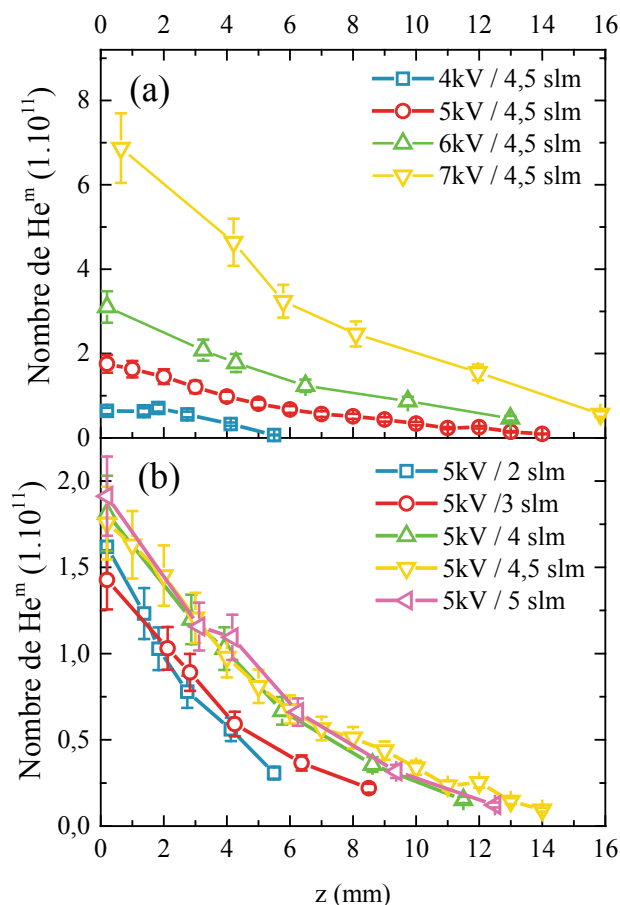


Figure 4-23 : Nombre d'atomes métastables créés en fonction de « z » pour différentes conditions de tension (a) et de débit (b).

Par ailleurs, nous avons vu au paragraphe 4.3.1 que le temps caractéristique de production des atomes métastables est inférieur de deux ordres de grandeur au temps caractéristique de destruction. Les mesures de densités des atomes métastables d'hélium ont été obtenues, sauf pour les résultats de la Figure 4-22, à partir de la valeur maximale du signal d'absorption. Comme le temps caractéristique de production est très inférieur à celui de la destruction, nous avons pu quantifier grâce à ce signal le nombre total des atomes métastables d'hélium créés pour un « z » donné au cours de la propagation du plasma. Ce nombre est déterminé par la formule suivante :

$$N_{He^m} = \left\{ 2\pi \int_0^\infty [He^m](r) \cdot r \cdot dr \right\} \cdot dh \quad (46)$$

dh représente la hauteur du volume intégré, que nous choisissons égale à la résolution de notre système optique, soit 30 μm , et $[He^m](r)$ la densité radiale de He^m .

Le résultat de cette intégration est présenté en Figure 4-23 pour différentes positions selon l'axe et pour différentes conditions de tension (a) et de débit (b). De manière générale, le nombre total d'atomes métastables créés lors de la propagation du jet de plasma diminue selon l'axe, alors que la densité moyenne augmente (Figure 4-17). Cela signifie que le volume où sont créés les atomes métastables diminue au cours de la propagation ; ce qui est en accord avec les résultats des Figure 4-21 et Figure 4-22, où l'on observe que le diamètre pour lequel les atomes métastables sont mesurés, diminue selon z . D'autre part, ces résultats montrent également, qu'augmenter la tension d'un facteur 2, induit une augmentation du nombre d'atomes métastables d'un facteur 10, alors que la variation du débit affecte peu ce nombre.

4.3.4 Imagerie filtrée en longueur d'onde

Afin de compléter les mesures de densités des atomes métastables d'hélium, nous avons effectué des diagnostics d'imagerie et spectroscopique.

Dans un premier temps, par le biais d'un appareil photographique classique, nous nous sommes intéressés à la structure du plasma dans sa globalité. Il s'avère, comme le montre la Figure 4-24, qu'en fonction de la tension appliquée l'apparence visuelle du plasma est modifiée, ce qui doit être la signature d'un changement de la « structure » du plasma. Comme nous l'avons vu au chapitre 3, la longueur du jet augmente avec la tension appliquée, mais la spécificité de ces images repose sur les différentes zones qui composent le plasma. Les photographies présentées sur la Figure 4-24, sont des photographies prises avec un appareil photographique classique (Canon PowerShot SX120). Les couleurs présentées sur ces dernières sont donc proches de celle observées à l'œil nu. Pour une tension appliquée de 4 et 4,5 kV, la couleur du plasma est globalement rose. Nous nommerons par la suite cette zone : « cône rose ». Par contre, pour des tensions supérieures à 5 kV, une seconde zone se forme et se distingue du cône rose à son extrémité. Cette seconde zone, de couleur bleue violette augmente de taille avec la tension appliquée. Cette zone sera appelée « zone violette ».

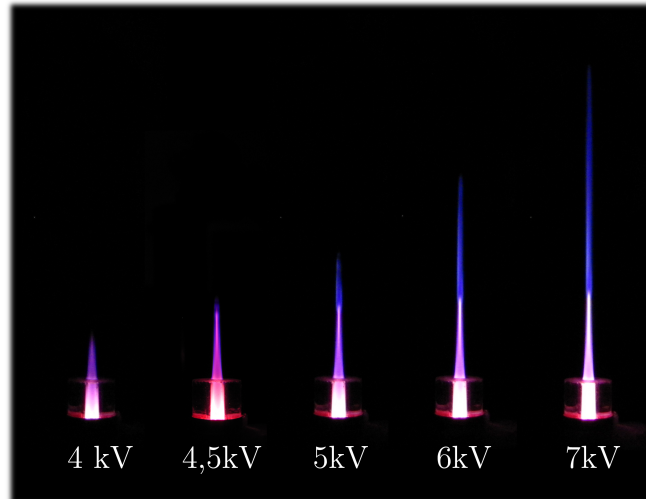


Figure 4-24: Photographies en vraies couleurs du jet de plasma pour un débit de 4,5 slm pour différentes tensions appliquées.

L'évolution de la longueur du cône rose (ronds roses) et du plasma en sa totalité (carrés bleus) en fonction de la tension appliquée est représentée à la Figure 4-25. En fonction de la tension, nous distinguons deux modes : le mode 1, où le plasma est seulement composé du cône rose, et le mode 2 où le plasma est composé du cône rose et de la zone violette. La longueur du cône rose augmente linéairement avec la tension appliquée selon un coefficient directeur différent selon le mode. Ce coefficient est plus important en mode 1 qu'en mode 2.

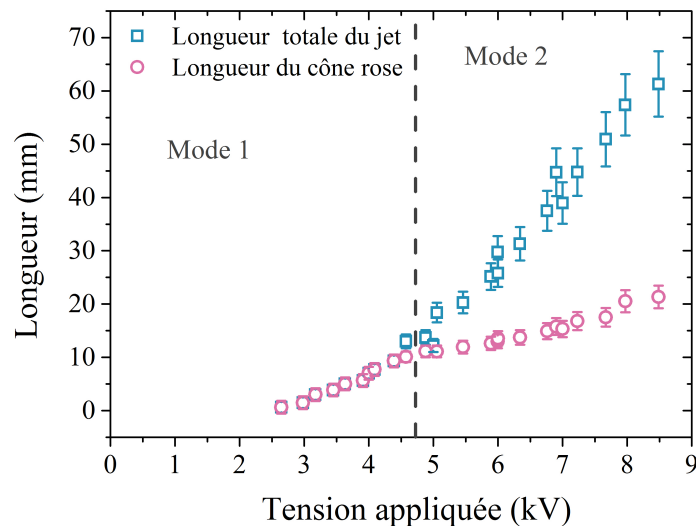


Figure 4-25: Longueur totale du jet et du cône rose en fonction de la tension appliquée.

Nous remarquons que, par la biais de trois mesures différentes, trois longueurs caractéristiques se distinguent : la longueur du cône rose, la longueur de la zone où le temps caractéristique de décroissance est constant et vaut $4,7 \pm 0,5 \mu\text{s}$, et la longueur

de la zone où les atomes métastables sont mesurables. Afin de les comparer, nous avons tracé ces trois longueurs, Figure 4-26, en fonction de la tension appliquée. Cette comparaison montre que les évolutions sont très similaires et sont quasi égales en prenant en compte les barres d'erreur. Ceci permet d'affirmer que le « cône rose » représente la zone où le taux d'impureté est le plus faible, zone que l'on a nommé dans le paragraphe 4.3.1 : « cône d'hélium pur », et qui représente par conséquent la zone où les atomes métastables sont mesurés. En dehors de ce cône, les impuretés sont plus importantes et détruisent les atomes métastables par collision, selon les réactions sont présentées dans le Tableau 3.

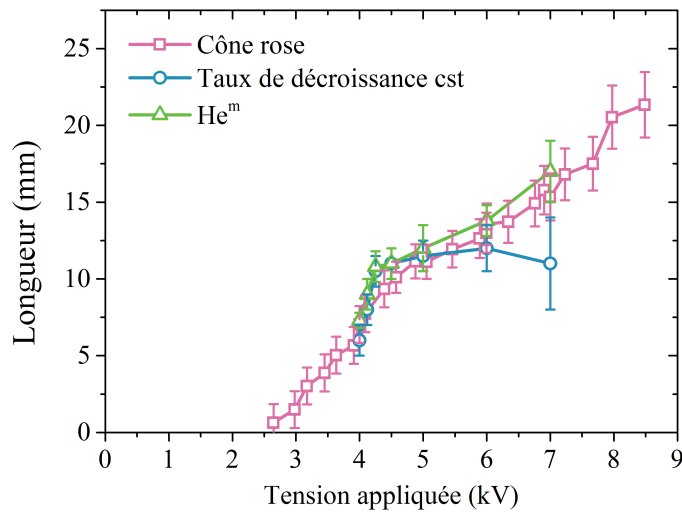


Figure 4-26 : Comparaison de la longueur du cône rose (carrés roses), de la zone où le taux de décroissance est constant (ronds bleus) et de la zone où les atomes métastables sont majoritairement présents (triangles verts).

Par la suite, nous nous sommes intéressés à l'émission lumineuse du plasma et plus particulièrement celle émise dans chacune des régions : « cône rose » et « zone violette ». Pour cela, nous avons enregistré, Figure 4-27, le spectre intégré dans le temps sur une plage de longueur d'onde allant de 250 à 850 nm dans une zone du plasma comprise entre $z = 0$ mm et 4 mm, dans le but de connaître les principales raies et bandes d'émission qu'émet le plasma.

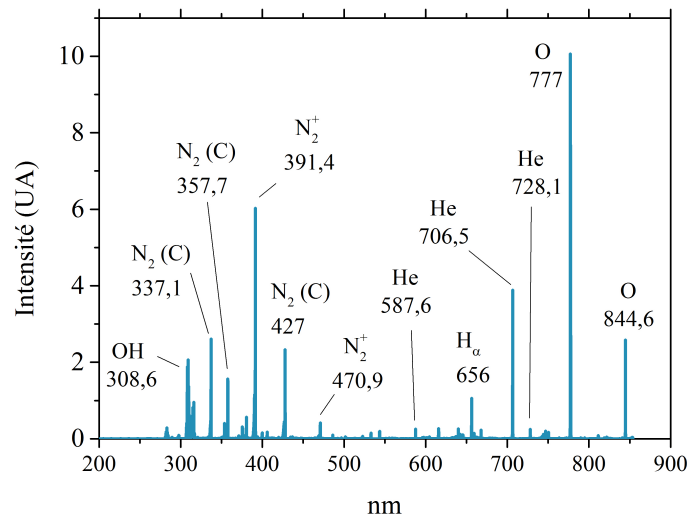


Figure 4-27 : Spectre du plasma intégré temporel (temps d'exposition : 100 ms) de 250 à 850 nm pour 6 kV et 4,5 slm dans le cône rose.

Le spectre obtenu montre que la lumière émise est principalement due à la désexcitation radiative de la molécule d'azote, de son ion, de l'oxygène atomique et de l'hélium. La présence des bandes moléculaires et des raies de l'oxygène atomique confirme que le plasma interagit avec l'air environnant. Par la suite, nous allons suivre l'évolution de l'intensité de la transition la plus intense de chaque espèce : OH (308,6 nm), N₂(C) (337,1 nm), N₂⁺ (391,4 nm), He (706,5 nm) et le triplet de l'oxygène atomique à 777 nm. Pour cela, afin de connaître la répartition spatiale lumineuse de ces transitions, nous avons utilisé une caméra CCD associée à des filtres interférentiels ; chaque filtre permet de sélectionner une émission particulière. La résolution de ces filtres étant de 10 nm, ils permettent de sélectionner seulement les transitions qui nous intéressent. A partir de ces images, nous avons déduit la distribution axiale au centre du jet (*ie*, $y = 0$ mm), Figure 4-28, et radiale, Figure 4-29. La méthode qui permet d'obtenir ces profils à partir des photographies est expliquée au chapitre 2.

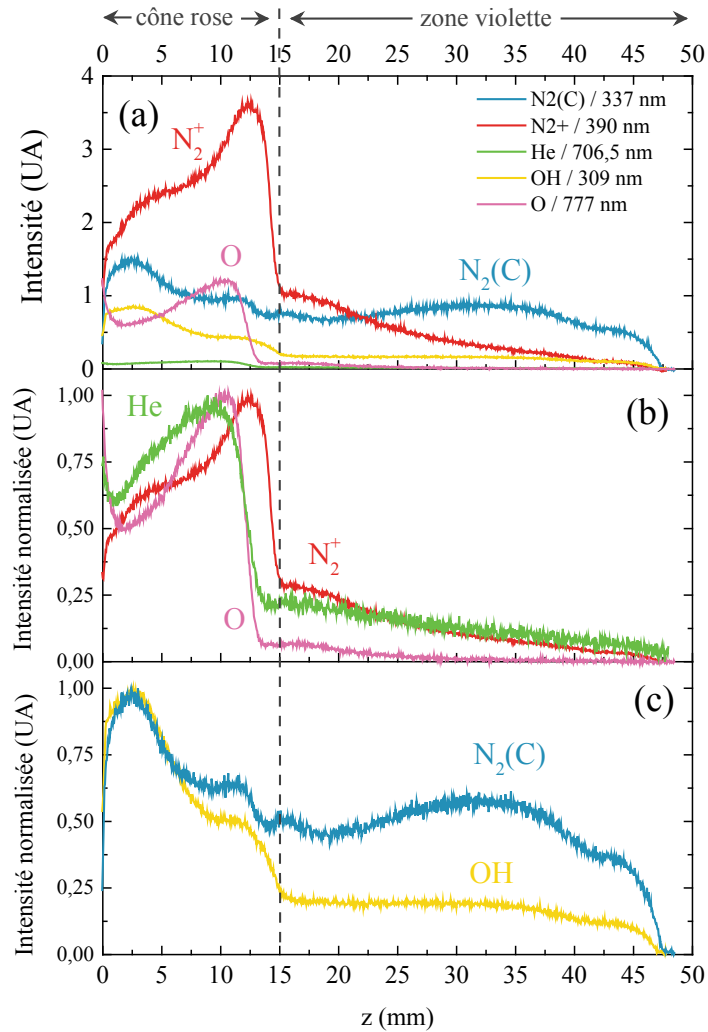


Figure 4-28 : Intensité lumineuse le long de l'axe du jet pour différentes longueurs d'onde pour une tension de 7 kV et un débit d'hélium de 4,5 slm.

La Figure 4-28 (a) présente la distribution de l'intensité lumineuse selon chaque longueur d'onde le long de l'axe du jet (*ie* « z ») et au centre de ce dernier (*ie* $y = 0$ mm). Pour cette condition (*ie*, 7 kV et 4,5 slm), la longueur du cône rose est de 15 mm. Dans cette zone, l'émission lumineuse est majoritairement due à celle du premier système négatif de l'azote (courbe rouge) : elle augmente de 0 à 12,5 mm, puis chute très rapidement jusqu'à 15 mm. A partir de 15 mm l'intensité lumineuse de cette transition continue à diminuer mais de manière plus lente. Au-delà de 22,5 mm, l'intensité lumineuse due à la désexcitation radiative du second système positif de l'azote (courbe bleue) devient plus importante que celle du premier négatif (courbe rouge). Ces résultats montrent clairement que l'émission lumineuse dans la zone violette est principalement due à celle du second système positif de l'azote.

D'autre part, comme le montre la Figure 4-28 (b), l'intensité lumineuse normalisée de l'hélium (courbe verte) et de l'oxygène (courbe rose) suivent un profil similaire par rapport à celui du premier système négatif de l'azote (courbe rouge). Dans le cône rose, l'intensité lumineuse augmente jusqu'à 10-12,5 mm (la position exacte en « z » dépend de la transition observée), puis diminue rapidement sur 2 mm. Une telle évolution

rappelle celle de la densité moyenne des atomes métastables selon « z » (cf Figure 4-15) et démontre que l'oxygène atomique et le premier système négatif de l'azote sont majoritairement peuplés par collision avec les atomes métastables d'hélium. Ce qui explique pourquoi l'intensité lumineuse des transitions radiatives de ces espèces est très faible dans la zone violette, car dans cette zone les atomes métastables d'hélium ne sont quasi pas mesurables. En revanche, il réside une différence entre ces trois profils axiaux : on observe qu'à la sortie du tube (*ie*, $z = 0$ mm), l'intensité lumineuse de la raie d'hélium et de l'oxygène diminue jusqu'à $z = 1$ mm, alors que ce n'est pas le cas pour le premier système négatif de l'azote. Dans le cas de l'hélium, cette diminution s'explique par le fait que dans le tube, le gaz est majoritairement composé d'hélium. A la sortie du tube, le canal d'hélium entre dans l'air ambiant, ce qui doit modifier la composition du gaz. Par contre, le fait que l'évolution de l'émission radiative de l'oxygène (courbe rose) suit celle de l'hélium (courbe verte) doit probablement être dû à la désorption de l'oxygène par les canalisations de gaz. Comme nous l'avons vu au paragraphe 4.3.2, une partie des impuretés dans le gaz doit provenir de cet effet, ce qui n'est pas le cas de l'azote, qui lui vient principalement de la rétrodiffusion de l'air dans le canal de gaz, ce qui explique pourquoi l'intensité lumineuse du premier système négatif ne diminue pas à la sortie du tube, mais au contraire augmente.

D'autre part, la Figure 4-28 (c) montre que les profils normalisés de l'intensité lumineuse de la molécule hydroxyde et de l'azote sont relativement proches. De 0 à 2,5 mm, leur intensité augmente, puis diminue ensuite jusqu'à 15 mm. Au-delà, dans la zone violette, leur intensité reste relativement constante pour ensuite décroître rapidement à partir de 45 mm. Les profils des intensités lumineuses de ces deux transitions sont différents du celui du premier système négatif de l'azote, ce qui démontre que ces états ne sont pas peuplés par collision avec les atomes métastables d'hélium, mais probablement par collision électronique.

D'autre part, grâce aux images filtrées en longueur d'onde, nous avons pu connaître la distribution radiale de l'intensité lumineuse pour chaque plage de longueur d'onde filtrée. Pour cela, comme le système possède une symétrie cylindrique, nous avons pu faire une inversion d'Abel de la distribution transverse de l'intensité lumineuse, qui elle-même a été obtenue à partir des images filtrée en longueur d'onde. Cette méthode est décrite plus en détail au chapitre 2. La Figure 4-29 (a) nous montre que la distribution du second système positif est quasi annulaire tout le long de la propagation du plasma. Le rayon de cet anneau diminue depuis l'extrémité du tube ($z = 0$ mm) jusqu'à $z = 10$ mm. Sa valeur passe de 0,9 mm à 0,4 mm. De $z = 10$ mm à 25 mm, le rayon reste approximativement constant, puis diminue de nouveau pour $z > 25$ mm, et l'anneau fini par se refermer sur lui-même à $z = 46$ mm, distance qui représente l'extrémité du jet de plasma pour cette condition. Le second système positif de l'azote est majoritairement peuplé par collision électronique ; sa distribution dépend du champ électrique et de la distribution de l'azote. Par ailleurs, les évolutions du premier système négatif de l'azote, Figure 4-29 (b), de l'hélium, Figure 4-29 (c), et de l'oxygène

atomique, Figure 4-29 (d) sont différentes de celle du second système positif de l'azote. La distribution est aussi annulaire en sortie du tube, mais notons que le diamètre de l'anneau est plus petit et s'élève, en $z = 0,2$ mm, à $0,7$ mm pour le premier système négatif de l'azote et de l'oxygène atomique, et à $0,6$ mm pour l'hélium. Le diamètre de cet anneau diminue rapidement, de telle sorte que l'anneau est quasi refermé à $z = 4$ mm. On observe qu'en $z = 16$ mm (courbe jaune), les distributions lumineuses de l'oxygène atomique et du premier système négatif de l'azote redeviennent annulaire ou quasi annulaire. Cet anneau se referme également rapidement, puisqu'à $z = 20$ mm (courbe rose), la distribution est de nouveau circulaire. Par ailleurs, l'intensité lumineuse augmente de 0 à 10 mm, puis diminue ensuite jusqu'à l'extrémité du jet. Il n'a pas été possible de sonder le plasma pour des $z > 25$ mm, car l'intensité lumineuse n'était pas suffisante pour en déduire un profil radial correct. Les profils du premier système négatif et de l'oxygène atomique sont analogues à celui observé pour les atomes métastables (Figure 4-20), confirmant que l'oxygène atomique et le premier système négatif sont peuplés par les atomes métastables d'hélium.

Par ailleurs, nous avons vu que les états radiatifs et métastables de l'hélium et les états radiatifs de l'azote sont peuplés par collision électronique. Ils sont donc sensibles à la distribution du champ électrique. Mais aucun d'eux n'est le reflet exact de cette distribution, car ils dépendent aussi de la distribution de l'air dans le jet d'hélium. Dans le cas de l'hélium et de l'azote, leur distribution est annulaire à la sortie du tube diélectrique, mais le rayon de cet anneau est plus petit en hélium qu'en azote. D'autre part, les états radiatifs et métastables de l'hélium ne sont pas mesurables en dehors du cône rose, et à l'inverse ceux de l'azote sont majoritairement présents autour du canal d'hélium. Ce qui signifie que le champ électrique est annulaire et que le diamètre de cet anneau se situe entre celui de l'hélium et celui de l'azote. Ce résultat confirme les modèles numériques de Naidis [107], [111], de Breden [102], [103] et al et de Bœuf et al [104], qui prédisent que le champ électrique à la sortie du tube diélectrique possède une distribution annulaire.

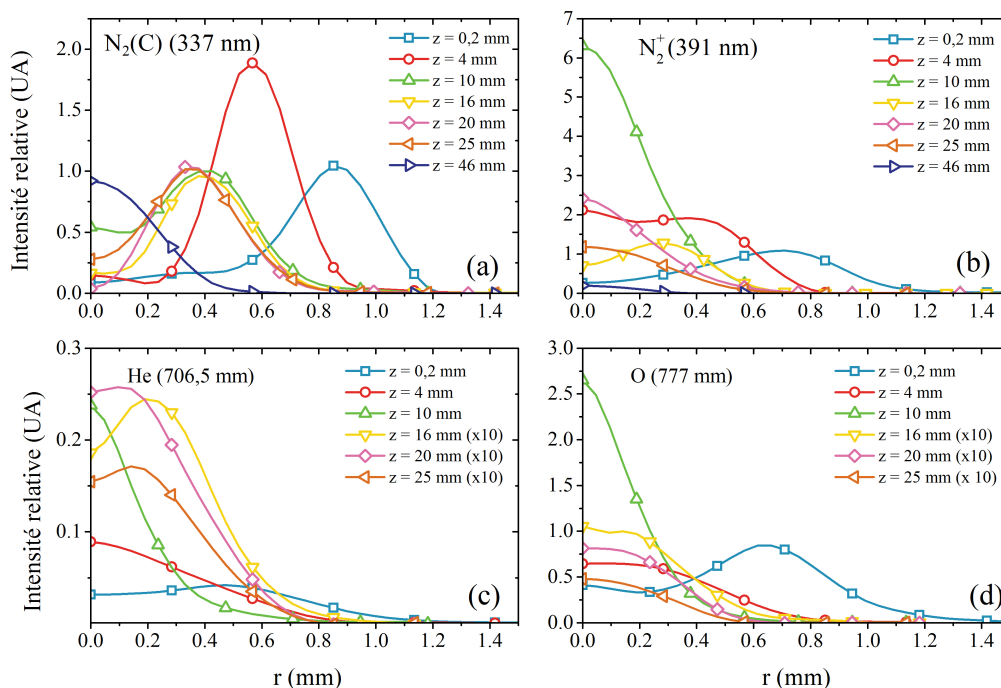


Figure 4-29 : Distribution radiale de l'intensité lumineuse du second système positif de l'azote (a) et du premier système négatif de l'azote (b), de l'hélium (c) et de l'oxygène atomique (d), pour 7 kV et 4.5 slm. Pour plus de lisibilité, les intensités pour $z = 16, 20$ et 25 mm de la figure (c) et (d) ont été multipliés par 10.

Ces mesures ont montré que l'explication de la structure annulaire de l'émission lumineuse du plasma est plus complexe qu'elle n'y paraît. Elle est certes due à la forme du champ électrique, comme l'explique Bœuf et al [104], mais sa structure exacte, c'est-à-dire le rayon de l'anneau, n'est pas rigoureusement la même que le champ électrique et dépend fortement de la composition du gaz.

4.4 Conclusions

Nous nous sommes intéressés à la mesure quantitative des atomes métastables d'hélium au sein du plasma. Ces derniers jouent un rôle important au niveau de la chimie du plasma. Ils sont responsables de la création de plusieurs espèces réactives. Afin de quantifier la densité des atomes métastables d'hélium au sein de ce plasma, nous avons mis en place un système de détection basé sur un diagnostic de spectroscopie d'absorption laser. Grâce à une résolution spatio-temporelle très fine, nous avons pu réaliser une cartographie complète du plasma au cours du temps. Les mesures d'absorption temporelles couplées à un modèle 0D ont permis de montrer que les atomes métastables d'hélium sont majoritairement peuplés par collision électronique et par cascade radiative depuis l'état 2^3P de l'hélium. Selon les conditions de tension (4 à 7 kV) et de débit (2 à 6 slm) la densité mesurée au sein de ce plasma est comprise entre 1.10^{12} et 5.10^{13} cm^{-3} . D'autre part, la symétrie cylindrique de la décharge nous a permis de calculer la densité locale des atomes métastables d'hélium par le biais d'une

inversion d'Abel. Le résultat de cette inversion montre que la distribution est annulaire en sortie de décharge, se refermant ensuite sur elle-même le long de l'axe du jet.

Afin de compléter cette étude, nous avons également effectué des mesures d'imagerie filtrée en longueur d'onde. Ces dernières ont montré que les distributions de l'émission lumineuse des états excités de l'hélium, de l'oxygène atomique et de l'ion moléculaire d'azote sont similaires à celles des atomes métastables d'hélium, révélant que la création de l'oxygène atomique et du premier système négatif de l'azote est majoritairement due à des réactions faisant intervenir les atomes métastables d'hélium. Au contraire, l'émission des états excités de l'azote suit un profil différent qui dépend du champ électrique local et de la densité de l'azote. Les atomes métastables d'hélium ne suivent pas cette distribution, car ils sont très sensibles au taux d'impuretés. Si ce taux est trop élevé (quelques pourcents d'air), les atomes métastables sont rapidement détruits et ne sont pas mesurables. Par conséquent, ils le sont seulement dans la zone où le taux d'impuretés est très faible. Cette zone est visible à l'œil nu, et prend la forme d'un cône rose. Pour des tensions élevées, ce cône ne représente pas la totalité du plasma : une zone de couleur « violette » est visible à l'extrémité du jet. Les diagnostics spectroscopiques et d'imagerie filtrée en longueur d'onde ont montré que l'émission lumineuse du cône est principalement due à celle de l'ion moléculaire d'azote, tandis que la partie « violette » est due à l'émission de l'azote excité.

Chapitre 5 : Interaction de deux jets de plasma

5.1 Objectif et état de l'art

Les jets de plasma se propagent sur de longues distances mais leur diamètre est limité à quelques millimètres. Ils ne sont donc pas très efficaces pour des applications à grandes échelles. Une solution à cet inconvénient serait de translater le jet de manière à traiter toute la surface désirée, mais de tels modes opératoires consomment du temps et demandent une certaine automatisation. Une solution plus efficace serait d'organiser plusieurs jets de plasma selon une matrice 1D ou 2D, opérant simultanément depuis une alimentation unique. Ce concept a déjà été validé par plusieurs groupes [31], [77], [83], [195]–[206], et utilise soit une excitation RF, soit une excitation impulsionnelle. Mais pour de telles configurations les jets peuvent interagir entre eux, comme le montre en exemple la Figure 5-1 (a). D'un autre côté, il peut être intéressant de produire volontairement l'interaction entre deux ou plusieurs jets de plasma ciblant une même zone à traiter. Ce procédé permettrait d'augmenter la dose déposée par le plasma ou de régler finement la composition des espèces réactives en utilisant un mélange de gaz différent pour chacun des jets. Certaines équipes ont déjà expérimenté cette application [207], [208], dont un exemple est présenté à la Figure 5-1 (b).

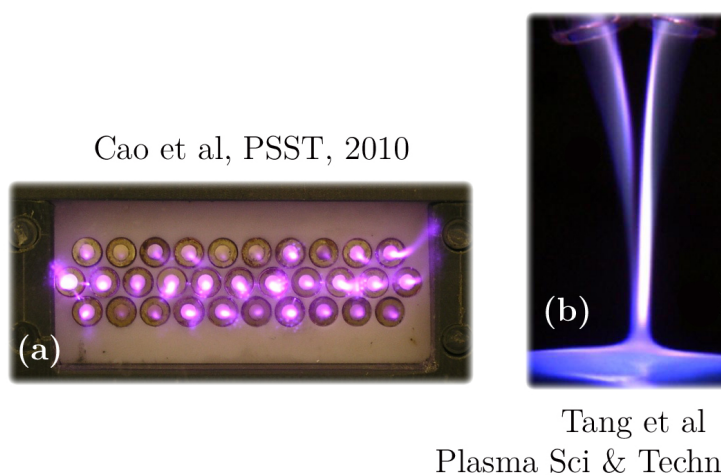


Figure 5-1 : (a) Matrice de 31 jets d'hélium à pression atmosphérique excités à une fréquence de 6 kHz [83]. (b) Interaction de deux jets d'hélium à pression atmosphérique, où la distance inter-électrode est de 2,3 mm pour une tension appliquée de 5,2 kV [207].

L'étude de la contre propagation de deux jets de plasma, placés l'un en face de l'autre, ne représente pas exactement la configuration des applications citées ci-avant, mais

permettrait de comprendre de quelle manière interagissent deux jets de plasma, et ainsi d'améliorer les applications liées à ce sujet.

A l'heure actuelle seules quelques équipes se sont intéressées à l'interaction de deux jets de plasmas. Leur travaux et résultats sont résumés ci-dessous.

Algwari et al [209] ont étudié la contre propagation de deux jets de plasma dans un tube en forme de T, dont le dispositif est schématisé sur la Figure 5-2 (a). Au niveau de chaque bras du T est amorcé un jet de plasma alimenté par un débit d'hélium. Lorsque les deux fronts d'ionisation arrivent au niveau de l'interaction, ils ne fusionnent pas directement. Dans le canal commun du «T», ils vont tout d'abord se propager le long de leur paroi respective et vont ensuite se mélanger petit à petit au cours de leur propagation pour finir par former un seul front d'ionisation.

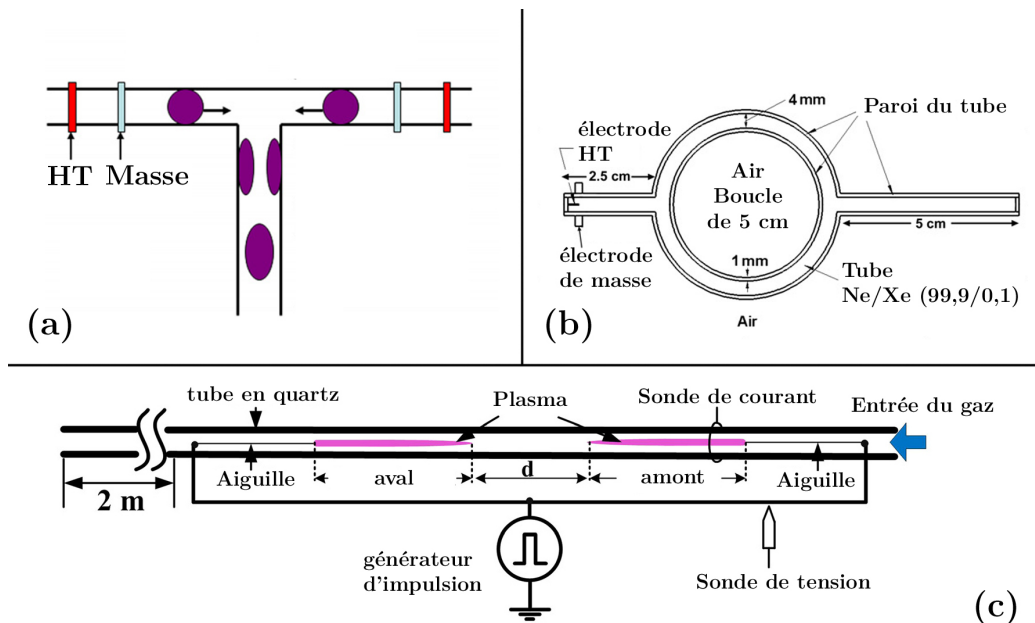


Figure 5-2 : Schéma des dispositifs expérimentaux de (a) Algwari et al [78], [209] (b) de Sarron et al et [210], [211] et (c) de Wu et al [212].

D'autre part, Sarron et al ont également étudié la propagation d'un jet de plasma alimenté en néon, se propageant dans un tube en forme de boucle relié de part et d'autre d'un tube droit. Un schéma du dispositif est présenté en Figure 5-2 (b) [210]. Expérimentalement Sarron et al observent qu'à l'approche de l'intersection le front d'ionisation se divise en deux, et un streamer se propage dans chacune des deux branches de la boucle de manière symétrique. A l'approche de la jonction, les deux fronts d'ionisation se mélangent en un seul. La propagation de ce plasma est montrée à la Figure 5-3 (a). Un modèle numérique de cette configuration a été réalisé par Xiong et al [211] (Figure 5-3 (b)) et ils expliquent que la division du front d'ionisation à l'approche de l'intersection est facilitée par le chargement de la paroi opposée, créant alors un champ électrique latéral, ce qui a comme conséquence d'initier deux streamers, qui possèdent des directions opposées. De la même manière, l'unification des deux

streamers, au niveau de fusion de la boucle et du tube droit, est facilitée par le champ électrique créé à l'approche des deux fronts d'ionisation.

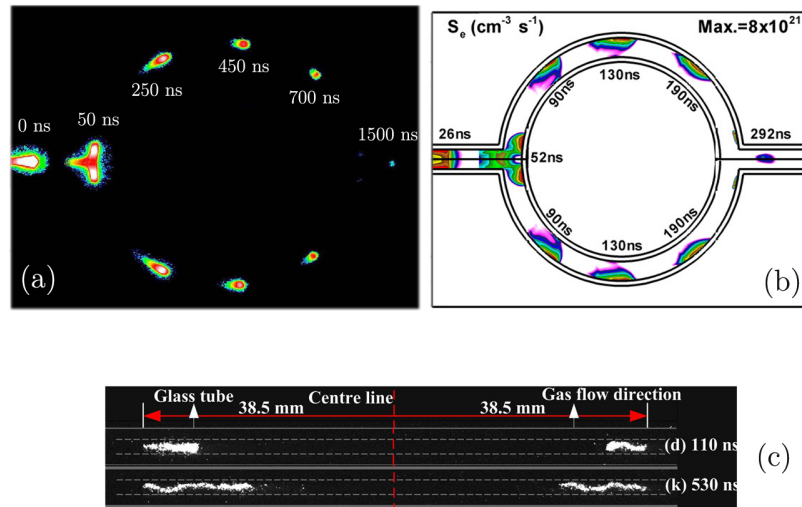


Figure 5-3 : (a) Propagation d'un plasma dans un tube en verre circulaire [210]. (b) Résultats d'une simulation numérique de l'ionisation par impact électronique de (a) [211]. (c) Contre propagation de deux jets de plasma dans un capillaire [212].

De même, Wu et al ont fait contre propager deux jets de plasma dans un tube en quartz alimenté par un débit d'argon [212], dont le dispositif est schématisé sur la Figure 5-2 (c). Ils montrent que les deux plasmas créés sont influencés par la direction du débit de gaz et observent que lorsque le gaz est en régime turbulent, le plasma prend une structure en forme de serpent (Figure 5-3 (c)), qui serait due à la distribution des charges le long de la surface du tube diélectrique.

Les quelques équipes qui se sont intéressées à la contre propagation de deux jets de plasma ont effectué cette étude au sein de capillaires diélectriques. Dans ce chapitre, l'étude sera focalisée sur la contre propagation de deux jets de plasma se propageant dans l'air ambiant, ce qui représente une configuration, qui à l'heure actuelle n'a jamais été étudiée. Ces investigations ont été réalisées par le biais de diagnostics d'imagerie, de spectroscopie et électriques, dont le principe est décrit en détail au chapitre 2.

5.2 Dispositif

Le dispositif expérimental, schématisé sur la Figure 5-4, présente deux micro-jets identiques placés exactement l'un en face de l'autre. Chaque décharge est composée d'un tube diélectrique respectivement de diamètres interne et externe de 1 et 3 mm correspondant à la décharge n°1 présentée au chapitre 3, Pour cette étude, l'électrode externe est positionnée à 4,5 mm de l'extrémité du tube (cette distance est représentée par ee sur la Figure 2-1) et l'électrode haute tension est placée à 7,5 mm depuis l'extrémité du tube (représente la distance ei sur la Figure 2-1). Les débits d'hélium

utilisés dans cette étude sont dans la gamme 150-1500 sccm. Chaque décharge est alimentée par un module haute tension. Ces modules sont identiques et connectés à une même alimentation continue capable de délivrer une tension de 0 à 300 V. Le générateur d'impulsion permet de synchroniser à la nanoseconde près les impulsions haute tension, afin que les deux décharges s'amorcent au même instant. Les impulsions de haute tension (3-6 kV) sont appliquées entre les deux électrodes de chaque décharge avec une fréquence de répétition de 20 kHz.

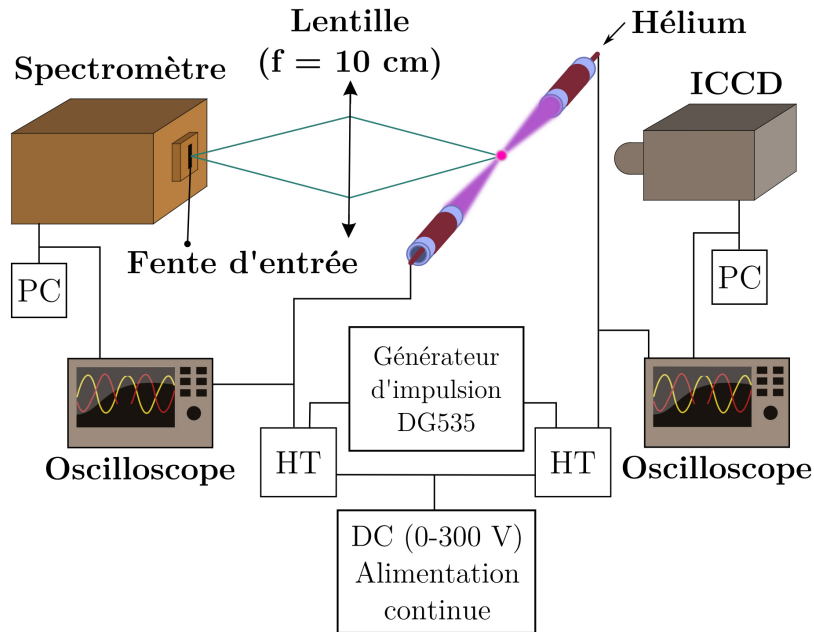


Figure 5-4 : Schéma du dispositif expérimental pour la contre-propagation de deux jets de plasma.

Pour cette étude, chaque décharge est placée sur un système de micro-platine permettant un déplacement de rotation et translation selon les trois directions avec une précision de 10 μm . La distance entre les deux décharges peut être ajustée de 5 à 20 mm, de telle sorte que le jet produit par l'une des deux décharges, qui a une longueur de 25 mm pour une tension de 5 kV, peut facilement atteindre la décharge opposée.

Dans la suite, nous allons nous intéresser à deux configurations différentes. Le premier cas traité représente une configuration où un débit d'hélium provient de chaque décharge (paragraphe 5.3), tandis que le second sera consacré à l'étude de la contre-propagation de deux jets de plasma, lorsque le débit de gaz ne provient que d'une des deux décharges (paragraphe 5.4).

5.3 Deux débits de gaz séparés

La Figure 5-5 représente le schéma du dispositif étudié dans cette partie. Deux jets de plasma sont placés l'un en face de l'autre.

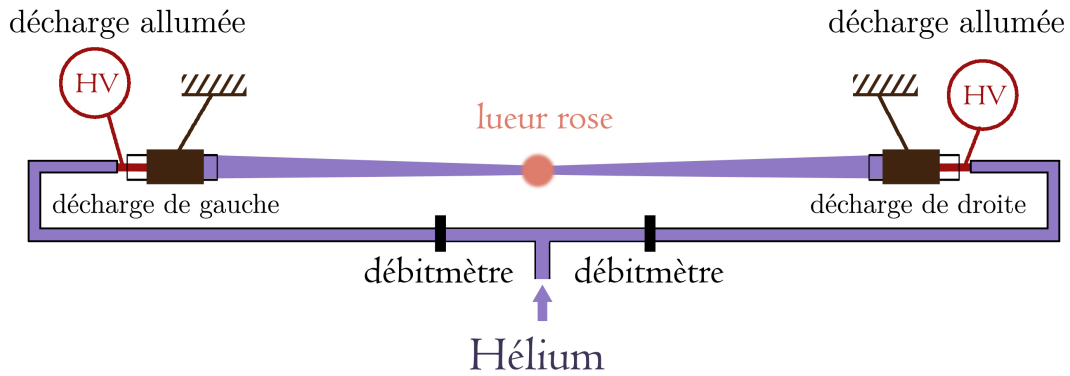


Figure 5-5 : Schéma du dispositif expérimental lorsque le débit d'hélium provient des deux décharges.

L'hélium arrive par un canal principal, qui se divise par la suite en deux parties. Sur chaque branche se trouve un débitmètre volumique permettant de régler le débit de gaz pour chacune des deux décharges.

La Figure 5-6 présente trois photographies prises avec une caméra CCD (en fausses couleurs), intégrées temporellement pour trois configurations différentes. Les images (a) et (b) représentent la situation lorsque seulement une des deux décharges est allumée : (a) la décharge de gauche est allumée et celle de droite est éteinte, et (b) représente la situation inverse. Dans les deux cas, le plasma se propage jusqu'à l'autre tube diélectrique. Notons que pour de telles conditions, en l'absence d'un second dispositif, la longueur du plasma excède 20 mm, ce qui représente la distance entre les deux décharges. Le plasma est alors capable de se propager jusqu'à l'autre structure de décharge, et lorsque l'alignement est parfait, de pénétrer à l'intérieur de celle-ci. La photographie (c) représente quant à elle la configuration pour laquelle les deux décharges sont allumées. On observe qu'un plasma est amorcé au niveau de chaque décharge, mais à la différence des configurations (a) et (b) de la Figure 5-6, il existe une zone sombre entre les deux jets où il n'y a pas de plasma. Ce comportement suggère que les deux plasmas interagissent l'un par rapport à l'autre.

D'autre part, nous pouvons remarquer que, lorsque seulement une des deux décharges est allumée, l'intensité lumineuse est maximale devant la décharge non alimentée en haute tension. Au contraire, lorsque les deux décharges sont allumées, l'intensité lumineuse émise au niveau des deux décharges paraît très symétrique.

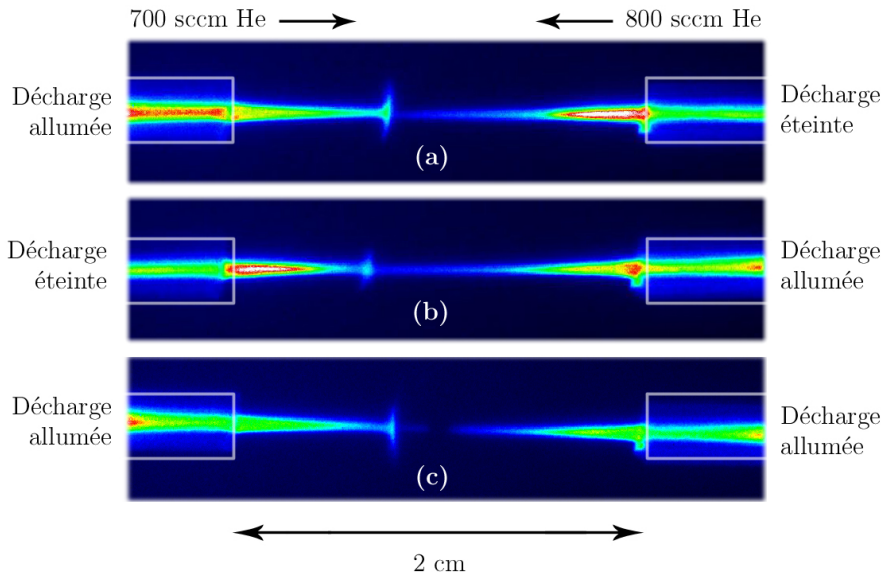


Figure 5-6 : Photographie en fausses couleurs. (a) la décharge de gauche est allumée. (b) la décharge de droite est allumée. (c) les deux décharges sont allumées. Tension appliquée : 5 kV.

De plus, pour les trois configurations, on remarque qu'il y a formation d'une structure en forme de disque entre les deux débits de gaz. Ce disque représente la zone d'interaction entre les deux débits de gaz. La position de ce disque est légèrement plus proche de la décharge de gauche que de celle de droite, ce qui est dû à la différence de débit. Le débit de gauche est de 700 sccm, tandis que celui de droite est de 800 sccm. Les débits de gaz sont choisis volontairement différents afin que la zone où les deux flux d'hélium se rencontrent ne soit pas au centre du dispositif. Car comme le montre la Figure 5-6 (c), la région où les deux plasmas interagissent entre eux et qui est représentée par la zone sombre se situe à peu près au centre du dispositif. Si ces deux zones sont superposées, alors l'interaction des deux plasmas n'est plus correctement visible, car elle se situe dans la zone où les flux de gaz se rencontrent. La position du disque, correspondant à l'interaction entre les deux flux de gaz, est sensible à la différence de débit, comme le montre la Figure 5-7. Plus cette différence est importante, plus le disque est proche de la décharge qui possède le débit le plus faible.

Afin d'étudier en détail le cas (a) de la Figure 5-6, nous avons examiné la propagation du plasma au cours du temps au moyen d'une caméra ICCD. L'évolution de cette propagation est présentée Figure 5-8. Chaque photographie correspond à une décharge visualisée avec un temps d'exposition de 5 ns. Ceci afin d'identifier si dans une telle configuration, la propagation du plasma est reproductible d'une acquisition à l'autre. À 330 ns le plasma quitte le tube diélectrique et commence sa propagation dans l'air, puis au temps $t = 370$ ns, on observe la formation d'une structure diffuse, qui correspond à celle observée sur la Figure 5-6, puis à partir de 380 ns, l'intensité lumineuse du disque diminue. De ce disque se détache un streamer se déplaçant le long de la direction axiale qui finit par atteindre l'autre dispositif à 500 ns.

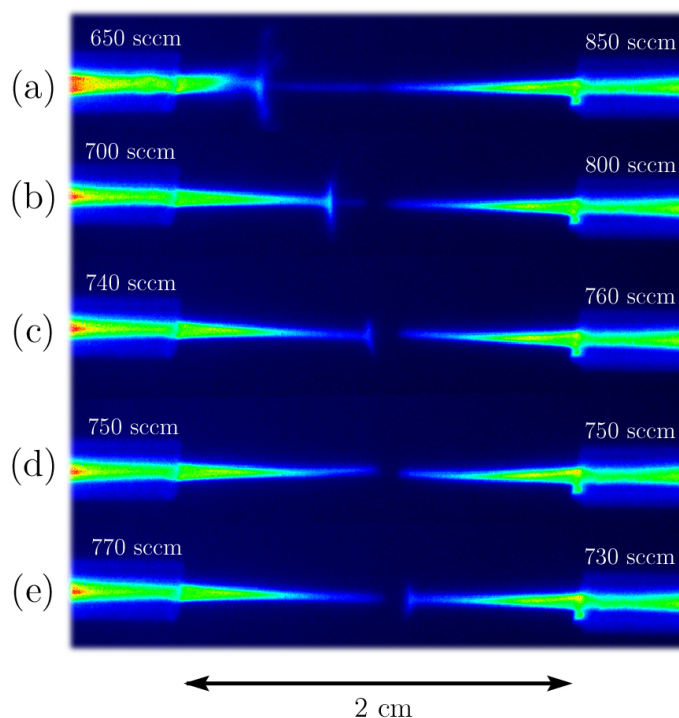


Figure 5-7 : Comportement du plasma pour différents débits et pour une tension appliquée de 5 kV.

Dans la zone, où se trouvait précédemment le disque, se crée un second front d'ionisation à 390 ns. La direction de ce front n'est pas la même à 390 ns et à 400 ns. Dans un cas il se situe vers le haut, et dans l'autre vers le bas. À chaque acquisition, qui correspond à un streamer différent, la direction de ce front diffère, mais se situe toujours à peu près à la même position axiale, alors que la position du streamer se trouvant dans le canal principal est très reproductible. La direction aléatoire du streamer se situant dans le disque doit probablement être due à la distribution du gaz, car cette zone représente la région où les deux flux de gaz interagissent. Le champ électrique dans la tête du streamer est compris entre 10 et 20 kV/cm [104] et, est capable de se propager dans des régions où la proportion d'hélium est suffisamment grande, car l'ajout d'air demande un champ électrique plus important. La zone où la proportion d'hélium est suffisamment grande doit varier d'une acquisition à l'autre, ce qui explique pourquoi la position du streamer n'est pas reproductible.

Pour comparer ces résultats au cas où les deux décharges sont allumées (configuration (c) de la Figure 5-6), nous avons également étudié, pour ce dernier cas, l'évolution temporelle de la propagation du plasma. Les résultats sont présentés Figure 5-9. Au temps $t = 270$ ns les deux décharges s'amorcent simultanément, puis à 330 ns chaque streamer quitte le tube diélectrique dans lequel il a été créé et arrive dans l'air ambiant. À 390 ns, le streamer de droite continue de se propager, alors que celui de gauche prend la forme d'un disque beaucoup plus symétrique que celui observé à la Figure 5-6 et à la Figure 5-7.

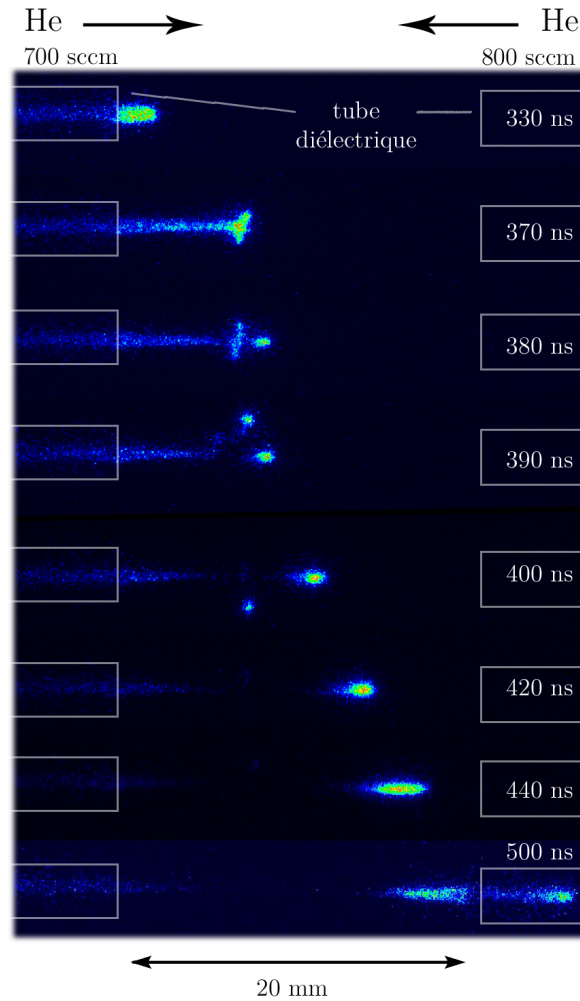


Figure 5-8 : Photographies en fausses couleurs de la dynamique de la propagation d'un micro-jet de plasma, lorsque les deux débits gaz sont allumés. Un débit d'hélium provient de chaque décharge. Le temps d'exposition est de 5 ns et chaque photographie est prise en mono coup. La tension appliquée pour les deux décharges est de 5kV.

À 400 ns, se détache du disque un streamer, qui continue de se propager dans la direction axiale. Ce streamer et celui de la décharge de droite arrêtent leur course avant d'avoir pu se rencontrer, et à partir de 420 ns leur intensité lumineuse diminue progressivement et l'aspect spatial demeure inchangé. A la différence de la configuration de la Figure 5-8, la structure du disque est très reproductible d'une acquisition à l'autre. Cette structure relativement symétrique est probablement due à la présence du streamer de droite. Ce dernier doit influencer la direction des streamers qui composent ce disque. Ce phénomène est similaire à celui observé par Sarron et al [210], [211] : lorsque leur plasma arrive au niveau de l'intersection (Figure 5-2 (b) et Figure 5-3 (a) et (b)) la division de ce dernier est facilitée à cause de la présence de charges sur la surface opposée. Ces charges induisent un champ électrique qui va favoriser la division du streamer en deux. Dans notre cas, on peut supposer que c'est le champ électrique induit par le streamer de droite qui va favoriser la division du

streamer et ainsi former une structure relativement homogène. Par contre, les images de la Figure 5-9 ne permettent pas de savoir combien de streamers sont produits, car ils se propagent tous dans un flux perpendiculaire à l'axe de propagation.

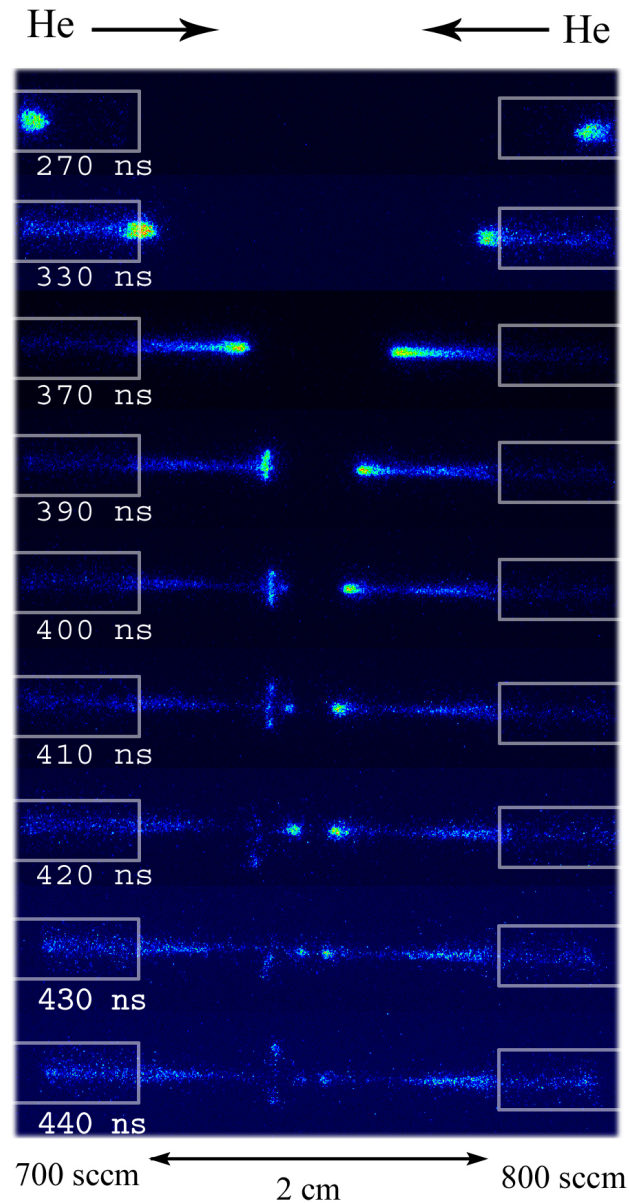


Figure 5-9 : Photographies en fausses couleurs de la dynamique de la contre propagation de deux micro-jets de plasma. Un débit d'hélium provient de chaque décharge. Le temps d'exposition est de 5 ns et chaque photographie est prise en mono coup. La tension appliquée pour chaque décharge est de 5kV. Le temps indiqué est pris par rapport au signal de synchronisation du générateur d'impulsion.

Les diagnostics d'imagerie ont montré que deux jets de plasma, se propageant en sens opposés, interagissent entre eux. Ces derniers ne se rencontrent pas et laissent une zone libre entre les deux jets. Ceci n'est pas dû à une limitation de la longueur du jet, car si l'une des deux décharges est éteinte, la longueur du jet est suffisamment grande pour atteindre la structure de la décharge opposée.

Ces résultats montrent qu'il y a une interaction forte entre les processus hydrodynamiques et électrodynamiques. Cette interaction est très complexe et son étude détaillée pourrait faire l'objet d'une thèse à part entière. Afin d'analyser le phénomène lié à la seule interaction entre les deux jets de plasma, nous avons étudié une configuration plus simple dans laquelle les deux jets se propagent dans un flux d'hélium unique.

5.4 Un débit de gaz unique

Pour éviter la complication induite par les effets hydrodynamiques et afin de mieux comprendre de quelle manière interagissent les deux streamers, l'expérience qui suit a été menée avec un seul débit de gaz se propageant d'une décharge à l'autre, comme schématisé sur la Figure 5-10. Pour l'expérience décrite dans ce paragraphe, le débit d'hélium provient de la décharge de droite.

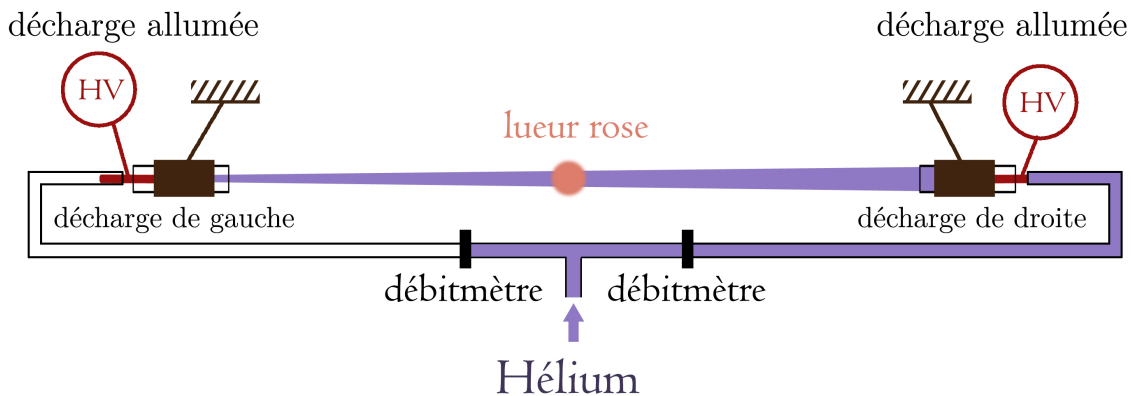


Figure 5-10 : Schéma du dispositif lorsque le débit de gaz provient seulement d'une des deux décharges.

5.4.1 Imagerie du plasma

La Figure 5-11 présente l'imagerie intégrée temporellement lorsque seulement une des deux décharges est allumée. Ces photographies nous apprennent, comme dans le paragraphe 5.3 (Figure 5-6), que lorsqu'un des deux décharges est éteinte, le plasma est capable de se propager jusqu'à l'autre dispositif. Notons que ces deux photographies (a) et (b) sont très similaires : l'intensité lumineuse est importante au sein du tube diélectrique de droite, alors dans celui de gauche cette dernière est plus faible. Pourtant ces deux photographies représentent deux situations contraires : seule la décharge de droite est allumée dans le cas de la Figure 5-11 (a), alors que c'est celle de gauche pour la Figure 5-11 (b). Ce résultat démontre l'importance de la composition du gaz. Dans la décharge de gauche le taux d'impureté est plus important que dans celle de droite, car au niveau de la décharge de gauche, le canal d'hélium contient un taux d'impuretés plus important à cause de la diffusion de l'air dans ce dernier. De plus, l'arrivée du flux d'hélium dans la décharge de gauche doit induire une perturbation de l'écoulement du

gaz aux voisinage de la structure de décharge, ce qui doit également engendrer une augmentation des impuretés. Dans les deux cas de la Figure 5-11, l'intensité lumineuse est la plus importante là où l'hélium contient le moins d'impuretés.

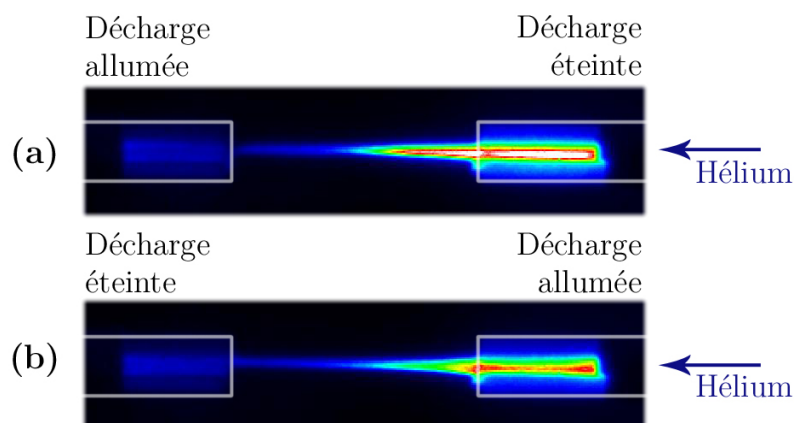


Figure 5-11 : Photographies en fausses couleurs prises avec une caméra CCD. Pour les deux conditions, le débit d'hélium est de 1000 sccm et provient de la décharge de droite et entre à l'intérieur de la seconde décharge. (a) La décharge de gauche est allumée et celle de droite est éteinte. (b) La décharge de droite est allumée et celle de gauche est éteinte. La tension appliquée est de 5 kV. L'échelle de l'intensité lumineuse est la même pour les deux photographies.

La Figure 5-12 représente le cas où les deux décharges sont allumées. Comme pour le cas de la Figure 5-11, l'intensité lumineuse est plus importante au niveau de la décharge de droite que de gauche. Cette photographie, prise avec un appareil photographique classique, ne permet pas de savoir s'il y a création d'un ou deux jets de plasma, car le plasma observé est continu de la décharge de droite à gauche. ; ce qui est différent de ce qui est observé à la Figure 5-6 (c). Pour le savoir, nous avons étudié dans le paragraphe suivant, l'évolution de ce plasma au cours du temps au moyen d'une caméra ICCD. D'autre part, cette photographie (Figure 5-12) révèle la présence d'une structure qui n'est pas observée lorsqu'une seule décharge est allumée : une lueur rose est présente au centre du dispositif. L'étude détaillée de cette lueur sera présentée au paragraphe 5.4.3.

Par ailleurs, un jet de plasma secondaire est observé au niveau de la décharge de gauche. Sa position dépend de manière très sensible de l'alignement des deux structures de décharges. Ce phénomène parasite ne sera pas étudié dans la suite de cette étude.

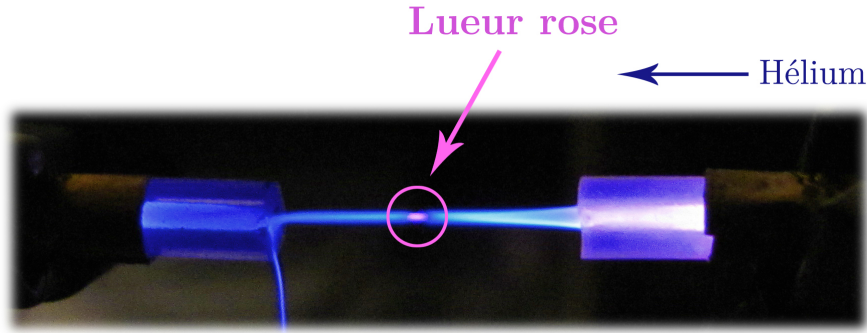


Figure 5-12 : Photographie en vraies couleurs de la contre propagation de deux jets de plasma en présence d'un seul débit de gaz (photographie obtenue avec un appareil photographique classique (Canon PowerShot SX120)).

5.4.2 Evolution spatio-temporelle du plasma

Dans le but d'analyser l'évolution du plasma au cours du temps, des diagnostics d'imagerie rapide ont été effectués et sont présentés sur la Figure 5-13. A 250 ns les deux décharges s'amorcent simultanément, puis commencent leur propagation à 320 ns, les streamers quittent ensuite leur tube diélectrique respectif et se propagent dans l'air ambiant. La visualisation du plasma au cours du temps permet d'affirmer qu'il y a bien création de deux jets de plasma. Par contre, les deux streamers ne se rencontrent pas, et laissent une zone sombre sans plasma entre eux, révélant l'existence d'une distance minimale d'approche de $700 \mu\text{m} \pm 200 \mu\text{m}$ à 370 ns. Notons que cette distance est voisine de celle du diamètre des streamers, qui est comprise entre 500 et $1500 \mu\text{m}$. Ce qui est confirmé par les prédictions des modèles numériques de Naidis [124] et de Bourdon et al [213], qui ont montré que deux streamers se propageant dans des directions opposés ne se rencontrent pas et que la distance minimale d'approche entre ces derniers est du même ordre de grandeur que le diamètre du streamer. Cette distance correspond à la distance pour laquelle le champ électrique est insuffisant pour assurer la poursuite de la propagation, ce qui se traduit pour des streamers positifs par une zone quasi exempte d'électrons et donc exempte d'excitation et d'ionisation. Une fois que les streamers ont atteint cette distance minimale d'approche (correspond à 370 ns), l'émission lumineuse de ces derniers diminue au cours du temps.

D'autre part, l'émission lumineuse du canal reliant la décharge à la tête du streamer est plus importante pour la décharge de droite que pour celle de gauche. Les modèles numériques nous apprennent que le champ électrique est quasi nul dans le canal [103], [104], [107], [111], [214], [215]. L'émission lumineuse de ce dernier est donc due à la recombinaison des ions et des électrons et à la présence d'espèces à longue durée de vie capables de transférer leur énergie à d'autres espèces qui vont ensuite émettre un photon en se désexcitant.

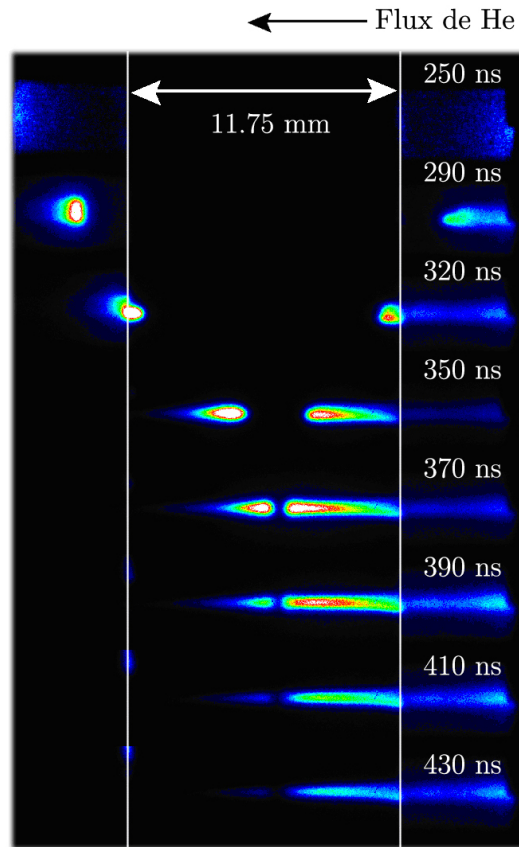


Figure 5-13 : Photographies en fausses couleurs de la dynamique de la contre propagation de deux micro-jets de plasma. L'hélium provient de la décharge de droite. Le temps de pause pour chaque photographie est de 1 ns. L'origine du temps est défini par le front de montée du signal de synchronisation.

Nous avons vu au chapitre 4, que les atomes métastables d'hélium, qui représentent l'une des espèces à longue durée de vie, sont sensibles à la présence des impuretés. Ces atomes métastables sont responsables en grande partie de l'excitation des états radiatifs $N_2^+(B)$ et O^* , dont la désexcitation radiative représente la grande majorité de l'intensité lumineuse (cf Figure 4-27). La proportion d'air dans le canal d'hélium est plus importante au niveau de la décharge de gauche que de celle de droite, du fait que l'hélium provient de la décharge de droite. Les atomes métastables d'hélium sont donc détruits de manière plus significative à gauche qu'à droite et les états radiatifs N_2^+ et O^* sont moins peuplés, ce qui explique pourquoi l'intensité lumineuse du canal est moins importante à gauche qu'à droite. Ce scénario est confirmé par la Figure 3-17, qui montre que l'ajout de gaz moléculaire diminue l'intensité lumineuse du canal.

D'autre part, la Figure 5-13 révèle que l'intensité lumineuse au sein de la tête du streamer est plus importante pour celui de gauche que pour celui de droite. Cette disparité doit probablement s'expliquer par une différence de la valeur du champ électrique. Au sein de la tête d'un streamer se propageant dans de l'hélium, le champ électrique est compris entre 10 et 20 kV/cm, tandis que dans l'air il se situe à 150 kV/cm [104]. La présence de quelques pourcents d'air au sein du streamer de

gauche doit augmenter légèrement ce champ, et expliquer ainsi l'augmentation de la luminosité.

Nous avons représenté sur la Figure 5-14, l'évolution de la position des fronts d'ionisation, correspondant aux images de la Figure 5-13, au cours du temps (ronds et carrés pleins). L'origine des positions a été prise au centre du dispositif, c'est-à-dire entre les deux décharges. Ces résultats sont comparés avec la position du streamer lorsque seulement une des deux décharges est allumée. Les ronds creux représentent le cas où seule la décharge de gauche est allumée, et les carrés creux le cas inverse. Ces résultats montrent que le streamer se propage jusqu'à l'autre dispositif et pénètre dans le tube diélectrique de la décharge opposée lorsqu'il n'y a qu'une décharge d'allumée. La comparaison des deux configurations indique également qu'à partir de 325 ns, la position du streamer de droite, lorsqu'une seule décharge est allumée, ne suit plus l'évolution de la position du streamer dans le cas où les deux décharges sont allumées. Cette observation révèle qu'à partir du moment où les deux streamers commencent leur propagation, ils vont immédiatement interagir l'un par rapport à l'autre, modifiant alors leur évolution spatio-temporelle. Ce résultat est confirmé par les modèles numériques. Ils montrent que durant la propagation du streamer, lorsqu'il n'y a qu'une décharge, la valeur du champ électrique est quasi constante durant la propagation du plasma [104], [215], alors que dans le cas où il y a deux décharges, le champ électrique de chacun des streamers diminue au cours de la propagation révélant que ces derniers interagissent entre eux [214].

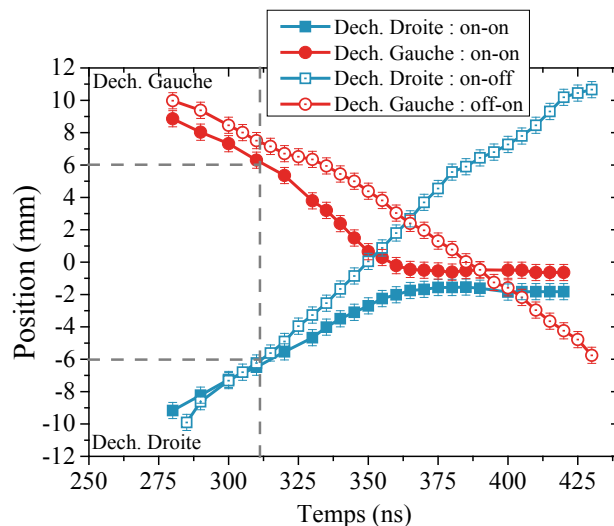


Figure 5-14 : Evolution temporelle de la position du front d'ionisation pour différentes conditions: les carrés bleus représentent la position du front d'ionisation de la décharge de droite, alors que les cercles rouges représentent le front d'ionisation de la décharge de gauche. Les symboles pleins représentent la condition lorsque les deux décharges sont allumées, c'est-à-dire lorsque les deux plasmas sont en contre propagation. Les symboles creux représentent la situation lorsqu'une seule des deux décharges est allumée.

La Figure 5-15 présente les vitesses respectives de chaque streamer, lorsque les deux décharges sont allumées (a), et lorsque seulement une des deux décharges est allumée (b). Dans les deux cas, la vitesse du front d'ionisation de gauche est supérieure à celle de droite. Deux hypothèses peuvent expliquer cette différence de vitesse :

- Plus la densité d'électrons germes est importante, plus la vitesse de propagation du streamer est importante. Ces électrons proviennent soit de la photoionisation, soit d'un processus de détachement [108]. Ce détachement dans notre cas est principalement dû à l'ion d'oxygène, O_2^- . La densité d'oxygène étant plus importante à gauche qu'à droite, ceci pourrait expliquer pourquoi la vitesse est plus importante.
- Le champ local à la tête du streamer est plus important d'un ordre de grandeur en air (150 kV/cm) qu'en hélium (10-20 kV/cm) [104]. Plus ce champ est important, plus la vitesse de propagation est rapide. La proportion d'air est plus importante à gauche qu'à droite, ce qui expliquerait pourquoi la vitesse du front d'ionisation de gauche est plus rapide.

Seul le développement d'un modèle complet, en milieu non homogène, de propagation du streamer permettrait d'apporter la réponse. L'établissement d'un tel modèle dépassait largement le cadre de notre travail.

Les vitesses de propagation en présence de deux streamers sont plus faibles d'un facteur 2 par rapport aux vitesses mesurées lorsque seulement une des deux décharges est allumée. La vitesse de propagation dépend du champ électrique au sein de la tête du streamer. Les modèles numériques montrent qu'au niveau de la tête du streamer le champ électrique est relativement constant au cours de la propagation [104], [215]. Par contre, dans le cas de deux jets de plasma se contre propageant, le champ électrique au niveau de chaque streamer diminue au cours de sa propagation [214]. Cette diminution doit vraisemblablement expliquer pourquoi les vitesses de propagation des streamers sont plus faibles en présence des deux plasmas.

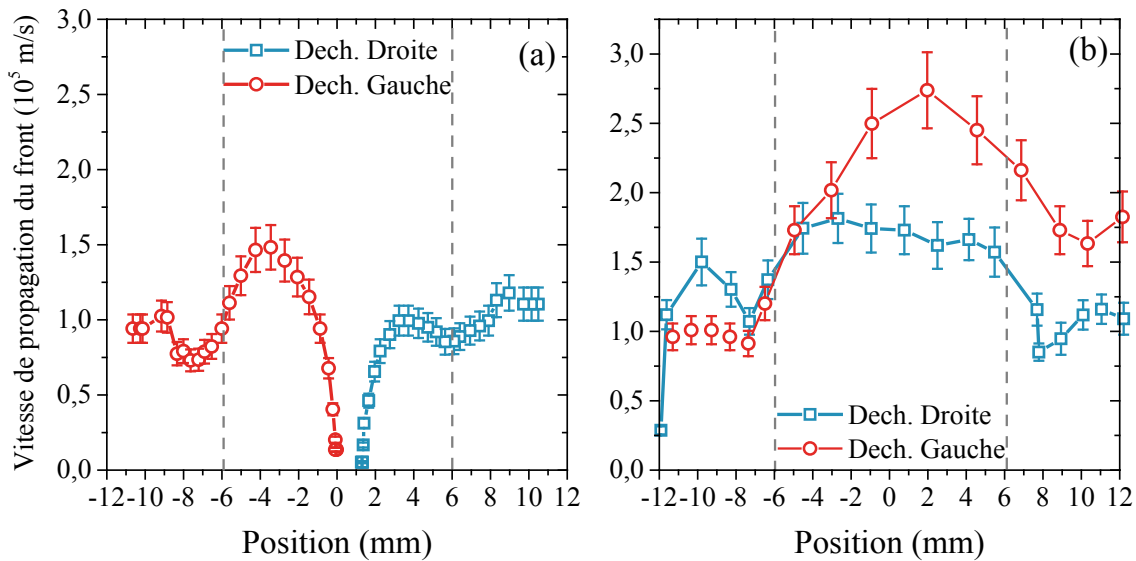


Figure 5-15 : Evolution spatiale de la vitesse du front d'ionisation des deux jets de plasma se contre propageant. L'origine des distances est prise au niveau du plan entre les deux décharges. (a) Lorsque les deux décharges sont allumées. (b) Lorsque seulement une des deux décharge est allumée.

De plus, à cause de la différence de vitesse des deux jets, la position de la zone sombre entre les deux plasmas ne se situe pas rigoureusement au centre du dispositif. Elle dépend fortement de la distance entre deux décharges comme le montre la Figure 5-16.

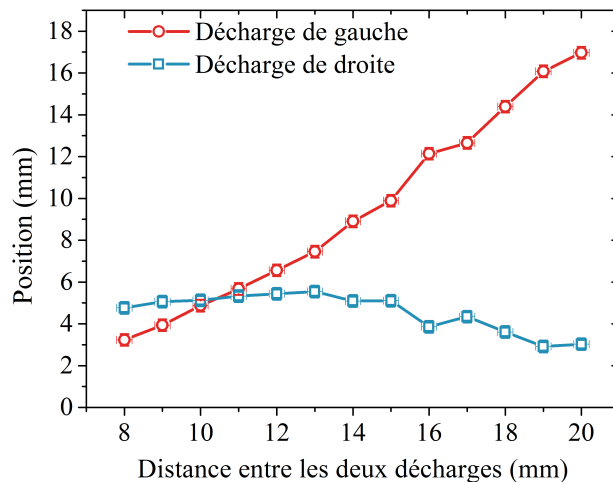


Figure 5-16 : Position du centre de la zone sans plasma selon la distance séparant les deux décharges. L'origine des distances a été prise à la sortie des tubes diélectriques respectifs.

La position de la zone sombre varie peu par rapport à la décharge de droite (l'hélium provient de cette décharge). Par contre, par rapport à la décharge de gauche cette position varie linéairement avec la distance entre les deux décharges. La position de

cette zone dépend donc de la composition du gaz et confirme que la vitesse de propagation du plasma est en moyenne plus rapide pour la décharge de gauche que pour celle de droite (pour une distance inter-décharge supérieure à 10 mm).

5.4.3 Décharge secondaire

La séquence d'image de la Figure 5-13 a montré qu'un plasma était créé au niveau de chaque décharge et que chacun interagissait avec l'autre afin que les streamers ne se rencontrent pas. Par contre, cette séquence d'images n'a pas permis d'observer la lueur rose aperçue à la Figure 5-12. Afin d'y remédier, nous avons alors examiné le système à des temps plus lointains. Ces diagnostics d'imagerie rapide nous révèlent, Figure 5-17, qu'après l'extinction des deux streamers, une seconde décharge apparaît plusieurs dizaines de nanosecondes plus tard. A 465 ns, une seconde décharge apparaît soudainement, exactement dans la zone où les deux streamers ne se sont pas propagés. L'intensité de cette décharge atteint son maximum à 500 ns, puis son intensité diminue au cours du temps et finit par disparaître à 680 ns. A chaque acquisition, la position de cette décharge est très reproductible. Cette seconde décharge correspond à la lueur rose observée sur la Figure 5-12. Notons que cette lueur est également visible pour des conditions de tensions, de débits et de distances inter-décharges différentes.

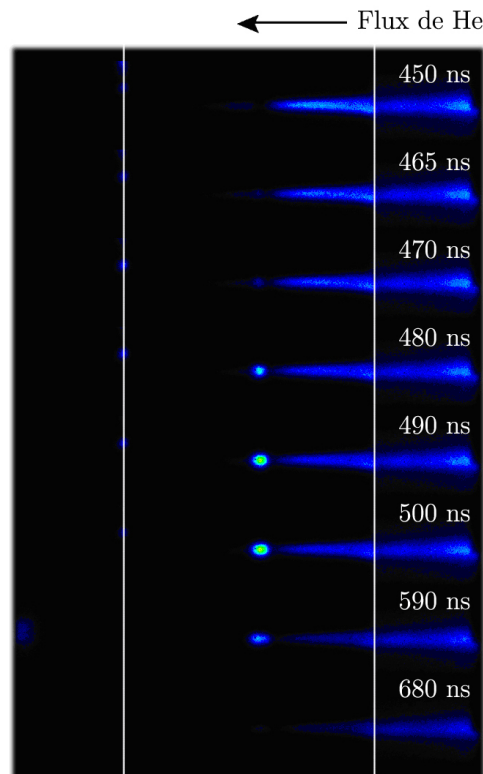


Figure 5-17 : Photographies en fausses couleurs de la dynamique de la contre propagation de deux micro-jets de plasma. L'hélium provient de la décharge de droite. Le temps d'exposition pour chaque photographie est de 0,95 ns. L'origine du temps est définie par le front de montée du signal de synchronisation.

Notons qu'après l'extinction des deux streamers (450 ns), le canal qui relie le streamer et la décharge émet toujours quelques photons, ce qui signifie qu'il a des espèces à longue durée de vie et que les processus d'attachement et de recombinaison sont relativement lents. Ceci est vrai pour les deux décharges, bien que sur la Figure 5-17, le canal de la décharge de gauche ne soit pas visible, mais ceci est dû au contraste de l'image, car le canal de la décharge de droite est plus lumineux. S'il y a recombinaison, ceci montre que les canaux sont toujours conducteurs. Ce qui est probablement le cas, vu que nous avons montré au chapitre 3 que la tête du streamer est constamment connectée à la décharge.

De façon à étudier plus précisément l'apparition de cette seconde décharge, nous avons mesuré, Figure 5-18, l'évolution de l'intensité lumineuse maximale au cours du temps à la position correspondant au centre de la lueur rose. Durant les 100 premières nanosecondes après le claquage de la décharge, les fronts d'ionisation des deux jets de plasma se contre propageant sont encore proches de leur décharge respective, d'où le fait qu'il n'y a pas d'émission au niveau de la position de la lueur rose. Lorsque les deux fronts d'ionisation des deux jets de plasma sont à 3,5 mm l'un de l'autre (*ie*, $t = 350$ ns), l'intensité lumineuse de cette région augmente et atteint un maximum au temps $T_1 = 375$ ns, correspondant au moment où les deux fronts d'ionisation sont au plus proche. Puis, l'intensité diminue pendant 80 ns. Elle augmente de nouveau à partir du temps $T_2 = 460$ ns, correspondant à l'apparition de la lueur rose. A $T_3 = 495$ ns, la lueur rose atteint son intensité maximale avant de disparaître progressivement.

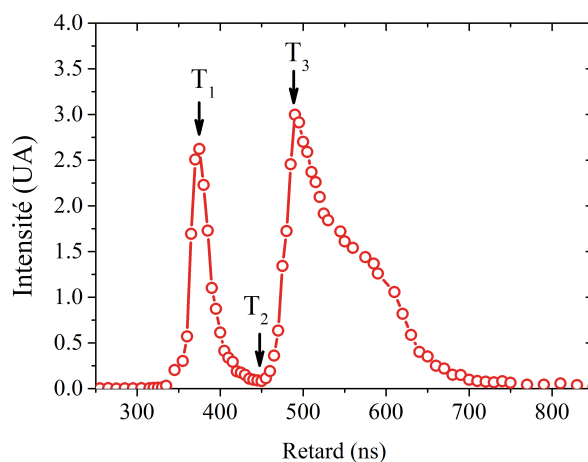


Figure 5-18 : Evolution temporelle de l'intensité maximale à la position correspondant au centre de la lueur rose.

Les études spectroscopiques intégrées dans le temps, Figure 5-19, montrent une baisse importante de l'intensité lumineuse issue de la désexcitation des états radiatifs du premier système négatif de l'azote (N_2^+), de l'hélium excité et de l'oxygène atomique au niveau de la position correspondant au centre de la lueur rose. A l'inverse, dans cette

zone, l'intensité lumineuse du premier ($N_2(B-A)$) et du second ($N_2(C-B)$) système positif de l'azote augmente.

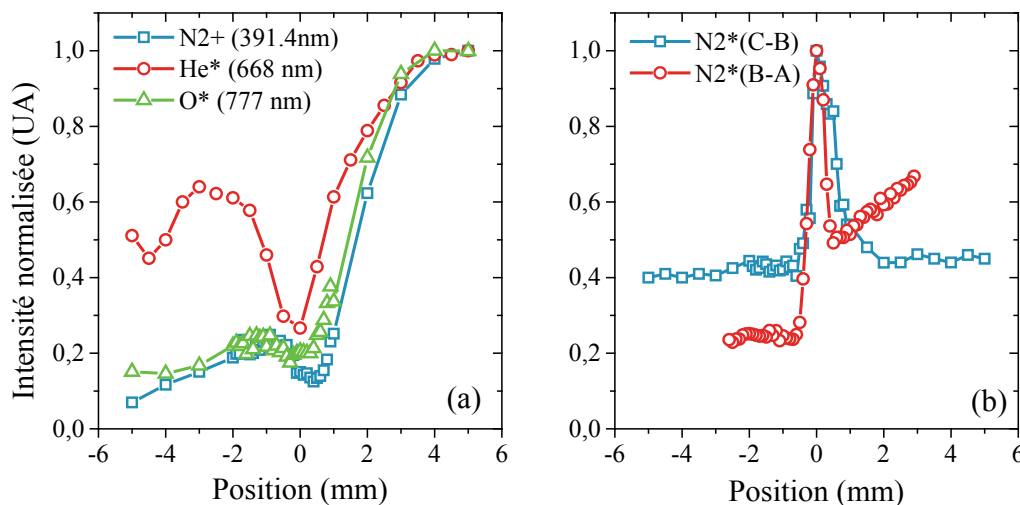


Figure 5-19 : Evolution spatiale de l'intensité lumineuse émise à différentes longueurs d'onde par des états excités et ionisés. Ces intensités sont obtenues par des mesures de spectroscopie intégrées dans le temps. L'origine des positions a été prise au centre de la lueur rose.

De plus, les mesures spectroscopiques résolues temporellement au centre de la lueur rose, Figure 5-20, révèlent que pour un temps supérieur à 450 ns, temps à partir duquel la lueur rose apparaît, l'émission lumineuse est principalement due au premier et au second système positif de l'azote. Le premier et le second système positif de l'azote sont majoritairement peuplés par collisions électroniques, alors que O^* et N_2^+ le sont par transfert énergétique depuis l'hélium. Ainsi ces mesures spectroscopiques suggèrent que l'émission lumineuse de la lueur rose pourrait être associée à la désexcitation des niveaux de basse énergie qui sont directement peuplés par impact électronique à des instants pour lesquels la fonction de distribution en énergie des électrons a dérivé vers les basses énergies. Cette hypothèse sera traitée plus en détails au paragraphe suivant.

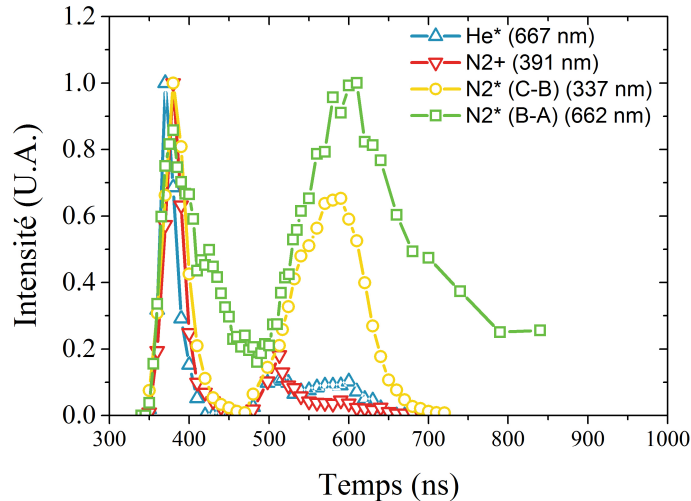


Figure 5-20 : Evolution temporelle des intensités normalisées pour différentes raies d'émission de l'hélium et de l'azote.

Afin de mieux comprendre les phénomènes physiques pouvant expliquer l'apparition de cette lueur rose, des mesures de courant ont été faites au niveau des deux décharges, selon le procédé expliqué au chapitre 2. Ces résultats sont présentés sur la Figure 5-21. Les temps caractéristiques T_2 et T_3 correspondent respectivement au début de l'apparition de la lueur rose et au temps pour lequel l'intensité est maximale. Sur cette figure, le courant de décharge a été multiplié par 10 afin de mieux le visualiser. Les signaux électriques mesurés sur chacune des deux décharges semblent très similaires, mais un examen attentif révèle des différences notables. Le temps de montée du courant de la décharge de gauche est plus rapide que celui de la décharge de droite et sa largeur à mi hauteur plus courte. Cependant, une fois que le courant de décharge de gauche a chuté à zéro, ce dernier reste constant durant 50 ns, avant de devenir négatif au temps T_2 , correspondant exactement à l'apparition de la lueur rose. Au temps T_3 , les courants des deux décharges atteignent un maximum en valeur absolue, ce qui correspond au temps pour lequel l'intensité de la lueur rose est la plus grande. La légère dissymétrie des mesures électriques pour les deux décharges résulte directement de la différence de fraction molaire air/hélium.

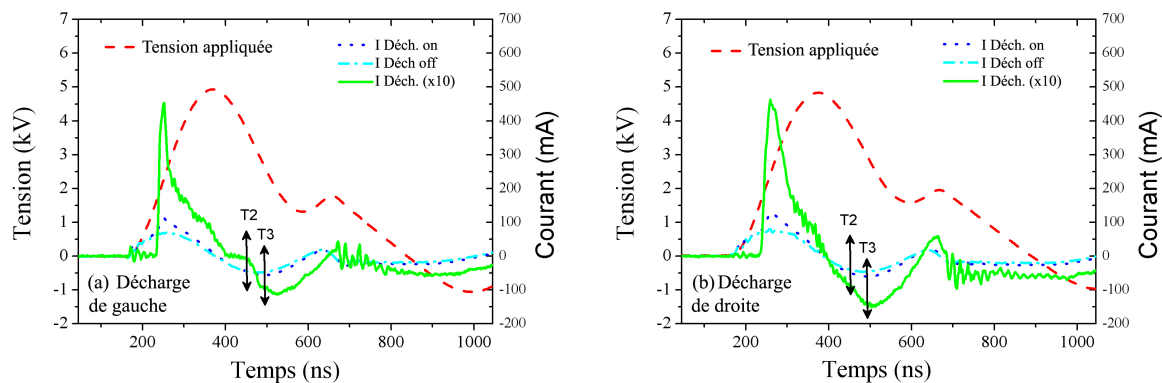


Figure 5-21 : Signaux de tension et de courant mesurés pour les deux décharges. (a) pour la décharge de gauche et (b) pour la décharge de droite. Par souci de clarté le courant de décharge représenté en vert a été multiplié par 10. Les flèches T_2 et T_3 correspondent respectivement au début de l'émission de la lueur rose et au temps où son intensité est maximale.

L'échelle de temps de la dynamique de la lueur rose observée durant l'interaction entre les deux jets de plasma indique que cette dernière ne peut pas être attribuée à des processus similaires à ceux observés dans des décharges basse pression d'azote et amenant à la création de la « pink afterglow » [216], [217]. Cette « pink afterglow » est associée à la ré-excitation des niveaux $N_2(B^3\Pi_g)$ et $N_2(C^3\Pi_u)$ par collision entre les niveaux rovibrationnels des états $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ et/ou $N_2(A^3\Sigma_u^+)$. A pression atmosphérique, l'échelle du temps caractéristique pour de telles réactions est de plusieurs microsecondes et ne peut donc pas expliquer l'apparition de la lueur rose dans nos expériences.

L'analyse de l'ensemble des mesures d'imagerie, de spectroscopie et d'évolution temporelle des paramètres électriques conduit à proposer la dynamique suivante, schématisée sur la Figure 5-22.

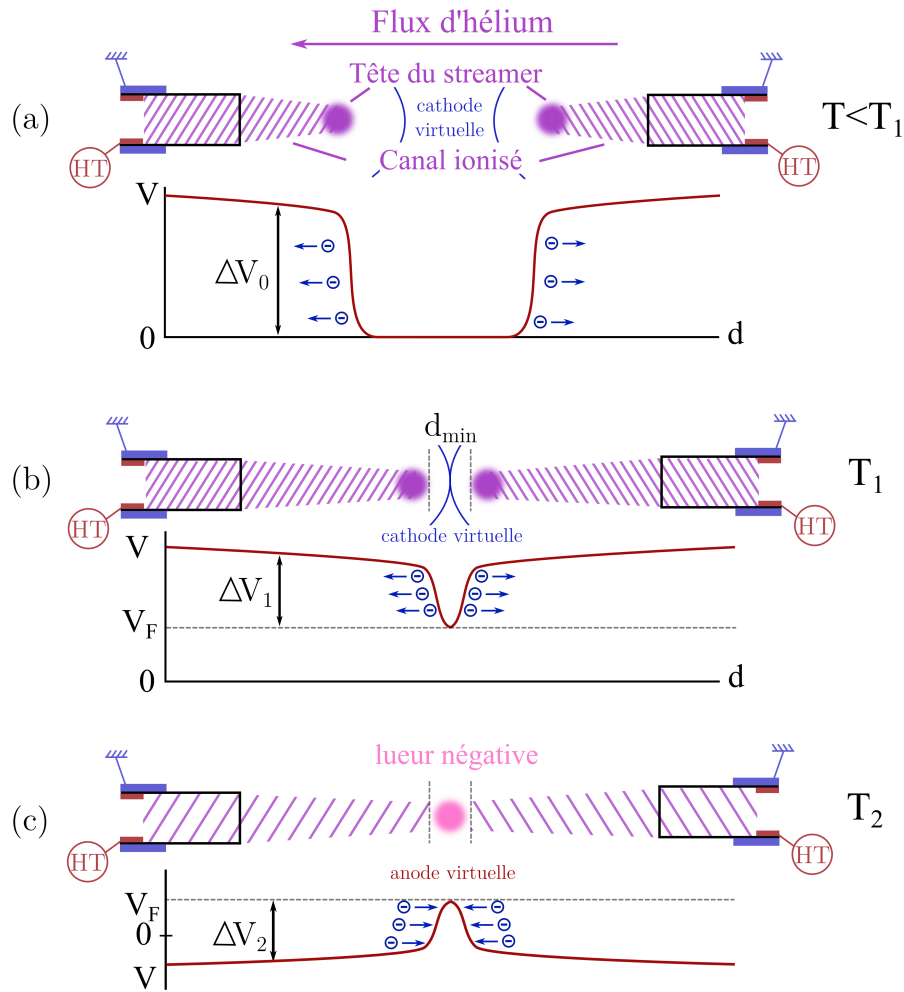


Figure 5-22 : Schéma représentatif de la dynamique associée à l'émission de la lueur rose.

La dynamique associée à l'émission de la lueur rose est schématisée sur la Figure 5-22 :

- Lors de la contre propagation des jets, les deux streamers s'approchent l'un de l'autre jusqu'à arriver à une distance minimale d'approche, d_{min} , atteinte au temps $T_1 = 375$ ns, qui est visible sur la Figure 5-13. L'avalanche électronique créée à l'avant de la tête du streamer est proportionnelle à $\exp(ad)$, où a est le coefficient d'ionisation, et d la longueur de l'avalanche. Cette avalanche est limitée par l'intensité du champ électrique aux abords de la tête du streamer.
- Au temps T_1 , le potentiel au centre de la zone sombre a une valeur flottante V_F , qui est inférieure à celle des colonnes de plasma. Les électrons, présents dans ces colonnes conductrices, sont ainsi accélérés vers les anodes représentées par les deux structures de décharge, laissant entre les deux plasmas une région qui est essentiellement non ionisée, et aperçue comme sombre sur la Figure 5-13 au temps $T_2 = 465$ ns.
- Comme discuté un peu plus haut, au temps T_2 , les deux colonnes de plasma conductrices sont encore présentes dans toute la région où se sont propagés les streamers. Cependant, lorsque les courants de décharge s'inversent, les potentiels des colonnes de plasma s'inversent instantanément, et les électrons présents en

bout de colonne sont maintenant accélérés vers la zone précédemment sombre, dans laquelle ils se font piéger, ce qui a pour résultat d'initier une seconde décharge, analogue à une lueur négative. Entre T_2 et T_3 , la tension appliquée diminue, ce qui doit se traduire par une diminution sensible du potentiel flottant dans la région où apparaît la lueur rose. Après inversion de la tension plasma, l'énergie cinétique moyenne des électrons doit être notablement plus faible, ce qui se traduit par une excitation préférentielle des niveaux électroniques des basses énergies, et donc des états $N_2(B^3\Pi_g)$ et $N_2(C^3\Pi_u)$, par rapport à ceux de l'hélium.

Ce scénario de l'apparition détaillée de la lueur rose reste cependant qualitatif et une compréhension du comportement de cette lueur mériterait le développement de modèles numériques complets décrivant de manière auto-cohérente la dynamique de la contre propagation des deux streamers. Notons qu'une première approche développée par Naidis [214] et par Bourdon et al [213] a déjà permis de valider la notion de distance minimale d'approche. Il faudrait ensuite compléter ces modèles afin de prendre en compte la nature non homogène des milieux dans lesquels les deux streamers se propagent.

Chapitre 6 : Etude de dommages induits par un jet de plasma sur de l'ADN plasmidique

Les applications biomédicales ont été introduites pour la première fois dans la communauté scientifique en 1998 lors de la conférence « IEEE International Conference on Plasma Science » (ICOPS). Depuis l'intérêt pour cette discipline n'a fait qu'augmenter d'année en année. En effet, le reflet de cet intérêt et de ses avancées faites dans ce domaine est démontré par le nombre croissant de participants à la conférence « International Conference on Plasma Medicine » (ICPM). Pour en donner quelques chiffres : ICPM-4, qui s'est déroulé à Orléans en 2012, a attiré 280 participants, soit 100 de plus que la précédente ICPM-3, organisée deux ans plus tôt, et soit trois fois plus que ICPM-2 [218]. Cet intérêt croissant est aussi reflété par la naissance de deux revues dédiées à ce domaine : « Plasma Medicine » et « Clinical Plasma Medicine ».

A l'heure actuelle, « Plasma medicine » est un domaine à part entière en pleine émergence, et comparable au développement de la technologie laser il y a quelques années. Ce domaine concerne des recherches et travaux multidisciplinaires, intégrant l'ingénierie, la physique des plasmas, la biologie et la médecine [219]. Les plasmas hors équilibre thermodynamique ont la caractéristique attractive de posséder, pour une grande partie d'entre eux, une température du gaz proche de celle de la température ambiante tout en étant capables de créer des espèces réactives. Ceci est dû au fait que les électrons sont chauds, tandis que les ions et les espèces neutres possèdent une température proche de la température ambiante [220], [221]. L'énergie apportée par les électrons par collision avec les espèces du gaz amorce la création d'espèces réactives. Cette propriété offre au plasma de ne pas être un plasma chaud et donc de ne pas créer de dommages thermiques aux systèmes biologiques sensibles à la chaleur, tel que les cellules ou les tissus vivants [222]. La Figure 6-1 est une photographie du plasma étudié au cours de cette thèse, et représente un exemple de plasma à pression atmosphérique dont la température du gaz est proche de la température ambiante. Ce plasma peut être mis directement au contact de la peau sans la brûler.

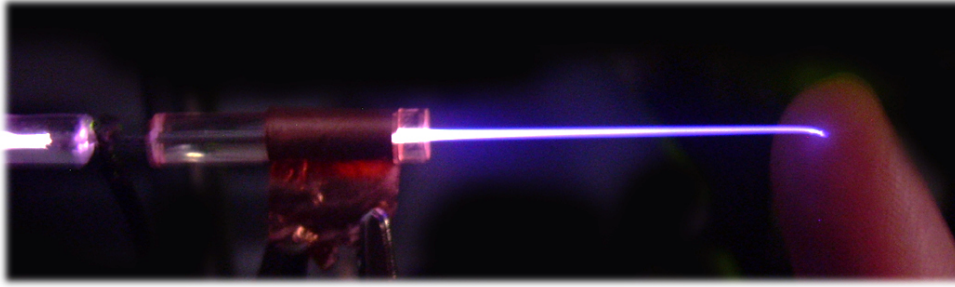


Figure 6-1 : Photographie en vraies couleurs d'un micro-jet d'hélium à pression atmosphérique.

Grâce à leur faible température et leur capacité à produire des radicaux, des ions, des électrons, des UV et un champ électrique, les plasmas à pression atmosphérique sont étudiés pour une large gamme d'applications biomédicales, telles que la stérilisation [25], [223], [224], le traitement de cellules cancéreuses [43], [62], [93], [225]–[229], la coagulation du sang [222], [230], [231], la cicatrisation des plaies [232]–[234] et l'odontologie [73], [235]–[237]. A l'heure actuelle, la compréhension de l'interaction du plasma avec les cellules et les tissus vivants est encore mal comprise et les mécanismes mis en jeu doivent être étudiés en détail afin de cerner cette interaction et de pouvoir un jour être capable d'utiliser de tels systèmes dans le domaine médical en tant que nouveaux traitements pour la santé humaine.

6.1 Etat de l'art

Cette étude est consacrée à la dégradation de l'ADN par un micro-jet de plasma d'hélium. L'ADN possède de nombreux avantages, comme le fait qu'il ne nécessite pas de travailler dans des conditions stériles, c'est une molécule stable et facile à obtenir. Cette étude est une première étape dans la compréhension des mécanismes d'interaction entre le jet de plasma et une macromolécule biologique.

A l'heure actuelle les études faites sur la dégradation de l'ADN par un jet de plasma montrent que les principaux responsables des dommages infligés à ce dernier sont les espèces réactives, alors que le rôle des UV est quasi négligeable [57], [58], [238]. Pour ces études [57], [238], l'ADN a été traité par la post-décharge d'un plasma RF, c'est-à-dire que seuls les neutres et le rayonnement UV sont capables d'interagir au niveau de la cible biologique. Ce qui est différent des décharges kHz, où le plasma interagit directement au niveau de l'ADN. Seuls Kurita et al [239] se sont intéressés à l'impact d'un jet pulsé kHz sur de l'ADN. Leur étude reste préliminaire et montre que plus le temps d'exposition est long, plus la molécule d'ADN est fragmentée.

Il est donc important de connaître plus en détail de quelle manière agit un micro-jet de plasma impulsif sur de l'ADN. Ce dernier subit-il des cassures simples et doubles brins ? Les espèces réactives ont-elles un rôle aussi important que pour les décharges RF ?

6.2 Quelques notions de biologie

6.2.1 L'ADN

L'acide désoxyribonucléique, communément nommé ADN, est une molécule présente dans tous les systèmes vivants à l'exception de certains virus. Elle contient toutes les informations génétiques de l'organisme qui lui permettent de se développer et de vivre. L'ADN est aussi le support de l'hérédité, car il contient toutes les informations nécessaires au développement de l'organisme. Lors de la reproduction et au cours des multiples divisions cellulaires, il est transmis à toutes les cellules filles. Au cours de la vie d'un organisme, l'ADN subit quotidiennement des dommages qui, s'ils ne sont pas correctement réparés, peuvent conduire à des mutations. Si ces mutations sont viables, elles peuvent être responsables de la diversité des individus et de l'évolution des espèces. Elles permettent également à l'organisme de mieux s'adapter à son environnement. Malheureusement, elles sont aussi à l'origine du dérèglement de la cellule ce qui peut conduire au processus tumoral ou à toute autre maladie génétique.

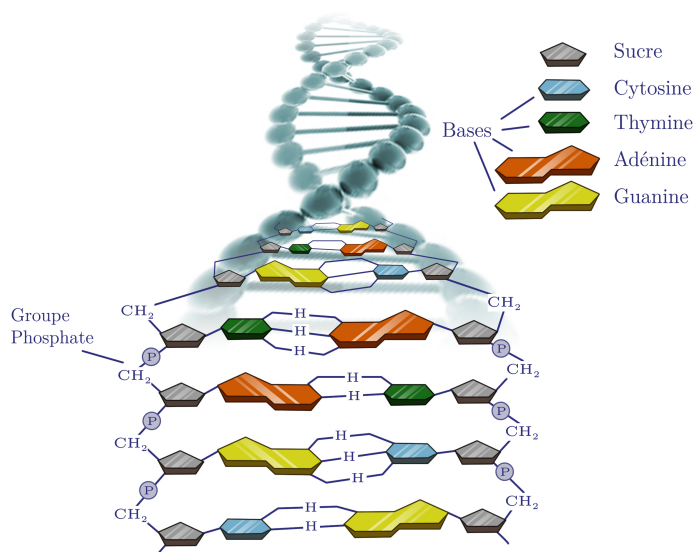


Figure 6-2 : Schéma de la molécule d'ADN.

L'ADN est constitué de deux brins complémentaires enroulés selon une structure de doubles hélices, schématisé Figure 6-2. Chaque brin est composé d'un enchaînement de nucléotides dont chacun est composé de trois éléments : un sucre, un groupe phosphate et une base azotée, dont il existe quatre sortes différentes : adénine (A), guanine (G), cytosine (C) et thymine (T) [240]. Au sein de la double hélice, l'adénine s'apparie avec la thymine en formant deux liaisons hydrogènes alors que la guanine s'apparie avec la cytosine en formant trois liaisons hydrogènes.

Comme mentionné précédemment, l'ADN peut subir différents types de dommages. Dans la suite il en sera présenté quatre. L'ADN est endommagé à partir du moment où

sa structure moléculaire est modifiée. Ces modifications peuvent se traduire soit par l'ajout d'un élément (par exemple l'oxydation ou la méthylation d'une base), soit par l'absence d'un élément (par exemple perte de la base azotée), soit par une cassure du brin d'ADN (par exemple cassure simple ou double brin).

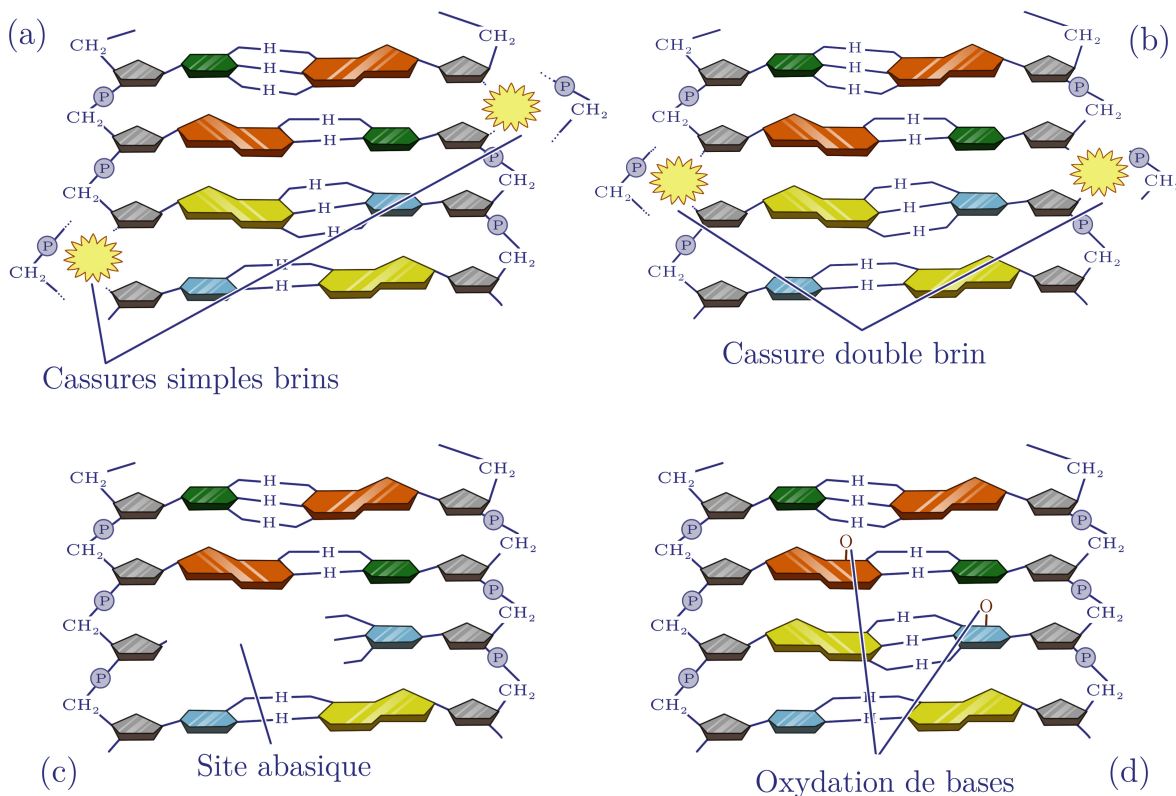


Figure 6-3 : Schéma de différents dommages que peut subir l'ADN. (a) Cassure simple brin, (b) cassure double brin, (c) site abasique, (d) oxydation de bases.

La Figure 6-3 résume les quatre dommages étudiés au cours de ce chapitre.

- La **cassure simple brin** a lieu lorsqu'une des liaisons phosphates d'un des deux brins d'ADN est rompue. (Figure 6-3 (a))
- Si chacun des deux brins d'ADN subit une cassure simple brin et qu'elles sont soit en face l'une de l'autre, comme schématisée Figure 6-3 (b), ou soit quelques paires de bases l'une de l'autre [241], alors il se forme une **cassure double brin**.
- Le **site abasique** correspond à la perte de la base azotée sans rupture du squelette sucre phosphate (Figure 6-3 (c))
- Une **base est dite oxydée** si un atome d'oxygène ou un composé chimique dérivant de l'oxygène s'y attache. (Figure 6-3 (d))

6.2.2 Les plasmides

Un plasmide est une molécule d'ADN présente majoritairement dans les bactéries. Tout comme l'ADN chromosomique, il possède la capacité de se répliquer. Par contre il est

non essentiel à la survie de la cellule, mais permet dans certains cas d'apporter des gènes d'intérêt, comme la résistance à un antibiotique [242].

L'intérêt d'étudier de l'ADN plasmidique par rapport à de l'ADN chromosomique est dû à sa plus grande facilité d'obtention et d'analyse. L'ADN plasmidique possède une taille bien inférieure à l'ADN chromosomique. Sa taille varie habituellement de 3 à $400 \cdot 10^3$ paires de bases, alors que le génome humain par exemple en possède $3 \cdot 10^9$ stockées dans 23 chromosomes. De plus, l'ADN plasmidique peut être sous trois topologies différentes : Superenroulée (SC), Circulaire (C) et Linéaire (L), comme présenté Figure 6-4. La possibilité d'observer l'ADN sous différentes formes permet de suivre de manière plus détaillée l'évolution des dommages. En effet, si l'ADN superenroulé (forme circulaire fermée) subit une cassure simple brin, il passe sous la forme circulaire du fait de la relaxation des contraintes topologiques. Et si l'ADN superenroulé ou circulaire endure une cassure double brin, il passe sous la forme linéaire. Si d'autres cassures doubles brins apparaissent, alors l'ADN est rompu en plusieurs morceaux, tous sous forme linéaire.

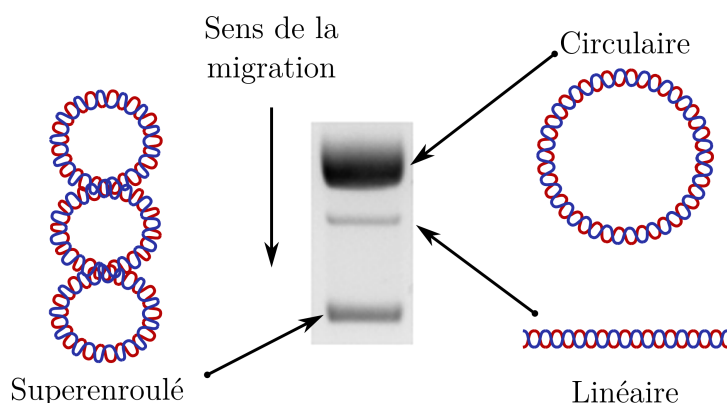


Figure 6-4 : Schéma des trois formes de l'ADN plasmidique : superenroulée, circulaire et linéaire.

L'ADN plasmidique utilisé dans cette étude est le pcDNA3.1(+) (Life Technologies) qui est composé de 5428 paires de bases. .

6.2.3 Solutions Tampons

Pour étudier l'effet du plasma sur la topologie de l'ADN, celui-ci est dilué à 20 mg/L dans une solution aqueuse tamponnée. Différentes solutions tampons ont été utilisées.

- Le tampon Phosphate Salin (**PBS**) dont la composition en fait un soluté physiologique. Sa capacité tampon qui est faible repose sur le couple dihydrogénophosphate (KH_2PO_4) / hydrogénophosphate (Na_2HPO_4) ($\text{pK}_A = 7,2$) [243]. Pour cette étude il est utilisé à une concentration de 10 mM ($M = \text{mol/L}$)
- Le tampon **Tris** (Trishydroxyméthylaminométhane) possède un pK_A compris entre 6,5 et 10 [243]. Pour cette étude, différentes concentrations ont été

étudiées (10 μ M, 100 μ M, 1 mM et 10 mM) ainsi que différents pH initiaux (6,6, 7,7 et 8,9). Il faut noter que ce tampon, quoique très utilisé en biologie, a la propriété de relâcher fortement certains ions métalliques.

- Le tampon **HEPES** (acide 4-(2-hydroxyéthyl)-1-pipérazine éthane sulfonique) est un tampon switterionique c'est-à-dire qu'il est à la fois chargé positivement et négativement dans une gamme de pH donnée. Il possède un pKa compris en 6,8 et 8,2 [243]. Durant cette étude, nous avons utilisé une solution à 10 mM avec un pH à 7,5.

6.3 Diagnostics

6.3.1 Electrophorèse

L'électrophorèse est une technique qui permet de séparer par leur masse et leur forme, les différentes structures de l'ADN (superenroulé, circulaire et linéaire). Cette technique consiste à faire migrer l'ADN à travers un tamis moléculaire, tel que le gel d'agarose, situé entre deux électrodes. L'ADN étant chargé négativement, il va migrer du pôle - vers le pôle + selon une certaine vitesse qui dépend de sa structure et de sa taille. Plus les brins d'ADN sont petits, plus ils vont migrer rapidement. Les différentes formes de l'ADN : superenroulé, circulaire et linéaire migrent aussi selon une vitesse différente due à leur topologie et aux interactions avec le gel. Comme le montre la Figure 6-4, la forme circulaire migre plus lentement que la forme linéaire, qui elle-même migre plus lentement que la forme superenroulée. L'intensité des bandes indique la concentration relative des différentes populations d'ADN. L'ADN est ensuite révélé après migration en incubant le gel d'agarose quelques minutes dans une solution de bromure d'éthidium (BET), qui est un intercalant de l'ADN. Le gel d'agarose est alors placé sur une table émettant du rayonnement UV (entre 312 et 365 nm). A ces longueurs d'onde, le BET intercalé dans l'ADN a la propriété d'émettre une lumière fluorescente. Le BET en solution est 20 fois moins fluorescent que le BET intercalé dans l'ADN.

6.3.2 Enzymes de modification de l'ADN : les glycosylases et AP endonucléase

Si l'électrophorèse en gel d'agarose permet d'identifier rapidement la présence des cassures simples et doubles brins, elle ne permet pas, par contre, de mettre en évidence les sites abasiques et l'oxydation des bases. Pour cela, il est nécessaire d'utiliser des enzymes de modification de l'ADN. Ces enzymes sont capables de repérer un site modifié spécifique au niveau de la molécule d'ADN, qui peut être par exemple l'oxydation d'une base, d'éliminer la base endommagée et de couper le squelette sucre-phosphate au niveau de la base éliminée, ce qui a pour effet d'introduire une cassure simple brin.

Les enzymes utilisées au cours de cette étude et leur fonction respective sont répertoriées dans le tableau ci-dessous.

Fpg Elimine les bases puriques oxydées (adénine et guanine) et introduit une coupure simple brin.

NTH Elimine les bases pyrimidiques oxydées (cytosine et thymine) et introduit une coupure simple brin.

APE1 Introduit une coupure simple brin au niveau d'un site abasique.

Dans le cadre de notre étude, l'ADN exposé ou non au plasma est alors traité ou non avec les différentes enzymes de modification et les différents échantillons analysés par électrophorèse. La comparaison des résultats avec et sans digestion permet de quantifier le dommage ciblé.

6.4 Dispositif

La géométrie de la décharge est la même que celle présentée au chapitre 2, mis à part au niveau de la longueur de l'électrode de masse, et est schématisée Figure 6-5.

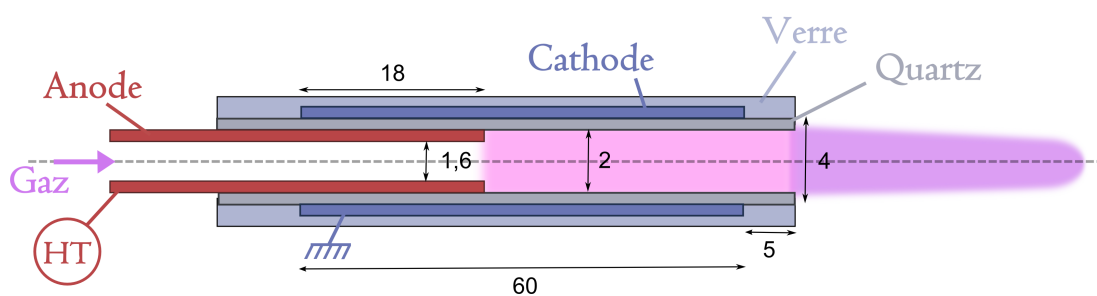


Figure 6-5 : Schéma de la décharge utilisée pour les investigations biologiques. Les dimensions sont exprimées en millimètre. HT : Haute Tension.

La taille de la décharge est plus longue que celles des décharges étudiées précédemment. L'intérêt est de pouvoir la plonger au sein d'une solution. Lorsque la décharge est immergée dans une solution, il est important d'éviter tout contact entre la solution et l'électrode haute tension. La longueur de cette électrode étant fixée par le fournisseur, le tube diélectrique a été rallongé. D'autre part, afin de guider le plasma jusqu'à la sortie du tube, la taille de l'électrode de masse a été rallongée. De plus un tube en verre a été placé autour du système afin d'isoler l'électrode de masse et d'éviter tout contact avec la solution lorsque la décharge y est plongée.

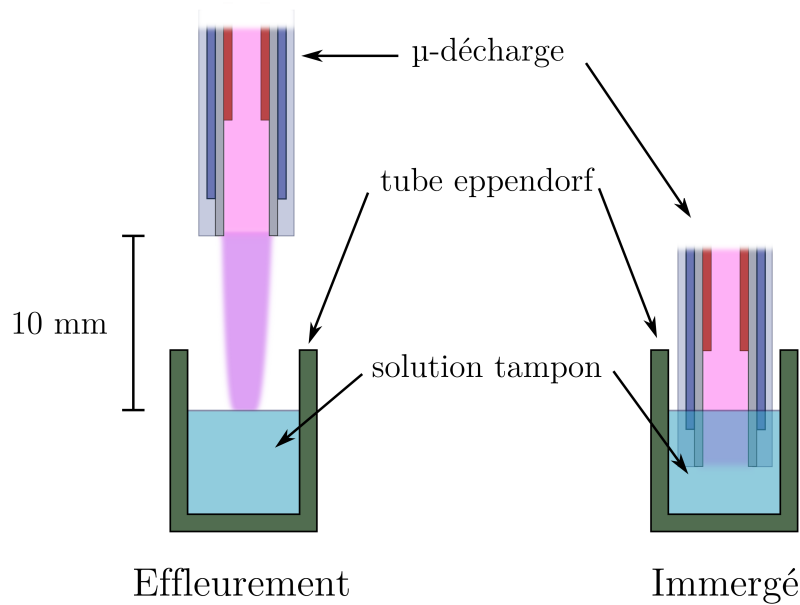


Figure 6-6 : Schéma du dispositif expérimental lorsque la décharge est en configuration « effleurement » et en configuration « immergée ».

La Figure 6-6 schématise les deux configurations étudiées : lorsque le jet effleure la solution (Effleurement) et lorsque la décharge est plongée au sein de la solution (Immergé). Dans les deux cas, nous n'observons pas de formation de plasma dans le liquide. En configuration immergée, la solution voit l'apparition de bulles à cause de l'arrivée d'hélium. Par contre en configuration effleurement, aucun remous n'est observé à la surface de la solution.

6.5 Quels sont les agents susceptibles d'induire des dommages à l'ADN ?

Les UV

L'ADN absorbe la lumière UV avec un maximum se situant à 260 nm [244], [245]. L'absorption des UV A (315 - 400 nm) et B (280 - 315 nm) induit principalement des dimères pyrimidiques [246], c'est-à-dire que deux bases pyrimidiques placées l'une à côté de l'autre au niveau de la séquence de nucléotides vont former des liaisons covalentes entre elles, et ne seront alors plus perçues comme des pyrimidines lors de la lecture du brin. Plus le rayonnement UV est énergétique, plus il est efficace pour produire ces dimères. Par contre, les UV C (100 - 280 nm) sont capables d'induire des cassures simples et doubles brins [58], [247], car l'énergie apportées par ces photons est suffisamment grande pour créer une rupture du squelette sucre phosphate.

Les espèces réactive de l'oxygène et de l'azote

Les espèces réactives de l'oxygène (ROS) et de l'azote (RNS) sont capables d'induire de manière directe ou indirecte des dommages à l'ADN. Elles vont soit réagir avec l'ADN

et changer sa structure moléculaire, par exemple en oxydant une base, soit agir avec le milieu environnant, en créant des sous produits capables à leur tour d'interagir avec l'ADN et de lui causer des dommages.

Les atomes métastables d'hélium et ses dérivés (He^m , He_2^m ,...)

Pour induire une cassure simple brin, une liaison C-C, C-O, ou O-P (C pour carbone, O pour oxygène et P pour phosphate) doit être brisée. L'énergie de ces liaisons est compris entre 3 et 5 eV [248]. Comme il a été dit au chapitre 3, les atomes métastables d'hélium sont capables de stocker une énergie de 20 eV qui est suffisante pour induire des cassures simples brins au niveau de l'ADN.

Le champ électrique

A l'heure actuelle aucune étude n'a montré qu'un champ électrique d'une valeur de 10 kV/cm [104] n'est pas capable d'induire un des quatre dommages étudiés dans ce chapitre. Nous ne pouvons donc pas exclure ce paramètre.

Les électrons

Les électrons de ce plasma possèdent une énergie comprise entre quelques eV à quelques dizaines d'eV [104]. Ce niveau d'énergie est suffisant pour induire des dommages au niveau de l'ADN [249]–[251].

Les ions

Tout comme les espèces réactives, les ions sont capables d'induire de manière directe ou indirecte des dommages à l'ADN.

6.6 Résultats

6.6.1 Premiers résultats

Afin de connaître les effets du plasma sur de l'ADN plasmidique, le jet de plasma a été placé en condition « Effleurement » pour un débit de 1 slm et une tension de 4 kV.

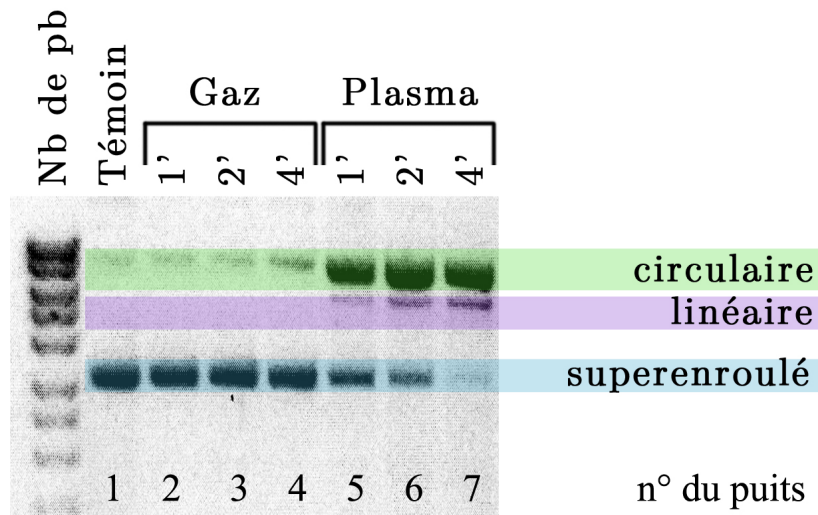


Figure 6-7 : Migration sur gel d'agarose des différentes populations d'ADN, pour différents temps de traitement pour une tension de 4 kV et un débit de 1 slm. L'ADN est dilué dans du Tris 1mM, pH 7,7. (pb : paire de base)

La Figure 6-7 représente la migration de l'ADN par électrophorèse pour différents temps de traitement et pour différentes conditions : lorsqu'il n'y a que de l'hélium (Gaz) et lorsque le plasma est allumé (plasma). Le témoin représente le cas où l'ADN n'a pas été traité. Ce dernier révèle que l'ADN est majoritairement composé d'ADN sous forme superenroulée et d'une faible partie sous forme circulaire. En l'absence de plasma, c'est-à-dire lorsque la tension appliquée est nulle, l'hélium n'inflige pas de cassures directes, ou très peu (comparaison du témoin, puits n°1, et la condition à 4 minutes, puits n°4). Par contre lorsque la décharge est allumée, au bout de 1 minute l'ADN est majoritairement sous forme circulaire, manifestant que l'ADN a subi des cassures simples brins tandis qu'une faible proportion de l'ADN est sous forme linéaire indiquant la formation de cassures doubles brins. Plus le temps de traitement est long, plus la proportion d'ADN superenroulé diminue jusqu'à quasiment disparaître au bout de 4 minutes, alors que la proportion d'ADN linéaire augmente. Ces résultats montrent que le plasma génère principalement des cassures simples brins qui peuvent être, en augmentant le temps de traitement, converties en cassures doubles brins.

Comme il a été expliqué dans le paragraphe 6.5, les cassures simples et doubles brins ne sont pas les seuls dommages de base potentiellement formés par le plasma. Certaines bases de l'ADN peuvent avoir été oxydées et d'autres peuvent être manquantes (sites abasiques). Afin de mettre en évidence ou non ces dommages de base, l'ADN a été digéré par trois enzymes différentes : Fpg, NTH et APE1. Le résultat des différentes digestions est exposé Figure 6-8.

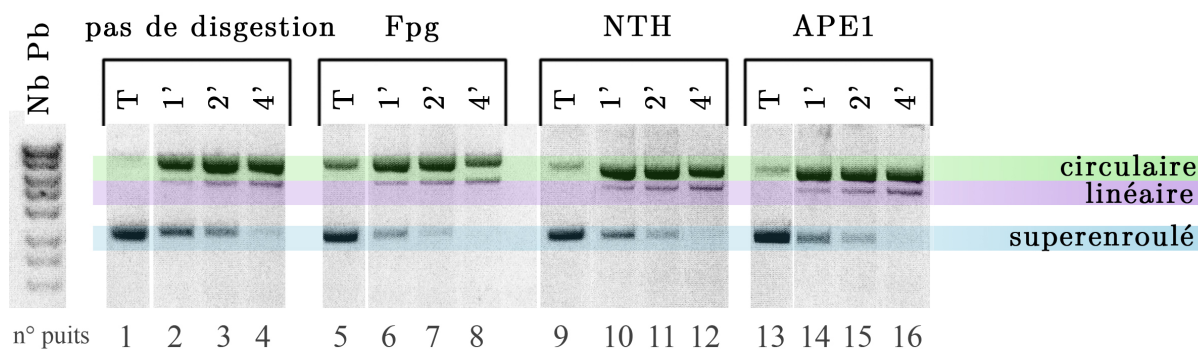


Figure 6-8 : Migration sur gel d'agarose des différentes populations d'ADN après différents temps de traitement. La tension est de 4 kV et le débit d'hélium de 1 slm. L'ADN est dilué dans du tampon Tris à 1mM pH 7,7. Les échantillons correspondant aux résultats de la Figure 6-7 ont été digérés par différentes enzymes : Fpg, NTH et APE1.

On constate que la digestion par Fpg de l'ADN témoin (puits 5) se traduit par une légère augmentation de la forme circulaire et une légère diminution de la forme superenroulée en comparaison avec l'ADN témoin non digéré (puits 1). Cette légère variation de chacune des deux formes est aussi observable après traitement de l'ADN plasmidique par les enzymes Nth (puits 9) et Ape1 (puits 13). Ceci indique que certaines bases de l'ADN plasmidique, même en absence de traitement plasma, sont déjà oxydées en solution. Par contre, il est surprenant que le traitement plasma ne semble pas induire de dommages de bases (oxydations ou sites abasiques) reconnus par ces enzymes. Ces premiers résultats montrent que dans nos conditions expérimentales, le plasma utilisé cause principalement des cassures simples et doubles brins.

L'oxygène singulet, $O_2(a^1\Delta_g)$ a été mesuré au sein de la post décharge de ce plasma [252] et sa densité s'élève à quelques 10^{14} cm^{-3} . D'autre part, en utilisant la post décharge d'un réseau de micro-décharges de type MHCD (Micro Hollow Cathode Discharge) Sousa et al [253] ont montré que l'oxygène singulet (SDO) et l'ozone (O_3) avaient un fort impact au niveau de l'oxydation des bases et des cassures doubles brins. Ils ont mesuré respectivement une densité de SDO et de O_3 en post décharge de 10^{17} cm^{-3} et de 10^{16} cm^{-3} . De plus, ils ont observé que le SDO oxyde principalement la guanine, alors que l'ozone oxyde sans différenciation les quatre bases. Or dans notre cas, nous sommes dans une configuration différente. La solution est traitée par le plasma et non par l'effluent gazeux résultant de la post-décharge. D'autre part, les densités mises en jeu sont drastiquement différentes. Il y a plus de trois ordres de grandeurs entre la densité de SDO mesurées par Sousa et al par rapport à celle mesurée dans notre cas. Vu cet écart, il est possible de supposer qu'il en est de même pour l'ozone. Cette différence de densité pourrait expliquer pourquoi nous n'observons pas de différence avant et après digestion des enzymes. Les espèces réactives dans notre cas ne produisent ni d'oxydation de bases, ni de sites abasiques détectables.

Dans le but de savoir si ces cassures sont directement induites par le plasma ou par des sous produits à longue durée de vie créés par l'interaction du plasma avec la solution tampon, celle-ci est d'abord exposée au plasma, puis l'ADN est ajouté à la solution. Ces résultats sont présentés Figure 6-9 et montrent qu'il n'y a quasiment pas de différence entre le témoin et les différents temps de traitement. L'ADN reste principalement sous forme superenroulée. Ces résultats montrent très clairement que l'interaction du plasma avec la solution tampon ne génère pas de sous produits à longue durée de vie susceptibles de casser l'ADN. Ces cassures de brins sont donc probablement directement produites par un ou plusieurs composants du plasma, même si on ne peut exclure complètement la participation de sous produits à courte durée de vie. Ce résultat est différent de ceux obtenus par Oehmigen et al [254] : ils ont montré que l'évolution du nombre de bactéries viables au cours du temps est très proche lorsqu'ils traitent par plasma la solution en présence des bactéries, et lorsque les bactéries sont ajoutées après traitement du milieu. Ces résultats montrent que le plasma induit des modifications dans le milieu capables d'induire des dommages sur la cible biologique.

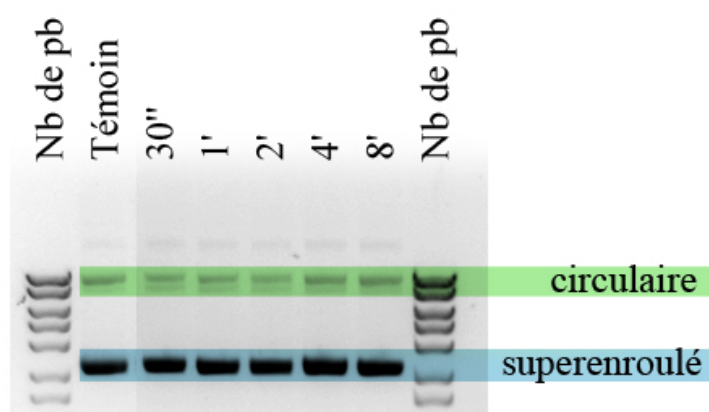


Figure 6-9 : Migration sur gel d'agarose des différentes populations d'ADN pour différents temps de traitement. L'ADN a été ajouté dès que la solution tampon a été traitée. La tension est de 4 kV et le débit de 1 slm. L'ADN est dilué dans du tampon PBS à 10 mM pH 7,2.

Il faut noter que les résultats présentés sur la Figure 6-7, la Figure 6-8 et la Figure 6-9 n'ont pas été obtenus pour une même solution tampon. Mais comme il va l'être expliqué au paragraphe suivant, ceci ne pose pas de problème au niveau de l'interprétation des résultats.

6.6.2 Choix de la solution tampon

Comme nous l'avons présenté dans le paragraphe 6.2.3, il existe de multiples solutions tampons et chacune d'elles peut avoir une influence différente sur les dégâts causés par le plasma. Afin de tester cette hypothèse, l'ADN plasmidique a été dilué dans différentes solutions aqueuses (H₂O, PBS, HEPES et Tris) et exposé au plasma. Par

ailleurs, l'effet de la concentration de la solution tampon a également été testé en diluant l'ADN dans des solutions de Tris pH 7,7 à 10 μM , 100 μM et 1 mM.

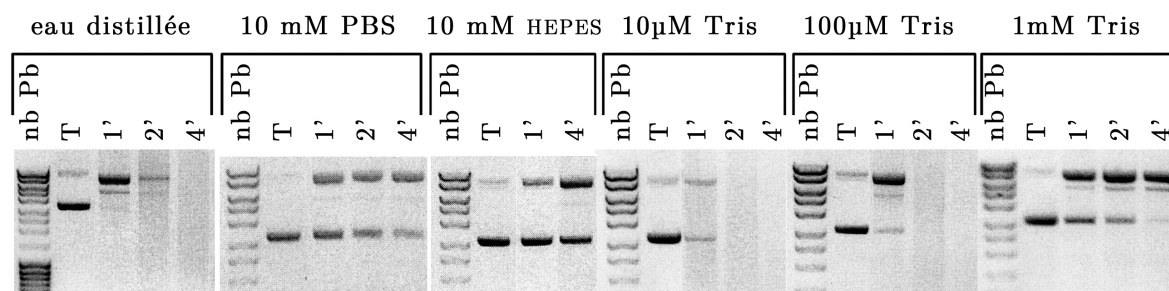


Figure 6-10 : Migration sur gel d'agarose des différentes populations d'ADN, pour différents temps de traitement, pour une tension de 4 kV et un débit de 1 slm d'hélium pour différentes solutions tampons.

Les résultats présentés à la Figure 6-10 montrent que plus la solution tampon est diluée, plus les dégâts causés à l'ADN sont importants. Ainsi, le maximum de cassures est observé lorsque l'ADN est dilué dans de l' H_2O ou dans 10 μM de Tris, et le minimum de cassures observé en PBS ou HEPES 10 mM. La digestion de l'ADN plasmidique dans ces différentes conditions par les enzymes Fpg, Nth et APE1 a également montré qu'il y a très peu d'oxydation de bases et de sites abasiques (données non montrées). Par ailleurs, pour la solution d'eau distillée, qui est la seule solution parmi celle étudiée à ne pas être une solution tampon, et pour les solutions de Tris à 10 et 100 μM , l'ADN est très fortement fragmenté au bout de 2 minutes de traitement. En effet, on n'observe plus (conditions Tris 10 et 100 μM) ou très peu (condition H_2O) d'ADN dans ces conditions. A l'inverse, même au bout de 4 minutes de traitement, on observe encore de l'ADN superenroulé en tampon PBS ou HEPES 10 mM.

Une des hypothèses pour expliquer l'effet « dilution du tampon » sur la résistance ou non de l'ADN plasmidique au traitement par le plasma tient au nombre de cibles présentes. En effet, 200 μL d'une solution de Tris à 0,01, 0,1 et 1 mM contiennent respectivement $1,2 \cdot 10^{15}$, $1,2 \cdot 10^{16}$ et $1,2 \cdot 10^{17}$ molécules de Trishydroxyméthylaminométhane, alors que dans ce même volume il y a environ $3,4 \cdot 10^{11}$ molécules d'ADN : donc plus la concentration du tampon est importante, plus le nombre de molécules qui peuvent interagir avec le plasma est grand et plus il y a compétition entre ces molécules et l'ADN.

D'autre part ces résultats montrent que selon la solution aqueuse utilisée, le type de dommages induits à l'ADN reste inchangé. Le plasma induit principalement des cassures simples et doubles brins, et très peu d'oxydation de bases ou de sites abasiques.

6.6.3 Variation du pH

Nous avons aussi testé l'effet du plasma sur le pH des solutions tampons utilisées. En effet, dans une solution tampon le pH est constant à la condition que l'ajout de bases ou d'acides ne soit pas considérable. Il est important de connaître le pH de la solution, car bien que celui-ci ne cause pas de cassures simples et doubles brins [255], l'acidification ou l'alcalinisation d'un milieu peut favoriser certaines réactions dont les produits pourraient causer des dommages à l'ADN.

Pour ce faire, des solutions de Tris 10 mM à pH 6,6, 7,7 et 8,9 ont été préparées et exposées au plasma pour différents temps de traitement. Ces résultats sont comparés à ceux obtenus en utilisant une solution de PBS 10 mM pH 7,2. La Figure 6-11 présente l'évolution du pH selon le temps de traitement pour ces différentes solutions tampons.

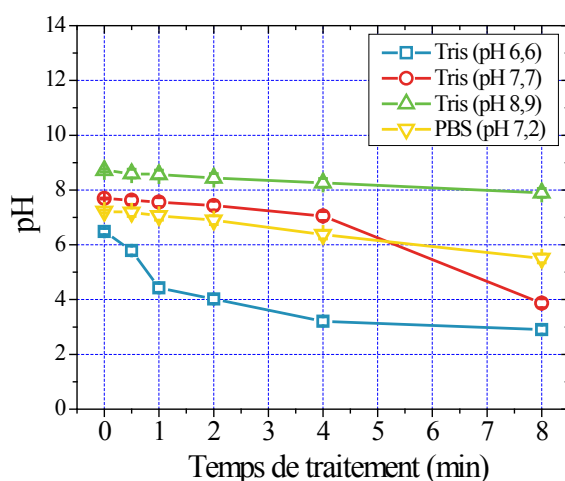


Figure 6-11 : Evolution du pH au cours du temps pour différentes solutions tampons. (10 mM Tris; pH 6,6/7,7/8,9, et PBS pH 7,2) en configuration effleurement. La tension est de 5 kV et le débit d'hélium de 1 slm.

On constate que quelque que soit la solution tampon utilisée (Tris ou PBS) le pH de la solution évolue peu, au moins pendant les 4 premières minutes de traitement par le plasma, si le pH initial de la solution est supérieur à 7. En effet, pour la solution Tris 10 mM pH 6,6, le pH chute progressivement au cours du temps de traitement pour atteindre une valeur plateau d'environ 3 au bout de 4 min. Au bout de 8 minutes de traitement, on constate que le pH de la solution Tris pH 7,7 a également fortement chuté pour atteindre une valeur d'environ 4. Les résultats de la Figure 6-11 suggèrent donc que plus le pH de départ est basique, moins l'évolution du pH est grande. Cette baisse de pH induite par l'interaction du plasma au niveau de la solution est probablement due à la formation de l'acide nitrique, HNO_3 , et nitreux, HNO_2 [256]–[259]. De plus il serait intéressant de savoir si cela provient d'une modification de la fonction amine $-\text{NH}_2$ de la molécule de Tris.

Nous avons alors voulu connaître l'effet de la variation du pH sur la conformation de l'ADN plasmidique. Pour ce faire, l'ADN a été dilué dans différentes solutions de Tris 10 mM à pH 8,9, 7,7 ou 6,6 et exposé pendant différents temps de traitement au plasma.

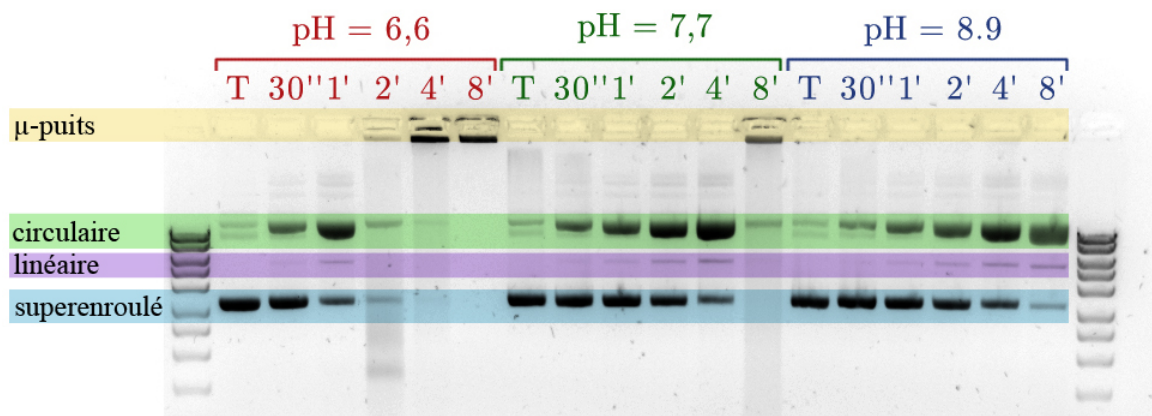


Figure 6-12 : Migration sur gel d'agarose des différentes populations d'ADN pour différents temps de traitement et pour différentes solutions à 10 mM de tris à différents pH initiaux. La tension est de 5 kV et le débit d'hélium de 1 slm.

La Figure 6-12 représente la migration de l'ADN sous ses différentes formes selon le temps de traitement. Au bout de 30 secondes de traitement, temps pendant lequel le pH des différentes solutions n'a pas ou très peu évolué (voir Figure 6-11), on constate que la forme superenroulée est la forme majoritaire quelque soit le pH initial (Figure 6-12). Au bout de 1 min de traitement, la forme circulaire devient la forme majoritaire dans la solution Tris dont le pH initial était 6,6. Or, d'après les variations de pH décrites Figure 6-11, on constate que le pH de cette solution est environ de 4 après 1 minute de traitement. Au bout de 2 minutes de traitement, pour la solution Tris à pH initial 6,6, une partie de l'ADN n'a pas migrée et est restée dans le puits. Il en est de même pour les temps de traitement plus longs, et pour la condition à 8 minutes en Tris pH 7,7. Ceci est probablement dû au fait que l'ADN ne porte plus suffisamment de charges négatives pour migrer. Ces charges sont portées par les groupes phosphates qui sont capables de porter jusqu'à deux charges chacun selon le pH. Plus le pH est acide, moins le groupe phosphate est négativement chargé [260]. D'après la Figure 6-11 et la Figure 6-12, les conditions où l'ADN ne migre pas correspondent à une situation où le pH est inférieur ou égale à 4.

D'autre part, nous avons quantifié la répartition des différentes populations d'ADN plasmidique (Superenroulé, Circulaire et Linéaire) en fonction du temps de traitement pour les solutions de Tris à pH initial 7,7 et 8,9. Comme le montre la Figure 6-13, l'évolution des différentes populations est très similaire que le pH initial soit à 7,7 ou à 8,9, révélant que le nombre de cassures simples et doubles brins sont du même ordre pour ces deux conditions.

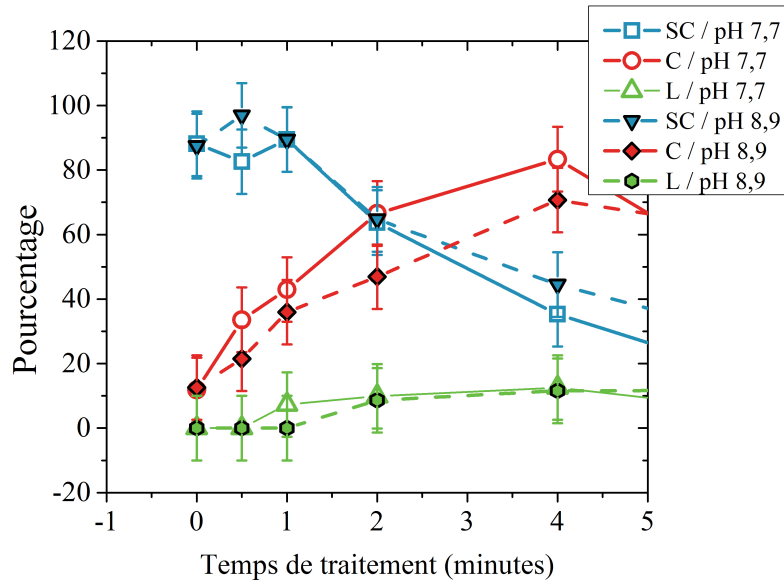


Figure 6-13 : Pourcentage d'ADN sous ses différentes formes pour différents temps de traitement et pour des solutions de Tris 10 mM à pH 7,7 et 8,9. Les points bleus représentent la population d'ADN superenroulé (SC), les roses d'ADN circulaire (C) et les oranges d'ADN linéaire (L). La tension est de 5 kV et le débit d'hélium de 1 slm.

En conclusion, nos résultats montrent que la formation des cassures simples et doubles brins est dépendante de la composition chimique de la solution tampon utilisée, de sa concentration ainsi que de son pH, lorsque ce dernier est inférieur à 7.

6.6.4 Comparaison d'un jet immergé et en effleurement

Précédemment, nous avons étudié les effets que peuvent induire le plasma en configuration « effleurement ». Dans cette partie nous comparons ces résultats avec ceux obtenus lorsque la décharge est immergée dans la solution afin de savoir s'il y a des différences entre ces deux configurations. Cette comparaison est présentée Figure 6-14 pour une tension appliquée de 5 kV et un débit d'hélium de 1 slm. Nous observons que l'ADN superenroulé a complètement disparu au bout de 2 minutes en configuration immergée (triangles bleus), alors qu'en effleurement, il faut attendre 8 minutes (carrés bleus) pour atteindre ce niveau de dommages. De même l'évolution générale de la population d'ADN circulaire et linéaire, selon le temps de traitement, démontre qu'il y a plus de cassures en configuration immergée qu'en effleurement.

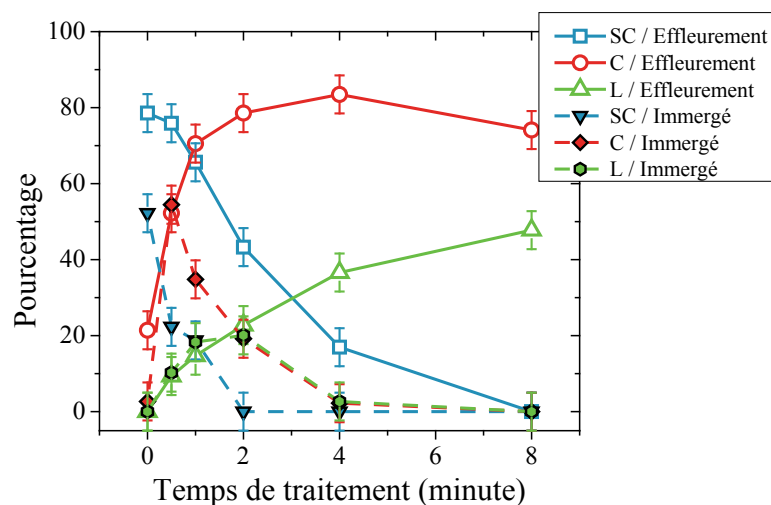


Figure 6-14 : Pourcentage des différentes populations d'ADN, au cours du temps en configuration immergée et effleurement. L'ADN est dilué dans une solution tampon 10 mM PBS pH 7,2. La tension est de 5 kV et le débit d'hélium de 1 slm. SC= superenroulé ; C= circulaire ; L= linéaire.

Cette différence entre ces deux configurations peut s'expliquer par la surface d'interaction entre le plasma et la solution. En configuration effleurement, il n'y a pas de remous visibles et la solution est plus stable qu'en configuration immergée, où elle bulle et où beaucoup de remous sont présents. A cause de ce bullage, la surface d'interaction entre le plasma et le liquide est plus importante, car elle ne se limite pas au diamètre du jet. D'autre part, les remous favorisent le mélange avec les différentes espèces créées par le plasma ; ce qui doit améliorer leur pénétration au sein de la solution. A l'inverse en effleurement, dû à l'absence de remous, la diffusion des espèces dans la solution est probablement plus restreinte et elles ne doivent pas interagir avec la solution dans sa globalité.

6.6.5 Ajout d'oxygène

Les ROS sont étudiés pour leurs actions thérapeutiques dans divers domaines médicaux [261], comme en cancérologie [62]. Contrairement à d'autres types de plasma [62], [262], [263], celui que nous utilisons ne doit pas générer de ROS en quantités suffisantes ou suffisamment réactives pour endommager l'ADN. Dans le but de connaître l'impact que peuvent avoir les ROS créés par le jet de plasma sur de l'ADN plasmidique, un faible pourcentage d'oxygène est ajouté à la composition du gaz. Cet ajout va avoir comme conséquence de détruire en grande partie les atomes métastables d'hélium.

La Figure 6-15 représente la proportion d'ADN sous ses trois formes selon le débit d'oxygène pour un temps de traitement de 8 minutes lorsque le jet effleure la solution. Pour chaque condition, l'ADN est ensuite traité ou non par la protéine Fpg afin de

révéler la formation de purines oxydées. Les résultats montrent que l'ajout de 0 à 10 sccm d'O₂ n'a que très peu d'effet sur le nombre de cassures, et que celles-ci ne sont pas augmentées après incubation avec la protéine Fpg. Ces résultats suggèrent que le plasma ne génère pas d'espèces réactives de l'oxygène capable d'oxyder l'ADN.

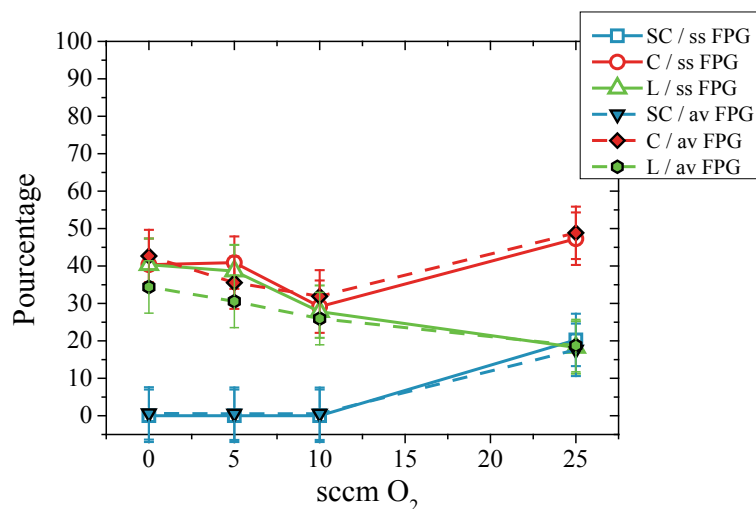


Figure 6-15 : Pourcentage d'ADN selon ses différentes formes en fonction du débit d'oxygène. Configuration effleurement pour une solution tampon de PBS à 10 mM et pH 7,2. Le temps de traitement est de 8 minutes. Tension appliquée 5 kV et débit de 1 slm d'hélium. A 25 sccm d'O₂, le plasma ne touche pas la solution. L : ADN linéaire, C : ADN circulaire, SC : ADN superenroulé.

D'autre part, on constate que l'ajout de 25 sccm d'O₂ a pour effet de réduire le nombre de cassures puisque l'on observe un nombre plus important d'ADN dans la forme superenroulée et circulaire et moins dans la forme linéaire par rapport à une expérience sans ajout d'oxygène. Ceci est probablement dû au fait que dans ce cas le plasma ne touche pas la solution. Comme nous l'avons vu au chapitre 3, l'ajout d'oxygène a comme conséquence de diminuer la longueur de propagation du plasma. Pour 25 sccm d'oxygène, le plasma possède une longueur inférieure à 10 mm, ce qui ne lui permet pas d'interagir avec la solution.

Nous avons également réalisé ces expériences lorsque le jet est immergé dans la solution. Dans ces conditions expérimentales, le comportement du plasma vis-à-vis de l'ADN est radicalement différent lorsque de l'oxygène est ajouté (Figure 1-18).

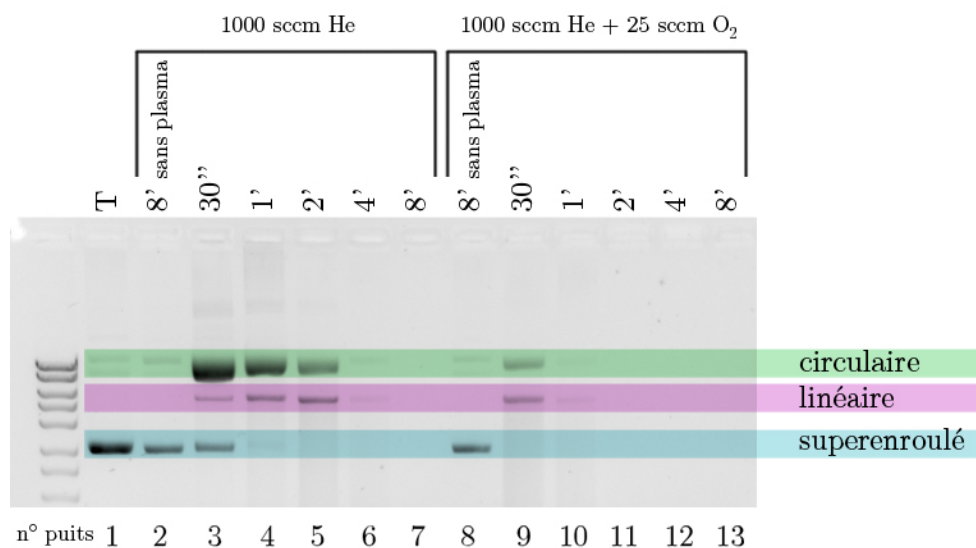


Figure 6-16 : Migration sur gel d'agarose des différentes populations d'ADN pour différents temps de traitement pour un débit de 1000 sccm d'hélium en configuration immergée (puits 2 à 7) et avec 25 sccm d'oxygène (puits 8 à 13). La tension appliquée est de 5 kV. La solution tampon est du PBS à 10 mM.

Contrairement à ce que l'on a décrit pour la situation « effleurement », l'ajout de 25 sccm d'oxygène en immersion augmente fortement le nombre de cassures doubles et simples brins. Dès 1 minutes de traitement (puits n°10 à comparer avec le puits n°4 qui représente la condition sans ajout d'oxygène), l'ADN est fragmenté en de multiples morceaux et plus aucun plasmide d'ADN n'est sous forme superenroulée, ou circulaire et moins de 10% des plasmides restants sont linéaires. De plus à 25 sccm d'oxygène, le plasma ne touche pas la solution, même en immergé. Il reste confiné en amont de la décharge. L'ajout d'oxygène doit probablement augmenter la densité de ROS créés par la décharge, et grâce au remous et au bullage, ces espèces réactives pénètrent de façon plus efficace dans la solution et agissent plus aisément au niveau de l'ADN, lui causant alors plus de dommages.

Ce résultat va à l'encontre du précédent et rend son interprétation peu évidente, car en configuration « effleurement » l'ajout d'oxygène induit peu de différence par rapport à un plasma d'hélium pur, tandis qu'en configuration « immergée » l'ajout d'oxygène augmente drastiquement le nombre de dommages. Le plasma obtenu en configuration « effleurement » et celui en configuration « immergée » ne doivent pas être comparables. Nastuta et al [42] ont montré que l'ajout d'une plaque métallique reliée à la masse modifie la structure du plasma. La solution, selon la configuration, est peut être perçue de manière différente par le plasma, ce qui aurait comme conséquence de modifier fortement son comportement, et ainsi de modifier les espèces créées par le plasma. L'interprétation de ces résultats demande donc plus d'investigations à ce sujet afin de savoir quelle est la cause de ces résultats.

D'autre part, pour les deux configurations, la digestion par l'enzyme FPG révèle qu'il n'y a pas d'oxydation de bases puriques lorsque de l'oxygène est ajouté. Pourtant l'ajout d'oxygène doit induire une augmentation des ROS, qui sont connues pour leur effet oxydant [261]. Ce résultat peut s'interpréter de la manière suivante : soit l'ajout d'oxygène n'induit pas une augmentation significative des ROS dans la solution, soit les espèces créées n'induisent pas d'oxydation, soit les dommages oxydatifs ne sont pas reconnus par l'enzyme FPG.

6.7 Résumé, conclusion et perspectives

Cette étude a mis en évidence que ce plasma induit majoritairement des cassures simples et doubles brins. Tandis que la digestion par des enzymes de modifications de l'ADN révèle qu'il y a très peu d'oxydation de base et de sites abasiques. Par ailleurs, le nombre de cassures simples et doubles brins est dépendant de la composition chimique de la solution tampon utilisée, de sa concentration et de son pH initial.

Par la suite, nous nous sommes intéressés aux effets du plasma sur l'ADN lorsque la décharge est immergée au sein de la solution. La comparaison des deux configurations : effleurement et immergée, nous apprend que pour un même temps de traitement la configuration immergée induit un plus grand nombre de cassures qu'en configuration effleurement, ce qui est probablement dû à une meilleure pénétration des espèces et à une plus grande surface d'interaction entre le plasma et la solution.

Pour finir, l'ajout d'oxygène au sein de la décharge a révélé que le nombre de cassures est peu modifié en configuration effleurement, alors qu'il augmente fortement en configuration immergée. Ce dernier point étant encore mal compris, il demande à être étudié plus en détail.

Afin de compléter cette étude et d'améliorer la compréhension de certains résultats, il serait intéressant d'une part de quantifier les radicaux présents au sein du jet selon le pourcentage d'oxygène ajouté à la solution. De même, la quantification des espèces présentes au sein de la solution permettrait de connaître les responsables des dommages induits à l'ADN. D'autre part, l'analyse par spectroscopie de masse de l'ADN permettrait de donner des réponses exactes sur la nature des cassures et principalement au niveau de l'oxydation des bases.

Conclusions et perspectives

La physique des micro-jets de plasma à pression atmosphérique est étudiée de manière conséquente depuis 2005. Ce domaine de recherche innovant est en expansion et a fortement évolué lors de ces trois années de thèse. En particulier, l'apparition de modèles numériques a permis de montrer que la propagation des « balles de plasma », observées pour les jets kHz, est due à une propagation analogue à celle des streamers positifs.

Durant ce travail de thèse, il a été mis en place différents diagnostics permettant de sonder le plasma de manière très précise, bien que ses dimensions soient de l'ordre de la centaine de micromètres et que l'analyse temporelle de l'évolution de ce plasma demande une résolution de quelques nanosecondes.

Afin de connaître quels paramètres (tension appliquée, débit de gaz, ajout de gaz moléculaire et position des électrodes) induisent une modification de la distance et de la vitesse de propagation du plasma des diagnostics d'imagerie ont été effectués. Ces derniers montrent que la vitesse de propagation du plasma est comprise entre $0,5 \cdot 10^5$ et $2 \cdot 10^5$ m/s, prouvant que les processus liés à cette propagation sont bien de nature électrique. De plus, les mesures électriques ont révélé que l'évolution de la vitesse est liée à celle de la tension appliquée, ce qui confirme expérimentalement que la tête du streamer n'est pas déconnectée de l'électrode haute tension.

La tension appliquée induit un accroissement de la distance et de la vitesse de propagation du plasma, alors que la variation du débit affecte la longueur du jet et très peu la vitesse. Si le débit de gaz dépasse un certain seuil, le plasma change de régime et l'écoulement du gaz semble ne plus être selon un régime laminaire. De plus, les diagnostics strioscopiques montrent que la présence du plasma modifie l'écoulement du gaz, faisant déplacer le point de transition entre les régimes laminaire et turbulent.

Puis, nous nous sommes intéressés à l'ajout de gaz moléculaires (oxygène, azote et air) au sein de la décharge. Il s'est avéré que la distance de propagation est sensible à ce paramètre et, diminue avec. Ceci est dû à la valeur du champ électrique requis pour la propagation du streamer, car ce dernier augmente avec l'ajout de ces gaz. À l'inverse, l'ajout de 1 à 10% de ces gaz n'induit pas une modification importante au niveau de la vitesse de propagation du plasma.

D'autre part, le déplacement des électrodes induit une modification de la longueur et de la vitesse de propagation. Plus l'électrode externe est proche de l'extrémité du tube diélectrique, plus la longueur, la vitesse de propagation et l'énergie transférée au plasma sont importantes, alors que la capacité de la décharge diminue. Ce dernier point reste encore inexplicé, et doit être étudié plus en détail. Seule une modélisation détaillée prenant en compte l'ensemble des paramètres (géométrie, forme de la tension

appliquée,...) permettrait d'identifier avec précision l'origine physique des évolutions observées.

Par la suite, nous nous sommes intéressés à la mesure quantitative des atomes métastables d'hélium au sein du plasma. Ces derniers jouent un rôle important au niveau de la chimie du plasma. Ils sont responsables de la création de plusieurs espèces réactives. Afin de quantifier la densité des atomes métastables d'hélium au sein de ce plasma, nous avons mis en place un système de détection basé sur un diagnostic de spectroscopie d'absorption. Grâce à une résolution spatio-temporelle très fine, nous avons pu réaliser une cartographie complète du plasma au cours du temps. Les mesures d'absorption temporelles couplées à un modèle 0D ont permis de montrer que les atomes métastables d'hélium sont issus de la collision électronique directe et de la cascade radiative depuis l'état 2^3P de l'hélium. La densité des atomes métastables d'hélium mesurée au sein de ce plasma est comprise entre 1.10^{12} et 5.10^{13} cm^{-3} . D'autre part, la symétrie cylindrique de la décharge nous a permis de calculer la densité locale des atomes métastables d'hélium par le biais d'une inversion d'Abel. Le résultat de cette inversion montre que la distribution est annulaire en sortie de décharge, se refermant progressivement le long de la propagation du plasma.

Afin de compléter cette étude, nous avons également effectué des mesures d'imagerie filtrées en longueur d'onde. Ces dernières ont montré que les distributions de l'émission lumineuse des états excités de l'hélium, de l'oxygène atomique et de l'ion moléculaire d'azote sont similaires à celles des atomes métastables d'hélium ; révélant que la création de ces espèces, excepté l'hélium excité qui est peuplé de la même manière que les atomes métastables, est majoritairement due à des réactions faisant intervenir les atomes métastables d'hélium. Au contraire, l'émission des états excités de l'azote suit un profil différent, qui est dépend du champ électrique local et de la densité de l'azote. Les atomes métastables d'hélium ne suivent pas cette distribution, car ils sont très sensibles au taux d'impuretés. Si ce taux est trop élevé (quelques pourcents d'air), les atomes métastables sont directement détruits et ne sont pas mesurables. Par conséquent, cette mesure est seulement réalisable dans la zone où le taux d'impuretés est très faible. Cette zone est visible à l'œil nu, et prend la forme d'un cône rose. Pour des tensions élevées, ce cône ne couvre pas la totalité du plasma : une zone de couleur « violette » est visible à son extrémité. Les diagnostics spectroscopiques et d'imagerie filtrée en longueur d'onde ont montré que l'émission lumineuse provenant de ce cône est principalement due à celle de l'ion moléculaire d'azote, tandis que la partie « violette » est due à l'émission de l'azote excité.

En conclusion, cette étude a ainsi fourni une cartographie complète des atomes métastables d'hélium au sein du jet de plasma. Afin de compléter la caractérisation de ce jet, il serait intéressant de mesurer quantitativement d'autres espèces, comme OH, O, $O_2(a^1\Delta_g)$, O_3 , NO et la densité électronique.

D'autre part, dans le but d'élargir ce travail au domaine appliqué, nous nous sommes intéressés à l'interaction de deux jets de plasma. En effet certains dispositifs, comme des matrices 1D ou 2D de jets de plasma cherchent à éviter l'interaction entre les plasmas. A l'inverse, d'autres applications recherchent cette interaction afin d'améliorer et de contrôler l'énergie déposée par le plasma. Afin d'étudier cette interaction, nous avons analysé le comportement de deux micro-jets de plasma se contre propageant dans l'air ambiant.

Nous avons montré, par le biais de diagnostics d'imagerie rapide, que deux jets de plasma placés l'un en face de l'autre ne se rencontrent pas, et laissent entre eux une zone sans plasma, dont la taille est proche du diamètre des streamers. Cette observation est confirmée par les modèles numériques.

D'autre part, en l'absence de problème hydrodynamique, c'est-à-dire lorsque la confrontation des deux plasmas se déroule dans un flux unique d'hélium en régime laminaire, une lueur rose apparaît entre les deux jets de plasma. Les diagnostics d'imagerie, spectroscopiques et électriques, nous ont permis d'affirmer que cette lueur correspond à l'émission d'une seconde décharge. Cette dernière est due à un changement de polarité de l'électrode se déroulant quelques dizaines de nanosecondes après l'extinction des deux streamers. Lors de l'inversion de courant, les électrons créés par les précédents streamers sont accélérés vers le centre du dispositif et amorcent une seconde décharge. L'accélération de ces électrons n'est pas suffisante pour créer des électrons aussi énergétiques que celle de la propagation du streamer et leur fonction de distribution est alors décalée vers les basses énergies. Ainsi, les états à plus faible niveau d'énergie, ceux de l'azote par exemple, sont peuplés de manière plus conséquente que les niveaux de plus haute énergie tels que ceux des états excités de l'hélium, de l'oxygène atomique et de l'ion moléculaire d'azote.

Pour finir, ces résultats ont mis en évidence l'existence d'une interaction forte entre les processus hydrodynamiques et électrodynamiques. Cette interaction est complexe et son étude détaillée permettrait de comprendre plus précisément la physique gouvernant ce plasma.

Par ailleurs, nous nous sommes intéressés à l'application de ce plasma dans le domaine biomédical. Auparavant, nous avons observé que les espèces réactives sont en grande partie produites par les atomes métastables d'hélium, et qu'ils jouent un rôle important au niveau des applications. Par la suite, notre attention s'est portée sur l'interaction de ce jet de plasma avec une cible biologique. Une cible d'ADN plasmidique dilué dans une solution tampon a été utilisée, en raison de sa grande facilité de production et d'analyse. Cette étude, menée en collaboration avec l'institut Curie à Orsay, a mis en évidence que ce plasma induit majoritairement des cassures simples et doubles brins. Tandis que la digestion par des enzymes de modifications de l'ADN révèle qu'il y a très peu d'oxydation de base et de sites abasiques. Par ailleurs, le nombre de cassures simples et doubles brins est dépendant de la composition chimique de la solution tampon utilisée, de sa concentration et de son pH initial.

Par la suite nous nous sommes intéressés aux effets du plasma sur l'ADN lorsque la décharge est immergée au sein de la solution. La comparaison des deux configurations : effleurement et immergée, nous apprend que pour un même temps de traitement la configuration immergée induit un plus grand nombre de cassures qu'en configuration effleurement, ce qui est probablement dû à une meilleure pénétration des espèces et à une plus grande surface d'interaction entre le plasma et la solution.

Pour finir, l'ajout d'oxygène au sein de la décharge a révélé que le nombre de cassures est peu modifié en configuration effleurement, alors qu'il augmente fortement en configuration immergée. Ce dernier point étant encore mal compris, il demande à être étudié plus en détail.

Il est important de comprendre de quelle manière interagit le plasma et la solution, car cette interaction donne naissance à de nombreuses réactions chimiques. Pour avoir une vision précise des réactions créées, il serait intéressant de faire des mesures quantitatives des espèces produites au sein de la solution, ce qui nous permettrait de connaître les espèces responsables de l'augmentation de l'acidité du milieu et des dommages induits à l'ADN.

Cette étude a également souligné la capacité de ce plasma à induire des dommages au niveau de l'ADN. Une étape ultérieure consisterait à remplacer l'ADN par des cellules vivantes dans le but d'utiliser ce plasma dans le domaine médical.

Bibliographie

- [1] I. Langmuir, "Oscillations in Ionized Gases," *Proc. Natl. Acad. Sci.*, **14** (8), 627, (1928).
- [2] J.-M. Rax, *Physique des plasmas*, Dunod. (2005).
- [3] M. A. Lieberman and A. J. Lichtenberg, *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing*. Wiley, New York, (1994).
- [4] K. H. Schoenbach, A. El-Habachi, M. M. Moselhy, W. Shi, and R. H. Stark, "Microhollow cathode discharge excimer lamps," *Phys. Plasmas*, **7** (5), 2186, (2000).
- [5] M. Moselhy, W. Shi, R. H. Stark, and K. H. Schoenbach, "Xenon excimer emission from pulsed microhollow cathode discharges," *Appl. Phys. Lett.*, **79** (9), 1240, (2001).
- [6] I. Petzenhauser, L. D. Biborosch, U. Ernst, K. Frank, and K. H. Schoenbach, "Comparison between the ultraviolet emission from pulsed microhollow cathode discharges in xenon and argon," *Appl. Phys. Lett.*, **83** (21), 4297, (2003).
- [7] J. G. Eden, S.-J. Park, and K.-S. Kim, "Arrays of nonequilibrium plasmas confined to microcavities: an emerging frontier in plasma science and its applications," *Plasma Sources Sci. Technol.*, **15** (2), 67, (2006).
- [8] Y. P. Raizer, *Gas Discharge Physics*, Springer. Berlin, (1991).
- [9] M. J. Druyvesteyn and F. M. Penning, "The Mechanism of Electrical Discharges in Gases of Low Pressure," *Rev. Mod. Phys.*, **12** (2), 87, (1940).
- [10] A. Sublet, "Caractérisation de décharges à barrières diélectriques atmosphériques et sub-atmosphériques et application à la déposition de couches d'oxyde de silicium," Thèse, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, Suisse, (2007).
- [11] J. M. Meek and J. D. Craggs, *Electrical Breakdown of gases*. Clarendon Press, Oxford, (1953).
- [12] S. Pancheshnyi, "Role of electronegative gas admixtures in streamer start, propagation and branching phenomena," *Plasma Sources Sci. Technol.*, **14** (4), 645, (2005).

- [13] B. Lacour, V. Puech, and S. Pasquiers, “High-pressure phototriggered discharges” *Phys. Rev. Lett.*, **91**, 145001 (2003).
- [14] F. Tholin, “Numerical simulation of nanoseconds repetitively pulsed discharge in air at atmospheric pressure: Application to plasma-assisted combustion,” Thèse, Ecole Centrale Paris, (2012).
- [15] D. Rusterholtz, “Nanosecond Repetitively Pulsed Discharges in Atmospheric Pressure Air,” Thèse, Ecole Centrale Paris, (2012).
- [16] A. Fridman and L. A. Kennedy, *Plasma Physics and Engineering*. Taylor and Francis, (2004).
- [17] K. H. Becker, K. H. Schoenbach, and J. G. Eden, “Microplasmas and applications,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **39** (3), R55–R70, (2006).
- [18] A. D. White, “New Hollow Cathode Glow Discharge,” *J. Appl. Phys.*, **30** (5), 711, (1959).
- [19] E. Stoffels, a J. Flikweert, W. W. Stoffels, and G. M. W. Kroesen, “Plasma needle: a non-destructive atmospheric plasma source for fine surface treatment of (bio)materials,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, **11** (4), 383, (2002).
- [20] R. Rahul, O. Stan, A. Rahman, E. Littlefield, K. Hoshimiya, a P. Yalin, A. Sharma, A. Pruden, C. a Moore, Z. Yu, and G. J. Collins, “Optical and RF electrical characteristics of atmospheric pressure open-air hollow slot microplasmas and application to bacterial inactivation,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **38** (11), 1750, (2005).
- [21] C. Jiang, A.-A. H. Mohamed, R. H. Stark, J. H. Yuan, and K. H. Schoenbach, “Removal of volatile organic compounds in atmospheric pressure air by means of direct current glow discharges,” *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **33** (4), 1416, (2005).
- [22] K. Shimizu, T. Sugiyama, L. S. M. Nishamani, and M. Kanamori, “Application of Microplasma for NO_x Removal,” *IEEE Trans. Ind. Appl.*, **45** (4), 1506, (2009).
- [23] A. Starikovskiy and N. Aleksandrov, “Plasma-assisted ignition and combustion,” *Prog. Energy Combust. Sci.*, **39** (1), 61, (2013).
- [24] M.-H. Chiang, K.-C. Liao, I.-M. Lin, C.-C. Lu, H.-Y. Huang, C.-L. Kuo, J.-S. Wu, C.-C. Hsu, and S.-H. Chen, “Effects of Oxygen Addition and Treating Distance on Surface Cleaning of ITO Glass by a Non-Equilibrium Nitrogen

- Atmospheric-Pressure Plasma Jet,” *Plasma Chem. Plasma Process.*, **30** (5), 553, (2010).
- [25] Z. Cao, J. L. Walsh, and M. G. Kong, “Atmospheric plasma jet array in parallel electric and gas flow fields for three-dimensional surface treatment,” *Appl. Phys. Lett.*, **94** (2), 021501, (2009).
- [26] Y. Ito, K. Urabe, N. Takano, and K. Tachibana, “High Speed Deposition of SiO₂ Films with Plasma Jet Based on Capillary Dielectric Barrier Discharge at Atmospheric Pressure,” *Appl. Phys. Express*, **1**, 067009, (2008).
- [27] D. Schröder, H. Bahre, N. Knake, J. Winter, T. de los Arcos, and V. Schulz-von der Gathen, “Influence of target surfaces on the atomic oxygen distribution in the effluent of a micro-scaled atmospheric pressure plasma jet,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, **21** (2), 024007, (2012).
- [28] T. Daotan, R. Chunsheng, W. Dezhen, and N. Qiuyue, “The Interactions of Two Cold Atmospheric Plasma Jets,” *Plasma Sci. Technol.*, **11** (3), 293, (2009).
- [29] S. E. Babayan, J. Y. Jeong, V. J. Tu, J. Park, G. S. Selwyn, and R. F. Hicks, “Deposition of silicon dioxide films with an atmospheric-pressure plasma jet,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, **7** (3), 286, (1998).
- [30] F. Causa, F. Ghezzi, D. Dellasega, R. Caniello, and G. Grosso, “Analysis of cathode geometry to minimize cathode erosion in direct current microplasma jet,” *J. Appl. Phys.*, **112** (12), 123302, (2012).
- [31] Y.-B. Guo and F. C.-N. Hong, “Radio-frequency microdischarge arrays for large-area cold atmospheric plasma generation,” *Appl. Phys. Lett.*, **82** (3), 337, (2003).
- [32] C. Hsu and Y. Yang, “The Increase of the Jet Size of an Atmospheric-Pressure Plasma Jet by Ambient Air Control,” *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **38** (3), 496, (2010).
- [33] W. Huang and S. Li, “Preliminary Study on Applications of an Atmospheric-Pressure Argon Plasma Discharge With a Single-Electrode Configuration,” *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **38** (2), 121, (2010).
- [34] C. Huang, S. Wu, and Y. Chang, “Synthesis of Organosilicon Film on Polycarbonate by Means of Low-Temperature Atmospheric-Pressure Plasma Jet,” *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **38** (5), 1101, (2010).

- [35] M. Leduc, S. Coulombe, and R. L. Leask, "Atmospheric Pressure Plasma Jet Deposition of Patterned Polymer Films for Cell Culture Applications," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **37** (6), 927, (2009).
- [36] V. Raballand, J. Benedikt, and A. von Keudell, "Deposition of carbon-free silicon dioxide from pure hexamethyldisiloxane using an atmospheric microplasma jet," *Appl. Phys. Lett.*, **92** (9), 091502, (2008).
- [37] V. Raballand, J. Benedikt, S. Hoffmann, M. Zimmermann, and A. von Keudell, "Deposition of silicon dioxide films using an atmospheric pressure microplasma jet," *J. Appl. Phys.*, **105** (8), 083304, (2009).
- [38] R. Reuter, D. Ellerweg, A. von Keudell, and J. Benedikt, "Surface reactions as carbon removal mechanism in deposition of silicon dioxide films at atmospheric pressure," *Appl. Phys. Lett.*, **98** (11), 111502, (2011).
- [39] A. Vogelsang, A. Ohl, R. Foest, K. Schröder, and K.-D. Weltmann, "Hydrophobic coatings deposited with an atmospheric pressure microplasma jet," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **43** (48), 485201, (2010).
- [40] H. Ayan, E. D. Yildirim, D. D. Pappas, and W. Sun, "Development of a cold atmospheric pressure microplasma jet for freeform cell printing," *Appl. Phys. Lett.*, **99** (11), 111502, (2011).
- [41] S. Boyn, R. Clergereaux, F. Gaboriau, L. Pitchford, C. Douat, and V. Puech, "Removal of carbon based deposits using microplasma jets," in *GEC 2010, Paris*, Paris.
- [42] A. V. Nastuta, I. Topala, C. Grigoras, V. Pohoata, and G. Popa, "Stimulation of wound healing by helium atmospheric pressure plasma treatment," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **44** (10), 105204, (2011).
- [43] N. Barekzi and M. Laroussi, "Dose-dependent killing of leukemia cells by low-temperature plasma," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **45** (42), 422002, (2012).
- [44] G. Daeschlein, S. Scholz, A. Arnold, T. von Woedtke, E. Kindel, M. Niggemeier, K. Weltmann, and M. Junger, "In Vitro Activity of Atmospheric Pressure Plasma Jet (APPJ) Plasma Against Clinical Isolates of *Demodex Folliculorum*," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **38** (10), 2969, (2010).
- [45] G. Daeschlein, S. Scholz, T. von Woedtke, M. Niggemeier, E. Kindel, R. Brandenburg, K. Weltmann, and M. Junger, "In Vitro Killing of Clinical Fungal Strains by Low-Temperature Atmospheric-Pressure Plasma Jet," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **39** (2), 815, (2011).

- [46] H. Feng, P. Sun, Y. Chai, G. Tong, J. Zhang, W. Zhu, and J. Fang, "The Interaction of a Direct-Current Cold Atmospheric-Pressure Air Plasma With Bacteria," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **37** (1), 121, (2009).
- [47] J. E. Foster, B. Weatherford, E. Gillman, and B. Yee, "Underwater operation of a DBD plasma jet," *Plasma Sources Sci. Technol.*, **19** (2), 025001, (2010).
- [48] G. Isbary, T. Shimizu, Y.-F. Li, W. Stolz, H. M. Thomas, G. E. Morfill, and J. L. Zimmermann, "Cold atmospheric plasma devices for medical issues.," *Expert Rev. Med. Devices*, **10** (3), 367, (2013).
- [49] E. Karakas, A. Munyanyi, L. Greene, and M. Laroussi, "Destruction of α synuclein based amyloid fibrils by a low temperature plasma jet," *Appl. Phys. Lett.*, **97** (14), 143702, (2010).
- [50] K. Kim, J. D. Choi, Y. C. Hong, G. Kim, E. J. Noh, J.-S. Lee, and S. S. Yang, "Atmospheric-pressure plasma-jet from micronozzle array and its biological effects on living cells for cancer therapy," *Appl. Phys. Lett.*, **98** (7), 073701, (2011).
- [51] H. Kurita, T. Nakajima, H. Yasuda, K. Takashima, A. Mizuno, J. I. B. Wilson, and S. Cunningham, "Single-molecule measurement of strand breaks on large DNA induced by atmospheric pressure plasma jet," *Appl. Phys. Lett.*, **99** (19), 191504, (2011).
- [52] M. Laroussi, E. Karakas, and W. Hynes, "Influence of Cell Type, Initial Concentration, and Medium on the Inactivation Efficiency of Low-Temperature Plasma," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **39** (11), 2960, (2011).
- [53] M. Leduc, D. Guay, R. L. Leask, and S. Coulombe, "Cell permeabilization using a non-thermal plasma," *New J. Phys.*, **11** (11), 115021, (2009).
- [54] G. Li, H.-P. Li, L.-Y. Wang, S. Wang, H.-X. Zhao, W.-T. Sun, X.-H. Xing, and C.-Y. Bao, "Genetic effects of radio-frequency, atmospheric-pressure glow discharges with helium," *Appl. Phys. Lett.*, **92** (22), 221504, (2008).
- [55] F. Marchal, H. Robert, N. Merbahi, C. Fontagné-Faucher, M. Yousfi, C. E. Romain, O. Eichwald, C. Rondel, and B. Gabriel, "Inactivation of Gram-positive biofilms by low-temperature plasma jet at atmospheric pressure," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **45** (34), 345202, (2012).
- [56] K. Niemi, C. O'Neill, L. J. Cox, J. Waskoenig, W. B. Hyland, S. J. McMahon, S. Reuter, F. J. Currell, W. G. Graham, D. O'Connell, and T. Gans, "Cold atmospheric pressure plasma jets: Interaction with plasmid DNA and tailored

- electron heating using dual-frequency excitation,” in *ICAPIP*, Belfast, Northern Ireland, UK, (2011), **23**.
- [57] D. O’Connell, L. J. Cox, W. B. Hyland, S. J. McMahon, S. Reuter, W. G. Graham, T. Gans, and F. J. Currell, “Cold atmospheric pressure plasma jet interactions with plasmid DNA,” *Appl. Phys. Lett.*, **98** (4), 043701, (2011).
- [58] S. Ptasińska, B. Bahnev, A. Stypczyńska, M. Bowden, N. J. Mason, and N. S. J. Braithwaite, “DNA strand scission induced by a non-thermal atmospheric pressure plasma jet,” *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **12** (28), 7779, (2010).
- [59] S. Reuter, K. Wende, J. Winter, S. Blackert, S. Harms, K. Masur, V. Schulz-von der Gathen, T. Woedtke, and K. D. Weltmann, “Formation of reactive oxygen species (ROS) and their effect on DNA,” in *ISPC-20*, Philadelphia, Pennsylvania, USA, (2011).
- [60] S. Rupf, A. Lehmann, M. Hannig, B. Schäfer, A. Schubert, U. Feldmann, and A. Schindler, “Killing of adherent oral microbes by a non-thermal atmospheric plasma jet.,” *J. Med. Microbiol.*, **59** (2), 206, (2010).
- [61] A. Shashurin, M. Keidar, S. Bronnikov, R. a. Jurjus, and M. a. Stepp, “Living tissue under treatment of cold plasma atmospheric jet,” *Appl. Phys. Lett.*, **93** (18), 181501, (2008).
- [62] M. Vandamme, E. Robert, S. Lerondel, V. Sarron, D. Ries, S. Dozias, J. Sobilo, D. Gosset, C. Kieda, B. Legrain, J.-M. Pouvesle, and A. Le Pape, “ROS implication in a new antitumor strategy based on non-thermal plasma.,” *Int. J. Cancer*, **130** (9), 2185, (2012).
- [63] K.-D. Weltmann, E. Kindel, R. Brandenburg, C. Meyer, R. Bussiahn, C. Wilke, and T. von Woedtke, “Atmospheric Pressure Plasma Jet for Medical Therapy: Plasma Parameters and Risk Estimation,” *Contrib. to Plasma Phys.*, **49** (9), 631, (2009).
- [64] H. Koinuma, H. Ohkubo, T. Hashimoto, K. Inomata, T. Shiraishi, A. Miyanaga, and S. Hayashi, “Development and application of a microbeam plasma generator,” *Appl. Phys. Lett.*, **60** (7), 816, (1992).
- [65] M. Laroussi and X. Lu, “Room-temperature atmospheric pressure plasma plume for biomedical applications,” *Appl. Phys. Lett.*, **87** (11), 113902, (2005).
- [66] S. Förster, C. Mohr, and W. Viöl, “Investigations of an atmospheric pressure plasma jet by optical emission spectroscopy,” *Surf. Coatings Technol.*, **200**, 827, (2005).

-
- [67] M. Teschke, J. Kedzierski, E. G. Finantu-Dinu, D. Korzec, and J. Engemann, "High-speed photographs of a dielectric barrier atmospheric pressure plasma jet," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **33** (2), 310, (2005).
- [68] J. Zhang, J. Sun, D. Wang, and X. Wang, "A novel cold plasma jet generated by atmospheric dielectric barrier capillary discharge," *Thin Solid Films*, **506**, 404, (2006).
- [69] J. L. Walsh, J. J. Shi, and M. G. Kong, "Contrasting characteristics of pulsed and sinusoidal cold atmospheric plasma jets," *Appl. Phys. Lett.*, **88** (17), 171501, (2006).
- [70] C. Cheng, L. Peng, X. Lei, Z. Li-Ye, Z. Ru-Juan, and Z. Wen-Rui, "Development of a new atmospheric pressure cold plasma jet generator and application in sterilization," *Chinese Phys.*, **15** (7), 1544, (2006).
- [71] D. B. Kim, J. K. Rhee, S. Y. Moon, and W. Choe, "Study of geometrical and operational parameters controlling the low frequency microjet atmospheric pressure plasma characteristics," *Appl. Phys. Lett.*, **89** (6), 061502, (2006).
- [72] Y. C. Hong, H. S. Uhm, and Y. Cheol, "Microplasma jet at atmospheric pressure," *Appl. Phys. Lett.*, **89** (22), 221504, (2006).
- [73] M. G. Kong, B. N. Ganguly, and R. F. Hicks, "Plasma jets and plasma bullets," *Plasma Sources Sci. Technol.*, **21** (3), 030201, (2012).
- [74] Y. C. Hong and H. S. Uhm, "Microplasma jet at atmospheric pressure," *Appl. Phys. Lett.*, **89** (22), 221504, (2006).
- [75] T. L. Ni, F. Ding, X. D. Zhu, X. H. Wen, and H. Y. Zhou, "Cold microplasma plume produced by a compact and flexible generator at atmospheric pressure," *Appl. Phys. Lett.*, **92** (24), 241503, (2008).
- [76] Y. C. Hong, H. S. Uhm, and W. J. Yi, "Atmospheric pressure nitrogen plasma jet: Observation of striated multilayer discharge patterns," *Appl. Phys. Lett.*, **93** (5), 051504, (2008).
- [77] Y. C. Hong, S. C. Cho, and H. S. Uhm, "Twin injection-needle plasmas at atmospheric pressure," *Appl. Phys. Lett.*, **90** (14), 141501, (2007).
- [78] X. Lu, M. Laroussi, and V. Puech, "On atmospheric-pressure non-equilibrium plasma jets and plasma bullets," *Plasma Sources Sci. Technol.*, **21** (3), 034005, (2012).

- [79] K. Urabe, T. Morita, K. Tachibana, and B. N. Ganguly, “Investigation of discharge mechanisms in helium plasma jet at atmospheric pressure by laser spectroscopic measurements,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **43** (9), 095201, (2010).
- [80] N. Jiang, A. Ji, and Z. Cao, “Atmospheric pressure plasma jet: Effect of electrode configuration, discharge behavior, and its formation mechanism,” *J. Appl. Phys.*, **106** (1), 013308, (2009).
- [81] J. L. Walsh and M. G. Kong, “Contrasting characteristics of linear-field and cross-field atmospheric plasma jets,” *Appl. Phys. Lett.*, **93** (11), 111501, (2008).
- [82] X. Lu, Z. Jiang, Q. Xiong, Z. Tang, X. Hu, and Y. Pan, “An 11 cm long atmospheric pressure cold plasma plume for applications of plasma medicine,” *Appl. Phys. Lett.*, **92** (8), 081502, (2008).
- [83] Z. Cao, Q. Nie, D. L. Bayliss, J. L. Walsh, C. S. Ren, D. Z. Wang, and M. G. Kong, “Spatially extended atmospheric plasma arrays,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, **19** (2), 025003, (2010).
- [84] Q. Li, X.-M. Zhu, J.-T. Li, and Y.-K. Pu, “Role of metastable atoms in the propagation of atmospheric pressure dielectric barrier discharge jets,” *J. Appl. Phys.*, **107** (4), 043304, (2010).
- [85] B. L. Sands, S. K. Huang, J. W. Speltz, M. A. Niekamp, J. B. Schmidt, and B. N. Ganguly, “Dynamic electric potential redistribution and its influence on the development of a dielectric barrier plasma jet,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, **21** (3), 034009, (2012).
- [86] Q. Li, J.-T. Li, W.-C. Zhu, X.-M. Zhu, and Y.-K. Pu, “Effects of gas flow rate on the length of atmospheric pressure nonequilibrium plasma jets,” *Appl. Phys. Lett.*, **95** (14), 141502, (2009).
- [87] X. Lu, S. Member, Q. Xiong, Z. Tang, Z. Jiang, and Y. Pan, “A single electrode room-temperature plasma jet device for biomedical applications,” *Appl. Phys. Lett.*, **92** (15), 151504, (2008).
- [88] M. Dang Van Sung Mussard, O. Guaitella, and a Rousseau, “Propagation of plasma bullets in helium within a dielectric capillary—influence of the interaction with surfaces,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **46** (30), 302001, (2013).
- [89] C. Jiang, M. T. Chen, and M. a Gundersen, “Polarity-induced asymmetric effects of nanosecond pulsed plasma jets,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **42** (23), 232002, (2009).

-
- [90] E. Robert, V. Sarron, D. Riès, S. Dozias, M. Vandamme, and J.-M. Pouvesle, “Characterization of pulsed atmospheric-pressure plasma streams (PAPS) generated by a plasma gun,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, **21** (3), 034017, (2012).
- [91] V. Lévillé and S. Coulombe, “Design and preliminary characterization of a miniature pulsed RF APGD torch with downstream injection of the source of reactive species,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, **14** (3), 467, (2005).
- [92] A. Shashurin, M. N. Shneider, A. Dogariu, R. B. Miles, and M. Keidar, “Temporal behavior of cold atmospheric plasma jet,” *Appl. Phys. Lett.*, **94** (23), 231504, (2009).
- [93] E. Stoffels, I. E. Kieft, and R. E. J. Sladek, “Superficial treatment of mammalian cells using plasma needle,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **36** (23), 2908, (2003).
- [94] X. Lu, S. Member, Y. Cao, P. Yang, Q. Xiong, Z. Xiong, Y. Xian, and Y. Pan, “An RC Plasma Device for Sterilization of Root Canal of Teeth,” *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **37** (5), 668, (2009).
- [95] X. Lu and M. Laroussi, “Dynamics of an atmospheric pressure plasma plume generated by submicrosecond voltage pulses,” *J. Appl. Phys.*, **100** (6), 063302, (2006).
- [96] G. A. Dawson and W. P. Winn, “A model for streamer propagation,” *Zeitschrift für Phys.*, **171**, 159, (1965).
- [97] N. Mericam-Bourdet, M. Laroussi, A. Begum, and E. Karakas, “Experimental investigations of plasma bullets,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **42** (5), 055207, (2009).
- [98] C. Krafft, “Phénomènes non linéaires dans les plasmas,” *Cours M2, Université Paris Sud XI*. (2010).
- [99] S. V. Vladimirov and M. Y. Yu, “Solitary ionizing surface waves on low-temperature plasmas,” *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **21** (2), 250, (1993).
- [100] G. Naidis, “Simulation of streamer dynamics in atmospheric pressure plasma jets,” in *19th Int. Symp. on Plasma Chemistry*, Bochum, Germany, (2009).
- [101] G. V. Naidis, “Modelling of streamer propagation in atmospheric-pressure helium plasma jets,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **112** (40), 103304, (2010).

-
- [102] D. Breden, K. Miki, and L. L. Raja, "Computational study of cold atmospheric nanosecond pulsed helium plasma jet in air," *Appl. Phys. Lett.*, **99** (11), 111501, (2011).
- [103] D. Breden, K. Miki, and L. L. Raja, "Self-consistent two-dimensional modeling of cold atmospheric-pressure plasma jets/bullets," *Plasma Sources Sci. Technol.*, **21** (3), 034011, (2012).
- [104] J.-P. Boeuf, L. L. Yang, and L. C. Pitchford, "Dynamics of a guided streamer ('plasma bullet') in a helium jet in air at atmospheric pressure," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **46** (1), 015201, (2013).
- [105] B. L. Sands, B. N. Ganguly, K. Tachibana, A. Force, and W. Patterson, "A streamer-like atmospheric pressure plasma jet," *Appl. Phys. Lett.*, **92** (15), 151503, (2008).
- [106] J. L. Walsh, F. Iza, N. B. Janson, V. J. Law, and M. G. Kong, "Three distinct modes in a cold atmospheric pressure plasma jet," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **43** (7), 075201, (2010).
- [107] G. V. Naidis, "Modelling of plasma bullet propagation along a helium jet in ambient air," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **44** (21), 215203, (2011).
- [108] G. Wormeester, S. Pancheshnyi, A. Luque, S. Nijdam, and U. Ebert, "Probing photo-ionization: simulations of positive streamers in varying N₂ mixtures," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **43** (50), 505201, (2010).
- [109] J. H. Liu, X. Y. Liu, K. Hu, D. W. Liu, X. P. Lu, F. Iza, and M. G. Kong, "Plasma plume propagation characteristics of pulsed radio frequency plasma jet," *Appl. Phys. Lett.*, **98** (15), 151502, (2011).
- [110] Z. Xiong, X. Lu, Y. Xian, Z. Jiang, and Y. Pan, "On the velocity variation in atmospheric pressure plasma plumes driven by positive and negative pulses," *J. Appl. Phys.*, **108** (10), 103303, (2010).
- [111] G. V. Naidis, "Simulation of streamers propagating along helium jets in ambient air: Polarity-induced effects," *Appl. Phys. Lett.*, **98** (14), 141501, (2011).
- [112] N. Mericam-Bourdet, M. Laroussi, A. Begum, and E. Karakas, "Experimental investigations of plasma bullets," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **42** (5), 055207, (2009).

-
- [113] R. J. Leiweke, B. L. Sands, and B. N. Ganguly, "Effect of Gas Mixture on Plasma Jet Discharge Morphology," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **39** (11), 2304, (2011).
- [114] J. L. Walsh and M. G. Kong, "Ignition and Propagation of an Atmospheric-Pressure Helium Plasma Jet," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **39** (11), 2306, (2011).
- [115] Y. Sakiyama, D. B. Graves, J. Jarrige, and M. Laroussi, "Finite element analysis of ring-shaped emission profile in plasma bullet," *Appl. Phys. Lett.*, **96** (4), 041501, (2010).
- [116] S. Wu, Q. Huang, Z. Wang, and X. Lu, "The Effect of Nitrogen Diffusion From Surrounding Air on Plasma Bullet Behavior," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **39** (11), 2286, (2011).
- [117] M. Qian, C. Ren, D. Wang, J. Zhang, and G. Wei, "Stark broadening measurement of the electron density in an atmospheric pressure argon plasma jet with double-power electrodes," *J. Appl. Phys.*, **107** (6), 063303, (2010).
- [118] Q. Xiong, A. Y. Nikiforov, M. Á. González, C. Leys, and X. P. Lu, "Characterization of an atmospheric helium plasma jet by relative and absolute optical emission spectroscopy," *Plasma Sources Sci. Technol.*, **22** (1), 015011, (2013).
- [119] E. Karakas, M. A. Akman, and M. Laroussi, "The evolution of atmospheric-pressure low-temperature plasma jets: jet current measurements," *Plasma Sources Sci. Technol.*, **21** (3), 034016, (2012).
- [120] B. L. Sands, R. J. Leiweke, and B. N. Ganguly, "Spatiotemporally resolved Ar ($1s\ 5$) metastable measurements in a streamer-like He/Ar atmospheric pressure plasma jet," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **43** (28), 282001, (2010).
- [121] S. Yonemori, Y. Nakagawa, R. Ono, and T. Oda, "Measurement of OH density and air-helium mixture ratio in an atmospheric-pressure helium plasma jet," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **45** (22), 225202, (2012).
- [122] G. V. Naidis, "Modeling of helium plasma jets emerged into ambient air: Influence of applied voltage, jet radius, and helium flow velocity on plasma jet characteristics," *J. Appl. Phys.*, **112** (10), 103304, (2012).
- [123] G. V. Naidis, "Modelling of streamer propagation in atmospheric-pressure helium plasma jets," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **43** (40), 402001, (2010).

- [124] G. V Naidis, "Modelling of OH production in cold atmospheric-pressure He-H₂O plasma jets," *Plasma Sources Sci. Technol.*, **22** (3), 035015, (2013).
- [125] Z. Xiong, X. Lu, S. Member, Q. Xiong, Y. Xian, C. Zou, and J. Hu, "Measurements of the Propagation Velocity of an Atmospheric-Pressure Plasma Plume by Various Methods," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **38** (4), 1001, (2010).
- [126] R. B. Friedman and R. Kessler, "The Photoelectric Effect & Its Applications," 1-13, (2005). [Online]. Disponible : http://cfcpwork.uchicago.edu/kicp-projects/nsta/2007/pdf/nsta_2007-photoelecclab.pdf.
- [127] "Two revolutionary optical technologies," (2009). [Online]. Disponible : http://www.kva.se/Documents/Priser/Nobel/2009/sciback_fy_09.pdf.
- [128] Princeton-Instruments, *PI-MAX 3 System user manual*. .
- [129] E. Biémont, *Spectroscopie Atomique*, De boeck. (2006).
- [130] Q. Wang, F. Doll, V. M. Donnelly, D. J. Economou, N. Sadeghi, and G. F. Franz, "Experimental and theoretical study of the effect of gas flow on gas temperature in an atmospheric pressure microplasma," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **40** (14), 4202, (2007).
- [131] S. G. Belostotskiy, T. Ouk, V. M. Donnelly, D. J. Economou, and N. Sadeghi, "Gas temperature and electron density profiles in an argon dc microdischarge measured by optical emission spectroscopy," *J. Appl. Phys.*, **107** (5), 053305, (2010).
- [132] V. Puech, F. Collier, and P. Cottin, "Energy transfer between electronically excited argon and nitrogen: A kinetic model for the 3371 and the 3577 Å laser emissions," *J. Chem. Phys.*, **67** (6), 2887, (1977).
- [133] E. Eslami, "Etude des mécanismes de formation de la zone d'ionisation secondaire en post-décharge d'un plasma micro-onde d'azote," Thèse, Grenoble I, (2005).
- [134] N. Sadeghi, "Molecular Spectroscopy Techniques Applied for Processing Plasma Diagnostics," *J. Plasma Fusion Res.*, **80** (9), 767, (2004).
- [135] Totptica Photonics AG, *Manual DL-DFB*. .
- [136] K. Baldwin, "Metastable helium: Atom optics with nano-grenades," *Contemp. Phys.*, **46** (2), 105, (2005).

- [137] B. M. G. W.L. Wiesen, M.W Smith, “Atomic Transition Probabilites.” U.S. Government Printing Office, (1962).
- [138] “NIST Atomic Spectra Database Lines Form.” [Online]. Disponible : http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html.
- [139] R. E. Cohen, D. R. Lide, and G. L. Trigg, *AIP Physics Desk Reference*, Thrid Edit. pp. 260–262.
- [140] C. O. Laux, T. G. Spence, C. H. Kruger, and R. N. Zare, “Optical diagnostics of atmospheric pressure air plasmas,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, **12** (2), 125, (2003).
- [141] S. G. Belostotskiy, V. M. Donnelly, D. J. Economou, and N. Sadeghi, “Spatially Resolved Measurements of Argon Metastable (1s5) Density in a High Pressure Microdischarge Using Diode Laser Absorption Spectroscopy,” *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **37** (6), 852, (2009).
- [142] K. Tachibana, Y. Kishimoto, and O. Sakai, “Measurement of metastable He*(23S1) density in a dielectric barrier discharges with two different configurations operating at around atmospheric pressure,” *J. Appl. Phys.*, **97** (12), 123301, (2005).
- [143] D. Vranceanu, S. Kotochigova, and H. Sadeghpour, “Pressure broadening and shift of He(23P_{0,1,2}) - He(23S) lines,” *Phys. Rev. A*, **69** (2), 022714, (2004).
- [144] B. Niermann, M. Böke, N. Sadeghi, and J. Winter, “Space resolved density measurements of argon and helium metastable atoms in radio-frequency generated He-Ar micro-plasmas,” *Eur. Phys. J. D*, **60** (3), 489, (2010).
- [145] K. Niemi, J. Waskoenig, N. Sadeghi, T. Gans, and D. O’Connell, “The role of helium metastable states in radio-frequency driven helium–oxygen atmospheric pressure plasma jets: measurement and numerical simulation,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, **20** (5), 055005, (2011).
- [146] N. Sadeghi, “Pressure broadening of rare-gas atomic lines revisited,” in *IWM7, Beijing, China*, (2013).
- [147] Ronald Bracewell, *The Fourier Transform and Its Applications*. McGraw-Hill Science/Engineering/Math, (1999).
- [148] R. Bracewell, *Fourrier Transform and its Applications*, McGraw-Hil. New York, (1965).

- [149] I. Beniaminy and M. Deutsch, “ABEL: Stable, high accuracy program for the inversion of Abel’s integral equation,” *Comput. Phys. Commun.*, **27** (4), 415, (1982).
- [150] “L’encyclopédie des gaz - Air Liquide.” [Online]. Disponible : <http://encyclopedia.airliquide.com>.
- [151] G. Cernogora, *Cours de réactivité, M2 Physique des Plasma*. .
- [152] G. J. M. Hagelaar and L. C. Pitchford, “Solving the Boltzmann equation to obtain electron transport coefficients and rate coefficients for fluid models,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, **14** (4), 722, (2005). [Online]. Disponible : <http://stacks.iop.org/0963-0252/14/i=4/a=011?key=crossref.2a24e96f0d2a1cd028c8141d01c6b2b0>.
- [153] E. Karakas and M. Laroussi, “Experimental studies on the plasma bullet propagation and its inhibition,” *J. Appl. Phys.*, **108** (6), 063305, (2010).
- [154] E. Karakas, M. A. Akman, and M. Laroussi, “Propagation Phases of Plasma Bullets,” *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **39** (11), 2308, (2011).
- [155] J. Jarrige, M. Laroussi, and E. Karakas, “Formation and dynamics of plasma bullets in a non-thermal plasma jet: influence of the high-voltage parameters on the plume characteristics,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, **19** (6), 065005, (2010).
- [156] G. V. Naidis, “Modeling of helium plasma jets emerged into ambient air: Influence of applied voltage, jet radius, and helium flow velocity on plasma jet characteristics,” *J. Appl. Phys.*, **112** (10), 103304, (2012).
- [157] E. Karakas, M. Koklu, and M. Laroussi, “Correlation between helium mole fraction and plasma bullet propagation in low temperature plasma jets,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **43** (15), 155202, (2010).
- [158] Q. Xiong, X. Lu, K. Ostrikov, Z. Xiong, Y. Xian, F. Zhou, C. Zou, J. Hu, W. Gong, and Z. Jiang, “Length control of He atmospheric plasma jet plumes: Effects of discharge parameters and ambient air,” *Phys. Plasmas*, **16** (4), 043505, (2009).
- [159] X. Lu, Q. Xiong, Z. Xiong, J. Hu, F. Zhou, W. Gong, Y. Xian, C. Zou, Z. Tang, Z. Jiang, and Y. Pan, “Propagation of an atmospheric pressure plasma plume,” *J. Appl. Phys.*, **105** (4), 043304, (2009).
- [160] A. Kingon, J. Maria, and S. Streiffer, “Alternative dielectrics to silicon dioxide for memory and logic devices,” *Nature*, **406** (6799), 1032, (2000).

- [161] R. S. Van Dyck, C. E. Jonhson, and H. A. Shugart, "Radiative Lifetime of the 21S0 Metastable State of Helium," *Phys. Rev. A*, **4** (4), (1971).
- [162] G. W. . Drake, "Theory of Relativistic Magnetic Dipole Transitions: Lifetime of the Metastable 23S State of the Heliumlike Ions," *Phys. Rev. A*, **3** (3), 908, (1971).
- [163] C. D. Lin, W. R. Johnson, and A. Dalgarno, "Radiative decays of the $n = 2$ stats of He-like ions," *Phys. Rev. A*, **15**, (1977).
- [164] B. Niermann, "The role of metastable atoms in radio-frequency micro-plasma jet discharges operated at atmospheric pressure," Thèse, Ruhr Universität Bochum, Allemagne, (2012).
- [165] Q. Xiong, A. Nikiforov, N. Britun, R. Snyders, C. Leys, and X. Lu, "A simple profile-fitting method to determine the metastable and resonant densities in a cold atmospheric pressure argon plasma jet," *J. Appl. Phys.*, **110** (7), 073302, (2011).
- [166] B. Niermann, T. Hemke, N. Y. Babaeva, M. Böke, M. J. Kushner, T. Mussenbrock, and J. Winter, "Spatial dynamics of helium metastables in sheath or bulk dominated rf micro-plasma jets," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **44** (48), 485204, (2011).
- [167] B. Niermann, R. Reuter, T. Kuschel, J. Benedikt, M. Böke, and J. Winter, "Argon metastable dynamics in a filamentary jet micro-discharge at atmospheric pressure," *Plasma Sources Sci. Technol.*, **21** (3), 034002, (2012).
- [168] X. Lu, Z. Xiong, F. Zhao, Y. Xian, Q. Xiong, W. Gong, C. Zou, Z. Jiang, and Y. Pan, "A simple atmospheric pressure room-temperature air plasma needle device for biomedical applications," *Appl. Phys. Lett.*, **95** (18), 181501, (2009).
- [169] R. Bussiahn, E. Kindel, H. Lange, and K. Weltmann, "Spatially and temporally resolved measurements of argon metastable atoms in the effluent of a cold atmospheric pressure plasma jet," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **43** (16), 165201, (2010).
- [170] G. V Naidis, "Modelling of streamer propagation in atmospheric-pressure helium plasma jets," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **43** (40), 402001, (2010).
- [171] M. Legentil, S. Pasquiers, V. Puech, and R. Riva, "Breakdown delay time in phototriggered discharges," *J. Appl. Phys.*, **72** (3), 879, (1992).

- [172] R. Riva, M. Legentil, S. Pasquiers, and V. Puech, "Experimental and theoretical investigations of a XeCl phototriggered laser," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **28** (5), 856, (1995).
- [173] L. Richeboeuf, S. Pasquiers, F. Doussiet, M. Legentil, C. Postel, and V. Puech, "Dynamics and correlated performance of a photo-triggered discharge-pumped HF laser using SF₆ with hydrogen or ethane," *Appl. Phys. B Lasers Opt.*, **68** (1), 45, (1999).
- [174] M. Rozoy, C. Postel, and V. Puech, "NO removal in a photo-triggered discharge reactor," *Plasma Sources Sci. Technol.*, **8** (3), 337, (1999).
- [175] M. Kushner, *Nonequilibrium Processes in Partially Ionized Gases*. (NATO ASI Series vol B220) ed M Capitelli and J Bardsley, (1990).
- [176] S. F. Biagi, "Fortran code Magboltz version 8.97," (2011). [Online]. Disponible : <http://consult.cern.ch/writeup/magboltz/>.
- [177] "LXCAT." [Online]. Disponible : www.lxcat.laplace.univ-tlse.fr/.
- [178] L. L. Alves, K. Bartschat, S. F. Biagi, M. C. Bordage, L. C. Pitchford, C. M. Ferreira, G. J. M. Hagelaar, W. L. Morgan, S. Pancheshnyi, A. V Phelps, V. Puech, and O. Zatsarinny, "Comparisons of sets of electron-neutral scattering cross sections and swarm parameters in noble gases: II. Helium and neon," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **46** (33), 334002, (2013).
- [179] Y. Ralchenko, R. K. Janev, T. Kato, D. V. Fursa, I. Bray, and F. J. de Heer, "Electron-impact excitation and ionization cross sections for ground state and excited helium atoms," *At. Data Nucl. Data Tables*, **94** (4), 603, (2008).
- [180] L. C. Pitchford and A. V. Phelps, "Technical Report N°26, JILA Information Center, University of Colorado, Boulder," CO, USA, 1985.
- [181] A. V. Phelps, "Technical Report N°28, JILA Information Center," University of Colorado, Boulder, CO, USA, 1985.
- [182] R. Deloche, P. Monchicourt, M. Cheret, and F. Lambert, "High-pressure helium afterglow at room temperature," *Phys. Rev. A*, **13** (3), 1140, (1976).
- [183] G. Myers and A. J. Cunningham, "Rate measurements of reactions of helium metastable species at atmospheric pressures. I. He (23S) in pure afterglows," *J. Chem. Phys.*, **67** (1), 247, (1977).

- [184] G. Myers and A. J. Cunningham, “Quenching reactions of He(23S) and He2(23 Σ) metastables in the presence of N2 and O2,” *J. Chem. Phys.*, **67** (7), 3352, (1977).
- [185] J. Lawler, J. Parker, L. Anderson, and W. Fitzsimmons, “Nanosecond Time-Resolved Spectroscopy of the n=2 Levels in a High-Pressure He Discharge,” *Phys. Rev. Lett.*, **39** (9), 543, (1977).
- [186] J. Stevefelt, J.-M. Pouvesle, and A. Bouchoule, “Reaction kinetics of a high pressure helium fast discharge afterglow,” *J. Chem. Phys.*, **76** (8), 4006, (1982).
- [187] J. M. Pouvesle, a. Khacef, J. Stevefelt, H. Jahani, V. T. Gylys, and C. B. Collins, “Study of two-body and three-body channels for the reaction of metastable helium atoms with selected atomic and molecular species,” *J. Chem. Phys.*, **88** (5), 3061, (1988).
- [188] F. Emmert, H. H. Angermann, R. Dux, and H. Langhoff, “Reaction kinetics of the He(2P) and the He2*(a,v) states in high-density helium,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **21** (5), 667, (1988).
- [189] J. Bretagne, M. Capitelli, C. Gorse, and V. Puech, “Influence of Excited States on the Electron Distribution Function in an Argon Plasma for Discharge and Post-Discharge Conditions,” *Europhys. Lett.*, **3** (11), 1179, (1987).
- [190] K. Niemi, J. Waskoenig, N. Sadeghi, T. Gans, and D. O’Connell, “The role of helium metastable states in radio-frequency driven helium–oxygen atmospheric pressure plasma jets: measurement and numerical simulation,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, **20** (5), 055005, (2011).
- [191] D. X. Liu, P. Bruggeman, F. Iza, M. Z. Rong, and M. G. Kong, “Global model of low-temperature atmospheric-pressure He + H2O plasmas,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, **19** (2), 025018, (2010).
- [192] Y. Sakiyama and D. B. Graves, “Corona-glow transition in the atmospheric pressure RF-excited plasma needle,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **39** (16), 3644, (2006).
- [193] R. S. . Chang and D. . Setser, “Assignment of rate constants to exit channel from quenching of He(23S) metastable atoms,” *Chem. Phys.*, **25**, 201, (1978).
- [194] G. V Naidis, “Modelling of OH production in cold atmospheric-pressure He–H2O plasma jets,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, **22** (3), 035015, (2013).

- [195] X. Lu, S. Member, Q. Xiong, Z. Tang, Z. Jiang, and Y. Pan, "A Cold Plasma Jet Device With Multiple Plasma Plumes Merged," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **36** (4), 990, (2008).
- [196] S. P. Kuo, E. Koretzky, and L. Orlick, "Design and electrical characteristics of a modular plasma torch," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **27** (3), 752, (1999).
- [197] E. Koretzky and S. P. Kuo, "Characterization of an atmospheric pressure plasma generated by a plasma torch array," *Phys. Plasmas*, **5** (10), 3774, (1998).
- [198] R. Foest, E. Kindel, A. Ohl, M. Stieber, and K.-D. Weltmann, "Non-thermal atmospheric pressure discharges for surface modification," *Plasma Phys. Control. Fusion*, **47** (12B), B525, (2005).
- [199] M. Chichina, Z. Hubicka, O. Churpita, and M. Tichy, "Measurement of the Parameters of Atmospheric-Pressure Barrier-Torch Discharge," *Plasma Process. Polym.*, **2** (6), 501, (2005).
- [200] Y. C. Hong, D. H. Shin, S. C. Lee, and H. S. Uhm, "Generation of large-volume plasma by making use of multi-needle plasma at low-pressure," *Thin Solid Films*, **506**, 474, (2006).
- [201] Z. Cao, J. L. Walsh, and M. G. Kong, "Atmospheric plasma jet array in parallel electric and gas flow fields for three-dimensional surface treatment," *Appl. Phys. Lett.*, **94** (2), 021501, (2009).
- [202] J. H. Cho, M. H. Kim, S.-J. Park, and J. G. Eden, "Arrays of Microplasma Jets Generated by Double Parabolic Microcavities in an Hourglass Configuration," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **39** (11), 2376, (2011).
- [203] J. H. Ma, D. C. Shih, S.-J. Park, and J. G. Eden, "Microplasma Jets Generated by Arrays of Microchannels Fabricated in Flexible Molded Plastic," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **39** (11), 2700, (2011).
- [204] P. P. Sun, S. Member, J. H. Cho, C. Park, S. Park, S. Member, and J. G. Eden, "Close-Packed Arrays of Plasma Jets Emanating From Microchannels in a Transparent Polymer," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **40** (11), 2946, (2012).
- [205] X. Pei, Z. Wang, Q. Huang, S. Wu, and X. Lu, "Dynamics of a Plasma Jet Array," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **39** (11), 2276, (2011).
- [206] Z. Hubicka, M. Cada, M. Sícha, A. Churpita, P. Pokorný, L. Soukup, and L. Jastrabík, "Barrier-torch discharge plasma source for surface treatment

- technology at atmospheric pressure,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, **11** (2), 195, (2002).
- [207] D. Tang, C. Ren, D. Wang, and Q. Nie, “The Interactions of Two Cold Atmospheric Plasma Jets,” *Plasma Sci. Technol.*, **11** (3), 293, (2009).
- [208] K. Urabe, B. L. Sands, B. N. Ganguly, and O. Sakai, “Temporally and spectrally resolved observation of a crossed-flow DBD plasma jet using pure helium and argon/acetone mixed gases,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, **21** (3), 034004, (2012).
- [209] Q. T. Algwari, C. O’Neill, and D. O’Connell, “Interactions between atmospheric pressure plasma jets,” in *GEC , 2009, Saratoga, NY, USA*.
- [210] V. Sarron, E. Robert, S. Dozias, M. Vandamme, D. Ries, and J. M. Pouvesle, “Splitting and Mixing of High-Velocity Ionization-Wave-Sustained Atmospheric-Pressure Plasmas Generated With a Plasma Gun,” *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **39** (11), 2356, (2011).
- [211] Z. Xiong, E. Robert, V. Sarron, J.-M. Pouvesle, and M. J. Kushner, “Dynamics of ionization wave splitting and merging of atmospheric-pressure plasmas in branched dielectric tubes and channels,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **45** (27), 275201, (2012).
- [212] S. Wu, Z. Wang, Q. Huang, X. Tan, X. Lu, and K. Ostrikov, “Atmospheric-pressure plasma jets: Effect of gas flow, active species, and snake-like bullet propagation,” *Phys. Plasmas*, **20** (2), 023503, (2013).
- [213] A. Bourdon, F. P echereau, and J. Jaroslav, “Modeling of Microjet Propagation in Capillaries and in Ambient Air,” in *IWM7*, Beijing, China.
- [214] G. V Naidis, “Simulation of interaction between two counter-propagating streamers,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, **21** (3), 034003, (2012).
- [215] G. V Naidis, “Modelling of streamer propagation in atmospheric-pressure helium plasma jets,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **43** (40), 402001, (2010).
- [216] N. Sadeghi, C. Foissac, and P. Supiot, “Kinetics of N₂ (A³Σ_u⁺) molecules and ionization mechanisms in the afterglow of a flowing N₂ microwave discharge,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **34** (12), 1779, (2001).
- [217] J. Levaton, J. Amorim, A. R. Souza, D. Franco, and A. Ricard, “Kinetics of atoms , metastable , radiative and ionic species in,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **689**, (2002).

- [218] M. Wertheimer and S. Coulombe, "Plasma Medicine," *La Phys. du Canada*, **68** (4), 189, (2012).
- [219] M. G. Kong, G. Kroesen, G. Morfill, T. Nosenko, T. Shimizu, J. van Dijk, and J. L. Zimmermann, "Plasma medicine: an introductory review," *New J. Phys.*, **11** (11), 115012, (2009).
- [220] F. Iza, G. J. Kim, S. M. Lee, J. K. Lee, J. L. Walsh, Y. T. Zhang, and M. G. Kong, "Microplasmas: Sources, Particle Kinetics, and Biomedical Applications," *Plasma Process. Polym.*, **5** (4), 322, (2008).
- [221] C. Tendero, C. Tixier, P. Tristant, J. Desmaison, and P. Leprince, "Atmospheric pressure plasmas: A review," *Spectrochim. Acta Part B At. Spectrosc.*, **61** (1), 2, (2006).
- [222] G. Fridman, M. Peddinghaus, M. Balasubramanian, H. Ayan, A. Fridman, A. Gutsol, A. Brooks, and G. Friedman, "Blood Coagulation and Living Tissue Sterilization by Floating-Electrode Dielectric Barrier Discharge in Air," *Plasma Chem. Plasma Process.*, **26** (4), 425, (2006).
- [223] M. Laroussi, "Low Temperature Plasma-Based Sterilization: Overview and State-of-the-Art," *Plasma Process. Polym.*, **2** (5), 391, (2005).
- [224] J. Ehlbeck, U. Schnabel, M. Polak, J. Winter, T. von Woedtke, R. Brandenburg, T. von dem Hagen, and K.-D. Weltmann, "Low temperature atmospheric pressure plasma sources for microbial decontamination," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **44** (1), 013002, (2011).
- [225] M. Vandamme, E. Robert, S. Pesnel, E. Barbosa, S. Dozias, J. Sobilo, S. Lerondel, A. Le Pape, and J.-M. Pouvesle, "Antitumor Effect of Plasma Treatment on U87 Glioma Xenografts: Preliminary Results," *Plasma Process. Polym.*, **7** (3), 264, (2010).
- [226] L. Brullé, M. Vandamme, D. Riès, E. Martel, E. Robert, S. Lerondel, V. Trichet, S. Richard, J.-M. Pouvesle, and A. Le Pape, "Effects of a non thermal plasma treatment alone or in combination with gemcitabine in a MIA PaCa2-luc orthotopic pancreatic carcinoma model," *PLoS One*, **7** (12), e52653, (2012).
- [227] I. E. Kieft, J. L. V Broers, V. Caubet-Hilloutou, D. W. Slaaf, F. C. S. Ramaekers, and E. Stoffels, "Electric discharge plasmas influence attachment of cultured CHO K1 cells," *Bioelectromagnetics*, **25** (5), 362, (2004).
- [228] G. Fridman, A. Shereshevsky, M. M. Jost, A. D. Brooks, A. Fridman, A. Gutsol, V. Vasilets, and G. Friedman, "Floating Electrode Dielectric Barrier Discharge

- Plasma in Air Promoting Apoptotic Behavior in Melanoma Skin Cancer Cell Lines,” *Plasma Chem. Plasma Process.*, **27** (2), 163, (2007).
- [229] W. Kim, K.-C. Woo, G.-C. Kim, and K.-T. Kim, “Nonthermal-plasma-mediated animal cell death,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **44** (1), 013001, (2011).
- [230] S. U. S. U. Kalghatgi, G. Fridman, M. Cooper, G. Nagaraj, M. Peddinghaus, M. Balasubramanian, V. N. V. N. Vasilets, A. F. A. F. Gutsol, A. Fridman, and G. Friedman, “Mechanism of Blood Coagulation by Nonthermal Atmospheric Pressure Dielectric Barrier Discharge Plasma,” *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **35** (5), 1559, (2007).
- [231] S. P. Kuo, O. Tarasenko, J. Chang, S. Popovic, C. Y. Chen, H. W. Fan, a Scott, M. Lahiani, P. Alusta, J. D. Drake, and M. Nikolic, “Contribution of a portable air plasma torch to rapid blood coagulation as a method of preventing bleeding,” *New J. Phys.*, **11** (11), 115016, (2009).
- [232] G. Isbary, W. Stolz, T. Shimizu, R. Monetti, W. Bunk, H.-U. Schmidt, G. E. Morfill, T. G. Klämpfl, B. Steffes, H. M. Thomas, J. Heinlin, S. Karrer, M. Landthaler, and J. L. Zimmermann, “Cold atmospheric argon plasma treatment may accelerate wound healing in chronic wounds: Results of an open retrospective randomized controlled study in vivo,” *Clin. Plasma Med.*, **1** (2), 25, (2013).
- [233] G. Fridman, G. Friedman, A. Gutsol, A. B. Shekhter, V. N. Vasilets, and A. Fridman, “Applied Plasma Medicine,” *Plasma Process. Polym.*, **5** (6), 503, (2008).
- [234] G. Lloyd, G. Friedman, S. Jafri, G. Schultz, A. Fridman, and K. Harding, “Gas Plasma: Medical Uses and Developments in Wound Care,” *Plasma Process. Polym.*, **7** (3), 194, (2010).
- [235] H. W. Lee, G. J. Kim, J. M. Kim, J. K. Park, J. K. Lee, and G. C. Kim, “Tooth bleaching with nonthermal atmospheric pressure plasma,” *J. Endod.*, **35** (4), 587, (2009).
- [236] K. H. Becker, “Tooth Whitening With Hydrogen Peroxide Assisted by a Direct-Current Cold Atmospheric-Pressure Air Plasma Microjet,” *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **38** (8), 1892, (2010).
- [237] C. Jiang, M.-T. Chen, C. Schaudinn, A. Gorur, P. T. Vernier, J. W. Costerton, D. E. Jaramillo, P. P. Sedghizadeh, and M. a. Gundersen, “Pulsed Atmospheric-

- Pressure Cold Plasma for Endodontic Disinfection,” *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **37** (7), 1190, (2009).
- [238] K. Niemi, C. O’Neill, L. J. Cox, J. Waskoenig, W. B. Hyland, S. J. McMahon, S. Reuter, F. J. Currell, W. G. Graham, D. O’Connell, and T. Gans, “Cold atmospheric pressure plasma jets: Interaction with plasmid DNA and tailored electron heating using dual-frequency excitation,” in *ICAPIP*, Belfast, Northern Ireland, UK, (2012), **23**.
- [239] H. Kurita, T. Nakajima, H. Yasuda, K. Takashima, A. Mizuno, J. I. B. Wilson, and S. Cunningham, “Single-molecule measurement of strand breaks on large DNA induced by atmospheric pressure plasma jet,” *Appl. Phys. Lett.*, **99** (19), 191504, (2011).
- [240] M. Laroussi, M. G. Kong, G. Morfill, and W. Stolz, *Plasma Medicine*, **68** (4). Cambridge University Press, (2012).
- [241] D. I. D’souza, “Repair of clustered uracil DNA damages in *Escherichia coli*,” *Nucleic Acids Res.*, **31** (15), 4573, (2003).
- [242] G. Lipps, *Plasmids current research and future trends*. Caister Academic Press, UK, (2003).
- [243] “Sigma Aldrich.” [Online]. Disponible : <http://www.sigmaaldrich.com/>.
- [244] J. C. Sutherland and K. P. Griffin, “Absorption spectrum of DNA for wavelengths greater than 300 nm.,” *Radiat. Res.*, **86** (3), 399, (1981).
- [245] M. E. Hughes, E. Brandin, and J. a Golovchenko, “Optical absorption of DNA-carbon nanotube structures.,” *Nano Lett.*, **7** (5), 1191, (2007).
- [246] J. Cadet, S. Mouret, J.-L. Ravanat, and T. Douki, “Photoinduced damage to cellular DNA: direct and photosensitized reactions.,” *Photochem. Photobiol.*, **88** (5), 1048, (2012).
- [247] M. Folkard, K. M. Prise, B. Brocklehurst, and B. D. Michael, “DNA damage induction in dry and hydrated DNA by synchrotron radiation,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, **32** (11), 2753, (1999).
- [248] L. Pauling, “The nature of chemical bond. IV The energy of single bonds and the relative electronegativity of atoms,” *J. Am. Chem. Soc.*, **54** (9), 3570, (1932).
- [249] L. Sanche, “Low energy electron-driven damage in biomolecules,” *Eur. Phys. J. D*, **35** (2), 367, (2005).

- [250] F. Martin, P. Burrow, Z. Cai, P. Cloutier, D. Hunting, and L. Sanche, "DNA Strand Breaks Induced by 0–4 eV Electrons: The Role of Shape Resonances," *Phys. Rev. Lett.*, **93** (6), 068101, (2004).
- [251] J. Simons, "How do low energy (0.1-2eV) electrons cause DNA-strand breaks?," *Acc. Chem. Res.*, **39** (10), 772, (2006).
- [252] J. Sousa, C. Douat, G. Bauville, M. Fleury, and V. Puech, "Singlet delta oxygen absolute density measurements in the effluent of cold atmospheric pressure microplasma jets," in *XXXI International Conference on Phenomena in Ionized Gases*, Grenade, Espagne, (2013).
- [253] J. Santos Sousa, "Microplasma generation of high fluxes of singlet delta oxygen at atmospheric pressure for biomedical applications," Thèse, Universidade Técnica de Lisboa Instituto Superior técnico, Portugal / Université Paris Sud, France, (2010).
- [254] K. Oehmigen, J. Winter, M. Hähnel, C. Wilke, R. Brandenburg, K.-D. Weltmann, and T. von Woedtke, "Estimation of Possible Mechanisms of Escherichia coli Inactivation by Plasma Treated Sodium Chloride Solution," *Plasma Process. Polym.*, **8** (10), 904, (2011).
- [255] H. Tajmir-Riahi, R. Ahmad, M. Naoui, and S. Diamantoglou, "The effect of HCl on the solution structure of calf thymus DNA: a comparative study of DNA denaturation by proton and metal cations using Fourier transform IR difference spectroscopy," *Biopolymers*, **35**, 493, (1995).
- [256] A. Helmke, D. Hoffmeister, N. Mertens, S. Emmert, J. Schuette, and W. Vioel, "The acidification of lipid film surfaces by non-thermal DBD at atmospheric pressure in air," *New J. Phys.*, **11** (11), 115025, (2009).
- [257] N. Shainsky, D. Dobrynin, U. Ercan, S. G. Joshi, H. Ji, A. Brooks, G. Fridman, Y. Cho, A. Fridman, and G. Friedman, "Retraction: Plasma Acid: Water Treated by Dielectric Barrier Discharge," *Plasma Process. Polym.*, **9** (6), (2012).
- [258] K. Oehmigen, M. Hähnel, R. Brandenburg, C. Wilke, K.-D. Weltmann, and T. von Woedtke, "The Role of Acidification for Antimicrobial Activity of Atmospheric Pressure Plasma in Liquids," *Plasma Process. Polym.*, **7** (3), 250, (2010).
- [259] J. Brisset, D. Moussa, A. Doubla, E. Hnatiuc, B. Hnatiuc, G. Kamgang Youbi, J. Herry, M. Naïtali, and M.-N. Bellon-Fontaine, "Chemical Reactivity of Discharges and Temporal Post-Discharges in Plasma Treatment of Aqueous

- Media: Examples of Gliding Discharge Treated Solutions,” *Ind. Eng. Chem. Res.*, **47** (16), 5761, (2008).
- [260] “<http://www.espacesciences.com/MolCie/Inex/anu/ndev/cours.htm>.” .
- [261] D. B. Graves, “The emerging role of reactive oxygen and nitrogen species in redox biology and some implications for plasma applications to medicine and biology,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **45** (26), 263001, (2012).
- [262] J. S. Sousa, G. Bauville, B. Lacour, V. Puech, M. Touzeau, and L. C. Pitchford, “O₂ (aΔg) production at atmospheric pressure by microdischarge,” *Appl. Phys. Lett.*, **93** (1), 011502, (2008).
- [263] J. S. Sousa, G. Bauville, B. Lacour, V. Puech, M. Touzeau, and J.-L. Ravanat, “DNA oxidation by singlet delta oxygen produced by atmospheric pressure microdischarges,” *Appl. Phys. Lett.*, **97** (14), 141502, (2010).
- [264] M. Foletto, L. Pitchford, C. Douat, V. Puech, V Fontane, L. Joly, " Influence of the generation of a plasma jet on the hydrodynamics of a helium jet", in *XXXI International Conference on Phenomenain Ionized Gases*, Grenade, Espagne, (2013)

