



HAL
open science

Confinement micrométrique des décharges pulsées nanosecondes dans l'air à pression atmosphérique et effets électro-aérodynamiques

Thomas Orrière

► **To cite this version:**

Thomas Orrière. Confinement micrométrique des décharges pulsées nanosecondes dans l'air à pression atmosphérique et effets électro-aérodynamiques. Physique des plasmas [physics.plasm-ph]. Université de Poitiers, 2018. Français. NNT : 2018POIT2272 . tel-01992584

HAL Id: tel-01992584

<https://theses.hal.science/tel-01992584v1>

Submitted on 24 Jan 2019

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.

THESE

Pour l'obtention du Grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE POITIERS

(Faculté des Sciences Fondamentales et Appliquées)
(Diplôme National - Arrêté du 25 mai 2016)

Ecole Doctorale : Sciences et ingénierie en matériaux, mécanique, énergétique et aéronautique
– SIMMEA (Poitiers)

Secteur de Recherche : Génie électrique et Énergétique

Présentée par :

ORRIERE Thomas

CONFINEMENT MICROMETRIQUE DE DECHARGES PULSEES NANOSECONDES DANS L'AIR A PRESSION ATMOSPHERIQUE ET EFFETS ELECTRO-AERODYNAMIQUES

Directeur de Thèse : Éric MOREAU et David PAI

Soutenue le 6 Juin 2018 devant la Commission d'Examen

JURY

Jean-Pierre BŒUF	Directeur de recherche au CNRS, LAPLACE, Université Paul Sabatier	Rapporteur
Svetlana STARIKOVSKAYA	Directeur de recherche au CNRS, LPP, Ecole Polytechnique	Rapporteur
Nicolas BENARD	Maître de Conférences, PPRIME, Université de Poitiers	Examineur
Christophe LAUX	Professeur, EM2C, CentraleSupélec	Examineur
Claudia LAZZARONI	Maître de Conférences, LSPM, Université Paris 13	Examineur
Eric MOREAU	Professeur, PPRIME, Université de Poitiers	Examineur
David PAI	Chargé de recherche au CNRS, PPRIME, Université de Poitiers	Examineur
Joao SANTOS SOUSA	Chargé de recherche au CNRS, LPGP, Université Paris-Sud & Université Paris-Saclay	Examineur

Titre : Confinement micrométrique des décharges pulsées nanosecondes dans l'air à pression atmosphérique et effets électro-aérodynamiques

Mots clés : Décharges pulsées nanosecondes répétitives (NRP), étincelles, micro-plasma, vent ionique, panache, spectroscopie d'émission optique (OES), vélocimétrie d'images de particules, plasmas froids

Résumé : Les plasmas froids d'air à pression atmosphérique sont très utiles pour un grand nombre d'applications grâce à leur chimie hors-équilibre et leur souplesse d'utilisation. Leur intérêt réside dans la production de certaines espèces réactives ou chargées avec un coût énergétique plus avantageux que la chimie à l'équilibre. L'objectif de cette thèse est de combiner les décharges nanosecondes répétitives pulsées (NRP) avec une géométrie micrométrique. Par cette combinaison, nous souhaitons palier au chauffage excessif des étincelles qui génèrent pourtant des fortes densités d'espèces. Notre étude se concentre en trois points principaux. Dans un premier temps la phase de claquage est étudiée ; c'est pendant cette étape que l'énergie est déposée et que les espèces sont produites. La combinaison des diagnostics électriques et de spectroscopie d'émission optique montrent que l'air est presque complètement dissocié et ionisé. Ensuite, nous nous intéressons à la phase de recombinaison qui conditionne la durée de vie de ces espèces. Les résultats mettent en évidence une réaction à trois corps comme mécanisme de recombinaison principal. Et enfin, le dernier point concerne le transport des espèces vers un substrat conducteur. En lui appliquant une tension, celui-ci nous permet de générer un écoulement de vent ionique provenant de la décharge. L'écoulement est étudié par vélocimétrie d'images de particules et imagerie Schlieren. Ce travail a permis de démontrer la capacité des NRP micro-plasmas dans la production contrôlée d'espèces réactives et chargées, mais aussi dans leur transport vers une surface par panache électro-aérodynamique.

Title: Microscale confinement of nanosecond pulsed discharges in air at atmospheric pressure and electrohydrodynamics effects

Keywords: Nanosecond repetitively pulsed discharges (NRP), sparks, micro-plasma, ionic wind, particle image velocimetry, non-thermal plasmas

Abstract: Non-thermal plasmas generated in air at atmospheric pressure have numerous potential applications due to their non-equilibrium chemistry and ease of use. Their main advantages lie in the cost-efficient production of reactive and charged species compared to that of equilibrium chemistry. The aim of this thesis is to combine nanosecond repetitively pulsed discharges (NRP) with a microscale geometry. Using this combination, we seek to reduce the excessive heat release of NRP sparks, while nonetheless reaching high densities of reactive species and electrons. This work is comprised of three main parts. Our first goal is to study the breakdown phase, in which energy is deposited and charged species are produced. We employ both electrical characterization and optical emission spectroscopy in order to show that the NRP microplasma fully ionizes and dissociates the gas. The second part consists of the study of the recombination phase, in which the produced species recombine or survive. Results show that three-body recombination can explain the electron lifetime in this phase. Finally, we study the transport of plasma chemical species from the microplasma to a DC-biased conductive plate representing a substrate. By applying a voltage to this third electrode, we drive an electro-thermal plume via an ionic wind from the microplasma to the plate. This flow is investigated mainly by particle image velocimetry as well as Schlieren imaging. This work shows the capability of NRP microplasmas to produce high densities of reactive and charged species and transport them to a surface using an electrohydrodynamic plume.

Remerciements

Un grand nombre de personnes ont contribué à ce travail.

Je remercie en premier David Pai, mon encadrant et Éric Moreau, mon directeur de thèse, avec qui j'ai travaillé plus de trois ans, pour m'avoir donné un goût certain pour la recherche et m'avoir tant appris.

Je te remercie, David, pour ta disponibilité, ta patience, et ton investissement important, notamment à la fin de la rédaction. Je te remercie également de m'avoir proposé des collaborations qui m'ont été bénéfiques tant sur le point de vue professionnel que personnel. Merci également Éric, d'avoir dirigé cette thèse, proposé de nombreuses idées et pour tes nombreux conseils.

Je remercie l'ensemble de mon jury de thèse en commençant par les deux rapporteurs Jean-Pierre Bœuf et Svetlana Starikovskaya. Je suis très reconnaissant de leur intérêt et leur investissement dans ce travail. Je remercie également João Santos-Sousa, Claudia Lazaronni, Nicolas Benard et Christophe Laux pour avoir été examinateur lors de la soutenance avec enthousiasme. Leurs critiques et commentaires ont été très constructifs et me seront très utiles pour la suite.

Je remercie le personnel d'appui à la recherche, en particulier Catherine, qui a été très patiente avec moi, ainsi que Christian, Laurent, Ludovic, Richard, Jean-Marc, Francis, Pierre-François, Anthony et enfin Alex pour m'avoir converti au Python. Merci également aux autres membres du bâtiment H2 pour leurs conseils, en particulier l'équipe EFD dans laquelle j'ai évolué. Je remercie également Mark Cappelli et Taemin Yong pour l'accueil dans leur laboratoire.

J'exprime une profonde gratitude envers mes collègues doctorants ou post-doctorants du laboratoire pour leur compagnie et le partage de leurs connaissances. Je remercie donc Paul, Stanley, Kossi, Clément G., Umesh, Sachin, Étienne, Pierre, Thibault, Ugo, Srikar, Ayoub, Arthur, Yann, Léo-Paul, Mélissa, Aurélien, Clément C., Fatma, Gwenaël et Florence. Un merci particulier à Paul pour notre entente autour de l'humour, ton barbecue constitue un ressort comique que j'utiliserai encore longtemps...

Merci aux membres de l'association des doctorants du D2 pour leur organisation, en particulier les anciens comme Bruno, Clément, David, Florent, Hugo, Armande ainsi que les jeunes qui ont repris le flambeau.

Je remercie profondément Manu, pour perdre ses paris, ainsi que sa femme Marie-Céleste pour la relecture assidue du manuscrit et le « temp » qu'elle a investi. J'éprouve pour vous beaucoup de sympathie et j'espère pouvoir rembourser cette dette un jour.

Je remercie mes parents pour tout ce qu'ils m'ont apporté et mes frères, Olivier et Guillaume, pour leur soutien. Enfin je remercie ma douce Claire avec qui je vis depuis plusieurs années. Tu me supports depuis déjà longtemps et je n'aurais pu parvenir à cet objectif sans toi.

Table des matières

1	Introduction	11
2	Bibliographie	15
2.1	Généralités et historique	15
2.1.1	Introduction	15
2.1.2	Allumage d'une décharge.....	17
2.2	Les décharges nanosecondes répétitives pulsées (NRP)	21
2.2.1	Les champs pulsés nanosecondes.....	21
2.2.2	La répétition des impulsions	22
2.2.3	Les régimes de NRP et leur transition.....	23
2.3	Les micro-plasmas	25
2.3.1	Physique des micro-plasmas	25
2.3.2	Confinement des étincelles NRP	27
2.3.3	Décharges micro-plasma-NRP dans les gaz nobles	29
2.4	Applications des plasmas d'air à pression atmosphérique	29
2.4.1	Conversion, production d'espèces réactives	29
2.4.2	Allumage et combustion assistés par plasma	31
2.4.3	Synthèse de nanomatériaux	32
2.4.4	Applications biologiques et médicales	34
2.4.5	Conclusion sur les applications	35
2.5	Généralités sur les jets et les écoulement EHD	35
2.5.1	Les jets et les panaches.....	35
2.5.2	Les écoulements électro-hydrodynamiques (EHD)	41
2.6	Conclusion	44
3	Dispositifs et méthodes expérimentales	47
3.1	Dispositif expérimental.....	47
3.1.1	Schéma général du système.....	47
3.1.2	Réacteur.....	49
3.1.3	Spectroscopie d'émission et imagerie	49
3.1.4	Synchronisation des délais	55
3.1.5	Vélocimétrie par images de particules (PIV)	57
3.1.6	Visualisations Schlieren	59
3.2	Mesures électriques et génération des décharges	60

3.2.1	Caractéristiques de l'alimentation	60
3.2.2	Mesure de la puissance et de l'énergie	61
3.3	Méthodes de spectroscopie d'émission	63
3.3.1	Protocole – érosion des électrodes	63
3.3.2	Densité des électrons	64
3.3.3	Méthode de mesure pour la température du gaz.....	72
3.3.4	Température des électrons.....	74
3.3.5	La mesure de champ électrique réduit par le ratio du FNS et du SPS	76
3.4	Conclusion	78
4	Dynamique des décharges NRP micro-plasmas dans l'air à pression atmosphérique : la phase de claquage	79
4.1	Mesures électriques : courant et tension de décharge.....	80
4.2	Emission de la décharge	82
4.2.1	Imagerie rapide intensifiée à travers le spectromètre.....	82
4.2.2	Estimation du diamètre.....	88
4.2.3	Spectres de la première et de la seconde phase	91
4.3	Les premières nanosecondes : l'émission homogène	94
4.3.1	Mesure du champ électrique.....	94
4.3.2	Les conditions nécessaires pour la formation d'une décharge homogène	96
4.4	Seconde phase et densité des électrons.....	100
4.4.1	Mesure de la densité électronique	101
4.4.2	Gradient de densité d'électron lors de la constriction : le cas 1 mm.....	104
4.5	Conclusion	106
5	Cinétique chimique et thermique des décharges NRP micro-plasmas dans l'air à pression atmosphérique	109
5.1	Émission des décharges NRP dans l'air à pression atmosphérique.....	109
5.1.1	Le spectre d'émission pour $d_{gap} = 200 \mu m$	110
5.1.2	Image de la décharge, profil axial et aérodynamique des décharges NRP.....	112
5.2	Étude thermique par spectroscopie d'émission	117
5.2.1	Mesure de la température rotationnelle de $N_2(C)$	117
5.2.2	Mesure de la température électronique T_e	119
5.2.3	Effets mémoires des décharges NRP – variation de la fréquence.....	121
5.3	Analyse de la cinétique chimique des décharges NRP-micro-plasmas	125
5.3.1	Densité d'électrons	125

5.3.2	Relaxation de T_e et émission continue.....	129
5.3.3	Cinétique des électrons.....	132
5.3.4	Cinétiques atomiques des états excités $N(3p4S^o)$ et de $O(3p5P)$	134
5.4	Conclusion.....	137
6	Les interactions NRP micro-plasma-fluide.....	139
6.1	Introduction.....	139
6.1.1	Contexte.....	139
6.1.2	Présentation de la géométrie.....	140
6.2	Topologie de l'écoulement moyen.....	141
6.2.1	Champs moyens.....	141
6.2.2	Profils de vitesse.....	144
6.3	Décharge couronne et explication de la topologie de l'écoulement.....	146
6.3.1	Origine du vent électrique.....	147
6.3.2	Cas de la décharge couronne.....	149
6.3.3	Comparaison des résultats de la décharge couronne et du micro-plasma NRP.....	152
6.3.4	Explications des différences entre micro-plasma NRP et décharge couronne.....	154
6.4	Analyse paramétrique.....	156
6.4.1	Variation de V_{plaque}	156
6.4.2	Variation de F_{NRP}	158
6.4.3	Distance d_{plaque}	159
6.4.4	Bilan des études paramétriques.....	161
6.5	Étude des fluctuations et des champs instantanés.....	161
6.5.1	Champs instationnaires.....	162
6.5.2	Effets de chaque impulsion.....	166
6.5.3	Approche statistique des fluctuations et vorticité.....	169
6.6	Conclusion.....	174
7	Confinement des décharges NRP.....	177
7.1	Analyse de la redistribution des charges.....	177
7.1.1	Le champ électrique lors de la première phase.....	177
7.1.2	Impact de la montée du champ électrique.....	181
7.2	Impact du confinement de la décharge sur l'écoulement.....	185
7.3	Efficacité des micro-plasmas NRP.....	186
7.3.1	Phase de dépôt d'énergie.....	187

7.3.2	Densité énergétique et efficacité	189
7.4	Conclusion	193
8	Conclusion générale	195
8.1	Bilan, contribution	195
8.2	Perspectives	197
	Références	199

1 Introduction

La chimie hors équilibre des plasmas non-thermiques est utile dans de très nombreux domaines. Elle offre des possibilités et une diversité de réactions chimiques qui peuvent être compliquées, voire impossibles à obtenir par la chimie conventionnelle à l'équilibre. Cette dernière délivre l'énergie pour activer les réactions par le chauffage, ce qui est coûteux énergétiquement. Lorsqu'on parle de chimie hors-équilibre, les réactions d'intérêt vont être ciblées et sans chauffage significatif du gaz. Les processus d'intérêt pour les applications comme l'excitation électronique, la dissociation et l'ionisation nécessitent généralement des électrons très énergétiques.

A cette fin, la température des électrons, éléments clés dans le plasma, doit être très importante comparée à la température du gaz. Des stratégies pour optimiser le déséquilibre en évitant de transférer l'énergie dans le chauffage existent. Par exemple, en générant le plasma dans un gaz porté à très basse pression.

A priori, l'air à pression atmosphérique n'est donc pas un candidat favorable pour un plasma dit « efficace ». De plus, maintenir un fort déséquilibre entre la température des électrons et celle du gaz n'est pas aisé à pression atmosphérique, car la pression élevée accélère les interactions entre espèces, et donc les échanges énergétiques. Les gaz moléculaires apportent une difficulté supplémentaire de par l'existence des niveaux ro-vibroniques, ce qui tend à dissiper l'énergie en chauffant davantage le gaz au lieu de cibler les processus intéressants. De plus, un chauffage excessif remet en cause l'intégrité du réacteur et la stabilité du fonctionnement.

Pourtant, l'air ambiant est très simple d'utilisation puisqu'aucune chambre de pression ou enceinte de confinement n'est nécessaire. *A fortiori*, la pression importante permet une chimie plus rapide et les composés dérivés de l'air comme N , O , O_3 ou NO_x etc. sont recherchés dans le traitement de surfaces et la synthèse de nanomatériaux par exemple.

Des domaines comme le contrôle d'écoulement, le biomédical ou la dépollution dont l'environnement est l'air, ont adopté des stratégies permettant d'opérer dans des conditions stables en utilisant des décharges très peu énergétiques avec de faibles courants. C'est le cas des décharges à barrières diélectriques et des décharges couronnes. Dans ces configurations, la densité des électrons n_e , qui est représentative de l'activité chimique, est relativement faible.

L'enjeu ici est de produire un plasma à forte densité, tout en gardant le fort déséquilibre entre la température des électrons et la température du gaz.

Une technique consiste à utiliser des champs électriques pulsés, dans l'échelle de temps de la nanoseconde, afin d'empêcher le passage à l'arc électrique et donc de limiter le courant. De plus, si la montée de tension est suffisamment rapide, cela permet d'appliquer une tension plus importante que la tension de claquage. Le champ électrique appliqué est alors décuplé et la phase poursuivant le claquage, dans laquelle le champ électrique est faible, est évitée. Globalement, un champ pulsé permet de garder seulement la phase énergétique efficace. Des

progrès technologiques datant des années 1990 rendent possible la génération à hautes fréquences, de l'ordre de 10-100 kHz, de ces décharges répétitives pulsées nanosecondes (NRP). De plus, des études dans les années 2000 ont montré que leur utilisation est possible. Comme pour les décharges à courant continu, trois régimes sont observés : les régimes couronne, luminescent et étincelle.

L'étincelle est la décharge la plus énergétique et la plus efficace car c'est dans ce régime que la densité des électrons est la plus importante. Des taux de montée de la température de l'ordre de $10^{11} K \cdot s^{-1}$ et la forte densité volumique d'énergie ont prédestiné ce régime à la combustion. Récemment, il a été montré que l'utilisation de ce régime pouvait être élargi à d'autres applications où les plasmas sont communément employés, comme la synthèse de nanomatériaux. Toutefois, ce régime présente l'inconvénient de chauffer à très haute température ($\sim 1000 K$).

Dans les années 2000 également, des décharges confinées à l'échelle micrométriques dites « micro-plasma » ont été étudiées et ont montré des caractéristiques intéressantes, notamment la stabilisation de la décharge à haute pression ainsi que la température et la densité des électrons élevées par rapport aux décharges millimétriques. De plus, les interactions avec les surfaces permettraient de dissiper le chauffage important des étincelles NRP.

Cette thèse se fixe pour objectif principal de déterminer si la combinaison des étincelles NRP dans un espace micrométrique permet d'obtenir un fort déséquilibre entre la température des électrons et des espèces lourdes tout en ayant une décharge avec une très forte densité électronique dans l'air à pression atmosphérique.

Dans un premier temps, nous souhaitons coupler les régimes d'étincelle NRP et micro-plasma, afin de bénéficier des avantages des deux types de décharges tout en palliant au chauffage excessif des étincelles avec les interactions aux surfaces. Technologiquement, exploiter une géométrie micrométrique est très intéressant car la baisse de la tension et de l'énergie en absolu concède l'augmentation d'autres caractéristiques comme la fréquence de répétition, le temps de montée *etc.* de la décharge mais aussi des diagnostics et dispositifs expérimentaux que nous présenterons. Ce régime NRP micro-plasma sera étudié dans l'air ambiant sans écoulement forcé avec des impulsions d'amplitude 0 à 7 kV, répétées à des fréquences de 100 Hz à 30 kHz et générées aux bornes d'espaces inter-électrodes compris entre $50 \mu m$ et 2 mm.

Les configurations utilisées pour les applications nécessitent de traiter des surfaces importantes, ou d'éloigner ces surfaces d'une décharge très réactive risquant de provoquer des endommagements. Dans ce contexte, une partie de ce travail sera consacrée à l'étude du transport des espèces chimiques vers un substrat. Dans notre contexte de simplicité de configuration, nous avons choisi de réaliser ce transport en générant un écoulement de la décharge vers une plaque. Nous appliquons sur cette dernière une tension continue, ce qui va provoquer la mise en mouvement du fluide par un vent ionique ou vent électrique.

Ce travail est divisé en sept chapitres. Dans le premier, nous exposons une introduction sur les plasmas et les décharges NRP pour ensuite aborder les aspects généraux des décharges

généérées dans l'air à pression atmosphérique. Nous présenterons également les notions nécessaires à la compréhension des écoulements rencontrés dans les plasmas.

Le deuxième chapitre est un descriptif du dispositif expérimental et des méthodes que nous utilisons pour accéder aux quantités d'intérêt. Les diagnostics plasmas utilisés pour ces travaux de thèse sont des mesures électriques et la spectroscopie d'émission, donnant un aperçu global de la cinétique physico-chimique de la décharge. Nous y définirons les conditions standards du régime de décharge qui sera réutilisé dans les chapitres suivants. L'écoulement quant à lui sera étudié par vélocimétrie d'images de particules (PIV) et visualisation Schlieren.

Le troisième chapitre est axé sur l'étude de la phase de claquage d'un micro-plasma NRP avec une distance inter-électrodes de $d_{gap} = 200 \mu m$. L'état du gaz sera examiné juste avant et après le claquage. Nous verrons, en combinant de l'imagerie rapide et de la spectroscopie d'émission que la décharge évolue d'un comportement diffus vers un comportement filamentaire. Une analyse détaillée de la densité électronique et de la température électronique de ces deux régimes sera présentée. Nous expliquerons ensuite les phénomènes en comparant le cas micrométrique avec un cas millimétrique.

Le quatrième chapitre se focalise sur la chimie et le transfert de chaleur entre deux impulsions, soit des durées comprises entre $29 \mu s$ et $125 \mu s$. Nous commencerons en exposant le spectre d'émission, y compris sur des durées longues, de l'ordre de la μs puis nous mettrons en concordance avec de l'imagerie. Nous étudierons ensuite le chauffage du gaz et des électrons, et les données résultantes serviront à comprendre la cinétique chimique mise en œuvre. Il apparaît que certains aspects de la chimie peuvent se résumer à seulement quelques réactions de recombinaison.

Ces premiers chapitres démontrent que le régime NRP micro-plasma généré dans l'air à pression atmosphérique a la capacité de produire à une densité importante les espèces d'intérêt que nous avons préalablement citées.

Les premiers chapitres de résultats sont classés selon deux échelles de temps différentes, en fonction du temps caractéristique de la largeur d'impulsion (de l'ordre de $10 ns$) et du temps entre les impulsions (de l'ordre de $100 \mu s$). Le cinquième chapitre se concentre sur une échelle de temps supérieure, correspondant à la dérive de ses espèces à plus longue distance du micro-plasma. Nous étudions l'écoulement provoqué lorsque nous approchons une plaque sur laquelle une tension est appliquée. Le gaz provenant du microréacteur s'écoule vers cette plaque qui fait office de substrat. Nous décrivons les caractéristiques principales de cet écoulement et nous fournissons quelques éléments permettant d'agir sur le mélange du gaz provenant de la décharge avec l'air ambiant.

Le sixième chapitre traite du confinement des étincelles NRP. S'y trouve compilé l'essentiel des observations effectuées lorsque la dimension de l'espace inter électrode est réduite. Nous présentons une analyse des processus à la cathode afin de comprendre comment le champ électrique est affecté par le confinement. Nous nous focalisons notamment sur l'efficacité de

production des charges. Sont également présentés des résultats à propos de l'impact du confinement sur l'écoulement étudié dans le chapitre précédent.

Nous terminerons ce mémoire par une conclusion générale dans laquelle nous répondrons aux questions suivantes : quelles sont les changements apportés au confinement géométrique des décharges NRP et quelles propriétés sont intéressantes pour les applications ?

2 Bibliographie

Ce chapitre a vocation à présenter les aspects principaux liés aux plasmas d'air à pression atmosphérique. La première section sera dédiée aux généralités. Dans la deuxième section et la troisième section, nous présenterons les types de décharges que nous abordons principalement dans notre travail : les décharges nanosecondes répétitives pulsées (NRP) et les micro-plasmas. Dans la quatrième section, nous discuterons à propos des domaines d'application actuels concernant lesquels les décharges NRP et les micro-plasmas peuvent être utilisés. Nous constaterons que les espèces utiles pour les applications sont souvent transportés par des écoulements et c'est pourquoi la dernière section traitera des jets et des écoulements électro-hydrodynamiques (EHD). Enfin, nous terminerons ce chapitre par une conclusion qui nous permettra de fixer le cadre de notre étude.

2.1 Généralités et historique

2.1.1 Introduction

Dans les années 1920 [1], Langmuir recommande à la communauté scientifique de prénommer « plasma » un gaz ionisé par analogie au plasma sanguin. On considèrera par la suite le plasma comme le quatrième état de la matière. Auparavant, les dénominations « décharges électriques », « décharges diffuses », « étincelles » voire « éther électrique » ou « fluide électrique » étaient utilisées.

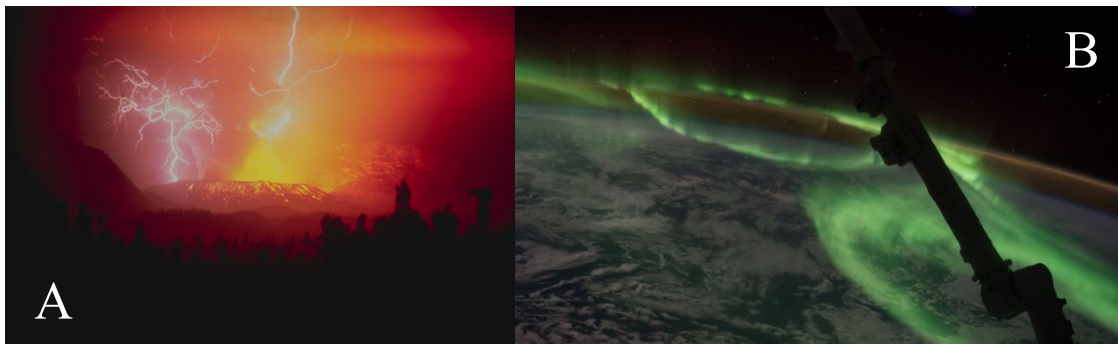


Figure 1: Deux exemples de plasmas d'origine naturelle. A) Photographie d'éclairs volcaniques. Crédit : R. Hadian, U.S. Geological Survey¹. B) Photographie d'aurores australes en Océanie prises de la station spatiale internationale. Crédit : NASA².

Dans l'Univers, plus de 99 % de la matière visible est à l'état de plasma. Néanmoins, sur Terre, de manière naturelle, cet état est présent seulement épisodiquement suite à des orages ou des aurores boréales par exemple (voir figure 1). Actuellement, les plasmas produits artificiellement sont utilisés de manière importante dans différents domaines tel que le traitement des matériaux, l'éclairage, le biomédical, les applications environnementales ou dans la recherche sur l'énergie. Ils peuvent être générés lorsque l'on transfère assez d'énergie

¹ <https://www.ngdc.noaa.gov/nndc/servlet/>

² <https://www.nasa.gov/image-feature/aurora-south-of-australia>

à un milieu pour provoquer l'ionisation des espèces chimiques. Les méthodes d'excitation pour réaliser ce transfert d'énergie sont diverses et variées : quant à l'application d'un champ électrique, d'un champ magnétique, d'une lumière intense ou d'un chauffage important par exemple.

Pour caractériser un plasma, on utilise quatre grandeurs qui décrivent les comportements collectifs des charges en son sein. Les deux premières sont la température des électrons T_e en K et la densité des électrons n_e en cm^{-3} . La troisième est la longueur de Debye λ_D en m . Elle s'écrit selon l'équation (1) avec k_B la constante de Boltzmann en $J.K^{-1}$, e la charge d'un électron en C et ϵ_0 la permittivité du vide en $F.m^{-1}$:

$$\lambda_D = \left(\frac{\epsilon_0 k_B T_e}{n_e e^2} \right)^{1/2} \quad (1)$$

Selon [2] (p 30), on peut dire qu'un plasma en est un si et seulement si $(\lambda_D/L_p)^2 \ll 1$ où L_p en m , est la taille caractéristique de la décharge car c'est seulement dans ce cas que l'on peut la considérer comme électriquement neutre. L'ionisation seule ne suffit donc pas à définir un plasma.

Enfin, la fréquence du plasma peut être calculée avec la relation (2) avec m_e la masse de l'électron en kg . Elle permet de prendre en compte que les électrons peuvent suivre des champs avec des fréquences plus élevées que les ions, car ils sont plus lourds :

$$\omega_p = \left(\frac{n_e e^2}{\epsilon_0 m_e} \right)^{1/2} \quad (2)$$

La fraction d'ionisation α et la différence entre température de gaz T_g et des électrons T_e sont des paramètres dérivés qui permettent de classer les différents types de décharges. Le coefficient $\alpha = n_e/(N + n_e)$ avec les densités des espèces neutres N et des électrons. On distingue alors deux grandes familles de plasma :

Les plasmas non-thermiques (ou plasmas froids) : $T_g < T_e$ et $\alpha \ll 1$. On dit alors que le milieu est hors-équilibre thermodynamique dans lequel la température des espèces neutres est bien plus faible que la température des électrons. Ces plasmas sont très utilisés industriellement puisqu'il n'est pas nécessaire de fournir beaucoup d'énergie pour leur génération et qu'ils font preuve d'une stabilité et d'une souplesse remarquables au niveau des configurations. Les décharges à barrière diélectrique (DBD) permettent notamment de créer des décharges de n'importe quelle forme comme le montre la figure 2A.

Les plasmas thermiques : $T_g = T_e$ et $\alpha \approx 1$ donc le milieu est totalement ionisé. On dit que l'équilibre thermodynamique est atteint car toutes les espèces chimiques et les modes énergétiques (vibration et rotation des molécules) sont globalement à la même température. Afin de les produire artificiellement, il faut fournir beaucoup d'énergie pour atteindre l'équilibre thermodynamique et l'on se heurte à plusieurs difficultés expérimentales liées au chauffage très important et à la très forte réactivité, par exemple l'érosion des électrodes pour

une décharge d'arc électrique (voir figure 2C-D). Toutefois, ces propriétés peuvent être très intéressantes pour les applications *i. e.* la soudure ou la production de nanoparticules.

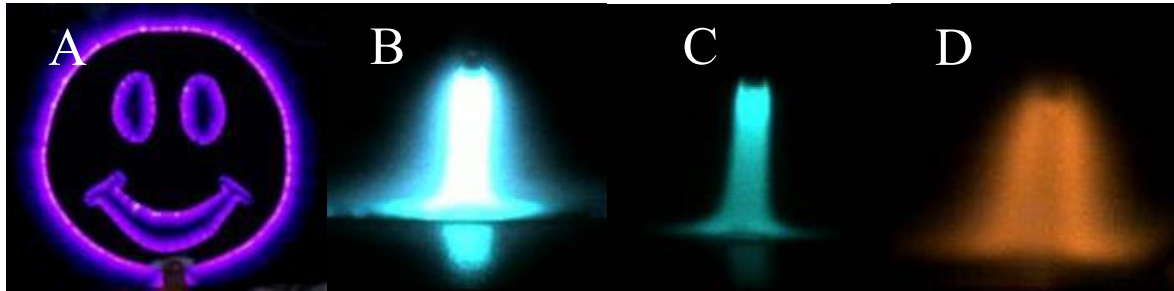


Figure 2: Deux exemples de plasmas obtenus artificiellement. A) Une décharge DBD en forme de « smiley » (Crédit K. D. Bayoda [3]), B-D) Imagerie rapide de décharge d'arc de soudure dans l'argon avec une anode en cuivre [4,5]. B) Filtre neutre. C) Un filtre laissant passé les raies métalliques. D) Un filtre laissant passer les raies d'argon.

2.1.2 Allumage d'une décharge

2.1.2.1 Excitation et ionisation

Comme nous l'avons souligné plus tôt, afin d'amorcer la transition de l'état gazeux vers l'état plasma, il est nécessaire de céder de l'énergie au milieu par une méthode d'excitation. Dans le cadre de ce mémoire de thèse, nous nous focaliserons sur l'application d'un champ électrique. Nous allons considérer deux électrodes planes dans un gaz quelconque, séparées d'une distance notée d_{gap} , sur lesquelles nous allons appliquer une différence de potentiel V_{plasma} en V. Le champ électrique moyen en $V.m^{-1}$ dans cette région peut alors s'écrire selon l'équation (3).

$$E = V_{plasma} / d_{gap} \quad (3)$$

Les électrons libres déjà présents dans le gap inter-électrodes vont se mettre en mouvement, accélérer et gagner de l'énergie cinétique. La vitesse moyenne notée v_e en $m.s^{-1}$ peut être déterminée avec l'équation (4) avec μ_e la mobilité électronique exprimée en $m^2(V.s)^{-1}$. Lors d'une collision avec une espèce lourde neutre, si l'énergie cinétique de l'électron est assez importante, un électron peut alors être arraché et provoquer l'ionisation de cette espèce. L'ionisation est caractérisée par la fréquence d'ionisation ν_i exprimée en s^{-1} et qui représente le nombre d'ionisations par seconde pour un électron.

$$v_e = \mu_e E \quad (4)$$

L'impact des molécules ou d'atomes par des électrons énergétiques est souvent à l'origine de la majorité des mécanismes d'ionisation et d'excitation dans un plasma [2] (p 52). Lorsque l'électron entre en collision avec une particule lourde, plusieurs événements peuvent se produire et sont décrits par les sections-efficaces de l'élément concerné. Le plus souvent les sections-efficaces sont exprimées en fonction de l'énergie de ces électrons. Il convient alors

d'écrire le champ électrique réduit E/N , le plus souvent exprimé en Td (ce qui équivaut à $10^{-17} V.cm^2$) car les relations de la distribution d'énergie et de l'énergie moyenne des électrons dépendent de ce ratio.

Une méthode pour estimer les paramètres moyens sur les collisions impliquant des électrons consiste à utiliser un solveur de l'équation de Boltzmann. Il y a notamment Bolsig³ [6], un logiciel de 2005 par G. Hagelaar du laboratoire LAPLACE à Toulouse qui utilise des sections efficaces dans la littérature et via plusieurs approximations. De plus, pour une simulation, le logiciel fournit les coefficients de réactions et de transport pour les électrons. En parallèle, le LAPLACE a mis à disposition une base de données Lxcat⁴ répertoriant des groupes de sections efficaces issus d'études numériques ou expérimentales.

En ce qui concerne des données expérimentales, la vitesse de dérive des électrons v_e (ou la mobilité électronique) peut être trouvée dans l'article de revue [7] ou être déduite d'une étude analysant la courbe de claquage avec une excitation radiofréquence [8].

2.1.2.2 L'avalanche électronique ou décharge de Townsend

L'avalanche électronique est le processus à l'origine de toutes les décharges dues à l'application d'un champ électrique. Elle est décrite par le premier coefficient de Townsend noté $\alpha_i = \nu_i / \nu_e$ exprimé en m^{-1} qui représente le nombre d'ionisations opérées par un électron le long d'un chemin d'un mètre. Il dépend principalement du champ électrique réduit et de la densité du gaz (ou de la pression). Le phénomène est appelé avalanche puisque chaque électron arraché à une espèce neutre va enclencher un nouveau mécanisme d'avalanche : la figure 3 nous illustre ce principe.

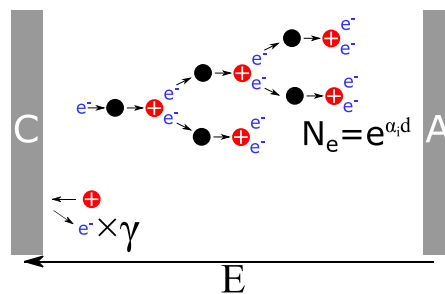


Figure 3: Génération de charge dans un gaz par avalanche électronique avec le premier coefficient de Townsend α_i et par émission secondaire avec le coefficient γ dépendant du gaz et du matériau qui compose la cathode (notée C sur le schéma). L'Anode est notée A.

Un électron germe ayant parcouru une distance d va générer un nombre d'électrons $N_e = \exp(\alpha_i d)$. La figure 3 explicite également le phénomène d'émission secondaire d'électrons qui va prendre part à la suite de la migration des ions positifs vers la cathode. Lorsque l'amplification du courant augmente fortement, alors il y a eu claquage entre les deux

³ <https://www.bolsig.laplace.univ-tlse.fr/>

⁴ https://nl.lxcat.net/data/set_type.php

électrodes, c'est-à-dire qu'un chemin connectant l'anode et la cathode s'est formé. Le courant qui le traverse s'exprime alors selon l'équation (5) :

$$i = i_0 \frac{\exp(\alpha_i d)}{1 - \gamma[\exp(\alpha_i d) - 1]} \quad (5)$$

Traditionnellement, α_i est déterminé via la relation empirique de Townsend pouvant être trouvée dans [2]. Néanmoins, il est plus juste de parler de coefficient de Townsend effectif α_{eff} . Dans certains gaz comme l'air (à cause de l'oxygène), les électrons peuvent s'attacher aux espèces neutres créant ainsi un ion négatif. On dit alors que ces gaz sont électronégatifs. L'homologue de α_i est le coefficient d'attachement η_a également exprimé en m^{-1} . Ainsi $\alpha_{eff} = \alpha_i - \eta_a$ et l'on peut déterminer le champ de claquage d'un gaz lorsque les avalanches électroniques peuvent s'initier lorsque $\alpha_{eff} > 0$.

2.1.2.3 Le streamer

Le mécanisme de claquage vu précédemment n'est pas valable pour les produits $p \times d_{gap}$ élevés. C'est Loeb et Kip [9] qui réalisent les premières démonstrations : ils observent un claquage se produisant en moins d'une microseconde alors qu'il faut un temps plus important pour que le claquage par avalanches électroniques opère.

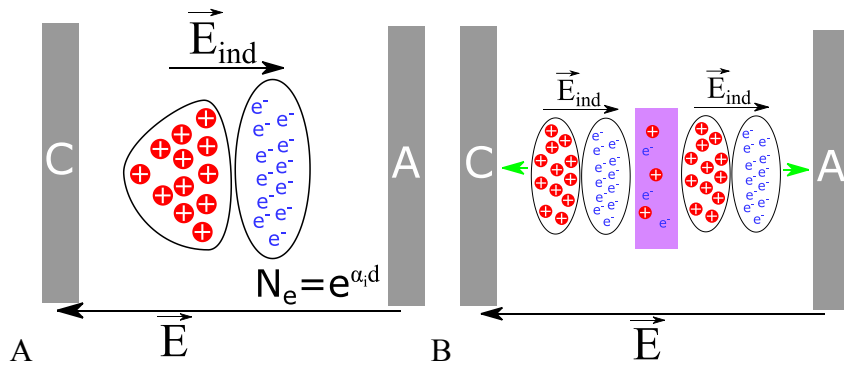


Figure 4: Schéma explicatif de la génération d'un streamer A) évolution de l'avalanche électronique pour un produit $p \times d_{gap}$ important provoquant ainsi un champ de charge d'espace \vec{E}_{ind} s'opposant à \vec{E} . B) déclenchement d'un streamer positif se dirigeant vers la cathode et d'un streamer négatif vers l'anode.

Nous avons décrit précédemment le poids du produit $p \times d_{gap}$ dans le mécanisme d'avalanche électronique. A cela, il est important de rajouter que les électrons ont une mobilité bien plus importante que les ions ($\sim \times 100$) : si $p \times d_{gap}$ est grand alors l'intensité du champ de charge d'espace entre la « tête » de l'avalanche (composée d'électrons) et la « queue » pourra atteindre une valeur comparable à celle du champ appliqué aux bornes des électrodes (voir figure 4a). Le critère de Meek est atteint lorsque pour une avalanche issue d'un seul électron, le champ de charge d'espace est $\vec{E}_{ind} \approx \vec{E}$. A ce moment, Montijn et Ebert [10] montrent que cette avalanche compte $N_e \approx 5 \times 10^8$ électrons dans sa tête dans le cas

d'un champ électrique appliqué proche du champ de claquage, et $N_e \approx 9 \times 10^6$ électrons pour un champ électrique plus important.

Lorsque le critère de Meek est atteint, un *streamer* va grandir par le biais d'une onde d'ionisation. C'est cette onde très lumineuse qui émet la lumière : on le voit sur des images de la décharge lorsque le temps d'exposition utilisé est très faible (exemple figure 5).

En fonction du sens vers lequel le *streamer* se dirige, il est appelé *streamer* positif (vers la cathode) ou négatif (vers l'anode).

Dans le cas d'un *streamer* négatif s'étendant vers l'anode, les électrons sont accélérés par le champ très important dans la tête du *streamer*. Pour un *streamer* positif, il a longtemps été admis que la photo-ionisation était le processus principal permettant de fournir des électrons libres en tête nécessaire à la propagation de l'onde d'ionisation. Certaines expériences tendent à montrer que la photo-ionisation n'est pas nécessaire à la propagation d'un *streamer* positif [11]. C'est pourquoi certains aspects des *streamers* sont toujours sujet à débat dans la communauté des plasmas froids.

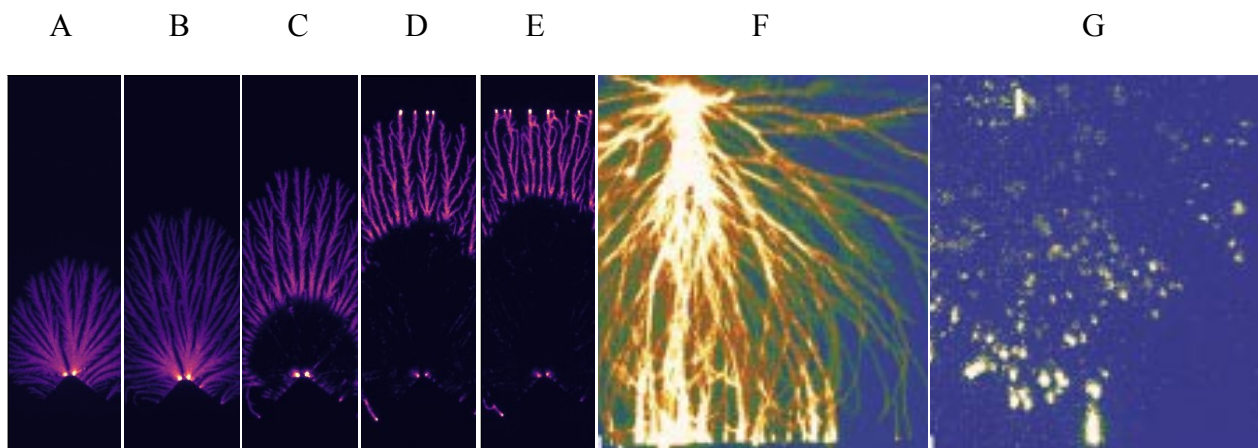


Figure 5: A) Décharge « Sliding DBD » en dents de scie avec une différence de potentiel de 32 kV pulsée avec un temps d'exposition $t_{exp} = 4 \text{ ns}$ et $t = 8 \text{ ns}$ (crédit K. D. Bayoda [3]), B) $t = 12 \text{ ns}$. C) $t = 16 \text{ ns}$. D) $t = 24 \text{ ns}$. E) $t = 32 \text{ ns}$. F) Image intégrée temporellement de Van Veldhuizen [12] d'un streamer suite à l'application d'une tension de 25 kV entre une pointe et une plaque séparées par un gap de 25 mm. G) Image du même streamer obtenue avec $t_{exp} = 0.8 \text{ ns}$, 71 ns après l'allumage de la décharge.

2.1.2.4 Classification des décharges et transition entre l'étincelle et l'arc

A ce point de notre partie bibliographique, nous avons déjà mentionné plusieurs types de décharges : arcs, *streamers*, avalanche de Townsend, décharges à barrière diélectrique. Il existe encore bien plus de catégories de plasmas possédant des propriétés variées. Le plus souvent, la courbe courant-tension d'une décharge à courant continu est utilisée pour classer les types de décharges, comme le montre la figure 6.

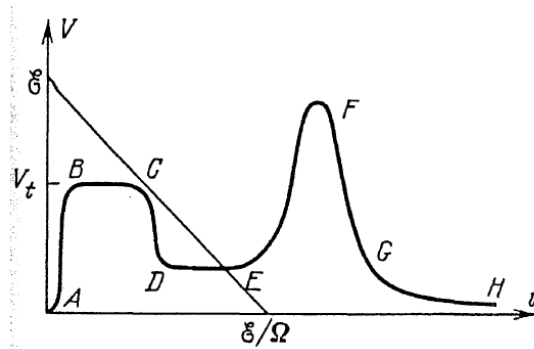


Fig. 8.4. $V - i$ characteristic of discharge between electrodes for a wide range of currents, and the loading line: (A) region of non-self-sustaining discharge, (BC) Townsend dark discharge, (DE) normal glow discharge, (EF) abnormal glow discharge, (FG) transition to arcing, (GH) arc

Figure 6: Courbe courant-tension, issue de [2] (p 173), d'une décharge courant continu découpée en plusieurs phases caractéristiques.

Dans cette étude, nous allons décrire principalement les étapes F-H de la figure 6 : elle représente l'étape de transition entre une décharge luminescente anormale et le passage à l'arc électrique : l'étincelle. Le plus souvent, pour les applications, des artifices seront trouvés afin d'empêcher cette phase, en ajoutant une barrière diélectrique ou en modulant la forme de la tension pour limiter le courant. Cependant, le point F de la figure 6 est positionné sur un *extremum* où la tension et le courant sont importants : la décharge est énergétique mais aussi efficace à cause du champ électrique fort afin de cibler les processus intéressants pour les applications, comme l'ionisation ou la dissociation.

Nous avons présenté les généralités sur les plasmas. Nous allons maintenant pouvoir aborder les types de décharges qui nous intéressent pour ce travail, *i. e.* les décharges nanosecondes répétitives pulsées et les micro-plasmas.

2.2 Les décharges nanosecondes répétitives pulsées (NRP)

Les décharges nanosecondes répétitives pulsées (NRP : nanosecond repetitively pulsed) présentent deux aspects : le champ est pulsé, et répétitif, à une fréquence de répétition de l'ordre de $F_{NRP} \in [1 \text{ kHz}, 100 \text{ kHz}]$. Nous allons commencer par détailler les aspects liés à la pulsation du champ électrique.

2.2.1 Les champs pulsés nanosecondes

Les décharges pulsées sont étudiées et utilisées depuis des décennies dans l'air à pression atmosphérique. Utiliser un champ électrique dont le temps de montée est de l'ordre de la nanoseconde implique plusieurs choses. Tout d'abord, les électrons peuvent être accélérés avec cette constante de temps rapide (de l'ordre de $0,1 \text{ ns}$) alors que les espèces lourdes comme les ions et les neutres demeurent immobiles. De plus, utiliser une impulsion d'une largeur inférieure à $\sim 15 \text{ ns}$ peut empêcher le passage du régime luminescent à la transition à l'arc, qui est symbolisé par le point F de la figure 6. En effet, la tension appliquée pouvant être plus importante que la tension de claquage habituelle. Ces propriétés des décharges nanosecondes autorisent un chauffage des électrons très important de l'ordre de plusieurs eV ,

sans que la tension ne s'écroule, et notamment pour les gaz moléculaires comme l'air, les « pièges » énergétiques que sont les niveaux ro-vibrationnelles sont contournées.

Le claquage nanoseconde se déroule souvent par *streamer* mais d'autres mécanismes de claquage, comme le claquage homogène et les ondes d'ionisation rapides. Le claquage homogène obtenu par des décharges pulsées a été instigué dans les années 70 par Palmer [13] et par Levatter et Lin [14] dans le contexte des sources d'excitation des lasers gaz.

Dans le cas d'une étincelle se développant à la suite d'un claquage, l'utilisation d'un champ pulsé est toujours efficace. Il permet de couper le courant traversant la décharge, ce qui diminue la déposition de l'énergie électrique lorsque celle des électrons diminue.

Une stratégie simple peut venir à l'esprit : répéter ces impulsions qui sont très efficaces à une fréquence assez importante pour que la densité, de n'importe quelle espèce voulue, soit en moyenne égale ou plus importante qu'en utilisant un autre type de décharge (excitation courant continu par exemple). C'est l'objet de la prochaine section.

2.2.2 La répétition des impulsions

Avec une connaissance simplifiée de la chimie dans un gaz, il est possible de déterminer la fréquence de répétition des impulsions qui sera nécessaire pour maintenir une espèce à une densité moyenne donnée. Par exemple, Packan [15] a réalisé la première étude de décharges NRP luminescentes et a prédit les caractéristiques nécessaires à l'obtention d'une densité électronique $n_e = 10^{12} \text{cm}^{-3}$ dans l'air à pression atmosphérique à $T_{\text{gaz}} = 2000 \text{K}$. Ces résultats sont affichés sur la figure 7. On y observe que pour une excitation continue, il faut multiplier la puissance volumique d'un facteur $\sim \times 300$ par rapport à une décharge pulsée répétée à $F_{\text{NRP}} = 30 \text{kHz}$ afin d'obtenir la même n_e .

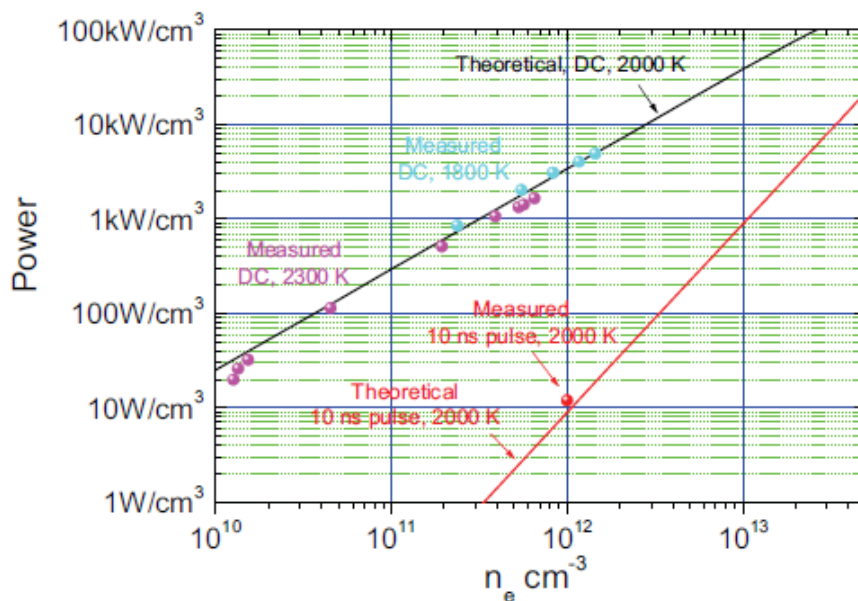


Figure 7: Prédiction de la densité volumique de puissance en fonction de la densité électronique n_e souhaitée pour une décharge à courant continu et une décharge NRP, extrait de [15,16].

Les effets « mémoire » entre décharges répétées à haute fréquence permettent donc d'obtenir des densités d'espèces chimiques équivalentes à d'autres types de décharges mais à un coût énergétique réduit. Néanmoins, les processus mis en jeu ne se résument pas seulement à une accumulation d'une grandeur ou d'une densité d'espèce. En effet, une décharge générée dans les gaz provenant d'une autre décharge n'aura pas les mêmes propriétés qu'une décharge générée dans de l'air « frais ». Il en découle des régimes différents qui feront l'objet de la prochaine section.

2.2.3 Les régimes de NRP et leur transition

Les différents régimes de décharge NRP ont été étudiés par Pai *et al.* [17]. Trois régimes, illustrés sur la figure 8C, peuvent être obtenus de façon stable : les régimes couronne, luminescent et l'étincelle. La figure 8 nous indique la transition en fonction de la tension et de la distance inter-électrodes pour l'air. Ils sont classés par l'amplitude du courant et de l'énergie volumique, et sont représentatifs de la classification de décharge courant continu indiquée sur la figure 6. L'étincelle est plus énergétique que le régime diffus qui est lui-même plus énergétique que la couronne.

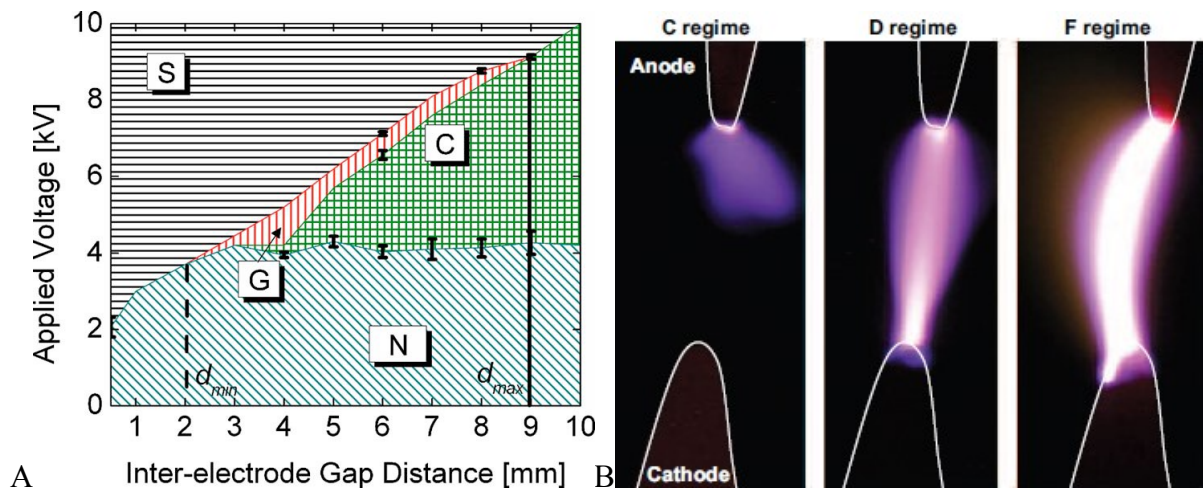


Figure 8: A) Transition entre les trois régimes de décharge NRP pour l'air avec $T_{gaz} = 1000 K$, $F_{NRP} = 30 kHz$ (extrait de [17]) et C) Photographies du régime couronne diffus et étincelle extraites de [16](p 62).

Nous allons présenter ces régimes, puis nous nous attarderons sur l'étincelle. Nous nous concentrerons sur les études réalisées en configuration d'électrodes pointe-pointe.

2.2.3.1 La couronne et le régime luminescent

Dans les conditions de Pai [16] (p 62), la décharge couronne se caractérise par une énergie par impulsion très faible, de l'ordre de $U_{plasma} < 10 \mu J$ et par une lumière au niveau de l'anode. La figure 8 montre que la couronne s'obtient pour des tensions faibles par rapport aux autres régimes.

Le régime luminescent est associé au régime le plus intéressant car il présente une forte activité chimique tout en ayant un chauffage peu important, de l'ordre de $100 K$. De plus, ces

décharges ont la propriété d'être étalées sur des volumes importants. Ce régime se présente comme une lumière diffuse qui traverse l'espace inter-électrodes (figure 8B). En revanche, à l'échelle de temps de la nanoseconde, il se manifeste par deux ondes d'ionisation provenant des électrodes, comme le démontre l'étude expérimentale de Rusterholtz [18] (chapitre 5) et numérique de Tholin [19] (chapitre 2).

Les figures 8A et B montrent que le régime luminescent s'obtient pour des conditions très précises par rapport à la couronne et à l'étincelle. Il apparaît que la délimitation entre l'apparition de la couronne et de la décharge luminescente est une condition similaire à la transition de l'avalanche vers le *streamer*. La transition vers l'étincelle est quant à elle liée à l'effet mémoire de la chaleur accumulée sur plusieurs impulsions [17]. A l'aide de ces données, Rusterholtz [18] a montré qu'il était possible de générer une décharge diffuse stable sans préchauffage du gaz à température ambiante $T_{gaz} = 300 K$. La même étude met en évidence l'existence d'un régime diffus à plusieurs canaux.

2.2.3.2 L'étincelle

Le régime étincelle se caractérise d'abord par une densité énergétique et une luminosité plus importante. Il présente également un chauffage bien plus élevé. Par exemple, une élévation de température de près de $1000 K$ est observée par Rusterholtz *et al.* [20] pendant environ $\sim 25 ns$.

A première vue, ce régime présente des inconvénients pour les applications. Pourtant, l'équipe de recherche de l'EM2C montre à deux reprises dans Pai *et al.* [21] et dans Rusterholtz *et al.* [20], des mesures de densité électronique de l'ordre de $10^{15} cm^{-3}$, synonyme d'activité chimique importante. La même équipe démontre une dissociation de l'oxygène de près de 50 % dans Stancu *et al.* [22]. Ce phénomène est lié au mécanisme à deux étapes de chauffage rapide développé par Popov pour les décharges NRP [23]. Le chauffage efficace des électrons, dû à la pulsation nanoseconde en combinaison avec la densité électronique, peuple très rapidement le N_2^* électroniquement excité qui se trouve désexcité par collision avec l'oxygène. La réaction produit deux atomes d'oxygène. Une étude numérique de Popov [24] utilisant les données de l'étude de Rusterholtz *et al.* [20] montre que 65 % de l'oxygène atomique est formé par ce mécanisme contre 35 % par impact électronique direct.

Le régime étincelle peut donc être caractérisé comme le régime le plus énergétique avec une densité électronique ($\sim 10^{15} cm^{-3}$) et un chauffage élevé ($\sim 1000 K$). Accessoirement, il provoque une dissociation importante dans les gaz moléculaires et il apparaît de façon homogène dans l'espace inter-électrodes [21].

2.2.3.3 Un régime étincelle bis ?

Dans la littérature, on peut observer plusieurs décharges NRP qui se rapportent au régime étincelle NRP de la classification énergétique définie par Pai *et al.* [17] ; mais elles semblent posséder des propriétés différentes de la décharge présentée dans l'étude dédiée uniquement à l'étincelle de Pai *et al.* [21]. Ce régime particulier se manifeste après une première phase diffuse. Celle-ci peut être identique au régime étincelle de Pai *et al.* [21]. Après cette première

phase, un filament plus lumineux est observé. Les termes « contraction » ou « constriction » sont utilisés car ils se réfèrent à l'instabilité thermique qui transforme la décharge luminescente en arc électrique, comme le mentionne le chapitre 9 de [2] (p 222, p 239).

En ce qui concerne les étincelles NRP, la phase filamentaire est observée par Shao *et al.* [25] dans l'air, par Horst *et al.* [26] dans le diazote et par Saint [27] dans la vapeur d'eau. Elle est encore observée dans le cas d'une configuration avec une barrière diélectrique par Shcherbanev [28] et Stepanyan [29] dans l'air à pression élevée $P > 2 \text{ bar}$. Dans tous les cas, la densité électronique n_e mesurée par l'effet Stark de la raie de Balmer H_α est de l'ordre de 10^{18} cm^{-3} , ce qui est en apparence bien plus élevé que la décharge de Pai *et al.* [21].

Les décharges NRP sont initialement prévues pour éviter le passage de l'étincelle à l'arc, mais l'apparition de l'aspect filamentaire intrigue car d'une part, il devrait être évité à cause des désavantages de l'arc mais d'autre part, il permet la génération de densités électroniques considérables, qui sont synonymes d'une activité chimique importante.

2.3 Les micro-plasmas

Les micro-plasmas représentent une classe de décharge électrique à part entière, générée habituellement à haute pression. Cela consiste à confiner au moins une dimension d'un plasma à l'échelle micrométrique. Par principe, un grand nombre de décharges peut être confiné à cette échelle indépendamment de la méthode d'excitation, du milieu ou de la pression. Ces micro-plasmas sont intéressants pour les applications car, au-delà des possibilités liées à la miniaturisation, il en résulte une physique particulière, des caractéristiques intéressantes comme des densités électroniques plus importantes, des électrons plus chauds et une tendance à rester hors équilibre, même à haute pression ($T_{\text{gaz}} \ll T_e$).

Il s'avère que le micromètre représente la dimension caractéristique de plusieurs zones dans un plasma dont l'échelle est plus importante. C'est pourquoi, la première partie de cette revue bibliographique détaille la physique des micro-plasmas. La seconde partie est une revue des premières observations sur le confinement des décharges pulsées nanosecondes. Concernant notre contexte, nous nous concentrerons sur les effets liés aux décharges à pression atmosphérique ou de pression intermédiaire ($\sim 0,1 \text{ atm} - 1 \text{ atm}$) et nous relierons les effets des micro-plasmas et des décharges NRP.

2.3.1 Physique des micro-plasmas

On trouve plusieurs effets liés au confinement de la décharge. Prenons pour exemple un plasma ayant un volume cylindrique généré entre deux électrodes dans de l'air. La réduction de l'espace inter-électrodes réduit la surface du plasma en contact avec l'air mais pas la surface en contact avec le matériau des électrodes, laquelle reste constante. D'après l'article de revue de Mariotti et Sankaran [30], les effets de confinement au niveau micrométrique se divisent en deux parties : la redistribution de l'énergie puis, des espèces chargées. Dans cette partie, nous allons déterminer plusieurs grandeurs caractéristiques dans une décharge afin de comprendre celles qui seront fortement perturbées.

2.3.1.1 La redistribution d'énergie

Lorsqu'on parle de redistribution d'énergie, il est courant de considérer les aspects thermiques. Les approches pour aborder la redistribution de l'énergie sont en général par conduction de la chaleur, comme c'est le cas dans l'étude introductive de Mariotti et Sankaran [30], qui est assimilé comme le mécanisme de refroidissement principal. Cela provient des sources d'excitation communément étudiées dans le champ des micro-plasmas, par exemple des décharges DC, DBD ou RF, car dans ces cas, la convection et le rayonnement sont négligés.

Afin d'illustrer l'échange d'énergie par conduction, nous pouvons emprunter des éléments de modèles d'arcs électriques.

Dans les arcs électriques, même à pression élevée, il existe une gaine perturbée thermiquement. Nous proposons l'analyse de grandeurs suivantes inspirée de l'analyse de Benilov [31] pour un arc à l'équilibre thermodynamique local, condition que nous souhaitons éviter dans le contexte de ce travail ($T_g \ll T_e$). Il est possible d'exprimer la puissance par unité de volume transférée des électrons vers les espèces neutres. On peut alors estimer la longueur caractéristique de cette gaine l_{LTE} en posant l'équation (6), *i. e.* lorsque l'énergie apportée par les électrons n'est pas assez importante pour compenser la perte calorifique près d'une surface métallique :

$$l_{LTE} = \sqrt{\frac{\kappa_h \times m_h}{3n_e m_e \nu_m k_B}} \quad (6)$$

Pour un plasma avec des caractéristiques d'équilibre thermodynamique local complètement dissocié à $T = 10\,000\text{ K}$, on peut récupérer les caractéristiques de densité d'espèces et de grandeur thermodynamique dans une simulation *e. g.* [32] *i. e.* $n_e = 1,5 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$, la conductivité thermique $\kappa_h = 1,5 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \text{ K}^{-1}$, la masse d'un électron m_e en *kg*, la masse des particules lourdes m_h en *kg* et la fréquence de collision entre particules lourdes et électrons $\nu_m = 2,7 \times 10^{-12} \text{ s}^{-1}$.

On peut alors déterminer $l_{LTE} \sim 0,5 \text{ mm}$. Le confinement dans un espace micrométrique va donc affecter fortement les caractéristiques de cet arc électrique.

Cette analyse d'ordre de grandeur montre donc que la proximité des surfaces va provoquer le refroidissement du plasma, mais qu'en plus l'échelle micrométrique est susceptible de fournir des conditions de non-équilibre thermodynamique pour des raisons purement thermiques. Cela est expérimentalement vérifié dans l'air à pression atmosphérique par Staack *et al.* [33] pour une décharge DC ou par Hopwood *et al.* [34] pour une décharge avec une excitation micro-onde par exemple.

2.3.1.2 Redistribution des charges

Le confinement peut influencer la redistribution des charges de deux manières : neutralité dans le corps du plasma, mais aussi en proche paroi.

Dans cette section, nous déterminerons quelles sont les longueurs d'intérêt, non pas du point de vue énergétique mais du mouvement collectif des espèces chargées. Comme le soulignent Mariotti et Sankaran [30], la notion de neutralité du point de vue électrique est remise en cause du fait du confinement à l'échelle micrométrique, notamment en ce qui concerne les régions de proche paroi.

La polarisation des électrodes repousse les charges de même signe et provoque la formation de deux couches à proximité des surfaces : la chute cathodique et la chute anodique. Il se crée alors deux régions de charges d'espaces qui augmentent localement le champ électrique. La taille de zone cathodique, fortement dépendante de la pression, sont de l'ordre $0.4 - 1,3 \text{ m.Pa}$ et pour la chute anodique de l'ordre de $7 \times 10^{-2} \text{ m.Pa}$ dans l'air. Les ions ont en effet une mobilité bien moins importante que les électrons [2] (p 182, p 212). A pression atmosphérique, on aura donc une gaine positivement chargée d'environ $\sim 10 \mu\text{m}$ à la cathode et négativement chargée d'une taille inférieure à $1 \mu\text{m}$ à l'anode.

Une simulation de Choi *et al.* [35] dans l'hélium à pression atmosphérique montre que le champ électrique important près de la cathode est responsable de la présence d'électrons très énergétique avec $T_e > 5 \text{ eV}$ jusqu'à $\sim 25 \mu\text{m}$ de la cathode. Huang *et al.* [36] ont étudié le mécanisme de claquage à pression atmosphérique dans l'hélium pour une décharge nanoseconde. Ils ont réalisé des mesures de l'énergie des électrons selon deux températures électroniques caractéristiques de la distribution d'énergie. Ils observent des électrons plus énergétiques à la cathode qu'à l'anode. Les températures les plus élevées sont mesurées dans l'espace à la frontière de la chute cathodique et de la colonne positive, dans l'espace de Faraday.

Enfin, le dernier aspect concerne le claquage pour les distances inter-électrodes très faibles de l'ordre de $10 \mu\text{m}$. En effet, la loi de Paschen déterminant la tension de claquage en fonction du produit pression $\times d_{gap}$ n'est plus valable car les autres processus de création des charges doivent être pris en compte [37].

2.3.2 Confinement des étincelles NRP

Les sections précédentes ont traité des effets de confinement en régime stationnaire. De nouveaux effets transitoires des étincelles NRP sont à prendre en compte.

En ce qui concerne le transfert de chaleur par convection, il semble que l'expansion du noyau chaud succédant au chauffage rapide ne soit pas négligeable, notamment avec les études de Stepanyan *et al.* [38], Xu *et al.* [39] ou d'une décharge encore plus énergétique comme par Lo *et al.* [40]. Il est alors possible d'estimer un temps caractéristique de diffusion thermique par conduction [41] avec $\tau_{cond} = l^2/4D_T$ avec la longueur caractéristique l en m et D_T la diffusivité thermique. Pour de l'air à $T_{gaz} = 1000 \text{ K}$ et la plupart des métaux, on a $D_T \sim 10^{-4} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$.

L'expansion du noyau chaud est de l'ordre de la μs dans Xu *et al.* [39]. La conduction rentre en compétition pour $\tau_{cond} = \sim 1 \mu\text{s}$ lorsque $l \sim 20 \mu\text{m}$. Ainsi par confinement, on peut renverser le rapport de l'énergie dissipée par expansion thermique et par conduction.

Le deuxième aspect des micro-plasmas, la redistribution des charges peut être étudiée par les frontières de la décharge.

Tout d'abord, les frontières avec le gaz environnant peuvent être caractérisées par la longueur de Debye λ_D . Avec une estimation de λ_D pour les conditions d'une étincelle NRP avec $n_e \sim 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ [21] et $T_e \sim 30\,000 \text{ K}$ [15,21], on obtient $\lambda_D \sim 10^{-7} \text{ m}$. La dénomination de plasma n'est donc pas remise en cause de ce point de vue lorsque la décharge est micrométrique.

Dans un second temps, nous pouvons étudier les frontières avec les électrodes via les chutes cathodiques et anodiques. Nous nous concentrerons sur l'analyse de la chute cathodique car les tailles et les tensions sont plus importantes dans le cas des arcs et des décharges lumineuses. Par le biais de courbes tension de claquage et espace inter-électrodes, Packan [15] (p 136) estime que le champ électrique appliqué pour une décharge nanoseconde répétitive est très dépendant de la dynamique de la chute cathodique.

Pour les décharges pulsées, la formation de la chute cathodique a notamment été étudiée par Nikandrov *et al.* [42], Macheret *et al.* [43] et Belasri *et al.* [44]. Ils montrent le passage par plusieurs étapes caractéristiques. En premier, lorsque la tension de l'impulsion commence à croître, les électrons germes sont poussés loin de la cathode. Pendant cette étape, les charges sont trop peu nombreuses pour influencer sur le champ électrique devant le champ Laplacien. Le champ de charge d'espace deviendra important lorsque le champ appliqué aura dépassé le champ de claquage et que les électrons se seront démultipliés. Pendant ce temps, la chute cathodique croît et augmente son champ de charge d'espace jusqu'à ce qu'un autre processus de création de charges repousse la zone avec le déficit en électrons sur la cathode. Ces étapes sont symbolisées sur les figures 9A et B.

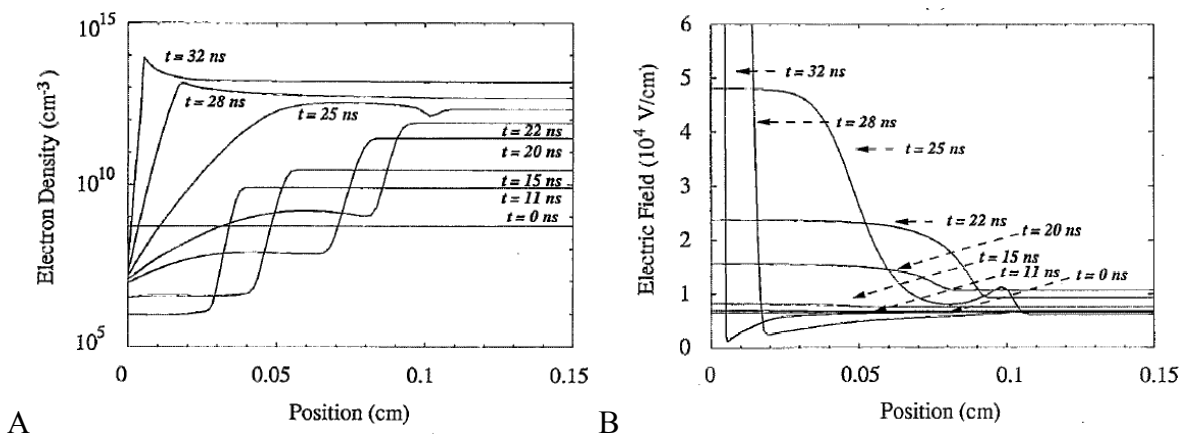


Figure 9: Dynamique de la chute cathodique pour un claquage pulsé extrait de Belasri *et al.* [42]. A) Les électrons sont repoussés de la cathode pendant que le mécanisme d'avalanche électronique les démultiplie. B) Le champ électrique est influé remarquablement par le champ de charge d'espace à $t = 20 \text{ ns}$ puis la chute cathodique est repoussée à la cathode à $t = 25 \text{ ns}$.

Nous voyons ainsi que les décharges NRP ouvrent des perspectives aux effets de confinement, *i. e.* micro-plasma qui ne sont pas disponibles pour les décharges continues.

2.3.3 Décharges micro-plasma-NRP dans les gaz nobles

Dans la littérature, on dénombre déjà quelques cas de micro-décharges NRP à pression atmosphérique, surtout dans les gaz nobles. La première étude essayant de coupler les effets des micro-plasmas et des décharges NRP est l'étude de Walsh *et al.* [45] en 2010 dans l'argon, avec une fréquence de répétition $F_{NRP} = 10 \text{ kHz}$ et un gap $d_{gap} = 160 \mu\text{m}$. Ils ont obtenu une décharge d'une puissance de 1.6 W en moyenne (pic à 160 kW) avec une densité électronique n_e maximum supérieure à 10^{17} cm^{-3} . De surcroît, ils ont comparé cette décharge à une décharge DC d'une puissance de $1,77 \text{ W}$ et d'une densité électronique de l'ordre de 10^{15} cm^{-3} . Les auteurs constatent que la température du gaz est plus importante dans le cas de la micro-décharge DC ($T_{gaz} = 650 \text{ K}$) que dans le cas du micro-plasma pulsé ($T_{gaz} = 480 \text{ K}$).

En 2012, Zhu *et al.* [46] améliorent la mesure de n_e permettant de déterminer la recombinaison des électrons longtemps après la décharge. Ainsi, avec un micro-plasma pulsé, on retrouve dans l'argon une densité électronique moyenne équivalente à celle du micro-plasma continu.

Néanmoins avec le chauffage moins important du cas pulsé, de l'énergie a été transférée préférentiellement dans des électrons plus chauds, et donc dans des processus plus intéressants comme l'excitation de métastables par exemple. Cela est mis en évidence par les densités électroniques très élevées.

2.4 Applications des plasmas d'air à pression atmosphérique

Dans cette partie, nous allons nous intéresser aux principales applications des plasmas d'air à pression atmosphérique, spécifiquement pour les micro-plasmas et les étincelles NRP. Les champs d'applications concernés nécessitent des configurations simples sans atmosphère contrôlée. Les caractéristiques physiques de la décharge sont alors les seules variables qui permettent une quelconque sélection dans les espèces générées. Nous verrons que les décharges NRP sont impliquées dans les dépôts d'énergie important tandis que les micro-plasmas sont préférées pour leur chimie hors équilibre.

2.4.1 Conversion, production d'espèces réactives

L'utilisation des plasmas dans des applications concrètes sont dans la très grande majorité des cas en relation avec leur chimie hors équilibre. A l'image de ce constat, la première application d'ampleur industrielle est la génération d'ozone au 19^{ème} siècle. Dans cette section nous nous intéresserons à des études dont la vocation est la production d'espèces chimiques à longue durée de vie, pour une utilisation immédiate ou à très longue durée de vie pour du stockage énergétique par exemple.

Un point faible des micro-plasmas est que le volume traité par la décharge est réduit, à l'image des micro-décharges à cathode creuse (MHCD). C'est une décharge qui est apparue pour la première fois dans les années 90 avec l'étude de Schoenbach *et al.* [47]. Elle permet un fonctionnement stable en courant continu et à des densités électroniques importantes

($\sim 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, voire $\sim 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ dans un régime particulier reporté par Lazzaroni *et al.* [48]). Afin de pallier au faible volume de la décharge, Sousa *et al.* [49] ont utilisé deux stratégies représentées par le schéma sur la figure 10A. D'une part, ils ont étendu la décharge en utilisant une troisième électrode et ils ont privilégié un fonctionnement en matrice. La configuration présentée est utilisée afin de produire le métastable $O_2(a^1\Delta_g)$, utile dans le pompage laser et les applications médicales [49].

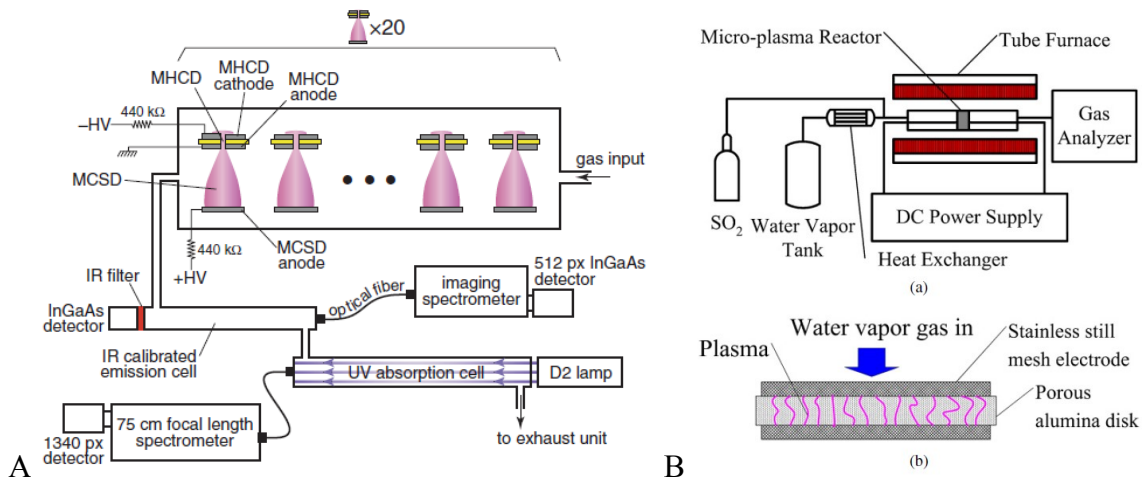


Figure 10: A) Configuration de micro-plasma en matrices et en montage à trois électrodes pris dans [49]. B) Micro-plasmas générés dans un solide poreux repris de [50].

Une autre méthode pour étendre la zone de traitement consiste à générer la décharge dans un solide poreux comme Koo *et al.* [50]. La géométrie des électrodes est présentée en figure 10B : on observe que des micro-décharges sont générées dans chacun des pores du solide. Cette configuration est utilisée pour produire de l'hydrogène pouvant à la suite être stocké. Dans Chu [51] (p 378), il est indiqué que le coût énergétique est de 15 g.kWh^{-1} ce qui se rapproche de l'électrolyse de l'eau $\sim 20 \text{ g.kWh}^{-1}$.

Si la principale application des étincelles NRP reste la combustion assistée par plasma, des études relatives à la production d'espèces longue durée ont été publiées ces dernières années.

En contraste avec l'étude de Koo *et al.*, Saint [27] a étudié l'utilisation de l'étincelle NRP pour la production d'espèces longue durée OH et d'espèces stockables H_2 et O_2 à partir de vapeur d'eau pure. Il a obtenu un coût énergétique de $0,85 \text{ g.kWh}^{-1}$ (conclusion de [27]) pour H_2 au premier abord peu important par rapport aux résultats précédents. Néanmoins, la décharge a montré un degré de dissociation/ionisation important avec une densité électronique $n_e \sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ et les principaux mécanismes de recombinaison ont été identifiés. Cela montre que la production pourrait être optimisée en utilisant un mélange de gaz ou une interaction avec une surface par exemple.

L'étude de Scapinello *et al.* [52] est un autre exemple de conversion de gaz. Ils utilisent une étincelle NRP pour la conversion de deux gaz à effet de serre en combustible $CH_4 + CO_2 \rightarrow 2CO + 2H_2$. Un rendement énergétique de 40 % est obtenu en prenant en compte la génération de CO et H_2 . Par contre, la taille des barres d'erreur et la méthode de mesure de

l'énergie mettent en lumière une difficulté quant à l'utilisation des décharges NRP : la mesure de l'énergie et de la puissance sont peu précises ; cela devient rédhibitoire pour les applications dont le résultat est un taux de conversion ou une efficacité énergétique.

Nous avons présenté deux configurations de micro-plasmas et d'étincelles NRP pour la production d'espèces à longue durée de vie. Cela a permis d'aborder des méthodes pour étendre le faible volume d'une micro-décharge. De plus, lorsque les volumes de traitement doivent être importants, nous observons qu'un fonctionnement en matrice est possible.

2.4.2 Allumage et combustion assistés par plasma

Selon les derniers articles de perspectives dans ce contexte [53,54], la combustion assistée par plasma est un sujet d'intérêt. L'article de revue de Starikoskaia [55] indique que le sujet se divise en deux catégories principales : l'allumage et la combustion assistés par plasma. Globalement, les effets principaux recherchés sont des combustions moins polluantes et des efficacités d'allumage plus importantes.

Dans ce domaine, les décharges NRP sont plus utilisées que les micro-plasmas à cause de leur dépôt d'énergie important, notamment dans le régime étincelle. De plus, la littérature dans le domaine est très bien fournie, en particulier pour les décharges pulsées (voir [55]). Nous allons ici nous concentrer sur des fréquences de répétition $F_{NRP} > 1 \text{ kHz}$.

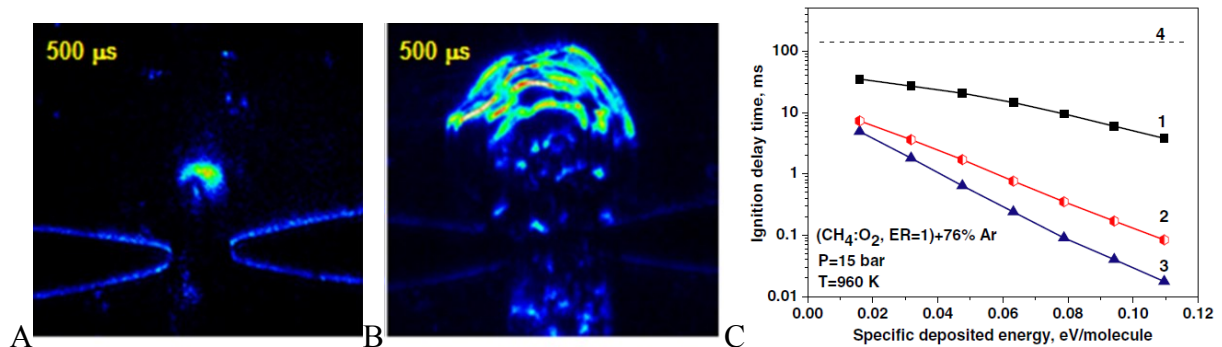


Figure 11: Expansion thermique pour $V_{\text{plasma}} = 28 \text{ kV}$, $d_{\text{gap}} = 1 \text{ mm}$ 500 μs après la ou les décharges. A) Une seule décharge. B) Pour 30 impulsions consécutives avec $F_{NRP} = 70 \text{ kHz}$. C) Courbes issues de [55], simulation du temps d'allumage pour plusieurs cas : 1, énergie transférée totalement en chauffage, 2 l'énergie est transférée en chauffage et en dissociation, 3 uniquement en dissociation et 4 ni en chauffage, ni en dissociation.

L'allumage consiste à utiliser une décharge très énergétique, comme une étincelle, afin d'élever la température dans un petit volume de gaz pour déclencher la combustion et la propagation du front de flamme dans un plus grand volume. D'après Starikoskaia [55], un plasma se démarque d'un simple effet de chauffage par sa capacité à produire des états électroniquement excités et radicaux, méthode plus efficace pour l'initiation de la combustion. De ce point de vue, les décharges NRP sont connues pour produire un nombre important d'espèces électroniquement excitées tel que le montre le tableau exhaustif montré dans le livre de Chu et Lu [51] (p 159). De plus, dans une étude récente, Stepanyan *et al.* [38] ont montré que l'utilisation d'une décharge NRP millimétrique avec un schéma de plusieurs impulsions

judicieusement choisi permet d'accroître le volume chauffé en utilisant l'expansion thermique, comme le montre la figure 11A. Cette dernière a précédemment été étudiée par Xu *et al.* [39] et Seydou [56].

En ce qui concerne l'émission des polluants, il s'avère que l'utilisation de mélanges pauvres, c'est-à-dire avec un faible ratio combustible-air, permet de réduire l'émission des NO_x avec une flamme plus froide. En contrepartie, la combustion est moins stable et plus difficile à initier. Des études montrant des effets positifs de l'application de décharge NRP comme la stabilisation de la flamme ont été publiées très tôt comparativement à la première publication sur les décharges NRP en 2003 [15]. On peut notamment citer celles de Pancheschnyi *et al.* [57] et de Pilla *et al.* [58] seulement trois ans plus tard. Les auteurs observent la stabilisation de la flamme et la réduction du délai d'allumage. Ils en attribuent les effets à la production d'oxygène atomique et au chauffage de la décharge.

Des résultats numériques de Stepanyan *et al.* [59] que nous exposons sur la figure 11B montrent qu'un transfert d'énergie dans du chauffage ou dans la dissociation de l'oxygène permet de réduire le temps pour l'allumage. Les délais d'allumage par rapport à l'énergie déposée sont les moins importants lorsque l'énergie est transférée uniquement dans la dissociation de l'oxygène.

En conséquence, même dans un domaine comme la combustion, il peut être intéressant de transférer l'énergie en chimie plutôt qu'en thermique. C'est pourquoi la géométrie micro-plasma pourrait être intéressante. De plus, il est attendu que l'expansion du noyau chaud soit sujet au confinement de la décharge. Comme le montre Stepanyan *et al.* [38] avec la figure 11B : une décharge NRP peut affecter de larges volumes en associant l'expansion thermique avec une fréquence de répétition très élevée.

2.4.3 Synthèse de nanomatériaux

Les propriétés uniques des nanomatériaux et nanostructures en font un sujet applicable dans de nombreux contextes (en optique par exemple [60,61]). Leur fabrication, comme tout procédé industriel, est soumise aux challenges d'être le plus économe possible en énergie, en pollution et en matériaux. A cause de leur chimie hors-équilibre, les plasmas sont très utilisés pour un grand nombre d'applications dans le domaine des matériaux [62].

Comme le suggère l'article de revue de Mariotti et Sankaran [30], les configurations micro-plasmas sont particulièrement adaptées à la synthèse de nanomatériaux. Ils énumèrent en effet plusieurs arguments. Tout d'abord, le fonctionnement à haute pression permis par la configuration micro-plasmas accélère considérablement la chimie et donc la nucléation des particules. Deuxièmement, une configuration micrométrique facilite le contrôle du temps de résidence dans le microréacteur, *e. g.* en utilisant un écoulement. Cela est important pour optimiser le temps de nucléation, et donc *e. g.* améliorer la sélectivité de la taille des particules. Pour finir, l'environnement particulier dans les plasmas soumet les particules à plusieurs forces, *e. g.* la force de Coulomb, ce qui a tendance à auto-organiser des structures de décharges ou de nanomatériaux [63].

Ces éléments sont repris *e. g.* dans une étude de Chiang *et al.* [64] qui a utilisé une géométrie de micro-plasma dont le schéma est reporté sur la figure 12A. Le réacteur est composé de deux électrodes métalliques scellées dans un tube de quartz. Un écoulement d'argon mélangé à des vapeurs métalliques traverse le micro-plasma dont le courant continu est maintenu à $I_{plasma} = 5 \text{ mA}$. En utilisant cette configuration, les auteurs montrent d'une part que des nanoparticules composées d'un seul ou de deux métaux peuvent être générées, mais aussi que leur taille peut être contrôlée à partir de l'ajustement de la concentration en vapeurs métalliques.

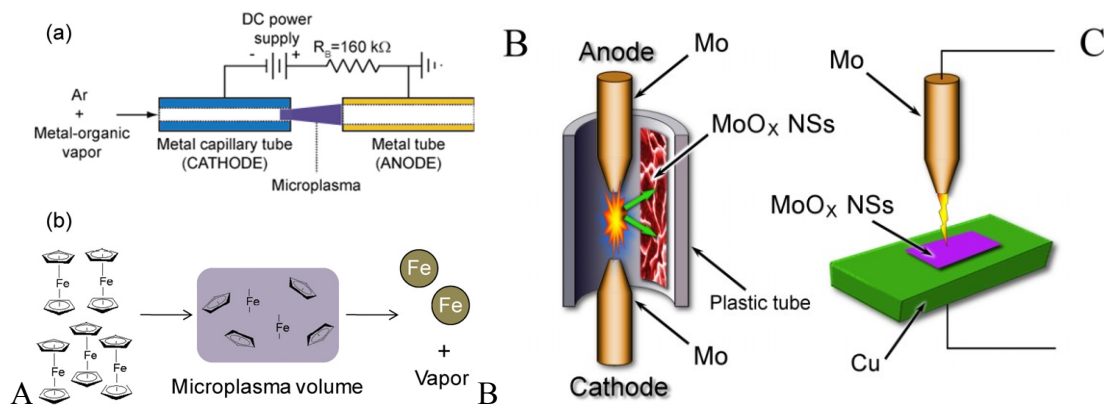


Figure 12: A) Configuration de Chiang *et al.* [64] pour la synthèse de nanoparticules. B) Configurations de Pai *et al.* [65] pour la synthèse de nanomatériaux utilisant des décharges NRP indirectes et C) directes.

Les étincelles NRP sont en revanche bien moins utilisées pour la fabrication de nanomatériaux. Pourtant, les raisons pour lesquelles les micro-plasmas sont populaires pour la synthèse de nanomatériaux s'appliquent aussi aux décharges NRP : cela génère un plasma hors-équilibre à pression atmosphérique et la nucléation pourrait être contrôlée par un écoulement externe ou la fréquence de répétition des impulsions.

La question de l'utilisation des décharges NRP pour les nanomatériaux a été abordée par Pai *et al.* [65]. Deux configurations ont été utilisées (figure 12B) afin de produire des nanostructures de MoO_x . La première est une géométrie pour laquelle un substrat se trouve à proximité de la décharge tandis que dans l'autre cas, la décharge est en contact avec le substrat. Dans cette étude, des nanostructures de MoO_3 ont été générées dans l'air à pression atmosphérique en utilisant le métal des électrodes en molybdène comme précurseur. Si les auteurs ne semblent pas avoir pu contrôler la forme ou la taille de la structure, ils ont obtenu une énergie dépensée par atome de 75 eV au minimum, ce qui est extrêmement faible en comparaison d'autres méthodes présentées dans [65], aux alentours de $\sim 1000 \text{ eV}$.

Dans ce domaine, nous pouvons donc constater que les micro-plasmas constituent une technologie adaptée pour fabriquer les nanoparticules avec la sélectivité de la forme et la simplicité de la configuration. En revanche, les décharges NRP n'ont pas encore montré de forme de sélectivité mais suscitent un intérêt à cause de l'efficacité énergétique importante. Toutefois, le chauffage très important des décharges NRP, utile pour la vaporisation du

précurseur, empêche le traitement direct d'une cible thermosensible ou détériore les nanostructures : la configuration indirecte semble la plus prometteuse.

2.4.4 Applications biologiques et médicales

Les plasmas froids peuvent être utilisés pour des applications biologiques telles que la décontamination [66], les traitements médicaux *in vivo* [67] ou même l'agriculture [68,69]. Selon le dernier article de perspective [53], de nombreux aspects des plasmas sont utiles dans ces domaines tels que la production d'espèces réactives ou chargées, le champ électrique, l'émission de photons et le chauffage. La compréhension des phénomènes impliqués dans les observations est donc complexe. De plus, pour le traitement *in vivo* (d'espèces animales ou végétales), il est nécessaire de produire des espèces réactives tout en gardant un chauffage modéré sur la cible. Pour ces raisons, les configurations de jets plasmas sont donc très étudiées [67,69,70] car elles permettent un traitement dans l'air à pression atmosphérique.

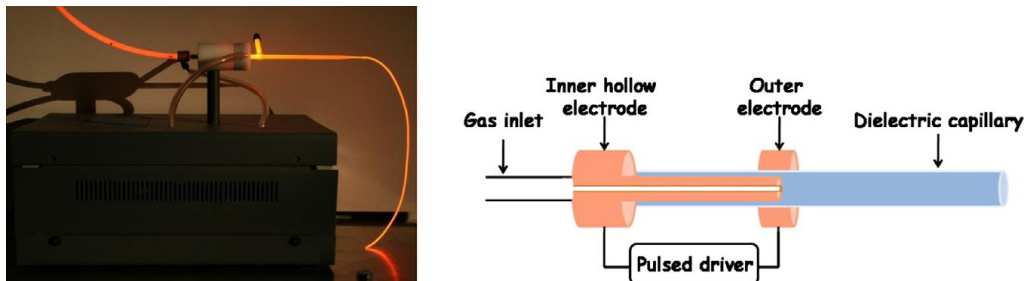


Figure 13:A) Figures extraites de Robert *et al.* [67] présentant la configuration adoptée pour la méthode endoscopique.

Concernant les jets plasmas, une méthode d'endoscopie [67] a montré des effets positifs sur différents types de tumeurs. Cette méthode, illustrée par la figure 14, consiste en un capillaire diélectrique de taille millimétrique dans lequel un plasma se propage. A cause de la taille restreinte, ce capillaire peut facilement s'infiltrer et cibler des zones de petites tailles. La région haute tension est éloignée de la zone traitée car le capillaire peut faire plusieurs dizaines de centimètres de long. Ce moyen permet donc d'appliquer un plasma froid dans un organisme vivant dans de bonnes conditions de sécurité tout en ciblant la région à traiter. Cette méthode endoscopique a déjà été adoptée en se servant d'une étincelle millimétrique au bout du tube en utilisant le gaz ambiant [71].

Nous avons constaté que les configurations de jets sont utilisées pour cibler des zones très précises. Au contraire, dans l'étude de Buonopane *et al.* [69], un jet plasma est utilisé pour traiter des surfaces importantes pour la croissance de plantes aromatiques (*Ocimum basilicum*, basilic). Cette étude montre qu'une utilisation hebdomadaire d'un jet plasma d'hélium pendant 30 secondes par plan sur une période d'un mois accélère la croissance des plantes.

D'après l'article de revue de Graves [72], il s'avère que les espèces réactives jouent un rôle important dans les applications médicales et biologiques. Par exemple, nous avons déjà parlé de l'utilisation des micro-décharges pour produire l'espèce $O_2(a^1\Delta_g)$ en énonçant l'étude de

Sousa *et al.* [49]. Dans une étude précédente, les auteurs de [49] ont mis en cause la production de cet espèce pour l'oxydation de l'ADN [73].

Pour les applications biomédicales, nous avons présenté une configuration de jets plasmas qui souligne les impératifs du domaine : sécurité par rapport à la cible, intrusivité, pas d'élévation de température et précision pour le traitement d'une cible. Les micro-plasmas pourraient également répondre à plusieurs de ces enjeux.

Il ne semble pas que les décharges NRP aient déjà été appliquées dans les domaines biologique ou médical. Les décharges NRP pourraient être appliquées dans ce domaine car Stancu *et al.* [22] présentent des taux de dissociation de l'oxygène importants. De surcroît, Simeni Simeni [74] s'est intéressé spécifiquement à la mesure et à la production de *NO* en utilisant des décharges NRP.

2.4.5 Conclusion sur les applications

Dans cette section, nous nous sommes intéressés à des applications utilisant les décharges NRP et les micro-plasmas. Elles sont également communes à tout le champ des plasmas froids.

Concernant les micro-plasmas, nous avons abordé plusieurs configurations qui permettent d'étendre le volume de traitement avec le montage à trois électrodes, le fonctionnement en matrice et dans un solide poreux. Les décharges NRP filamenteuses ont aussi la capacité d'accroître le volume de traitement avec l'expansion thermique. L'utilisation d'un écoulement peut aussi être un moyen de traiter des cibles précisément ou des zones larges. Dans cette optique, nous dédions les sections suivantes à l'étude des écoulements que nous pourrions rencontrer dans notre contexte.

2.5 Généralités sur les jets et les écoulement EHD

Dans la section précédente nous avons constaté que des écoulements sont utilisés dans le domaine des plasmas afin de transporter les produits du plasma de la source vers la cible. Les caractéristiques de l'écoulement représentent donc un aspect important pour la quantité d'espèces d'intérêt qui vont être transportées. Dans une première partie, nous synthétiserons des données sur les principales configurations de jets et de panaches thermiques. Par la suite, cette synthèse nous permettra de caractériser les résultats que nous présenterons dans le chapitre 6.

Dans ce travail de thèse, nous proposons que la mise en mouvement du fluide est due à un effet électro-hydrodynamique (EHD). C'est pourquoi dans une seconde partie, nous traiterons uniquement des écoulements EHD.

2.5.1 Les jets et les panaches

2.5.1.1 Les jets libres et impactants

Un jet est défini comme l'injection d'un fluide dans un milieu *a priori* au repos. On les distingue selon leurs géométries et par les conditions du milieu autour du jet : c'est un jet libre

lorsqu'il n'est pas perturbé par une paroi, un jet impactant si l'orifice débouche sur une paroi ou un jet confiné si une surface latérale influence le comportement du jet. Ils sont également classés par la forme de l'orifice de sortie du fluide : ils peuvent être cylindriques, carrés, rectangulaires, *etc.* Il y a ensuite plusieurs sous-catégories, si l'orifice est une buse, un canal ou si les arêtes sont très fines ou émoussées par exemple.

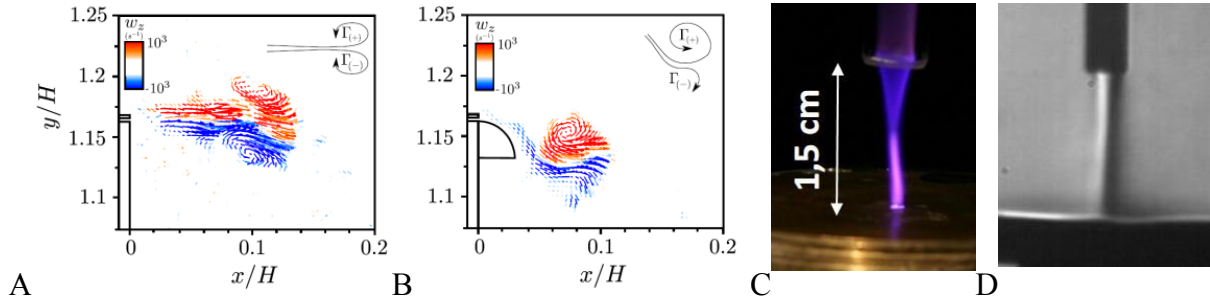


Figure 14: A) Utilisation d'une géométrie de jet libre et B) de jet confiné pour le contrôle d'écoulement [75]. La proximité de la surface affect le développement des vortex contrarotatifs à cause de l'effet Coandă. C) Photographie et D) visualisation Schlieren d'un jet plasma en configuration jet impactant (issues de Darny [76]).

L'écoulement du jet a été et demeure toujours un sujet d'étude très vaste et ce depuis des décennies. Le nombre adimensionnel de Reynolds R_e est très utile pour comparer les comportements globaux de configurations similaires et la nature du régime d'écoulement. Il se calcule avec la vitesse caractéristique U_{ref} en $m \cdot s^{-1}$, la longueur caractéristique D_{ref} en m et la viscosité cinématique ν en $m^2 \cdot s^{-1}$ (relation (7)). Pour un jet, U_{ref} est la vitesse de sortie au niveau de l'orifice et D_{ref} correspond au diamètre de l'orifice de sortie le diamètre de référence. Pour les jets qui ne sont pas ronds, D_{ref} se calcule suivant l'équation (8) avec A l'air de la section en m^2 et P le périmètre mouillé en m .

$$R_e = \frac{U_{ref} D_{ref}}{\nu} \quad (7)$$

$$D_{ref} = 4 \times A / P \quad (8)$$

Des limites de nombres de Reynolds sont déterminées empiriquement pour caractériser le régime d'écoulement. Les valeurs seuils sont principalement dépendantes de la configuration. Par exemple, pour un écoulement dans une conduite et un jet, l'écoulement est laminaire pour $R_e < 2000$ et turbulent pour $R_e > 4000$. Pour le cas de l'écoulement autour du cylindre, il faut $R_e < 1$ pour être dans le régime laminaire : des structures tourbillonnaires de transition sont observées au-delà et c'est à $R_e > 4000$ que l'écoulement est turbulent.

On peut diviser le schéma d'un jet en trois parties distinctes :

- une région où les caractéristiques sont encore identiques à l'écoulement avant la sortie du jet ; elle prend la forme caractéristique d'un cône et s'appelle donc logiquement *cône potentiel* ;
- une zone transitoire qui débute lorsqu'à la fin du cône potentiel ; le gaz du jet se mélange alors au gaz ambiant ;
- la zone d'écoulement établie ou autosimilaire car les principales caractéristiques évoluent et peuvent être déterminées en fonction de la distance du début de cette zone, les profils de vitesse adoptent une fonction gaussienne en fonction de la distance radiale.

Dans les paragraphes suivants, nous allons reprendre plusieurs études de jets qui fournissent une description du comportement asymptotique des grandeurs d'intérêt, c'est-à-dire dans la zone autosimilaire : le taux d'expansion, l'épaisseur de la couche de mélange, la vitesse axiale ou des grandeurs caractéristiques de la turbulence avec l'énergie cinétique turbulente ou le tenseur de Reynolds.

Dans notre étude, les grandeurs caractéristiques seront normalisées par rapport à une référence locale selon les définitions de Chassaing [77] (p 331-332), pour un jet libre :

- la vitesse de référence est la vitesse axiale centrale moyenne notée U_c ;
- l'épaisseur de référence est la demi-largeur R_H lorsque la vitesse atteint $U = 0,5 \times U_c$.

Tableau 1 : Paramètres principaux comprenant l'évolution de la vitesse axiale, de la demi-largeur issues de l'ouvrage de Chassaing [77] p337, les intensités turbulentes sont données pour la zone autosimilaire dans l'axe du jet. Δ_j représente les taux d'expansion et x_0 la position de la zone autosimilaire.

	Jet plan	Jet rond
$U_c(x) = U_c(x - x_0)/U_{ref}$	$\Delta_j \times (D_{ref}/(x - x_0))^{1/2}$	$\Delta_j \times D_{ref}/(x - x_0)$
$R_H(x) = R_H(x - x_0)$	$\Delta R_H \times (x - x_0)$	$\Delta R_H \times (x - x_0)$
Δ_j	[2,1; 2,4]	[5,8; 6,1]
ΔR_H	[0,1; 0,11]	0,09

De plus, l'épaisseur de référence caractérise l'entraînement car il définit le point où la vitesse radiale est nulle [77] (p 341) : entre le milieu du jet et ce point, l'écoulement est divergent alors que hors de cette zone, il est convergent. Ce point représente également la couche de cisaillement où les fluctuations dans le sens de l'axe sont les plus importantes.

Le tableau 1 présente les caractéristiques principales de jets plans et ronds de régime turbulent. On y voit notamment que pour un jet rond, la variation de la demi largeur et de la vitesse centrale par rapport à la vitesse de sortie du jet U_0 est linéaire en fonction de la distance de l'orifice. Des intensités turbulentes typiques sont comprises entre 19 % et 25 % selon la composante (voir Chassaing [77] p 337).

Dans les prochaines sections, nous exposerons brièvement des sous-catégories de jets qui pourraient présenter des similarités avec notre étude. A l'image de la description en plusieurs zones exposée dans cette partie, la description physique des autres classes de jet se présenteront en deux types de zones : les zones dissemblables et les zones où l'écoulement garde des propriétés identiques à un jet libre classique. Par exemple, nous les décrivons pour les jets impactant :

- la zone où le jet n'est pas impacté par la surface et se comporte comme un jet libre ;
- la zone où le jet commence à être affecté par la surface, jusqu'au point de stagnation situé sur la surface ;
- la région de jet de paroi après l'impact du jet.

2.5.1.2 Les jets rectangulaires

Ces types de jet sont moins étudiés que leurs homologues ronds mais sont tout de même très utilisés dans le refroidissement et les applications de mélange en général. On retrouve également ce type d'écoulement dans plusieurs problèmes biologiques *i. e.* au niveau des cordes vocales [78]. Dans la communauté des plasmas froids, on peut rencontrer cette géométrie pour simplifier les diagnostics d'absorption [79].

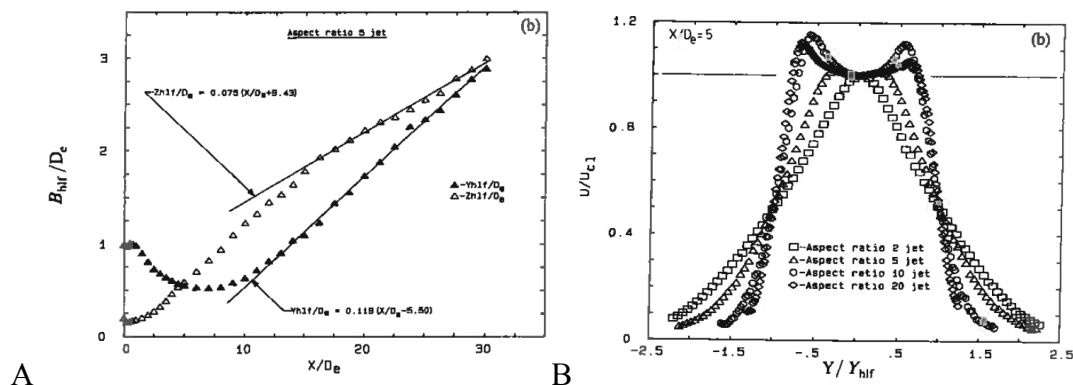


Figure 15: Courbes extraites de l'étude de Quinn [80] pour $Re = 2 \times 10^5$ basé sur D_{ref} A) évolution de la demi-largeur du jet dans le sens du côté long en triangle noir et du côté court en triangle blanc, B) Profil de vitesse dans le côté long pour $a/b = 2$ en carré, $a/b = 5$ en triangle, $a/b = 10$ en rond et $a/b = 20$ en carré renversé C) Profil de vitesse dans le côté court.

Bien que les premières observations de ce type d'écoulement datent de plus de 50 ans [81,82], les mécanismes mis en jeu ne sont pas complètement compris. Deux phénomènes illustrés sur la figure 15, accentués en augmentant le rapport a/b et en utilisant des bords bien aiguisés [80], retiennent particulièrement l'attention :

- si initialement, le profil du côté long est plus large que le côté court, une inversion des largeurs des profils est observée en aval du jet comme sur la figure 15A ;
- la vitesse maximale n'est pas positionnée au centre du profil du jet dans le sens du côté long car le profil présente une forme particulière avec deux maximum de part et

d'autre du centre, et est donc dénommé en forme de « selle » comme le montre la figure 15B.

L'explication pour la forme de « selle » du profil est encore sujet à débat, mais il semblerait que les conditions initiales soient importantes à cause de la difficulté à obtenir des modèles cohérents avec les expériences. Par exemple, Yu et Grimaji [83] imputent ce comportement aux tourbillons créés aux quatre coins du jet. En utilisant des actionneurs plasmas pour déclencher des instationnarités périodiquement, Audier *et al.* [78] ont mis en évidence le développement de deux tourbillons contrarotatifs générés symétriquement sur les côtés longs de l'orifice, qui s'affaiblissent au moyen de l'instabilité de Crow.

2.5.1.3 Les jets à densité variable

Dans un milieu industriel, les configurations en jets sont très utilisées : parfois dans des applications de refroidissement, de traitement de surface ou d'échappement. Les environnements dans lesquels ils sont utilisés sont alors sujets à des variations de température ou à des mélanges de gaz différents menant à des écoulements à densité variable. Si la température est assez importante, alors l'écoulement en est perturbé et cette grandeur ne peut plus être considérée comme passive. A cause du chauffage rapide et du dépôt important d'énergie des étincelles NRP, nous pouvons rencontrer des phénomènes similaires avec notre configuration.

On parle de jet léger si le fluide au repos a une densité plus importante que le fluide éjecté et de jet lourd dans le cas contraire. De plus, ce type de jet est maintenant très présent dans la communauté des jets plasmas du fait de l'utilisation de l'hélium et de l'argon comme fluide injecté et l'air comme fluide au repos. Ces jets devraient avoir des comportements différents car ils sont respectivement des jets légers et lourds.

Dans un premier temps, la différence de densité entre le fluide au repos et le fluide injecté, qui ont respectivement une densité notée ρ_0 et ρ_j , peut occasionner une modification des paramètres globaux des jets présentés précédemment. Dans ce sens, Thring et Newby [84] ont introduit la notion de diamètre équivalent D_{eq} afin de comparer les jets avec l'équation (9).

$$D_{eq} = D_{ref} \sqrt{\rho_j / \rho_0} \quad (9)$$

2.5.1.4 Les panaches

Des différences de densité dans un fluide, soumis à la pesanteur, vont mettre ce dernier en mouvement à cause de la poussée d'Archimède. L'écoulement convectif résultant est appelé *panache*. On le retrouve sous diverses formes dans la nature ou dans l'industrie, l'exemple le plus commun étant le panache de fumée. Dans cette section, nous allons aborder uniquement le cas des panaches turbulents axisymétriques thermiques. Un exemple de leurs profils de vitesse est donné par la figure 16A extraite de l'étude de Plourde *et al.* [85] qui ont réalisé des

simulations DNS (*Direct Numerical Simulation*). Le panache est généré par une source thermique ronde et des exemples de champs de température sont montrés sur les figures 16B.

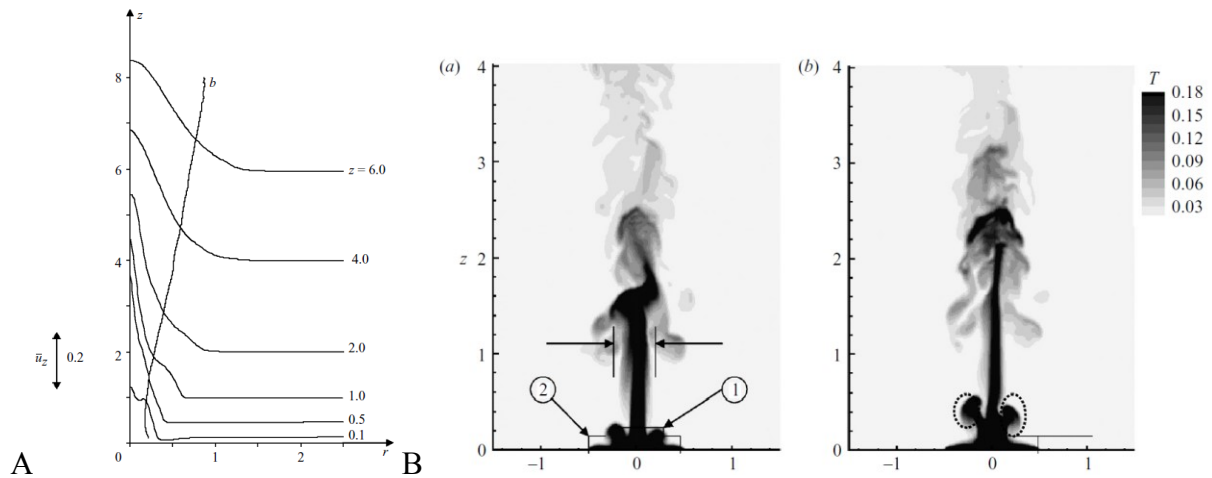


Figure 16: A) Profils de vitesse axiaux d'un panache thermique dont la source est un rond chauffé B) Champs de température instationnaires. Ces données sont extraites de l'étude de Plourde et al. [85] qui ont réalisé une simulation DNS d'un panache thermique.

Comme pour les jets, il est possible de découper un panache thermique en trois zones distinctes. Mahmoud *et al.* [86] les définissent :

- une zone de développement, proche de la source de chaleur, allant jusqu'à l'endroit où la vitesse est la plus importante ; c'est ici que le gradient de densité (donc la poussée) est le plus important ;
- une zone transitoire, lorsque l'écoulement commence à décélérer car les forces visqueuses commencent à dominer ;
- une troisième zone, autosimilaire, avec une dynamique différente puisque la décroissance de la vitesse devient moins importante et comme pour les jets, le profil de vitesse est gaussien.

List [87] a réalisé une étude dimensionnelle en régime établi dans la dernière zone, lorsque la source de chaleur est constante. Il définit un flux de flottabilité exprimé en $m^4.s^{-3}$, $B = g(\rho_0 - \rho_p)Q/\rho_p$ avec Q le débit volumique en $m^3.s^{-1}$, la densité volumique du fluide au repos ρ_0 , la densité volumique du fluide chauffé ρ_p en $kg.m^{-3}$ et l'accélération due à la pesanteur g en $m.s^{-2}$. Pour un panache rond évoluant dans la direction de x , il détermine que la vitesse moyenne dans l'axe est $U_c \propto (B/x)^{1/3}$ dans la zone autosimilaire.

Le nombre adimensionnel de Richardson Ri régit le comportement d'un panache. Il varie dans la direction dans laquelle il évolue. Il s'exprime par l'équation (10) et par G le flux de masse, M la quantité de mouvement et α_c le coefficient d'entraînement du panache. Des valeurs typiques peuvent être trouvées dans Bremer et Hunt [88].

$$Ri(x) = \sqrt{\rho_p} G(x)^2 \frac{5B(x)}{8\sqrt{\pi}\alpha_p M(x)^{5/2}} \quad (10)$$

Ce nombre représente le rapport entre la quantité d'énergie potentielle et l'énergie cinétique. D'après Bremer et Hunt [88], ce nombre définit si un écoulement se comporte comme un panache ou comme un jet. Lorsque $Ri = 0$, alors cela revient au cas du jet : il n'y a pas d'énergie potentielle et le flux de quantité de mouvement reste constant selon l'axe x .

Lorsque $Ri > 0$, c'est un comportement de panache : il existe une énergie potentielle dépendante du flux de flottabilité. Celui-ci reste constant sur l'axe x .

Il existe une autre subdivision au sein des panaches. Si $0 < Ri \leq 1$, l'énergie cinétique est toujours dominante, on parle alors de panache forcé (*forced plume*). Lorsque $Ri > 1$, l'énergie potentielle domine et on parle de panache paresseux (*lazy plume*).

2.5.2 Les écoulements électro-hydrodynamiques (EHD)

2.5.2.1 L'EHD dans les liquides et dans les gaz

Les utilités pour les phénomènes EHD dans les liquides et les gaz sont les mêmes : la mise en mouvement d'un fluide sans aucune pièce mécanique mobile [89]. Cela en fait un processus très simple d'utilisation, à l'aide d'actionneurs, pour la mise en mouvement de fluides dans les domaines de la micro-fluidique ou dans le contrôle d'écoulement dédié à l'optimisation des transferts thermiques par exemple [90–93]. En revanche, les rendements énergétiques sont très faibles, aux alentours de $\sim 1\%$ [94].

Lorsqu'un fluide est chargé électriquement et qu'il est soumis à un champ électrique, les charges en son sein subissent la force de Coulomb. Elles vont se mouvoir et par transfert de quantité de mouvement, vont mettre en mouvement les espèces neutres. Ainsi, la force EHD peut être modélisée par un terme source de force dans les équations de Navier-Stokes.

D'un premier abord, les écoulements EHD sont très similaires aux panaches thermiques : ce constat est vérifiable tout simplement en regardant le terme source qu'il faut ajouter dans les modèles numériques. La force EHD est principalement due à la somme des forces de Coulomb s'exerçant sur chacune des charges électriques, tandis que pour la convection, c'est la poussée d'Archimède qui provoque le mouvement du fluide $\vec{F} \propto \rho/\rho_0$. Cependant, dans un panache purement thermique, le mouvement du fluide va redistribuer la densité volumique, de même que la densité volumique affecte le champ de vitesse : la distribution de la densité volumique et le champ de vitesse dans de tels écoulements sont en effet fortement couplés.

Il est possible d'utiliser l'analogie entre un écoulement EHD et un panache thermique, mais selon les cas, la densité volumique de charge ne peut être assimilée à la densité du fluide.

Dans le cas des liquides diélectriques, les vitesses induites par EHD typiques mesurées sont de l'ordre de $U \sim 10 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ [95] dans l'huile de silicone et dans les gaz, de l'ordre de $U \sim 1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ à $10 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ (voir section 6.2 ou [94]). En revanche, l'écart entre les mobilités ioniques est très différent puisque $\mu_i \sim 2,5 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ pour de l'air à pression atmosphérique

(voir section 4.3.2.2) et $\mu_i \sim 10^{-4} \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ pour l'huile de silicone [96]. Pour des champs typiques de $\sim 10 \text{ kV} \cdot \text{cm}^{-1}$, la vitesse des ions est de $U_i \sim 300 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ dans l'air et de $U_i \sim 1 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ dans l'huile de silicone. Un écoulement EHD peut donc avoir un comportement dit « d'électro-convection » dans un liquide diélectrique, mais pas dans l'air. Pour ces raisons, on retrouvera les dénominations « électro-convection » ou « panache EHD » [97] dans les liquides et les termes de « vent électrique » ou « vent ionique » dans les gaz.

Les problèmes dans les liquides et dans les gaz sont alors posés de façons différentes : il y a un couplage fort entre l'écoulement et la force de Coulomb dans les liquides diélectriques, ce qui peut conduire à l'analogie avec les panaches thermiques (Malraison *et al.* [98]). Dans les gaz, le problème est différent car l'écoulement produit par un phénomène EHD est beaucoup moins rapide que le mouvement des charges. Dans les parties suivantes, nous nous concentrerons sur les écoulement EHD dans les gaz.

2.5.2.2 Difficultés : la « turbulence »

Nous avons brièvement abordé les écoulements turbulents en décrivant les jets libres. Bien souvent, les longueurs caractéristiques et les vitesses de fluides typiques de ces écoulements EHD sont caractérisés par des nombres de Reynolds très bas (< 1000) représentatifs de régimes laminaires : pour des tensions appliquées constantes, on peut prendre l'exemple de Gouriou *et al.* [95] dans les liquides et de Mizeraczyk *et al.* [99] pour une décharge couronne. Pourtant, même si la tension appliquée est constante, les fluctuations de vitesse sont indicatives d'un régime « turbulent ».

En réalité dans ces cas de figure, l'intermittence de la force EHD, caractérisée par des courbes de courant variables dans le temps (*i. e.* dans [24]) introduit artificiellement des fluctuations qui donnent l'illusion d'un phénomène « turbulent » en maintenant l'écoulement dans un régime transitoire permanent. Ces propriétés d'introduction de fluctuations peuvent être utilisées pour les applications de mélange, notamment le contrôle par grille plasma [100].

2.5.2.3 Le vent ionique

Depuis les premières bases de la théorie proposées par Robinson [101], le vent électrique a été étudié expérimentalement [102–105] et numériquement [106,107], particulièrement pour les décharges couronnes et les décharges DBD.

Il constitue un objet d'étude intéressant pour de nombreux domaines tels que la micro-fluidique [106], le contrôle d'écoulement [93,103,108,109], la propulsion spatiale [110,111] et la combustion [112].

Lorsqu'un réacteur plasma possède une géométrie asymétrique entre ses deux électrodes, le champ électrique est lui aussi asymétrique et l'avalanche électronique va s'initier préférentiellement, d'un côté. Pendant cette étape, avant le claquage, un point lumineux apparaît sur l'électrode présentant le rayon de courbure le plus faible : c'est une décharge couronne. Elle présente une similitude plus importante à notre cas que les DBD surfaciques utilisées en contrôle d'écoulement [108]. Dans la mesure du possible, nous nous concentrerons uniquement sur ce type de phénomène dans cette partie bibliographique.

L'optimisation et l'analyse d'un système utilisant le vent électrique n'est pas tâche aisée, car un plasma est utilisé comme source d'ion : il est donc nécessaire de caractériser, en deux temps, la source et le transport. Par exemple, pour une décharge couronne générée à l'aide d'une configuration pointe-plan, le remplacement de l'électrode pointe par une électrode cylindrique va changer la répartition spatiale du champ électrique, qui agit dans l'expression de la force de Coulomb, mais aussi la tension seuil pour produire la décharge.

En ce qui concerne les géométries adoptées, la plupart des études présentées utilisent des configurations pointe-plan, ou cylindre-plan ou cylindre-cylindre, afin de se retrouver dans des configurations bidimensionnelles ou axisymétriques pour faciliter les traitements. Dans le passé, pour une configuration pointe-plan, il a été communément admis que la plus grande partie de la force EHD était appliquée seulement à la pointe : c'est à cet endroit que la charge et le champ sont les plus importants. Néanmoins cette affirmation n'a été vérifiée expérimentalement que très récemment par Elagin *et al.* [113,114] qui ont réalisé des mesures de PIV sur une décharge couronne pointe-plan, où la pointe n'est pas forcément placée dans la direction normale à la surface. La figure 17B montre que, lorsque la pointe est inclinée à 90°, l'écoulement va suivre la direction du champ électrique présent dans la zone très proche de la pointe. Le champ présent proche de la plaque ou dans l'espace inter-électrodes ne participe que très marginalement, comme le montre le binôme des figures 17B et C.

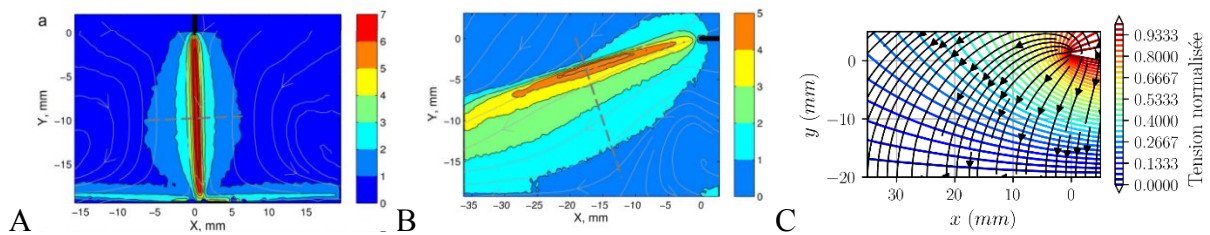


Figure 17: Champs de vitesse moyen extrait de [114] (disponible en noir et blanc dans [113]) pour une décharge couronne avec A) une pointe orientée perpendiculairement et B) une pointe orientée dans la même direction que la plaque C) simulation du champ électrique en bidimensionnel, donc d'une géométrie de lame inclinée à 90°, illustrant l'orientation des lignes de champs.

Un autre aspect dont nous avons parlé avec les panaches thermiques est la structure de la composante radiale de la vitesse. Pour une configuration axisymétrique, à cause de la conservation du débit et de la génération de la décharge couronne sur une surface, une aspiration du gaz doit être observée près de la source d'ion. Cela se manifeste par une vitesse radiale qui ne peut être seulement convergente à la position de l'électrode active : nous l'observons sur la figure 17A avec les lignes de champs convergentes.

L'écoulement est ensuite accéléré par la force de Coulomb, car cette dernière est plus importante que les forces visqueuses, la vitesse augmente. Toujours pour la conservation du débit, la composante radiale qui est maintenue est convergente. Lorsque la vitesse décroît, l'écoulement devient alors inertiel et se comporte comme un jet : la composante radiale au centre du vent ionique devient divergente. Ce comportement est aussi transposable aux

décharges à barrières diélectriques, comme on peut le voir sur l'analyse de Boucinha [115] de la figure 18.

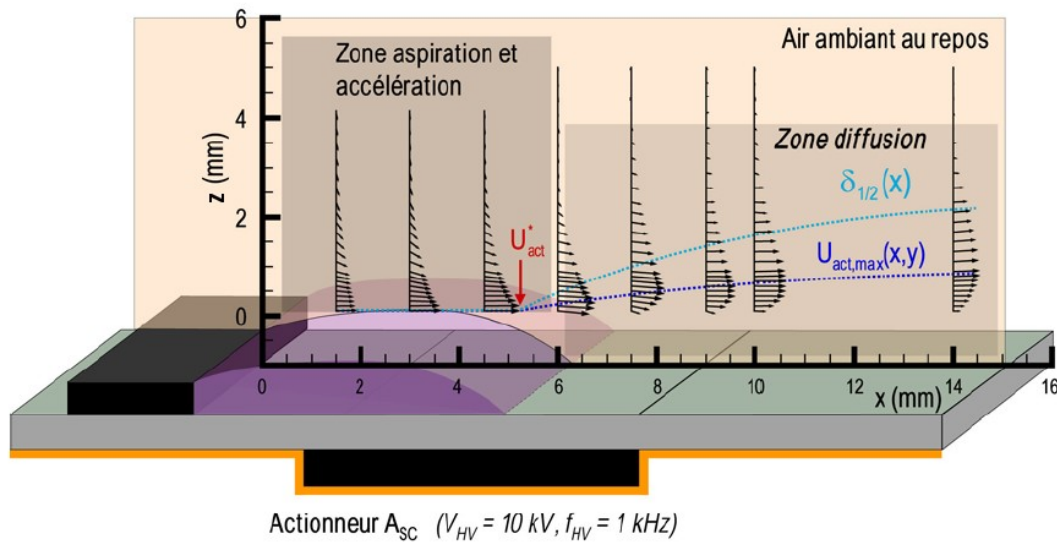


Figure 18: Caractérisation d'un actionneur utilisant une décharge à barrière diélectrique, extrait de la thèse de Boucinha [115].

Les paramètres qui influent sur les grandeurs mécaniques du vent électrique ont été de nombreuses fois étudiés dans le contexte du contrôle d'écoulement et de la propulsion par vent ionique. Par exemple, Forte [116] montre une augmentation de la vitesse en fonction de la tension et de la fréquence pour une DBD. Il montre également que la puissance apportée au fluide dépend principalement de la puissance électrique consommée. Le même constat est observé dans la thèse de Jolibois [117] (p 59).

Les vitesses de ce type d'actionneurs tendent à atteindre une limite, car lorsque la tension et la fréquence augmentent, un régime d'apparence filamentaire apparaît. Ce régime tend à détruire plus vite l'actionneur. De plus, les travaux numériques de Bœuf *et al.* [118] tendent à montrer que c'est le régime diffus qui produit le plus de force, car celle-ci est active sur un temps plus long et un volume plus grand.

Pour les décharge couronnes générées avec une tension continue, Moreau *et al.* [102] observent aussi une augmentation de la poussée produite par le vent ionique en fonction de la puissance électrique absorbée par le système.

2.6 Conclusion

Le travail que nous proposons consiste à combiner les étincelles NRP avec une géométrie de micro-plasma. C'est pourquoi dans la section 2.1, nous avons présenté des généralités sur les plasmas afin d'aborder ces deux sujets. Dans la section 2.2, les décharges NRP ont été abordées en montrant d'abord les effets de la pulsation à la nanoseconde puis la répétition à la haute fréquence (10 kHz – 100 kHz). Le premier enjeu, et le principal, est d'éviter l'arc électrique et le second, de répéter les impulsions pour permettre d'obtenir des densités

d'espèces équivalentes et même supérieures à une excitation continue. Les différents régimes de décharge NRP dans l'air à pression atmosphérique ont été présentés et l'étincelle est le régime le plus réactif.

La section 2.3 a traité des micro-plasmas. Le confinement spatial permet de maintenir un régime hors-équilibre par des effets de redistribution de l'énergie et de la charge. Par la suite, nous avons imaginé ce qu'apporterait le confinement d'une étincelle NRP.

Nous avons ensuite présenté quatre champs d'applications (section 2.4) dans lesquels les micro-plasmas et les étincelles NRP sont appliqués. Ces dernières sont plus adaptées à des applications nécessitant un transfert d'énergie volumique important comme la combustion tandis que les micro-plasmas sont plus propices à des applications liées à la chimie.

C'est pourquoi dans la section 2.5, nous avons réalisé une revue sur les jets et les écoulements EHD. Nous avons commencé par résumer des données sur les principales configurations de jet utilisées dans le domaine des plasmas froids. Des éléments ont été apportés concernant les panaches car, par certains aspects, ils ressemblent beaucoup à ceux des écoulements EHD ; principalement du fait qu'il n'y ait pas d'injection de fluide et que de la force est toujours appliquée loin de la source. Nous retiendrons que la topologie de l'écoulement dépend principalement des conditions où l'essentiel de la force est appliqué.

3 Dispositifs et méthodes expérimentales

Dans ce chapitre, nous présenterons les dispositifs et les méthodes expérimentales utilisés pour l'ensemble de ce travail. Dans une première partie, nous nous concentrerons sur le matériel et les principaux montages utilisés. Nous nous attarderons ensuite sur les traitements autour des deux diagnostics principaux : les mesures électriques puis la spectroscopie d'émission.

3.1 Dispositif expérimental

Dans cette section, nous présentons les outils expérimentaux utilisés lors de ce travail. La première section 3.1.1 décrit chacun des éléments indépendamment et répertorie tout le matériel utilisé durant cette thèse. Dans la section 3.1.2, nous présentons la géométrie du réacteur. Nous montrons ensuite avec les sections 3.1.3 et 3.1.4 les premiers traitements appliqués sur les spectres bruts et la synchronisation des mesures. La section 3.1.3 aborde notamment l'ensemble des corrections apportées aux spectres expérimentaux présentés dans ce travail. Les deux dernières sections 3.1.5 et 3.1.6 abordent les mesures de mécanique des fluides : la PIV et la visualisation Schlieren.

3.1.1 Schéma général du système

Dans cette sous-section, nous présentons le schéma global de l'expérience de spectroscopie d'émission (figure 19). Nous décrivons uniquement la partie matérielle et chaque partie est décrite indépendamment. Un déclencheur Stanford Research System modèle DG645 est utilisé pour synchroniser l'oscilloscope, la caméra du spectromètre et le générateur d'impulsions à haute tension.

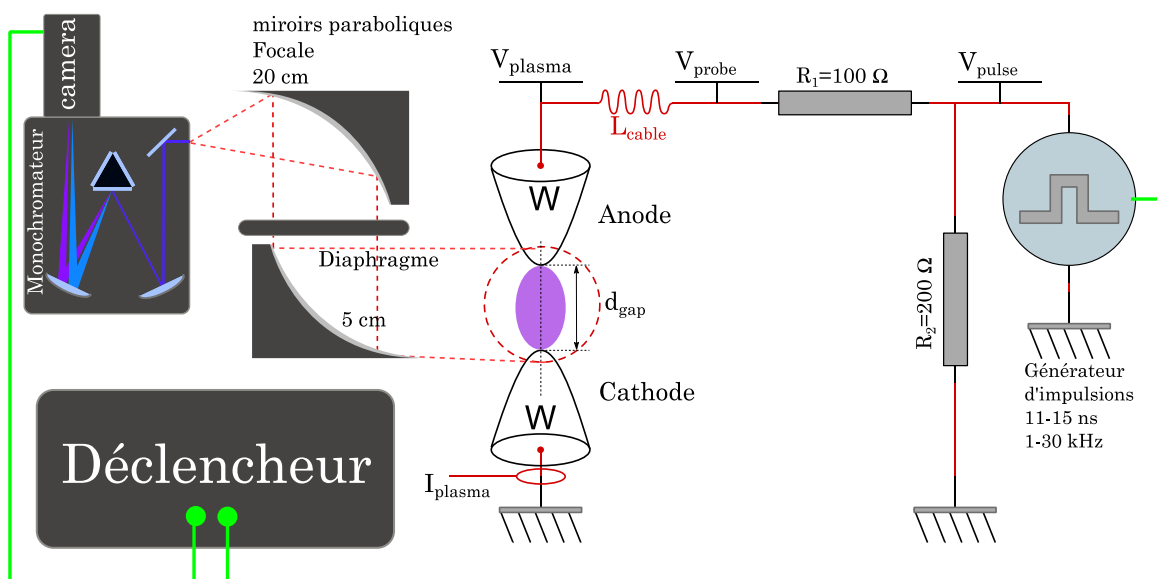


Figure 19: Schéma du circuit pour la génération du plasma, ainsi que le banc de spectroscopie d'émission.

3.1.1.1 Le circuit électrique

Le circuit électrique permettant de générer les impulsions aux bornes du réacteur est composé d'un générateur d'impulsions FID GmbH FPG40-30NK relié par un câble d'impédance $Z_0 = 75 \Omega$. Le réacteur est en série avec une résistance $R_1 = 100 \Omega$ et en parallèle avec une autre résistance de valeur $R_2 = 200 \Omega$. Les résistances proviennent de la série RES200 de Genvolt. Elles peuvent dissiper chacune une puissance de $130 W$ et supporter une différence de potentiel de $60 kV$. Elles ont une tolérance de 5% . Le choix du circuit électrique et les caractéristiques du générateur d'impulsions sont abordés dans la section 3.2.1.

3.1.1.2 Mesures de la tension et du courant

Nous utilisons deux sondes passives de tension et une sonde passive de courant. La sonde de courant est un transformateur de courant Bergoz de référence CTD5.0-1 avec une bande passante de $4,8 kHz - 400 MHz$. Selon l'amplitude du courant, nous utilisons un ou deux atténuateurs de $-20 dB$ Telegartner de référence J011006A0837 et de bande passante $0 Hz - 1 GHz$. Selon la tension, nous utilisons une sonde de tension Lecroy de référence PPE6kV avec une tension maximum de $6 kV$ et une bande passante de $400 MHz$. Lorsque la tension est plus élevée, nous utilisons une autre sonde Lecroy de référence PPE20kV et de bande passante $100 MHz$. La sonde PPE6kV est donc privilégiée grâce à sa bande passante. Les sondes sont reliées à un oscilloscope Lecroy Waverunner 204Mxi de bande passante $2 GHz$. Pour l'essentiel des mesures présentées, nous utilisons trois voies d'acquisition avec le déclencheur, l'échantillonnage est donc de $5 \times 10^{12} s^{-1}$. Les méthodes de traitement conduisant au calcul de l'énergie sont abordées dans la section 3.2.

3.1.1.3 Collection de la lumière de la décharge

Nous utilisons un système composé de deux miroirs paraboliques et d'un diaphragme. Les miroirs paraboliques Edmund Optics sont hors axe en aluminium de diamètre $50,8 mm$ à 90° . Les références sont #63-186 et #47-103 respectivement pour les distances focales $190,6 mm$ et $50,8 mm$. Un diaphragme de diamètre $50,8 mm$ est placé entre les deux miroirs afin de diminuer la luminosité ou d'augmenter la profondeur de champ.

3.1.1.4 Spectroscopie d'émission et imagerie

Le système de spectroscopie d'émission Princeton Instruments est composé d'un monochromateur Acton SP2500i et d'une caméra PI-MAX4. L'ensemble est piloté avec un ordinateur avec le logiciel Lightfield. Le monochromateur est équipé de trois réseaux de diffraction de $600 \text{ traits} \cdot mm^{-1}$, $1800 \text{ traits} \cdot mm^{-1}$ et $2400 \text{ traits} \cdot mm^{-1}$ respectivement blazés à $300 nm$, $500 nm$ et $240 nm$. La mise en œuvre et les traitements que nous effectuons sur les spectres enregistrés sont abordés dans la section 3.1.3. Afin d'éviter les seconds ordres du réseau de diffraction, les filtres suivants sont utilisés :

- aucun filtre pour $\lambda < 368 nm$
- filtre passe-long pour $\lambda > 280 nm$ Thorlabs FGL280 pour $\lambda \in [368 nm; 484 nm]$
- filtre passe-long pour $\lambda > 400 nm$ Thorlabs FELO400 pour $\lambda \in [484 nm; 800 nm]$

La fonction de transfert du système est déterminée par une calibration relative en utilisant une source lumineuse connue : une ampoule avec un filament de tungstène de référence Oriol n°63355 dont nous connaissons les caractéristiques. Nous présentons les résultats de la calibration dans la section 3.1.3.

3.1.2 Réacteur

Le réacteur dans sa globalité est affiché sur la figure 20A. Il est composé de deux tiges de tungstène pur d'un diamètre de 1,6 mm normalement utilisées pour de la soudure à l'arc. Ces deux tiges sont montées sur deux supports en polyoxyméthylène ou POM. Nous avons choisi ce matériau car il a de bonnes propriétés diélectriques et qu'il est opaque de couleur noir, ce qui permet d'éviter les réflexions. Nous utilisons des vis épaulées sans têtes en acier afin de réaliser le contact entre les cosses et les électrodes. La figure 20B donne une vue agrandie du réacteur par la caméra PI-MAX4 à travers le spectromètre pour $d_{gap} = 200 \mu m$. Une décharge obtenue dans cette configuration est visualisée sur la figure 20C.

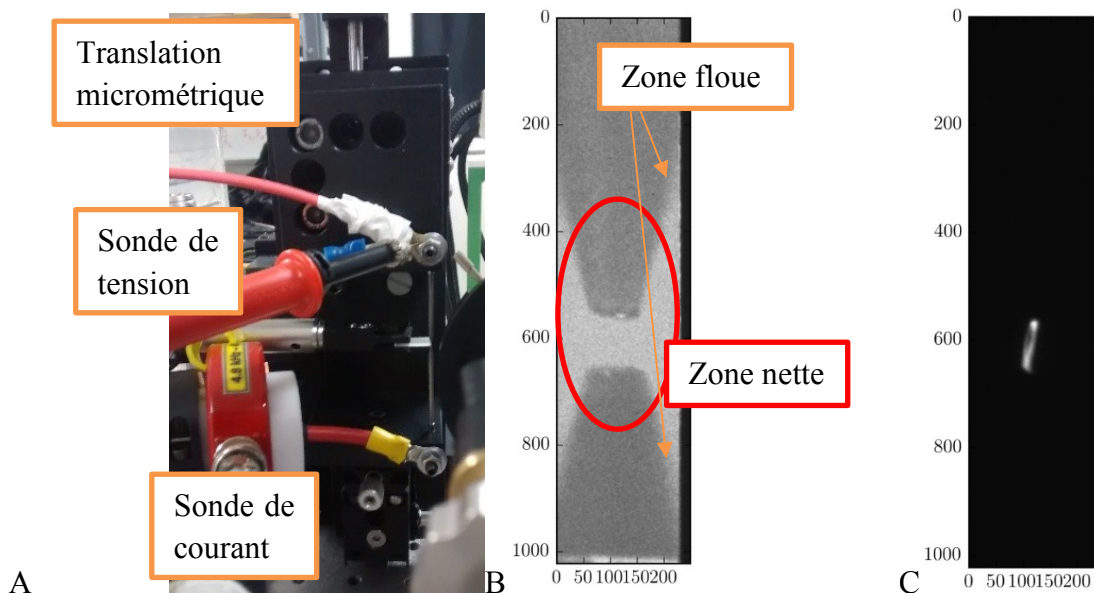


Figure 20: A) Photographie du montage, B) image du réacteur avec $d_{gap} = 200 \mu m$ pris avec la caméra et C) image de la décharge dans les mêmes conditions que B. Les axes sont en pixels.

3.1.3 Spectroscopie d'émission et imagerie

Nous utilisons l'ensemble caméra et monochromateur afin d'étudier le plasma par imagerie et par spectroscopie d'émission. Les changements apportés sur l'image de la décharge sont illustrés sur la figure 21A. Tout d'abord, l'image subit un agrandissement $\times 4$ correspondant au rapport des focales des deux miroirs. Lorsque nous réalisons de l'imagerie, nous ouvrons la fente à son maximum, ce qui représente $\sim 5 mm$. De plus, nous utilisons le mode 0 nm du réseau de diffraction dans le monochromateur, donc nous obtenons une image de la décharge (figure 20B et C). Lorsque nous réalisons une mesure de spectroscopie d'émission, nous fermons la fente à $50 \mu m$, puis il suffit de diffracter la lumière à la longueur d'onde souhaitée.

Dans la mesure où l'image est parfaitement focalisée sur la fente, nous observons qu'un spectre est une ligne de pixels. Il est donc possible d'obtenir un spectre résolu en une dimension selon la ligne qui est observée.

Pour la résolution temporelle des phénomènes que nous souhaitons analyser, la caméra est limitée à un temps d'exposition $t_{exp} = 3 \text{ ns}$. Nous utilisons le générateur de délais (ou déclencheur) afin de décaler les signaux de déclenchement pour l'alimentation pulsée et la caméra pour construire des courbes temporelles. Cette courbe temporelle ne peut donc pas être construite à partir d'un seul évènement de décharge. L'objet des paragraphes suivants sera donc d'expliquer la méthodologie pour obtenir les données résolues en temps.

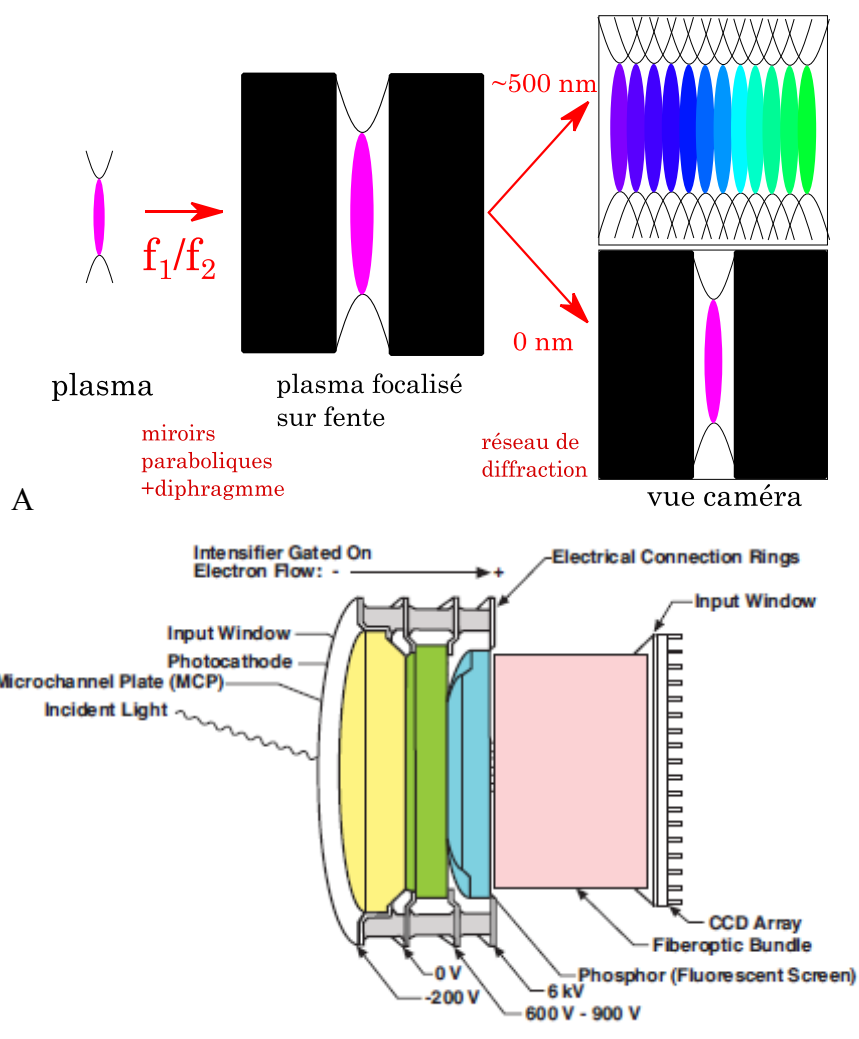


Figure 21: A) Schéma décrivant le chemin de la lumière avec l'image à chaque point particulier. B) Schéma de l'intensificateur et du capteur CCD dans la caméra, selon le manuel utilisateur PI-MAX 4⁵ (p21).

⁵Téléchargeable :

<ftp://ftp.piaction.com/Public/Manuals/Princeton%20Instruments/PI-MAX4%20System%20Manual.pdf>

Pour les décharges NRP, nous faisons l'hypothèse que tous les évènements de la décharge pris indépendamment sont toujours les mêmes. C'est pourquoi l'acquisition d'un spectre est l'accumulation d'un grand nombre de spectres représentatifs de plusieurs décharges. Les étincelles NRP ont tendance à éroder les électrodes. Il est donc nécessaire de déterminer les conditions expérimentales optimales afin de limiter le temps d'acquisition des données. Le fonctionnement de la caméra ICCD PI-MAX est illustré par la figure 21B. Le temps réel d'acquisition d'une image ou d'un spectre est défini par les éléments suivants :

- le temps de décroissance de l'écran fluorescent de Phosphore (voir figure 21B, en bleu) qui est incompressible (3 ms) ;
- le temps nécessaire pour numériser l'information ; plus il est rapide, plus le bruit résultant de la numérisation est important ;
- le nombre de pixels, ou d'ensemble de pixels à numériser : il est possible de grouper les pixels. En d'autres termes, on peut accélérer l'acquisition en diminuant la résolution ;
- le temps d'exposition ; il est défini par la commande de la caméra et il peut être, au plus court de $t_{exp} = 3 \text{ ns}$ pour la caméra que nous utilisons.

A partir d'expériences préliminaires, nous avons déterminé que le temps de numérisation le plus faible permettait d'obtenir plus rapidement des spectres exploitables pour la suite de nos travaux. De plus, nous avons réduit le nombre de pixels en regroupant les lignes de pixels par 5 afin de diminuer notre résolution spatiale au profit de l'augmentation du signal. En général, nous avons essayé de nous rapprocher le plus possible du temps incompressible défini par l'écran fluorescent pour un temps réel d'acquisition totale de 6 ms.

Notre système possède deux méthodes pour sommer les spectres de plusieurs décharges. La première consiste à acquérir plusieurs spectres dans des conditions identiques puis de les sommer numériquement *a posteriori*. Si le temps réel d'acquisition d'une image est de 6 ms, il faut donc 12 ms pour réaliser deux accumulations. L'autre méthode est moins gourmande en temps réel puisqu'il s'agit de faire des accumulations sur le CCD de la caméra. Dans ce cas, la seule limitation est la périodicité du phénomène que nous souhaitons observer. Pour une décharge de $F_{NRP} = 1 \text{ kHz}$, alors deux accumulations sur le CCD ainsi que l'acquisition de l'image nécessite 7 ms. Accumuler sur le CCD revient donc à augmenter le temps d'exposition en gardant le même délai entre la commande de la caméra et du générateur d'impulsions.

Dans ce travail, nous avons utilisé 5000 accumulations sur le CCD et 30 accumulations numériques pour avoir un rapport signal sur bruit suffisamment faible pour enregistrer des spectres exploitables, c'est-à-dire pour les confondre avec des spectres théoriques. Un autre paramètre est le gain de la caméra : il permet de diminuer ou d'augmenter sa sensibilité. Matériellement, il s'agit de la tension appliquée entre les deux faces de la galette de micro-canaux (en vert sur la figure 21B). Les électrons, convertis à partir des photons par la photocathode (en jaune), sont accélérés dans ces canaux suivant la tension appliquée.

Le signal lumineux n'est pas linéaire en fonction du gain. Pour comparer deux spectres obtenus avec des gains différents, nous devons caractériser l'intensité lumineuse en fonction du gain. La figure 22 présente l'intensité lumineuse en fonction du gain en utilisant une source stable calibrée en intensité : une ampoule avec un filament de tungstène de référence Oriol n°63355.

$$\text{Intensité}(\text{gain}) = a + b \times \text{gain}^c \quad (11)$$

La procédure associée à la lampe a été suivie. Le système n'est pas focalisé sur le filament, mais sur un objet optique. Il est préconisé que cet objet soit une ouverture carrée avec un côté de 1 cm et que la lampe soit positionnée à une distance 50 cm de cet objet. Nous avons utilisé un cercle de rayon de 1 mm afin d'avoir un objet plus proche de notre décharge.

La variation de l'intensité par rapport au gain peut être exprimée par la fonction notée « fonction 1 » sur la figure 22 défini par l'équation (11) avec $a = -21922,5384$, $b = 1,6474 \times 10^5$ et $c = 0,6667$. L'incertitude maximale de 5,8 % est atteinte à très faible gain de 1. Le gain minimum utilisé dans cette thèse est 5 : l'incertitude tombe alors en dessous de 3 %.

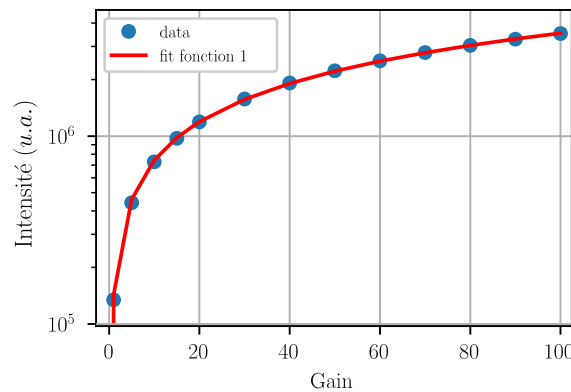


Figure 22: Variation de l'intensité lumineuse en unité arbitraire en fonction du gain.

Plusieurs spectres d'intensité relevés avec des gains différents notés $gain_{exp}$ peuvent alors être redimensionnés par un « gain commun » nommé $gain_c$ en utilisant la formule (12) :

$$\text{Intensité}(gain_c) = (\text{Intensité}(gain_{exp}) - a) \times \left(\frac{gain_c}{gain_{exp}} \right)^c + a \quad (12)$$

Comme nous l'avons suggéré, augmenter les accumulations sur le CCD consiste à augmenter le temps d'exposition. Malheureusement, le signal obtenu en fonction du temps d'exposition n'est pas non plus linéaire. Nous utilisons une méthode identique à celle du gain pour déterminer la variation de l'intensité lumineuse en fonction de t_{exp} avec la lampe Oriol n°63355.

$$\text{Intensité}(t_{exp}) = \exp[a + b \times \log(t_{exp})] \quad (13)$$

La variation de l'intensité par rapport au temps d'exposition t_{exp} est exprimée selon l'équation (13). Nous la notons « fonction 2 » sur la figure 23 avec les paramètres $a = 5,4733$ et $b = 2,3113$. L'incertitude de cette fonction est inférieure à 4% sur toute la courbe.

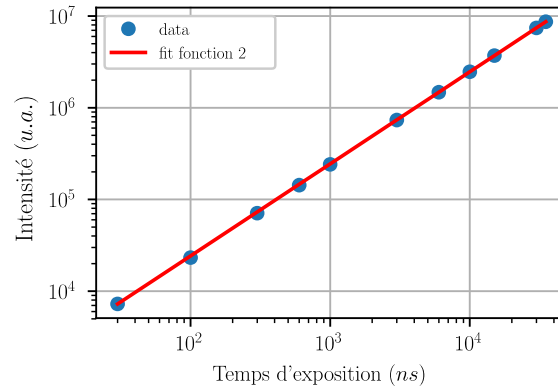


Figure 23: Intensité obtenue pour différents temps d'expositions.

Nous allons utiliser des méthodes spectroscopiques en utilisant les rapports d'intensité entre plusieurs raies, comme la méthode du tracé de la droite de Boltzmann ou la mesure du champ électrique réduit. Il est donc nécessaire de connaître la fonction de transfert de notre système aux longueurs d'ondes que nous allons balayer. Notre système comporte un nombre important d'éléments, c'est pourquoi il est préférable de la déterminer expérimentalement. La procédure consiste à relever la réponse à une source lumineuse dont la radiance dans tout le spectre d'émission est *a priori* connue.

La figure 24A présente l'intensité normalisée de la lampe mesurée par notre système avec la courbe mesurée par le fournisseur sur la gamme $\lambda \in [370 \text{ nm}; 790 \text{ nm}]$. Cela représente la gamme spectrale dans laquelle nous faisons l'acquisition des spectres larges bandes présentés notamment dans les sections 4.2.3 et 5.1. Le réseau de diffraction avec la résolution la moins importante est utilisé, c'est-à-dire 600 tr.mm^{-1} . Pour les mesures utilisant un réseau de diffraction différent, nous reproduisons la calibration relative ; cela inclut la mesure de température rotationnelle, de densité électronique et de champ électrique.

Nous observons que notre système n'est pas très optimisé pour les proches infra-rouges. De plus, la lampe ne couvre pas les UV de façon satisfaisante pour $\lambda < 300 \text{ nm}$. Nous ne présentons pas de mesure quantifiable dans les longueurs d'onde $\lambda > 370 \text{ nm}$. Les discontinuités présentes sur la courbe montrent que la rotation du réseau de diffraction ou que la caméra provoque des changements sur la réponse du système. Cela n'affectera pas la mesure car les données seront acquises avec les mêmes positions du réseau.

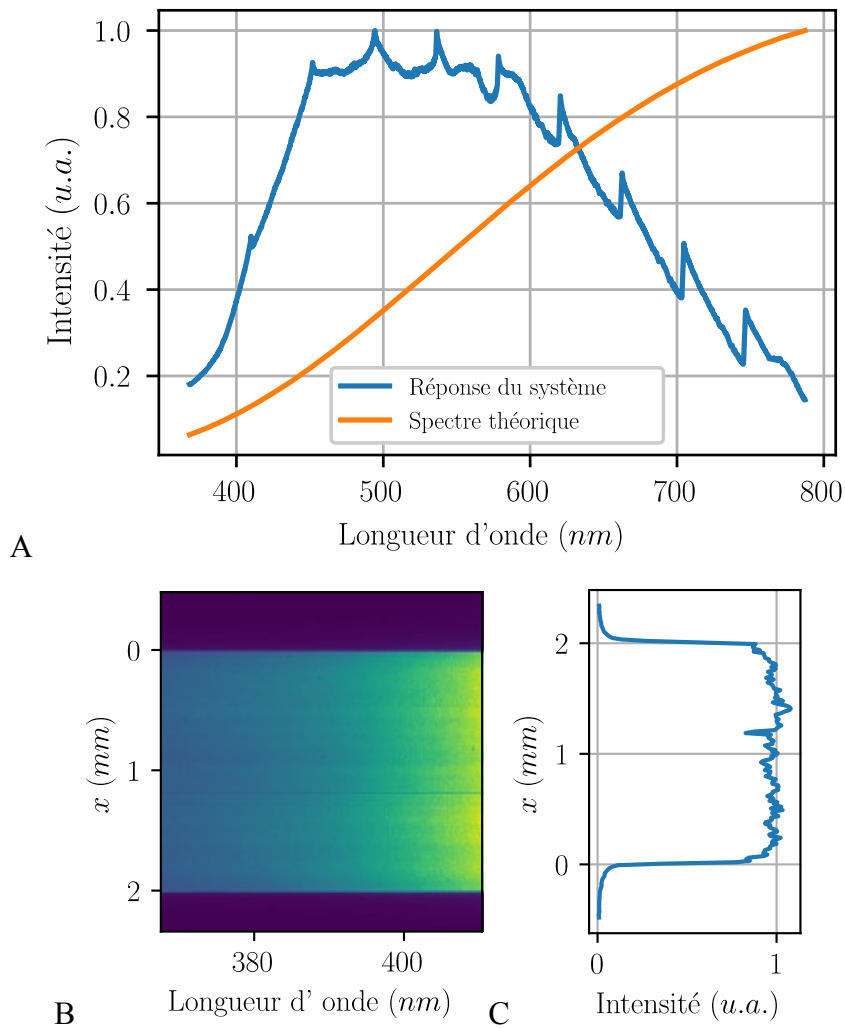


Figure 24: A) Réponse du système en utilisant le réseau 600 tr. mm^{-1} entre 370 et 790 nm. La formule du spectre théorique est déterminée par le fournisseur. B) Image du spectre spatialement résolu correspondant à la taille du cercle utilisé comme source et C) profil normalisé pour $\lambda = 400 \text{ nm}$.

Si les mesures sont spatialement résolues dans une dimension, la calibration que nous proposons sur la figure 24A est moyennée sur toutes les lignes du capteur car nous n'observons pas de différence entre chaque ligne. On le vérifie avec la figure 24B qui présente l'image visualisée par la caméra pour $\lambda \in [370 \text{ nm}; 410 \text{ nm}]$. Enfin la figure 24C présente le profil de luminosité correspondant à une tranche d'un cercle de rayon 1 mm pour $\lambda = 400 \text{ nm}$. Les figures 24B et C montrent que la lumière est uniformément répartie et que la réponse en longueur d'onde est la même pour chaque ligne.

Dans cette section, nous avons présenté l'ensemble des traitements que nous appliquons directement sur les spectres. Les corrections appliquées sur tous les spectres présentés reprennent la correction pour différents gains et pour les différents temps t_{exp} . En revanche la correction due à la fonction de transfert en longueur d'onde du système ne s'applique seulement lorsque $\lambda \in [370 \text{ nm}, 790 \text{ nm}]$.

3.1.4 Synchronisation des délais

A présent, nous décrivons la procédure utilisée afin de déterminer le décalage temporel entre les mesures électriques et les mesures optiques. Un schéma présentant l'ensemble des délais est présenté sur la figure 25A en reprenant les éléments de la figure 19. Nous avons introduit une photodiode de référence DET025A/M Thorlabs en plus dans le circuit en la positionnant à la distance focale du second miroir parabolique. Cette position est donc celle de fente du monochromateur. Afin de ne pas changer le montage, nous avons insérer un miroir plan dans le chemin optique pour dévier la lumière vers la photodiode.

Une décharge micro-plasma en utilisant $d_{gap} = 200 \mu m$ et $F_{NRP} = 8 kHz$ a été utilisée comme source lumineuse pour déterminer le décalage entre la mesure de tension et la mesure spectroscopique. Nous faisons l'hypothèse que la photodiode n'introduit pas de délai supplémentaire en plus du temps de transit dans les câbles (temps de réponse négligeable inférieur à $0,2 ns$). Le chemin optique entre le plasma et la photodiode (ou la fente) est de $0,25 m$ donc introduit $0,8 ns$ de délai.

Nous traiterons spécifiquement le délai entre la mesure de courant et de tension dans la partie 3.2.2.

Le générateur et l'acquisition des images sont commandés par le déclencheur. Nous utilisons la sortie du moniteur de la caméra afin de déclencher l'oscilloscope. Nous avons déterminé le temps de transit d'une impulsion de chaque câble BNC dans le système (ainsi que celui des sondes) en utilisant le schéma présenté sur la figure 25B. Pour un câble BNC standard, il faut utiliser la terminaison $1 M\Omega$ de la voie « 1 » de l'oscilloscope et la terminaison 50Ω pour la voie « 2 ».

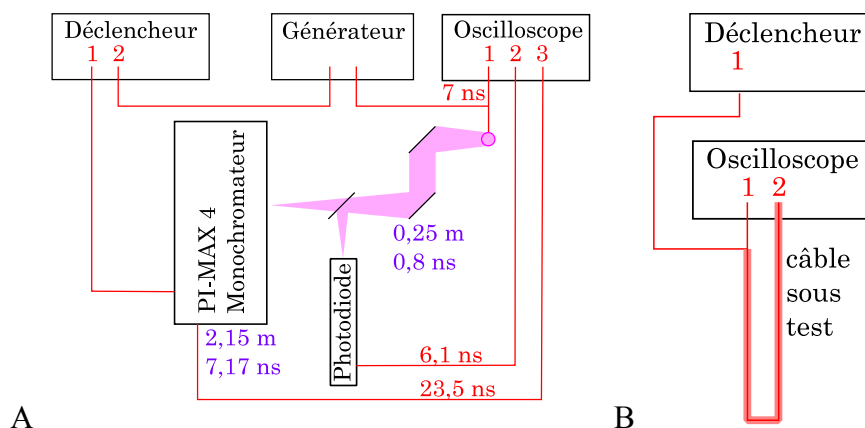


Figure 25: A) Schéma simplifié illustrant les délais entre chaque instrument, un miroir plan est ajouté afin de renvoyer le signal lumineux sur le monochromateur ou sur la photodiode. Le délai indiqué en dessous du monochromateur correspond à la longueur du chemin optique à l'intérieur. B) Schéma du montage permettant de mesurer les temps de transit dans les câbles.

Pour le câble de la sonde de tension, il est nécessaire d'inverser les terminaisons. L'utilisation de la terminaison $1 M\Omega$ rajoute $0,5 ns$ par rapport à la terminaison 50Ω . Nous avons mesuré

un délai de 7 ns pour la sonde de tension, en incluant la longueur de l'électrode active (voir figure 20A), la sonde et son câble. Un temps de transit de $6,1\text{ ns}$ a été mesuré pour le câble de la photodiode et de $23,5\text{ ns}$ pour le câble reliant la caméra et l'oscilloscope.

Les temps de transit dans les électrodes ont été calculés selon une vitesse de propagation correspondant à $2/3$ de la vitesse de la lumière, typique d'une ligne de transmission.

La figure 26 représente l'ensemble des signaux temporels avec les décalages correspondants. Ainsi, il suffit de décaler le signal de la photodiode de $0,6\text{ ns}$ ($7 + 0,5 - 6,1 - 0,8$) pour qu'elle soit synchronisée avec la tension. Concernant le signal du moniteur de la caméra, il est nécessaire de le décaler de $31,5\text{ ns}$ ($23,5 + 7,17 + 0,8$) pour le synchroniser avec la tension. Toutefois, les deux signaux lumineux, caméra et photodiode, ne se superposent pas en même temps pour autant ($\sim 6\text{ ns}$ en retard). Cela serait lié à un retard supplémentaire ajouté par la caméra, dans l'étage d'amplification par exemple.

C'est pour cela que nous utilisons la courbe du signal provenant de la photodiode afin de recalibrer le signal lumineux provenant de la caméra. Un exemple du recalage des mesures par OES avec la photodiode est affiché dans notre premier figure 39A de la section 4.1.

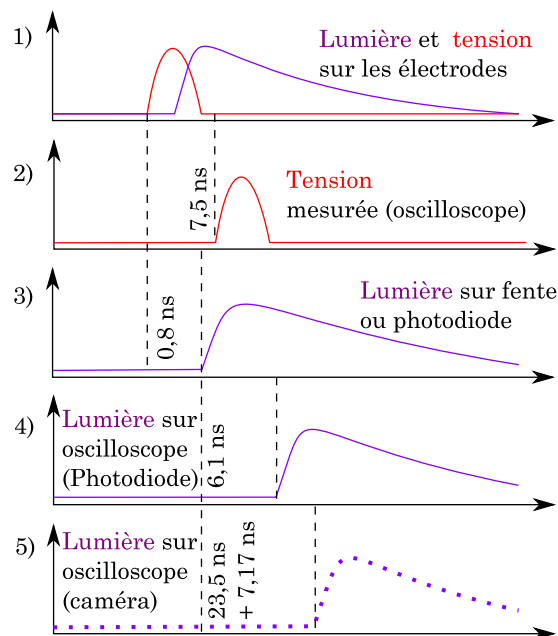


Figure 26: Diagramme temporel représentant les délais introduits par l'ensemble des éléments présents dans le système. Les points sur le chronogramme représentent le signal du moniteur de la caméra.

La méthodologie que nous avons utilisée semble montrer que la lumière de la décharge augmente avec le courant. Nous avons utilisé la décharge comme repère temporel. Cette dernière a une incertitude sur le claquage de 1 ns . L'équipement dans notre système qui a la plus grosse incertitude sur le déclenchement après la décharge elle-même est le générateur d'impulsions (250 ps).

3.1.5 Vélocimétrie par images de particules (PIV)

3.1.5.1 Principe de fonctionnement

La vélocimétrie par image de particules est une technique de mesure permettant d'accéder à deux composantes de la vitesse d'un écoulement dans un plan. Elle s'opère dans un volume qui a été ensemencé par des particules. Un éclairage par une nappe laser permet d'éclairer un plan de particules. Des binômes d'images sont enregistrés en utilisant une caméra positionnée, de préférence, dans la direction normale du plan laser comme sur la figure 27. D'une image sur l'autre, les particules bougent selon le mouvement du fluide et il est possible de déterminer le champ de vitesse. La méthode pour cela est de découper la première image en plusieurs parcelles et d'utiliser un algorithme de corrélation afin de comprendre quel est le déplacement le plus probable d'un groupe de particules qui était dans la parcelle. Ces parcelles sont communément dénommées « fenêtres de corrélation ».

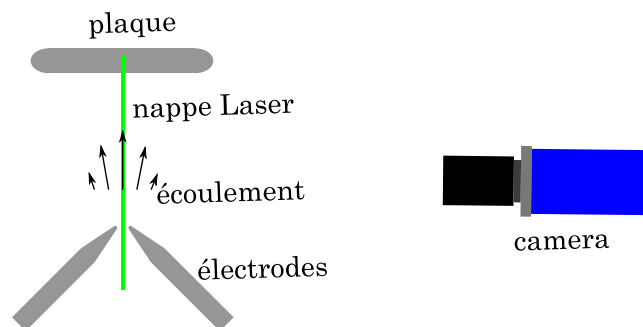


Figure 27: Schéma du montage pour réaliser la PIV.

Pour un fonctionnement optimal, il faut donc que les particules soient visibles d'une image sur l'autre et qu'elles ne sortent pas du plan laser. Cela implique que la composante de vitesse dans la direction normale au plan laser soit nulle. De plus, l'algorithme est basé sur des corrélations, donc la qualité des images est importante. La luminosité des particules doit être plus importante que la lumière du fond. Cela peut s'optimiser, en évitant les réflexions, en maximisant la puissance du laser, ou en jouant sur les paramètres de la caméra.

Tableau 2 : Références des équipements utilisés pour la PIV.

	Équipement	Références
Système 1, 8 Hz	caméra	LAVISION, Flowmaster 3S 1280×1024 pixels
	Objectif	F Micro-Nikkor 200 mm f/4 DIF-ED
	Laser Nd:Yag 532 nm	Quantel, Twin Ultra
Système 2, 20 kHz	caméra	Photron Fastcam SA-Z 1024×1024 pixels
	Objectif	60 mm
	Laser Nd:Yag 532 nm	Continuum Mesa

Nous avons utilisé deux équipements différents, l'un permettant des enregistrements d'images à haute fréquence et l'autre à basse fréquence. Les références sont listées sur le tableau 2. Les particules d'huile minérale Ondina 915 d'une taille comprise entre $0,2 \mu\text{m}$ et $1 \mu\text{m}$ étaient atomisées à partir d'un générateur « TOPAS » de référence ATM-200. Les traitements sur les données utilisés sont récapitulés sur les tableau 3.

Tableau 3 : Traitements des images utilisés pour la PIV.

	<i>Logiciel</i>	<i>Fenêtrage (double passe)</i>	<i>Temps entre binôme d'images</i>
Système 1, 8 Hz	<i>Davis 7</i>	<i>Rond, 128×128 et 32×32, avec 50 % de recouvrement</i>	$150 \mu\text{s} - 600 \mu\text{s}$
Système 2, 20 kHz	<i>Davis 8</i>	<i>Rond, 64×64 et 16×16, avec 50 % de recouvrement</i>	$50 \mu\text{s} - 70 \mu\text{s}$

3.1.5.2 Présence des particules avec le plasma

Dans la communauté des plasmas froids, l'utilisation de techniques de vélocimétrie avec des particules est sujet à débat. D'une part, l'hypothèse de base de cette technique est que les particules suivent l'écoulement. Cela n'est pas forcément le cas dans un milieu ionisé lorsqu'il y a la précipitation des particules (voir e. g. l'étude de Zouzou et Moreau [119]). Nous constaterons sur les champs de vitesse (section 6.2) que les lignes de courant ne s'écrasent pas sur la plaque et que les régions de jet de paroi sont bien développées. C'est pour cela que nous pensons que les particules ne se précipite pas.

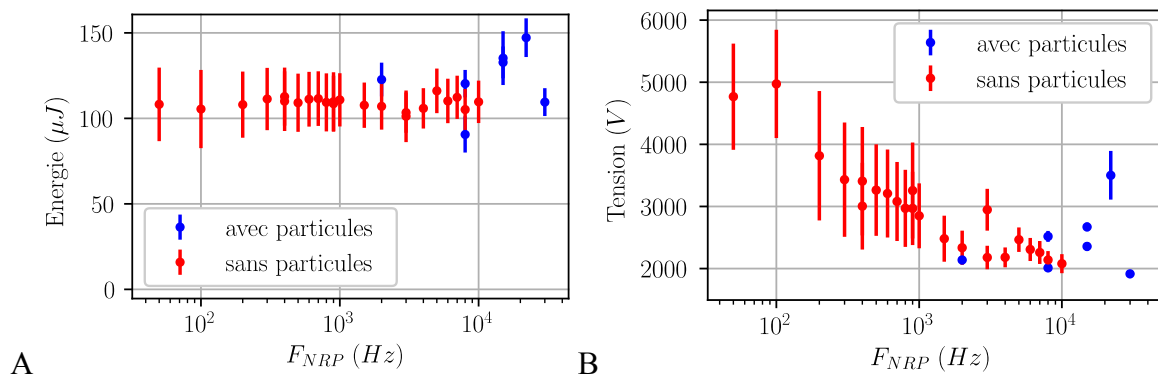


Figure 28:A) Mesure de l'énergie et B) de la tension maximale appliquée aux bornes de l'espace inter-électrodes pour plusieurs fréquence F_{NRP} avec $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$.

Ce qui est le plus préoccupant dans notre configuration est l'effet des particules sur la décharge. Seydou [56] (p 63) a essayé de déduire l'influence des particules en comparant l'énergie d'une décharge avec ou sans ensemencement. Avec la même méthodologie, nous présentons sur les figure 28A et B des mesures d'énergie et de tension maximale de V_{plasms} avec et sans ensemencement pour $F_{NRP} \in [50 \text{ Hz}; 30 \text{ kHz}]$. Nous n'observons pas de

différence significative entre les cas avec et sans les particules aussi bien sur la tension que sur l'énergie. Pour les hautes fréquence $F_{NRP} > 10 \text{ kHz}$ l'énergie et la tension tendent à augmenter car le réacteur se détériore plus rapidement.

3.1.6 Visualisations Schlieren

Avec la dernière section sur la mesure par PIV, nous avons mis en évidence la nature potentiellement intrusive des particules dans le plasma. Afin d'effectuer une validation qualitative des résultats de PIV, nous avons souhaité réaliser des visualisations Schlieren. C'est une technique qui permet de visualiser les gradients de densité [120]. Cette technique seule ne permet donc pas de remonter à des grandeurs quantitatives. Le principe de fonctionnement est illustré sur la figure 29, qui est une vue de dessus du montage.

Une source de lumière est focalisée sur la fente horizontale. Il faut réaliser un compromis sur la taille de la fente. Plus elle est ouverte, plus elle laisse passer de la lumière, néanmoins la sensibilité du montage diminue [120]. Nous choisissons une ouverture de 1 mm. Cette fente se trouve sur le point focal du premier miroir parabolique. Des rayons lumineux parallèles passent donc à travers la section qui est sous test. Des processus de réfraction peuvent dévier ces rayons, comme une variation spatiale de la densité. Le deuxième miroir parabolique refocalise sur le couteau l'image qui correspond à la fente. Une caméra, focalisée sur l'objet sous test à l'aide d'un objectif, est positionnée derrière ce couteau.

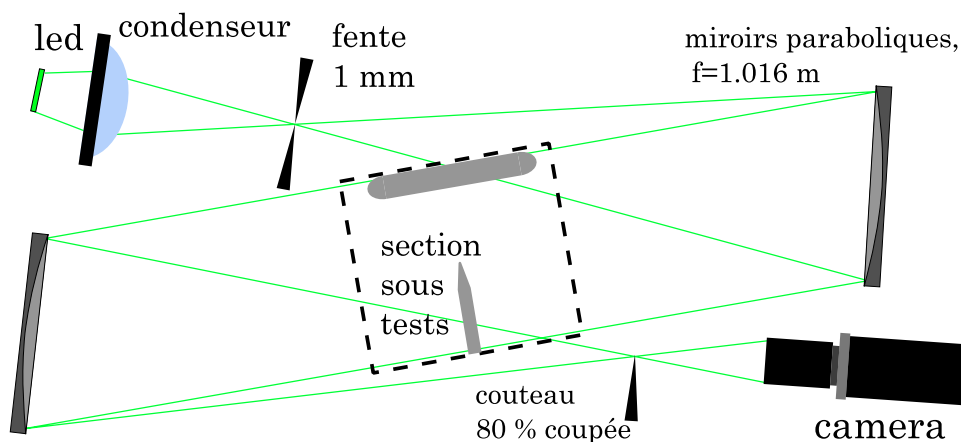


Figure 29: Schéma de montage pour réaliser la visualisation Schlieren.

Lorsqu'il y a une variation spatiale de densité entre les deux miroirs paraboliques, alors les rayons sont déviés. Cela provoque le déplacement de la tâche qui se reforme sur le couteau un peu plus haut ou un peu plus bas. Du point de vue de la caméra, il en résulte une hausse ou une baisse de contraste de luminosité de certaines parties de l'image, où les rayons provenant des régions avec un gradient de densité ont été déviés. Les références de chacun des éléments du système sont reportées dans le tableau 4. La source lumineuse est une LED fonctionnant avec un fort courant (jusqu'à 200 A en pulsé). Le circuit électrique utilisé pour alimenter cette source est recopié de Willert *et al.* [121].

Tableau 4 : Équipements utilisés pour le banc Schlieren.

	Références, caractéristiques
Source lumineuse	<i>Luminus CBT-120 (couleur verte)</i>
Miroirs	<i>Diamètre 50 mm, $f = 1,016$ m</i>
Caméra	<i>Jai CV-M2 1600 × 1200 pixels, objectif 200 mm, doubleur de focale</i>

3.2 Mesures électriques et génération des décharges

3.2.1 Caractéristiques de l'alimentation

Dans cette section, nous présentons les caractéristiques du générateur d'impulsion utilisé. Nous avons réalisé des tests en utilisant plusieurs résistances haute tension afin de déterminer l'impédance de la ligne de transmission. La tension aux bornes de la résistance de charge que nous appelons R_{charge} s'exprime selon la relation (14) avec V_{pulse} la tension de l'impulsion mesurée sans charge (voir figure 19) et le coefficient de réflexion Γ . Il se calcule par $\Gamma = (R_{charge} - Z_0)/(R_{charge} + Z_0)$ avec Z_0 l'impédance de la ligne et R_{charge} .

$$V_{charge} = (1 + \Gamma)V_{pulse}/2 \quad (14)$$

Sur la figure, nous traçons la mesure de la tension aux bornes de R_{charge} pour quatre valeurs de résistances et trois valeurs de V_{pulse} . Nous ajustons Z_0 afin que l'équation soit ajustée aux points de mesures et nous déterminons $Z_0 = 75 \Omega$.

Cette expérience permet de déterminer la puissance dissipée dans R_{charge} avec la simple relation V_{charge}^2/R_{charge} déjà utilisée dans la thèse de Pai [16] (p 56). Nous observons que la puissance est maximale lorsque $R_{charge} \rightarrow Z_0$. Nous souhaitons un montage qui permet de dissiper un maximum de puissance dans la charge. Néanmoins, nous observons également la chute de la tension lorsque R_{charge} décroît. Lorsque $R_{charge} = 200 \Omega$, $V_{charge} \approx 0,75 \times V_{pulse}$ alors que lorsque $R_{charge} = 75 \Omega$, $V_{charge} \approx 0,5 \times V_{pulse}$.

Afin de nous retrouver dans la région d'intérêt représentée sur la figure 30A et B, nous avons ajouté une résistance de 100Ω en série avec le réacteur et une résistance de 200Ω en parallèle. Avec ce montage, lorsque $R_{plasma} \rightarrow \infty$, $R_{charge} \rightarrow 200 \Omega$ et lorsque $R_{plasma} \rightarrow 0$, $R_{charge} \rightarrow 66 \Omega$; ce qui est proche de Z_0 . A $R_{charge} = 200 \Omega$, la puissance dissipée correspond à 80 % de la puissance maximale dissipée sur la charge.

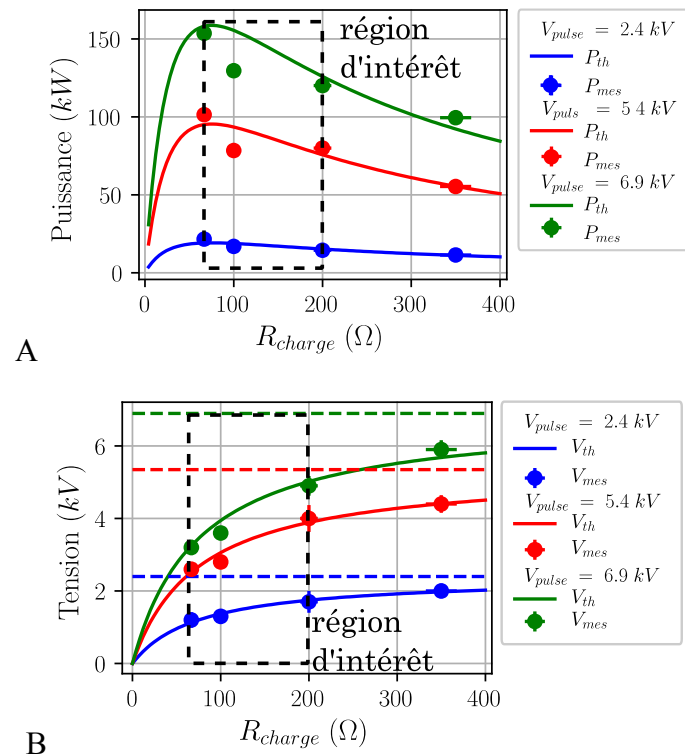


Figure 30: A) Puissance et B) tension mesurées en sortie de l'alimentation pour différentes charges. Les tensions V_{th} et puissances P_{th} représentent les calculs théoriques en utilisant l'équation (14) en utilisant $Z_0 = 75 \Omega$.

Avec cette configuration, nous nous trouvons toujours dans les conditions de bon transfert d'énergie et de protection de l'alimentation contre les configurations potentiellement dangereuses de circuit ouvert et de court-circuit.

3.2.2 Mesure de la puissance et de l'énergie

Dans cette section, nous expliquons la méthode de calcul de la puissance dissipée dans la décharge P_{plasma} en W et l'énergie U_{plasma} en J . Tout d'abord, nous détaillons la procédure permettant de déterminer le décalage entre les signaux de la sonde tension et de la sonde de courant. Nous avons calculé le temps de transit des signaux dans les câbles des deux sondes. Puis dans un second temps, nous avons utilisé une méthode plus précise. La technique dans consiste à générer des impulsions sans allumer la décharge (Pai [16], Rusterholtz [18] et Saint [27]). Le courant qui traverse le réacteur est alors le courant de déplacement dépendant de la tension appliquée et de la capacité formée par les électrodes. Dans notre expérience, la capacité parasite est trop faible (environ 2 pF).

Un autre moyen utilisé par Scapinello *et al.* [52] consiste à réaliser une mesure sans plasma et décaler les signaux jusqu'à ce que l'énergie par impulsion soit nulle.

Ici, nous utilisons l'inductance parasite des câbles afin de synchroniser le courant et la tension. Il suffit pour cela de mettre en contact les électrodes du réacteur pour une mesure en

court-circuit. La tension mesurée aux bornes de l'inductance devrait alors s'exprimer par l'équation (15) pour des fils droits :

$$V_{probe} = L_{c\grave{a}ble} \frac{\partial I_{plasma}}{\partial t} \quad (15)$$

Nous profitons de cette mesure pour déterminer la valeur de $L_{c\grave{a}ble}$ qui devrait être de l'ordre de $1 \text{ nH} \cdot \text{mm}^{-1}$ [122]. La figure 31 présente un essai en court-circuit avec V_{probe} mesuré et modélisé par l'équation (15) et la mesure I_{plasma} . Pour la dérivée temporelle du courant, nous avons utilisé une méthode de gradient différence finie avec un filtrage de Savitzky-Golay d'ordre deux sur neuf valeurs.

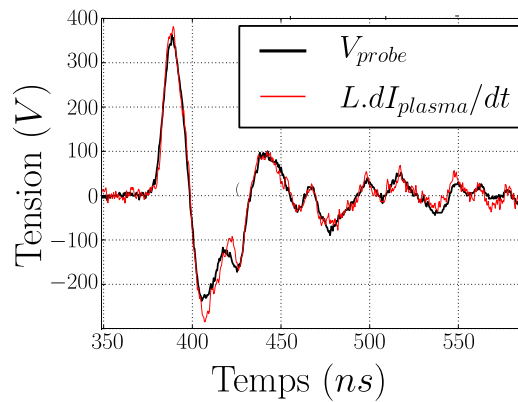


Figure 31: Mesure de l'inductance parasite en comparant la tensions V_{probe} avec la dérivée première du courant ; Nous avons pris $L = 0,18 \mu\text{H}$.

Afin de connaître le décalage précisément, nous utilisons une opération de convolution entre les deux signaux V_{probe} et dI_{plasma}/dt . En ce qui concerne la valeur de l'inductance, nous obtenons $L_{c\grave{a}ble} = 0,18 \mu\text{H}$, ce qui correspond à $\sim 18 \text{ cm}$ de câble. Cela correspond approximativement à la distance entre la sonde de tension et de courant (voir figure 20A). Lorsque nous présenterons des mesures électriques, nous retirerons cette contribution inductive avec l'équation (16) afin de déterminer la tension qui tombe réellement sur le réacteur comme symbolisé sur la figure 19. Cela nous est particulièrement utile pour la mesure de la densité électronique présentée dans la section 3.3.2 en utilisant les caractéristiques électriques.

$$V_{plasma} = V_{probe} - L_{c\grave{a}ble} \frac{\partial I_{plasma}}{\partial t} \quad (16)$$

Pour finir, la puissance P_{plasma} et l'énergie U_{plasma} peuvent respectivement être calculées par les équations (17) et (18) :

$$P_{plasma} = I_{plasma} \times V_{plasma} \quad (17)$$

$$U_{plasma} = \int P_{plasma} dt \quad (18)$$

Pour l'expérience en court-circuit, nous avons mesuré une énergie $U_{plasma} = 3 \mu J \pm 5 \mu J$ dans les mêmes conditions que les résultats présentés dans la suite de ce rapport ($V_{pulse} = 6 kV, F_{NRP} = 8 kHz$). Cette valeur représente notre seuil de mesure de U_{plasma} .

3.3 Méthodes de spectroscopie d'émission

Les premières réactions chimiques opérant à l'échelle de temps de l'impulsion, de l'ordre de la nanoseconde, sont les réactions par impact électronique. Nous consacrerons alors la partie suivante au diagnostic permettant l'estimation de la température électronique moyenne T_e , de la densité électronique n_e et de la température du gaz T_g . Enfin nous présenterons la mesure de champ électrique moyen et résolu dans l'espace, par mesures électriques et spectroscopiques respectivement, ainsi qu'une évaluation de la validité de ce dernier. Néanmoins, pour réaliser des mesures aux conditions réellement fixes, il est nécessaire de définir une stratégie de récupération des données afin d'être sûr que chacun des spectres a été obtenu dans des conditions expérimentales équivalentes. Nous consacrerons donc un premier paragraphe sur le protocole d'acquisition des spectres.

3.3.1 Protocole – érosion des électrodes

La répétition à haute fréquence de ces étincelles doit être prise en compte même si le tungstène est un matériau résistant à l'érosion du fait de ses caractéristiques de résistance au bombardement ionique et à son point de fusion élevé [123]. Nous allons donc déterminer le nombre de spectres que nous pouvons acquérir sans réaliser de dommages significatifs sur les électrodes. Pour les conditions expérimentales typiques ($V_{plasma} = 2,5 kV, F_{NRP} = 8 kHz$), nous avons pu quantifier lors d'une expérience de 30 minutes en temps réel que des électrodes initialement séparées par un gap de $200 \mu m$ et avec un rayon de courbure $R_c = 150 \mu m$ (comme sur la figure 32A), évoluaient jusqu'à un gap de $230 \mu m$ et un rayon de courbure de $R_c = 220 \mu m$.

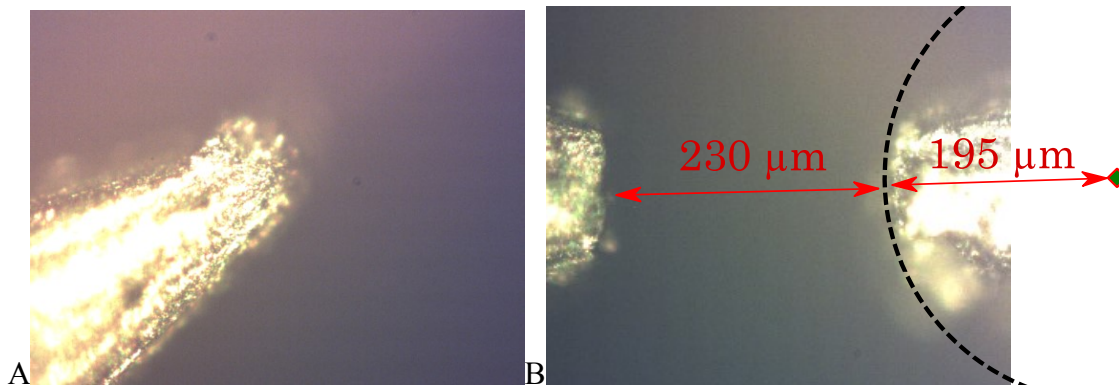


Figure 32: A) Électrode neuve et B) images des électrodes qui ont été soumises à 30 minutes de décharges, le rayon de courbure est de $195 \mu m$ et le gap est de $230 \mu m$.

Afin de minimiser le nombre de décharges, nous allons cibler les fenêtres spectrales où le signal et le nombre d'informations récupérables est important. Selon le type de mesure que nous effectuons, il est parfois nécessaire d'utiliser un réseau de diffraction très résolu. En revanche, le réseau le moins résolu maximisera l'intensité du signal. Pour la mesure de champ électrique, nous allons sélectionner le réseau de diffraction 1800 tr. mm^{-1} qui est un bon compromis entre résolution spectrale et nombre de photons par colonne de pixels. Le maximum du bruit ajouté lors de l'acquisition des données provient de la lecture des données de chacune des cellules du CCD de la caméra. C'est pourquoi il est utile de physiquement relier le circuit électrique des pixels entre eux afin d'augmenter le rapport signal sur bruit (SNR). De plus, la lecture des données du CCD se fait plus rapidement avec ce regroupement de pixels, diminuant le nombre de décharges répétées sans acquisition de données. Nous choisissons de faire des regroupements de cinq lignes de pixels. Nous nous référons au tableau 5 pour le choix des longueurs d'ondes centrales et des réseaux que nous allons utiliser.

Pour tous les spectres, nous avons fermé la fente afin d'avoir une fonction d'appareil de FWHM⁶ $\Delta\lambda_i = 0,12 \text{ nm}$ pour le réseau 600 tr. mm^{-1} , $\Delta\lambda_i = 0,04 \text{ nm}$ pour le réseau 1800 tr. mm^{-1} et $\Delta\lambda_i = 0,028 \text{ nm}$ pour le réseau 2400 tr. mm^{-1} .

Pour la mesure du champ électrique et de la variation de l'intensité N^+ , nous avons choisi le réseau 1800 tr. mm^{-1} car il permet d'avoir une résolution des bandes ro-vibroniques de N_2 et de N_2^+ , avec une fenêtre assez importante pour obtenir la raie de N^+ élargie par l'effet Stark. Pour la mesure de température rotationnelle, le réseau 2400 tr. mm^{-1} est préféré afin de maximiser la résolution des bandes ro-vibroniques. Enfin, pour la mesure de densité électronique, nous avons dû utiliser la fenêtre la plus importante pour avoir les ailes du profil de la ligne de H_α , et donc le réseau de 600 tr. mm^{-1} avec la moins bonne résolution.

Tableau 5 : Jeux de paramètres utilisés pour l'acquisition des données par spectroscopie d'émission.

Longueur d'onde centrale (nm)	Réseau (tr. mm^{-1})	Information	Pas de temps	Temps (min)
394	1800	$\frac{E}{N}$; N_2 ; N_2^+ ; N^+ ; <i>continuum</i>	38	19 min
377	2400	T_{rot} , T_{vib} , N_2	9	5 min
656	600	H_α , N^+	14	7 min

3.3.2 Densité des électrons

La densité électronique n_e et sa variation est un critère caractéristique de l'activité chimique dans un plasma. Dans cette étude, n_e est mesurée par deux méthodes. Par spectroscopie d'émission, l'élargissement des lignes atomiques par l'effet Stark a été très largement utilisé dans la communauté des plasmas froids et chauds. Par mesures électriques, la conductivité sous certaines hypothèses peut s'exprimer directement en fonction de n_e .

⁶ Full width at half maximum : La largeur à la moitié du maximum

3.3.2.1 Mesure par conductivité électrique

D'après [2], on peut exprimer la conductivité électrique σ en $S.m^{-1}$ d'un gaz ionisé selon l'équation (19), où ν_m est la fréquence de collisions des électrons avec des particules lourdes lorsqu'il se produit un transfert de quantité de mouvement en s^{-1} , e la charge d'un électron en C , et m_e la masse d'un électron en kg .

$$\sigma = \frac{J}{E} = \frac{n_e e^2}{m_e \nu_m} \quad (19)$$

Cette fréquence de collisions ν_m peut s'exprimer avec l'expression 20 comme la somme de la fréquence de collisions avec les particules lourdes neutres, qui ont une section efficace notée σ_N en m^2 avec N la densité du gaz en cm^{-3} , et celle des ions positifs. Cette dernière va fatalement être plus importante si n_e est grand à cause des collisions électrons-ions dirigées par les forces de Coulomb (avec une section efficace notée σ_{coul} en m^2). Ici, nous faisons l'hypothèse que la densité d'ions positifs est égale à la densité d'électrons dont la vitesse v_e s'exprime en $m.s^{-1}$.

$$\nu_m = N \nu_e \sigma_N + n_e \nu_e \sigma_{coul} \quad (20)$$

De plus, on peut exprimer $\nu_e \sigma_{coul}$ en $m^3.s^{-1}$ d'après l'équation (21) avec le logarithme de Coulomb $\ln \Lambda$ dont l'expression (22) est donnée, extraite également de [2] avec k_B la constante de Boltzmann et ϵ_0 la permittivité du vide :

$$\nu_e \sigma_{coul} = \frac{e^4 \ln \Lambda}{9 \sqrt{2 m_e \epsilon_0^2 (\pi k_B T_e)^{3/2}}} \quad (21)$$

$$\ln \Lambda = \ln \left(\frac{12 \pi (\epsilon_0 k_B T_e)^{3/2}}{e^3 n_e^{1/2}} \right) \quad (22)$$

On comprend alors en observant les expressions (19) et (20) que lorsque la densité d'électrons est importante par rapport à la densité de gaz, alors la conductivité va perdre sa dépendance linéaire sur la densité électronique. De plus, T_e se retrouve également dans l'expression de la conductivité selon les équations (21) et (22). En bilan, nous pouvons noter que si $\alpha \leq 10^{-3} \rightarrow \sigma \propto n_e$ et si $\alpha \gg 10^{-3} \rightarrow \sigma \propto T_e^{3/2} \ln \Lambda^{-1}$. Nous devons utiliser deux estimations de ν_m et T_e pour avoir accès à n_e . Lorsque α est faible, l'erreur sera due à l'hypothèse sur ν_m uniquement et plus α deviendra importante, plus l'hypothèse sur T_e aura une importance et donc le calcul s'éloignera de la réalité si les estimations sont mauvaises.

Notre méthode consiste alors à réaliser une estimation grossière de ν_m et de T_e à l'aide d'une simulation sur Bolsig+ avec la base de données Phelps⁷.

Nous avons réalisé deux simulations avec deux jeux de paramètres différents que nous montrons sur le tableau 6. Nous utilisons le premier jeu de paramètres afin de comparer les résultats obtenus par Bolsig+ et une étude numérique de Colonna *et al.* [124] où la distribution d'énergie des électrons a été examinée dans le cas d'une décharge pulsée dans de l'azote pur. Le résultat important est que dans ce cas, le régime permanent n'est pas établi et les auteurs ont déterminé qu'il fallait environ 100 ps afin d'avoir un comportement assez maxwellien tant que le champ est élevé ; cela indique que la température moyenne des électrons représente bien l'EEDF (Electron Energy Distribution Function).

Tableau 6 : Jeux de paramètres utilisés pour les simulations sur Bolsig+.

	Paramètres 1 ([124])	Paramètres 2 (Cette étude)
N (m^{-3})	$1,468 \times 10^{25}$	$1,983 \times 10^{25}$
Gaz	1,0 N_2	0,8 N_2 , 0,2 O_2
Température du gaz (K)	500	370
α	10^{-3}	10^{-3}

La figure 33A compare les deux simulations : nous constatons que l'énergie des électrons par la méthode utilisant Bolsig+ est sous-estimée par rapport à celle de Colonna *et al.* [124]. Cela est probablement dû aux simplifications utilisées pour la résolution de l'équation de Boltzmann qui sont prises en compte différemment dans la simulation de [124]: distribution non-maxwellienne de la distribution d'énergie des électrons obtenue par le champ électrique, et régime permanent établie pour Bolsig+. Cette sous-estimation du résultat est de l'ordre de 16 %. Cela nous indique que Bolsig+ peut nous fournir des valeurs de T_e avec une incertitude acceptable.

Avec le jeu de paramètres correspondant à notre étude, nous obtenons une estimation de $T_e = 116 \pm 19$ kK pour le champ électrique réduit $E/N = 600$ Td sur la figure 33A ($T_e(K) = \epsilon \times 11610$ K/eV). Le degré d'incertitude est satisfaisant dans la gamme de n_e qui nous concerne car ν_m n'est pas très sensible à une large gamme de $T_e \in [6$ eV; 12 eV] (figure 33B).

⁷ <http://jilawww.colorado.edu/~avp/> ou www.lxcat.net/Phelps

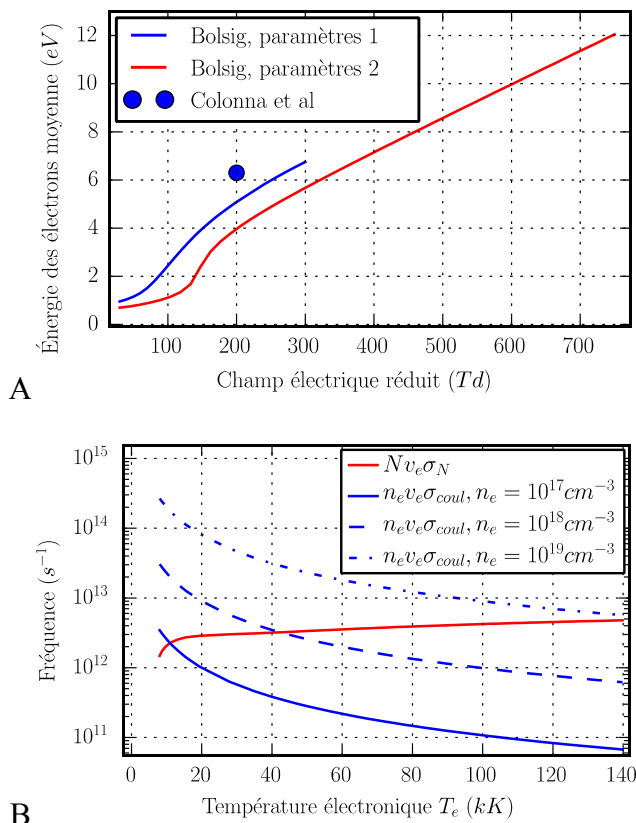


Figure 33:A) Énergie moyenne des électrons calculées pour nos conditions expérimentales (en rouge) et pour les conditions de Colonna et al. [124] (résultats : le point bleu et simulation ligne bleue). B) La fréquence de collision des électrons avec les particules lourdes (rouge) et la fréquence des collisions coulombiennes en fonction de T_e pour plusieurs densité électronique (bleues).

Dans nos conditions, nous observons sur la figure 33B que les collisions coulombiennes restent négligeables pour $n_e = 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ et des valeurs élevées de T_e . En revanche elle sont dominantes pour $n_e = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

En bilan, nous réalisons en premier une estimation de T_e par Bolsig+. Avec cette température et la simulation, nous pouvons déterminer $Nv_e\sigma_N$ dans l'équation (21) (figure 33B). Lorsque α est faible, $v_m = Nv_e\sigma_N$. Enfin, nous utiliserons une routine itérative afin de calculer numériquement n_e en prenant en compte $\ln \Lambda$. Nous initialisons $n_e = 2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ dans $\ln \Lambda$ et nous recalculons l'expression de n_e jusqu'à ce que la valeur calculée soit égale à la valeur dans $\ln \Lambda$. Janda *et al.* [125] ont réalisé une procédure similaire en passant par le biais d'un coefficient de correction dépendant de n_e .

Nous avons donc démontré que Bolsig+ peut fournir une estimation raisonnable de T_e pour une décharge pulsée dans le N_2 . C'est pourquoi nous avons réalisé une estimation à partir de Bolsig+. Les estimations de v_m serait valables tant que $n_e < 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Lorsque $n_e > 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, nous prenons en compte les collisions coulombiennes, mais les hypothèses prennent plus d'importance (T_e et v_m) et la méthode est moins précise.

3.3.2.2 Mesure par l'effet Stark

La densité électronique peut aussi être obtenue à partir de l'élargissement de Stark. Dans un milieu chargé microscopiquement, le champ électrique induit par la présence d'un ensemble de charges sur un atome va perturber faiblement le champ interne de l'atome. Si celui-ci est excité et cherche à se désexciter en émettant un photon, alors la longueur d'onde de ce photon sera légèrement différente de la longueur d'onde normalement émise sans la présence de ce champ électrique très locale. Expérimentalement, cela se traduit par un élargissement des raies dans le spectre d'émission. Le plus souvent, les très connues raies de Balmer de l'hydrogène H_β et H_α sont utilisées à cause de la simplicité des modèles analytiques.

En général, il s'agit de faire coïncider les données expérimentales de la raie H_α avec un profil « voigt », dont la formule est rappelée par l'équation (23), rassemblant par convolution plusieurs contributions « gaussienne » et « lorentzienne ». $\lambda_0(nm)$ représente la longueur d'onde de la ligne simulée, et σ_g et γ représentent respectivement la contribution gaussienne et lorentzienne du profil en terme de largeurs de raies en nm . Dans la littérature, la partie gaussienne est majoritairement composée de l'élargissement instrumental notée σ_i et doppler tandis que la partie lorentzienne est composée de l'élargissement Van der Waals, résonnant, Stark ainsi qu'une partie instrumentale notée γ_i [27].

$$f(\lambda; A, \lambda_0, \sigma_g, \gamma) = \frac{\text{Re}[e^{z^2} \text{erfc}(-iz)]}{\sigma_g \sqrt{2}}; \quad (23)$$

$$z = \frac{\lambda - \lambda_0 + i\gamma}{\sigma_g \sqrt{2}} \quad (24)$$

Un exemple de la correspondance entre un spectre expérimental et un spectre simulé est donnée par la figure 34 dans le cas de H_α et par la figure 36 pour O et N .

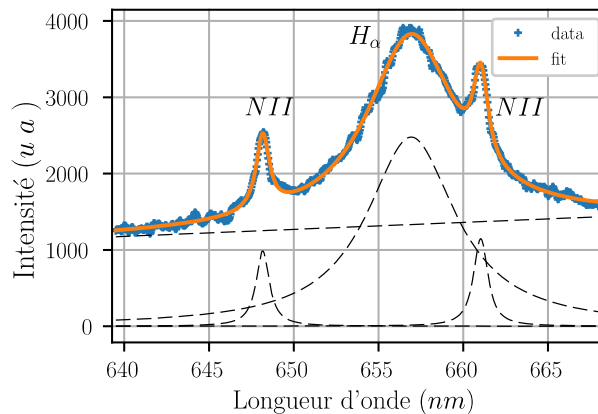


Figure 34: Exemple de correspondance entre un spectre simulé (orange continu) et un spectre expérimental (symboles). Trois profils voigts ont été utilisés afin de simuler les raies de H_α et de N^+ rendant la méthode plus compliquée à mettre en œuvre. Nous approximations un fond continu linéaire.

Plusieurs formules mettent en relation les grandeurs caractéristiques de l'élargissement dû à l'effet Stark en fonction de la densité électronique. De façon générale, les études, dont [26,27,46,125,126], utilisent les travaux numériques et/ou théoriques de Gigos [127,128] et de Griem [129]. Il est donc nécessaire, au préalable, de soustraire les autres composantes venant s'ajouter à l'effet Stark. Pour n'importe quel atome, Griem fournit une formule simplifiée de la FWHM du profil notée $\Delta\lambda_{stark}$ par la relation (25) où la fenêtre ω_e , exprimée en nm et le paramètre d'élargissement par les ions α_e sont des grandeurs tabulées dans [129] et fortement dépendante de T_e . Le paramètre d'écrantage de Debye R_e défini par Griem [129] est donné par l'équation (26).

$$\Delta\lambda_{stark}(nm) = 2\omega_e(T_e) \times [1 + 1,75(1 - 0,75R_e)\alpha_e(T_e)]10^{-16}n_e \quad (25)$$

$$R_e = 8,99 \times 10^{-2}n_e^{-1/6}T_e^{-1/2} \quad (26)$$

Il est très pratique d'utiliser la FWHM : des relations mathématiques simples relient la largeur d'un profil « voigt » à sa composante « gaussienne » et sa composante « lorentzienne » [130]. De plus, des relations existent pour retrancher simplement d'autres composantes comme un élargissement instrumental. Néanmoins, dans ses travaux, pour la raie de H_α , Gigos soumet une formule utilisant la FWHA⁸ indiquant qu'elle a une sensibilité moins importante à la température du gaz ou la température des ions.

Dans le travail de Gigos *et al.* [127], cela est pris en compte par l'expression d'une masse réduite notée $\mu_r^* = \mu_r \times T_e/T_g$ avec μ_r la masse réduite entre l'espèce perturbatrice et l'émetteur soumis à l'effet Stark. Dans notre cas l'émetteur, est un atome d'hydrogène et les perturbateurs sont les électrons, donc $\mu_r \sim 1$. Cela indique que μ_r^* dépend principalement du ratio T_e/T_g .

De plus, l'auteur a indiqué par erreur la formule utilisant la HWHA à la place de la FWHA comme indiqué par Konjevic [131]. La formule de $\Delta\lambda_{stark-FWHA-H_\alpha}$ est définie par l'équation (27). Plusieurs groupes ont également repris les données de Gigos *et al.* [127] pour retrouver la formule de la FWHM notée $\Delta\lambda_{stark-FWHM-H_\alpha}$: c'est le cas de la formule (28) de Van der Horst *et al.* [26] pour $T_e = 10 kK$ et $T_{gaz} = 1 kK$, c'est-à-dire $\mu_r^* = 10$. Les équations (27) et (28) sont donc pour des valeurs spécifiques de T_e .

$$\Delta\lambda_{stark-FWHA-H_\alpha}(nm) = 1,098 \times \left(n_e/10^{17}\right)^{0,67965} \quad (27)$$

$$\Delta\lambda_{stark-FWHM-H_\alpha}(nm) = 8,33 \times 10^{-3} \left(n_e/10^{14}\right)^{2/3} \quad (28)$$

Dardaine [132] a repris les résultats de simulation de Gigos *et al.* [127] pour $T_e/T_g \in [1; 10]$ afin de trouver une formule générale sur cette gamme (29).

⁸ Full width at half area : La largeur à la moitié de l'aire

$$\Delta\lambda_{stark-H\alpha} = \Delta\lambda_0 \left(\frac{n_e}{10^{17}} \right)^{\alpha_{\Delta\lambda}} \quad (29)$$

Les figures 35A et B extraites de Dardaine [132] montrent que la dépendance de la FWHA en fonction de μ_r^* est moins importante que pour la FWHM, tant sur $\alpha_{\Delta\lambda}$ que pour $\Delta\lambda_0$.

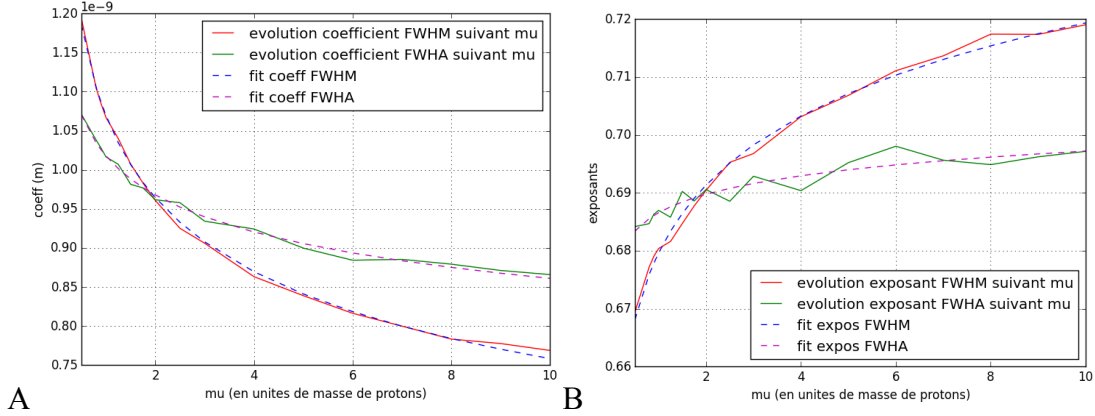


Figure 35: Figures issues de Dardaine [132] représentant les données de Gigoso et al. [127] si $\Delta\lambda_{stark-H\alpha}$ se modélise par l'équation (29). A) $\Delta\lambda_0$ nommé « coef » sur la figure et B) $\alpha_{\Delta\lambda}$ nommé « exposant » sur la Figure

Les valeurs de $\Delta\lambda_0$ et $\alpha_{\Delta\lambda}$ sont des équations calculées à partir des figures 35. On y voit que ces derniers sont presque uniquement dépendants de μ_r^* , et les formules sont données par le tableau 7.

Tableau 7 : Formules des paramètres $\Delta\lambda_0$ (nm) et de $\alpha_{\Delta\lambda}$ pour le calcul de la FWHM et de la FWHA en prenant en compte μ_r^* .

	FWHM	FWHA
$\Delta\lambda_0$ (nm)	$0,91 \times \left(\frac{\mu_r^*}{5} \right)^{-0,17}$	$0,84 \times \left(\frac{\mu_r^*}{5} \right)^{-0,15}$
$\alpha_{\Delta\lambda}$	$0,71 \times \left(\frac{\mu_r^*}{5} \right)^{0,0246}$	$0,69 \times \left(\frac{\mu_r^*}{5} \right)^{0,0067}$

Dans ce travail, nous utilisons une valeur $\mu_r^* = 10$ représentative d'un rapport de dix entre la T_e et T_g . Néanmoins nous ne réalisons pas de mesure de ces deux températures à tous les pas de temps. Nous utilisons donc une extrapolation des fonctions du tableau 7 afin de calculer notre incertitude pour couvrir des valeurs de $\mu_r^* \in [1; 50]$. Cela représente une incertitude relative de 20 % incluse dans nos données de n_e .

Dans notre étude, nous montrerons que dans certains cas, les lignes de Balmer sont superposées au spectre de N^+ , empêchant un calcul de n_e précis, ce qui nécessite d'utiliser une autre ligne atomique. C'est pourquoi nous allons utiliser les raies de O et de N pour certains cas. Nous reportons les paramètres Stark à utiliser dans les équations (25) et (26). des

raies de O et N situées aux longueurs d'ondes $\lambda = 746 \text{ nm}$ et $\lambda = 777 \text{ nm}$ dans le tableau 8. Nous utiliserons les paramètres Stark du tableau 8 pour $T_e = 10 \text{ kK}$.

Tableau 8 : valeurs de ω_e et α_e pour différentes température électronique T_e pour les lignes N à 746 nm et O à 777 nm

Lines	$T_e(K)$	10 k	20 k	40 k	80 k
O 777 nm	$\omega_e(nm)$	$3,27 \times 10^{-3}$	$4,43 \times 10^{-3}$	$5,66 \times 10^{-3}$	$6,49 \times 10^{-3}$
	α_e	0,028	0,023	0,019	0,017
N 746 nm	$\omega_e(nm)$	$4,75 \times 10^{-3}$	$6,28 \times 10^{-3}$	$7,85 \times 10^{-3}$	$8,78 \times 10^{-3}$
	α_e	0,035	0,028	0,024	0,022

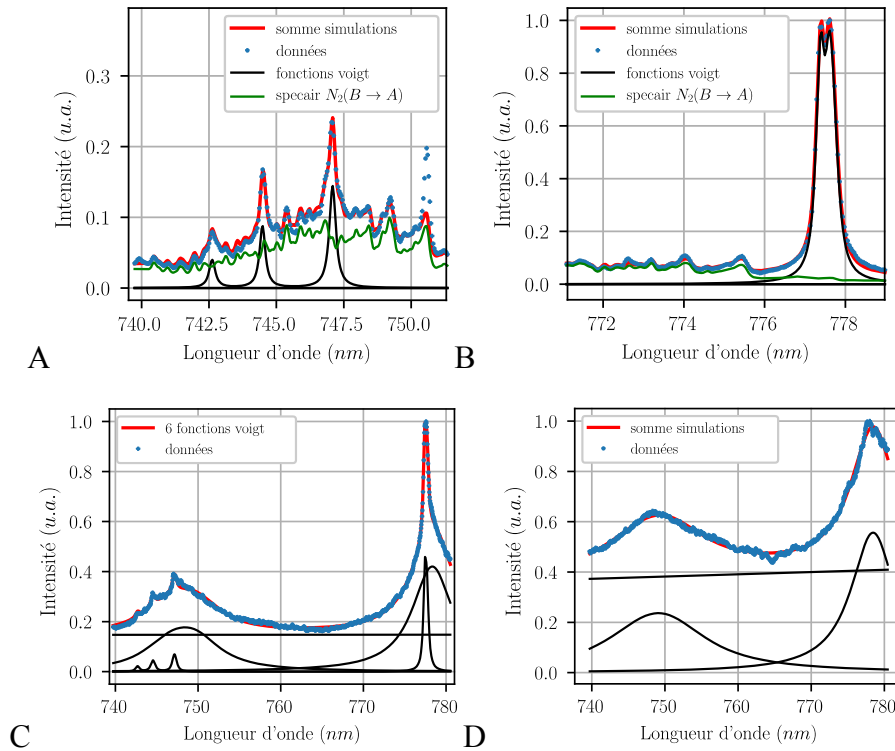


Figure 36: Exemple de détermination des grandeurs spectrales à partir de spectres simulés a) spectre théorique et expérimentale de $N; N_2(B \rightarrow A)$ à faible $n_e < 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ b) spectre théorique et expérimentale de $O; N_2(B \rightarrow A)$ à faible $n_e < 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, c) spectre théorique et expérimentale de N, O et $N_2(B \rightarrow A)$ distribution de deux densité électronique différente et d) pour $n_e > 10^{18}$.

Une difficulté supplémentaire réside dans le fait que ces spectres sont superposés au premier système positif $N_2(B \rightarrow A)$ et à un fond continu, comme observé sur les figures 36A et 36B.

Sur ces figures nous avons utilisé une simulation effectuée avec SPECAIR [133]⁹ ce qui permet de modéliser convenablement cette partie du spectre.

Sur les figures 36C et 36D, il a été nécessaire de modéliser la superposition de deux spectres avec deux élargissements différents. Nous associons ce phénomène à un changement de n_e assez rapide pendant l'acquisition avec notre temps d'exposition de $t_{exp} = 3 \text{ ns}$. Le spectre est représentatif de plusieurs densités d'électrons différentes.

Pour finir, nous n'avons pas évalué les contributions des autres mécanismes d'élargissement. La contribution à l'élargissement des raies notée $\Delta\lambda_{vdw}$ par l'effet de Van der Waals est reportée dans le tableau 9.

Tableau 9 : Calcul des élargissements de Van der Waals $\Delta\lambda_{vdw}$ et instrumentaux $\Delta\lambda_i$ des lignes N à 746 nm, O à 777 nm et H_α à 656 nm, les valeurs numériques ont été obtenues pour $P = 7,4 \text{ atm}$ et $T_{gaz} = 1000 \text{ K}$.

Lignes	N (746 nm)	O (777 nm)	H_α
$\Delta\lambda_i$ (nm)	0,12		
$\Delta\lambda_{vdw}$ (nm)	$2,0 \times P / T_{gaz}^{0,7}$	$2,2 \times P / T_{gaz}^{0,7}$	$5,41 \times P / T_{gaz}^{0,7}$
source	[26]	[134]	[134]
$\Delta\lambda_{vdw}$ (nm)	0,12	0,13	0,31

L'élargissement dû à l'effet Stark est obtenu par l'équation (30) en utilisant seulement les composantes lorentziennes. Les quantités $\Delta\lambda_{mes}$ et $\Delta\lambda_i$ représentent les FWHM des fonctions de Lorentz de largeurs γ et γ_i associées respectivement à l'élargissement mesuré et à l'élargissement instrumental. La propriété du profil de Lorentz fait que naturellement, $\Delta\lambda = 2\gamma$.

$$\Delta\lambda_{stark} = \Delta\lambda_{mes} - \Delta\lambda_{vdw} - \Delta\lambda_i \quad (30)$$

Nous observons que la raie la plus sensible à l'élargissement de Van der Waals est la ligne H_α . Néanmoins, les paramètres Stark des lignes montrent que l'effet Stark est dominant à partir de $n_e \approx 1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ pour les lignes O et N et à partir de $n_e \approx 1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ pour la ligne H_α .

3.3.3 Méthode de mesure pour la température du gaz

Traditionnellement, la méthode pour mesurer la température du gaz T_{gaz} dans un plasma d'air en utilisant son émission est de déterminer la température rotationnelle de $N_2(C)$ notée T_{rot} en comparant la forme des spectres expérimentaux de $N_2(C \rightarrow B)$ avec des spectres simulés.

⁹ <http://www.spectralfit.com>

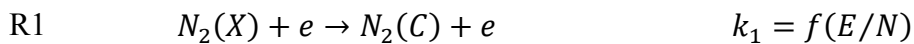
C'est donc une mesure indirecte regroupant plusieurs niveaux d'hypothèses. Nous choisissons de prendre pour exemple la méthodologie de Rusterholtz *et al.* [20]. Il a été démontré que pour leur étincelle NRP [20], la température pouvait augmenter à des vitesses dans l'ordre de grandeur de $10^{11} K \cdot s^{-1}$. En premier lieu, si le transfert d'énergie du mode rotationnel au mode translationnel est suffisamment rapide, alors on peut assumer que $T_{rot} \approx T_{gaz}$. Ce temps caractéristique noté $\tau_{R \rightarrow T}$ peut être calculé par la relation (31) avec P la pression en *atm*, T_{gaz} la température du gaz en *K* et $Z_{R \rightarrow T}$ le nombre de collision pour atteindre la relaxation des niveaux rotationnels :

$$\tau_{R \rightarrow T} = Z_{R \rightarrow T}(T_{gaz}) \left[10^{10} \sqrt{\frac{300}{T_{gaz}}} \times P \right]^{-1} \quad (31)$$

En revanche, la dépendance de $Z_{R \rightarrow T}(T_{gaz})$ est claire selon les données de [135] avec une estimation de $Z_{R \rightarrow T} \in [4,3; 13,8]$ pour $T_{gaz} \in [300 K; 1300 K]$. Dans une étude numérique [136], plus récente que [135], $Z_{R \rightarrow T} \in [4,2; 9,85]$ pour $T_{gaz} \in [400 K; 1000 K]$.

Dans nos conditions, en considérant que la température initiale avant chaque impulsion ne dépasse pas $T_0 = 600 K$ et en prenant la surestimation $Z_{R \rightarrow T} = 13,8$, le temps pour le transfert d'énergie du mode rotationnel vers le mode translationnel n'excède pas $2 ns$. Dans le cas d'une augmentation de T_{gaz} avec une transformation isochore conservant le rapport P/T_{gaz} , $\tau_{R \rightarrow T}$ ne peut que diminuer.

Puisque nous utilisons les transitions vibrationnelles de $N_2(C \rightarrow B)$, la seconde hypothèse forte est que l'état excité $N_2(C)$ est peuplé uniquement par impact électronique de l'état non excité $N_2(X)$ (réaction R1). Dans ces conditions, on peut montrer que le niveau rotationnel est conservé entre l'état non excité $N_2(X)$ et l'état excité $N_2(C)$ selon Park [137] et Rusterholtz *et al.* [20].



De nos connaissances, il n'y a pas de désexcitation par collision préférentielle sur certains niveaux rotationnels de $N_2(C)$. La distribution des états rotationnels de $N_2(C)$ n'est donc pas affectée par une espèce tiers, et la mesure de T_{rot} reste valable.

La légitimité de cette mesure, effectuée lorsque $N_2(C)$ est désexcité par collision, est soutenue par les études expérimentale de Rusterholtz *et al.* [20] et numérique de Popov [24]. Ces deux études montrent des résultats concordants alors que la mesure est réalisée dans la phase de *quenching*.

Pour finir, T_{rot} de $N_2(C)$ est obtenue en utilisant les bandes vibrationnelles (1,3) et (0,2) du système $N_2(C \rightarrow B)$. Les spectres expérimentaux sont comparés à des spectres simulés par

SPECAIR [133] ou massiveOES [138]¹⁰ pour des séries de plusieurs spectres. Elles sont sensibles presque uniquement à T_{rot} et T_{vib} . Des exemples de comparaison entre spectres simulés et expérimentaux sont présentés en figure 37. La température vibrationnelle notée T_{vib} est aussi mesurée en utilisant ces courbes mais l'utilisation de seulement deux bandes vibrationnelles rend la mesure peu précise.

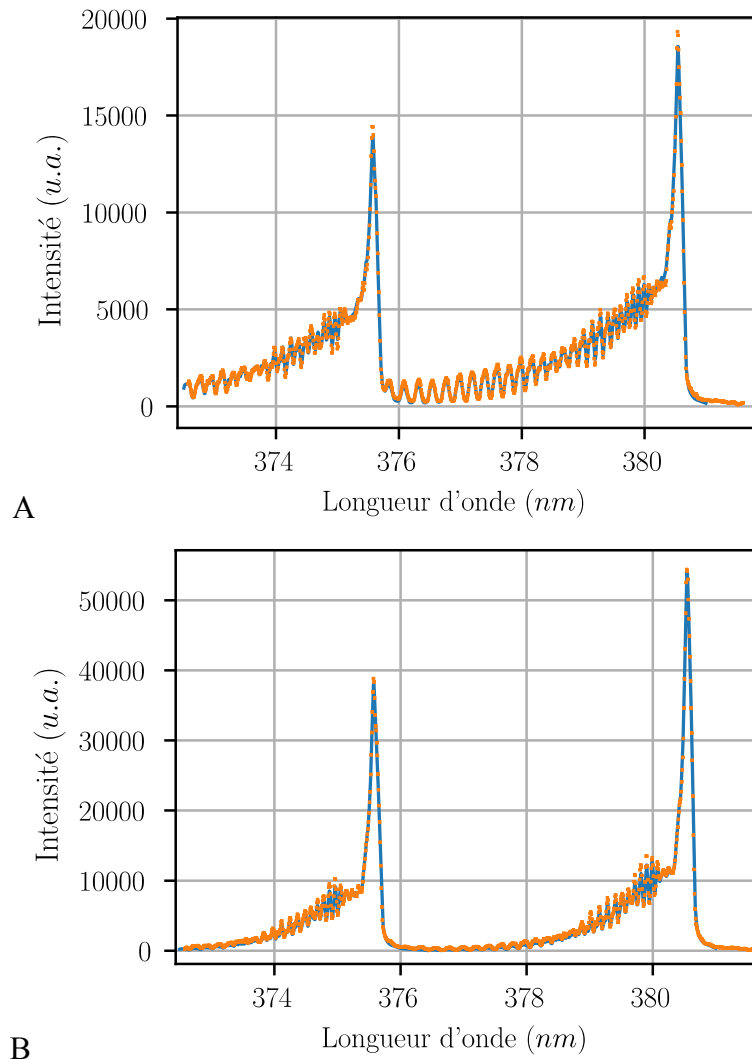


Figure 37: Exemple de comparaison entre spectres simulés avec massiveOES et spectres expérimentaux pour des ordres de grandeur de températures rotationnelles différentes, A) $T_{rot} = 956$ K, B) $T_{rot} = 356$ K.

3.3.4 Température des électrons

Une bonne estimation de la température des électrons T_e peut être approximée comme la température d'excitation des ions ou des neutres T_{exc} . La température d'excitation est associée avec la population des états excités d'une espèce donnée (notamment les atomes) et peut être calculée en traçant la droite de Boltzmann formée par les intensités de l'émission de chacun

¹⁰ https://bitbucket.org/OES_muni/massiveoes

de ces états. Griem [129] montre que lorsque la population des niveaux d'énergie suit une distribution de Boltzmann, on peut alors écrire l'équation (32), la probabilité de transition de l'espèce d'un niveau k d'énergie E_k vers le niveau inférieur avec une énergie de transition ΔE_k en eV , avec la dégénérescence g_k , la longueur d'onde λ_k , la constante de Boltzmann k_B , la densité de l'espèce n_k , la constante de Planck h , la fonction de partition $Z(T)$ [129](p 134), c la vitesse de la lumière et I_k l'intensité de la raie :

$$\ln\left(\frac{I_k \lambda_k}{A_k g_k}\right) = \ln\left(\frac{h c n_k}{Z(T)}\right) - \frac{E_k}{k_B T_{exc}} \quad (32)$$

Dans le cadre du tracé de la droite de Boltzmann, on peut simplifier l'expression par l'équation (33) :

$$\ln\left(\frac{I_k \lambda_k}{A_k g_k}\right) = \text{constante} - \frac{E_k}{k_B T_{exc}} \quad (33)$$

Dans notre cas, nous allons mesurer la température d'excitation dans la phase de recombinaison. Nous constaterons que la densité des électrons n_e dans notre cas est importante ($n_e \sim 10^{19} \text{cm}^{-3}$). Dans ces conditions, nous devrions valider les critères concernant l'équilibre thermodynamique local (ETL) entre les populations des niveaux excités des ions et les électrons (voir par exemple Griem [129] (p 148 et 154) ou Bye et Scheeline [139]). En effet, lorsque la fraction d'ionisation est proche de 1, les collisions électrons-ions seraient dominantes par rapport aux collisions électrons-neutres (figure 33B).

La recombinaison radiative n'est pas prise en compte car nous travaillerons avec les atomes neutres seulement dans la phase de recombinaison tardive ($t > 1 \mu s$). De plus la désexcitation par collision préférentielle de certains niveaux n'est habituellement pas prise en compte [140] (p 524). Nous considérons donc $T_{exc} = T_e$ pour un ion excité comme N^+ .

Tableau 10 : Constantes spectroscopiques des raies de N^+ utilisées pour le tracé des droites de Boltzmann.

Configuration	$^3P-^3D^\circ$	$^3P-^3D^\circ$	$^3P^\circ-^3D$	$^5P-^5D^\circ$	$^3P-^3P^\circ$	$^1D-^1F^\circ$	$^1P^\circ-^1P^\circ$
λ_k (nm)	594,2	593,2	566,7	553,5	549,6	661,0	648,2
$A_k \cdot g_k$ (s^{-1})	3,83e8	2,12e8	1,72e8	5,44e8	1,33e8	4,21e8	7,74e7
E_k (eV)	23,25	23,24	20,65	27,75	23,42	23,47	20,41
ΔE (eV)	2,09	2,09	2,19	2,24	2,26	1,91	1,88

Les données nécessaires pour tracer la droite de Boltzmann pour N^+ sont répertoriées dans le tableau 10. Nous avons choisi les raies respectant le critère de Rayleigh (résolution du pic), ayant une amplitude importante mais aussi permettant d'avoir une amplitude d'énergie à l'état haut, noté E_k , la plus importante (de 20,41 eV à 27,75 eV). Le profil des raies étant très

large, un recours à une méthode de modélisation du spectre atomique de N^+ est nécessaire pour obtenir l'amplitude exacte des raies. Des exemples sont montrés sur la figure 38.

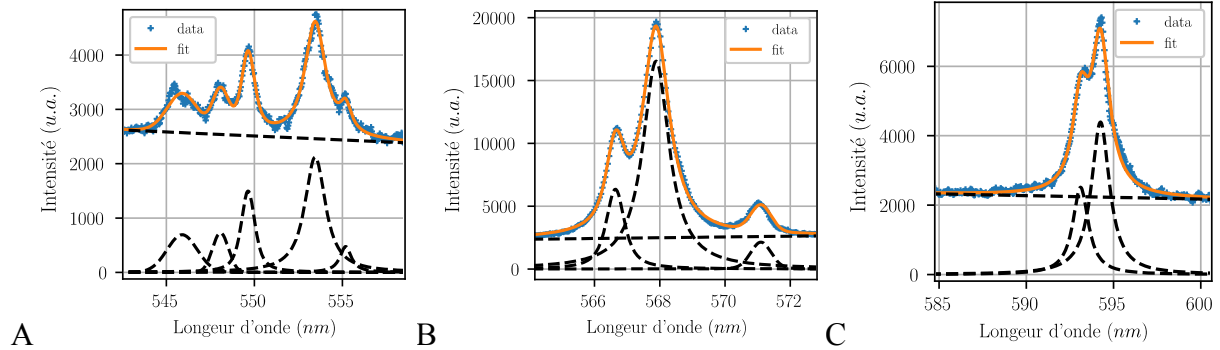
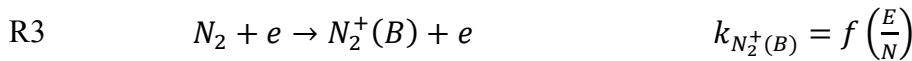
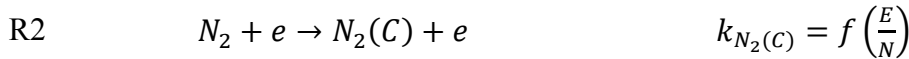


Figure 38: Exemple de fit sur les raies de N^+ entre 545 nm et 600 nm pour le micro-plasma NRP avec $d_{gap} = 200 \mu m$ à $t = 30 ns$.

3.3.5 La mesure de champ électrique réduit par le ratio du FNS et du SPS

La méthode pour mesurer le champ électrique réduit à partir des bandes ro-vibroniques de $N_2^+(B \rightarrow X)$ (FNS¹¹) et de $N_2(C \rightarrow B)$ (SPS¹²) a été utilisée pour la première fois sur une décharge couronne dans les années 90 par Creighton [141]. Le principe est simple : si les réactions par impacts électroniques sont prépondérantes pour le peuplement des niveaux $N_2(C)$ et $N_2^+(B)$, il est alors possible de retrouver le champ électrique réduit car les coefficients des réactions R2 et R3 dépendent uniquement du champ électrique réduit :



L'évolution de la densité d'une espèce i correspondant à $N_2(C)$ ou $N_2^+(B)$, résolue spatialement le long d'un axe x de la décharge, peut alors s'écrire selon l'équation (34) avec la densité n_i en cm^{-3} et le coefficient de réaction k_i . Elle est dépendante des taux de réaction et des durées de vie des espèces dont l'équation est rappelée en (35) avec, pour une espèce i , le temps de vie radiatif τ^i en s, le temps de vie radiatif naturel τ_0^i en s, et le coefficient de réaction pour la désexcitation par collision en cm^{-3} k_{qj}^i , j étant le collisionneur.

$$\frac{dn_i(x, t)}{dt} = k_i\left(\frac{E}{N}\right) n_{N_2} n_e(x, t) - \frac{n_i(x, t)}{\tau^i(n_{N_2}, n_{O_2})} \quad (34)$$

¹¹ First negative system : Premier système négatif

¹² Second positive system : Second système positif

$$\tau^i = \left(\frac{1}{\tau_0^i} + k_{qN_2}^i n_{N_2} + k_{qO_2}^i n_{O_2} \right)^{-1} \quad (35)$$

Avec (34), il est alors possible de définir un ratio noté $R_{B/C}$ s'écrivant selon l'équation (36) où les intensités de chaque transition sont $I_{FNS} = A_k g_k n_{N_2^+} / \lambda$ et $I_{FPS} = A_k g_k n_{N_2} / \lambda$.

$$R_{B/C} \left(\frac{E}{N}, n_{N_2}, n_{O_2} \right) = \frac{\tau^{N_2^+} (n_{N_2}, n_{O_2}) \frac{dI_{FNS}(x, t)}{dt} + I_{FNS}(x, t)}{\tau^{N_2} (n_{N_2}, n_{O_2}) \frac{dI_{SPS}(x, t)}{dt} + I_{SPS}(x, t)} \quad (36)$$

La technique a été popularisée dans les années 2000 par Pancheshnyi [142], Kozlov [143] et Paris [144] qui ont déterminé une formule empirique du ratio $R_{B/C}$ pour les bandes vibrationnelles $2 \rightarrow 5$ et $0 \rightarrow 0$ du SPS et la bande $0 \rightarrow 0$ du FNS. Nous pouvons utiliser la formule (37) car du fait de la proximité en longueur d'onde des bandes $2 \rightarrow 5$ du SPS et $0 \rightarrow 0$ du FNS ; la réponse du système de détection change peu et donc la mesure est moins sensible aux incertitudes de la calibration.

$$R_{B/C} \left(\frac{E}{N}, N_0 \right) = 46 \times \exp \left[-89 \times \left(\frac{E}{N} \right)^{-0,5} \right] \quad (37)$$

Un autre avantage de l'utilisation de la proximité des bandes $2 \rightarrow 5$ du SPS et $0 \rightarrow 0$ du FNS est lié à notre système de spectroscopie avec un monochromateur équipé d'une caméra ICCD : il est donc plus avantageux d'acquérir les deux spectres simultanément afin de réduire les changements des conditions expérimentales dus à l'érosion des électrodes.

Enfin, la dernière étape de notre analyse consiste à re-normaliser la formule (37) qui a elle-même été normalisée par rapport aux conditions expérimentales de Paris *et al.* [144], afin de l'utiliser dans nos conditions. Pour cela, nous utilisons la formule (38). De plus, depuis cette étude de 2005, le consensus sur les coefficients de désexcitation par collisions¹³ de $N_2^+(B)$ par N_2 et O_2 a changé. Auparavant, les données de Pancheshnyi étaient utilisées [145,146] mais la méthode de mesure présentée dans ces études utilise la décroissance radiative du FNS. Le repeuplement de $N_2^+(B)$ par des mécanismes autres que par impact électronique n'étaient pas pris en compte. $N_2^+(B)$ peut notamment être repeuplé par la « cascade » de désexcitation des états de N_2^+ excités aux niveaux supérieurs. Les coefficients ont été remesurés par une autre technique par Dilecce *et al.* [147,148].

$$R_{B/C} \left(\frac{E}{N}, N \right) = R_{B/C} \left(\frac{E}{N}, N_0 \right) \times \frac{\tau^{N_2} (N_0) \tau^{N_2^+} (N)}{\tau^{N_2^+} (N_0) \tau^{N_2} (N)} \quad (38)$$

¹³ "Quenching" dans la littérature anglophone

Nous aborderons le sujet de la validité de notre analyse par rapport à la désexcitation de N_2^+ , dans la section 4.2.3. Les données de Dilecce *et al.* [147] et de Pancheshnyi *et al.* [146] pour les coefficients de désexcitation par collisions et les temps de vie naturels sont récapitulées dans le tableau 11.

Tableau 11 : Coefficients de désexcitation par collision et temps de vie naturel pour $N_2^+(B)$ selon Dilecce *et al.* [147] et pour $N_2(C)$ selon Pancheshnyi *et al.* [146]

Espèce i	$\tau_0^i (ns)$	$k_{qO_2}^i (10^{-10} cm^3 s^{-1})$	$k_{qN_2}^i (10^{-10} cm^3 s^{-1})$
$N_2(C, v = 2)$	39	0,46	3,7
$N_2^+(B, v = 0)$	$63,58 \pm 0,72$	$10,45 \pm 0,45$	$8,84 \pm 0,37$

3.4 Conclusion

Ce chapitre a traité du dispositif et des méthodes que nous avons mis en place. Dans la première section 3.1, nous avons présenté tout le matériel utilisé dans cette thèse. En premier le système avec lequel nous générons les micro-plasmas a été présenté dans la section 3.1.1 puis la géométrie du réacteur dans la section 3.1.2. Nous avons ensuite présenté notre système d'imagerie et spectroscopie d'émission dans la section 3.1.3 ainsi que la synchronisation de ce montage avec les mesures électriques dans la section 3.1.4. Le montage utilisé pour les diagnostics optiques pour les mesures traitant des écoulements a été présenté en section 3.1.5 pour la PIV et en section 3.1.6 pour la visualisation Schlieren.

Enfin, les traitements appliqués aux données afin d'extraire les quantités d'intérêt ont été abordés. La section 3.2 traite des mesures électriques et des caractéristiques de l'alimentation. Pour finir, la section 3.3 présente les mesures de la température électronique et du gaz, du champ électrique réduit et de la densité des électrons par spectroscopie d'émission.

4 Dynamique des décharges NRP micro-plasmas dans l'air à pression atmosphérique : la phase de claquage

Ce chapitre concerne la phase de claquage d'NRP micro-plasmas générés dans l'air ambiant, ainsi que la première phase de post-décharge. La formation d'une étincelle dans l'air est dotée d'une physique très riche. Elle est accompagnée d'un changement radical du milieu dans un intervalle de temps extrêmement court : de l'ordre de la nanoseconde. La conductivité du canal va chuter, symptomatique d'une élévation très importante de la densité d'électrons. Des réactions chimiques vont être provoquées par ces électrons, comme l'excitation, la dissociation et l'ionisation des espèces chimiques impliquées par le phénomène. Le claquage provoque donc un changement brutal de la composition chimique du gaz, et dans notre cas, il s'agit de l'air.

L'utilisation d'une impulsion nanoseconde diffère considérablement d'une excitation plus lente puisque, d'une part, la tension pouvant être appliquée est beaucoup plus élevée que la tension de claquage de l'air et d'autre part, peu de temps après le claquage, le courant est coupé par l'extinction du champ électrique. Finalement, utiliser une décharge nanoseconde contribue premièrement à optimiser l'ionisation et la dissociation devant l'excitation notamment vibrationnelle des molécules et deuxièmement, au transfert de l'énergie seulement durant la période de « claquage ».

L'enjeu de cette partie est donc de caractériser cette étape clef de la formation de la décharge pour une fréquence de répétition $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ et une configuration de micro-plasma avec $d_{gap} = 200 \text{ }\mu\text{m}$. Nous constaterons une dynamique très rapide pour notre cas de $200 \text{ }\mu\text{m}$ et c'est pour cela que, dans tout ce chapitre, nous soutiendrons notre étude avec un autre cas : $d_{gap} = 1 \text{ mm}$.

Dans la première section 4.1, nous exposerons les formes d'onde du courant et de la tension afin de déterminer les grandeurs physiques clefs de la décharge qui sont l'énergie et le champ électrique réduit.

La deuxième section 4.2 portera sur l'aspect de la décharge en utilisant de l'imagerie résolue temporellement de la décharge et de son développement. Nous observerons deux phases temporelles : une phase diffuse puis une phase filamentaire. Nous présenterons le spectre d'émission des deux phases afin d'introduire les deux sections suivantes.

Les sections suivantes porteront sur les deux phases temporelles décrites préalablement. La troisième section 4.3 traitera de la phase diffuse ou homogène, dans laquelle nous verrons que nous pouvons mesurer le champ électrique. Les mécanismes menant au régime diffus seront abordés.

La phase filamentaire est abordé dans la section 4.4. Nous aurons préalablement constaté que le spectre d'émission est différent et cela déverrouillera l'accès à d'autres types de mesures

comme la mesure de densité électronique n_e . Nous constaterons que l'aspect filamentaire est associé à une production d'électrons importante.

4.1 Mesures électriques : courant et tension de décharge

Dans cette section, nous étudions les caractéristiques électriques de la décharge NRP micro-plasma dans les conditions standards $V_{pulse} = 6,2 \text{ kV}$, $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ et $d_{gap} = 200 \text{ }\mu\text{m}$.

D'une part, les mesures électriques apportent des informations sur un grand nombre de grandeurs fondamentales, utilisées par la suite, comme par exemple le champ électrique réduit E/N ou le courant I_{plasma} . D'autre part, elles donnent accès au calcul de l'énergie, qui va entrer dans le calcul de n'importe quel rendement ou efficacité énergétique pour une application.

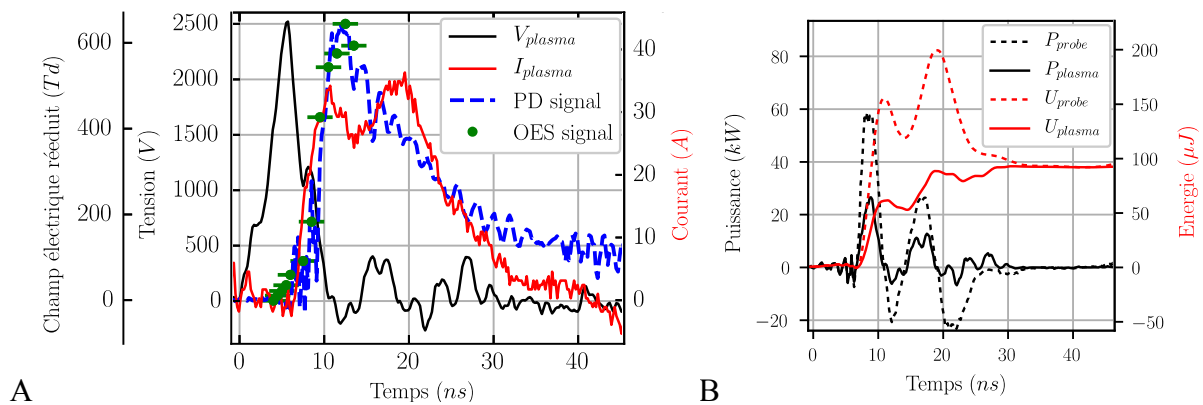


Figure 39: A) formes d'ondes mesurées du courant (ligne rouge) et de la tension (ligne noire) de la décharge $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ et $d_{gap} = 200 \text{ }\mu\text{m}$ avec l'intensité lumineuse intégrée sur toute la décharge, mesurée par la caméra sur le spectromètre (points verts) et la photodiode (bleu pointillé). Les points sont obtenus à partir de l'intégration spatiale de 50 images (voir figure 41) accumulées numériquement. B) L'énergie finale de l'impulsion à $t = 45 \text{ ns}$ est $U_{plasma} = 97 \text{ }\mu\text{J}$. Les courbes continues représentent le calcul utilisant la compensation de l'inductance et en pointillés, le calcul direct.

La figure 39A montre les formes d'ondes du courant et de la tension instantanés en fixant la consigne de notre générateur d'impulsion pour obtenir $V_{pulse} = 6,2 \text{ kV}$. Lorsque la décharge est générée, la tension augmente jusqu'à $V_{plasma} = 2,5 \text{ kV}$, correspondant à un champ maximum moyen appliqué $E/N = 600 \text{ Td}$ en prenant $N = 1,98 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ avec $T_{gaz} = 370 \text{ K}$ (voir section 5.2.1 pour la mesure de la température).

Après claquage de l'espace inter-électrodes, la tension chute à $t = 7 \text{ ns}$ brutalement vers ce qui semble être une tension tendant vers 0 V en 4 ns . Nous supposons que la tension aux bornes de la décharge est nulle à $t = 10 \text{ ns}$, dans la limite de nos conditions expérimentales, puisqu'un bruit est superposé à notre tension suite à la soustraction de la tension inductive. La courbe de courant quant à elle, augmente de 0 A à 34 A durant l'intervalle de la chute de tension. On observe alors, quelques nanosecondes plus tard, une nouvelle décroissance vers 25 A avec ensuite, une nouvelle remontée à 36 A .

La figure 39 présente également l'émission lumineuse mesurée avec une photodiode et le système de spectroscopie d'émission : le pic d'intensité lumineuse correspond au premier pic de courant. Nous avons utilisé la courbe de la photodiode afin de synchroniser les mesures électriques et les diagnostics optiques (voir la section 3.1.4).

Après plusieurs milliers de décharges, la tension maximum moyenne, tombant aux bornes du gap est de $\overline{V_{plasma}} = 2,76 \text{ kV} \pm 0,4 \text{ kV}$ à cause d'une faible instabilité du moment de la chute de la tension. On peut estimer ce temps par la position du maximum de la tension relativement au signal envoyé pour déclencher l'alimentation. Nous notons cette incertitude sur le moment du claquage qui est $\Delta\tau_{bd} = 1,1 \text{ ns}$. Cela conduit à introduire une incertitude sur le champ réduit maximum moyen appliqué $\overline{E/N} = 660 \text{ Td} \pm 95 \text{ Td}$.

Les courbes instantanées de la puissance P_{plasma} et de l'énergie U_{plasma} déposée dans le micro-plasma NRP sont représentées sur la figure 39B. En moyenne, l'énergie par impulsion déposée dans ces conditions est $U_{plasma} = 113 \mu\text{J} \pm 12 \mu\text{J}$ (sur 1000 décharges). Les courbes affichées en pointillés indiquent la puissance P_{probe} et l'énergie U_{probe} calculées directement par les données issues des sondes tandis que les courbes solides sont obtenues en retirant la partie inductive de la tension (voir section 3.2). La puissance maximale est de 25 kW .

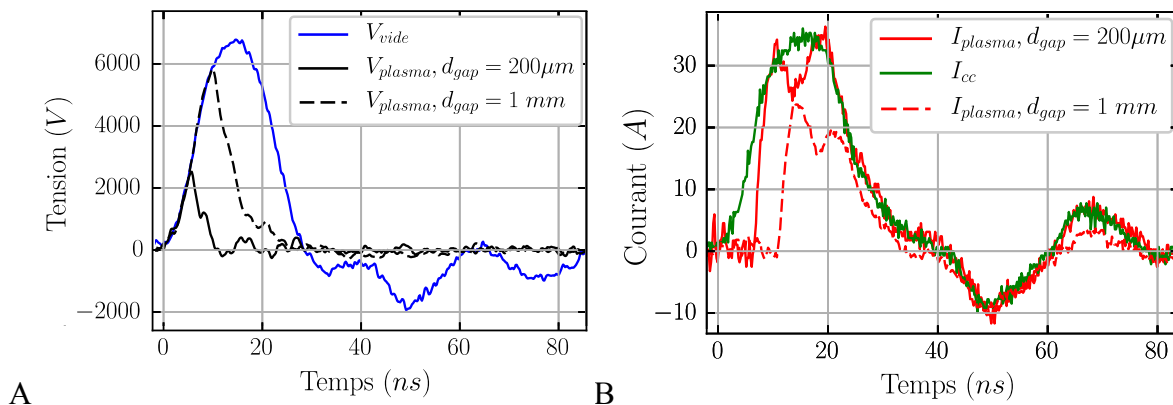


Figure 40: a) Caractéristiques instantanées de la tension (ligne noire) superposées à la courbe de tension à vide V_{vide} (ligne bleue) dans les mêmes conditions ($V_{pulse} = 6,2 \text{ kV}$ et $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$) b) Mesure du courant (ligne rouge) de la décharge ainsi que de la courbe de courant en court-circuit I_{cc} (ligne verte) pour une énergie identique fournie par le pulser.

La figure 40 montre des courbes de tension-courant identiques à celles de la figure 39. Les différentes courbes superposées sont acquises avec la même énergie délivrée par le pulser : la courbe de tension obtenue lorsqu'il n'y a pas de claquage V_{vide} (grâce à l'écartement des électrodes), la courbe de courant obtenue en court-circuit I_{cc} (lorsque les électrodes sont en contact) ainsi que les courbes courant-tension d'une décharge avec $d_{gap} = 1 \text{ mm}$.

Après le claquage, le courant s'écoulant dans la décharge tend à rejoindre la courbe en court-circuit à $t = 10 \text{ ns}$. En revanche le second pic survenant par la suite n'est pas observé avec le cas court-circuit. Cela indique un comportement non-linéaire dont la constante de temps est

évaluée à environ 8 ns . A partir de $t = 20 \text{ ns}$, la courbe de courant de la décharge et celle en court-circuit sont exactement superposées indiquant ainsi, qu'après la chute de tension, la décharge se comporte comme une résistance de très faible valeur par rapport à R_2 (voir section 3.1.1 et 3.2).

Dans le cas de $d_{gap} = 1 \text{ mm}$, plusieurs indices révèlent que la résistance de la décharge est plus importante. Premièrement, malgré le bruit sur la mesure, la tension après claquage ne tombe pas complètement à 0 V . De plus, on aperçoit que la courbe de courant ne rejoint pas la caractéristique en court-circuit ; cela indique qu'il y a un diviseur de courant significatif entre la décharge et la résistance R_2 . C'est probablement pour cette raison que le courant maximum traversant le plasma atteint des valeurs plus faibles à environ 24 A . Le comportement de chute de tension, caractéristique des étincelles, est plus tardif de $3,2 \text{ ns}$ que le micro-plasma.

La seconde bosse est toujours observée pour $d_{gap} = 1 \text{ mm}$, mais elle a maintenant une amplitude plus faible que le premier pic contrairement au cas de $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$. Cela s'explique par la position, car la pente descendante est plus tardive que celle de la courbe de courant en court-circuit. Enfin la différence de temps entre les deux pics a été conservée puisqu'elle est de $8,02 \text{ ns}$ pour le micro-plasma et de $7,7 \text{ ns}$ pour la décharge millimétrique. Pour $d_{gap} = 1 \text{ mm}$ une énergie $U_{plasma} = 401 \mu\text{J}$ et un champ réduit de $E/N = 320 \text{ Td}$ sont obtenus.

L'étude du confinement sur les caractéristiques électriques de la décharge sera abordée lors du chapitre 7. Cette section nous a permis de quantifier le champ électrique et l'énergie déposée pour deux distances inter-électrodes $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ et $d_{gap} = 1 \text{ mm}$.

4.2 Emission de la décharge

L'enjeu de cette section est de comprendre le processus de claquage pour une décharge $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ répétée à une fréquence $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$. Nous commençons donc par observer la structure de la décharge par l'intermédiaire de l'imagerie ICCD. Nous constaterons que notre système, avec une résolution temporelle de $t_{exp} = 3 \text{ ns}$, ne peut pas suivre la dynamique très rapide de $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$. C'est pourquoi nous allons compléter notre analyse avec un cas millimétrique $d_{gap} = 1 \text{ mm}$ qui présente une phase de claquage plus longue. Les observations porteront sur deux phases distinctes dont les propriétés seront étudiées en extrayant le diamètre à partir des images puis en présentant le spectre d'émission. Ces données permettront en effet d'introduire les analyses des sections suivantes.

4.2.1 Imagerie rapide intensifiée à travers le spectromètre

La figure 41 présente une série résolue temporellement de dix images intensifiées de la décharge obtenue à travers le spectromètre en réglant le réseau de diffraction à 0 nm . Nous considérons que cette série est représentative d'un événement de décharge NRP micro-plasma du fait de la stabilité de la décharge. Dans la limite de nos conditions expérimentales, nous pouvons affirmer qu'aucune lumière n'est émise à $t = 3,5 \text{ ns}$ et qu'une lumière diffuse apparaît à $t = 4 \text{ ns}$. Cette émission diffuse apparaît lorsque le champ électrique n'a pas

encore atteint son maximum, la période qui précède la montée du courant. Un canal reliant l'anode et la cathode est ainsi formé : l'évènement de claquage diffus apparaît dès les premiers instants.

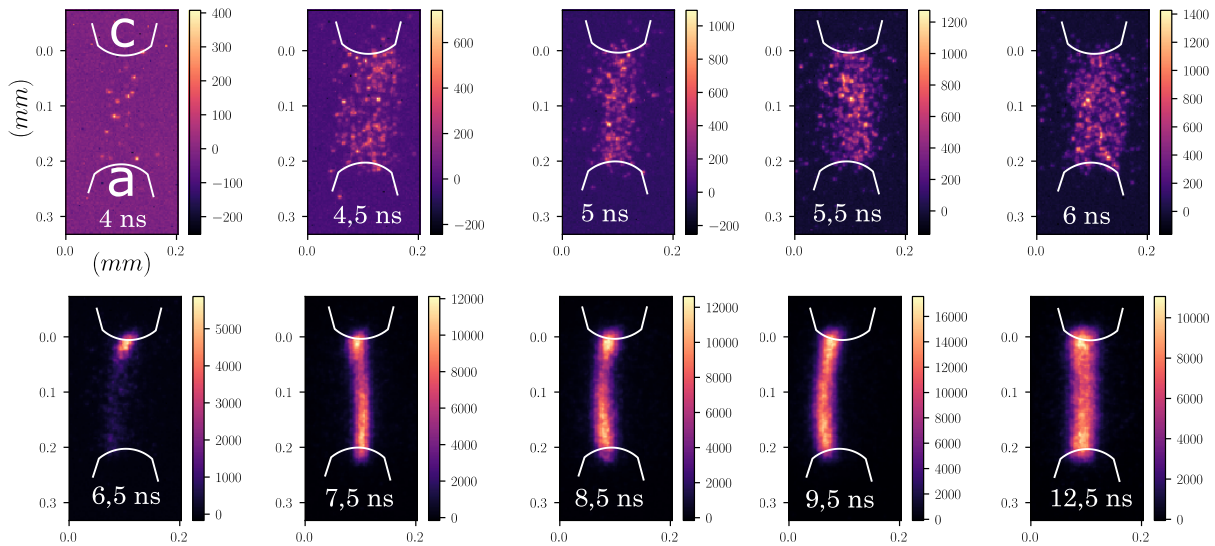


Figure 41: Imagerie instantanée de plusieurs décharges pour $4 \text{ ns} \leq t \leq 12,5 \text{ ns}$ avec les conditions expérimentales de la figure 39 ($d_{\text{gap}} = 200 \mu\text{m}$, $F_{\text{NRP}} = 8 \text{ kHz}$). Le gain est resté constant et $t_{\text{exp}} = 3 \text{ ns}$ sur tous les pas de temps. Aucune émission n'est observée à $t = 3,5 \text{ ns}$.

Cette phase est prolongée jusqu'à $t = 6 \text{ ns}$ et une lumière intense est alors observée proche de la cathode à $t = 6,5 \text{ ns}$. Au début de la montée du courant à $t = 7 \text{ ns}$, une constriction brutale du canal apparaît moins d'une nanoseconde après cette émission près de la cathode. Suite à la constriction, nous observons que l'émission lumineuse s'homogénéise dans l'espace inter-électrodes pour $t > 9,5 \text{ ns}$ et que le diamètre de la décharge augmente.

La transition entre les images sur la figure 41 de $t = 6 \text{ ns}$ à $t = 7,5 \text{ ns}$ est brusque. Nous effectuons une expérience pour $d_{\text{gap}} = 1 \text{ mm}$ pour deux raisons principales. En premier, si nous pouvons voir la propagation d'une onde, nous pouvons l'observer avec $d_{\text{gap}} = 1 \text{ mm}$ car la résolution spatiale relative à d_{gap} est plus importante. Deuxièmement, les mesures électriques de la section 4.1 avec la figure 40 semblent montrer que la chute du champ électrique est plus lente dans le cas de $d_{\text{gap}} = 1 \text{ mm}$ que pour $d_{\text{gap}} = 200 \mu\text{m}$. Cela devrait permettre de mieux distinguer les phases que nous observons lors du claquage.

Les images pour $d_{\text{gap}} = 1 \text{ mm}$ sont reportées sur la figure 42A. La dynamique entre les décharges micrométriques et millimétriques semblent identiques car les phases homogène et filamentaire sont également observées.

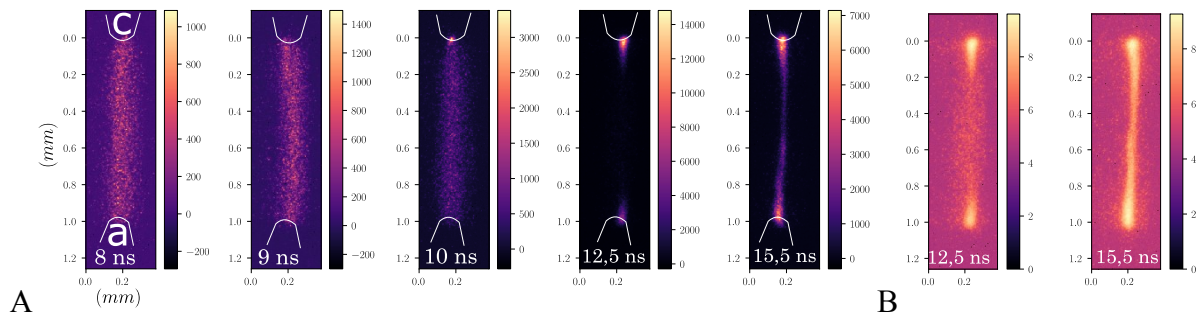


Figure 42: A) Ensemble d'images instantanées intensifiées de $t = 8 \text{ ns}$ à $t = 15,5 \text{ ns}$ dans les conditions de la figure 40 pour, $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ et $d_{gap} = 1 \text{ mm}$; B) images intensifiées pour $t = 12,5 \text{ ns}$. L'échelle de couleur est à l'échelle logarithmique.

Cependant, la résolution spatio-temporelle relative à 1 mm , nous permettant ainsi d'observer une phase supplémentaire sur la figure 42A : pour $t = 12,5 \text{ ns}$, un foyer¹⁴ à l'anode et à la cathode est apparu. La figure 42B donne un aperçu de la même image avec les contrastes en échelle logarithmique, ce qui montre que l'aspect homogène est maintenu au milieu du gap. Enfin, nous observons pour $t = 15,5 \text{ ns}$ que la phase filamentaire est présente dans tout l'espace inter-électrodes mais que l'émission « diffuse » est toujours visible.

Des aspects homogènes et filamentaires ont été observés de nombreuses fois dans la littérature sur les décharges pulsées. Nous reportons plusieurs études couplant imagerie et mesures électriques dans le tableau 12. Nous utilisons les termes « diffus » ou « homogène » pour désigner l'aspect de la première phase ainsi que « filamentaire » ou « contracté » pour l'aspect de la seconde phase.

¹⁴ « Cathode spot » ou pied de cathode

Tableau 12 : Résumé des études reportant un régime d'étincelle d'apparence diffuse (ou homogène) et/ou filamentaire.

Source	[28]¹⁵	[149]	[150]	[25]	[25]	[151]	[46]	
Gaz	<i>Air, 8 bar</i>	<i>Air</i>	<i>Ne</i>	<i>Air</i>	<i>Air</i>	<i>He</i>	<i>Ar</i>	
$\overline{E/N}$ (Td)	80 Td	80 Td	245 Td	1840 Td	7360 Td	73 Td	7770 Td	
F_{NRP} (Hz)	Single shot	40 k	10	Single – 1 kHz	Single – 1 kHz	5 k	1 k	
τ_{bd} (ns)	4	10	10	15	15	15	20	
d_{gap} (mm)	6	3,5	0,5	2	0,5	1	0,1	
Aspect décharge	<i>Streamer filament</i>	<i>Diffus</i>	<i>?</i>	<i>Diffus</i>	<i>Diffus Filament</i>	<i>Streamer</i>	<i>?</i>	
Source	[26]	[125]	[27]	[21]	[20]	[40]	200 μm	1 mm
Gaz	<i>N₂ + H₂O</i>	<i>Air</i>	<i>H₂O 500 K</i>	<i>Air 1 kK</i>	<i>Air 1,5 kK</i>	<i>Air</i>	<i>Air</i>	<i>Air</i>
$\overline{E/N}$ (Td)	133 Td	57 Td	200 Td	150 Td	300 Td	500 Td	660 Td	320 Td
F_{NRP} (Hz)	1 k	2 k	10 k	30 k	10 k	10	8 k	8 k
τ_{bd} (ns)	100	> 10 ⁵	< 5	7	7	3	5	12
d_{gap} (mm)	2	5	5	5	4	3	0,2	1
Aspect décharge	<i>Streamer filament</i>	<i>Streamer filament</i>	<i>Diffus filament</i>	<i>Diffus</i>	<i>Diffus</i>	<i>Streamer filament</i>	<i>Diffus filament</i>	<i>Diffus filament</i>

¹⁵ Unique cas de DBD dans ce tableau

La figure 43 offre une répartition des études reportées dans le tableau 12 selon les phases des décharges.

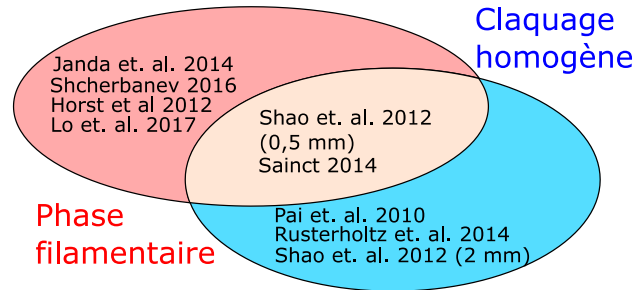


Figure 43: Bilan sur les phases de la décharge pour des étincelles référencées dans le tableau 12.

Première phase : homogène ou streamer

Ce type de claquage apparemment homogène a déjà été observé pour des étincelles NRP dans dans l'étude de Pai *et al.* [21], Rusterholtz *et al.* [20], Pai *et al.* [149] et dans de la vapeur d'eau par Sainct [27] (p86). Pour un régime avec un champ pulsé bien plus important qui devrait générer des électrons *runaway*, Shao *et al.* [25] reportent le régime diffus pour $d_{gap} = 0,5\text{ mm}$ et $d_{gap} = 2\text{ mm}$.

Concernant chacune des études du tableau 12, et sur la figure 43, la phase filamentaire n'apparaît jamais comme première phase. Ainsi, les études ne présentant pas le claquage homogène reportent la propagation d'un *streamer* avant la filamentation.

Les paramètres les plus influents ont été mis en évidence, premièrement par Palmer [13], puis par Levatter et Lin [14], et enfin repris par Pai *et al.* [21] pour la présence de ce claquage homogène lors des décharges pulsées. Il s'agit principalement de la pré-ionisation et la variation temporelle du champ électrique qui peuvent empêcher les conditions pour l'apparition d'un *streamer*. Nous reportons dans le tableau 12 les paramètres influents : la fréquence de répétition F_{NRP} , le temps entre l'application et la chute de la tension τ_{bd} , et le champ électrique E/N qui a été calculé à partir des données issues de la bibliographie. Nous étudierons la présence du claquage homogène pour notre configuration dans la section 4.3.2.

L'absence de claquage homogène dans les études de Shcherbanev [28] et de Lo *et al.* [40] pourrait être expliquée par une fréquence de répétition trop faible. Horst *et al.* [26] utilisent une fréquence également plus basse et τ_{bd} plus élevé que les autres études, mais l'absence de phase diffuse pourrait aussi être due à la recombinaison rapide de N_2^+ , l'ion majoritaire dans un plasma de N_2 .

L'ion majoritaire dans de l'air préchauffé à haute température comme dans Pai *et al.* [21] et Rusterholtz *et al.* [20] devrait être NO^+ ; sa recombinaison devrait être plus lente que N_2^+ (voir dans section 4.4.1). Enfin, dans le cas de Janda *et al.* [125], la montée de tension très lente avec $\tau_{bd} > 10^5\text{ s}$ serait la cause de l'apparition du *streamer* comme première étape.

Apparition d'une deuxième phase filamentaire

L'apparition d'une phase filamentaire est reportée pour des études avec le régime étincelle telles que dans Janda *et al.* [125], Lo *et al.* [40], Saint [27] et Horst *et al.* [26]. Shao *et al.* [25] l'observent également pour la configuration de micro-plasma mais pas pour la configuration millimétrique. L'étude de Shcherbanev [28] montre que ce comportement n'est pas exclusif à des étincelles puisqu'il obtient une contraction du canal formé par le *streamer* avec une décharge à barrière diélectrique dans des gaz portés à haute pression ($P > 2 \text{ atm}$).

Ainsi, nous recensons seulement deux cas où l'aspect homogène est poursuivi de la contraction du canal : dans de la vapeur d'eau dans l'étude de Saint [27] et dans l'air avec la configuration micrométrique de Shao *et al.* [25].

Dans les études que nous venons de citer, il apparait que la contraction du canal est associée à la réduction du diamètre de la décharge initiale (homogène ou *streamer*) et à une forte augmentation de la densité électronique à $n_e \sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Nous aborderons ces propriétés dans les sections 4.2.2, 4.4, et 5.3.1.

Nous évoquons maintenant des raisons pour lesquelles le phénomène est absent dans plusieurs études. Deux paramètres semblent prépondérants. Tout d'abord, cette contraction commence toujours par la formation d'un foyer à la cathode ou à l'anode, ce que nous observons sur les figures 41 et 42A. Cela est reporté par Shcherbanev [28] ou Shao *et al.* [25] par exemple.

L'étude de Pai *et al.* [149] montre des images d'une étincelle NRP pour $T_{gaz} = 300 \text{ K}$ et $d_{gap} = 3,5 \text{ mm}$. On y observe que des foyers lumineux se sont formés. Cela indique que le foyer est toujours présent pour mener à la contraction mais qu'il n'est pas systématiquement suivi d'une contraction.

Le processus de contraction initié par le foyer peut ne pas s'étendre dans l'ensemble du gap. Cela s'observe dans le cas de $d_{gap} = 2 \text{ mm}$ dans Shao *et al.* [25]. Les études [149] et [25] montrent que couper le courant avant que le phénomène de constriction ne se propage dans le gap pourrait être un moyen d'éviter ce régime. L'autre paramètre concerne la densité du gaz dans laquelle la décharge est générée. Shcherbanev [28] (p 107) indique dans le cas d'une DBD, que le délai pour provoquer la contraction du canal diminue lorsque la pression augmente dans de l'azote pur ou de l'air, à polarité positive ou négative. Sur la figure 43, deux études ne présentant pas la contraction du canal sont également celles dans laquelle la densité de l'air est la plus faible à cause d'un préchauffage d'au moins 1000 K .

Nous en concluons que la filamentation de la décharge serait liée au maintien du courant pendant un temps nécessaire dans la décharge. Ce temps devrait être dépendant de plusieurs paramètres dont la densité du gaz. Les impulsions longues comme dans [26,125] permettraient d'obtenir ce régime, car elles laissent plus de temps au phénomène de se produire.

Dans notre étude, l'apparition du foyer à la cathode est assez inconstante : environ 2 ns après la première émission soit à $t \approx 6 \text{ ns}$ pour $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ et $t \approx 9 \text{ ns}$ pour $d_{gap} = 1 \text{ mm}$. La

figure 44 met en évidence l'inconstance du moment d'apparition du foyer lumineux proche de la cathode alors que l'émission diffuse est extrêmement stable et toujours présente à $t = 4 \text{ ns}$ sans aucune lumière détectée pour $t = 3,5 \text{ ns}$.

Le temps effectif d'exposition est de $0,5 \text{ ns}$, donc le temps caractéristique lié à l'instabilité de l'apparition du régime diffus est $\Delta\tau_{diffus} < 0,5 \text{ ns}$ alors que celui concernant l'apparition du foyer est $\Delta\tau_{foyer} > 1 \text{ ns}$. Ce temps caractéristique est plus proche du temps correspondant à l'instabilité du claquage $\Delta\tau_{bd}$ estimé par la position du maximum de la tension : cela indique que l'émission diffuse ne correspond pas au moment de la caractéristique tension-courant descendante.

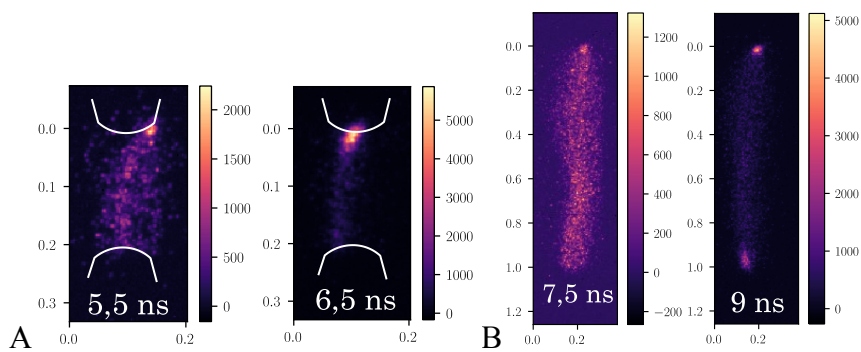


Figure 44: Imagerie instantanée de plusieurs décharges avec $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ A) pour $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$, à $t = 5,5 \text{ ns}$ et $t = 6,5 \text{ ns}$ mettant en évidence le l'instabilité temporelle de l'apparition du foyer proche de la cathode, B) pour $d_{gap} = 1 \text{ mm}$.

Notre banc expérimental avec notre temps d'exposition minimum $t_{exp} = 3 \text{ ns}$ et notre échantillonnage temporel effectué toute les $0,5 \text{ ns}$ ne nous permet pas d'observer des phénomènes dont la vitesse est supérieure à $10^6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ pour $d_{gap} = 1 \text{ mm}$.

Pour les deux décharges, la visualisation des images permet de mettre en évidence deux régimes en un intervalle de temps très court après application de l'impulsion ($t < 10 \text{ ns}$) :

- une phase diffuse, le contraste des images est distribué de manière homogène ;
- une phase filamentaire avec foyer se produisant en premier sur la cathode puis sur l'anode.

Dans la partie suivante, nous utiliserons ces images afin de quantifier le diamètre de la décharge.

4.2.2 Estimation du diamètre

Suite à l'imagerie présentée dans la section précédente, nous pouvons quantifier l'évolution du diamètre du micro-plasma noté D_p . Le plus souvent, la largeur d'un canal de décharge est exprimée avec sa FWHM. Dans la littérature, on retrouve plusieurs méthodes, la plus simple est de prendre directement l'image de la décharge. La seconde, plus longue, consiste à déterminer le profil radial de densité d'espèces. Ce profil est assimilé à une gaussienne

d'écart-type σ_g dans plusieurs études avec des décharges étincelles comparables [20,22]. Nous avons observé dans la section précédente que la décharge se mouvait faiblement ; nous ne pouvons donc pas prendre d'images accumulées car cela augmenterait artificiellement le diamètre.

Les images instantanées ont l'inconvénient d'être bruitées dans la phase diffuse. Ce problème est pallié en intégrant un profil de lumière I le long de l'axe perpendiculaire à la décharge x . Nous obtenons σ_g en recherchant les valeurs pour lesquelles $\int I dx = 0,16$ et $0,84$ (en normalisé). Un exemple de cette méthode est montré sur la figure 45A pour l'aspect homogène et 45B pour l'aspect filamentaire. Un profil gaussien d'écart-type σ_g est superposé aux données afin de montrer la correspondance.

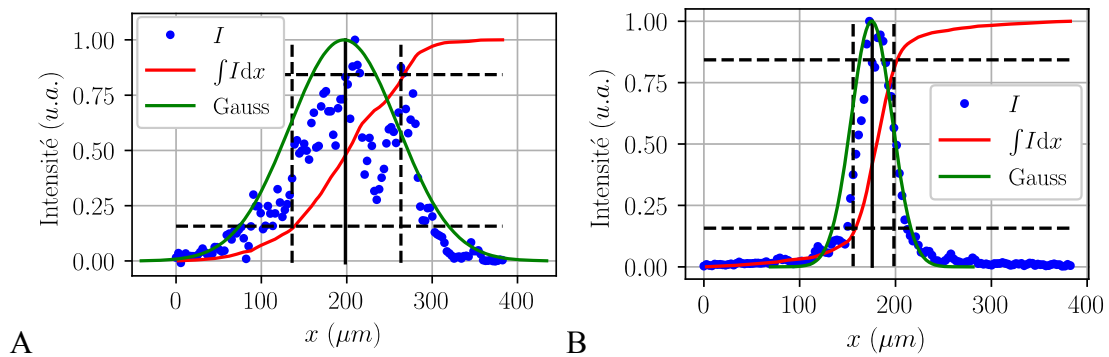


Figure 45: Exemple de mesure du diamètre pour A) l'aspect homogène et B) pour l'aspect filamentaire. Les données de la luminosité de la décharge sont représentées avec les points bleus, l'intégration du profil avec la ligne rouge et le profil gaussien correspondant en vert. σ_g est représenté par les lignes noires en pointillé.

Dans le cas d'une gaussienne, on peut ensuite obtenir la FWHM avec l'équation (39) afin de comparer avec les données de la littérature :

$$FWHM = 2\sqrt{2 \ln 2} \sigma_g \quad (39)$$

La figure 46 présente le calcul du diamètre à partir des images intensifiées mais il n'est pas calculé pour $t \in [4 \text{ ns}; 4,5 \text{ ns}]$ par manque de signal. La figure 46A montre une contraction du canal qui intervient en premier au niveau de la cathode à $t = 6,5 \text{ ns}$ (courbe rouge). Le diamètre moyen minimum de $D_p = 35 \mu\text{m}$ est obtenu à $t = 8,5 \text{ ns}$ après la constriction rapide. Dans la limite de nos conditions expérimentales, il n'y a pas de « réelle » preuve que cette filamentation est le résultat d'une onde partant de l'anode, hormis la courbe à $t = 7,5 \text{ ns}$ présentant un maximum à $x = 70 \mu\text{m}$. Par la suite le D_p augmente de façon uniforme et quasi-linéaire sur les 4 ns suivantes.

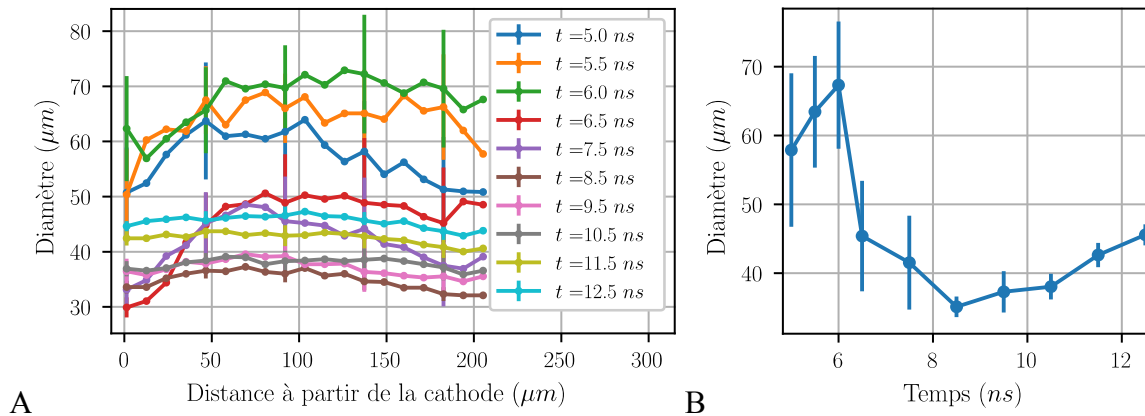


Figure 46: Diamètre de la décharge D_p spatialement résolue obtenue à partir des images, b) Diamètre moyenné sur le gap en fonction du temps pour $d_{\text{gap}} = 200 \mu\text{m}$ et $F_{\text{NRP}} = 8 \text{ kHz}$.

L'analyse de la décharge millimétrique est différente puisque la figure 47 montre que le régime filamentaire se produit très rapidement à la cathode, puis à l'anode et enfin dans le reste de l'espace inter-électrodes. On observe cependant que pour le milieu du gap, plus la position est proche de l'anode, plus la constriction a tendance à se produire tôt. En plus des niveaux de contraste sur les images, cela indique que c'est un phénomène qui se produit d'abord très tôt sur la cathode, puis sur l'anode à $x = 0,8 \text{ mm}$, à $x = 0,6 \text{ mm}$, pour finir à $x = 0,3 \text{ mm}$. Cela semble indiquer que la contraction du canal est due à une onde se propageant de l'anode vers la cathode.

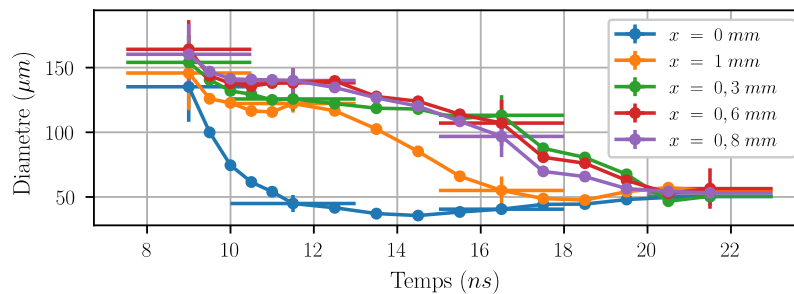


Figure 47: Diamètre de la décharge dans le cas de $d_{\text{gap}} = 1 \text{ mm}$ et $F_{\text{NRP}} = 8 \text{ kHz}$ pour cinq positions différentes.

Dans la littérature, deux phénomènes aux caractères ondulatoires (hors *streamer* et après claquage) sont susceptibles de se produire. Nous nous référons aux définitions de Sigmond [152]. L'onde de retour¹⁶, qui est un phénomène purement électrique, se matérialise sous forme d'une onde se propageant de la cathode vers l'anode. Ce phénomène peut d'ailleurs se modéliser comme la décharge d'une longue ligne brutalement mise à la terre [2] (p 369).

¹⁶ Appelée « return stroke » ou « return wave » dans la littérature anglophone

Au moment de la connexion électrique entre les deux électrodes, la charge dans le canal sera neutralisée par une onde dont la vitesse est définie par les grandeurs électriques caractéristiques du filament. La charge se neutralise de la cathode vers l'anode : c'est le sens de propagation de cette onde. Comme spécifié par Sigmond [152], la vitesse de cette onde, proche de la lumière, est difficile à observer expérimentalement.

Le *streamer* secondaire est un phénomène qui est plus facilement observable et qui a notamment été étudié par Marode [154]. Il est appelé *streamer* secondaire car il se matérialise comme une onde qui se propage après le *streamer* et, le plus souvent, dans le même sens. Il résulterait d'une instabilité locale augmentant en fonction du champ électrique, au voisinage de l'anode dans le cas d'un *streamer* positif à cause de la répartition non-uniforme de la densité électronique et donc, de la résistivité dans un canal ionisé. La nature de cette instabilité serait due à l'attachement.

Les échelles de temps, dépendantes de la chimie, sont généralement plus longues que celles considérées pour un *streamer* classique, et très variables. L'apparition de ce phénomène est donc sujet à des conditions très spécifiques [152,154,155].

Par rapport à notre étude, le temps de propagation de la phase filamentaire ne correspond pas aux temps caractéristiques du déclenchement du *streamer* secondaire. D'un autre côté, notre système ne permet pas d'observer les ondes retours. C'est pourquoi le phénomène de filamentation ne devrait pas être l'un de ces processus.

4.2.3 Spectres de la première et de la seconde phase

Le paragraphe suivant est dédié à l'étude du spectre de la lumière émise par le micro-plasma. Dans un premier temps, nous relevons des spectres dans la gamme de longueur d'onde $\lambda = [370\text{nm}; 800\text{ nm}]$, typiques de la phase diffuse à $t < 6\text{ ns}$ et de la phase contractée à $t > 10\text{ ns}$. Ils ont été intégrés sur l'ensemble de l'espace inter-électrodes afin de récupérer le maximum de signal en utilisant notre plus petite fenêtre temporelle de 3 ns . Ces spectres sont affichés sur la figure 48 à $t = 5,5\text{ ns}$ et sur la figure 49 à $t = 16,5\text{ ns}$; ils sont respectivement représentatifs de la première et deuxième phase.

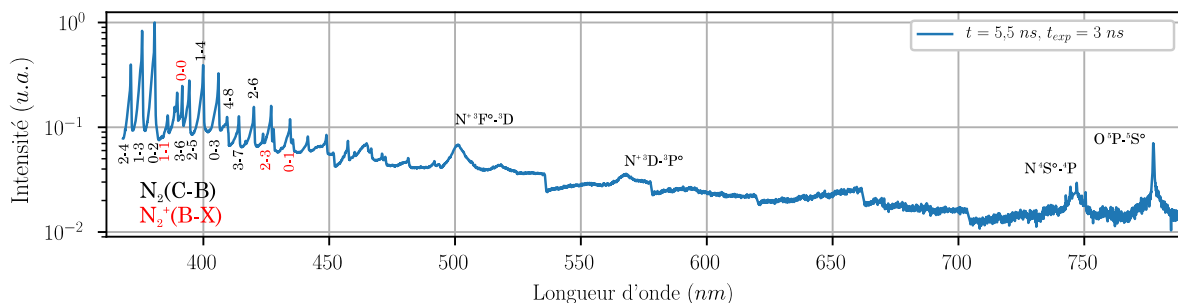


Figure 48: Spectre large bande de la décharge NRP micro-plasma avec $d_{gap} = 200\ \mu\text{m}$ et $F_{NRP} = 8\text{ kHz}$ pour $t = 5,5\text{ ns}$.

Durant la première phase, le spectre semble en accord avec ce qui est attendu de ce type de décharge dans l'air à pression atmosphérique : l'émission des bandes ro-vibrationnelles

$N_2(C \rightarrow B)$ et de $N_2^+(B \rightarrow X)$. Le premier système positif $N_2(B \rightarrow A)$ est présent, mais il n'est presque pas visible. Enfin, les raies atomiques de N et O émettent dans le proche infra-rouge respectivement à 746 nm et à 777 nm . La densité électronique n_e utilisant l'effet Stark de ces raies sera présentée dans la section 4.4.1. Le profil particulier des raies émises par ces espèces, plus accentué sur la figure 48, sera expliqué dans la section 4.4.2. Les raies sont superposées à un fond continu qui n'est pas très lumineux dans cette phase.

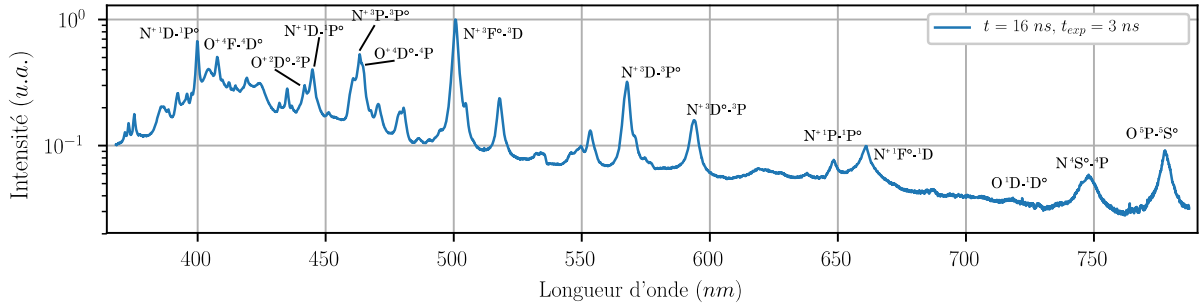


Figure 49: Spectre large bande de la décharge NRP micro-plasma avec $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ et $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ pour $t = 16 \text{ ns}$.

Dans la seconde phase sur la figure 49, l'émission des molécules a complètement disparu à $t = 16 \text{ ns}$. On y observe seulement l'émission d'espèces ioniques telles que O^+ et N^+ et d'atomes comme O , N et faiblement H . Un fond continu beaucoup plus intense que dans la première phase est superposé aux raies.

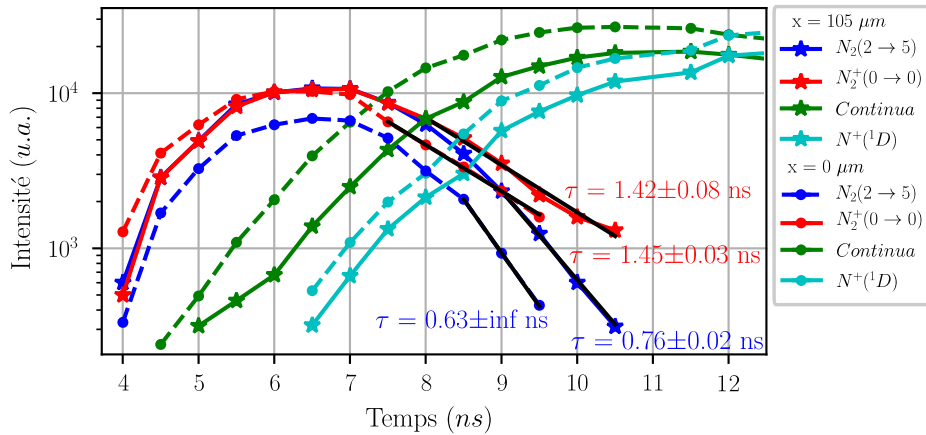


Figure 50: Évolution de l'émission durant les deux premières phases dans le cas $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ et $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$: le FNS de N_2^+ , le SPS de N_2 et l'intensité de N^+ superposée à un fond continu. L'intensité est donnée pour deux positions : les traits pleins avec étoiles pour le milieu du gap et les traits pointillés avec des points pour une position très proche de la cathode. Les temps de décroissances sont indiqués.

La figure 50 nous présente le spectre résolu en temps en utilisant des raies pour $\lambda \in [390 \text{ nm}; 402 \text{ nm}]$ comme explicité dans la section 3.3.1. En premier, l'intensité des bandes $N_2(2 \rightarrow 5)$ et $N_2^+(0 \rightarrow 0)$ augmente à cause de l'excitation et de la ionisation de N_2

suite aux impacts électroniques consécutifs à l'augmentation de la tension. Ces bandes atteignent un maximum à $t = 6,5 \text{ ns}$ c'est-à-dire à la fin de la première phase. L'émission de ces bandes est synchronisée au milieu ($x = 105 \mu\text{m}$) et à la cathode ($x = 0 \mu\text{m}$). Néanmoins, l'émission de $N_2^+(B \rightarrow X)$ est plus intense que celle de $N_2(C \rightarrow B)$ au voisinage de la cathode. Il semble que des réactions avec des électrons plus énergétiques aux abords de la cathode optimisent l'ionisation par rapport à l'excitation électronique. Cet aspect de la décharge sera mis en évidence dans la section 4.3.1 sur la mesure du champ électrique.

A $t \approx 5 \text{ ns}$, nous voyons l'apparition de l'émission continue qui n'est pas synchronisée sur tout le gap car elle survient une nanoseconde plus tard, au centre du gap. Enfin dans un troisième temps, la décroissance du SPS et du FNS est accompagnée par l'émission de raies d'ions atomiques N^+ et O^+ . Malgré la désynchronisation de ces phénomènes dans les différents points du micro-plasma, les taux de décroissance restent similaires. Les réactions chimiques expliquant ces taux de décroissance ont été détaillées dans la section 3.3.5 traitant de la mesure du champ électrique avec l'émission de $N_2^+(B \rightarrow X)$ et $N_2(C \rightarrow B)$. Lors de la chute du champ électrique, les réactions prédominantes sont les réactions de désexcitation collisionnelle.

Dans le cas d'une étincelle NRP, Rusterholtz *et al.* [20] utilisent la décroissance de l'émission de $N_2(C \rightarrow B)$ en prenant en compte les mêmes réactions que nous, afin de déterminer le coefficient de désexcitation par collisions. Nous avons présenté dans le tableau 3.3.5 les valeurs typiques de ces coefficients qui sont plus importants pour $N_2^+(B, v = 0)$ que pour $N_2(C, v = 2)$ alors que la décroissance de l'intensité de $N_2^+(B \rightarrow X)$ est plus lente que celle de $N_2(C \rightarrow B)$. Cela indique que la densité d'au moins une de ces espèces n'est pas dominée par la désexcitation collisionnelle.

Ce phénomène est bien connu, et observé lorsque les coefficients de désexcitation de $N_2^+(B, v = 0)$ sont mesurés en utilisant l'émission de la décharge par une excitation pulsée [145] ou par fluorescence induite par laser [147]. Les auteurs de [147] expliquent que la cascade énergétique des niveaux supérieurs de $N_2^+(B, v = 0)$ tendent à réalimenter cet état ; cela se manifeste par une décroissance plus lente de l'intensité de la bande vibrationnelle de $N_2^+(B \rightarrow X)$. Dans notre cas, nous observons également que la phase filamentaire est accompagnée d'une production d'ions N^+ . Nous ne connaissons pas le mécanisme responsable de sa création, mais il est possible qu'il puisse également repeupler l'état $N_2^+(B, v = 0)$.

En ce qui concerne le décalage entre les courbes proches de la cathode ($x = 0 \text{ mm}$) et dans le milieu du gap ($x = 105 \mu\text{m}$), nous pourrions l'expliquer par un écrantage du champ électrique qui n'est pas uniforme dans l'espace inter-électrodes. Ce dernier point sera abordé dans la section 4.4.2.

Les diagnostics optiques (sections 4.2.1 et 4.2.2) indiquent alors le scénario suivant :

- émission homogène et synchronisée sur tout l'espace inter-électrodes avec un champ plus élevé à la cathode : le spectre indique qu'il s'agit de l'excitation et l'ionisation de l'azote ;
- apparition d'un point lumineux sur la cathode à $t = 6 \text{ ns}$ correspondant à un *continuum* ;
- décroissance du SPS et FNS avec émission de N^+ désynchronisée : premièrement à la cathode puis dans le reste du gap.

Les spectres d'émission des deux phases sont complètement différents : ils ne permettent pas d'utiliser les mêmes diagnostics. Nous allons donc nous intéresser au champ électrique réduit E/N dans la première phase et à la densité électronique n_e dans la phase filamentaire. A la fin de la phase homogène, les mesures de E/N ne devraient plus être valables à cause de la réalimentation de l'état $N_2^+(B, v = 0)$. Dans les sections suivantes, nous allons nous intéresser à ces étapes dans l'ordre chronologique. Nous commencerons avec la première émission homogène de la décharge.

4.3 Les premières nanosecondes : l'émission homogène

Dans cette section, nous nous concentrerons sur la première phase de la décharge. Le spectre de l'émission diffuse est principalement composé des spectres moléculaires de $N_2(C \rightarrow B)$ et $N_2^+(B \rightarrow X)$. Ces espèces permettent d'avoir une estimation du champ électrique réduit.

Dans un premier temps nous nous intéresserons aux mesures de champs électriques. Nous aborderons dans une seconde partie les conditions d'existence d'un claquage homogène dans nos conditions.

4.3.1 Mesure du champ électrique

La phase diffuse étant caractérisée par l'émission du SPS de N_2 et du FNS de N_2^+ , le champ électrique peut être déterminé en utilisant la méthode décrite dans la partie 3.3.5. Ainsi la résolution spatiale nous permet de déterminer le champ électrique le long de l'axe de la décharge dans les premiers instants (équation (36) p 77).

Les profils spatiaux-temporels du champ électrique sont affichés sur la figure 51A pour $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$. Il y a quelques points dans les parois (en cyan figure 51A) à cause d'une faible diffusion de la lumière.

Le champ semble constant le long de la décharge excepté dans la zone cathodique où il atteint des valeurs de l'ordre de 1200 Td . La taille de la zone cathodique est notée $x_c \approx 40 - 50 \mu\text{m}$ (en rose figure 51A) et le champ électrique semble décroître brutalement dès le second pas de temps, de 500 Td en $0,5 \text{ ns}$, indiquant une chute de la tension aux bornes de la chute cathodique.

Nous avons affiché le champ électrique Laplacien E_L au centre de la décharge en le calculant à partir de la formule 40 [156] pour $V_{plasma} = 2,5 \text{ kV}$, $a = [(d_{gap}/2)/(d_{gap}/2 + R_c)]^{0.5}$, $\eta_0 = [(d_{gap}/2)(d_{gap}/2 + R_c)]^{0.5}$ et R_c le rayon de courbure en m .

$$E_L = -\frac{V_{plasma}}{\ln[(1 + \eta_0)/(1 - \eta_0)]} \frac{a}{(a^2 - x^2)} \quad (40)$$

En ce qui concerne le reste du gap le champ réduit reste constant à chaque pas de temps et ne semble pas suivre le champs Laplacien E_L ; cela indique que la charge d'espace est suffisamment importante pour redistribuer le champ de façon constante hors de la chute cathodique.

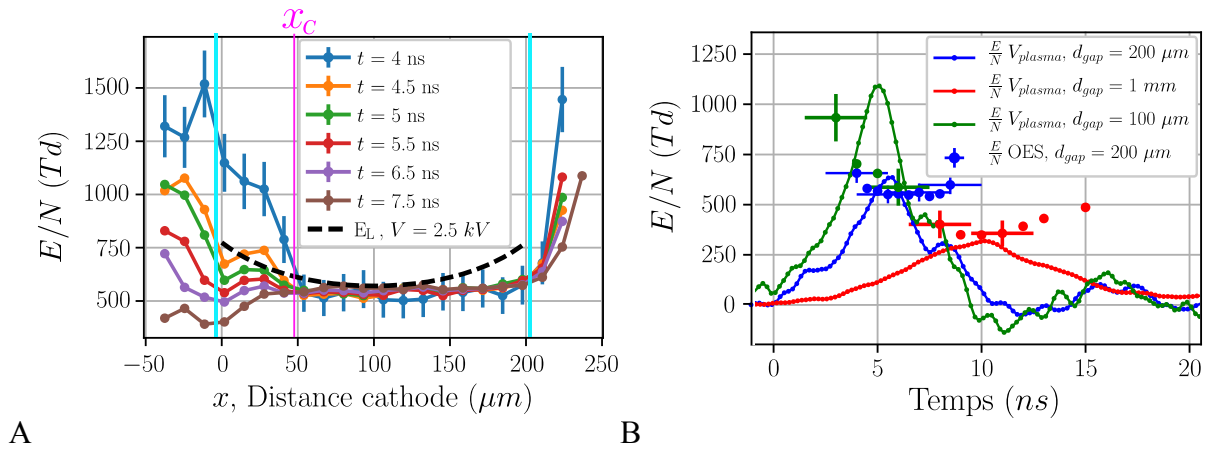


Figure 51: A) Évolution du champ électrique le long du gap pour $d_{gap} = 200 \mu m$ et 6 pas de temps différents ; le champ électrique Laplacien E_L correspondant à l'application d'une tension de 2,5 kV est représenté en pointillé noir. Les lignes cyans symbolisent les parois. B) Champ électrique moyenné spatialement obtenue par OES (symboles) et par mesures électriques (lignes) en fonction du temps pour trois distances inter-électrodes différentes.

Afin de comparer les méthodes de mesure par les sondes électriques passives et par la spectroscopie d'émission, la figure 51B utilise les courbes moyennées de la figure 51A ainsi que la mesure du champ électrique moyen en employant la formule (41) et les mesures de tension dans le cas de trois distances d_{gap} différentes. La densité N , qui est celle du gaz préchauffé par l'impulsion précédente, est déterminée par la première valeur de la température du gaz $T_{gaz} = 370 K$ mesurable. Les températures utilisées proviennent de la section 5.2.1.

$$\frac{E}{N} = \frac{V_{plasma}}{d_{gap}N} ; N = \frac{P_{atm}}{k_B T_{gas}} \quad (41)$$

Le champ local est toujours le plus important à la cathode (figure 51A) et le premier instant, alors le champ moyen est toujours le plus important au premier instant, pour ensuite subir une baisse. Pour $d_{gap} = 200 \mu m$, ce premier point est toujours supérieur au champ calculé par les mesures électriques car le temps d'exposition est de 3 ns et il n'y a pas d'émission pour $t < 4 ns$ sur la figure 51A. Le temps effectif est donc $t_{exp} = 0,5 ns$ et la mesure « réelle » est positionnée à l'extrême droite de la barre d'erreur pour le premier point de mesure. Ces constats sont aussi valables pour $d_{gap} = 1 mm$ et $d_{gap} = 100 \mu m$.

Nous observons également que la méthode spectroscopique ne permet pas de visualiser la chute du champ électrique moyen déduit de l'équation (41). Cela doit être lié à notre discussion sur les coefficients de désexcitation par collisions de la section précédente (voir figure 50).

La mesure du champ réduit est fiable au début de l'émission mais dérive ensuite de la mesure de E/N à cause du repeuplement de $N_2^+(B)$ qui n'est pas pris en compte. Nous avons abordé succinctement la chute cathodique et nous allons approfondir cet aspect dans le chapitre 7 lorsque nous discuterons du confinement des décharges NRP.

4.3.2 Les conditions nécessaires pour la formation d'une décharge homogène

L'utilisation d'une décharge haute pression initiée de manière homogène par des avalanches de Townsend a été décrite comme une méthode intéressante pour créer un milieu d'excitation d'un laser gaz [157]. S'en est suivi, la mise au point de modèles permettant de définir les conditions et le domaine d'existence de tels régimes [13,14].

La méthode de Levatter [14] a été appliquée de façon satisfaisante par Pai *et al.* [21] sur une décharge NRP étincelle. Nous allons appliquer ce modèle afin de comprendre si ce claquage homogène est possible dans notre cas, et au travers de cette analyse, nous trouverons une estimation des grandeurs nous informant sur l'état du gaz entre les électrodes juste avant une impulsion. Le modèle est construit sur une description très concrète du mécanisme d'avalanche électronique dont le schéma est montré sur la figure 52. Dans cette partie, nous allons réfléchir uniquement sur la décharge $d_{gap} = 200 \mu m$.

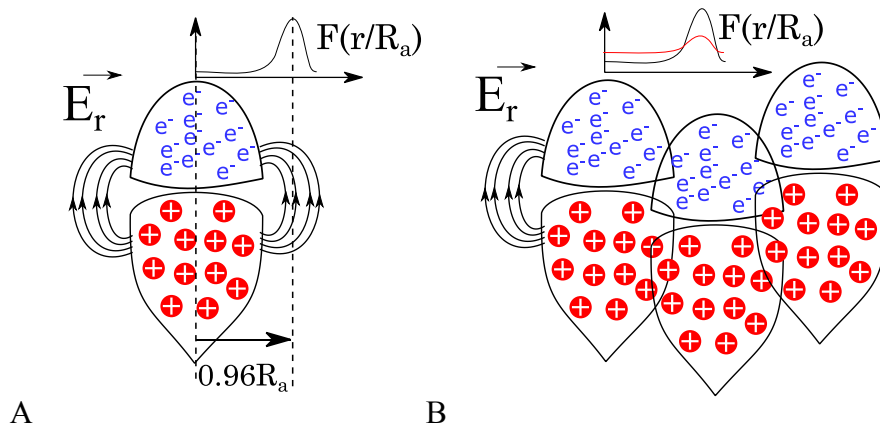


Figure 52: Principe du modèle du claquage homogène : A) forme du champ pour une seule avalanche et B) pour plusieurs avalanches.

Le modèle considère une avalanche démarrée par un seul électron dont la tête est composée d'un nuage d'électrons possédant un profil de densité gaussien. Le rayon R_a de cette avalanche peut être exprimé en fonction de la longueur de l'avalanche ξ , le ratio entre le coefficient de diffusion et de mobilité des électrons D_T/μ_e et le champ électrique externe E_L par l'équation (42).

$$R_a = \sqrt{\left(\frac{2\xi}{E_L}\right) \left(\frac{D_T}{\mu_e}\right)} \quad (42)$$

Le profil du champ de charge d'espace E_r le long de la direction radiale r peut être exprimé en fonction du nombre d'électrons N_e contenue dans la tête de l'avalanche et d'une fonction de $F(r/R_a)$ et de la permittivité du vide ϵ_0 (voir équation (43)).

$$E_r = \frac{eN_e}{4\pi\epsilon_0 R_a^2} F\left(r/R_a\right) \quad (43)$$

Cette fonction $F(r/R_a)$ atteint un maximum $F_{max} = 0,428$ à $r = 0,955 \times R_a$ et N_e peut tout simplement être calculé par la relation (44) via une simplification disponible dans [21] avec ξ et le coefficient de ionization maximum α_{max} :

$$N_e = \exp(\alpha_{max}\xi) \quad (44)$$

Les conditions sont résumées, à partir des équations (42) à (44), par l'équation (45) :

$$N_e = \exp(\alpha_{max}\xi) = \frac{8\pi\epsilon_0\xi_{crit}}{eF_{max}} \left(\frac{D_T}{\mu_e}\right) = \exp(16) \quad (45)$$

Pour qu'une décharge évolue homogènement, il faut empêcher le développement d'un *streamer* en diminuant le maximum du champ de charge d'espace E_{r-max} positionné à $r = 0,955 \times R_a$. Le critère pour la formation du *streamer* est atteint lorsque $E_{r-max} = E_L$. E_{r-max} peut diminuer lorsque plusieurs avalanches sont superposées comme indiqué sur la figure 52B. Pour cela il faut qu'un nombre plus important d'électrons germes provoque un nombre plus important d'avalanches électroniques. Un claquage homogène sans *streamer* pourrait donc être obtenu si $E_{r-max} < E_L$ grâce à la superposition des avalanches.

Pour des champs électriques bien plus importants que le champ de claquage, Montijn et Ebert [10] ont montré que ce critère est atteint lorsqu'il y a $N_{e-crit} \approx \exp(16)$ électrons dans la tête de l'avalanche. Nous allons donc commencer par faire une hypothèse sur le champ électrique réduit $E/N_{max} = 750 Td$ qui représente le maximum du champ Laplacien, comme vu sur la figure 51A soit $E_L = 149 kV/cm$ à $T_{gas} = 370 K$. Cela nous amène à estimer $\alpha_{max}/N = 10^{16} cm^{-3}$ [7] donc $\alpha_{max} \approx 1980 cm^{-1}$. Nous pouvons estimer D_T/μ_e par extrapolation avec les articles de revue [7] et [158].

Nous pouvons en déduire que la longueur critique de l'avalanche est $\xi_{crit} = 0,00806 cm$ et $R_a = r_{crit} = 0,0012 cm$. La première condition pour obtenir un claquage homogène consiste en une condition de pré-ionisation et il faut une densité d'électrons germes critique $n_{e-crit} > 1/r_{crit}^3$ pour que les avalanches se superposent. Cela correspond à $n_{e-crit} \approx 4,8 \times 10^8 cm^{-3}$.

Un dernier critère concernant la pré-ionisation doit être validé à propos de la taille de la zone cathodique. Cette zone sera déficitaire en électrons lorsque le champ électrique commencera à augmenter. Ce point fera l'objet de la prochaine section.

4.3.2.1 Critère de formation d'un streamer en zone cathodique

Premièrement, nous allons considérer que les charges rémanentes dans le gap sont des électrons. La deuxième condition de claquage homogène concerne la zone cathodique, au moment de l'application de l'impulsion, à cause du champ électrique, les électrons vont être balayés de la zone proche de la cathode. Nous notons l'épaisseur de cette zone cathodique x_0 . Une avalanche dans cette zone peut provoquer la génération d'un *streamer* si, par balayage, n_e retombe en dessous de n_{e-crit} . Il faut alors $x_0 < r_{crit}$ au moment du claquage pour empêcher ce processus.

Si l'on considère une montée de tension linéaire, il est possible d'estimer x_0 en fonction de la mobilité réduite $N\mu_e$, du champ de claquage $(E/N)_0$ et du moment t_0 où $E/N = (E/N)_0$ avec l'équation (46).

$$x_0 = \frac{1}{2} N\mu_e \left(\frac{E}{N} \right)_0 t_0 \quad (46)$$

Pour estimer $N\mu_e$, nous avons utilisé BOLSIG+ et cette méthode entre en accord avec les expériences de Lisovskiy *et al.* [8]. Avec $E/N = 750 Td$, $N\mu_e = 0,72 \times 10^{22} V^{-1} cm^{-1} s^{-1}$. Avec $t_0 \approx 1 ns$ et $(E/N)_0 \approx 100 Td$ (figure 51B), nous obtenons $x_0 = 0,0036 cm \approx 3 \times r_{crit}$. Si les charges rémanentes sont des électrons, elles pourraient déclencher la génération d'un *streamer*. Néanmoins, dans l'air à température ambiante, nous attendons que la plupart des charges rémanentes, pour une durée inter-impulsions de l'ordre de $100 \mu s$, soient des ions négatifs (voir par exemple Tholin [19] (p 50)).

4.3.2.2 Hypothèse de pré-ionisation : les charges rémanentes sont des ions négatifs

Dans ce paragraphe, nous proposons que les conditions pour un claquage homogène sont satisfaites dans notre cas du micro-plasma NRP par des électrons libérés d'ions négatifs qui ont piégés ces électrons dans la phase de recombinaison. En 2005, Pancheshnyi met en cause le rôle des ions négatifs dans la formation des *streamers* en arborescence de plusieurs canaux dit « branching » [159]. Il indique que l'application d'un champ électrique modéré de l'ordre de $100 Td$ peut provoquer le détachement rapide, dans l'échelle de la *ns*, de l'électron des ions O_2^- dans un mélange oxygène-azote. Le mécanisme consiste à donner de l'énergie cinétique à ces ions qui va se transformer en énergie vibrationnelle en cas d'impact avec une autre espèce lourde. La molécule est susceptible de relâcher son électron si l'énergie vibrationnelle excède l'énergie d'affinité entre la molécule et l'électron [160,161].

Plus tard, Popov remet en cause ce mécanisme dans les mélanges oxygène-azote mais aussi dans l'air ambiant [153]. Il indique que les ions négatifs sont susceptibles d'être en réalité des ions plus complexes avec une énergie d'affinité plus importante que O_2^- ($0,44 eV$) comme par

exemple NO_3^- (3,7 eV). De manière générale, plus la phase de recombinaison est longue, plus les ions négatifs avec les énergies d'affinité importantes vont survivre. Le temps caractéristique du transfert des électrons vers ce type d'ions, dont l'électron se détachera difficilement, sera défini par les taux de réactions du modèle de Popov [153].

Dans un modèle numérique, proche de nos conditions, Popov [24] nous montre que les ions négatifs O^- et O_2^- , qui devraient constituer temporellement les premiers ions négatifs dans la phase de recombinaison [153], seraient rapidement détruits par des espèces qui devraient avoir une forte densité dans nos conditions, $O(^3P)$ et NO . Néanmoins, nous pouvons attendre d'autres ions négatifs. De plus, même si les simulations prédisent que les électrons sont presque tous recombinés après $125 \mu s$ dans de l'air à $T_{gas} \approx 300 K$, les ions négatifs peuvent rester nombreux ($n_- > 10^9 cm^{-3}$ dans le modèle de Tholin [19] (p 50)). La liste des ions négatifs avec leurs énergies d'affinité de l'électron est fournie sur le tableau 13.

Tableau 13 : Liste des ions négatifs avec leur énergie d'affinité et leur mobilité.

ion-	O_2^-	O_3^-	CO_3^-	NO_3^-
Énergie d'affinité des électrons (eV) [162]	0,44	2,103	2,82	3,7
Mobilité réduite¹⁷ ($cm^2 \cdot (Vs)^{-1}$)	2,5 à 3	2,5 à 3,2	2,5 à 3	2,5 à 3
plage E/N (Td)	5 – 200	5 – 200	2 – 70 avec O_2	2 – 200
Énergie d'affinité ajoutée par des clusters $(H_2O)_n$ [162]				
$(H_2O)_1$ (eV)	+0,85		+0,61	+0,63
$(H_2O)_2$ (eV)	+0,75		+0,59	+0,62
$(H_2O)_3$ (eV)	+0,67		+0,57	+0,60

Dans l'air ambiant, les ions négatifs peuvent s'agréger avec des molécules dipolaires comme l'eau et le dioxyde de carbone. Cela rajoute une énergie d'affinité supplémentaire nécessaire à franchir pour se débarrasser du cluster avant de se séparer de l'électron. L'énergie translationnelle d'un ion ε_i peut être calculée par l'équation (47) extraite de la théorie de Wannier [163] avec la vitesse de déplacement des ions $v_i = \mu_i E$, la masse de l'ion m_i et la masse d'une molécule de gaz m_{gaz} qui est la cible de la collision avec l'ion.

$$\varepsilon_i = \frac{3}{2} \times k_B \times T_{gas} + \frac{1}{2} (m_i + m_{gaz}) v_i^2 \quad (47)$$

Il est donc possible de mettre en relation ε_i en fonction du champ électrique et de l'énergie nécessaire pour libérer l'électron. La figure 53 indique le champ nécessaire afin d'obtenir

¹⁷ VIEHLAND database, https://fr.lxcat.net/data/set_specA.php

l'énergie suffisante pour séparer l'électron de l'ion en une seule collision à l'intersection des deux courbes. La plupart des ions que nous ciblons peuvent donc être détachés aux alentours de 500 Td , dans l'hypothèse où toute l'énergie cinétique de la collision est transférée en énergie vibrationnelle de l'ion négatif. Dans notre cas, le champ électrique réduit moyen est plus élevé (figure 51B).

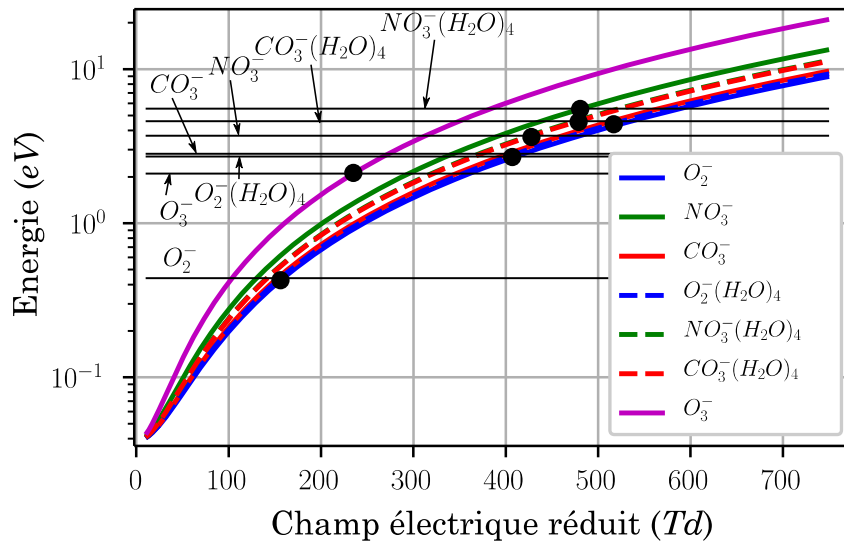


Figure 53: Énergie d'affinité des ions selon tableau 13 et calcul de l'énergie cinétique d'un ion en fonction du champ électrique réduit.

La fréquence de collision ion-neutre v_{i-m} peut être estimée avec la masse réduite $M' = m_i \times m_{gaz} \times (m_i + m_{gaz})^{-1}$ par $v_{i-m} = e \times (\mu_i M')^{-1}$ [2] (p 24) qui serait approximativement $v_{i-m} = 22 \text{ ns}^{-1}$ pour O_2^- . Cela signifie que les électrons peuvent être détachés de ces ions dans la phase de montée de la tension pendant les cinq premières nanosecondes.

Dans l'hypothèse de 100 % de détachement, nous aurions donc une densité d'électrons libres qui serait $n_e = n_- > 10^9 \text{ cm}^{-3}$ [19]. Avec $n_{e-crit} = 4,8 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$, nous obtiendrions donc la condition pour le claquage homogène sur n_{e-crit} . Le critère sur la taille de zone cathodique est validé (équation (46)), puisqu'il faut maintenant prendre en compte la mobilité ionique qui est très inférieure à celle des électrons (facteur $\times 500$).

4.4 Seconde phase et densité des électrons

Dans cette section, nous nous intéresserons à la phase filamentaire. Les lignes émises dans le spectre d'émission (présenté section 4.2.3) ne permettent pas de mesurer le champ électrique comme dans la section 4.3.1.

Dans la section 4.4.1, nous utiliserons les lignes atomiques et les caractéristiques électriques afin de déterminer n_e dans la phase filamentaire. Nous observerons que sur la transition des deux phases, des spectres caractéristiques de deux densités différentes se superposent. C'est pourquoi dans la section 4.4.2 nous utiliserons un gap millimétrique afin d'augmenter la résolution spatiale relative à d_{gap} .

4.4.1 Mesure de la densité électronique

Dans cette partie, nous nous intéressons à la densité électronique n_e entre la première et la seconde phase. Pour cela, nous avons utilisé les deux méthodes décrites dans la section 3.3.2. La figure 54 présente les mesures de n_e pendant les 40 premières nanosecondes et dans le milieu de l'espace inter-électrodes pour $d_{gap} = 200 \mu m$. Cela est utile afin de comparer pendant un intervalle de temps les mesures utilisant les relevés électriques et l'effet Stark des raies de O et N . Par la suite, il est possible de comparer l'effet Stark de la ligne H_α avec celui des raies de O et N à $t = 40 ns$.

Pour les mesures électriques, les principales hypothèses concernent le diamètre de la décharge provenant de la section 4.2.2 ($\sigma \propto D_p^2$) et la température électronique T_e ($\sigma \propto T_e^{3/2}$ selon n_e). Nous avons estimé $T_e = 116 \pm 19 kK$ lorsque $E/N = 600 Td$ à $t = 7 ns$. Par la suite, nous avons mesuré $T_e = 72 kK$ lorsque $t = 15 ns$ (section 5.2.2). Nous avons déterminé dans la section 3.3.2.1 que la mesure de n_e n'est pas sensible à T_e dans la gamme $T_e \in [6 eV; 12 eV]$. Globalement, les méthodes employant les caractéristiques électriques et la spectroscopie d'émission tombent en accord sur la densité maximale du plasma de $1,5 \times 10^{19} cm^{-3}$ à $t = 12 ns$. Selon la section 5.2.1, la densité initiale du gaz dans ce cas est $N \approx 1,98 \times 10^{19} cm^{-3}$, ce qui implique que le régime NRP micro-plasma atteint un taux d'ionisation $\alpha \approx 0,75$.

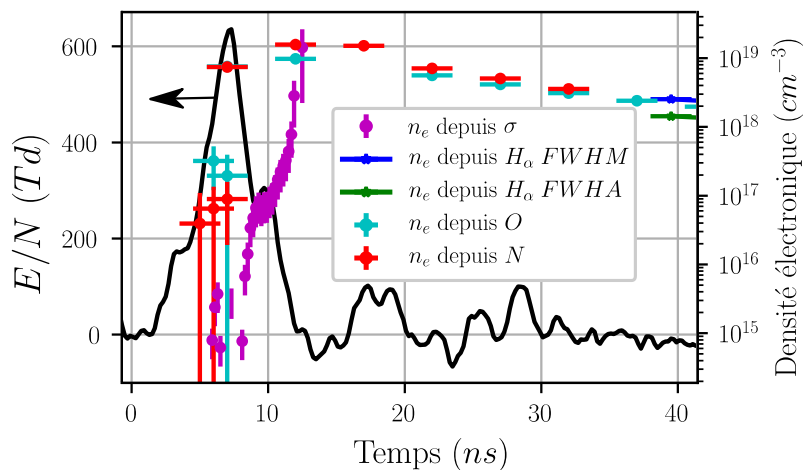


Figure 54: Mesure de n_e par deux méthodes pour la configuration $d_{gap} = 200 \mu m$ et $F_{NRP} = 8 kHz$: en utilisant les caractéristiques électriques avec pour hypothèse $T_e = 116 \pm 19 kK$ et $D_p = 67 \pm 18 \mu m$ puis l'effet Stark des triplées de O et N puis de H_α dans le milieu du gap.

En revanche, les deux mesures ne sont pas en accord au même moment car la méthode utilisant les mesures électriques permet d'accéder à des valeurs de $n_e \in [10^{15} cm^{-3}; 10^{18} cm^{-3}]$ tandis que la méthode spectroscopique est limitée à $n_e > 10^{17} cm^{-3}$ à cause de l'élargissement instrumental (pour N et O seulement). De plus, nous observons que pour $t = 7 ns$, le spectre est représentatif d'une densité électronique élevée ($10^{19} cm^{-3}$) et d'une densité électronique très faible ($< 10^{17} cm^{-3}$). En réalité, à cause de notre temps

d'exposition $t_{exp} = 3 \text{ ns}$, la résolution temporelle n'est pas assez importante pour décrire la variation brutale à laquelle n_e est assujettie. A cela doit s'ajouter l'incertitude sur la filamentation qui est d'environ 1 ns . Cela ne nous permet pas de mettre en accord les mesures électriques et spectroscopiques sur la gamme $n_e \in [10^{17} \text{ cm}^{-3}; 10^{18} \text{ cm}^{-3}]$. Cet aspect avec une double répartition de n_e a déjà été abordé par Zhu *et al.* [46] puis par Saint [27] (p 144). Nous allons préciser cette analyse dans la section 4.4.2.

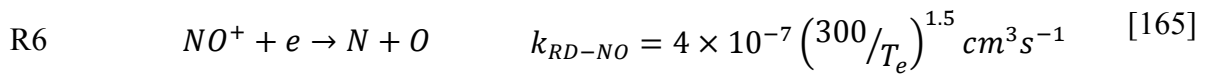
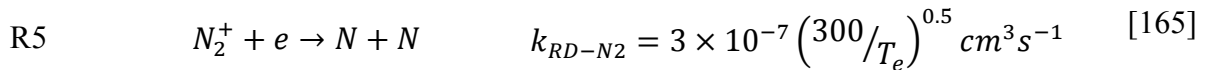
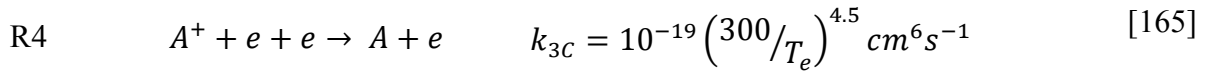
En ce qui concerne l'accord entre l'effet Stark des raies de O et N avec H_α , nous observons que les mesures tombent en accord dans un intervalle d'environ 35 % avec la méthode utilisant la FWHM. Nous avons présenté dans la section 3.3.2 que cette méthode était préférable du fait d'une sensibilité moindre à la variation de la température électronique.

Nous reprenons l'analyse comparative à la littérature en comparant cette fois les densités électroniques. En ce qui concerne les régimes étincelle avec l'apparence diffuse, n_e a été mesuré pour des décharges NRP proches de nos conditions en champ réduit et en fréquence de répétition mais dans de l'air préchauffé. Dans l'étude de Pai *et al.* [21], la conductivité du plasma est utilisée et la valeur maximale de $n_e = 3 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ est mesurée pour $d_{gap} = 5 \text{ mm}$, $T_{gaz} = 1000 \text{ K}$, $F_{NRP} = 30 \text{ kHz}$ avec une estimation de $D_p = 700 \mu\text{m}$ avec la FWHM. Plus tard, dans une étude du même groupe [20], des résultats similaires avec $n_e = 2.1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ sont obtenues en utilisant l'effet Stark de la ligne H_α . Les conditions des mesures étaient $d_{gap} = 4 \text{ mm}$, $T_{gaz} = 1500 \text{ K}$, $F_{NRP} = 10 \text{ kHz}$ et $D_p = 450 \mu\text{m}$. Le fort courant de conduction répertorié dans ces études $\sim 30 \text{ A}$, est typique du régime étincelle mais le rayon important montre que la phase filamentaire de notre cas n'est pas atteinte. Le régime étincelle diffus observé par Pai *et al.* [21] puis par Rusterholtz *et al.* [20] est donc associé à $n_e < 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ce qui correspond au début de l'impulsion dans notre cas ($D_p = 70 \mu\text{m}$). Nous préciserons cette conclusion en étudiant le cas $d_{gap} = 1 \text{ mm}$ dans la section suivante.

Des études reportent des densités d'électrons très importantes avec des décroissances lentes à l'image de la figure 54 dans des gaz moléculaires. Contrairement à notre cas et aux études reportant le régime homogène [20,21], il s'agit d'impulsions longues ($> 100 \text{ ns}$). C'est le cas de Horst *et al.* [26] avec $n_e \approx 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ et une constante de temps de décroissance de $\tau = 67 \text{ ns}$. Lo *et al.* [40] ont également mesuré $n_e = 9,2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ pour une décharge avec $d_{gap} = 3 \text{ mm}$. Ces régimes ont été répertoriés avec des décharges à barrières diélectriques par Stepanyan *et al.* [29] et Shcherbanev [28]. Ce dernier (p 105), montre que les caractéristiques de ce régime sont une forte émission du fond continu et une densité électronique très importante $n_e \sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ pour $P = 6 \text{ atm}$. Le régime filamentaire semble donc associé à des densités électroniques fortes, même dans le cas des DBD.

Nous pouvons réaliser une première analyse concernant la décroissance de n_e sur les premières dizaines de nanosecondes en ciblant les espèces susceptibles de jouer un rôle important. Les ions positifs pouvant être mis en cause peuvent tout simplement constituer les espèces présentes dans le spectre soit O^+ , N^+ et N_2^+ . Il semblerait également, que NO^+ puisse jouer un rôle important [15]. De plus, les réactions impliquant les ions moléculaires seraient à

l'origine de la production des $N(3p^4S^o)$ et $O(3p^5P)$ dont les lignes atomiques sont visibles dans le spectre. Il est communément admis que, pour un ion moléculaire, la recombinaison dissociative est le processus le plus rapide, tandis que pour un ion atomique, c'est la recombinaison à trois corps qui est la plus rapide (avec 2 électrons) [164] (p 139-p 140). Nous pouvons cibler les réactions R4-R6 dont les coefficients de réaction sont repris dans l'article de revue [165].



Dans le cas de la recombinaison à trois corps, nous pouvons poser l'équation différentielle (48) tandis que pour la recombinaison dissociative, on peut écrire l'équation différentielle (49). Dans les deux cas, nous faisons l'hypothèse que la densité d'ions $n_+ = n_e$. Nous notons le taux de réaction pour la recombinaison à trois corps k_{3C} , le taux de réaction k_{RD} (k_{RD-N_2} ou k_{RD-NO}) pour la recombinaison dissociative et la densité électronique initiale n_{e0} .

$$\frac{dn_e(t)}{dt} = -k_{3C}n_e^2n_+ = -k_{3C}n_e^3 \rightarrow n_e(t) = \frac{n_{e0}}{\sqrt{1 + 2k_{3C}n_{e0}^2(t - t_0)}} \quad (48)$$

$$\frac{dn_e(t)}{dt} = -k_{RD}n_en_+ = -k_{RD}n_e^2 \rightarrow n_e(t) = \frac{n_{e0}}{1 + k_{RD}n_{e0}(t - t_0)} \quad (49)$$

Les courbes reprenant les modèles des réactions R4-R6 avec T_e fixe sont affichées sur la figure 55. Il semble que le résultat de la plupart des modèles soit une décroissance très rapide à l'exception des modèles utilisant la décroissance à trois corps avec une température d'électrons très élevée. Une décroissance aussi lente qu'à l'échelle des 50 ns après le pic de courant est donc possible seulement si le gaz est presque complètement dissocié, comme montré sur la figure 55 et que la température des électrons est maintenue très élevée entre 80 kK et 40 kK.

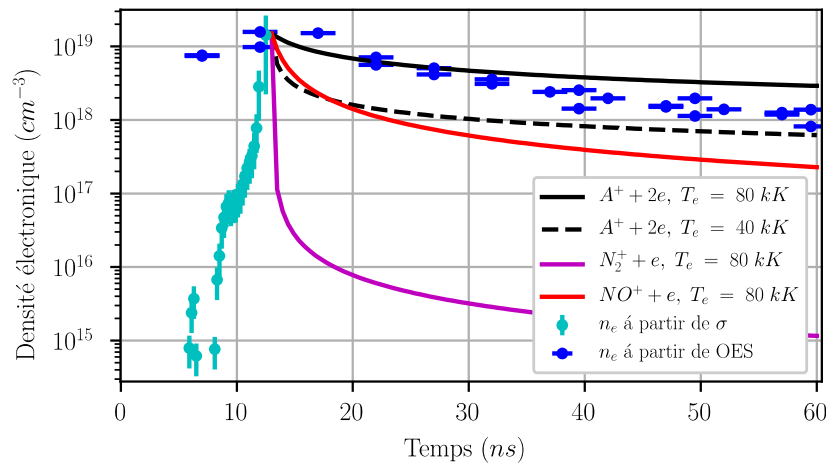


Figure 55: Modèle de décroissance de la densité des électrons dans les 60 premières nanosecondes en utilisant trois réactions (R4-R6) avec deux températures d'électrons différentes ($T_e = 80 \text{ kK}, 40 \text{ kK}$). Les modèles sont superposés aux données de la figure 54.

Des hypothèses sur la décroissance ont été avancées dans l'étude de Horst *et al.* [26]. Les réactions R4-R6 ont été ciblées mais sans estimation de T_e , la décroissance lente a été attribuée à un processus de production des électrons dans la phase de recombinaison, l'ionisation associative par exemple. Ces processus peuvent en effet jouer un rôle important lorsque la réaction R4 aura produit un nombre significatif d'atomes excités.

Nous avons donc montré que n_e était très élevé juste après le claquage et atteignait des valeurs de $1,5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. La recombinaison à trois corps devrait être suffisante pour expliquer la décroissance de n_e sans faire appel à la diffusion et au repeuplement des électrons si T_e est maintenu élevé. La possibilité que les électrons restent chauds sera approfondie dans la section 5.3 du chapitre 5.

A l'aide de la littérature et des mesures pour $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$, nous avons associé l'aspect homogène à des densités électroniques modérées puis la phase filamentaire à des densités électroniques importantes. Nous allons préciser cette conclusion dans la section suivante en utilisant un gap millimétrique. Cela nous permettra de gagner en résolution spatiale relativement à la distance d_{gap} .

4.4.2 Gradient de densité d'électron lors de la constriction : le cas 1 mm

Dans cette partie nous utiliserons les spectres spatialement résolus de la décharge de 1 mm car la résolution relative spatio-temporelle ($\Delta X/d_{gap}$ et $\Delta t/\tau_{onde}$) est plus importante comparativement à τ_{onde} , la constante de temps de l'onde de constriction (figure 47 p 90). Ainsi nous pouvons mieux distinguer les phénomènes dans chaque phase.

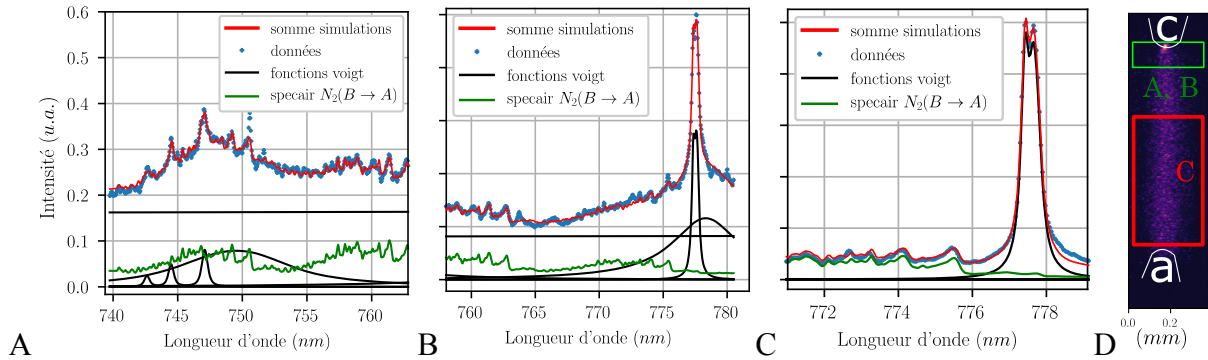


Figure 56: Spectres théoriques et expérimentaux pour $d_{gap} = 1 \text{ mm}$ et $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ à $t = 10 \text{ ns}$, A) spectre de N et $N_2(B \rightarrow A)$ proches de la cathode, B) spectre de O et $N_2(B \rightarrow A)$ proches de la cathode et C) spectre de O et $N_2(B \rightarrow A)$ dans le reste de l'espace inter-électrodes et D) image de la décharge indiquant la position de chaque spectre. Le temps d'exposition utilisé est $t_{exp} = 3 \text{ ns}$. Les points bleus représentent les données. La ligne noire représente indépendamment, les fonctions voigt ou le fond linéaire. La ligne verte représente la simulation de $N_2(B \rightarrow A)$ et la ligne rouge représente la somme des composantes.

Dans cette partie, nous allons nous intéresser au spectre d'émission dans la région $\lambda \in [740 \text{ nm}; 779 \text{ nm}]$. La figure 56 montre notamment les spectres expérimentaux et théoriques pendant la formation du foyer lumineux à la cathode à $t = 10 \text{ ns}$ (voir correspondance à la figure 42). Nous montrons ici que le spectre le long de la cathode est la superposition de deux spectres représentant deux densités d'électrons différentes : les raies fines pour $n_e < 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ et les raies larges pour $n_e = 0,8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, avec pour ce dernier un élargissement considérable ainsi qu'un déplacement pouvant être causé par l'effet Stark ou par l'effet Van der Waals.

Dans le même temps, le spectre de la figure 56C dans le milieu du gap reste représentatif d'une petite densité électronique uniquement. Nous observons également une autre différence dans tous les cas, qui est la présence d'un fond continu pouvant être modélisé comme une droite dans la gamme de longueur d'onde considérée. Il est important de préciser que l'incertitude sur le moment de la chute de tension est plus élevée que dans le cas de $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ et évaluée à $\tau_{i-foyer} = 2,3 \text{ ns}$. Le temps d'exposition effectif est donc plutôt de $t_{eff} \approx 5,3 \text{ ns}$, compte tenu du temps d'exposition de la caméra de 3 ns . Nous obtenons sur la cathode un spectre acquis dans la transition entre les deux premières phases.

La figure 57 présente une analyse similaire pour $t = 15 \text{ ns}$. Ici encore, nous regardons l'image associée sur la figure 42 : elle correspond à la formation de la décharge filamentaire à la cathode, dans l'espace inter-électrodes et à l'anode. Le spectre le long de la cathode a uniquement les raies élargies (figure 57A) car il était déjà dans la seconde phase. En revanche, les autres spectres présentés sur les figures 57C et B près de l'anode et dans le milieu du gap sont toujours représentatifs des deux phases. L'intensité des raies élargies est plus importante, relativement à celle des raies fines, à l'anode, qu'au milieu du gap. Donc la hausse de n_e

arrive plus tôt à l'anode. L'ordre de la transition entre les phases est donc : cathode, anode et milieu du gap.

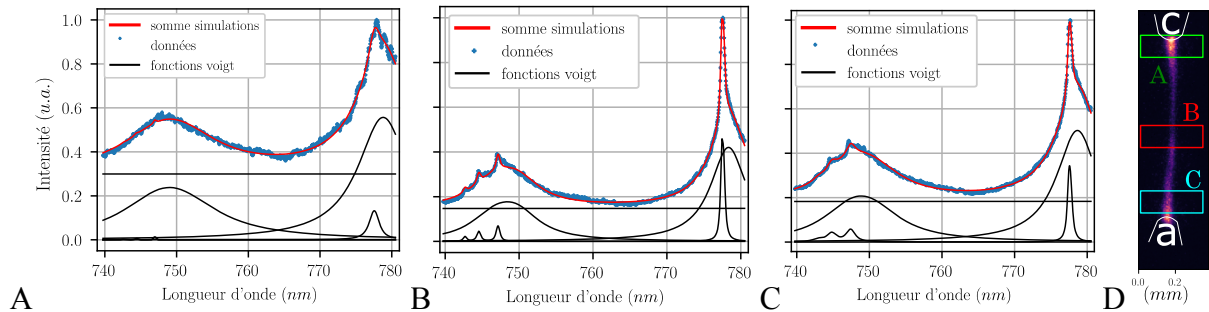


Figure 57: Spectres théoriques et expérimentaux pour $d_{gap} = 1 \text{ mm}$ et $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ à $t = 15 \text{ ns}$, A) spectres de O et N proches de la cathode, B) spectres de O et N dans le milieu du gap et C) spectres de O et N proche de l'anode. D) Image de la décharge indiquant la position de chaque spectre. Le temps d'exposition utilisé est $t_{exp} = 3 \text{ ns}$. Les points bleus représentent les données. Les lignes noires représentent indépendamment, les fonctions voigts ou le fond linéaire et la ligne rouge représente la somme des composantes.

Pour résumer, nous avons donc réalisé des mesures de n_e , et comme pour les autres mesures, nous observons deux phases caractéristiques avec $n_e < 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ et $n_e > 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ durant la première et la deuxième phase respectivement. La transition arrive en premier à la cathode puis à l'anode et ensuite dans le reste de l'espace inter-électrodes. Il est néanmoins difficile de déduire des grandeurs caractéristiques sur le mécanisme provoquant la forte augmentation de n_e mais légitime de penser que la constante de temps du phénomène est inférieure à notre temps d'exposition effectif $t_{eff} = 5,3 \text{ ns}$.

4.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons décrit les premières étapes ($t \in [0 \text{ ns}; 40 \text{ ns}]$) du régime NRP micro-plasma avec $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$. Un premier temps a été consacré à la description des caractéristiques électriques, du spectre d'émission et des images de la décharge. Cela nous a indiqué qu'il y avait deux phases dans le dépôt de l'énergie, une première phase avec une émission homogène pour ensuite se transformer en une décharge avec un aspect filamentaire. Nous résumons les résultats avec la figure 58. Cette figure reprend l'analyse que nous avons effectuée pour $d_{gap} = 1 \text{ mm}$ mais nous pensons que la même dynamique devrait s'appliquer pour le cas micrométrique.

La première phase possède une émission spectrale caractéristique d'un plasma froid dans l'air avec l'émission du SPS de N_2 et du FNS de N_2^+ . Les conditions d'existence de l'émission homogène ont été listées et il apparaît qu'un *streamer* ne peut pas se propager si une densité électronique rémanente minimum $n_{e0} = 4,8 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ au moment de l'application d'une impulsion.

Cette émission nous a permis de mesurer le champ électrique avec une résolution spatiale sur l'axe de la décharge. Une région de fort champ de 1200 Td et d'une taille de $50 \mu\text{m}$ est

observée contre la cathode. Les conséquences d'un champ aussi élevé seront évaluées dans le chapitre 7. Le champ à cette position chute rapidement à 700 Td en $0,5 \text{ ns}$. Pendant cette phase, la spectroscopie d'émission et les mesures électriques indiquent $n_e < 10^{17} \text{ cm}^{-3}$.

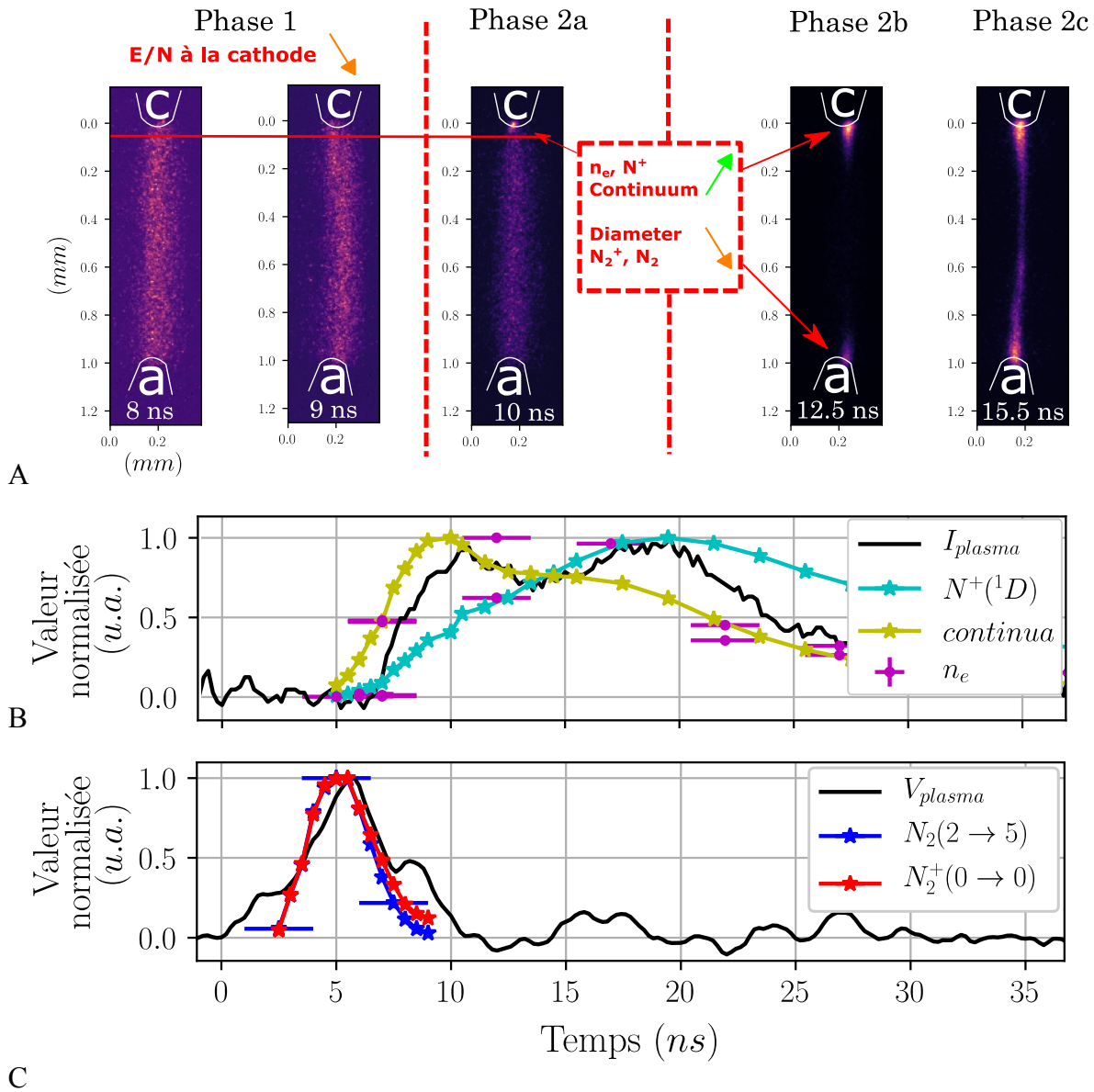


Figure 58: Résumé de la dynamique de la décharge $d_{\text{gap}} = 1 \text{ mm}$ et $F_{\text{NRP}} = 8 \text{ kHz}$. Bilan temporel des quantités d'intérêt pour une décharge $d_{\text{gap}} = 200 \mu\text{m}$ synchronisée avec A) la tension et B) le courant.

Lors de la transition entre les deux phases, le champ électrique à la cathode continue de diminuer pendant que l'émission augmente jusqu'à l'apparition du foyer à la cathode. Nous avons montré dans la section précédente que l'apparition du foyer lumineux proche de la cathode correspond à une élévation de n_e . L'équation (19) nous indique que cette augmentation de n_e est accompagnée de l'augmentation de la conductivité. Ce foyer lumineux se comporte donc comme une électrode virtuelle de rayon de courbure beaucoup

plus fine que l'électrode de tungstène. Cette électrode virtuelle se matérialise avec un délai de $5 - 6 \text{ ns}$ à la transition entre la première et deuxième phase. La filamentation se comporte comme une nouvelle décharge venant s'ancrer sur le point où le champ électrique est le plus intense, c'est-à-dire sur ce foyer lumineux. Cette augmentation de conductivité implique la chute de la tension dans la zone cathodique et c'est probablement cela que nous observons sur la figure 51 par la baisse du champ électrique.

La seconde phase a ensuite été étudiée ; la présence importante des lignes atomiques a permis d'estimer la densité électronique $n_e \approx 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Une analyse du temps de décroissance de la densité d'électron a indiqué que le gaz était complètement dissocié et que la température électronique T_e devrait rester élevée dans cette phase. Dans le prochain chapitre, nous nous intéresserons à la chimie de cette phase de recombinaison. Nous effectuerons des mesures de la température électronique T_e ce qui permettra de réévaluer la réaction de recombinaison à trois corps.

5 Cinétique chimique et thermique des décharges NRP micro-plasmas dans l'air à pression atmosphérique

Le chapitre précédent a traité exclusivement de la phase de claquage intervenant quelques nanosecondes après l'application de l'impulsion. Dans ce chapitre nous étudions la phase poursuivant le claquage communément appelée phase de recombinaison. C'est à ce moment que les espèces recherchées pour les applications sont produites et doivent survivre. Notre objectif est de donner des éléments afin de résumer les réactions chimiques qui ont cours dans la phase de recombinaison pour notre cas de référence $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ et $d_{gap} = 200 \text{ }\mu\text{m}$.

A cette fin nous utilisons la spectroscopie d'émission et l'imagerie ICCD. Dans la première partie de ce chapitre, nous exposerons le contenu spectral de la décharge afin d'identifier les espèces qui émettent et leur temporalité. Nous y associerons des images ICCD afin de comprendre la distribution spatiale de ces espèces. Nous discuterons notamment de l'expansion thermique dans le cas du micro-plasma afin d'aborder la thermique dans la section suivante.

Les chimies hors équilibre et conventionnelles sont très dépendantes de la température. De surcroît, c'est un aspect important dans la combustion et la synthèse de nanomatériaux. C'est pourquoi, dans la seconde section, nous analyserons les spectres de la décharge pour déduire la température rotationnelle des molécules et la température des électrons. Un aspect notable des décharges NRP concerne les effets d'une impulsion sur l'impulsion suivante : les effets mémoires. Nous consacrerons donc une partie de cette section sur le chauffage rémanent et nous verrons que l'utilisation d'une décharge micrométrique affecte fortement ces effets mémoires.

Avec les informations accumulées dans les premières sections, nous pourrions aborder la cinétique chimique dans la dernière partie. La cinétique des électrons sera abordée en premier car c'est un indicateur considérable de la chimie hors-équilibre. Nous nous concentrerons ensuite sur deux espèces d'intérêt $O(3p^5P)$ et de $N(3p^4S^o)$ et nous constaterons qu'une seule réaction peut résumer la recombinaison électrons-ions pour $t < 400 \text{ ns}$.

5.1 Émission des décharges NRP dans l'air à pression atmosphérique

Dans cette section nous étudierons l'émission de la décharge dans la phase de recombinaison. La première section 5.1.1 concernera le spectre intégré spatialement pour $d_{gap} = 200 \text{ }\mu\text{m}$ et $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$. Nous décrirons quelles sont les principales espèces qui émettent. Dans un second temps nous associerons des images ICCD et des spectres résolus sur l'axe du gap afin d'observer la répartition spatiale des espèces préalablement identifiées.

Nous observerons que le plasma prend une forme elliptique plusieurs microsecondes après sa génération. Nous expliquerons ce phénomène par l'expansion thermique qui a déjà été bien étudiée dans le cas des décharges NRP millimétriques.

5.1.1 Le spectre d'émission pour $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$

Dans l'objectif d'identifier les espèces émises par la décharge, nous présentons sur les figures 59 et 60 le spectre d'émission de la décharge obtenu avec le réseau 600 tr. mm^{-1} . La figure 59 a été obtenue sans correction grâce à la fonction de transfert en longueur d'onde du système, ce qui n'est pas le cas de la figure 60. Quatre pas de temps, allant de $t = 30 \text{ ns}$ à $t = 5 \mu\text{s}$ sont présentés avec les temps d'exposition indiqués sur les figures 59 et 60.

Si l'on considère les instants pendant lesquels le spectre est dominé par un groupe d'espèces en particulier, nous définissons cinq phases distinctes. Les spectres des deux premières phases ont déjà été décrits dans la section 4.2.3. Le découpage temporel est le suivant :

- phase 1, $t \in [4 \text{ ns}; 7 \text{ ns}]$: spectre moléculaire de $N_2(C \rightarrow B)$, $N_2(B \rightarrow A)$ et $N_2^+(B \rightarrow X)$;
- phase 2, $t \in [7 \text{ ns}; 30 \text{ ns}]$: émission d'un fond continu et des lignes provenant des ions O^+ et N^+ ;
- phase 3, $t \in [30 \text{ ns}; 200 \text{ ns}]$: émission dominante de lignes provenant d'atomes neutres tels que H , O et N ;
- phase 4, $t \in [200 \text{ ns}; 5 \mu\text{s}]$: émission des lignes d'origine métallique W et W^+ ;
- phase 5, $t > 5 \mu\text{s}$: spectre moléculaire $OH(A \rightarrow X)$.

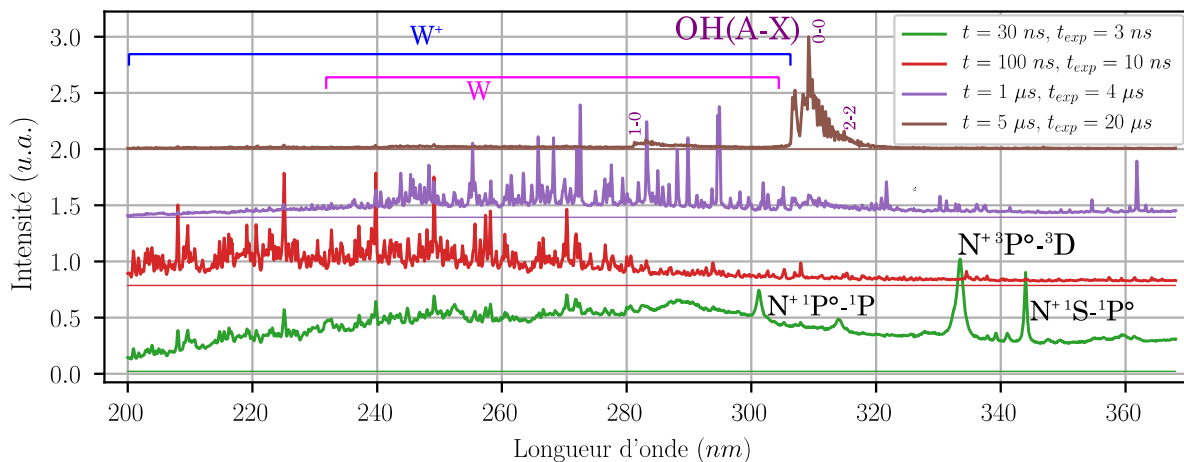


Figure 59: Spectre d'émission non-calibré d'une décharge avec un gap $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ et $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ à $t = 30 \text{ ns}$, 100 ns , $1 \mu\text{s}$ et $5 \mu\text{s}$ dans la gamme de longueur d'onde $\lambda = [200 \text{ nm}, 370 \text{ nm}]$. La lumière est intégrée sur toute la distance inter-électrodes. Les lignes horizontales représentent l'ordonnée à origine pour chacun des spectres.

Dans un premier temps, nous allons décrire la gamme $\lambda = [200 \text{ nm}, 370 \text{ nm}]$ avec la figure 59. Les premières nanosecondes sont typiques de ce type de décharge avec l'émission du SPS de $N_2(C \rightarrow B)$. Nous constatons l'émission d'un fond continu important à $t = 15 \text{ ns}$ avec des

5 ns seront utilisées afin de déterminer la température électronique, au même titre que les lignes de W à $t \approx 1 \mu s$ dans la section 5.2.2. Des signes de recombinaison de molécules sont donc montrés à $t = 1 \mu s$ avec l'émission de $OH(A \rightarrow X)$. L'émission de $OH(A \rightarrow X)$ est toujours présente pour $t = 5 \mu s$.

Dans cette section, nous avons observé quelles espèces composaient le spectre d'émission. Nous retrouvons globalement des caractéristiques identiques à ce qui a déjà été observé dans l'air à pression atmosphérique [16,18] mis à part l'émission de N^+ , O^+ et l'absence de $NO_\gamma(A \rightarrow X)$.

5.1.2 Image de la décharge, profil axial et aérodynamique des décharges NRP

Dans cette section, nous souhaitons déterminer si les espèces que nous avons précédemment identifiées sont réparties homogènement ou inhomogènement dans la phase de recombinaison. Nous souhaitons également discuter de l'étalement dû à l'expansion thermique qui devrait expliquer l'aspect de la décharge obtenue par imagerie ICCD.

L'émission d'un fort fond continu ne permet pas de réaliser une cartographie des espèces avec de l'imagerie filtrée de façon optimale. Nous choisissons d'utiliser des spectres résolus spatialement afin de déterminer les zones caractéristiques. Cela permet donc d'être résolu sur une seule dimension. Pour cela nous utilisons l'intensité de la raie soustraite par le fond que nous prenons juste à côté de la raie. Par exemple pour le signal de N^+ , nous utilisons l'intensité de l'ensemble des raies à $\lambda = 500 \text{ nm}$ soustraite par l'intensité du fond pour $\lambda = 510 \text{ nm}$.

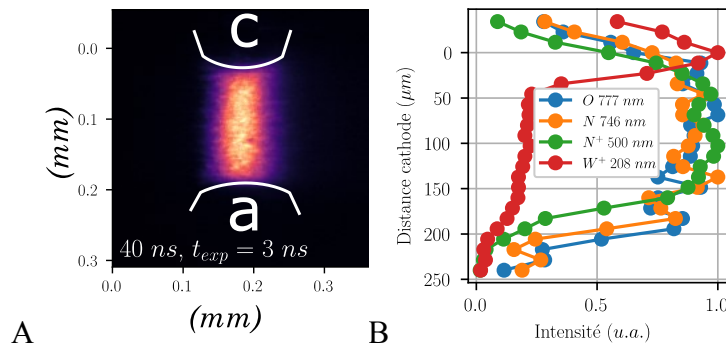


Figure 61: Imagerie moyennée de la décharge pour $d_{gap} = 200 \mu m$, $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ A) à $t = 40 \text{ ns}$
 C) Profils axiaux d'intensité normalisée de O à 777 nm, N à 746 nm, de N^+ à 500 nm et de W^+ à 208 nm sur un spectre accumulé sur 2000 décharges à $t = 30 \text{ ns}$.

La figure 61A présente la troisième étape à $t = 40 \text{ ns}$ après le claquage : la décharge a un aspect homogène mais nous observons sur la figure 61B l'émission de lignes de tungstène ionisées près de la cathode.

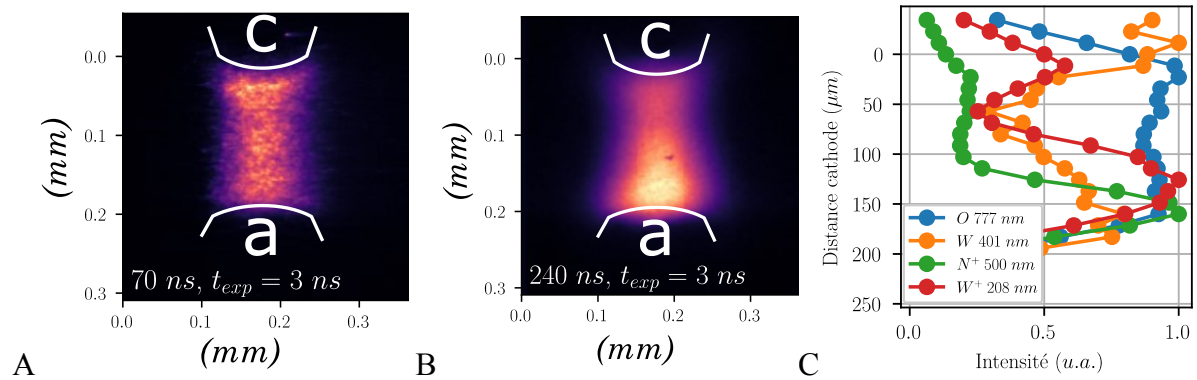


Figure 62: Imagerie moyennée de la décharge pour $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$, $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ A) à $t = 70 \text{ ns}$, B) à $t = 240 \text{ ns}$ C) Profils axial d'intensité normalisée de O à 777 nm, W à 401 nm, de N^+ à 500 nm et de W^+ sur un spectre accumulé sur 2000 décharges à $t = 100 \text{ ns}$.

A $t > 70 \text{ ns}$ (figure 62), une structuration réapparaît dans l'espace inter-électrodes : nous remarquons une émission légèrement plus importante à la cathode correspondant à l'émission de tungstène ionisé que nous avons commencé à observer sur la figure 61C. A partir de ce moment, la vaporisation du matériau des électrodes commence à devenir significative sur le spectre. A $t = 100 \text{ ns}$, nous observons une structuration complexe des profils d'intensité du spectre avec la fin de l'émission des lignes de N^+ , qui sont concentrées contre l'anode, et l'émission des lignes de W^+ qui sont plus lumineuses du côté de l'anode. A $t = 240 \text{ ns}$, la pondération de l'intensité lumineuse est déplacée vers l'anode. Ce changement de la distribution de lumière n'est pas seulement dû à la convection du gaz de la cathode vers l'anode car les espèces ne se déplacent pas ensemble, comme nous le constatons sur la figure 62C. La structuration complexe de la figure 62C implique le rôle important de la cinétique chimique non-uniforme.

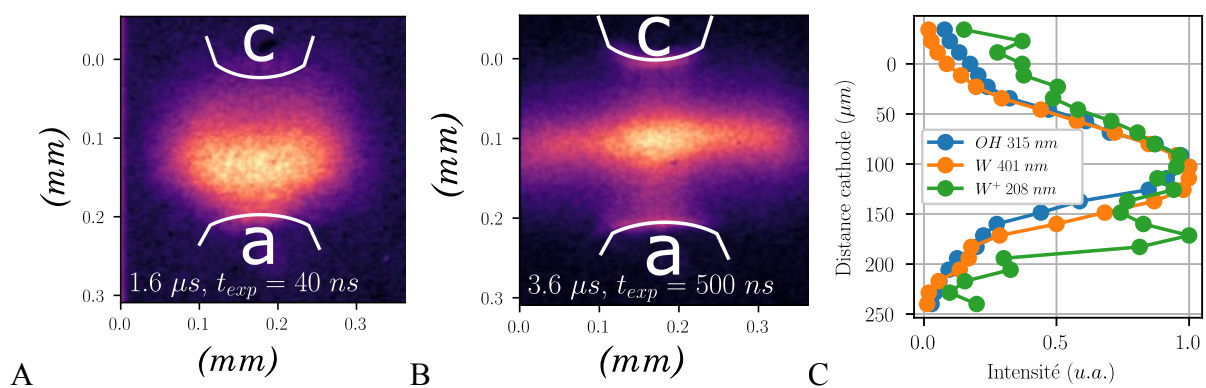


Figure 63: Imagerie moyennée de la décharge pour $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$, $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ A) à $t = 1,6 \mu\text{s}$, B) à $t = 3,6 \mu\text{s}$ C) Profils axial d'intensité normalisée de OH à 315 nm, W à 401 nm, et de W^+ sur un spectre accumulé sur 2000 décharges à $t = 1 \mu\text{s}$.

La figure 63A présente l'image intensifiée lorsque $t > 1 \mu\text{s}$, l'émission importante proche de l'anode est toujours présente et s'étale vers la cathode et dans la direction radiale. A ce

moment la décharge a une forme sphérique et évolue vers la figure 63B avec la forme elliptique que nous obtenons dès $t > 1.5 \mu s$. Les profils des espèces qui émettent comme $OH(A \rightarrow X)$ et W , visibles sur la figure 63C, indiquent que le plasma est comprimé dans le centre de l'espace inter-électrodes.

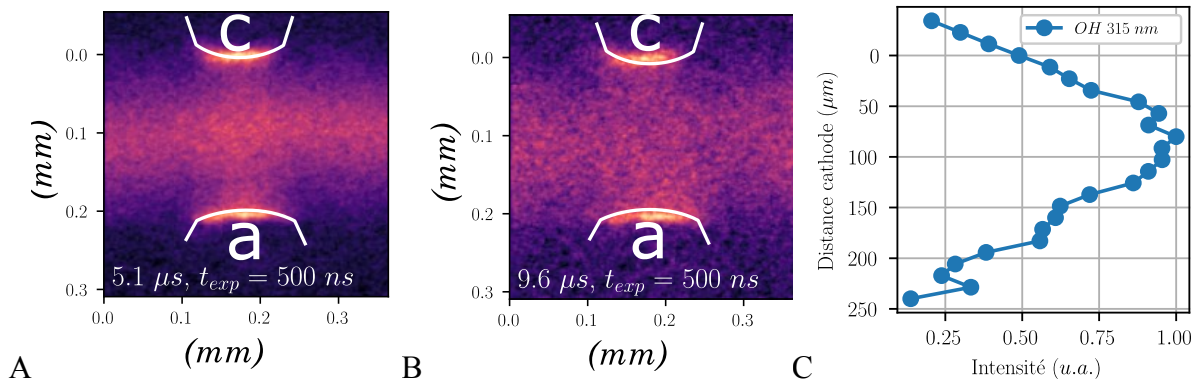


Figure 64: Imagerie moyennée de la décharge pour $d_{gap} = 200 \mu m$, $F_{NRP} = 8 kHz$ A) à $t = 5,1 \mu s$, B) à $t = 9,6 \mu s$ C) Profils axial d'intensité normalisée de OH à 315 nm sur un spectre accumulé sur 2000 décharges à $t = 5 \mu s$.

Enfin, les figures 64A et 64B présentent les derniers instants visibles de l'émission du plasma avec l'étalement en forme elliptique. L'émission sort du champ de vue. La figure 64C indique, un étalement du profil de l'émission $OH(A \rightarrow X)$ par rapport à la figure 63C.

Pour introduire notre étude thermique, nous allons détailler l'historique des figures 61 à 64 d'un point de vue aérodynamique. Nous associons l'étalement elliptique de l'émission avec une expansion du gaz d'une forme toroïdale. Stepanyan *et al.* [38] ont observé une correspondance entre l'expansion thermique et l'émission des espèces provenant de la décharge pour une décharge similaire avec $d_{gap} = 1 mm$.

L'évolution en forme toroïdale a déjà été étudiée plusieurs fois dans les décharges de type étincelle. La méthodologie principale est de comparer des visualisations Schlieren et des simulations numériques. Kono *et al.* [166] (figure 65) montrent l'existence de tourbillons contrarotatifs qui vont advecter les zones chauffées vers l'extérieur formant ainsi le profil toroïdal. De l'air frais remplace l'intérieur du gap, en premier à proximité des électrodes. Nous pouvons constater, sur la figure 65A, que l'utilisation des configurations millimétriques permet de conserver une zone chauffée au centre, aux pas de temps considérés, *a contrario* du gap micrométrique. L'auteur indique que la forme de l'écoulement sera fortement affectée par la densité volumique d'énergie, la forme des électrodes et le gap. Seydou [56] a également observé cette forme d'expansion mais par PIV.

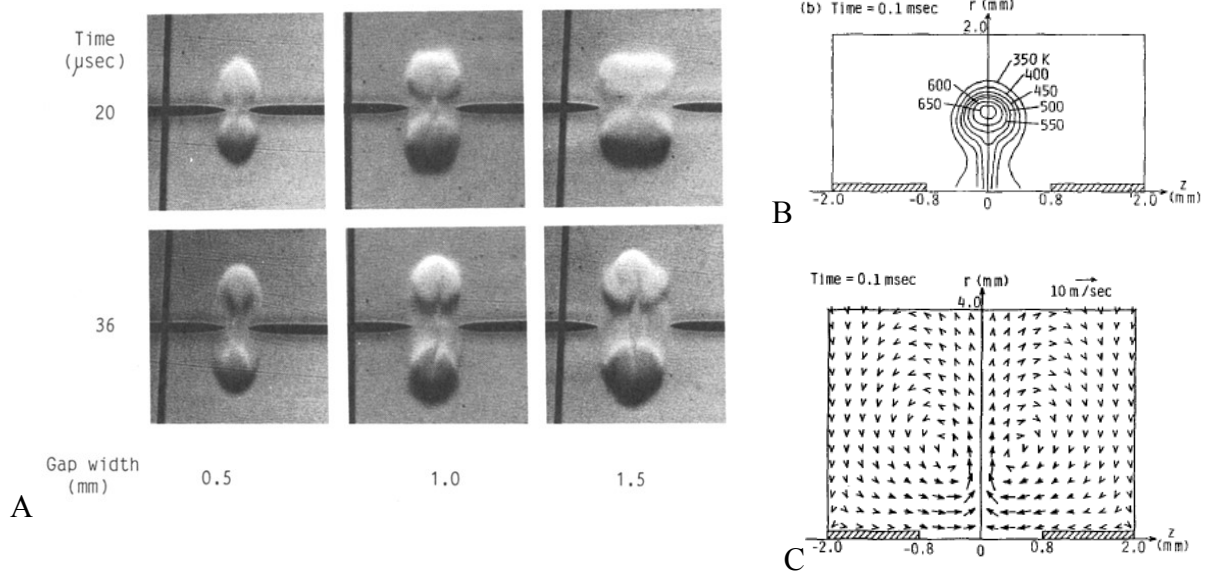


Figure 65: A) Imagerie Schlieren rapide (5×10^5 fps) d'une étincelle dans l'air pour plusieurs distances inter-électrodes extraite de [166]. Le temps d'exposition est $t_{exp} = 2 \mu s$. B) Simulation pour $d_{gap} = 1.6$ mm de la distribution de température à $t = 100 \mu s$ et C) champs de vitesse associé.

Castela [167] a modélisé cette expansion avec une simulation tridimensionnelle en DNS d'une étincelle avec $d_{gap} = 1$ mm. Sans prendre en compte la géométrie des électrodes dans le modèle (voir figure 66), l'expansion va tout de même évoluer en forme toroïdale. De plus, Stepanyan *et al.* [38] ont essayé des géométries différentes comme des cylindres et reportent une évolution toroïdale. Toutefois, pour certaines géométries cette expansion peut être affectée. Lo *et al.* [168,169] par exemple, montrent que lorsque l'électrode est presque plane, le refroidissement est ralenti ; une électrode plane affecte le remplacement de l'air frais et donc l'expansion thermique.

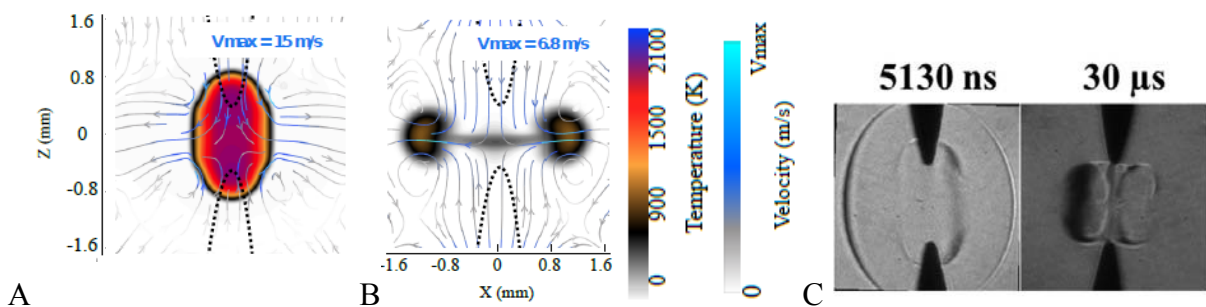


Figure 66: Évolution de la forme du noyau thermique d'une décharge NRP extrait de la thèse de Castela [167] dans un mélange de méthane-air (ratio 0.7) à pression atmosphérique et $T_{gaz} = 300$ A) $t = 9 \mu s$, B) $t = 200 \mu s$ et C) Visualisation Schlieren extraite de [170] $t = 5 \mu s$ et $30 \mu s$.

La croissance du noyau chaud suivant l'allumage de décharge NRP a été étudiée par Xu *et al.* [39]. La température et la fraction d'énergie dépensée en chauffage ont été mesurées en réalisant la comparaison entre la visualisation Schlieren et une simulation de dynamique des

gaz en une dimension sur l'évolution radiale. Xu *et al.* [39] montrent des résultats numériques et expérimentaux concordants. La pression est déterminée par la loi des gaz parfaits.

Dans notre configuration, les vitesses sont de l'ordre de $230 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ pour $t = 50 \text{ ns}$. Cette expansion va être pilotée par la pression au sein du filament. Nous devons prendre en compte notre dissociation élevée. Ces vitesses d'expansion sont du même ordre de grandeur que Castela [167] (p 120), Xu [39] et Seydou [56] (p 65). Toutefois ces études ne présentent pas des mesures de n_e de l'ordre de 10^{19} cm^{-3} comme dans notre cas (section 4.4.1).

Le moment pendant lequel l'équilibre thermodynamique sera atteint dans nos conditions n'est pas clair. Une limite inférieure de la pression peut être fournie par les données obtenues dans le chapitre 4 : nous allons définir la limite basse de la pression calculable avec l'équation (50). D'après [171] (p 193), dans le cas de gaz dissociés et ionisés dans des conditions hors équilibre, il faut prendre en compte la température translationnelle et le taux de ionisation. Nous allons prendre les conditions du plasma $t = 15 \text{ ns}$ correspondant au maximum de ces quantités en utilisant les mesures $T_{gas} = 1 \text{ kK}$, $\alpha = 0,3$, $N = 4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

$$P_{0,bas} = k_B T_{gaz} N (1 + \alpha) \approx 7 \text{ atm} \quad (50)$$

Cette pression peut être très largement sous-évaluée dans le cas où l'équilibre thermodynamique local (ETL) est atteint. Dans ce cas : $P \propto N_e T_e$ qui serait de l'ordre de 100 atm dans notre décharge. Cet ordre de grandeur en pression a été mesuré pour une décharge similaire dont les caractéristiques sont comparées avec notre décharge dans la table 14. Ce tableau nous montre que la densité d'énergie des deux décharges est similaire. Dans notre cas, la mesure du rayon r_0 n'est pas soumise à l'inversion d'Abel, mais cela ne devrait pas être à l'origine d'un grand écart comparativement à Lo *et al.* [170].

Tableau 14 : Comparaison entre les conditions expérimentales de notre étude et de Lo *et al.* [170]. La vitesse est estimée pour $t = 50 \text{ ns}$ et la pression pour $t = 15 \text{ ns}$.

	<i>Cette étude</i>	<i>Lo et al. [170]</i>
$d_{gap} \text{ (mm)}$	0,2	3
$E \text{ (kV} \cdot \text{cm}^{-1}\text{)}$	125	116,7
$T_e \text{ (kK)}$	72	35 (45 au max)
$U_{plasma} \text{ (mJ)}$	0,113	54
$r_0 \text{ (}\mu\text{m)}$	20	140
$U_{plasma}/V \text{ (mJ} \cdot \text{mm}^{-3}\text{)}$	450	292,3
$Vitesse \text{ (m} \cdot \text{s}^{-1}\text{)}$	230	2200
$P \text{ (atm)}$	7	100

Lo *et al.* [170] ont évalué la pression pendant la phase d'étincelle à $P \in [90 \text{ bar}; 110 \text{ bar}]$, ce qui est un ordre de grandeur plus élevé que notre première estimation. Par conséquent, les

vitesses d'expansion d'environ 2000 m.s^{-1} sont plus rapides d'un ordre de grandeur. Une différence subsiste avec l'étude de Lo *et al.*, dans la phase de recombinaison, puisque dans leur cas, le courant et le champ sont maintenus pendant 700 ns , le courant traversant la décharge est de l'ordre de $I_{\text{plasma}} \approx 200 \text{ A}$.

Si nous avons vraiment une décharge similaire, alors nous aurions observé une vitesse d'expansion du même ordre de grandeur. Cela tend à affirmer que dans notre étude, la pression dans le filament atteint des pressions modérées ne dépendant pas de $n_e T_e$. La décharge micro-plasma reste donc hors-équilibre.

Nous avons réalisé de l'imagerie dans la phase de recombinaison. Ces mesures ont été associées à de la spectroscopie d'émission et elles ont montré la présence de lignes d'atomes de N^+ , W et W^+ . La lumière de la décharge prend ensuite une forme elliptique cohérente avec une expansion aérodynamique. Cela se manifeste par un noyau chaud qui va se former et s'étendre par augmentation de la pression en son sein. Cette pression va chuter pendant l'étape de recombinaison : des tourbillons contrarotatifs vont remplir le gap d'air « frais », préférentiellement le long des électrodes en premier, donnant ainsi la forme toroïdale. La comparaison avec la littérature, notamment avec Lo *et al.* [170], tend à montrer que la décharge sous étude est bien hors équilibre thermodynamique même si les densités d'électrons demeurent importantes.

5.2 Étude thermique par spectroscopie d'émission

Dans cette section, nous nous intéresserons à la température rotationnelle T_{rot} et la température électronique T_e dans la décharge. Les méthodes de mesure ont été décrites dans la section 3.3. T_{rot} est mesurable par le spectre moléculaire de $N_2(C \rightarrow B)$. Partant de la description du spectre d'émission dans la section 4.2.3, la mesure est disponible seulement dans la première phase homogène. Quant à T_e , la mesure nécessite des spectres atomiques qui n'émettent qu'après la phase filamentaire.

Dans la section 5.2.1, nous présenterons la mesure de T_{rot} puis dans la section 5.2.2, nous aborderons les mesures de T_e . Enfin, dans la dernière section 5.2.3, nous utiliserons des fréquences de répétition F_{NRP} plus élevées afin de sonder T_{rot} dans la phase de recombinaison. Nous observerons que $F_{NRP} = 30 \text{ kHz}$ est assez important pour qu'un effet mémoire sur T_{rot} soit perceptible pour une décharge avec $d_{gap} = 1 \text{ mm}$. Nous verrons également que la réduction à une échelle micrométrique permet d'éviter l'effet mémoire à $F_{NRP} = 30 \text{ kHz}$.

5.2.1 Mesure de la température rotationnelle de $N_2(C)$

La mesure de température rotationnelle spatialement résolue sur l'axe du plasma est tracée sur la figure 67A pour le cas de $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ et 67B pour le cas $d_{gap} = 1 \text{ mm}$. Les conditions expérimentales correspondent aux mesures présentées dans les sections 4.1 et 4.2 : c'est-à-dire $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$, et des champs électriques réduits de $E/N = 660 \text{ Td}$ et 320 Td

respectivement pour $d_{gap} = 200 \mu m$ et $d_{gap} = 1 mm$. Nous observons un chauffage rapide dans la phase diffuse.

Tableau 15 : Comparaison entre les taux de chauffage rapide observés dans la littérature pour des étincelles nanosecondes générées dans l'air. Dans tous les cas, la méthode de mesure est la même.

Étude			Rusterholtz et al. [20]	Lo et al. [170]
d_{gap}	$d_{gap} = 200 \mu m$	$d_{gap} = 1 mm$	$d_{gap} = 4 mm$	$d_{gap} = 3 mm$
$\widehat{E/N}$	660 Td	320 Td	300 Td	500 Td
dT_{gaz}/dt	70 K.ns ⁻¹	38 K.ns ⁻¹	45 K.ns ⁻¹	80 K.ns ⁻¹

Le tableau 15 compare nos taux de chauffage obtenus en comparaison d'études similaires. Le champ électrique, de par son amplitude, semble avoir un impact significatif pour dT_{gaz}/dt . Cette phase de chauffage rapide n'est pas linéaire : pour les deux cas, les premiers pas de temps voient un chauffage plus lent entre $T_{gas} = 350 K$ et $500 K$ jusqu'à un maximum $T_{rot} \approx 800 K$.

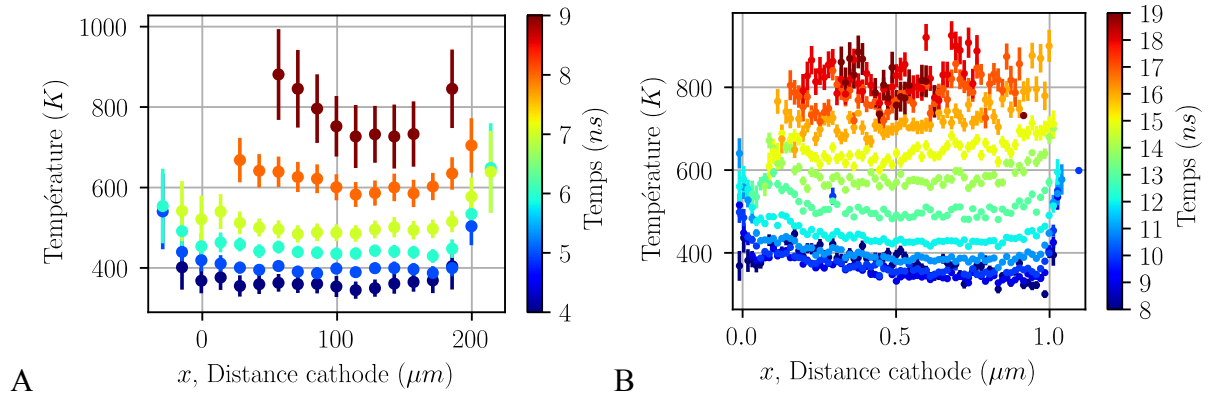
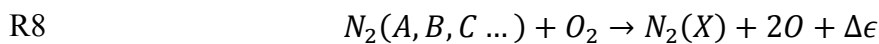
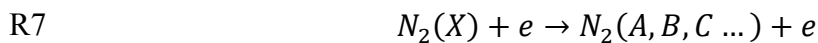


Figure 67: Mesure de température rotationnelle T_{rot} de décharges générées à $F_{NRP} = 8 kHz$ A) pour $d_{gap} = 200 \mu m$ et B) pour $d_{gap} = 1 mm$.

Globalement dans la phase diffuse, nous observons le mécanisme de chauffage rapide caractéristique des étincelles pulsées dans l'air à pression atmosphérique. Le mécanisme de chauffage rapide à deux étapes dans l'air a été développé par Popov [23]. D'abord, N_2 est électroniquement excité par impact électronique via la réaction R7. Ensuite le N_2^* électroniquement excité est désexcité par collisions par O_2 avec la réaction R8. Il en résulte une dissociation de l'oxygène et un reliquat d'énergie orienté directement en chauffage. Ce reliquat $\Delta\epsilon$ est dépendant de l'état excité de N_2^* .



Pour les décharges NRP, les études expérimentales de Rusterholtz *et al.* [20] et de Stancu *et al.* [22] présentent des mesures de chauffage avec des mesures de densité de O . Il est montré que 25 % de l'énergie totale de la décharge est orientée en chauffage et 35 % dans la dissociation à 50 % de O_2 . Ces résultats sont corroborés par une simulation [172]. Plus tard, une étude numérique de Popov [24] calcule pour les mêmes conditions expérimentales de [20] que 65 % de la dissociation est occasionnée par ce mécanisme et les 35 % restant par impact électronique direct ($e + O_2 \rightarrow e + 2O$).

Par rapport à notre étude, l'augmentation du champ électrique peut expliquer le chauffage plus rapide du cas micro-plasma comparé à $d_{gap} = 1 \text{ mm}$. En effet, cela aura tendance à augmenter la population des niveaux électroniquement excités les plus élevés de N_2 qui vont dégager les plus grands $\Delta\epsilon$ en alimentant R8. La dissociation directe de O_2 ou l'augmentation de l'ionisation et ainsi de la densité électronique seraient également accélérées.

5.2.2 Mesure de la température électronique T_e

La température moyenne des électrons T_e a été mesurée par la méthode de la droite de Boltzmann décrite dans la partie 3.3.4.

La figure 68 présente le tracé de la droite de Boltzmann pour deux instants différents à $t = 15 \text{ ns}$ et $t = 30 \text{ ns}$ sur les lignes de N^+ . Les températures ne peuvent être mesurées seulement lorsque les lignes de N^+ sont présentes et très intenses : il est donc possible de faire une mesure précise seulement pendant la seconde phase. De plus, l'effet Stark élargit de façon importante ces raies empêchant une mesure précise avant $t = 15 \text{ ns}$.

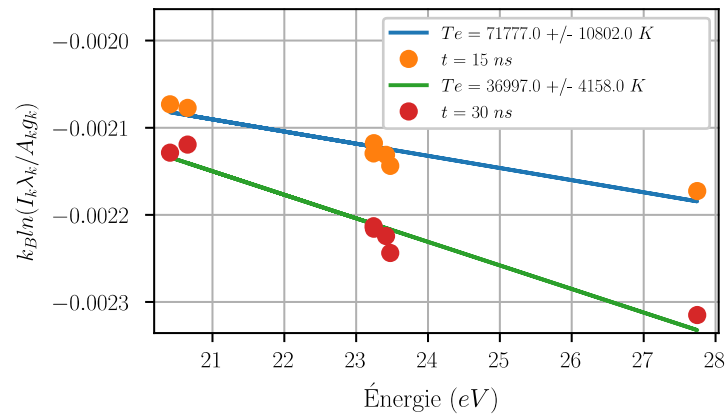


Figure 68: Tracé de la droite de Boltzmann pour $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ et $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ à $t = 15 \text{ ns}$ et $t = 30 \text{ ns}$.

Nous obtenons $T_e = 72 \text{ kK}$ à $t = 15 \text{ ns}$ et $T_e = 37 \text{ kK}$ à $t = 30 \text{ ns}$. Ces valeurs ne correspondent pas à avec un refroidissement très rapide tel que dans la simulation de Colonna *et al.* [124]. Ils montrent qu'ensuite, T_e chute de façon importante juste après le claquage (chute de $\Delta T_e \approx 58 \text{ kK}$ pour $\Delta t \approx 10 \text{ ns}$).

Dans l'article de Lo *et al.* [170], dont nous avons déjà discuté des similarités dans les sections 5.1.2 et 5.2.1, des températures de l'ordre de $T_e = 42 \text{ kK}$ ont été mesurées avec un PRF de 5 Hz lorsque $t \in [25 \text{ ns}; 40 \text{ ns}]$. Dans leur cas, le courant est maintenu dans la décharge ($I_{\text{plasma}} \approx 200 \text{ A}$) alors que dans notre cas, le champ est coupé et le courant descend rapidement ($I_{\text{plasma}} < 5 \text{ A}$).

Une autre étude [150] a mesuré $T_e = 33 \text{ kK}$ dans le néon 15 ns après le claquage par la technique de la diffusion de Thomson qui est une mesure directe de T_e : il est donc possible que la température électronique soit maintenue élevée lorsqu'il s'agit d'un gaz noble, qui a l'avantage de ne pas dissiper l'énergie des électrons dans les modes vibrationnels. Le micro-plasma serait dans cet état de gaz atomique si l'air était complètement dissocié pendant la seconde phase. Nous allons développer ce sujet dans la section 5.3.2 car une température aussi élevée aura probablement un impact sur la phase de recombinaison après l'étincelle.

Nous avons utilisé la méthode de la droite de Boltzmann avec les lignes de tungstène neutre dont l'émission est plus tardive que les lignes de N^+ déjà utilisées. Les données de la figure 60 permettent de tracer la droite sur la figure 69.

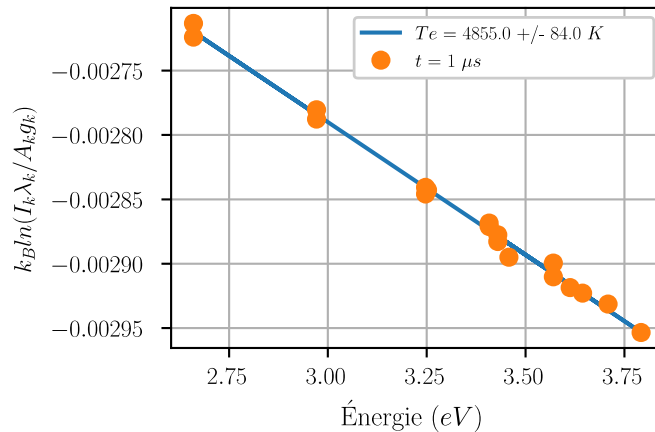


Figure 69: Droite de Boltzmann sur les lignes de tungstène neutre pour $d_{\text{gap}} = 200 \mu\text{m}$ et $F_{\text{NRP}} = 8 \text{ kHz}$ à $t = 1 \mu\text{s}$, $t_{\text{exp}} = 4 \mu\text{s}$.

L'acquisition a été obtenue à $t = 1 \mu\text{s}$ avec un temps d'exposition de $t_{\text{exp}} = 4 \mu\text{s}$. Malgré l'exposition longue, l'émission de la décharge est fortement décroissante, et la température électronique mesurée est donc représentative du moment au début de l'exposition ($t = 1 \mu\text{s}$).

Dans cette section, nous avons présenté trois points de mesure de la température électronique T_e . Nous utiliserons ces données lorsque nous déterminerons la cinétique chimique de la décharge pour $F_{\text{NRP}} = 8 \text{ kHz}$ et $d_{\text{gap}} = 200 \mu\text{m}$ dans la partie 5.3. La mesure de T_e en utilisant les atomes W est la plus contestable car elle poursuit l'émission des raies de W^+ ; il est probable que la recombinaison radiative puisse affecter les populations de W^* . Toutefois, les points sur la figure 69 sont bien alignés.

5.2.3 Effets mémoires des décharges NRP – variation de la fréquence

Dans cette section, nous nous intéressons aux effets mémoires sur le chauffage des décharges NRP à la fréquence la plus élevée de notre alimentation. Les effets mémoires sur la température dans les décharges NRP luminescentes ont déjà été étudiés par Pai *et al.* [17]. Dans leurs analyses, les auteurs ont réussi à mettre en concordance la transition du régime luminescent vers le régime étincelle à cause de l'élévation en température, suite à l'application d'une série de décharges luminescentes. Ils montrent donc que la répétition à haute fréquence peut avoir des conséquences sur la nature même du régime de décharge juste à cause de la thermique.

Dans les conditions $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$, $d_{gap} = 200 \text{ }\mu\text{m}$ et $d_{gap} = 1 \text{ mm}$, nous avons obtenu T_{rot} proche de la température ambiante ce qui indique qu'il n'y a pas de chaleur rémanente entre chaque impulsion (voir section 5.2.1). En fonctionnement continu, la fréquence maximale du générateur est $F_{NRP} = 30 \text{ kHz}$ alors que, pour une salve de deux décharges consécutives, $F_{NRP} = 34 \text{ kHz}$.

La température pouvant être importante et éprouvante pour le matériel de l'expérience, nous préférons utiliser des schémas de salves de décharges afin de limiter l'endommagement des électrodes. Malgré cette limitation, nous serons capables de tirer le caractère essentiel du chauffage pour les fréquences F_{NRP} importantes.

La première expérience consiste à observer s'il y a un effet mémoire important selon l'utilisation d'une distance inter-électrodes micrométrique et millimétrique, sur cinq impulsions consécutives. Pour cela, nous utilisons le schéma de salve 70A pour deux gaps différents : $d_{gap} = 200 \text{ }\mu\text{m}$ et 2 mm . En souhaitant étudier la comparaison la plus juste, nous choisissons de maintenir constante, l'énergie linéique $U_{plasma}/d_{gap} = cst = 570 \text{ }\mu\text{J. mm}^{-1}$.

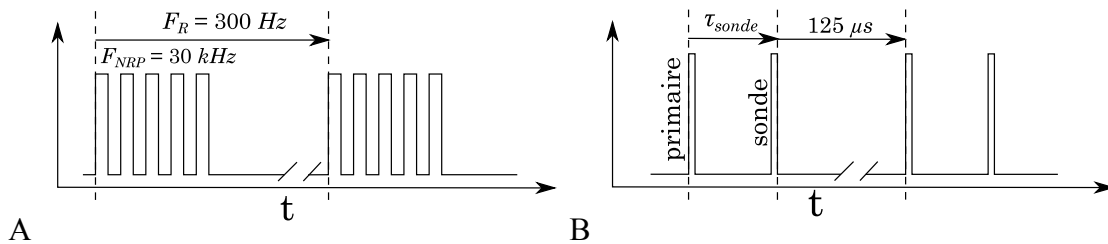


Figure 70: Schéma de salves temporelles utilisées pour l'obtention des données des figures 71 (A) et 72 (B). A) Un schéma répété à une fréquence de $F_r = 300 \text{ Hz}$, de 5 impulsions séparées par $T_{NRP} = 33 \text{ }\mu\text{s}$. B) Un schéma de deux impulsions est utilisé afin d'estimer la température dans la phase de recombinaison pour $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$.

Comme pour le cas précédent, nous utilisons l'OES afin de mesurer la température avec un accès à cette quantité seulement lorsque le SPS $N_2(C \rightarrow B)$ émet. Afin de ne pas répéter les impulsions trop longtemps pour ne pas endommager les électrodes, le signal est intégré sur tout le gap et un temps d'exposition $t_{exp} = 5 \text{ ns}$ est utilisé. Il en résulte une mesure plutôt représentative du milieu du plasma, par rapport à la mesure précédente qui était spatialement résolue.

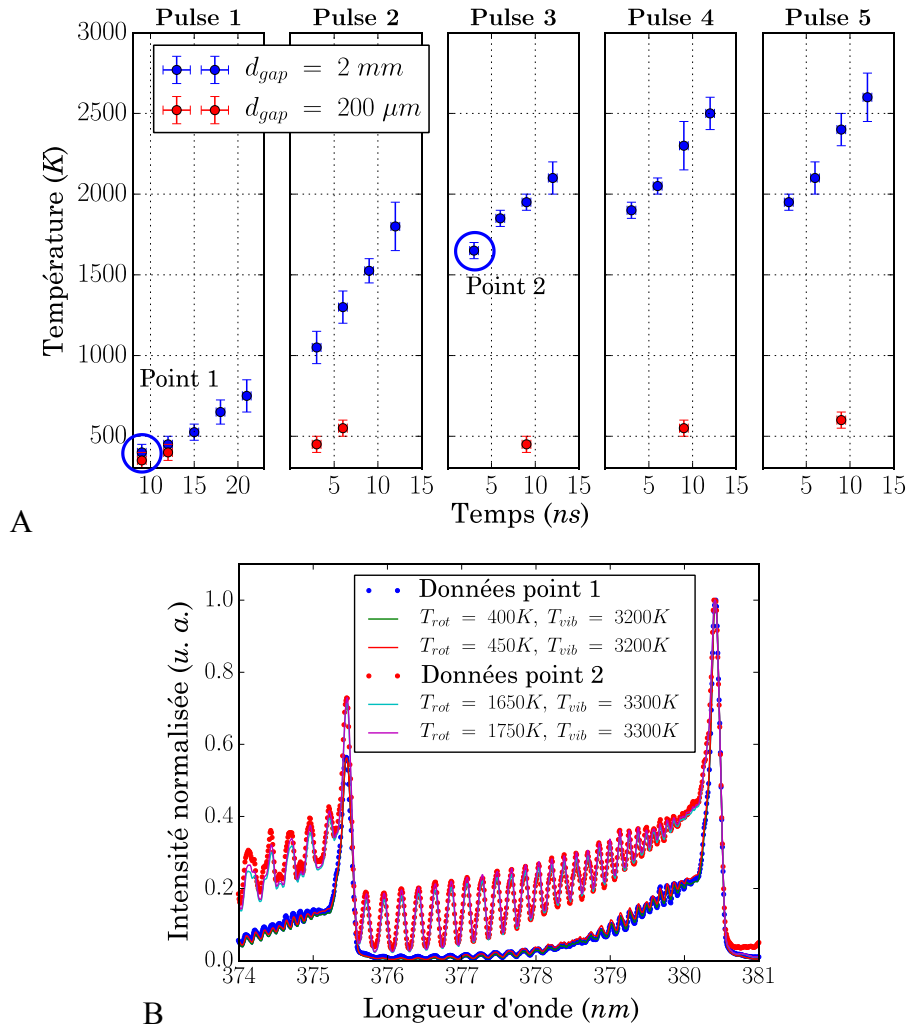


Figure 71: Étude de l'effet mémoire sur la température pour une décharge avec $d_{gap} = 2 \text{ mm}$ et $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ selon la figure 70A. Dans les deux cas, le rapport \hat{U}_{plasma}/d_{gap} est maintenu constant et la lumière est intégrée sur toute la décharge A) T_{rot} est mesurée sur les cinq impulsions en fonction du temps. B) Exemple de comparaison avec des spectres numériques générés par Specair. Les points correspondent aux points entourés sur la figure A.

La figure 71A résume les principaux résultats sur une salve de cinq impulsions (figure 70A) et la figure 71B présente des comparaisons entre spectres expérimentaux et simulés pour deux différents points de mesure pour $d_{gap} = 2 \text{ mm}$ dont le moment et la température sont affichés sur la figure 71A.

Comme observés dans la partie 5.2.1, les pas de temps disponibles pour effectuer une mesure de température assez précise sont moins nombreux en rétrécissant le gap de 2 mm à 200 μm à cause de l'émission des ions atomiques et du fond continu. Mais le résultat le plus important est que les régimes établis de température déterminée par la première mesure dans le temps, sont différents, entre les deux cas.

Pour le cas $d_{\text{gap}} = 2 \text{ mm}$, l'énergie thermique entre deux impulsions s'accumule et le gaz n'arrive pas à se refroidir. Nous observons qu'après 5 impulsions, le chauffage excède 2500 K avec la configuration $d_{\text{gap}} = 2 \text{ mm}$ alors que dans le cas micrométrique, la température, inférieure à 600 K, ne change pas significativement.

Selon l'analyse de la section 5.1.2 traitant de la convection du noyau thermique, nous faisons l'hypothèse que le refroidissement dans l'espace inter-électrodes est principalement lié à ce phénomène.

Afin de valider cette hypothèse et de mieux comprendre pourquoi le cas millimétrique est sujet à un chauffage plus important, nous allons étudier le cas de $d_{\text{gap}} = 1 \text{ mm}$ et $F_{\text{NRP}} = 8 \text{ kHz}$ en fonctionnement continu. Nous allons définir la décharge générée tous les $T_{\text{NRP}} = 1/F_{\text{NRP}} = 125 \mu\text{s}$: la décharge primaire. Nous rajoutons ensuite une décharge « sonde » à différents délais τ_{sonde} poursuivant la décharge primaire qui sert uniquement comme une sonde de T_{gaz} . Le claquage permettra la réémission du SPS $\text{N}_2(\text{C} \rightarrow \text{B})$ dans la phase de recombinaison de la décharge primaire. Ce principe de fonctionnement est illustré par la figure 70B.

La figure 72A présente le profil de température avec six valeurs différentes de τ_{sonde} allant du minimum jusqu'à la valeur $\tau_{\text{sonde}} = 45 \mu\text{s}$. Afin de pallier aux faiblesses de notre méthodologie, nous avons mesuré T_{gaz} de la décharge primaire en utilisant $\tau_{\text{sonde}} = 29,4 \mu\text{s}$. Nous reportons les données avec le libellé « primaire ». Nous observons que cette courbe n'est pas significativement différente du résultat obtenu figure 67B et donc la décharge « sonde » ne perturbe pas la décharge sous étude.

Nous observons que la température au voisinage des électrodes ne change pas significativement en fonction de τ_{sonde} , *a contrario* du milieu de l'espace inter-électrodes. A $x = 0,4 \text{ mm}$ par exemple, une baisse de température de 1000 K jusqu'à 500 K est constatée lorsque τ_{sonde} varie de 29,4 μs à 40,4 μs . Le transfert de chaleur n'opère donc pas à la même vitesse dans le gap, pendant la phase post décharge.

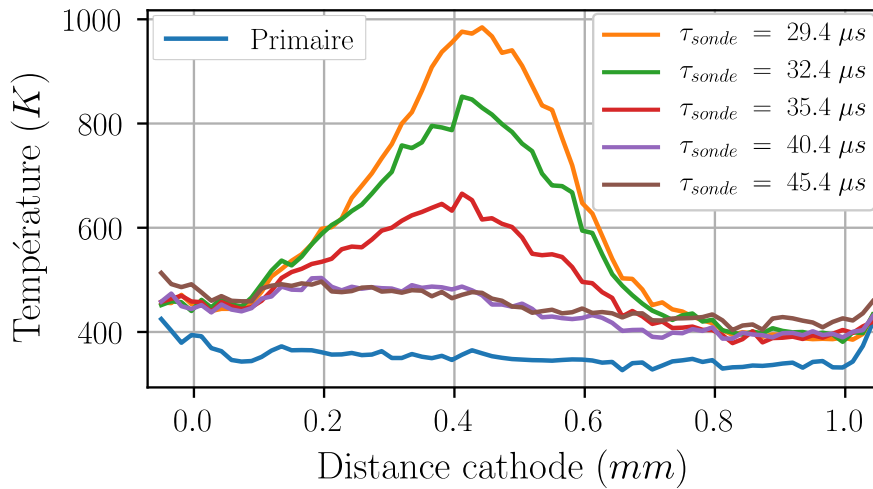


Figure 72: Étude spatiale de l'effet mémoire sur la décharge avec $d_{gap} = 1$ mm selon la figure 70B. Température rotationnelle de la décharge sonde le long de l'espace inter-électrodes pour plusieurs temps inter-impulsion τ_{sonde} . La température rotationnelle de la décharge sonde est montrée en bleu.

Nous observons donc deux zones proches des électrodes où la température reste constante. Si nous estimons la constante de temps de la diffusion thermique, elle devrait être de l'ordre de $\tau_{cond} = l^2 / 4D_T = 100 \mu s$ pour $D_T \sim 10^{-4} m^2 \cdot s^{-1}$ et $l = 200 \mu m$ (taille de la zone refroidie). La décroissance de T_{rot} que nous observons est donc due à la convection du noyau thermique. La forme du profil serait liée à la forme que prend le noyau chaud. Nous pouvons la deviner en observant les visualisations Schlieren dans la littérature, notamment celles que nous reportons sur les figures 65A et 66C. En effet, le délai sur ces figures après application de l'impulsion est de $t \approx 30 \mu s$: cela correspond au moment où l'air frais remplace le gaz seulement au voisinage des électrodes. De la chaleur rémanente est donc conservée au milieu de l'espace inter-électrodes.

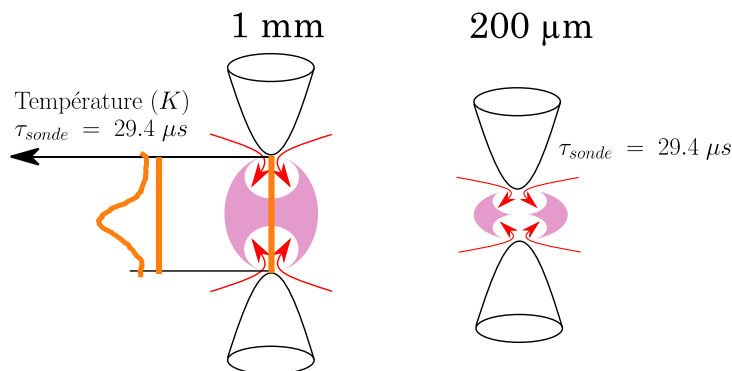


Figure 73: Schéma de l'expansion thermique pour $d_{gap} = 1$ mm et $d_{gap} = 200 \mu m$.

Dans un premier temps, nous avons comparé deux distances inter-électrodes avec des énergies linéiques équivalentes par impulsion. Le cas micrométrique ne montre pas d'élévation de la température significative avec $F_{NRP} = 30$ kHz alors que le cas millimétrique montre un chauffage de 1500 K. En réalisant des mesures spatialement résolues pour $d_{gap} = 1$ mm,

nous avons observé un profil de température avec un refroidissement plus rapide le long des électrodes. Ce refroidissement correspondrait à l'expansion du noyau thermique de la décharge étudiée dans la section 5.1.2. Nous schématisons ce principe sur la figure 73. Celle-ci indique la forme que prendrait le noyau thermique et le profil de température dans le gap. L'utilisation d'un gap micrométrique permettrait donc d'évacuer le gaz chauffé plus rapidement. Ce constat est vérifié expérimentalement avec la figure 65 reprise de Kono *et al.* [166].

Adopter une configuration micrométrique permet donc de générer des décharges à des fréquences de répétition plus importantes sans changer significativement la densité du gaz.

5.3 Analyse de la cinétique chimique des décharges NRP-micro-plasmas

Dans cette section, nous analyserons la chimie du régime NRP micro-plasma pour $F_{NRP} = 8kHz$ et $d_{gap} = 200 \mu m$ dans la phase de recombinaison. A cette fin, nous prenons la densité des électrons n_e comme point de départ de notre analyse.

Nous commencerons avec la section 5.3.1 dans laquelle nous présenterons les mesures de n_e . La section 5.3.2 reprendra les mesures de T_e et de n_e afin de déterminer la provenance du fond continu. Cela nous permettra de faire des hypothèses sur la décroissance de T_e . Nous utiliserons les résultats des deux premières sections dans la partie 5.3.3 afin de comprendre la cinétique des électrons. Enfin la dernière section 5.3.4 portera sur l'émission de $O(3p^5P)$ et $N(3p^4S^o)$ et nous déduirons des résultats précédents que l'émission de ces lignes est fortement liée à la recombinaison des électrons.

5.3.1 Densité d'électrons

La densité électronique est représentative du niveau de l'activité chimique ayant cours dans le plasma. Dans cette section, nous allons compléter les mesures de n_e pendant la phase de recombinaison de la décharge présentée dans la section 4.4.1 du chapitre 4.

Dans la section 5.1.2, nous avons dimensionné une pression dans le filament $P \approx 7 atm$. Si le rapport P/T n'est pas conservé, comme c'est le cas si le gaz est fortement dissocié, l'élargissement de Van der Waals peut être significatif. La ligne la plus sensible à cet élargissement est la raie H_α : dans nos conditions, cela peut apporter une surestimation de $1.5 \times 10^{18} cm^{-3}$ lorsque $n_e = 1 \times 10^{19} cm^{-3}$. Cette erreur de 15 % n'est pas significative en comparaison de l'erreur sur l'estimation de T_e (voir section 3.3.2.2 avec rapport T_e/T_g).

Nous présentons la mesure de n_e sur la figure 74A pour $t \in [0; 500 ns]$ au milieu de l'espace inter-électrodes. La densité électronique maximum atteinte à $t = 12 ns$ est de $1.5 \times 10^{19} cm^{-3}$. La décroissance poursuit deux pentes caractéristiques pour $t \in [12 ns; 50 ns]$ et $t \in [80 ns; 350 ns]$. A $t > 350 ns$, la courbe semble changer de dynamique, mais notre incertitude de mesure devient trop importante, car l'effet Stark entre en compétition avec les autres mécanismes d'élargissement.

Nous avons abordé dans la section 5.1.2, les similarités entre la décharge de Lo *et al.* [170] et notre configuration (tableau 14). Il a été montré dans leur cas que le profil radial de n_e suit la relation $n_e \propto 1/r^2$ pour $t \in [50; 150 \text{ ns}]$ avec r le rayon de la décharge. Dans l'étude susmentionnée, le courant est maintenu élevé jusqu'à $t = 700 \text{ ns}$ et T_e reste stable à plus de 40 kK sur plusieurs dizaines de nanosecondes. Ils ont donc montré la correspondance entre la chute de la densité électronique et l'expansion thermique de la décharge.

Dans nos conditions, il est attendu que n_e chute plus rapidement car le courant est coupé à $t \approx 40 \text{ ns}$. Nous évaluons donc la décroissance de n_e due à l'augmentation du rayon de la décharge.

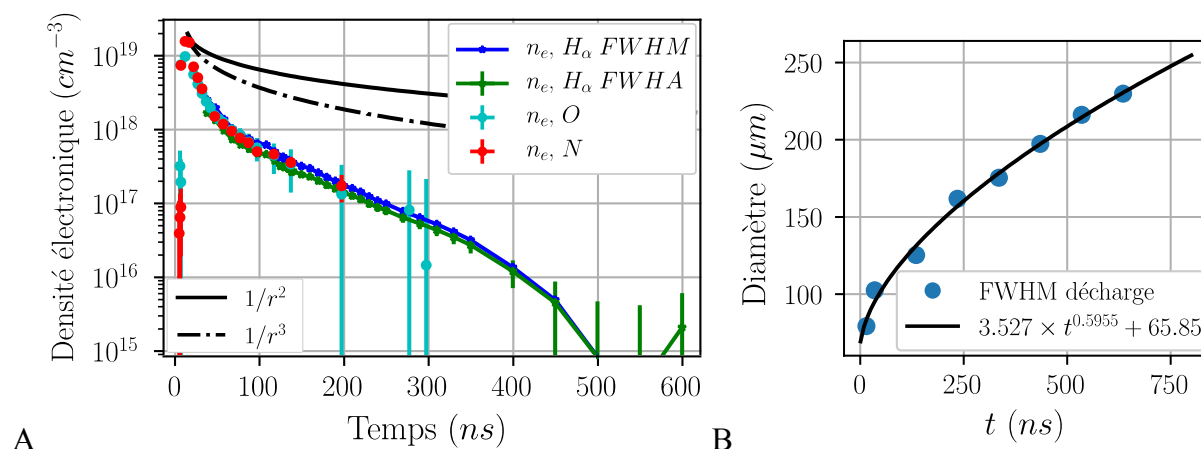


Figure 74: A) Densité électronique dans le micro-plasma ($d_{\text{gap}} = 200 \mu\text{m}$ et $F_{\text{NRP}} = 8 \text{ kHz}$) mesurée par l'élargissement de Stark des lignes H_α , O et N . Les barres d'erreurs sont affichées pour les O , N et H_α depuis la FWHM. Les traits noirs représentent une évolution inverse au carré (trait plein) ou au cube (trait point-) du rayon de la décharge normalisée avec le maximum de n_e , dans notre cas B) Mesure du diamètre de la décharge par l'imagerie ICCD (section 5.1.2).

C'est pourquoi nous avons tracé sur la figure 74A la fonction $\widehat{n}_e \times r^{-2}$. Elle représente l'évolution de n_e dépendante de $1/r^2$. Dans le cas d'un micro-plasma, il peut être attendu que l'évolution soit sphérique avec $n_e \propto 1/r^3$. Nous avons extrait r à partir de la figure 74B. Nous constatons sur la figure 74A que l'évolution de n_e est plus rapide que si $n_e \propto 1/r^3$.

En premier lieu, nous allons décrire nos résultats puis les mettre en concordance avec la bibliographie. Les caractéristiques de ces pentes sont résumées sur le tableau 16 avec d'autres études comparables, nous avons sélectionné des études opérant dans des gaz moléculaires.

Selon le tableau 16, les résultats se rapprochant le plus de notre configuration sont dans l'étude de Horst *et al.* [26] avec une impulsion plus longue de 300 ns dans de l'azote pur et sans résolution spatiale. n_e est mesuré par la même méthode que dans notre étude et les données sont répertoriées dans la première colonne du tableau 16 : les densités maximales sont proches de notre étude. Comme dans notre cas, une première décroissance rapide similaire est observée. De plus, les constantes de temps sur la seconde partie de la courbe sont très similaires.

Les auteurs font l'hypothèse que la température des électrons n'est pas plus importante que $T_e = 10 \text{ kK}$ et que la décharge reste fortement hors-équilibre. Ainsi, pour cette température électronique, ils statuent que pour toutes les réactions provoquant la perte d'un électron, la phase de recombinaison est trop lente.

Les auteurs concluent que la faible constante de temps serait due à une production significative d'électrons pendant cette phase par un mécanisme à deux étapes de recombinaison dissociative suivi d'une association Penning à cause de la forte intensité des lignes de $N(3p^4S^o)$. Les auteurs jugent alors que si la température électronique était supérieure à $T_e > 30 \text{ kK}$, il serait possible de modéliser la courbe de décroissance de n_e par les réactions de recombinaison susmentionnées.

Saint [27] propose une étude dont les résultats sont similaires à certains égards. Le gaz est différent (vapeur d'eau) mais la durée d'impulsion et la fréquence de répétition sont proches. Il observe également la phase homogène précédant la forte augmentation de n_e , et la phase de recombinaison, décrite comme lente. L'auteur indique que la recombinaison est cohérente avec un degré de dissociation important : les ions majoritaires sont des ions monoatomiques.

Tableau 16 : Tableau comparatif répertoriant plusieurs mesures de n_e par l'effet Stark sur H_α pour des décharges pulsées répétitives. Nous reportons le champ électrique réduit E/N , la densité électronique maximum n_{e0} et les temps de décroissance τ_{n_e} . n_e indique la plage sur laquelle τ_{n_e} a été mesuré.

Source	[26]	[125]	[27]	[28]	200 μm	1 mm
Gaz	$N_2 + H_2O$	Air	H_2O	Air, 8 bar	Air	Air
$\overline{E/N}$ (Td)	133 Td	57 Td	200 Td	80 Td	660 Td	320 Td
n_{e0} (cm^{-3})	4×10^{18}	5×10^{17}	3×10^{18}	10^{19}	10^{19}	10^{19}
n_e (cm^{-3})	10^{18} – 10^{16}	5×10^{17} – 10^{16}	3×10^{18} – 10^{17}	$10^{19} - 10^{17}$	$10^{19} - 10^{18}$ $10^{18} - 10^{16}$	\cong
$1/\tau_{n_e}$ (s^{-1}) (1 ^{er})		34 $\times 10^6$	32,9 $\times 10^6$	$104,2 \times 10^6$	$85,5 \times 10^6$	\cong
$1/\tau_{n_e}$ (s^{-1}) (2 nd)	$8,6 \times 10^6$				11×10^6	

Un point important, sur les deux travaux que nous venons de mettre en parallèle avec notre étude, est qu'un diagnostic alternatif pour mesurer la température du gaz a été utilisé. Les deux études présentent un fort degré de dissociation-ionisation et une température peu élevée dans la phase de recombinaison.

Horst *et al.* [26] ont obtenu $T_g < 800 \text{ K}$ par diffusion Rayleigh et Saint, $T_g < 1500 \text{ K}$ par PLIF OH . Ces deux études indiquent qu'un fort taux de dissociation est possible en maintenant un état hors-équilibre dans la phase de recombinaison à $t \sim 1 \mu\text{s}$, cependant ces études ne présentent pas de mesure de T_e .

Des densités électroniques importantes ont été mesurées dans les décharges à barrière diélectrique en haute pression par Shcherbanev [28]. Comparativement aux autres études, la décroissance de densité en fonction du temps est la plus rapide. Ce résultat est attendu, car il y a une surface diélectrique à côté pouvant piéger des charges et la densité du gaz est plus élevée.

Le spectre d'émission de la décharge à $d_{gap} = 1 \text{ mm}$ est différent à plusieurs égards : durée de vie plus importante des spectres moléculaires, fond continu et lignes atomiques des ions moins intenses. Ce résultat serait symptomatique d'une densité d'ions plus faible pour des raisons de champ électrique : il est deux fois moins important et le temps de montée du champ est plus long. Pour le cas $d_{gap} = 1 \text{ mm}$, il est possible d'utiliser l'effet Stark de H_α plus tôt car les raies atomiques de N^+ à proximité et le fond continu perturbent moins la mesure que dans le cas $d_{gap} = 200 \text{ }\mu\text{m}$. De plus, seule la mesure utilisant la FWHA est utilisée pour la figure 75 car nous avons bien exprimé l'incertitude en fonction de T_e et de la pression (voir section 3.3.2.2).

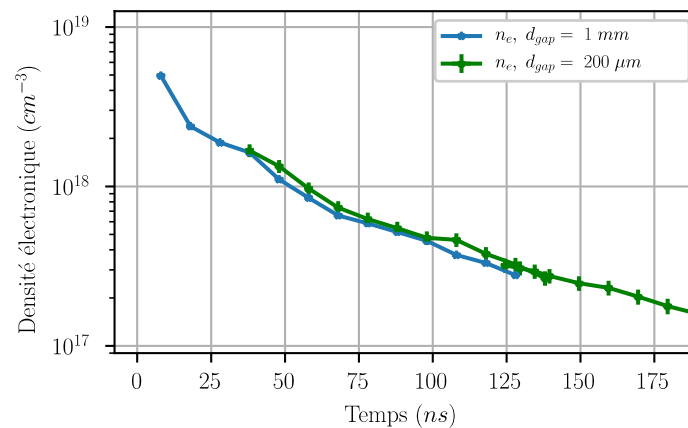


Figure 75: Mesure de densité électronique au milieu de l'espace inter-électrodes par la FWHA de H_α avec $d_{gap} = 200 \text{ }\mu\text{m}$ et $d_{gap} = 1 \text{ mm}$ pour des fréquences $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$.

De façon surprenante, la figure 75 nous montre que les densités électroniques sont comparables et que, en plus, les constantes de temps de la recombinaison des électrons sont équivalentes.

Dans cette section, nous avons décrit l'évolution temporelle de la densité électronique. Deux mécanismes principaux ont été relevés : l'expansion radiale et la recombinaison. Au niveau de l'expansion, nous avons comparé nos données à la littérature, en particulier à l'étude de Lo *et al.* [170] qui présente une décroissance presque entièrement dépendante de l'expansion du noyau thermique. Nous avons étudié cette possibilité, mais il s'est avéré que, dans notre cas, n_e diminue plus vite que ce qui est attendu par expansion radiale cylindrique ou sphérique de la décharge.

En ce qui concerne la chimie, les taux de décroissance de n_e semblent correspondre à ce qui a déjà été vu dans la littérature, en particulier à Horst *et al.* [26]. Leur résultats et ceux de

Saint [27] montrent un degré de dissociation significatif dans la phase de recombinaison avec des densités n_e similaires. Horst *et al.* proposent qu'il y ait toujours un degré important de non-équilibre dans cette phase. Nous pensons que la densité n_e est pilotée par une réaction de recombinaison avec un ion dissocié, et qu'elle est très dépendante de la température T_e . Dans les sections suivantes nous réfléchirons à cette possibilité.

5.3.2 Relaxation de T_e et émission continue

L'une des caractéristiques de la phase filamentaire, étudiée dans les parties précédentes, est la forte émission d'un fond continu. Dans cette section, nous nous intéressons à cette émission car elle est intimement liée à la dynamique des électrons. L'analyse du fond continu est complexe, d'une part, à cause de la contribution de plusieurs mécanismes d'émission et d'autre part, à cause de l'absorption. Pour prendre précisément en compte l'absorption, il est nécessaire de connaître la densité de toutes les espèces à l'état excité ou non.

Du *et al.* [173] décrivent une décharge similaire avec une densité électronique importante de $n_e = 2 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ dans de l'argon et partagent une observation avec notre cas, l'apparition de lignes d'ions précédant l'émission d'un fond continu. Ils concluent en suspectant la présence d'un *bremsstrahlung* ou d'un spectre de corps noir dû aux électrodes. La dynamique très proche montre que la génération de ce fond continu n'est pas exclusive à l'air, ce qui écarte l'émission large bande d'une espèce moléculaire dans l'UV.

Deux raisonnements nous permettent d'éliminer la perspective d'un corps noir : un corps ne peut émettre un rayonnement de corps noir seulement s'il est optiquement opaque [171] (p 268-280). Le plasma est considéré comme opaque si le libre parcours moyen d'un photon l_λ est plus petit que la taille du plasma. Pour de l'air à $T_{gaz} = 50 \text{ kK}$, qui est donc multiplement ionisé, $l_\lambda = 2 \text{ mm}$ [171] (p 280). Cette longueur est supérieure au diamètre de notre plasma.

Le deuxième argument qui serait valable est donné par Shcherbanev *et al.* [174] : si l'émission était due à un phénomène thermique, l'intensité du fond continu augmenterait jusqu'à ce que les processus exothermiques et de relaxation vibrationnelle-translationnelle aient le temps de s'exprimer. Pour notre cas, nous devrions attendre plusieurs microsecondes.

Dans le cas d'une décharge à barrière diélectrique à densité très importante $n_e = 10^{19} \text{cm}^{-3}$, Shcherbanev [28] a isolé un *bremsstrahlung* d'origine recombinaison électrons-ions. Nous allons donc nous contenter de réfléchir à deux mécanismes : les *bremsstrahlung* électrons-ions et électrons-neutres.

Afin d'identifier la source de notre fond continu, nous utilisons les formules provenant de Cabannes *et al.* [175] notamment utilisées par Jordanova *et al.* [176]. La structure générale de l'émission de $I_{cont}(\lambda)$ est donnée par la formule (51) avec $I_{cont}^{ei}(\lambda)$, la contribution des collisions électrons-ions et $I_{cont}^{ea-ff}(\lambda)$, la contribution des collisions électrons-neutres. Le premier est lui-même la contribution du *bremsstrahlung* de recombinaison et de collision avec les ions (formule (52)).

$$I_{cont}(\lambda) = I_{cont}^{ei}(\lambda) + I_{cont}^{ea-ff}(\lambda) \quad (51)$$

$$I_{cont}^{ei}(\lambda) = I_{cont}^{ei-fb}(\lambda) + I_{cont}^{ei-ff}(\lambda) = \left\{ c_1 n_e^2 T_e^{-1/2} \right\} \times \frac{1}{\lambda^2} \xi_{total}^{ei}(\lambda, T_e) \quad (52)$$

$$I_{cont}^{ea-ff} = \left\{ c_2 N n_e T_e^{3/2} \sigma_{e-h}(T_e) \right\} \times f(\lambda, T_e) \quad (53)$$

$$f(\lambda, T_e) = \frac{1}{\lambda^2} \left(1 + \left(1 + \frac{hc}{\lambda k_B T_e} \right)^2 \right) \exp \left(1 + \frac{hc}{\lambda k_B T_e} \right)$$

La contribution $I_{cont}^{ei}(\lambda)$ peut être calculée avec la formule (52) avec une constante $c_1 = 1,6321 \times 10^{-43} \text{ Jm}^4 \text{ K}^{1/2} \text{ s}^{-1} \text{ sr}^{-1}$, et le facteur de Biberman ξ_{total}^{ei} qui est une fonction de λ et de T_e . ξ_{total}^{ei} n'a pas été calculé mais d'après Cabannes *et al.* [175], dans une gamme $T_e \in [1 \text{ eV}; 2 \text{ eV}]$, et $\lambda \in [350 \text{ nm}; 750 \text{ nm}]$, ξ_{total}^{ei} varie entre 1,2 et 1,8 pour l'argon.

La variation de ξ_{total}^{ei} peut donc être considérée comme négligeable devant les décades de variation de n_e : nous en déduisons $I_{cont}^{ei} \propto n_e^2 T_e^{-1/2}$.

Quant à la contribution de I_{cont}^{ea-ff} , elle peut être calculée à partir de la formule (53) avec $c_2 = 1,026 \times 10^{-34} \text{ Jm}^2 \text{ K}^{3/2} \text{ s}^{-1} \text{ sr}^{-1}$, N la densité du gaz, et $\sigma_N(T_e)$ la section efficace pour les collisions entre particules lourdes et les électrons. La densité du gaz N varie selon deux paramètres, la dissociation-recombinaison des espèces dans la décharge et l'expansion thermique, abordée dans la section précédente (figure 74B). Nous utilisons les données de Wright *et al.* [177] afin d'estimer la variation du produit de la section efficace et de la densité du gaz par dissociation-recombinaison : $N\sigma_N(T_e)$.

Les auteurs indiquent pour $T_e \in [5 \text{ kK}; 20 \text{ kK}]$ que la section efficace intégrée sur les collisions entre $e - O$ devrait être comprise entre $1 - 1,2 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$, pour $e - N$, entre $2 - 3,3 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$, pour $e - N_2$, et $3,3 - 4 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ pour $e - O_2$, elle devrait être constante à $2 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$. Le produit entre la section efficace et la variation de la densité du gaz par dissociation-recombinaison $N\sigma_{e-h}(T_e)$ ne varie pas de plus d'un facteur $\times 2$ sur $T_e \in [5 \text{ kK}; 20 \text{ kK}]$. Pour la variation de N avec l'expansion du canal formé par la décharge, nous avons montré dans la section 5.3.1 que N peut varier significativement en fonction de $1/r^2$.

En bilan, nous pouvons résumer : $I_{cont}^{ei} \propto n_e^2 T_e^{-1/2}$ et $I_{cont}^{ea-ff} \propto n_e T_e^{3/2} r^{-2} f(\lambda, T_e)$.

Nous l'avons constaté dans la section 5.3.1 : n_e poursuivait une décroissance exponentielle. Nous avons tracé sur la figure 76, n_e , r^{-2} et l'intensité normalisée du fond continu. Les mesures ont été moyennées sur plusieurs points au centre de l'espace inter-électrodes. Nous mettons en évidence en rose sur la figure 76 la région sur laquelle nous réalisons notre analyse. Nous observons que l'intensité suit une évolution similaire à n_e pour $t < 400 \text{ ns}$, avec cependant des pentes différentes dans l'échelle logarithmique.

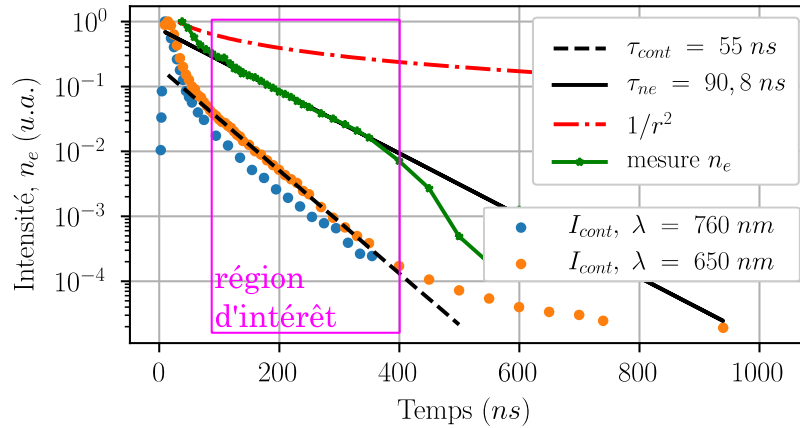


Figure 76: Intensité du fond continu normalisée par rapport à la densité électronique n_e au milieu du gap avec $d_{\text{gap}} = 200 \mu\text{m}$ et $F_{\text{NRP}} = 8 \text{ kHz}$. En bleu, des points obtenus à partir du fond à $\lambda = 760 \text{ nm}$. Les points orange ont été obtenus de la même expérience que pour les spectres de H_{α} , ils représentent le fond à $\lambda = 650 \text{ nm}$. La région d'intérêt de notre analyse est indiquée en rose.

Pour $t \in [50 \text{ ns} ; 400 \text{ ns}]$ nous obtenons une décroissance exponentielle de l'intensité du fond continu $\tau_{\text{cont}} = 55 \text{ ns}$, ce qui nous permet d'énoncer la règle suivante : si l'ensemble des processus intervenant dans cette émission peuvent être modélisés par des fonctions exponentielles alors la décroissance de T_e est également exponentielle. Dans le cas le plus simple, si T_e s'exprime par une fonction de la forme (54) et que le mécanisme de production est l'émission $I_{\text{cont}}^{\text{ei}}$, alors τ_{T_e} peut être exprimé par l'équation (55) :

$$T_e = T_{e0} \times \exp(-(t-t_0)/\tau_{T_e}) \quad (54)$$

$$\tau_{T_e} = [-2/\tau_{\text{cont}} + 4/\tau_{n_e}]^{-1} \approx 130 \text{ ns} \quad (55)$$

Cela est moins évident dans le cas de $I_{\text{cont}}^{\text{ea-ff}}$ à cause de l'expression de $f(\lambda, T_e)$ et de r^{-2} . Nous approximons donc $f(\lambda, T_e) \approx \text{cst} \times T_e^{C_3}$ et $r^{-2} \approx \text{cst} \times \exp(-t/\tau_r)$ avec $\tau_r = 300 \pm 15 \text{ ns}$ et $C_3 = 0,55 \pm 0,05$ respectivement.

Dans ce cadre et si $I_{\text{cont}}^{\text{ea-ff}}$ est prédominant alors τ_{T_e} s'exprime selon l'équation (56) :

$$\tau_{T_e} = [3/2 + C_3][1/\tau_{\text{cont}} - 1/\tau_r - 1/\tau_{n_e}]^{-1} \approx 521 \pm 50 \text{ ns} \quad (56)$$

Nous allons maintenant analyser les décroissances estimées et déterminer quel est le mécanisme d'émission de fond continu prépondérant. Nous utilisons pour cela la figure 77 qui récapitule nos mesures de la section 5.2.2 ainsi que les estimations en utilisant l'équation (54) avec $t_0 = 30 \text{ ns}$ et $T_{e0} = 37 \text{ kK}$.

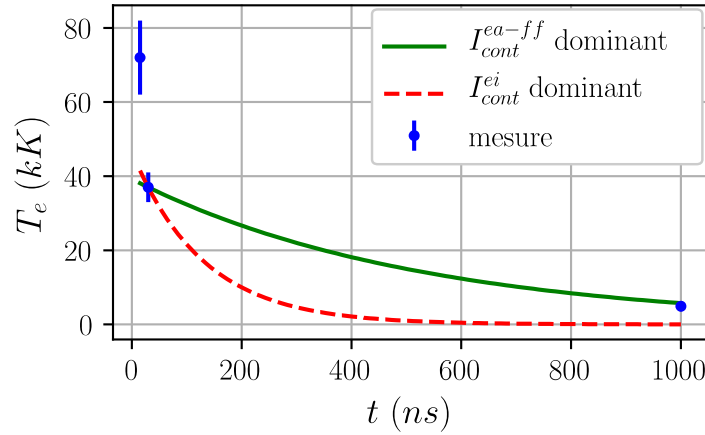


Figure 77: Résumé des mesures de T_e de la section 5.2.2 en parallèle avec l'estimation à partir de l'émission continue en utilisant le point à $t = 30$ ns comme condition initiale. Une autre estimation selon n_e en utilisant l'équation (58) et (78).

De prime abord, les courbes de la figure 77 semblent montrer que le modèle utilisant le *bremsstrahlung* électrons-neutres dominant est plus cohérent que le *bremsstrahlung* électrons-ions. En effet, le modèle de I_{cont}^{ei} pour $t \in [100 \text{ ns}, 400 \text{ ns}]$ tombe en dessous de 5000 K pour $t < 400 \text{ ns}$ alors que nous avons mesuré $T_e = 4850 \text{ K}$ à $t = 1 \mu\text{s}$ dans la section 5.2.2.

Dans la section suivante nous utiliserons ces résultats sur la dynamique de T_e afin de déduire la cinétique des électrons.

5.3.3 Cinétique des électrons

Les sections précédentes ont porté sur les mesures de T_e et n_e . Dans cette partie nous allons utiliser ces données afin de déterminer quelles sont les réactions qui pilotent la phase de recombinaison de la décharge pour $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ et $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$.

En premier, nous nous appuyons sur la méthodologie de Benilov et Marotta [178] afin d'expliquer la cinétique chimique de notre décharge. Cette méthode permet de sortir les libres parcours moyens pour répondre à la question suivante : quelles devraient être les interactions les plus fortes dans le plasma ? Cela permet aussi de montrer la catégorie dans laquelle se place un type de décharge.

Le libre parcours moyen des électrons par rapport aux espèces neutres $\lambda_N = 1/N\sigma_N$ avec σ_N provient des données de Wright [177] utilisées dans la section 5.3.2 (valable pour $T_e \in [5 \text{ kK}, 20 \text{ kK}]$). Pour un gaz complètement dissocié avec $N = 2 \times 1,98 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et $\sigma_N \approx 3 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$, $\lambda_N \approx 1 \mu\text{m}$. Cette longueur permet de calculer la longueur caractéristique de la relaxation de T_e : $\lambda_{T_e} = \lambda_N/\sqrt{\delta}$. Contrairement à λ_N , λ_{T_e} est très sensible à l'espèce neutre considérée, puisque pour un atome, la fraction d'énergie perdue par électron s'écrit $\delta = 2m_e/m_0$.

Pour l'air, gaz composé de molécules possédant des niveaux ro-vibroniques, l'énergie d'un électron est plus vite dégradée avec $\delta \approx 100$ [179]. Ainsi, si notre gaz est atomique alors

$\lambda_{T_e} = 115 \mu m$ tandis que s'il est moléculaire $\lambda_{T_e} = 0,1 \mu m$, cela représente un facteur $\times 10^3$ entre les deux.

Dans l'argon, Du *et al.* [173] ont mesuré $\tau_{n_e} = 270 ns$ et $\tau_{T_e} = 400 ns$. Ces ordres de grandeur sont proches de nos résultats ($\tau_{n_e} = 90,8 ns$ et $\tau_{T_e} = 520 ns$). Cela semble indiquer que les longueurs caractéristiques λ_{T_e} sont similaires : c'est-à-dire que l'air est complètement dissocié. Dans les mêmes conditions dans l'argon, à pression atmosphérique, nous estimons $\lambda_N \approx 1 \mu m$ (avec $\sigma_N = 3 \times 10^{-16} cm^2$ selon [180]) et $\lambda_{T_e} = 190 \mu m$.

A partir de l'idée que l'air est totalement dissocié, la température électronique T_e peut se modéliser par une exponentielle décroissante de la forme $T_{e0} \exp(-t/\tau_{T_e})$. De plus, si la réaction de recombinaison à trois corps R9 est prédominante, alors il est possible de poser l'équation différentielle (57) :

$$\begin{aligned}
 \text{R9} \quad A^+ + e + e &\rightarrow A + e & k_3 &= 10^{-19} \left(300/T_e\right)^{4,5} cm^6 s^{-1} & [165] \\
 \\
 \frac{dn_e}{dt} &= -k_A n_e^3 \exp\left(\frac{t}{\tau_A}\right) \rightarrow \frac{dn_e^{-2}}{dt} = 2k_A \exp\left(\frac{t}{\tau_A}\right) \\
 k_A &= 10^{-19} \times \left(\frac{300}{T_{e0}}\right)^{4,5} & (57) \\
 \tau_A &= \tau_{T_e}/4,5
 \end{aligned}$$

L'équation (58) est la solution de l'équation différentielle (57) et nous permet de tracer l'évolution de n_e prédite avec les mesures expérimentales sur la figure 78.

$$n_e(t) = \frac{n_{e0}}{\sqrt{1 + 2k_A \tau_A n_{e0}^2 (\exp(t/\tau_A) - 1)}} \quad (58)$$

La figure 78 nous montre que l'évolution de la densité électronique n'est pas parfaitement décrite par l'équation (58) lorsque nous utilisons les estimations décrites dans les parties précédentes à $t = 30 ns$, où $T_e = 37 kK$, $n_e = 3 \times 10^{18} cm^{-3}$ et $\tau_{T_e} = 520 ns$ ou $130 ns$ (équations (55) ou (56) selon le type de *bremsstrahlung*). Il est néanmoins parfaitement possible d'utiliser des paramètres qui vont faire correspondre la simulation à la courbe expérimentale avec $T_{e0} = 44 kK$ et $\tau_{T_e} = 186 ns$. Nous avons tracé T_e avec ces paramètres sur la figure 77.

Nous observons donc que la constante de temps estimée par l'équation (58) est plus proche de notre estimation utilisant le *bremsstrahlung* électrons-ions. De plus, $T_e = 44 kK$ pour $t = 30 ns$ ce qui est proche de notre T_e mesuré par la méthode de la droite de Boltzmann de la section 5.2.2 dans un intervalle de 20 %.

La figure 78 montre donc que la décroissance de n_e peut être modélisée par l'équation (58) et que le résultat est cohérent avec la mesure de T_e .

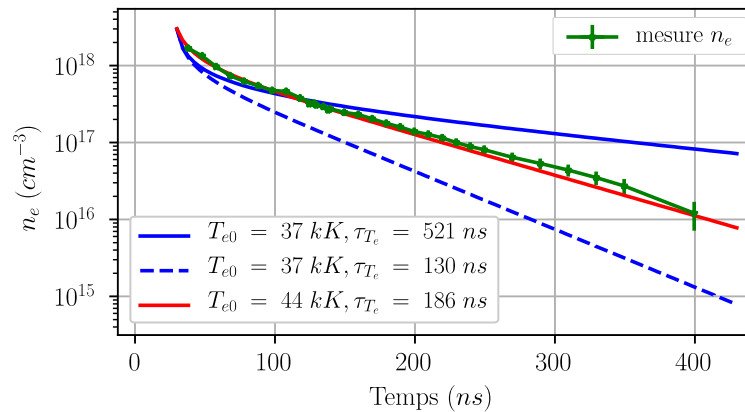


Figure 78: Modélisation de n_e dans la phase de recombinaison de la décharge $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ et $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ avec les paramètres estimés (ligne bleue) et avec des paramètres optimisés pour correspondre à la mesure de n_e (ligne rouge). T_{e0} représente la température électronique pour $t = 30 \text{ ns}$.

Nous avons cherché à connecter la variation de T_e et de n_e . Dans la section précédente, c'était par l'intermédiaire de l'émission du fond continu. Dans cette section, c'est par la réaction de recombinaison à trois corps R9 et l'équation (58). Visiblement la combinaison de ces deux raisonnements n'a pas permis de modéliser la cinétique des électrons de manière satisfaisante. Toutefois, un accord pourrait être trouvé si des réactions supplémentaires étaient prises en compte. Une perte supplémentaire d'électrons aurait concilié la décroissance de n_e et le modèle du fond continu pour le *bremsstrahlung* électrons-neutres dominant. À l'inverse, une production d'électrons supplémentaires, comme l'ionisation associative, pendant la phase de recombinaison aurait validé le modèle du *bremsstrahlung* électrons-ions.

De nouvelles mesures de T_e dans la phase de recombinaison pourraient permettre de valider l'analyse sur le fond continu. Dans la section suivante, nous nous attarderons sur la cinétique chimique de $N(3p^4S^o)$ et de $O(3p^5P)$. La densité de ces espèces serait intimement liée à la recombinaison et donc à la réaction R9 que l'on peut utiliser sans hypothèse sur T_e .

5.3.4 Cinétiques atomiques des états excités $N(3p^4S^o)$ et de $O(3p^5P)$

Les espèces réactives O et N ainsi que plusieurs de leurs dérivés (NO , NO_x , O_3 ...) sont utiles pour un grand nombre d'applications. C'est pourquoi dans cette section, nous analysons l'émission de $N(3p^4S^o)$ et $O(3p^5P)$ et la réaction qui pilote leur densité.

La figure 79 présente l'émission des espèces excitées $N(3p^4S^o)$ et $O(3p^5P)$ respectivement à 746 nm et 777 nm . Le fond affiché continu est pris entre ces deux raies. Nous avons confirmé que le premier système positif $N_2(B \rightarrow A)$, qui aurait pu se superposer dans cette gamme de longueur d'onde, est absent (voir section 5.1.1, et section 4.4.2 chapitre 4). Après avoir montré des mesures identiques de densité électronique entre les deux distances inter-électrodes d_{gap} dans la section 5.3.1, nous constatons que la dynamique du fond continu et que l'émission des lignes atomiques est également identique.

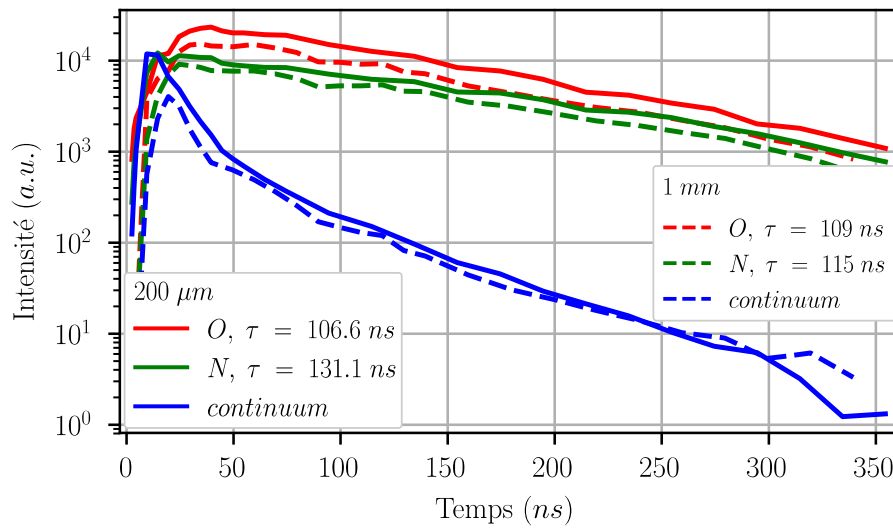


Figure 79: Émission des lignes atomiques O (777 nm) et N (746 nm) pour $d_{gap} = 200 \mu m$ et $d_{gap} = 1 mm$ pour des conditions expérimentales identiques ($F_{NRP} = 8 kHz$), moyennées sur sept points au milieu du gap, $t_{exp} = 3 ns$ avec le réseau 600 traits/mm.

Les énergie hautes E_k et les temps de vie naturels τ_{0N} et τ_{0O} des niveaux $N(3p^4S^o)$ et $O(3p^5P)$ sont rappelés dans le tableau 17. De plus, ce tableau montre des temps de décroissance caractéristiques pour des décharges nanosecondes proches de nos conditions. Les temps sont très similaires à notre cas et il n'y a pas de différences significatives entre les cas $d_{gap} = 1 mm$ et $d_{gap} = 200 \mu m$. Qualitativement, si les réactions qui pilotent les densités de $N(3p^4S^o)$ et $O(3p^5P)$ sont les mêmes alors, la différence entre $\tau_N > \tau_O$ pourrait simplement être due à $\tau_{0N} > \tau_{0O}$.

Nous avons déjà parlé de l'étude de Horst *et al.* [26] dans le cadre des temps de décroissance de n_e très similaires à notre étude : ils présentent également des temps de décroissance de l'émission de $N(3p^4S^o)$ similaires $\tau_N = 92 ns$ dans de l'azote pur et $\tau_N = 120 ns$ dans le cas où une faible portion d'eau est ajoutée. L'auteur explique cette différence à cause d'une densité électronique plus importante et d'une recombinaison des électrons légèrement plus lente lorsque de la vapeur d'eau est ajoutée.

Tableau 17 : Caractéristiques spectroscopiques de raies atomiques pour les espèces « i ».

i	$E_k(eV)$	$\tau_{0i}(ns)$	$\tau_i(ns)$				
			1 mm	200 μm	H_2O [27]	N_2 [26]	$N_2 - H_2O$ [26]
$O(5P) 777 nm$	10,7	27,1	109	106,6	131		
$N(3p^4S^o) 746 nm$	12	51	115	131,1		92	120

Nous avons montré dans les sections 5.3.1 et 5.3.2 que la densité électronique était vraisemblablement pilotée par une réaction à trois corps R9 malgré un défaut du modèle sur la figure 78.

L'émission des raies d'espèces atomiques excitées devrait être pilotée par la décroissance de la densité électronique. C'est pourquoi nous allons utiliser la variation de n_e de la forme $n_e \approx n_{e0} \exp(-t/\tau_{ne})$ intervenant pour $t \in [50 \text{ ns}; 400 \text{ ns}]$ afin de modéliser l'émission de $N(3p^4S^o)$. Nous réalisons les hypothèses suivantes :

- nous négligeons l'excitation et la désexcitation par collisions ainsi que le repeuplement depuis les niveaux supérieurs ;
- $\tau_{ne} = 90,8 \text{ ns}$ (figure 74A) ;
- la densité n_i d'une espèce i ($N(3p^4S^o)$ ou $O(3p^5P)$) est peuplée suite à chaque électron recombinaison et dépeuplé uniquement par émission spontanée ;

Dans le cadre de ces hypothèses fortes, $I_i \propto n_i$ et nous écrivons l'équation (59) :

$$n_e \approx n_{e0} \exp(-t/\tau_{ne})$$

$$\frac{dn_i}{dt} = -\frac{dn_e}{dt} - \frac{n_i}{\tau_{oi}} \quad (59)$$

$$n_i(t) = \frac{n_{e0}\tau_{oi}}{\tau_{ne} - \tau_{oi}} \exp\left(-\frac{t}{\tau_{ne}}\right) + \left[n_{i0} - \frac{n_{e0}\tau_{oi}}{\tau_{ne} - \tau_{oi}}\right] \exp\left(-\frac{t}{\tau_{oi}}\right)$$

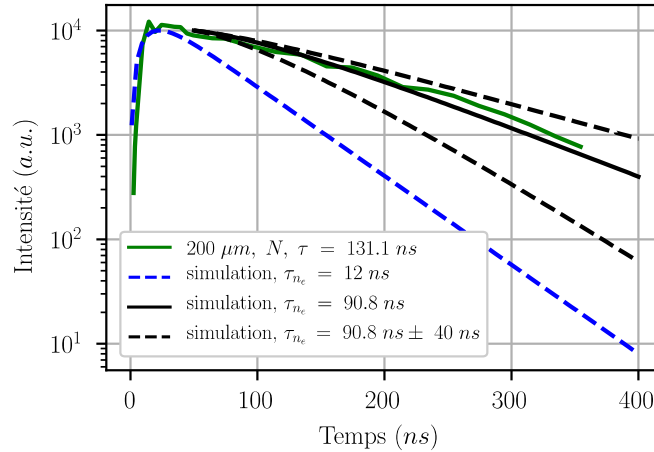


Figure 80: Courbe expérimentale de l'intensité de la ligne de $N(3p^4S^o)$ à 746 nm superposée à plusieurs simulations. La simulation correspondant à τ_{ne} correspond à la détermination de la valeur initiale (pointillés bleus). En trait noir, la simulation est présentée avec en traits pointillés noirs des simulations permettant d'apprécier la sensibilité à τ_{ne} . Les intensités sont normalisées par rapport aux données expérimentales.

Nous affichons les résultats de la modélisation sur la figure 80 en nous focalisant sur $i = N(3p^4S^o)$. Pour la valeur initiale de n_e , nous avons pu l'obtenir expérimentalement $n_{e0} =$

$1,5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, mais pour la densité initiale de $N(3p^4S^o)$ notée n_{i0} , nous avons utilisé l'équation (59) avec une valeur initiale de $n_{i0}(t = 0 \text{ ns}) = 0$ en utilisant la décroissance de n_e dans les premières nanosecondes $\tau_{ne} = 12 \text{ ns}$ (voir tableau 16 section 5.3.1). Cela nous permet d'estimer $n_{i0}(t = 30 \text{ ns}) \approx 0,3 \times n_{e0}$. Une bonne correspondance est observée en utilisant l'équation (59) et $\tau_{ne} = 90,8 \text{ ns}$ malgré les hypothèses pour réduire le mécanisme à l'équation (59) uniquement. Nous proposons ensuite la réaction R9, comme mécanisme principal alimentant les états excités de N et O . Cela implique que la réaction R9 serait la principale source de perte des électrons.

Finalement, la plus grosse implication à propos de la phase filamentaire serait que peu importe la distance inter-électrodes, et par extension le champ électrique appliqué, la cinétique des électrons, c'est-à-dire n_e et T_e , restera la même. Cela expliquerait la correspondance entre les constantes de temps observées dans la littérature. Cela pose les questions suivantes sur la phase filamentaire : quel est le mécanisme de création de charges mais aussi quel est le mécanisme qui pilote le chauffage des électrons. De plus, nous avons soulevé la question dans la section 5.3.1 si l'ETL était atteint.

5.4 Conclusion

Ce chapitre a principalement traité de deux aspects importants dans la phase de recombinaison : l'expansion du noyau chaud et la cinétique de recombinaison des électrons.

Dans la section 5.1.2, nous nous sommes intéressés aux caractéristiques spatio-temporelles et à l'expansion du noyau thermique de la décharge avec des images ICCD. Aux échelles de temps de la microseconde, la décharge s'élargit et prend une forme elliptique : cela correspond à l'évolution en forme toroïdale observée dans la littérature. Nous avons comparé ces taux d'expansion avec les études existantes. Il en ressort que la décharge étudiée pour $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ et $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ ne devrait pas être à l'équilibre thermodynamique dans la phase de recombinaison.

Cette partie nous a naturellement amené à considérer l'aspect thermique de la décharge dans la section 5.2. Nous observons, comme pour les autres études des NRP, un chauffage rapide avec des taux similaires à la littérature. Nous nous sommes intéressés aux effets mémoires dans la section 5.2.3 par variation de la fréquence : l'utilisation d'une géométrie micro-plasma semble accélérer le remplacement d'air frais au sein de l'espace inter-électrodes. Cet effet de convection aide le micro-plasma à éviter tout effet de chauffage cumulatif par la répétition des impulsions.

Dans la littérature des micro-plasmas, le confinement à l'échelle micrométrique est connu pour changer le transfert thermique par conduction mais dans le cas des décharges NRP, c'est l'expansion du noyau thermique qui joue le plus grand rôle. Cela indique que le régime micro-plasma peut être utilisé à des fréquences de répétition bien plus importantes que les décharges millimétriques sans changer significativement la densité de l'air comme pour les figures 71 et 72.

Nous nous sommes ensuite intéressés dans la section 5.3 à la chimie de la décharge et nous avons étudié la densité électronique n_e , très représentative de l'activité chimique. Des densités de l'ordre de 10^{19}cm^{-3} ont été observées, caractéristiques du régime filamentaire. Nous avons cherché à connaître la source du fond continu, une des caractéristiques principales du régime filamentaire, en essayant d'en déduire la variation de T_e .

Dans un premier temps nous avons conclu que le *bremsstrahlung* électrons-neutres était dominant. Nous avons résumé la cinétique de recombinaison des électrons à la réaction R9. Une température électronique $T_e = 44 \text{ kK}$ pour $t = 30 \text{ ns}$ a été déduite ; celle-ci est proche de la température mesurée par la droite de Boltzmann ($T_e = 37 \text{ kK}$). Nous en avons déduit également $\tau_{T_e} = 186 \text{ ns}$; ce résultat est plus proche du résultat obtenu si le *bremsstrahlung* électrons-ions est dominant. Nous pensons que les deux mécanismes cohabitent : dans un premier temps, le *bremsstrahlung* électrons-ions est dominant puis le *bremsstrahlung* électrons-neutres le devient.

Par la suite, nous avons utilisé les courbes de densité électronique pour les mettre en concordance avec l'émission des lignes d'atomes excités $O(3p^5P)$ et $N(3p^4S^o)$. Cela semble correspondre à une phase de recombinaison qui se résume principalement à la réaction R9 et l'équation (59) pour $t \in [30 \text{ ns}; 400 \text{ ns}]$.

6 Les interactions NRP micro-plasma-fluide

6.1 Introduction

Précédemment, nous avons étudié le phénomène de claquage durant les premières nanosecondes. Puis dans un second temps, nous avons abordé la décharge de sa génération jusqu'à la décharge suivante. Les premiers chapitres se sont donc concentrés sur le temps caractéristique de la fréquence de répétition des impulsions pour $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$.

Dans ce chapitre, nous aborderons le problème de façon différente : les espèces produites par la décharge sont transportées de manière électro-aérodynamique vers une plaque qui fait office de « substrat ». Les échelles de temps sont alors complètement différentes par rapport à ce que nous avons vu précédemment, puisqu'ici, les temps caractéristiques sont définis par la vitesse du fluide, qui est de l'ordre du $m. s^{-1}$.

6.1.1 Contexte

A l'exception des études appliquées à la combustion, peu d'études se concentrent sur les écoulements pouvant être générés par des étincelles NRP. Comme abordé lors de la section 2.4.2, l'allumage d'un mélange gazeux par des décharges NRP est fortement impacté par la distribution d'énergie dans le volume au voisinage des électrodes. Cependant, les observations se concentrent sur l'expansion thermique et dans de rares cas, sur la turbulence au voisinage du réacteur [167] ou sur la perturbation d'un écoulement [56]. La raison en est simple : l'écoulement à des échelles de temps plus longues n'est pas un facteur prépondérant pour les domaines d'activités actuels.

Pai *et al.* [65] ont montré que les étincelles NRP avaient des propriétés intéressantes en terme d'efficacité énergétique pour la fabrication de nanomatériaux car elles ont la capacité de générer un grand nombre d'espèces excitées dans l'air à pression atmosphérique. Les configurations adoptées sont présentées sur la figure 81A. Dans le cas de la première géométrie présentée sur la figure 81A, le réacteur est positionné à distance du substrat. Le transport des quantités d'intérêt présentées sur la figure 81A est dépendant des conditions d'écoulement entre le réacteur et la cible. Cependant, aucune partie du montage présenté n'a pour but de contrôler cet écoulement.

Pourtant, dans les procédés plasmas basse pression appliqués au domaine des matériaux, les techniques utilisant le champ électrique pour diriger un flux d'ions sont monnaie courante comme mécanisme de transport pour la déposition ou la gravure [62] (voir chapitre 15 et 16, p 571 et p 619).

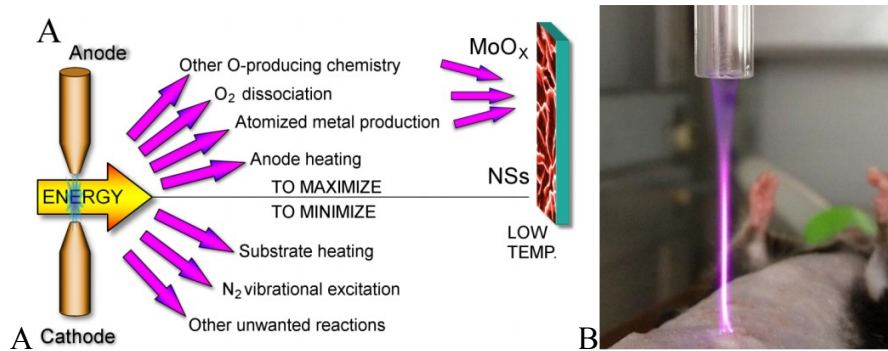


Figure 81: Images tirées de Pai et al. [65], A) Description des processus d'intérêts pour l'optimisation de la fabrication de nanomatériaux par Pai et al. [65]. B) Traitement biomédical par un jet plasma d'hélium sur souris anesthésiée, crédit T. Darny.

Ces dernières années, les jets plasmas ont émergé. Des systèmes simples ont vu le jour, composés d'un tube dans lequel une électrode en forme de tige est placée et une autre, annulaire, est placée autour du tube. Un gaz noble circule dans le tube par gradient de pression. De tels jets sont utiles pour traiter des zones de petites tailles, qui peuvent être des substrats (dans le champ des matériaux) ou des tissus vivants (pour le biomédical) comme le montre la figure 81B.

6.1.2 Présentation de la géométrie

Ici nous allons adopter une géométrie qui permet de générer un écoulement entre le microréacteur et une plaque en appliquant une tension continue sur cette dernière (figure 82). Afin d'augmenter les interactions avec le champ appliqué sur cette troisième électrode et de fournir des accès optiques, les électrodes sont inclinées de 45°. Le rapport cyclique α_{RC} de la décharge NRP pour $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ d'environ $1,6 \times 10^{-4}$ est très faible. Cela suggère que les deux électrodes du réacteur micro-plasma peuvent être considérées comme reliées à la masse du montage à l'échelle de temps de l'écoulement.

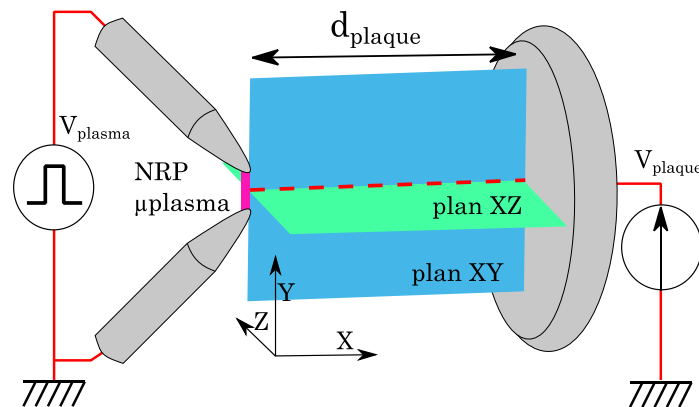


Figure 82: Schéma de la configuration ; le réacteur micro-plasma est placé à une distance d_{plaque} de la plaque sur laquelle est appliqué un potentiel V_{plaque} .

Comme un jet, cette configuration amène un écoulement vers le substrat, mais la différence principale est que la quantité de mouvement est apportée par la charge électrique produite par le microréacteur et non par l'injection de fluide. Les propriétés de l'écoulement sont donc plus proches des panaches thermiques que des jets plasmas. Cette géométrie n'est pas axisymétrique et nous définissons donc deux plans notés « XY » et « XZ ». Nous axerons ici notre étude uniquement sur les propriétés de l'écoulement produit par la décharge.

Nous étudions l'écoulement principalement par vélocimétrie d'images de particules (PIV). Dans la première section 6.2, nous présenterons les données moyennées sur la configuration principale que nous allons étudier dans ce chapitre *i. e.* $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$, $d_{gap} = 200 \text{ }\mu\text{m}$, $V_{plasma} = 2,5 \text{ kV}$ et une distance entre le microréacteur et la plaque $d_{plaque} = 40 \text{ mm}$. Dans la section 6.3, nous aborderons les particularités de la géométrie, notamment en comparant l'écoulement à une décharge couronne qui génère le même type d'écoulement mais qui est mieux documentée dans la littérature.

Cette partie nous permettra d'expliquer la forme particulière de l'écoulement. Les explications fournies seront renforcées par la section 6.4, dans laquelle nous analyserons l'impact des principaux paramètres V_{plaque} , F_{NRP} et d_{plaque} . La section 6.5 abordera les fluctuations dans l'écoulement. La fréquence élevée de notre système de PIV de l'ordre de $\sim 10 \text{ kHz}$ autorise un échantillonnage fin de l'information de la vitesse. La dernière section 6.6 nous permettra de conclure sur l'ensemble des résultats présentés dans ce chapitre.

6.2 Topologie de l'écoulement moyen

Dans cette section, nous présenterons les caractéristiques principales de l'écoulement entre le réacteur et la plaque. Dans une première partie nous exposerons les résultats sous forme de champ de vitesse et réaliserons une analyse qualitative des deux plans de l'écoulement. Dans une seconde partie, nous aborderons le problème d'un point de vue quantitatif en présentant les profils de vitesse. Cela permettra de comparer l'écoulement à la littérature des jets, en calculant le nombre de Reynolds R_e par exemple. Ces données nous permettront de comprendre la topologie de l'écoulement.

6.2.1 Champs moyens

Dans cette section, nous allons tout d'abord décrire la topologie de l'écoulement, puis dans un second temps, nous nous concentrerons sur les principales différences entre les deux plans de l'écoulement.

Nous avons utilisé les conditions de la décharge étudiée dans la première partie de ce mémoire, soit une fréquence de répétition des impulsions $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$, une distance inter-électrodes $d_{gap} = 200 \text{ }\mu\text{m}$ et une tension $V_{plasma} = 2,5 \text{ kV}$. La micro-décharge est située à une distance $d_{plaque} = 40 \text{ mm}$ d'une plaque sur laquelle une tension $V_{plaque} = -14 \text{ kV}$ a été appliquée.

Nous décomposons la vitesse instantanée d'une composante i ($i = x, y$ ou z) en deux parties : un terme représentant le régime permanent (la valeur moyenne) et un terme représentant les fluctuations.

$$U_i(t) = \bar{U}_i + u_i'(t) \quad (60)$$

Dans les deux plans XY et XZ, la norme de la vitesse moyenne notée \bar{U} est affichée par la figure 83 puis la norme de la vitesse radiale moyenne sur la figure 84. Ces champs ont été obtenus grâce à 6000 relevés instantanés avec une fréquence d'acquisition $F_{PIV} = 16,26 \text{ kHz}$. Le réacteur est positionné à $x = y = z = 0 \text{ mm}$ et la plaque est positionnée à $x = 40 \text{ mm}$. La fréquence F_{PIV} a été choisie afin d'être plus importante que $2 \times F_{NRP}$ et de ne pas être un multiple des processus examinés.

Tout d'abord, sur la figure 83A montrant le champ de la norme de la vitesse moyenne dans le plan XY, nous observons une accélération du fluide, du réacteur jusqu'à $x \approx 5 \text{ mm}$. Le panache se poursuit sur une zone avec une vitesse à peu près constante jusqu'à $x \approx 30 \text{ mm}$. Dans l'axe du panache, un point de stagnation caractéristique des jets impactants est présent ; nous le distinguons par la zone où $\bar{U} \rightarrow 0 \text{ m.s}^{-1}$ vers $x = 40 \text{ mm}$ et $y = 0 \text{ mm}$. Le panache se divise ensuite en deux parties avec des profils caractéristiques des régions de jet de paroi.

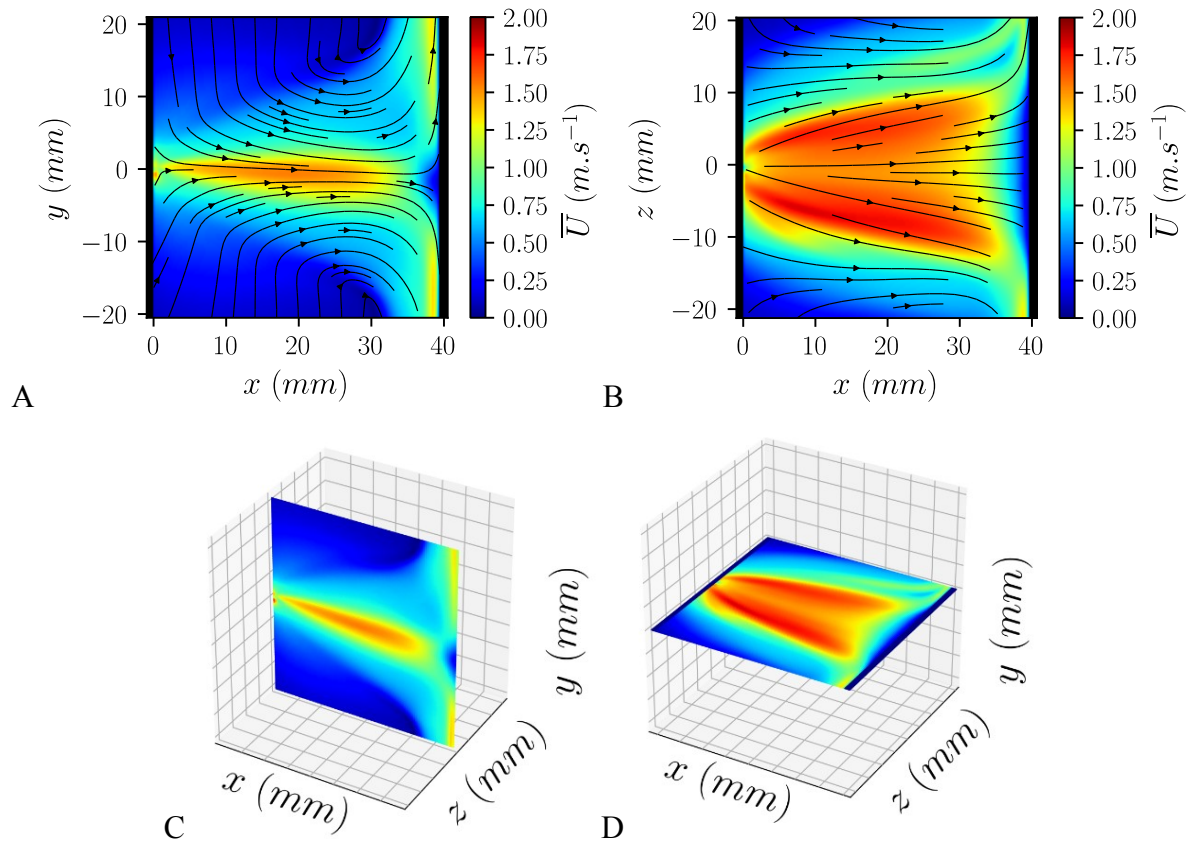


Figure 83: Champs moyens de la norme de la vitesse superposés aux lignes de courant A) dans le plan XY et B) dans le plan XZ. Les champs ont été moyennés sur 6000 champs de vitesse acquis à une fréquence de 16,26 kHz. Miniatures illustrant C) le plan XY en trois dimensions puis D) dans le plan XZ.

L'écoulement est similaire à une configuration de panache, puisqu'il n'y a pas d'injection de fluide comme dans un jet, mais une mise en mouvement commençant près des électrodes actives. Cela est particulièrement visible sur les lignes de courant ou sur les champs moyens de vitesse radiale exposés sur la figure 84.

Dans les zones où $x < 30 \text{ mm}$ dans le plan XY (figure 84A) la vitesse radiale est négative à $y > 0$ et positive à $y < 0$: il y a une aspiration du fait de la conservation du débit et de la quantité de mouvement. Avec la présence de la paroi, cela provoque la naissance de deux grands tourbillons contrarotatifs, dont les centres sont situés à $x \approx 30 \text{ mm}$ et à $y \approx \pm 20 \text{ mm}$. Cela est moins visible sur la figure 84B dans le plan XZ, mais le champ est assez grand pour apercevoir les lignes de courant convergentes à $x < 20 \text{ mm}$ et à $z \approx \pm 20 \text{ mm}$.

Ce comportement est différent d'un jet rond turbulent dont les propriétés concernant la vitesse radiale devraient être les suivantes : entre le centre et la demi-largeur R_H ($|y| \in [0; R_H]$), la vitesse radiale devrait être divergente par rapport à l'axe et au-delà de cette demi-largeur ($|y| > R_H$), l'écoulement devrait être convergent. Nous observons ce comportement seulement dans le plan XZ (figure 84B).

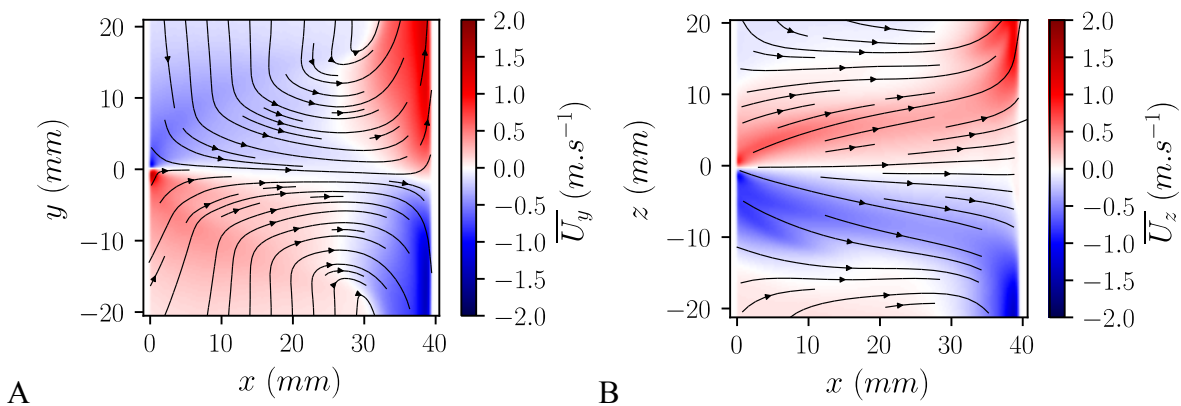


Figure 84: A) Champs moyens de la composante radiale superposés aux lignes de courant dans le plan XY et B) dans le plan XZ. Les champs ont été moyennés sur 6000 champs de vitesse acquis à une fréquence de 16,26 kHz.

La principale remarque qui ressort des figures 83 et 84 est que la topologie de l'écoulement n'est pas axisymétrique puisque les plans XY et XZ présentent des écoulements 2D différents. Nous relevons les différences suivantes :

- les profils de vitesse sont beaucoup plus larges dans le plan XZ que dans le plan XY et le taux d'expansion semble lui aussi différent ;
- la forme du profil est différente puisque sur le plan XY, le maximum de la vitesse est positionné sur l'axe alors que sur le plan XZ, le profil de \overline{U}_x possède une forme de « selle » où un minimum de la vitesse se trouve sur l'axe ;
- la zone de vitesse faible au point de stagnation ($x = 40 \text{ mm}, y = 0 \text{ mm}$) est plus étalée sur la plaque dans le plan XZ que dans le plan XY ;

- les champs moyennés des vitesses dans les directions radiales sont différents. Dans les deux plans, nous observons des régions où le gaz est aspiré de l'extérieur du panache vers l'intérieur. Dans le cas du plan XY, cette zone persiste jusqu'au centre du panache et jusqu'à $x \approx 25 \text{ mm}$, alors que sur l'autre plan, la zone d'aspiration se limite à $|z| > 10 \text{ mm}$. En réalité, dans le plan XZ, la composante radiale tend à éjecter du fluide vers l'extérieur sur tout le long du panache.

6.2.2 Profils de vitesse

Afin de caractériser le diamètre du panache, nous définissons la demi-largeur du panache R_H comme la distance entre le centre ($y = 0 \text{ mm}$ et $z = 0 \text{ mm}$) et le point où la vitesse atteint la moitié de la vitesse au centre U_c . Nous affichons sur la figure 85 l'évolution de la demi-largeur du panache dans les deux plans.

Nous observons tout d'abord, à $x < 3 \text{ mm}$ une première zone caractéristique des panaches paresseux (*Lazy plumes*, voir Bremer et Hunt [88]) avec une réduction du diamètre. Ce diamètre minimum est atteint à $x = 3 \text{ mm}$. Ce comportement est observé lorsque l'énergie cinétique à la source est inférieure à l'énergie potentielle apportée par le débit de flottabilité (pour un panache thermique). En d'autres termes, transposé à notre phénomène, cela indique qu'une force assez importante est appliquée loin du microréacteur au regard de la force appliquée sur le microréacteur.

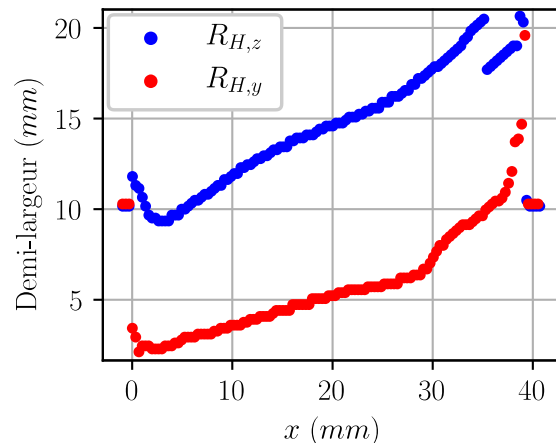


Figure 85: Évolution de la demi-largeur R_H dans les plans XY et XZ.

Pour $x > 3 \text{ mm}$, le rayon du panache augmente à peu près linéairement avec des taux d'expansion de $\Delta R_{H,z} = 0,31$ et $\Delta R_{H,y} = 0,16$. Bien que l'évolution soit linéaire, ces taux sont plus importants que les taux d'expansion dans la région autosimilaire des jets ronds et des jets plans (voir Chassaing [77] p 337). Des taux d'expansion similaires ont été observés sur des panaches EHD plans dans les liquides diélectriques par Yan [97] pour des faibles tensions. Nous n'observons pas non plus le comportement de l'inversion d'axe des jets rectangulaires [80].

Nous faisons l'hypothèse que la section de l'écoulement est ellipsoïdale : le diamètre de référence D_{ref} est calculé par la formule (61) (voir formule (8) p 36).

$$D_{ref} = \frac{4R_{H,z}R_{H,y}}{\sqrt{2(R_{H,z}^2 + R_{H,y}^2)}} \quad (61)$$

Une valeur approchée de $Re \in [500; 1500]$ peut être obtenue à partir de ces données. La vitesse est constante et le diamètre augmente, par conséquent le nombre de Reynolds local augmente. Cela nous indique que l'écoulement est laminaire du point de vue du nombre de Reynolds. Néanmoins notre excitation discontinue force l'écoulement à être dans un régime de transition. Usuellement, dans les jets ronds, ce Reynolds local reste constant sur l'axe car le produit de $U_c(x - x_0) \times R_H(x - x_0)$ reste constant quel que soit x (section 2.5.1.1).

Afin de vérifier la validité des mesures dans les deux plans, nous comparons le profil de vitesse axiale \overline{U}_x pour $y = z = 0 \text{ mm}$, qui est l'intersection entre les deux plans de mesure. Nous nommons cette vitesse moyennée temporellement au centre du panache U_c . L'intérêt de comparer U_c dans les deux plans est d'observer si les conditions expérimentales sont restées identiques entre les deux expériences et que les mesures dans les deux plans ont été réalisées dans les mêmes conditions.

Nous reportons la vitesse de cet axe sur la figure 86 et nous observons que les vitesses axiales moyennes et fluctuantes sont similaires. Les faibles différences sont attribuées à la légère déviation du panache vers le bas ($y < 0$) dans le plan XY (figure 83A p 142).

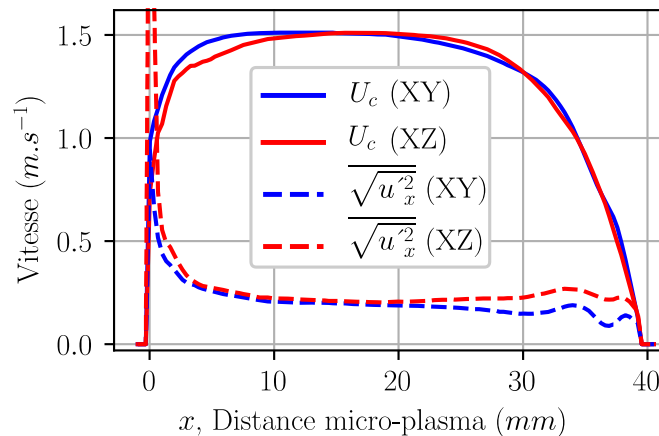


Figure 86: Allure de U_c et de $\sqrt{u_x'^2}$ le long de x dans les deux plans..

Globalement, trois régions caractéristiques peuvent être décrites. Une première zone avec une accélération et une vitesse axiale fluctuante qui diminue pour $x \in [0 \text{ mm}; 7 \text{ mm}]$. Ensuite, il y a un plateau où les vitesses moyennes et fluctuantes semblent rester constantes ($x \in [7 \text{ mm}; 23 \text{ mm}]$). Cela indique un équilibre entre les forces visqueuses et les forces qui mettent le fluide en mouvement.

Pour une vitesse $U_c = 1,5 \text{ m.s}^{-1}$ et une vitesse fluctuante $\sqrt{u_x'^2} = 0,25 \text{ m.s}^{-1}$, nous avons une intensité turbulente $\sqrt{u_x'^2}/U_c = 17 \%$. La troisième zone voit la décélération de l'écoulement pour $x \in [23 \text{ mm}; 40 \text{ mm}]$.

Une quantité non négligeable de la force électrique est donc ajoutée encore loin du réacteur car dans cette région, les figures 85 et 86 indiquent que le diamètre du panache et le débit de quantité de mouvement augmentent.

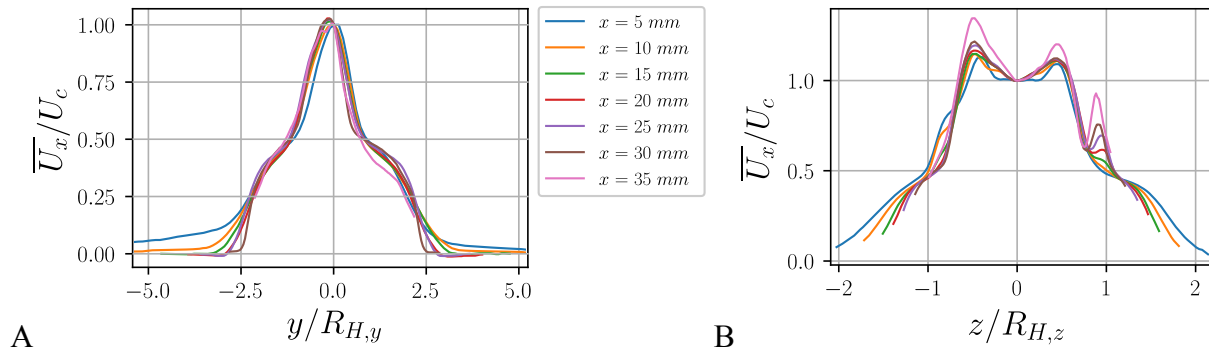


Figure 87: Profils de vitesse de \bar{U}_x adimensionnés par la vitesse de référence U_c et la largeur du panache à plusieurs distances x du micro-plasma A) dans le plan XY et B) dans le plan XZ.

La figure 87 illustre la forme des profils de vitesse axiale en fonction de la direction radiale. Dans les plans XY et XZ, affichés respectivement sur les figures 87A et 87B, nous observons que la forme du profil, normalisée par la vitesse axiale U_c et le rayon du panache dans les deux plans, se conservent sur presque toute la distance entre le micro-plasma et la plaque.

Seules les extrémités semblent se contracter faiblement lorsque x augmente. Cette forme de selle que nous visualisons mieux sur la figure 87B est inhabituelle dans les écoulements de jets et de panaches, et particulièrement dans les décharges pointe-plan qui se rapprochent le plus de notre cas (*e. g.* [113]). Elle n'est présente que dans certains types de jets comme les jets rectangulaires turbulents [181] ou dans les jets annulaires [182].

Dans cette section, nous avons décrit les caractéristiques principales de l'écoulement obtenu après avoir positionné une plaque alimentée par une tension continue. Cela nous a permis de caractériser la topologie de l'écoulement produit. Dans la section suivante, la nature EHD de notre écoulement sera mise en évidence. De plus, nous expliquerons ses caractéristiques en le comparant à une décharge couronne sur le réacteur au lieu du micro-plasma.

6.3 Décharge couronne et explication de la topologie de l'écoulement

Dans cette section, nous abordons l'origine du vent électrique et expliquons en détail la topologie de l'écoulement. Dans l'air ambiant, les décharges couronnes sont connues pour générer ce type d'écoulement. C'est pourquoi dans la première section 6.3.1, nous évaluerons la possibilité qu'une décharge couronne parasite génère l'écoulement décrit dans la section

précédente. Nous constaterons que l'écoulement est principalement dû à la dérive des espèces chargées produites par le micro-plasma NRP et non par une décharge couronne parasite.

Nous allons justement étudier l'écoulement généré avec une décharge couronne sur notre géométrie à trois électrodes dans la section 6.3.2. Cela nous permettra de relever dans la section 6.3.3 les points communs et les différences entre le cas couronne et micro-plasma. Enfin, dans la section 6.3.4, nous expliquerons la forme de l'écoulement décrite dans la partie 6.2 en reprenant les résultats de la section 6.3.3.

6.3.1 Origine du vent électrique

Les premiers chapitres ont montré que le micro-plasma avait une activité chimique et thermique importante. Nous souhaitons déterminer quel phénomène est prépondérant dans la mise en mouvement de l'air. L'expérience étant orientée horizontalement, dans la direction perpendiculaire à l'accélération de la pesanteur, nous affirmons que l'écoulement est principalement piloté par le vent ionique.

Afin de vérifier ce constat, nous réalisons des essais en variant la tension appliquée sur la plaque. La figure 88 présente les profils de vitesse dans l'axe central du panache, pour plusieurs tensions positives et négatives V_{plaque} en travaillant avec les conditions standards (section 6.1.2). Les profils de la vitesse axiale restent très similaires à ce que nous avons décrit dans la section 6.2.

La vitesse du fluide est dépendante de V_{plaque} et si précédemment une tension négative a été utilisée, la figure 88 montre que la polarité ne semble pas avoir d'impact prépondérant sur l'évolution de la vitesse de l'écoulement dans l'espace inter-électrodes. De plus, sur la plage des trois cas que nous avons testés, la vitesse augmente très clairement en fonction de la tension V_{plaque} .

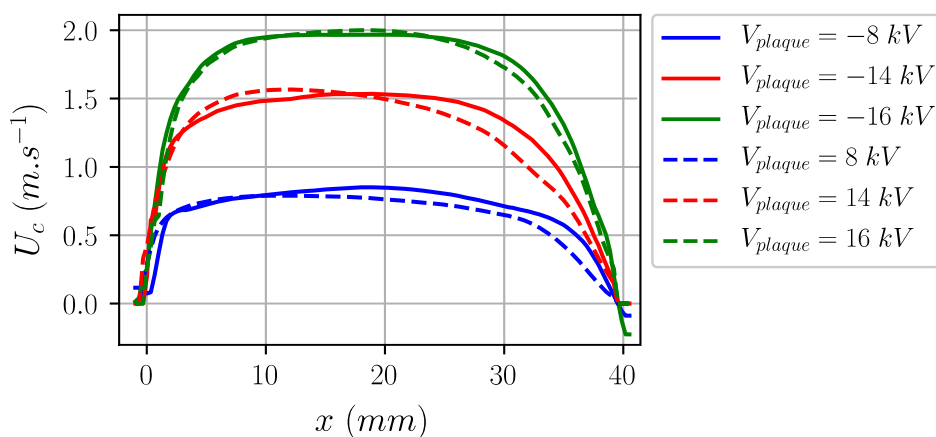


Figure 88: Profils de vitesse axiale pour six tensions différentes (positives et négatives) appliquées sur la troisième électrode.

La géométrie asymétrique que nous utilisons peut conduire à la génération d'une décharge couronne parasite si la tension entre la plaque et le micro-réacteur est assez importante. En

effet, nous avons vu que ce type de décharge produit un vent ionique (section 2.5.2). Nous devons donc déterminer si le vent ionique est piloté par les espèces chargées dégagées par le micro-plasma ou par une décharge « secondaire » de type couronne, entre les deux pointes et la plaque.

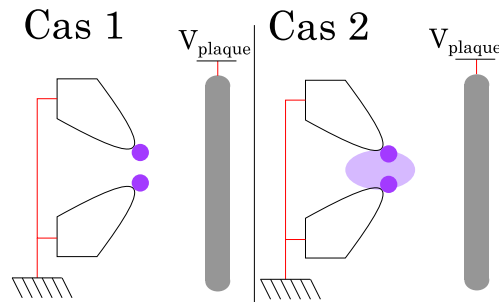


Figure 89: Illustration des trois configurations de décharges couronnes. Le premier cas schématise l'allumage de la décharge à cause de la différence de potentiel entre la plaque et le réacteur. Le cas 2 symbolise la diminution de la tension d'allumage à cause d'un effet du micro-plasma.

Dans un premier temps, nous allons définir les conditions d'existence de cette éventuelle décharge couronne. Nous relevons deux modes différents qui mènent à la génération d'une décharge couronne illustrés sur la figure 89. Le cas le plus simple est le cas 1 sans micro-plasma : la tension entre la plaque et le microréacteur augmente et une décharge couronne est générée lorsqu'une tension seuil nommée V_{cour1} est dépassée ($V_{\text{plaque}} > V_{\text{cour1}}$). Dans les deux cas, nous approximations que les électrodes du micro-plasma sont reliées à la masse.

Nous avons également observé que la présence du micro-plasma (cas 2) faciliterait l'apparition de cette décharge couronne même si $|V_{\text{plaque}}| < |V_{\text{cour1}}|$. Nous observons cette dernière sur la figure 90 qui met en évidence que la luminosité de la décharge couronne est décroissante en fonction de t sachant que le micro-plasma est généré à $t \approx 0 \mu\text{s}$.

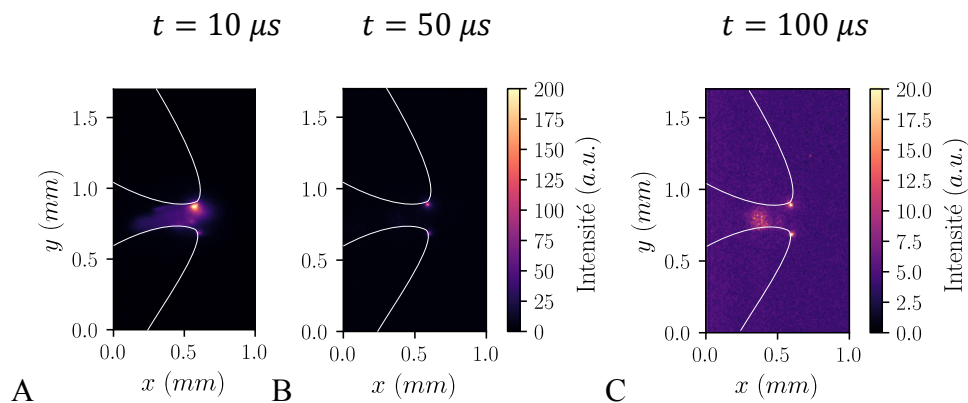


Figure 90: Séquence d'images de la décharge couronne pilotée par la présence du micro-plasma pour A) $t = 10 \mu\text{s}$ B) $t = 50 \mu\text{s}$ C) $t = 100 \mu\text{s}$ pour $V_{\text{plaque}} = -19 \text{ kV}$, $F_{\text{NRP}} = 8 \text{ kHz}$, $d_{\text{gap}} = 200 \mu\text{m}$ et $d_{\text{plaque}} = 40 \text{ mm}$. Le gain, le temps d'exposition $t_{\text{exp}} = 10 \mu\text{s}$ et le nombre d'accumulations (5000) sont restés constants.

Le cas 2 implique que c'est la présence du micro-plasma qui facilite la génération de cette décharge couronne parasite. Il pourrait s'agir de pré-ionisation résiduelle introduite par le micro-plasma ou de la diminution de la densité du gaz par chauffage par exemple.

Pour finir, nous avons déterminé que cette décharge couronne ne peut pas être générée pour $|V_{\text{plaque}}| < 18 \text{ kV}$. Cela nous permet de conclure que le phénomène de vent ionique présenté dans les sections précédentes correspond à la dérive des espèces chargées créées par le micro-plasma NRP. Dans la section suivante, nous allons justement utiliser cette décharge couronne qui est bien documentée dans la littérature afin de déterminer si les caractéristiques de l'écoulement décrit dans la section 6.2 sont dus à la géométrie particulière à trois électrodes ou au micro-plasma.

6.3.2 Cas de la décharge couronne

Nous avons décrit l'écoulement provoqué par un micro-plasma pulsé en face d'une plaque sur laquelle une tension DC est appliquée et avons mis en évidence un comportement inhabituel. Afin de nous raccrocher à la littérature et à un phénomène plus simple, nous allons étudier une décharge couronne à courant continu générée avec la configuration géométrique identique au cas précédent.

Nous utilisons comme cas test, une décharge couronne en appliquant une tension négative avec $V_{\text{plaque}} = -23 \text{ kV}$ et $d_{\text{plaque}} = 40 \text{ mm}$. Nous utilisons cette tension pour que la décharge couronne soit stable et qu'il n'y ait pas de claquage entre la plaque et les pointes. Aucun micro-plasma n'est généré et les deux électrodes du microréacteur sont reliées à la masse.

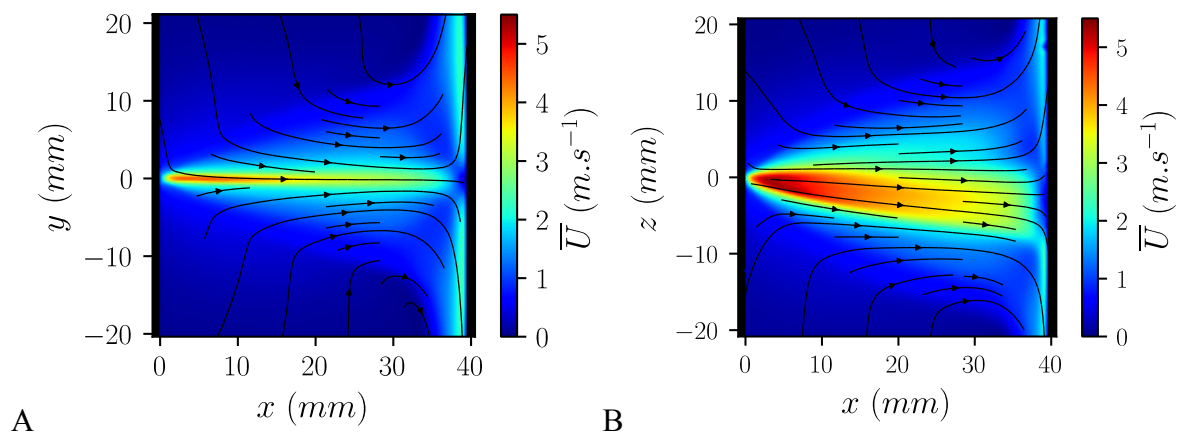


Figure 91: Champs moyens de vitesse pour une décharge couronne dans les mêmes conditions géométriques que la figure 83 avec le micro-plasma éteint et une tension appliquée $V_{\text{plaque}} = -23 \text{ kV}$ avec A) le plan XY et B) le plan XZ.

Les champs de vitesse moyens dans les deux plans sont affichés sur la figure 91. Nous constatons encore une fois un jet plus fin dans le plan XY que dans le plan XZ. Le point de stagnation positionné contre la plaque semble aussi être plus étalé dans le plan XZ. Nous

remarquons aussi une légère déviation du jet vers le bas sur la figure 91B. En effet, le jet n'est pas toujours tout à fait perpendiculaire au plan.

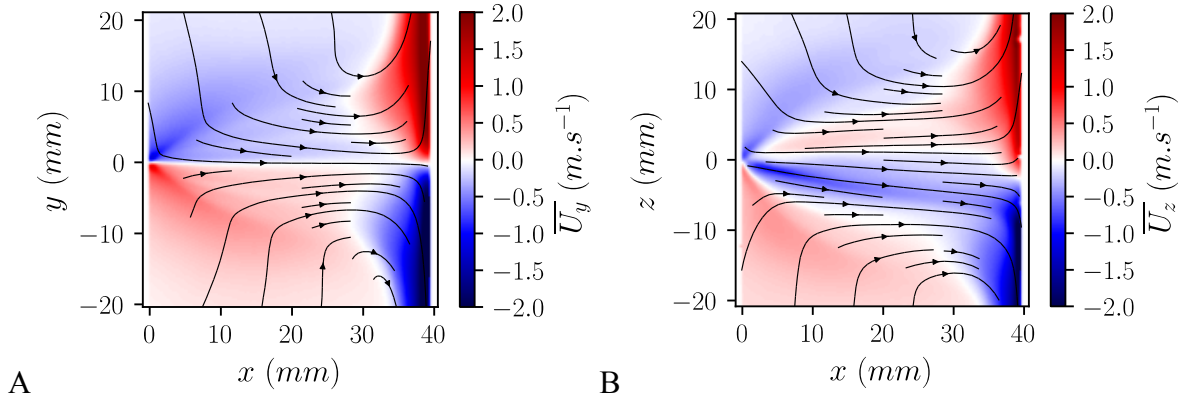


Figure 92: Champs de vitesse radiale d'un décharge couronne pour $V_{\text{plaque}} = -23 \text{ kV}$ A) dans le plan XY et B) dans le plan XZ.

Globalement, nous observons les différences suivantes entre les plan XY et XZ dans le cas de la décharge couronne :

- le jet est plus large dans le plan XZ que dans le plan XY ;
- les champs de la vitesse radiale sur la figure 92 montrent un écoulement divergent dans le plan XZ et convergent dans le plan XY.

Afin d'expliquer la topologie de l'écoulement ainsi que les différences entre les plans XY et XZ, nous réalisons des simulations bidimensionnelles du champ électrique Laplacien avec le logiciel Maxwell SV (figure 93). Concrètement, il s'agit de deux lames de longueur infinie inclinées à 45° , séparées par une distance $d_{\text{gap}} = 200 \mu\text{m}$, en face d'une plaque pour la figure 93A et d'une configuration cylindre-plan pour la figure 93B. Les figures 93A et 93B correspondent donc respectivement aux plans XY et XZ de notre géométrie 3-D (figure 82 p 140). Notre approximation 2-D ne devrait pas changer les conclusions qualitatives générales par la suite.

Selon la figure 93A, correspondant à notre plan XY, on peut voir des lignes isopotentielles très serrées au niveau du réacteur. Les lignes de champ restent globalement assez perpendiculaires à la plaque. A l'inverse, la figure 93B, correspondant à notre plan XZ, révèle une divergence des lignes de champ à proximité du réacteur.

Puisque la topologie de l'écoulement dépend très fortement du champ dans la zone où la décharge est positionnée (sur les points), ces directions différentes que prennent les lignes de champs dans les deux plans peuvent expliquer le fait que le jet soit plus large dans le plan XZ que dans le plan XY (voir figure 91).

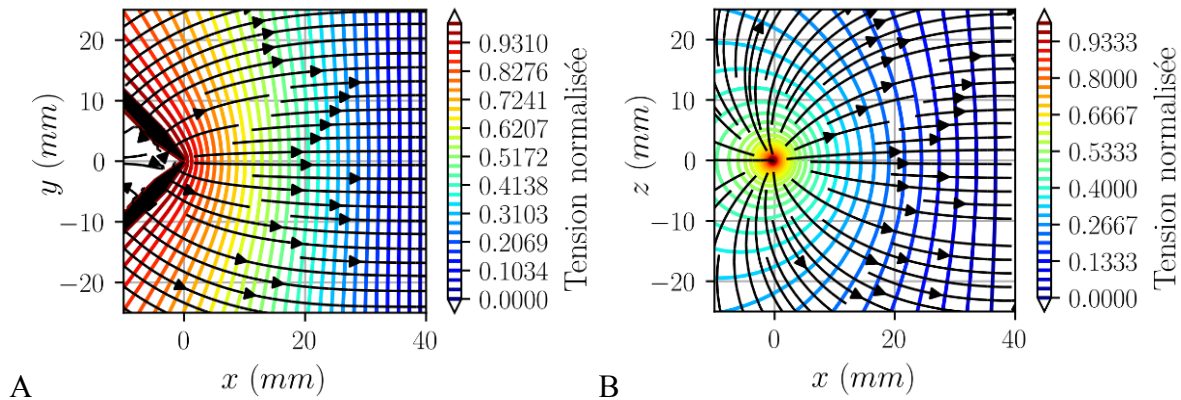


Figure 93: Simulations bidimensionnelles du champ électrique (lignes fléchées) et équipotentielles (lignes de couleur) A) dans le plan XY et B) dans le plan XZ obtenues par Maxwell SV. Pour le plan XY, nous avons choisi de prendre une géométrie de deux lames inclinées de 45° en face d'un plan et pour le plan XZ d'un cylindre de $250 \mu\text{m}$ de diamètre en face d'un plan.

Nous utilisons désormais l'analyse proposée dans la section 6.2.2 sur les profils de U_c dans l'axe du jet (figure 94A). Une accélération est observée proche du réacteur ($x < 3 \text{ mm}$). Nous constatons une légère différence entre les profils de vitesse et de fluctuation extraits du plan XY et XZ. Cela pourrait provenir du fait que le jet est beaucoup plus fin dans le plan XY. Hors de la zone d'accélération du jet, l'intensité turbulente est de $\sqrt{u_x'^2}/U_c = 14 \%$.

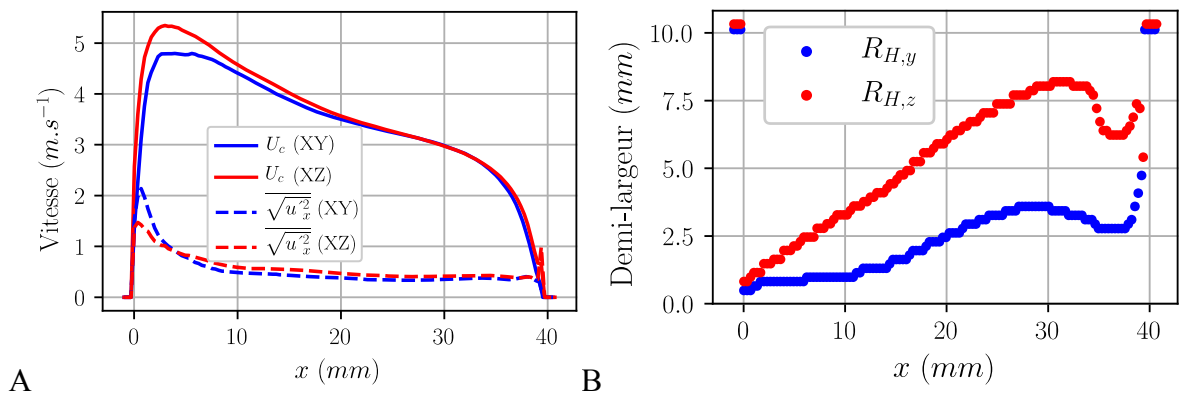


Figure 94: A) Allure de U_c et de $\sqrt{u_x'^2}$ le long de x dans les deux plans pour une décharge couronne. B) Evolution du diamètre sur l'axe.

Par analogie de la décharge couronne avec un panache thermique, nous observons que la croissance constante du diamètre du jet sur la figure 94B indique un comportement de panache forcé (*forced plume*, voir Bremer et Hunt [88]). Cela indique que l'écoulement est dominé par la force ajoutée au niveau du microréacteur ($x = 0 \text{ mm}$). Cet aspect est renforcé par le comportement décroissant de la vitesse axiale signifiant que la force EHD ajoutée dans cette zone est moins importante que les forces de viscosité qui tendent à ralentir l'écoulement.

La figure 94 permet de calculer nombre de Reynolds local. Nous obtenons $Re \in [750; 2400]$ avec Re qui augmente sur toute la distance des pointes jusqu'à atteindre la valeur maximum à $x \in 27 \text{ mm}$.

6.3.3 Comparaison des résultats de la décharge couronne et du micro-plasma NRP

La section 6.2 a traité du panache généré par la combinaison du micro-plasma avec une plaque sur laquelle une tension est appliquée. La section 6.3.2 traite du jet produit par une décharge couronne générée uniquement par l'application de la tension sur la plaque. Dans cette section, nous relevons les points communs et les différences entre les deux décharges.

Nous commençons par introduire les principales différences entre les deux types de décharge d'un point de vue électrique. Le micro-plasma NRP consiste à transférer une énergie importante pendant un laps de temps très court, de l'ordre de la nanoseconde, ce qui équivaut à un rapport cyclique $\alpha_{rc} = 1,6 \times 10^{-4}$ pour $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$. En revanche, la décharge couronne consiste à générer une décharge très peu énergétique en permanence, c'est-à-dire à un rapport cyclique $\alpha_{rc} = 1$.

Une mesure de courant continu est disponible sur le micro-ampèremètre de l'alimentation avec une (mauvaise) précision de $\pm 5 \mu\text{A}$. Cela permet de lire un courant continu de $I_{\text{plaque}} = 20 \pm 5 \mu\text{A}$ lorsque la décharge couronne est générée. Cela équivaut à une puissance instantanée de $P = 0,46 \pm 0,12 \text{ W}$. A titre de comparaison, dans le cas d'un micro-plasma NRP nous dissipons une puissance $P = U_{\text{plasma}} \times F_{NRP} \approx 0,9 \pm 0,09 \text{ W}$ dans le micro-plasma et $I_{\text{plaque}} < 5 \mu\text{A}$. Cela nous indique que la puissance dissipée par la partie DC de notre expérience est très inférieure à la puissance dissipée dans le micro-plasma NRP, quel que soit le cas. La puissance des deux types de décharge est donc du même ordre de grandeur.

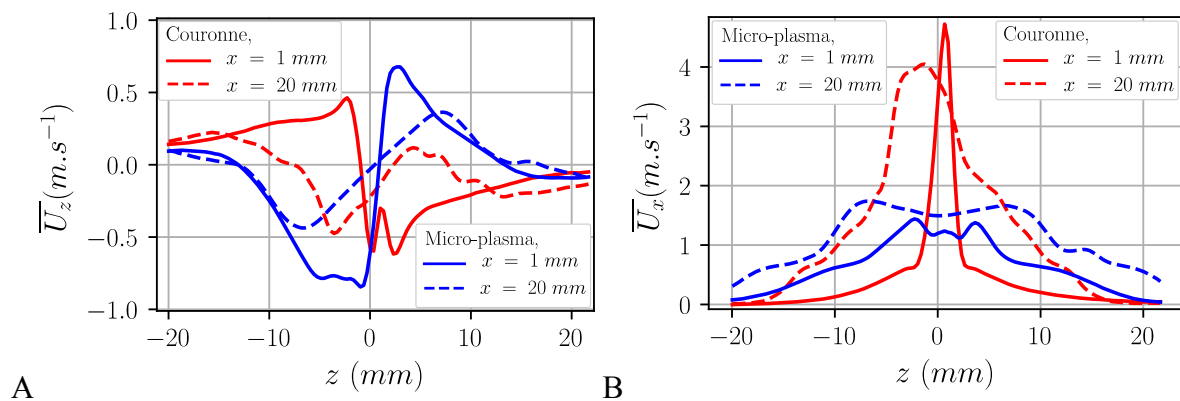


Figure 95: Profils de vitesse A) de \overline{U}_z et B) de \overline{U}_x dans le plan XZ pour les cas de la décharge couronne (rouge) et du micro-plasma (bleu) pour $x = 1 \text{ mm}$ (trait plein) et $x = d_{\text{plaque}}/2 = 20 \text{ mm}$ (trait pointillé).

En ce qui concerne les différences et les points communs, nous récapitulons les éléments les plus marquants dans le tableau 18. Les principaux points communs concernent les lignes de

courant des vitesses radiales. Dans les deux cas, elles sont convergentes dans le plan XY et divergentes dans le plan XZ. Un aspect probablement associé à cette propriété est le diamètre dans le plan XY qui est toujours plus petit que dans le plan XZ. Dans la section précédente dédiée uniquement à l'étude de la décharge couronne, nous avons attribué ce comportement à la géométrie et aux lignes de champ électrique. Ces aspects dans le cas du micro-plasma seraient dus à ces mêmes raisons.

Toutefois, une différence majeure est observée sur le signe de la vitesse radiale seulement pour $x \approx 0 \text{ mm}$ dans le plan XZ (figure 84B p 143 et 92B p 150). La figure 95A présente les profils de vitesse de \overline{U}_z dans le plan XZ pour $x = 1 \text{ mm}$ et $x = 20 \text{ mm}$. Ces profils sont du même signe de part et d'autre du panache pour $x = 20 \text{ mm}$, tandis que des comportements opposés sont observés pour $x = 1 \text{ mm}$.

Cela indique que dans le plan XZ, le fluide accéléré en direction de la plaque est aspiré sur les côtés pour la décharge couronne. Dans le cas du micro-plasma, le fluide est aspiré derrière le réacteur (profils de \overline{U}_x sur la figure 95B). Nous en aborderons les raisons et les conséquences dans la section suivante.

Tableau 18 : Différences et points communs entre l'écoulement provoqué par la configuration Micro-plasma et couronne.

	Micro-plasma		Décharge couronne	
U_c maximum	1,5 m.s ⁻¹		5,45 m.s ⁻¹	
$\sqrt{u_x'^2}/U_c$ ($x = 20\text{mm}$)	17 %		14 %	
Re	500 → 1500		750 → 2400	
Comportement U_c	Accélération $x < 10 \text{ mm}$ Plateau $x \in [10 \text{ mm}; 23 \text{ mm}]$ Décélération $x > 23 \text{ mm}$		Accélération $x < 3 \text{ mm}$ Décélération $x > 3 \text{ mm}$	
Comportement des fluctuations	Fortes en zone proche du réacteur et stables pour $x \in [10 \text{ mm}; 40\text{mm}]$			
Analogie panaches [88]	Paresseux		Forcé	
Plans	XY	XZ	XY	XZ
Lignes de champs, vitesses radiales	Convergentes	Divergentes quelque soit x	Convergentes	Divergentes $x > 0 \text{ mm}$
Demi largeur $R_H(x = 0 \text{ mm})$	2,1 mm	9,46 mm	0,6 mm	0,9 mm
Demi largeur $R_H(x = 30 \text{ mm})$	7,1 mm	17,9 mm	3,6 mm	8,23 mm
Forme profils	« Centré »	« Selle »	« Centré »	« Centré »

La décharge couronne produit des vitesses plus importantes. En revanche, la configuration micro-plasma produit un panache beaucoup plus large. Il en résulte que le nombre de Reynolds local pour les deux écoulements n'est pas significativement différent. L'autre différence clairement visible concerne le profil en forme de selle sur le plan XZ, qui n'est pas visible dans la configuration de décharge couronne.

Le comportement de la vitesse U_c dans l'axe de l'écoulement est différent dans les deux cas. La zone d'accélération est plus petite pour le cas couronne. De plus, la seconde zone est une décélération indiquant que l'écoulement est dominé par les forces de viscosité. Dans le cas du micro-plasma, le plateau de vitesse suggère qu'il y a un équilibre entre les forces mettant le fluide en mouvement et celles qui tendent à le freiner.

Dans le cas de la décharge couronne, l'écoulement est dominé par la force EHD transférée directement en zone proche du réacteur. Inversement dans le cas micro-plasma, la force EHD transférée dans tout l'espace entre le réacteur et la plaque a un rôle important sur la forme de l'écoulement. Ce constat rejoint notre analogie avec les panaches thermiques : le cas micro-plasma est associé à un régime de panache paresseux et la couronne, à un régime de panache forcé.

6.3.4 Explications des différences entre micro-plasma NRP et décharge couronne

Dans cette section, nous essayons d'expliquer les résultats que nous avons commentés dans la section précédente. Nous commençons par détailler en quoi la décharge couronne est très différente de notre micro-plasma. Cela nous permettra ensuite de reprendre les conclusions de la section précédente.

Nous souhaitons dans un premier temps expliquer les différences sur la forme des profils de U_c représentant la vitesse dans l'axe. Tout d'abord la principale différence concernant la génération des écoulements dans les sections 6.2 et 6.3.2 est la tension sur la plaque. Pour la décharge couronne, $V_{plaque} = -23 \text{ kV}$ alors que dans le cas du micro-plasma, nous avons appliqué $V_{plaque} = -14 \text{ kV}$. La force de Coulomb s'exprimant par le produit de la charge par le champ, ce paramètre seul peut expliquer une force EHD plus importante dans le cas de la décharge couronne et donc d'une vitesse plus élevée.

La valeur du champ n'est pas la seule différence, la position de la décharge compte aussi. La figure 96A montre un aperçu du champ électrique Laplacien dans les zones où sont générées les deux décharges. La position des décharges couronnes sur les électrodes devraient être sur le point où la norme du champ électrique est maximum (en jaune sur la figure 96A). Quant à la décharge micro-plasma, elle est générée entre les deux électrodes.

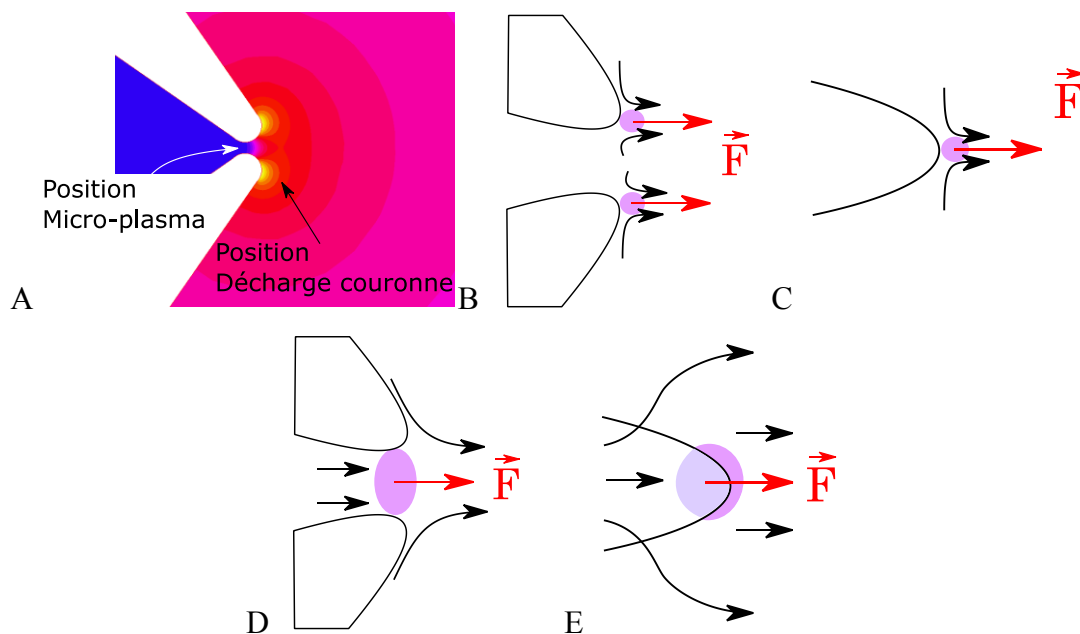


Figure 96: A) Schéma du champ électrique normalisé avec la position des deux types de décharge. Le bleu représente un champ électrique nul et les valeurs de champs électriques élevées sont coloriées en jaune. Schéma expliquant les flux de gaz dans le cas de la décharge couronne B) dans le plan XY et C) dans le plan XZ. Schéma expliquant les flux de gaz dans le cas micro-plasma NRP D) dans le plan XY et E) dans le plan XZ.

La forme et la position de la décharge définissent la source des charges. Si la zone de production de ces ions ne chevauche pas les zones de champ électrique fort, la force EHD sera faible : c'est le cas de la géométrie micro-plasma. En revanche, la décharge couronne est positionnée sur la zone de champ électrique fort, donc la force appliquée à cet endroit est importante. Cela pourrait expliquer le comportement de panache forcé pour la décharge couronne. A l'inverse, la mauvaise position explique le comportement de panache paresseux du micro-plasma NRP.

Le vent ionique ne dépend pas uniquement des propriétés électrostatiques de la zone où la décharge est générée, mais aussi des conditions aérodynamiques. Nous illustrons d'abord le cas décharge couronne sur les figures 96B et C où nous observons que l'application de la force EHD (en rouge) sera normale aux surfaces des électrodes. Cela forcera l'approvisionnement en gaz frais (en noir) par les côtés. Ce comportement est typique des panaches thermiques axisymétriques [87,88] et des écoulements de décharges couronne pointe-plan (par exemple dans Mizeraczyk *et al.* [99]).

En ce qui concerne le micro-plasma NRP, dont le schéma explicatif est illustré par les figures 96D et E, l'application de la force n'est pas dans la direction normale à une surface. Ainsi un flux de gaz peut provenir de l'arrière des électrodes. Nous avons montré cette propriété dans la section précédente avec la figure 95 (p 152).

Avec un écoulement en amont du réacteur, il devrait alors être possible que la forme de « selle » soit liée au sillage des électrodes. Cet effet de sillage pourrait être renforcé par la

présence de la décharge NRP. Seydou [56] a réalisé des mesures de PIV d'une décharge NRP dans des écoulements de jets. Les champs de vitesse disponibles sur les pages 91-92 de Seydou [56] semblent montrer un ralentissement de l'écoulement au voisinage de la décharge lorsque celle-ci est générée.

La forme de selle peut apparaître dans certains cas : dans les jets rectangulaires, cette forme se manifeste à des conditions précises [80,181]. Dans notre cas, le régime d'écoulement n'est pas turbulent dans les deux plans et le ratio entre le côté large et le côté fin est trop faible. Il semble que notre configuration ne remplisse pas ces conditions pour obtenir un tel phénomène.

Nous n'avons pas considéré la charge d'espace qui pourrait redistribuer le champ électrique. Elle devrait jouer un rôle plus important dans la configuration micro-plasma car, dans les deux chapitres précédents, nous avons mesuré $n_e \sim 10^{19} \text{cm}^{-3}$ pendant quelques nanosecondes. Avec $\vec{E} = V_{\text{plaque}}/d_{\text{plaque}} = 3,5 \text{ kV} \cdot \text{cm}^{-1}$ et $\mu_i = 2,5 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, une vitesse moyenne des ions de $\bar{v}_i \approx 88 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ peut être estimée. Le temps de transit des ions provenant des électrodes vers la plaque est $\tau_{\text{par}} = 457 \mu\text{s}$. Ce temps est supérieur à $1/F_{\text{NRP}} = 125 \mu\text{s}$ et pourrait conduire à l'accumulation de charges dans l'espace entre le réacteur et la plaque.

L'objet de cette section a été de comparer un cas de décharge couronne avec la configuration micro-plasma. La puissance moyenne transférée est du même ordre de grandeur, mais le rapport cyclique est différent (micro-plasma $\sim 0,016\%$ et couronne 100%). L'objectif de la comparaison était de comprendre la forme de l'écoulement pour le cas micro-plasma (section 6.2). Nous concluons que la topologie de l'écoulement est principalement liée aux conditions proches des pointes. Ainsi, la distribution du champ électrique Laplacien pilote le comportement de la vitesse dans l'axe U_c et le type de panache (paresseux ou forcé). Nous expliquons la forme de selle par l'écoulement en amont du réacteur, qui devrait subir le sillage des électrodes. Ce dernier est très probablement amplifié par la présence de la décharge NRP.

6.4 Analyse paramétrique

Dans cette section, nous réalisons une analyse paramétrique sur trois paramètres agissant sur les propriétés de l'écoulement. Afin de répondre à notre contexte, nous allons étudier précisément des paramètres qui ne constituent pas *a priori* un changement important des caractéristiques de la micro-décharge NRP étudiée dans les chapitres précédents. Dans cette section, nous allons analyser l'effet de V_{plaque} , F_{NRP} et d_{plaque} .

6.4.1 Variation de V_{plaque}

La variation de la tension appliquée sur la plaque a été abordée dès la section 6.3.1 avec la figure 88. Nous avons conclu que la structure de l'écoulement restait identique, que la vitesse était fortement dépendante de la tension et que le changement de polarité n'induisait pas de

différences significatives. Nous rajoutons que le comportement de U_c sur l'axe x ne change pas car la taille des zones d'accélération, de plateau et d'impact reste inchangée.

Afin d'apporter des éléments supplémentaires, nous traçons les profils de vitesse normalisés par rapport à la vitesse dans l'axe U_c pour $x = d_{\text{plaque}}/2$ sur la figure 97. Nous n'observons pas de changement significatif entre les cas $V_{\text{plaque}} = -14 \text{ kV}$ et -16 kV . En revanche, la tension la plus basse permet d'obtenir un panache globalement plus large dans le plan XY (figure 97A).

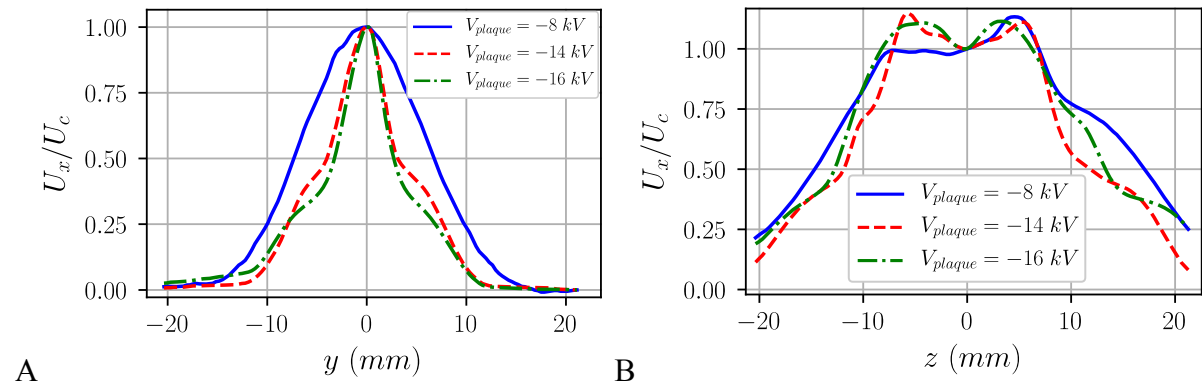


Figure 97: Profils de vitesse pour trois tensions différentes pour $x = d_{\text{plaque}}/2$ A) dans le plan XY et B) dans le plan XZ. La figure 88 indique des vitesses de $U_c = 0,9 \text{ m.s}^{-1}$, $1,5 \text{ m.s}^{-1}$ et 2 m.s^{-1} respectivement pour les cas $V_{\text{plaque}} = -8 \text{ kV}$, -14 kV et -16 kV .

Cette observation est corroborée par la visualisation Schlieren présentée sur les figures 98A et 98D. Nous y constatons que la trace thermique est plus large dans le cas de $V_{\text{plaque}} = -8 \text{ kV}$ que pour $V_{\text{plaque}} = -14 \text{ kV}$.

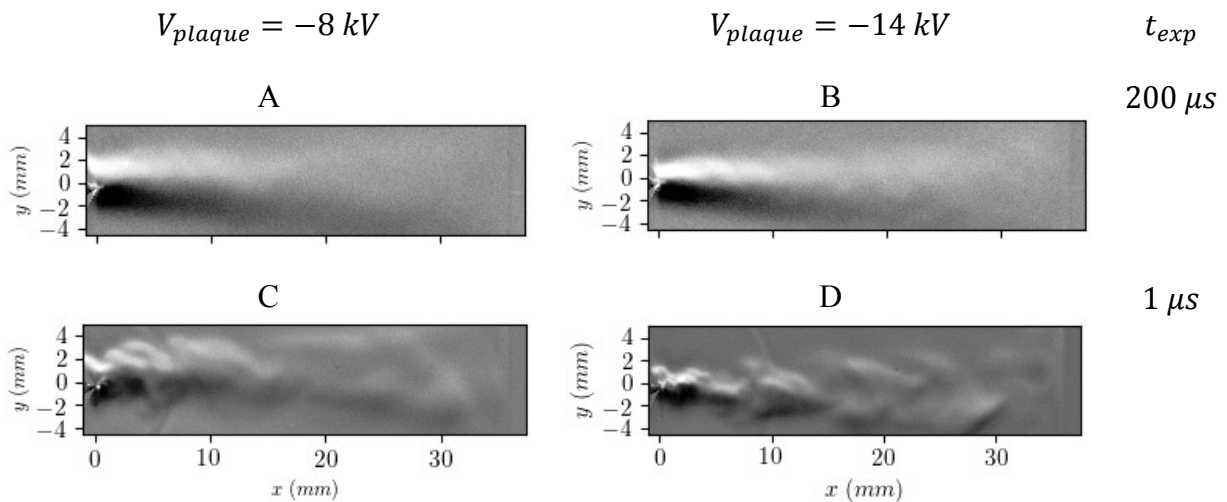


Figure 98: Photographies Schlieren longue exposition ($200 \times 1 \mu\text{s}$) A) pour $V_{\text{plaque}} = -8 \text{ kV}$, B) pour $V_{\text{plaque}} = -14 \text{ kV}$. Photographies courte exposition ($1 \mu\text{s}$) C) pour $V_{\text{plaque}} = -8 \text{ kV}$ et D) pour $V_{\text{plaque}} = -14 \text{ kV}$.

Par rapport à notre contexte applicatif défini dans la section 6.1.1, le changement de tension sur la plaque faisant office de substrat semble être un moyen simple de changer le flux gaz provenant du micro-plasma jusqu'au substrat sans changer la topologie de l'écoulement et les caractéristiques de la micro-décharge NRP.

6.4.2 Variation de F_{NRP}

Le changement de la fréquence devrait agir sur le nombre d'espèces chargées générées et sur la chaleur qui est libérée par unité de temps. Ces deux grandeurs devraient elles-mêmes avoir une influence sur la vitesse et la topologie de l'écoulement.

La figure 99 présente la variation de la vitesse axiale au centre du panache pour trois fréquences différentes. Nous observons que la vitesse croît en fonction de F_{NRP} . Ce résultat est attendu car la fréquence augmente la production moyenne de charges et par conséquent la force moyenne transmise au fluide. Cependant, la variation est moins sensible que pour la tension puisqu'ici F_{NRP} augmente (de presque deux ordres de grandeur) pour des différences de vitesses équivalentes à la figure 88, où V_{plaque} varie seulement par un facteur $\times 2$.

De plus, nous observons que l'utilisation de fréquences faibles avec $F_{NRP} = 100 \text{ Hz}$ permet d'obtenir un profil dans le centre du panache qui augmente jusqu'à $x \approx 30 \text{ mm}$. Cela est probablement lié aux forces visqueuses qui sont plus importantes lorsque la vitesse augmente.

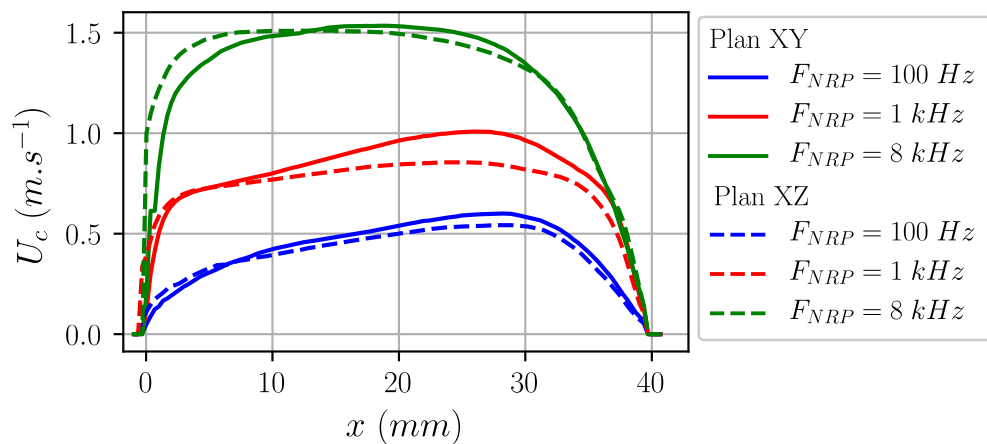


Figure 99: Vitesse axiale moyenne U_c dans le plan XY et XZ pour trois fréquences différentes avec $V_{plaque} = -14 \text{ kV}$, $d_{gap} = 200 \mu m$ et $d_{plaque} = 40 \text{ mm}$.

Si nous observons la forme des profils de vitesse sur la figure 100, nous constatons que l'augmentation de la fréquence n'a pas d'impact significatif. Toutefois, les cas à basse fréquence ($F_{NRP} = 1 \text{ kHz}$ et $F_{NRP} = 100 \text{ Hz}$) présentent des profils normalisés similaires où la vitesse retombe à $\overline{U}_x \approx 0 \text{ m} \cdot s^{-1}$ pour $z = \pm 20 \text{ mm}$ (figure 100A). Le cas $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ montre quant à lui que la vitesse augmente sensiblement sur les bords du panache dans le plan XY comme dans le plan XZ.

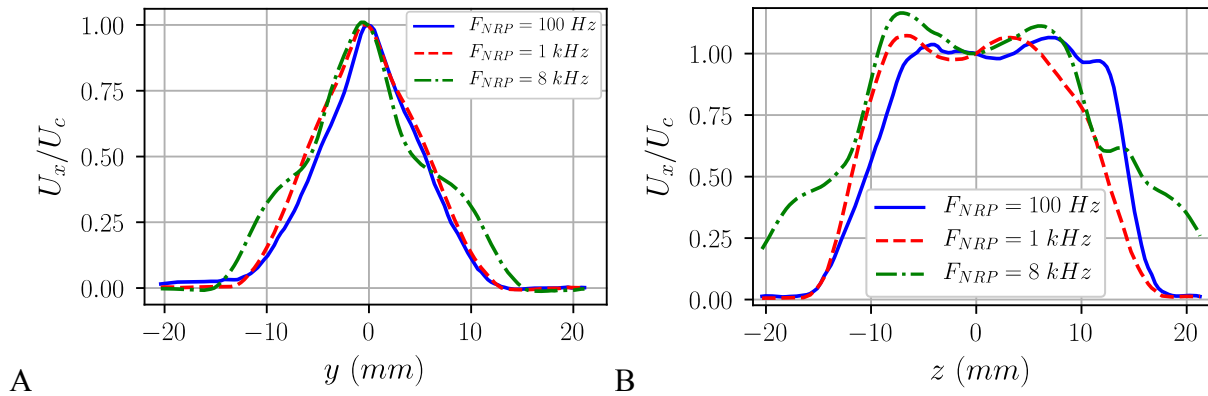


Figure 100: Profils de vitesse pour trois fréquences avec $V_{\text{plaque}} = -14 \text{ kV}$, $d_{\text{gap}} = 200 \mu\text{m}$, $d_{\text{plaque}} = 40 \text{ mm}$ et $x = d_{\text{plaque}}/2$ A) dans le plan XY et B) dans le plan XZ.

La charge d'espace pourrait être un aspect important lorsque des hautes fréquences sont utilisées. La redistribution du champ électrique sur les côtés expliquerait la réinjection de force EHD sur les bords et donc le profil de vitesse lorsque $F_{\text{NRP}} = 8 \text{ kHz}$ (figure 100).

Globalement, le changement de fréquence apporte des modifications sur les vitesses mais aussi sur la topologie de l'écoulement. Nous approfondirons l'analyse de ces fréquences dans la section suivante (6.5), dédiée à la description des instationnarités.

6.4.3 Distance d_{plaque}

Dans le cadre des applications potentielles des décharges NRP micro-plasmas, on peut s'attendre à des distances d_{plaque} très faibles, de l'ordre du $\sim \text{mm}$ afin de réaliser des traitements locaux avec une précision importante. De plus, il est attendu que la recombinaison évolue en fonction de la distance. Le paramètre d_{plaque} est donc potentiellement intéressant comme manière de régler la chimie souhaitée pour agir sur un substrat.

Dans cette section, nous allons nous intéresser à des distances $d_{\text{plaque}} \in [5 \text{ mm}, 40 \text{ mm}]$. D'un point de vue fondamental, approcher la troisième électrode revient à changer la répartition spatiale du champ mais aussi à confiner l'écoulement. De plus, nous avons constaté précédemment (figure 88 ou 99) que la zone de forte accélération correspond à $x = 10 \text{ mm}$. Nous allons chercher à confiner cette zone.

Nous concentrons notre analyse sur le plan XZ. Nous comparons ces cas à notre cas $d_{\text{plaque}} = 40 \text{ mm}$ et $V_{\text{plaque}} = -16 \text{ kV}$. Conséquemment, nous reportons les champs de la norme de la vitesse et de la vitesse radiale sur la figure 101 pour $d_{\text{plaque}} = 5 \text{ mm}$ (figure 101A et B) et 10 mm (figure 101C et D) avec respectivement des tensions appliquées sur la plaque égales à $V_{\text{plaque}} = -2 \text{ kV}$ et -4 kV . Le rapport $V_{\text{plaque}}/d_{\text{plaque}}$ est conservé.

Pour les deux cas, nous observons que la topologie de l'écoulement change. L'écoulement est globalement plus lent lorsque le micro-plasma NRP est proche de la plaque. Les zones typiques divergentes (figure 84 p 143) sont visibles mais une zone convergente est apparue au

milieu. De plus, la vitesse de l'écoulement au milieu est plus lente. Nous attribuons ce comportement au confinement de la zone d'accélération derrière le sillage des électrodes combiné avec la zone d'impact. Dans le cas où $d_{\text{plaque}} = 5 \text{ mm}$, nous remarquons une dégradation générale avec la perte de la similitude et de la symétrie.

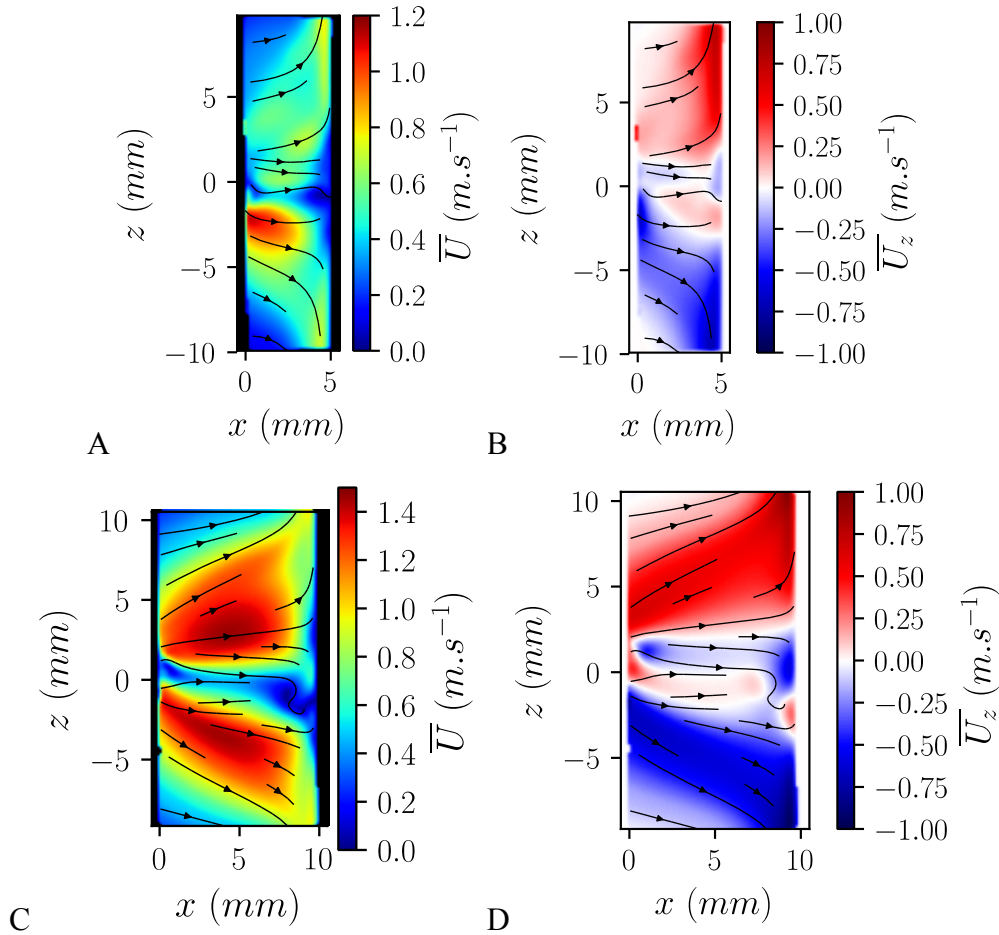


Figure 101: A) Champs de la norme de la vitesse et B) de vitesses radiales pour $d_{\text{plaque}} = 5 \text{ mm}$, $V_{\text{plaque}} = -2 \text{ kV}$. C) Champs de la norme de la vitesse et D) de vitesses radiales pour $d_{\text{plaque}} = 10 \text{ mm}$, $V_{\text{plaque}} = -4 \text{ kV}$ pour $d_{\text{plaque}} = 10 \text{ mm}$ et $F_{\text{NRP}} = 8 \text{ kHz}$ dans le plan XZ .

Nous utilisons la figure 102 afin de comparer les profils de vitesse des différentes distances d_{plaque} . Avec la figure 102A, nous comparons la vitesse axiale moyenne U_c . Nous observons que la proximité de la plaque diminue fortement U_c . Nous observons également sur la figure 102B représentant les profils de vitesse de U_x pour $x = d_{\text{plaque}}/2$, que le comportement de la forme de selle est accentué lorsque d_{plaque} diminue et semble le plus important pour $d_{\text{plaque}} = 10 \text{ mm}$.

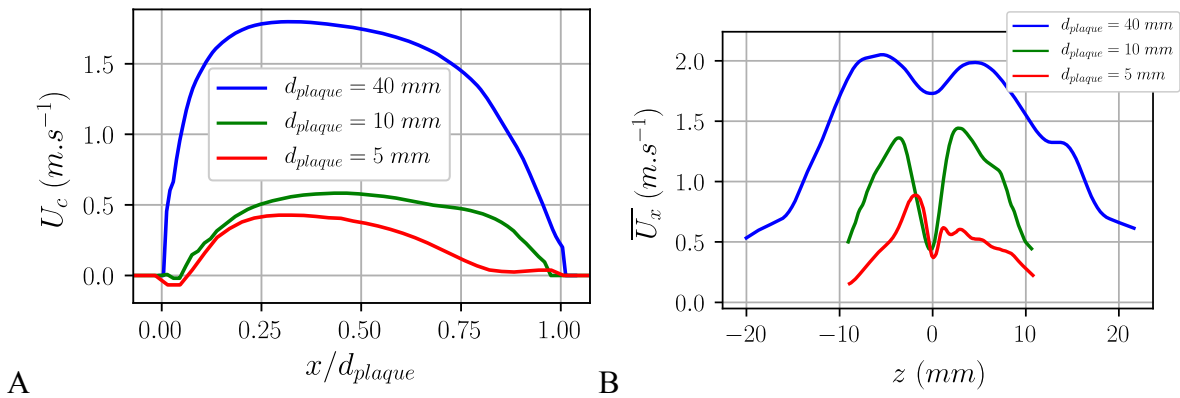


Figure 102: Profils de vitesse de la vitesse axiale A) U_c B) Profil de vitesse pour $x = d_{plaque}/2$ dans le plan XZ. Le champ électrique moyen est maintenu constant soit $V_{plaque} = -16$ kV, -4 kV et -2 kV correspondant aux distances $d_{plaque} = 40$ mm, 10 mm et 5 mm.

La variation de d_{plaque} a modifié la topologie de l'écoulement et accentué la forme de selle du profil de la vitesse axiale. De plus l'écoulement est moins symétrique, particulièrement pour $d_{plaque} = 5$ mm.

6.4.4 Bilan des études paramétriques

Nous avons concentré notre analyse sur trois paramètres, V_{plaque} , F_{NRP} et d_{plaque} . Nous avons remarqué qu'augmenter la tension V_{plaque} augmente la vitesse du fluide sans affecter significativement la topologie générale. La fréquence F_{NRP} modifie également la vitesse du fluide et nous avons observé qu'en passant de $F_{NRP} = 1$ kHz à $F_{NRP} = 8$ kHz, cela changeait les profils avec une augmentation de la vitesse sur les bords. La distance d_{plaque} affecte le plus fortement la topologie et la vitesse. La réduction de U_c accentue la forme de selle du profil de dans le plan XZ ce qui tend à confirmer que la forme de selle est liée au sillage des électrodes.

6.5 Étude des fluctuations et des champs instantanés

Dans cette partie, nous allons apporter quelques éléments complémentaires aux champs de vitesse moyens pour décrire l'écoulement en étudiant ses fluctuations et des champs instantanés.

Dans la première section 6.5.1, nous exposerons des champs de vitesse instantanés. Nous présenterons notamment l'évolution du panache, à partir du moment où le fluide est au repos jusqu'au moment où le panache atteint la plaque. Nous montrerons également un effet de battement du panache, et nous décrirons le contenu fréquentiel de la vitesse. Cela nous amènera à aborder dans la section 6.5.2, l'effet que chaque impulsion apporte sur la mise en mouvement du fluide. Nous étudierons le cas $F_{NRP} = 100$ Hz, qui représente un cas « basse fréquence », permettant de détailler une période de l'allumage du micro-plasma. Ces sections nous permettront d'expliquer les champs de fluctuations que nous présenterons dans la section 6.5.3.

6.5.1 Champs instationnaires

Dans cette section nous présentons les données instationnaires de l'écoulement dont les caractéristiques moyennes ont été présentées dans la section 6.2. Cela correspond donc à $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$, $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ et $d_{plaque} = 40 \text{ mm}$. Nous nous intéressons d'abord aux champs de vitesse à l'allumage du micro-plasma lorsque le fluide est au repos, puis dans un second temps nous étudions les instationnarités lorsque le régime établi est atteint.

La figure 103 montre le champ de la norme de la vitesse U pour le plan XZ dans l'intervalle de temps $t \in [6,1 \text{ ms}; 43,1 \text{ ms}]$ après l'allumage du micro-plasma NRP (à $t = 0$) jusqu'à l'impact sur la plaque, dans les conditions standards (section 6.1.2). Pour $t = 6,1 \text{ ms}$ (figure 103A), nous observons déjà que le maximum de la vitesse n'est pas au milieu du panache. Le profil en forme de selle apparaît donc très tôt. Le panache atteint la plaque à $t = 43 \text{ ms}$. Il faut donc 345 impulsions pour générer un écoulement jusqu'à la plaque avec $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ et $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$; cela représente environ 39 mJ d'énergie dissipée dans le micro-plasma.

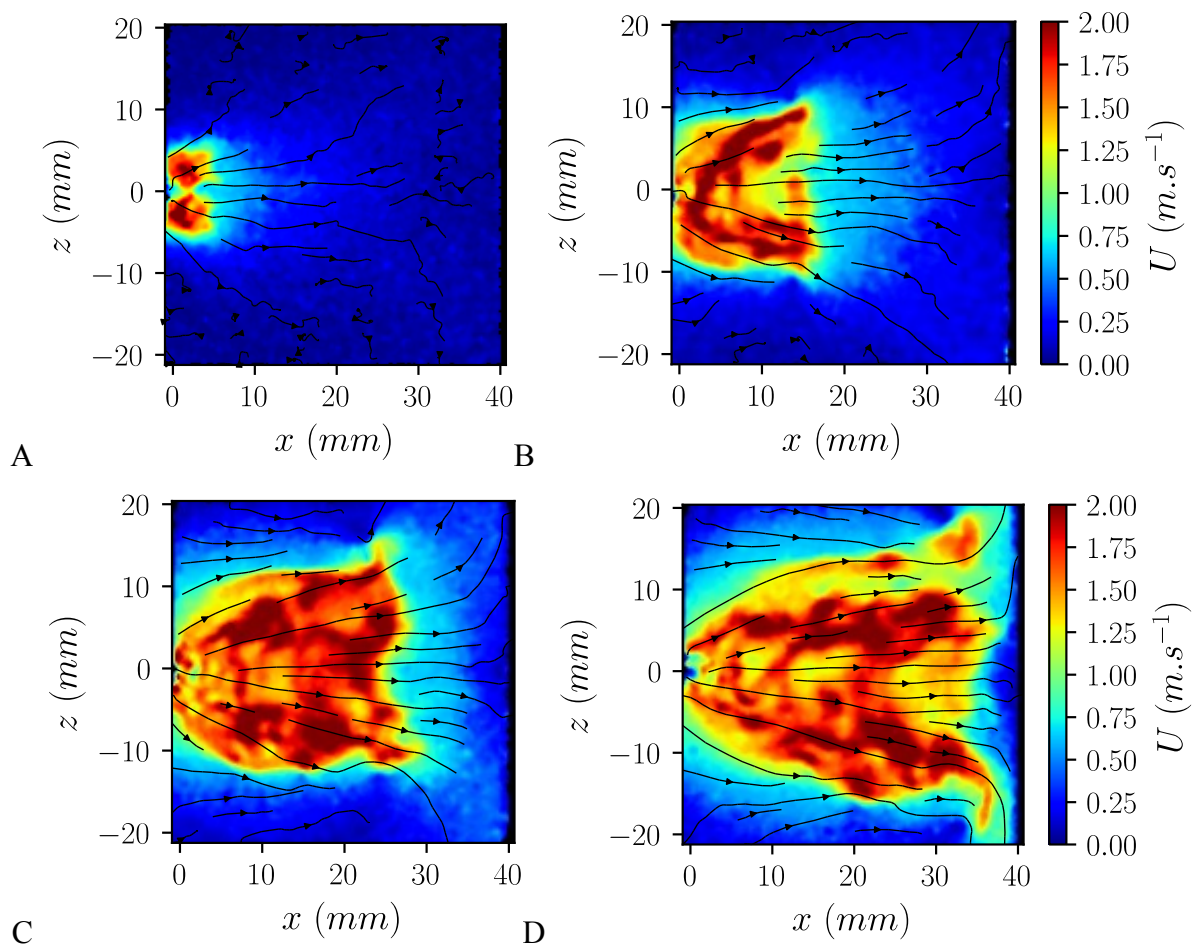


Figure 103: Champ instantané du module de la vitesse U dans plan XZ pour A) $t = 6,2 \text{ ms}$, B) $t = 18,5 \text{ ms}$, C) $t = 30,8 \text{ ms}$ et D) $t = 43,1 \text{ ms}$ après l'allumage du micro-plasma NRP avec $V_{plasma} = 2,5 \text{ kV}$, $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ et $V_{plaque} = -14 \text{ kV}$. Cela représente respectivement 50, 148, 246 et 345 impulsions.

Les données de la figure 103 sont représentées différemment sur la figure 104. Celle-ci présente le profil de U_x dans l'axe du panache dès les premières impulsions. Nous remarquons que la mise en mouvement de l'écoulement n'est pas seulement l'avancée du front du panache vers la plaque : il y a aussi une accélération « volumique ». Cela se manifeste par une vitesse d'environ $0,6 \text{ m.s}^{-1}$ en aval du front du panache. Ainsi, dès $t = 6,2 \text{ ms}$ (50 impulsions, courbe A figure 104), il est observé que $U_x \approx 0,6 \text{ m.s}^{-1}$ pour $x = 5 \text{ mm}$ et décroît jusqu'à $x = 30 \text{ mm}$. Cette accélération ne correspond pas à l'advection d'une zone de forte vitesse comme le front. Nous reviendrons sur cette observation ultérieurement.

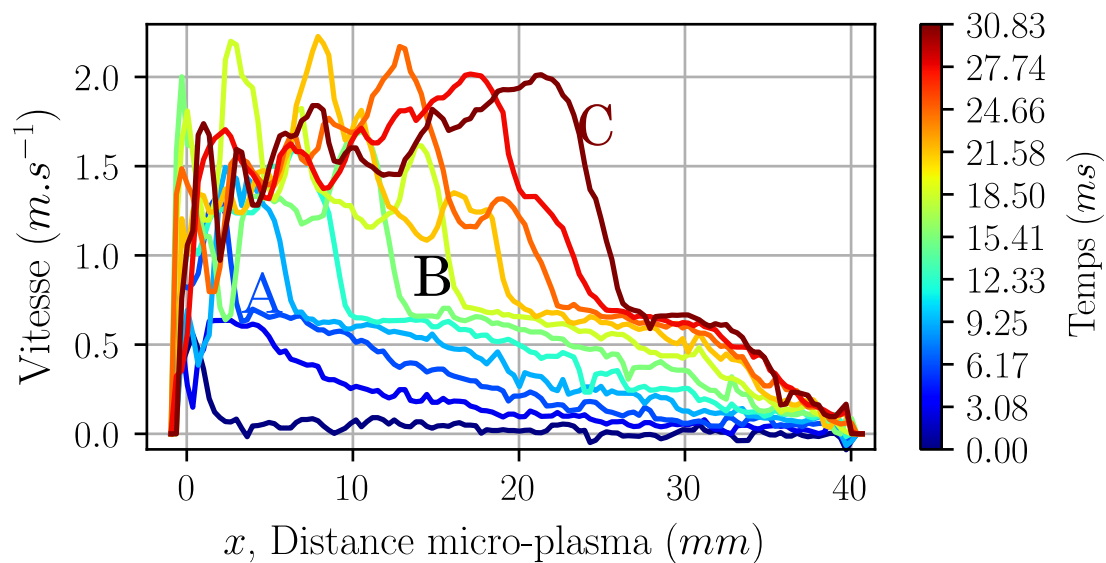


Figure 104: Profils de vitesse de U_x dans l'axe du panache dès l'allumage du micro-plasma NRP. Les lettres A, B et C représentent les profils extraits des figures 103 A, B et C.

Nous allons maintenant nous concentrer sur les fluctuations de vitesse lorsque le régime permanent est établi. D'autres champs instantanés de la norme de la vitesse sont affichés sur la figure 105 lorsque le régime établi est atteint, dans les plans XY (figures 105A et B) et XZ (figures 105C et D). Ils représentent des champs de vitesse pris à un temps arbitraire suivi d'un autre pris $6,1 \text{ ms}$ plus tard. Nous remarquons tout d'abord que les champs instantanés sont représentatifs des champs moyens discutés dans la section 6.2.1.

Ces figures mettent également en évidence un « battement » du panache dans le plan XY sur les figures 105A et B. Sur la figure 105A, le panache se dirigeait vers le bas alors que $6,1 \text{ ms}$ plus tard (figure 105B), le panache se dirige vers le haut. Dans le plan XZ, ce battement se manifeste par succession de zones avec des faibles et hautes vitesses dans le milieu du panache. Cela est observé sur les figures 105C et D. Nous remarquons par exemple la zone de vitesse faible positionnée à $z = 0 \text{ mm}$ et $x = 10 \text{ mm}$ sur la figure 105C. Cette zone est advectée à $x = 20 \text{ mm}$ environ $6,1 \text{ ms}$ plus tard.

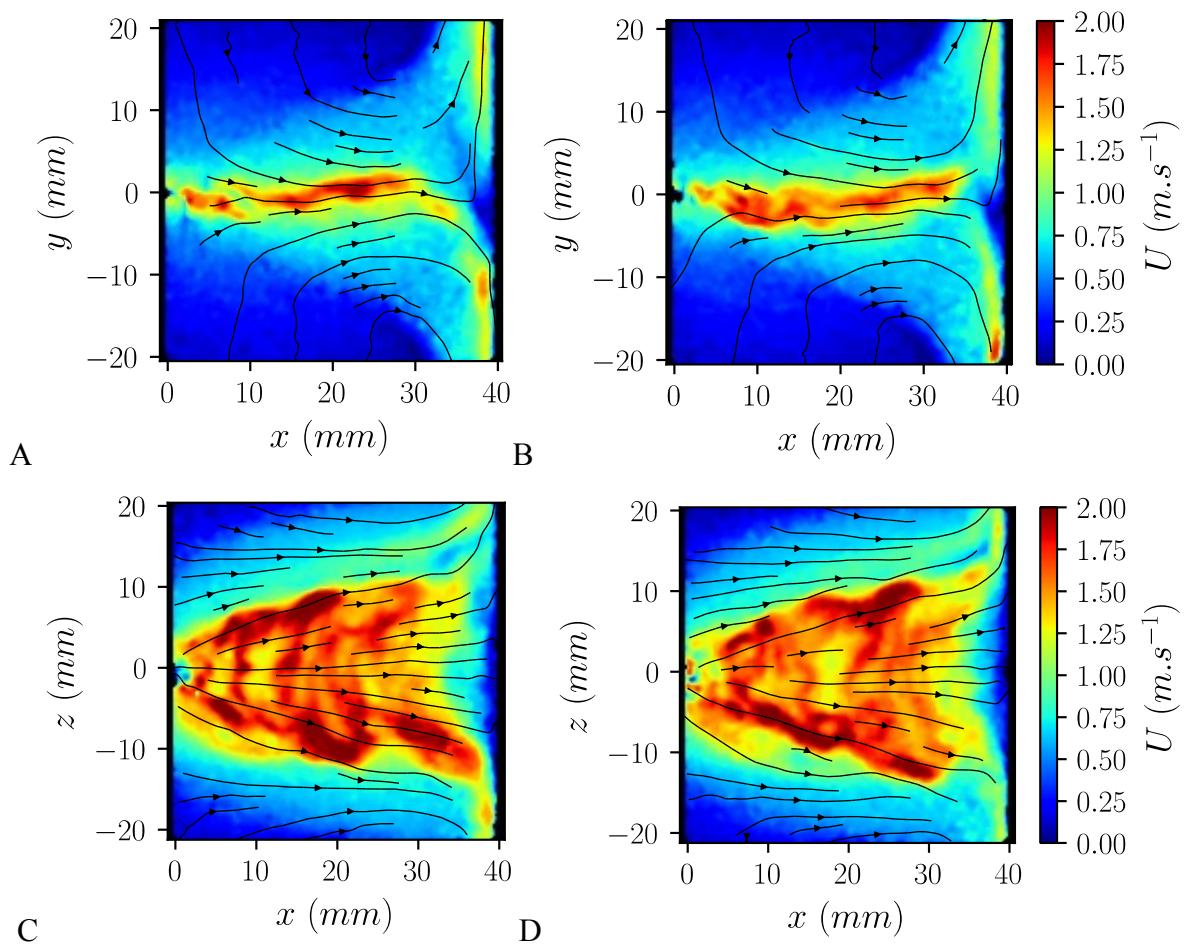


Figure 105: Champs de vitesse instantanée pour $d_{gap} = 200 \mu m$, $F_{NRP} = 8 kHz$ et $d_{plaque} = 40 mm$ dans le plan XY A) à un temps arbitraire t_n , B) à $t_n + 6,1 ms$ et dans le plan XZ, C) à t_n et D) à $t_n + 6,1 ms$. Les plans n'ont pas été mesurés en même temps.

Les champs de vitesse (figure 105) ne permettent pas de présenter un grand nombre de pas de temps. C'est pourquoi nous les affichons différemment afin de représenter plus de pas de temps.

La figure 106 présente la variation temporelle de U_x sur l'axe du panache pour $F_{NRP} = 1 kHz$ et $F_{NRP} = 8 kHz$. Le temps a été divisé par $\langle U_c \rangle$, la moyenne spatiale de U_c sur l'axe (figure 88 p 147 pour les valeurs de U_c). Ainsi nous pouvons visualiser les zones de faibles et de fortes vitesses se succédant sur l'axe. Cette opération permet de compter le nombre de « structures » qui y a entre la plaque et le micro-plasma à chaque instant.

Sur la figure 106B et sur une durée d'environ 0,1 s (soit $t \times U_c = 0,15$), Nous comptons environ 15 périodes de fluctuations, ce qui correspondrait à une fréquence de battement d'environ 150 Hz en zone proche de la plaque. Ce battement a une fréquence et une amplitude bien moins importante pour $F_{NRP} = 1 kHz$. De plus, les structures ne sont pas parfaitement définies. Nous pouvons seulement estimer que la fréquence de battement est inférieure à 20 Hz.

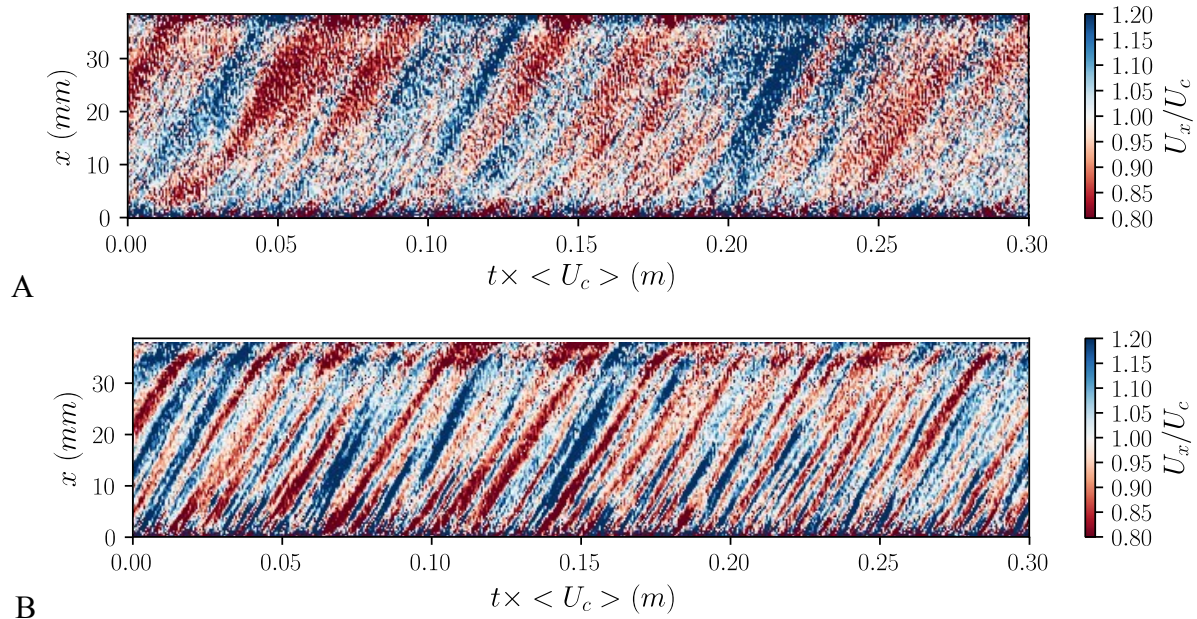


Figure 106: Diagrammes illustrant la variation temporelle, divisé par la moyenne de la vitesse axiale (U_c) (en temps et en espace) de la vitesse axiale U_x divisé par la vitesse de référence locale U_c A) pour $F_{NRP} = 1$ kHz et B) $F_{NRP} = 8$ kHz.

Les données de la figure 106A et B sont reprises pour calculer la densité spectrale de puissance (DSP) sur la figure 107A, afin d'observer quelle est la fréquence du battement. Nous avons moyenné spatialement la DSP sur l'axe afin de lisser les spectres. Nous n'observons pas de pic de fréquence bien défini pour les fréquences que nous avons estimées (20 Hz et 150 Hz). En revanche, Nous observons un lobe épais qui est positionné à une fréquence d'environ 100 Hz pour $F_{NRP} = 8$ kHz, tandis que pour $F_{NRP} = 1$ kHz, la DSP est toujours décroissante lorsque la fréquence augmente.

Le battement n'est probablement pas assez stable pour signer à une fréquence précise pour les deux cas. Néanmoins, nous pouvons en conclure que la fréquence de battement du panache n'est pas celle de la fréquence de répétition des impulsions F_{NRP} .

Nous remarquons sur la figure 107A les pics de fréquence liés au fondamental et aux harmoniques de $F_{NRP} = 1$ kHz alors qu'il est très faible pour $F_{NRP} = 8$ kHz. Cela peut s'expliquer par la fréquence trop faible de notre PIV (19 kHz au maximum). C'est pourquoi nous concentrons l'analyse suivante sur $F_{NRP} = 1$ kHz.

Nous traçons sur la figure 107B une cartographie de la DSP en fonction de la fréquence et de la position x sur l'axe de l'écoulement. Nous remarquons des harmoniques de rang important (jusqu'à 9 kHz) en zone très proche de la micro-décharge. Cela est probablement lié à l'expansion thermique de la décharge qui est très rapide (section 5.1.2).

En zone lointaine ($x > 20$ mm), seules les harmoniques de rangs 2 et 3 sont observables. Le fondamental de fréquence $F_{NRP} = 1$ kHz persiste jusqu'à la plaque. Cela indique qu'il y a des signes de l'application de chaque impulsion jusqu'à $x = d_{plaque}$.

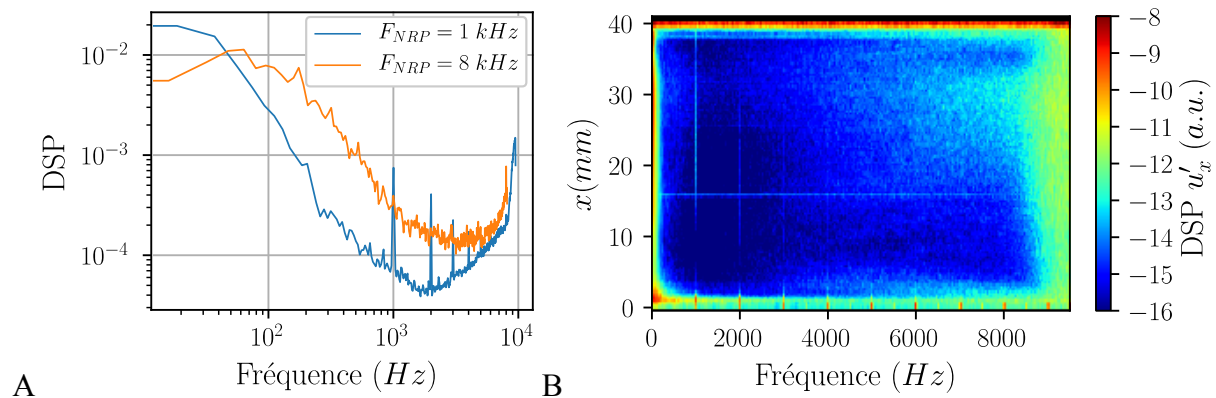


Figure 107: A) Densités spectrales de puissance de la vitesse pour $F_{NRP} = 1 \text{ kHz}$ et $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ calculées avec les données exhibées sur les figures 106A et B. B) Contenu spectral de la fluctuation de vitesse avec la résolution spatiale sur x .

Lors de la présentation de la figure 104 (p 163), nous avons émis l'idée d'une accélération volumique. Ce phénomène suggère qu'une force est appliquée dans tout le volume à une vitesse plus rapide que celle du panache. Cela pourrait être l'œuvre des charges qui sont beaucoup plus rapides que le fluide (88 m.s^{-1} estimé dans la section 6.3.4). Le fait que la fréquence de $F_{NRP} = 1 \text{ kHz}$ soit présente dans tout l'espace entre le réacteur et la plaque signifierait que c'est l'allumage du micro-plasma qui ajoute cette force volumique.

Cette section a traité des instationnarités. Le régime instationnaire nous a indiqué deux accélérations. L'une correspond à l'advection des structures rapides créées près du réacteur. L'autre correspond à une accélération volumique. Dans la prochaine section, nous allons approfondir ce constat en étudiant l'effet de chaque impulsion sur l'écoulement.

L'analyse fréquentielle nous permet de conclure que l'écoulement reste sensible à chaque claquage du micro-plasma lorsque $F_{NRP} = 1 \text{ kHz}$. Inversement, pour les fréquences plus élevées ($F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$), les impulsions agissent collectivement pour accélérer l'écoulement.

6.5.2 Effets de chaque impulsion

Dans cette section, nous allons étudier l'effet global apporté par chaque impulsion. La fréquence d'acquisition des images de notre système PIV ne nous permet pas d'avoir une résolution temporelle assez importante pour $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ et $F_{NRP} = 1 \text{ kHz}$. Nous nous concentrons donc sur le cas $F_{NRP} = 100 \text{ Hz}$. La figure 108 présente des relevés temporels de la vitesse axiale en zone proche du micro-plasma NRP ($x = 1 \text{ mm}$) et à mi-parcours de la plaque ($x = 20 \text{ mm}$). La courbe correspondant à $F_{NRP} = 100 \text{ Hz}$ proche de la décharge montre une variation périodique à la même fréquence que la génération du micro-plasma alors qu'à la moitié de l'espace inter-électrodes, Nous observons une vitesse presque constante à $U_x = 0,5 \text{ m.s}^{-1}$.

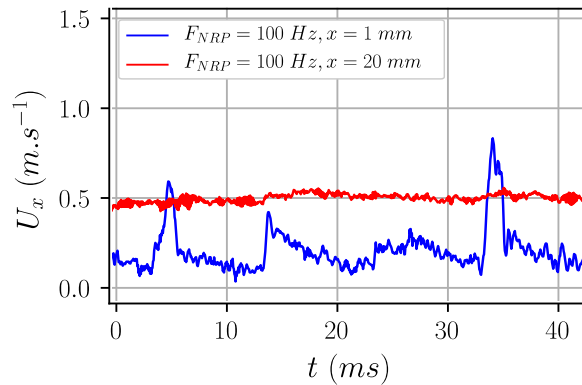


Figure 108:A) Variation de la vitesse axiale à $x = 1 \text{ mm}$ et $x = 20 \text{ mm}$ pour $F_{NRP} = 100 \text{ Hz}$ avec $V_{\text{plaque}} = -14 \text{ kV}$ et $d_{\text{plaque}} = 40 \text{ mm}$. Les données ont été lissées avec une moyenne glissante sur cinq points.

Nous présentons le champ moyen de la norme de la vitesse dans le plan XZ sur la figure 109A. Comme nous l'avons remarqué dans la section 6.4.2, le maximum de la vitesse est positionné à $x = 30 \text{ mm}$.

Nous étudions le phénomène en utilisant une moyenne de phase. 8200 échantillons ont été utilisés correspondant à 160 phases qui ont donc été moyennées chacune sur 51 échantillons. Nous traçons sur la figure 109B, C et D l'évolution temporelle sur une période.

La figure 109B présente la vitesse U_x sur l'axe x pour $z = 0 \text{ mm}$. Lorsqu'une décharge est générée, nous observons une accélération pendant $0,2 \text{ ms}$ presque « instantanée » dans tout l'espace entre le réacteur et la plaque (au regard de $1/F_{NRP}$). Avec notre découpage en 160 phases, cela représente une accélération sur seulement 3 phases. Nous ciblons trois mécanismes pouvant influencer le champ de vitesse à toutes les positions avec une constante de temps aussi faible :

- l'onde de pression consécutive au chauffage rapide dans le micro-plasma (environ $340 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$) ;
- les ions générés dans le micro-plasma se dirigent vers la plaque à une vitesse plus rapide que le gaz (environ $100 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$), ils transfèrent leur quantité de mouvement lorsqu'ils dérivent vers la plaque ;
- le second mécanisme peut être amplifié par le champ électrique pulsé, celui-ci, appliqué sur l'électrode active peut influencer l'écoulement ou les particules.

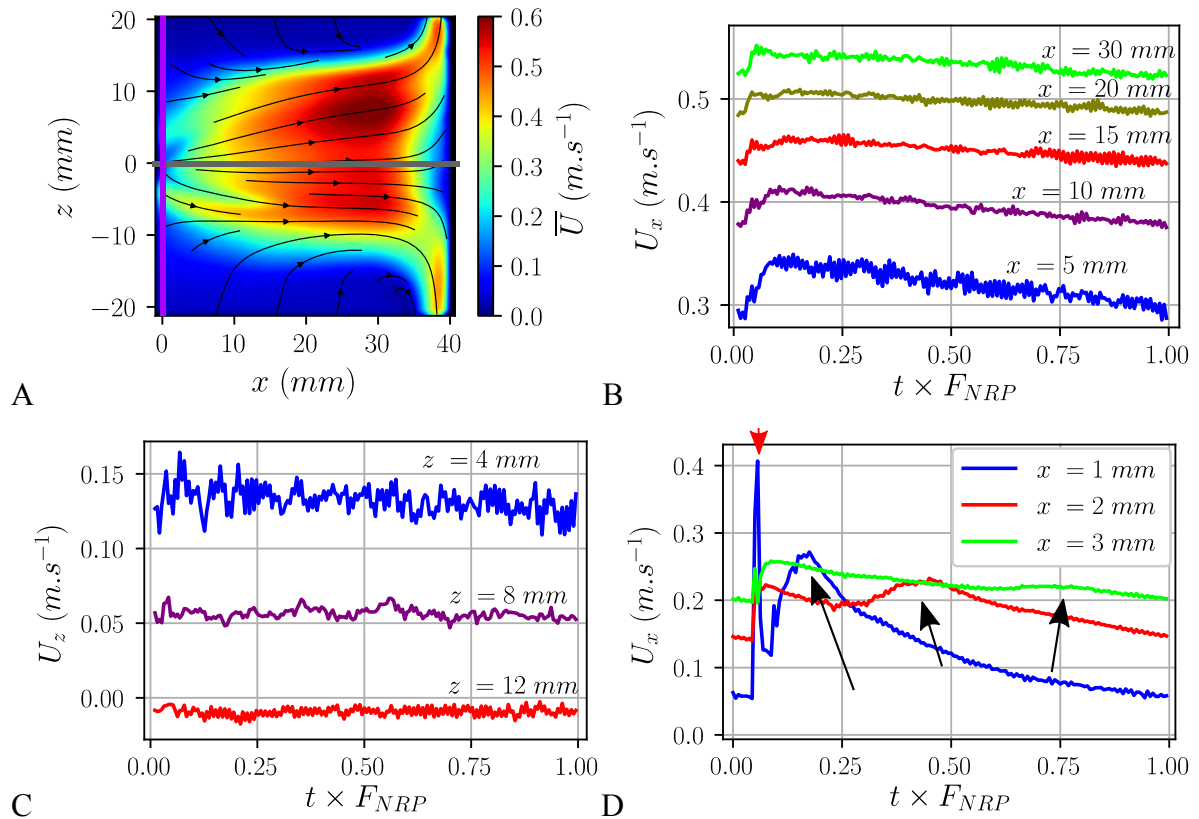


Figure 109: A) Champ moyen de la norme de la vitesse $F_{NRP} = 100$ Hz, $d_{gap} = 200$ μ m et $d_{plaque} = 40$ mm. B) Vitesse axiale U_x dans l'axe en zone « lointaine » (en gris sur A). C) Vitesse radiale U_z sur une période pour $x = 0$ mm (trait violet sur A). D) Vitesse axiale U_x dans l'axe en zone « proche » (en gris sur A), la flèche rouge indique la génération du micro-plasma. Les courbes des figures B et C ont été lissées avec une moyenne glissante de trois points.

La figure 109C nous montre la vitesse radiale U_z pour $x = 0$ mm et $z \in [4$ mm; 12 mm]. Du fait de la taille de la décharge, la propagation de l'onde de pression est sphérique. La figure 109C exclue donc l'onde de pression car nous n'observons pas une accélération similaire de la vitesse radiale sur l'axe z pour $x = 0$ mm.

L'hypothèse du champ électrique pulsé appliqué sur l'électrode active du micro-réacteur est peu probable. En effet, la tension $V_{plasma} = 2,5$ kV n'est pas significative devant $V_{plaque} = -14$ kV. De plus, nous n'avons pas observé de dissymétrie de l'écoulement dans le plan XY à des fréquences plus élevées (section 6.2) et l'écoulement n'est pas différent lorsque V_{plaque} et V_{plasma} sont de même signe (figure 88 p 147).

La dérive des ions du micro-plasma vers la plaque nous semble donc être le mécanisme principal permettant d'accélérer rapidement l'écoulement sur tout l'axe x lorsque une micro-décharge est générée. Cela implique que les charges survivent à des densités significatives jusqu'à la plaque.

La figure 109D représente la variation de la vitesse sur une période mais nous avons agrandi l'image pour nous concentrer sur les électrodes. La taille du champ était d'environ $5\text{ mm} \times 5\text{ mm}$. L'agrandissement permet d'obtenir un déplacement de particules mieux adapté à la fréquence d'acquisition des images. Conséquemment, les courbes sont moins bruitées. Nous observons sur la figure 109D un deuxième type d'accélération. Celle-ci est mise en valeur par trois flèches noires et elle correspond à l'advection du pic de vitesse produit au niveau du microréacteur. Elle est visible seulement sur les trois premiers millimètres.

Dans la section (figure 104 (p 163)), nous avons mis en évidence ces deux accélérations consécutives avec l'accélération volumique et l'advection du front pour $F_{NRP} = 8\text{ kHz}$.

Cette section nous a permis de constater que le développement du panache est marqué par deux étapes. D'abord, chaque claquage du micro-plasma provoque rapidement une accélération dans tout l'espace entre le réacteur et la plaque. Cela se manifeste sur la figure 104 lors du développement du panache et sur le spectre de la figure 107B pour $F_{NRP} = 1\text{ kHz}$. Dans un second temps, l'advection des structures créées proches du réacteur intervient. Nous l'observons notamment sur les figures 103, 104 et 109D.

6.5.3 Approche statistique des fluctuations et vorticité

Nous analysons les fluctuations moyennes avec les composantes du tenseur de Reynolds $\overline{u'_x u'_x}$, $\overline{u'_y u'_y}$ et $\overline{u'_x u'_y}$. Les composantes $\overline{u'_y u'_y}$ et $\overline{u'_x u'_x}$ représentent la variance de $U_x(t)$ et $U_y(t)$ estimées numériquement par l'équation (62). Nous représentons plutôt l'intensité turbulente calculée par l'équation (63) avec U_c , la vitesse axiale moyenne dans le centre du panache, sur la figure 110.

$$\overline{u'_i u'_j} = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n u'_{ik} u'_{jk} \quad (62)$$

$$I_i = \sqrt{\overline{u'^2_i}} / U_c \quad (63)$$

On retrouve dans le plan XY (figures 110A, C et E) des caractéristiques identiques à ce que l'on peut retrouver dans les jets libres turbulents ronds avec des zones sur les côtés où les fluctuations $\overline{u'_x u'_x}$ (110A) et $\overline{u'_x u'_y}$ (110E) sont importantes. Les fluctuations dans les zones d'aspiration sont très faibles $\overline{u'_x u'_x} / U_c < 10\%$.

Ces zones de faible intensité « turbulentes » sont également observables sur le plan XZ sur la figure 110B. Néanmoins, pour ce plan, les fluctuations se détachent d'un comportement de jet libre turbulent (Chassaing [77] (p 337)) : nous constatons sur la figure 110D que $\overline{u'_z u'_z}$ est important sur les côtés et non centré au milieu comme sur la figure 110C. Ces fluctuations ne sont pas réellement dues à de la turbulence ; nous avons montré que notre nombre de Re est trop faible : nous sommes dans un régime de transition.

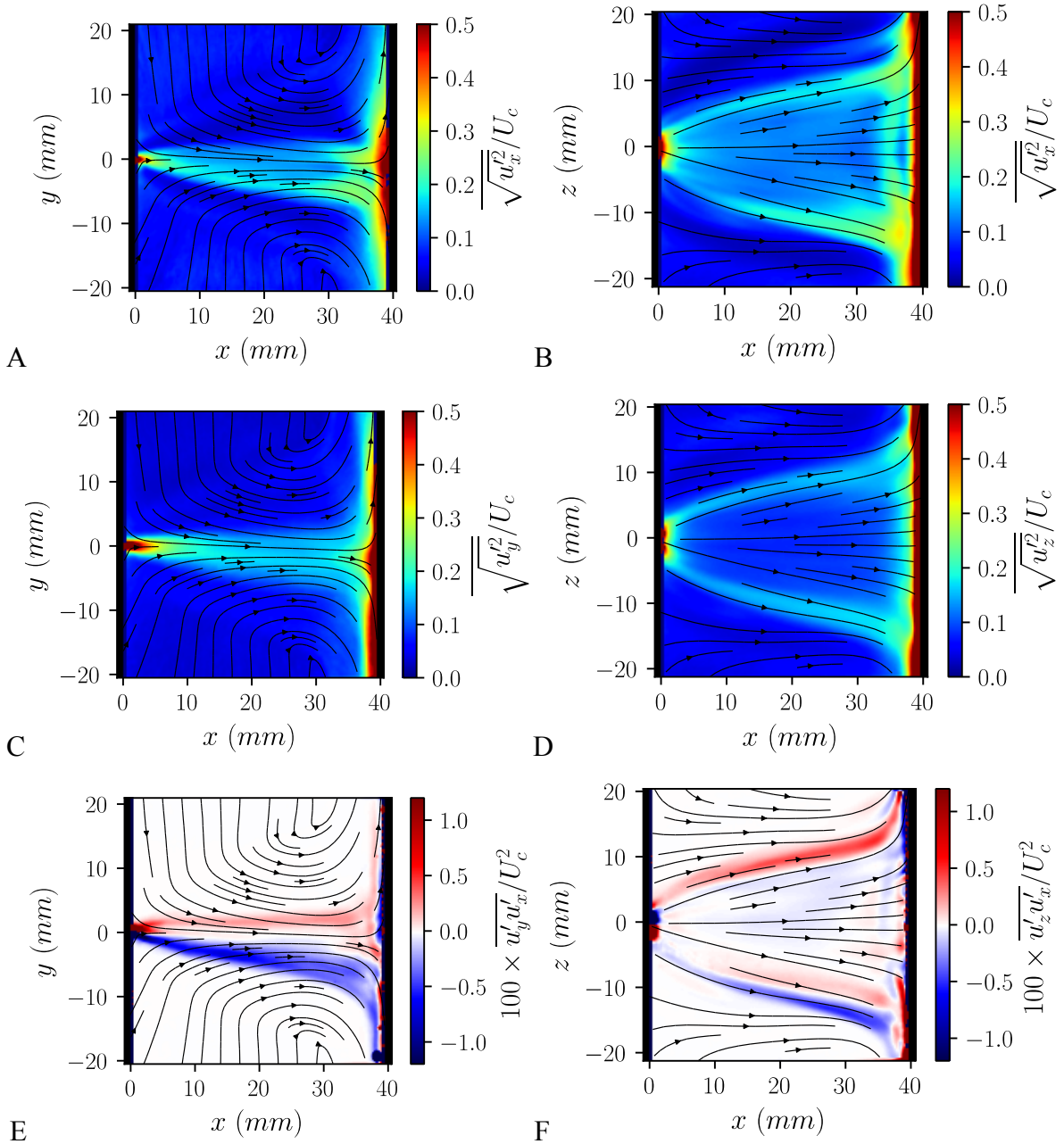


Figure 110: Composante du tenseur de Reynolds pour $V_{\text{plaque}} = -14$ kV, $d_{\text{plaque}} = 40$ mm, $F_{\text{NRP}} = 8$ kHz et $V_{\text{plasma}} = 2,5$ kV. Dans le plan XY A) $\overline{u'_x u'_x}$ B) $\overline{u'_y u'_y}$ C) $\overline{u'_x u'_y}$ et dans le plan XZ D) $\overline{u'_x u'_x}$ E) $\overline{u'_z u'_z}$ F) $\overline{u'_x u'_z}$. Les fluctuations sont normalisés par U_c .

Nous allons expliquer ces champs de fluctuations en présentant les champs de vorticité. Les champs moyens de vorticité sont affichés sur la figure 111. Le plus souvent, la vorticité, notée Ω_z dans le plan XY et Ω_y dans le plan XZ, met en évidence les couches de cisaillement et de mélange. Ces champs moyens semblent donc cohérents et il correspondent aux schémas des profils de vitesse illustrés sur les figures 111A et B. Nous observons que le diamètre du panache, indiqué par des points noirs sur la figure 111, délimite deux couches où la vorticité,

dans un même sens, est importante. Nous les dénommons couche extérieure et couche intérieure au panache.

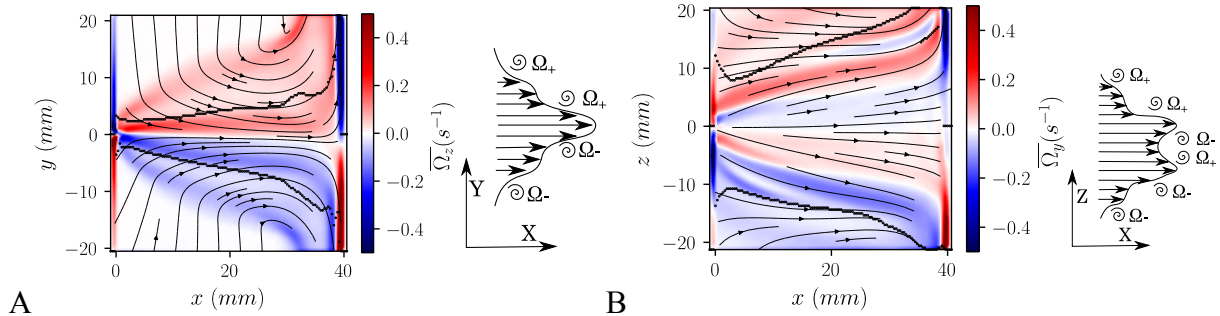


Figure 111: A) Vorticité moyenne superposés aux lignes de courant $\overline{\Omega_z}$ dans le plan XY et B) $\overline{\Omega_y}$ dans le plan XZ pour F_{NRP} . Les points noirs correspondent aux points où la vitesse moyenne dans la direction axiale $\overline{U_x}$ atteint la moitié de la vitesse moyenne de la vitesse centrale U_c .

Nous pouvons constater que la vorticité importante sur les couches extérieures du plan XY sont dues à l’entraînement. Les pics de vorticité à $y = \pm 20 \text{ mm}$ correspondent aux tourbillons contrarotatifs, se développant à cause de la proximité de l’obstacle.

En ce qui concerne les champs instantanés, nous exposons sur la figure 112 les champs de vorticité correspondant à la figure 105. Nous observons sur le plan XY (figure 105 A et B) des pics de vorticité horaires et antihoraires se poursuivant dans le centre du panache.

En zone très proche du réacteur, cela s’explique par le battement du panache. Dans le plan XZ (figure 105 C et D), des structures tourbillonnaires contrarotatives sont observées dans les deux zones rapides du panache.

Les observations effectuées dans le plan XY sont simplifiées sur la figure 113A. Le passage de tourbillons horaires (1, 3 et 4) et antihoraires (2, 5 et 6) au centre du panache dans le plan XY expliquent les fortes fluctuations $\overline{u'_x u'_x}$ et $\overline{u'_y u'_y}$ dans le centre du panache (figure 110A et B). Le passage de ces tourbillons dans le plan XY provoque également les fluctuations $\overline{u'_x u'_x}$ qui sont globalement homogènes à l’intérieur du panache dans le plan XZ (figure 110D) ; cela explique également que $\overline{u'_z u'_z}$ est très faible à l’intérieur du panache.

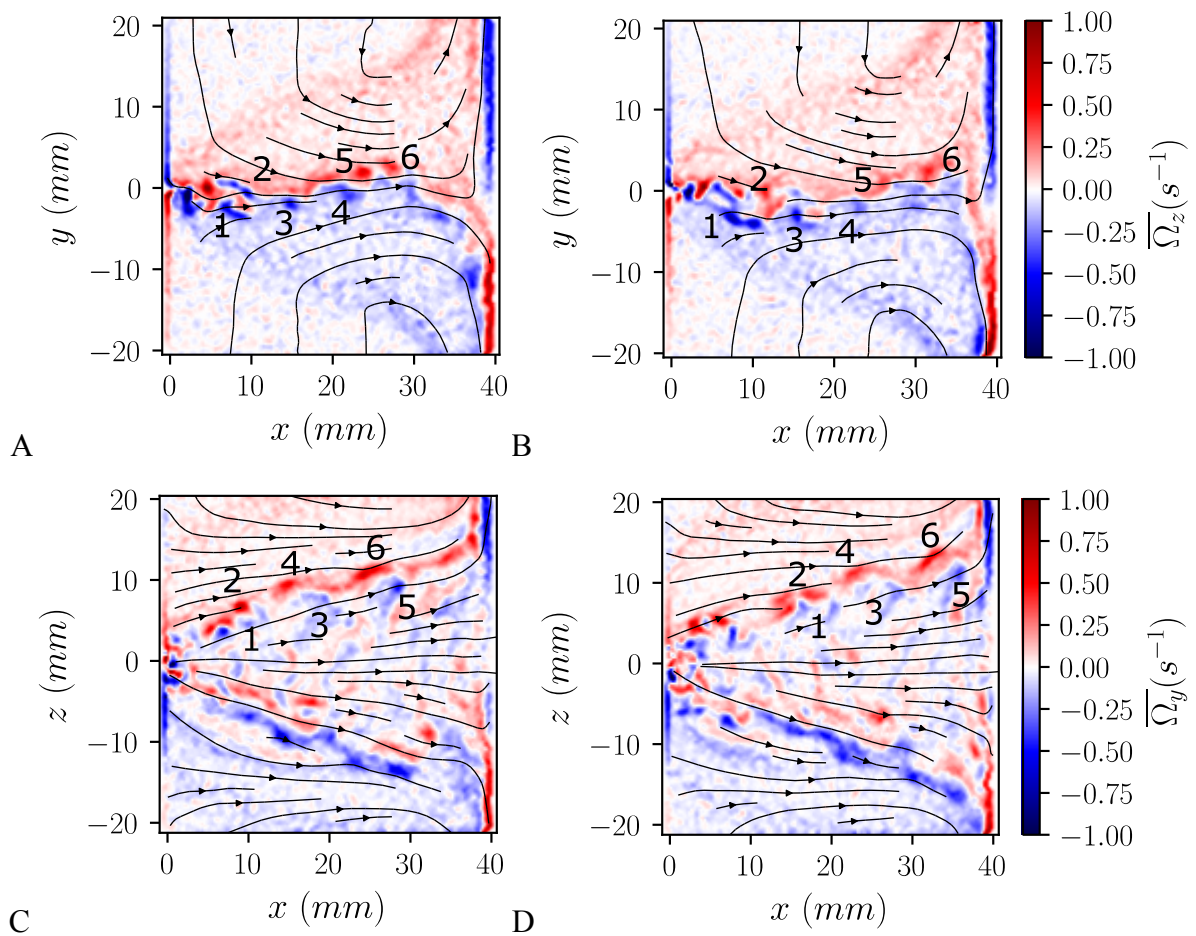


Figure 112: Champs instantanés de la vorticité calculés à partir de la figure 105. Dans le plan XY A) à un temps arbitraire t_n et B) à $t_n + 6,1$ ms. C) Dans le plan XZ à t_n et D) à $t_n + 6,1$ ms. Les plans XY et XZ n'ont pas été mesurés en même temps. Des tourbillons sont identifiés de 1 à 6.

Quant aux observations dans le plan XZ, nous observons des tourbillons contrarotatifs qui sont typiques des structures en forme de champignon représentées figure 113B. Ces structures sont nées en zone très proche du réacteur.

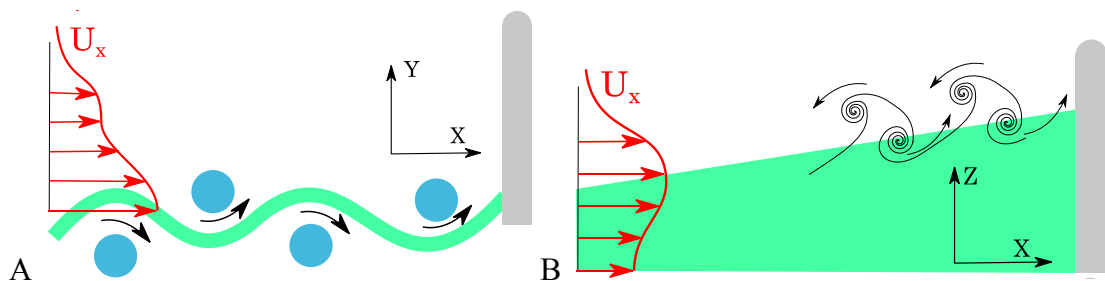


Figure 113: A) Schéma représentant la vorticité instantanée dans le plan XY et B) Schéma représentant la vorticité instantanée dans le plan XZ.

Par la suite, le tourbillon à l'intérieur est plus rapide que celui à l'extérieur car la vitesse à l'intérieur du panache est plus importante qu'à l'extérieur. Cela se voit, par exemple, avec la

ligne reliant les tourbillons 3 et 4 qui n'est pas perpendiculaire aux lignes de courant. Ces tourbillons provoquent de fortes fluctuations $\overline{u'_x u'_x}$ (110B) et $\overline{u'_z u'_z}$ (110D) sur les côtés du panache dans le plan XZ.

Les fluctuations que nous venons d'étudier ont un impact important sur le mélange. Nous avons utilisé la visualisation Schlieren en assimilant la trace thermique de l'écoulement (tiré de la figure 98A p 157) à un aperçu de la largeur de la section dans laquelle il y a du gaz provenant de la décharge NRP micro-plasma.

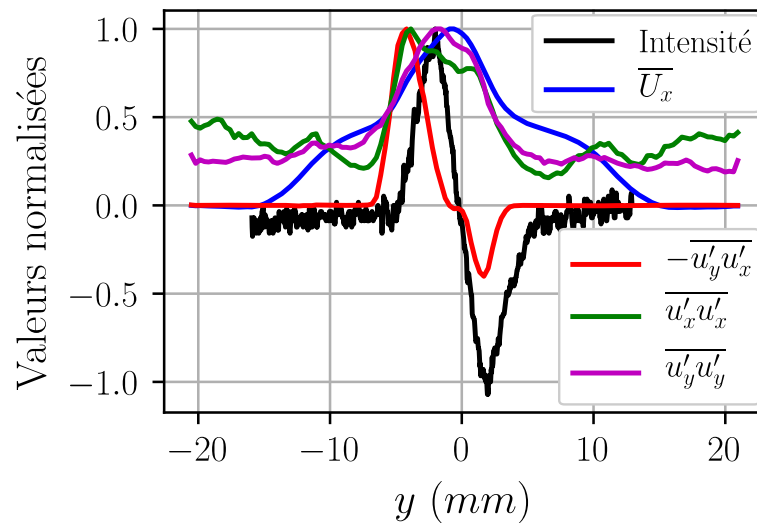


Figure 114: Superposition des résultats provenant de la visualisation Schlieren en trait plein noir et des résultats de PIV pour $x = d_{\text{plaque}}/2$, $V_{\text{plaque}} = -14$ kV, $d_{\text{plaque}} = 40$ mm, $F_{\text{NRP}} = 8$ kHz et $V_{\text{plasma}} = 2,5$ kV dans le plan XY. Les données en ordonnée sont normalisées.

On observe que la section du panache thermique caractérisée par visualisation Schlieren est bien plus faible que celle du profil de vitesse. La largeur de la trace thermique est d'environ 13,5 mm. Les gaz provenant de la décharge semblent délimités par les zones de fluctuations faibles de $\overline{u'_x u'_x}$ et $\overline{u'_y u'_y}$. Le mélange des gaz provenant de la décharge avec de l'air frais est donc lié à la génération de structures tourbillonnaires qui sont advectées du microréacteur vers la plaque.

Il n'est en revanche pas évident de savoir si ces structures tourbillonnaires prennent leurs formes à cause du gradient de densité $\partial N/\partial y$ ou si elles sont intrinsèquement lié à l'écoulement ou la configuration géométrique.

Dans cette section, nous avons expliqué la forme des fluctuations et nous avons pu constater qu'elles ne sont pas dues à de la « turbulence », comme dans un jet turbulent par exemple. Elles sont liées au comportement transitoire de la configuration micro-plasma-plaque qui maintient l'écoulement dans un régime de transition. Cela provoque la génération de tourbillons que nous avons constatés dans les deux plans XY et XZ. Nous avons également connecté les zones où les tourbillons sont générés au profil de la densité du gaz.

6.6 Conclusion

Dans la section 6.2, nous avons constaté qu'il est possible de générer un écoulement de $1,5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ en approchant une plaque d'une décharge NRP micro-plasma. Nous avons décrit les principales caractéristiques de l'écoulement avec les champs de vitesse moyennés temporellement pour notre cas de référence qui est $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$, $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$, $d_{plaque} = 40 \text{ mm}$ et $V_{plaque} = 40 \text{ mm}$. Dans les deux plans XY et XZ, l'écoulement n'a pas les mêmes caractéristiques : il n'est donc pas axisymétrique.

Dans un premier temps, la section 6.3 nous a permis de comprendre que le fluide était mis en mouvement du fait des espèces chargées provenant de la micro-décharge NRP et non d'une décharge couronne « secondaire ». Dans un second temps, nous avons augmenté V_{plaque} afin de générer la décharge couronne seule, sans micro-plasma. Celle-ci nous a permis de comparer l'écoulement généré par la décharge couronne et par le micro-plasma NRP. Nous avons remarqué des similarités entre les deux, notamment le fait que l'écoulement n'est pas axisymétrique, comme dans une décharge couronne pointe-plan par exemple. Nous avons expliqué ces points communs par le champ électrique Laplacien de notre géométrie.

Dans la dernière partie de cette section, nous avons essayé d'expliquer la forme de selle et le comportement de la vitesse axiale en comparant les deux décharges. Nous avons retenu comme explications principales, que la vitesse axiale serait dépendante de la position de la décharge par rapport au champ Laplacien et que la forme de selle des profils était principalement due au sillage des électrodes.

Dans la section 6.4, nous avons étudié la variation de trois paramètres : V_{plaque} , F_{NRP} et d_{plaque} . La tension V_{plaque} et la fréquence de répétition F_{NRP} modifient la vitesse de l'écoulement mais ne jouent pas sur la structure de l'écoulement. En revanche, réduire la distance d_{plaque} diminue la vitesse du panache et accentue fortement la forme de selle. Ce comportement tend à confirmer que le sillage des électrodes est le mécanisme principal qui provoque ce phénomène.

La dernière section 6.5 de ce chapitre a traité des données instationnaires et des fluctuations de vitesse. Dans un premier temps, nous avons présenté la pénétration du panache provoquée par le micro-plasma NRP dans le fluide préalablement au repos. Il est nécessaire d'attendre 43 ms pour que le panache atteigne la plaque pour $d_{plaque} = 40 \text{ mm}$ (ou 350 impulsions pour $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$).

Un effet de battement a ensuite été observé en exposant des champs instantanés de la norme de la vitesse lorsque le régime est établi. La partie suivante porte sur l'analyse du cas $F_{NRP} = 100 \text{ Hz}$ où nous avons distingué l'effet global apporté par chaque impulsion.

Une première accélération volumique est observée sur tout l'axe x . Les vitesses ne sont pas très importantes, mais l'accélération se produit rapidement sur l'ensemble de l'axe x . Nous l'attribuons au passage des charges qui seraient rapides. Une seconde accélération ponctuelle

est observée proche du réacteur, et se diffuse pour devenir indiscernable après quelques millimètres.

Enfin nous avons caractérisé les fluctuations en montrant le tenseur de Reynolds. Certaines similarités sont observées avec des configurations de jets turbulents mais ce sont en réalité les structures tourbillonnaires qui expliquent ces fluctuations. Nous avons ensuite mis ces dernières en correspondance avec les visualisations Schlieren. Il apparaît que le gaz provenant de la décharge resterait confiné entre les zones de faibles fluctuations.

7 Confinement des décharges NRP

Dans ce chapitre, nous souhaitons présenter et discuter des données traitant du confinement micrométrique des décharges NRP. Nous structurons l'analyse en trois parties principales. Nous avons vu dans notre partie bibliographique (chapitre 2) que les effets micro-plasmas se divisaient principalement sur les effets de redistribution de la chaleur et de redistribution des charges.

Tout d'abord, nous nous concentrerons sur les effets concernant la redistribution des charges. Pour une configuration pointe-pointe telle que la nôtre, le changement d'espace inter-électrodes modifie plusieurs aspects du champ électrique : son intensité, sa répartition spatiale mais aussi les effets collectifs dans la décharge. Nous constaterons que cette propriété permet d'appliquer des champs électriques réduits très importants de l'ordre de 1000 Td .

Dans un second temps, nous étudierons l'impact du confinement sur l'écoulement faisant l'objet de notre chapitre 6. Nous comprendrons notamment avec les champs de vitesse que les propriétés générales de l'écoulement sont conservées quel que soit l'espace inter-électrodes. Les photographies Schlieren montreront un autre constat en visualisant la trace thermique. Nous en profiterons pour faire un résumé de la partie thermique abordée dans la section 5.2 du chapitre 5.

Dans la troisième et dernière partie, nous résumerons l'ensemble des résultats afin de discuter de l'efficacité des micro-plasmas. Nous reprendrons les données sur la phase filamentaire qui provoque la génération de charges à fortes densités : nous quantifierons l'efficacité en terme d'énergie par charge créée.

7.1 Analyse de la redistribution des charges

Les effets de confinement se manifestent majoritairement par deux aspects : la redistribution des charges et de l'énergie. En premier, la section 7.1.1 s'intéresse au champ électrique réduit dans le micro-plasma. Sa forme et son amplitude sont des conséquences directes de cette redistribution des charges.

Dans un second temps, nous aborderons un autre aspect qui est celui de la réduction de la distance d_{gap} . En effet, lorsque d_{gap} diminue avec une impulsion identique générée aux bornes d'un réacteur, la pente du champ électrique va mathématiquement augmenter. Dans la section 7.1.2, nous en étudierons les conséquences en déterminant le moment de l'écroulement du champ électrique avec les caractéristiques de notre circuit électrique.

7.1.1 Le champ électrique lors de la première phase

Dans cette section, nous étudions le champ électrique maximum appliqué en fonction de d_{gap} . d_{gap} est un paramètre qui va fortement impacter le champ électrique. Les effets du confinement vont se coupler aux effets de la montée de la tension car si nous conservons la variation temporelle de la tension dV/dt , la variation du champ électrique $dE/dt \propto 1/d_{gap} \times dV/dt$. Dans un premier temps, nous montrons sur la figure 115 des relevés de la

tension pour $d_{gap} \in [100 \mu\text{m}; 1,5 \text{ mm}]$ en conservant les propriétés de l'impulsion de tension. Nous avons également superposé ces courbes à la courbe de tension à vide V_{vide} obtenue pour $d_{gap} > 2 \text{ mm}$ (sans plasma).

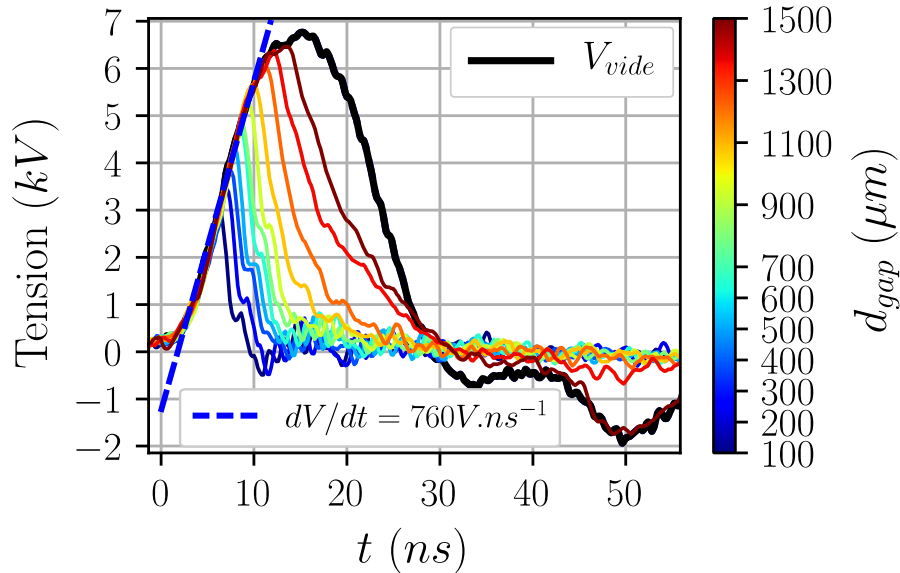


Figure 115: Tension appliquée aux bornes de l'espace inter-électrodes pour $d_{gap} \in [100 \mu\text{m}; 1,5 \text{ mm}]$ et $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$. Les conditions de l'alimentation sont maintenues constantes comme le montre la courbe de tension à vide (sans plasma) notée V_{vide} en trait épais noir.

On observe globalement que la montée de la tension s'amorce identiquement avec la courbe V_{vide} et que le claquage intervient lorsque les courbes s'éloignent de V_{vide} .

Pour l'intervalle de $d_{gap} \in [100 \mu\text{m}; 1,2 \mu\text{m}]$, le claquage survient dans la partie linéaire de la montée de la tension. Un autre élément observable sur la figure 115 est que, une fois la tension revenue à des valeurs faibles après le passage de l'impulsion, pour $d_{gap} \leq 1300 \mu\text{m}$, V_{plasma} tend vers 0 V alors que pour $d_{gap} \geq 1300 \mu\text{m}$, V_{plasma} tend vers V_{vide} .

Plusieurs phénomènes peuvent entrer en concours pour provoquer ce comportement. Le premier est que pour $d_{gap} \geq 1300 \mu\text{m}$, la rigidité diélectrique s'est reformée entre les électrodes alors que dans les autres cas, la résistance du plasma reste faible. Le recouvrement de la rigidité diélectrique serait alors symptomatique d'une recombinaison très rapide. Néanmoins cela pourrait être lié uniquement au circuit électrique : selon la valeur de l'impédance du plasma la réponse harmonique du système pourrait être changée.

La tension maximale mesurée sur la figure 115 est reportée sur la figure 116A et permet de calculer le champ électrique réduit affiché quant à lui sur la figure 116B. Nous avons tracé les points correspondants au champ moyen réduit mesuré par spectroscopie d'émission (discuté figure 117). Les deux méthodes semblent être en accord dans un intervalle de $\pm 30 \%$, cette erreur relative maximale étant obtenue pour $d_{gap} = 1 \text{ mm}$.

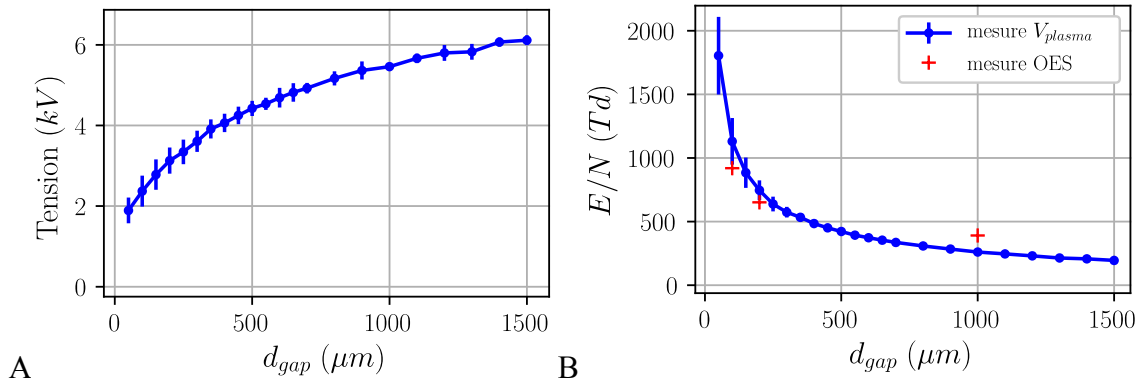


Figure 116: A) Mesure de la tension maximale appliquée lorsque $F_{NRP} = 8$ kHz en fonction de d_{gap} et B) mesure du champ électrique réduit en Td . $T_{gaz} = 370$ K. Le champ électrique est mesuré par les sondes passives (point bleu) et la méthode spectroscopique (croix rouge).

Avec la figure 116B, nous concluons que le confinement de l'espace inter-électrodes permet d'augmenter le champ électrique. Toutefois, elle ne permet pas de trancher si la cause réelle est uniquement due au confinement ou si c'est un effet de la montée du champ.

Afin d'apporter des éléments de réponse, nous allons nous intéresser au champ réduit en zone proche de la cathode. Contrairement à la méthode électrique, la méthode spectroscopique permet de résoudre spatialement la mesure même si celle-ci est moins précise (se reporter à la section 3.3.5). Elle est présentée sur les figures 117A à D pour les cas $d_{gap} = 100$ μm , 200 μm et 1 mm. Les intensités lumineuses du SPS $N_2(C \rightarrow B)$ et du FNS $N_2^+(B \rightarrow X)$ utilisées afin de calculer le ratio FNS/SPS sont reportées sur la figure 117A. Le champ électrique calculé en utilisant ces données est affiché sur la figure 117B. Celle-ci correspond à la première émission lumineuse des décharges que nous nommons t_1 . Les mesures des figures 117C et 117D correspondent respectivement aux temps $t_2 = t_1 + 1$ ns et $t_3 = t_1 + 2$ ns.

Nous commençons par détailler les points communs pour les trois distances d_{gap} :

- lorsque $t = t_1$, les champs de charge d'espace sont presque identiques avec un champ réduit contre la cathode $E_c/N \approx 1250$ Td ; pour $T_{gaz} = 370$ K, cela correspond à $E_c \approx 240$ kV.cm⁻¹ ;
- la taille de la chute cathodique, $d_c \approx 50$ μm semble constante dans la limite de notre résolution spatiale ;
- le champ pour $x > d_c$ est uniforme dès $t = t_1$;
- E_c s'effondre rapidement lorsque $t > t_1$.

Nous remarquons une seule différence marquante, le champ électrique pour $x > d_c$ est plus élevé lorsque d_{gap} diminue. Il semble que la forme de la chute cathodique ne change pas significativement.

Une différence capitale entre les cas réside dans le calcul du champ moyen dans l'espace inter-électrodes : lorsque la distance $d_{gap} = 100$ μm est adoptée, la présence de la chute cathodique augmente fortement le champ électrique mesuré tel que $E \approx [E(0) + E(d)]/2$. La

correspondance entre les mesures électriques et la mesure spectroscopique montre que la réduction de l'espace inter-électrodes à l'échelle de l'ordre de $100 \mu\text{m}$ augmente significativement le champ électrique appliqué à cause de la proportion plus importante de la chute cathodique.

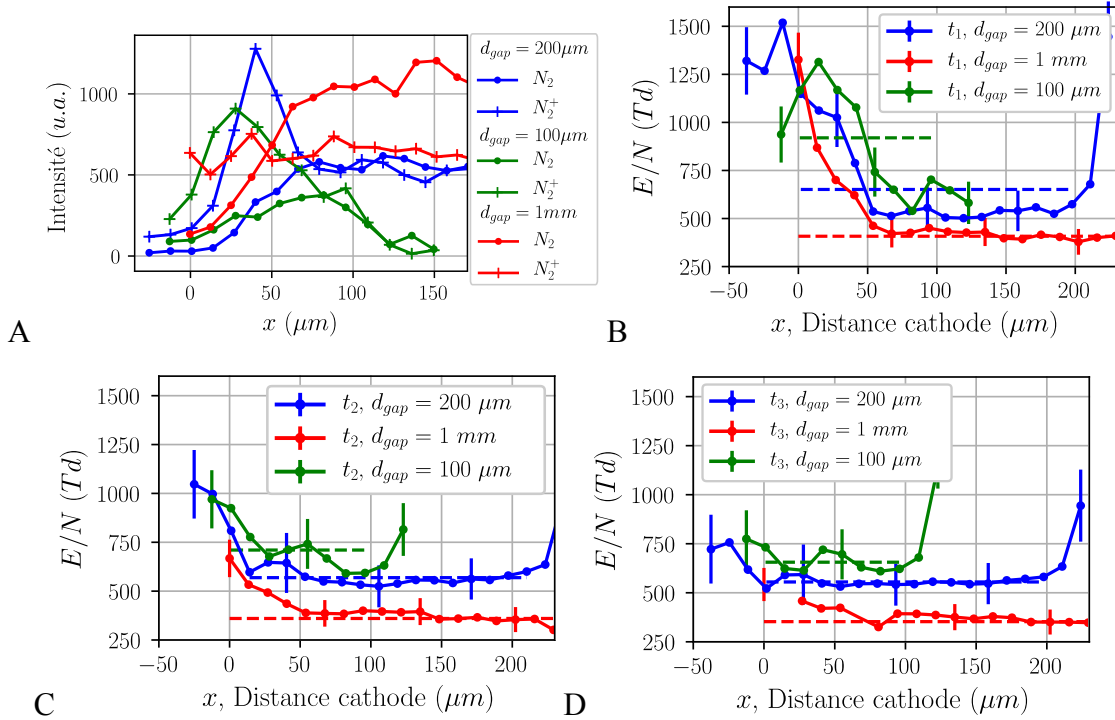


Figure 117: A) Intensité des lignes de $N_2^+(B \rightarrow X)(0 \rightarrow 0)$ et $N_2(C \rightarrow B)(2 \rightarrow 5)$ pour $t = t_1$ et mesure du champ électrique pour trois distances d_{gap} différentes pour B) $t = t_1$, t_1 étant la première émission C) $t = t_2 = t_1 + 1 \text{ ns}$ et D) $t = t_3 = t_1 + 2 \text{ ns}$. Les traits en pointillés indiquent la moyenne des points mesurés. Par soucis de clarté, les barres d'erreurs sont affichées tous les 5 points.

Des quantités caractéristiques des chutes cathodiques peuvent être extraites des figures 117C à D comme la tension notée $V_{cathode}$ dont nous écrivons l'équation en unidimensionnel (64) :

$$V_{cathode} = \int_0^{d_c} E dx \quad (64)$$

Une méthode d'intégration trapézoïdale permet de tracer la figure 118A représentant la tension dans l'espace inter-électrodes pour les champs électriques présentés précédemment. Nous nous sommes concentrés sur la première émission lumineuse. Bien que le champ à la cathode reste le même dans les trois cas présentés, une élévation de la tension de la chute cathodique est observée lorsque d_{gap} diminue car le champ moyen augmente pour les petits gaps.

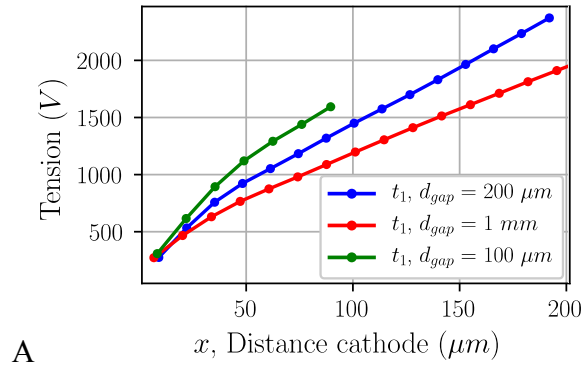


Figure 118: A) Calcul de la tension dans la décharge pour $t = t_1$.

Des chutes cathodiques de l'ordre de $V_{cathode} \approx 1 - 2 \text{ kV}$ ont déjà été estimées dans l'air pour des décharges NRP luminescentes, notamment par Packan [15] (p 136). Dans les gaz rares à pression atmosphérique, Huang *et al.* [36] ont mesuré une taille de chute cathodique $d_c = 200 \mu\text{m}$ avec un champ $E_c = 50 \text{ kV} \cdot \text{cm}^{-1}$ ce qui correspond à une tension $V_{cathode} \approx 1 \text{ kV}$ en utilisant une configuration plan-plan séparée par $d_{gap} = 1,2 \text{ mm}$ et une montée de tension $dV/dt = 800 \text{ V/ns}$. Le développement de la décharge est attribué à un *streamer*.

L'ensemble de ces résultats résumés dans le tableau 19 suggère que lors de la phase de claquage, les micro-plasmas NRP ont une chute cathodique typique d'un régime luminescent NRP en terme d'épaisseur et de tension, et qu'elle évolue par la suite vers une chute cathodique d'arc avec des tensions et des tailles plus faibles. Nous pensons que c'est la cause principale de l'effondrement de E_c sur la figure 117D.

Tableau 19 : Tableau regroupant les résultats de notre étude sur la chute cathodique.

d_{gap}	$E_c(\text{kV} \cdot \text{cm}^{-1}; Td)$		$E(d_c)(\text{kV} \cdot \text{cm}^{-1}; Td)$		$V_{cathode} (V)$
100 μm	232	1170	130	657	1180
200 μm	218	1100	109	550	964
1 mm	256	1300	86	434	829

7.1.2 Impact de la montée du champ électrique

La réduction de l'espace inter-électrodes ne saurait être le seul mécanisme permettant le claquage à des champs réduits importants de l'ordre de $1000 Td$. Dans la section précédente nous avons abordé uniquement les effets de confinement. Dans cette section, nous voulons aborder l'autre aspect qui est la montée du champ. Nous traitons le problème par le calcul du temps entre le début de l'application de l'impulsion et l'écroulement de la tension aux bornes du gap.

Dans la section 4.3.2, nous avons établi l'évolution homogène du claquage sans *streamer* pour le cas micro-plasma. Les électrons se multiplient par le mécanisme d'avalanche électronique jusqu'à ce que la conductivité à l'intérieur de l'espace inter-électrodes soit assez importante

pour que l'intensité du courant augmente et que la tension chute. Cet exemple de décharge pulsée se prête bien afin de démontrer l'impact des champs pulsés à la nanoseconde. Considérons une décharge dont l'ionisation locale s'écrit avec l'équation différentielle (65) avec le terme spatial négligé :

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = \alpha_{eff} \mu_e n_e E \quad (65)$$

Nous modélisons le circuit électrique comme un générateur d'impulsion parfait en série avec une ligne de transmission d'impédance Z_0 en série avec le plasma qui lui-même peut être modélisé par une résistance R_{plasma} . Lorsque le milieu n'est pas conducteur, $R_{plasma} \rightarrow \infty$ alors $V_{plasma} \approx V_{vide}$. Lorsque la densité électronique n_e en cm^{-3} augmente, la conductivité va augmenter également. Celle-ci est définie par l'expression (66) avec la densité de courant J en $A.cm^{-2}$, le champ électrique E en $V.cm^{-1}$, la fréquence de collision des électrons avec les espèces lourdes ν_m en s^{-1} , la masse d'un électron m_e en kg , la charge d'un électron e en C et le rayon de la décharge r au moment du claquage (section 4.2.2).

$$\sigma = \frac{J}{E} = \frac{d_{gap}}{R_{plasma} \pi r^2} = \frac{e^2 n_e}{m_e \nu_m} \quad (66)$$

La tension V_{plasma} va décroître et s'éloigner de V_{vide} lorsque la résistance R_{plasma} approchera une résistance critique R_{crit} . La densité électronique aura atteint une valeur n_{e-crit} de l'ordre de $10^{15} cm^{-3}$ et ainsi, la tension V_{plasma} s'écroulera.

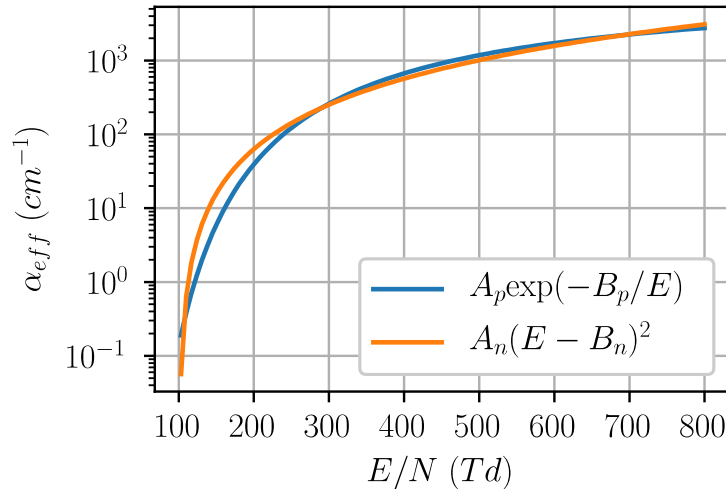


Figure 119: Coefficient de ionisation effectif de l'air selon l'expression classique exposée dans Raizer [2] (p56) avec $A_p = 11,4 \times 10^3 cm^{-1}$ et $B_p = 277,4 \times 10^3 V.cm^{-1}$ ainsi que l'expression simplifiée en puissance 2 où $B_n = 24,5 kV$, $A_n = 6,31 \times 10^{-3} V^2.cm^{-5}$.

Nous choisissons d'exprimer le champ électrique comme une pente linéaire soit $E(t) = \dot{E}t$. Le coefficient directeur $\dot{E} = \dot{V}/d_{gap}$ de $E(t)$ s'exprime par la montée de l'impulsion de tension \dot{V} . Pour la majorité des gaz moléculaires, le coefficient d'ionisation s'exprime

communément selon le champ électrique p 56 dans [2] avec $\alpha_{eff} = A_p \exp(-B_p/E)$. Pour l'air à pression atmosphérique, nous obtenons $A_p = 11,4 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$ et $B_p = 277,4 \times 10^3 \text{ V.cm}^{-1}$. Afin de simplifier les calculs, nous l'exprimons par une fonction puissance, e. g. comme dans [183] avec $\alpha_{eff} = A_n(E/N - B_n)^2$. Ces formules sont valables dans une gamme de champs électriques réduits $E/N \in [100 \text{ Td}, 800 \text{ Td}]$ comme le montre la figure 119.

Nous souhaitons résoudre l'équation (68) pour $t \in [t_0; \tau_{crit}]$, avec t_0 le point lorsque E/N atteint le champ de claquage $(E/N)_0$ s'exprimant avec l'équation (67) et τ_{crit} le moment où la tension s'écroule.

$$t_0 = \left(\frac{E}{N}\right)_0 \frac{N}{10^{17} \times \dot{E}} \quad (67)$$

Si nous considérons que les électrons n'ont pas eu le temps de s'attacher lorsque $E/N < (E/N)_0$, alors $n_e(t=0) = n_e(t=t_0) = n_{e0}$, la pré-ionisation rémanente précédant l'application d'une impulsion.

$$n_{e-crit} = n_{e0} \exp\left(\mu_e \int_{t_0}^{\tau_{crit}} \alpha_{eff}(t) E(t) dt\right) \quad (68)$$

Ainsi, l'évolution de la densité électronique entre le moment où le seuil de claquage de l'air est atteint et la chute de la tension dans une étincelle NRP peut s'exprimer à l'aide des paramètres susmentionnés dans l'équation (69) :

$$n_{e-crit} = n_{e0} \exp\left\{A_n \mu_e \dot{E} \left[\frac{\dot{E}^2}{4N^2} (\tau_{crit}^4 - t_0^4) - \frac{2B_n \dot{E}}{3N} (\tau_{crit}^3 - t_0^3) - \frac{B_n^2}{2} (\tau_{crit}^2 - t_0^2) \right]\right\} \quad (69)$$

Nous avons résolu l'équation (69) numériquement pour déterminer τ_{crit} avec $d_{gap} = 1 \text{ mm}$, $v_m = 3 \times 10^{12} \text{ s}^{-1}$ et n_{e-crit} de l'ordre de 10^{15} cm^{-3} . Les valeurs simulées ont été choisies selon les pré-ionisations estimées pour un cas sans répétition d'impulsion [159] avec $n_{e0} = 1 \times 10^3 \text{ cm}^{-3}$ et dans un cas où la fréquence de répétition est $F_{NRP} = 30 \text{ kHz}$ [21], avec $n_{e0} = 1 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$. Pour finir, le champ électrique réduit appliqué $(E/N)_{crit}$ en Td peut s'exprimer par la relation (70) :

$$\left(\frac{E}{N}\right)_{crit} = \frac{10^{17} \times \dot{E} \times \tau_{crit}}{N} \quad (70)$$

Afin d'être plus clair, la figure 120 affiche le résultat sous la forme de $(E/N)_{crit}$ et de $\tau_{crit} - t_0$. Nous observons que plus \dot{E} est important, plus le champ réduit pouvant être appliqué est important. Le caractère sur-exponentiel de l'équation (68) assure que n_{e-crit} est atteint

presque toujours pour le même temps τ_{crit} peu importe la valeur de R_{crit} et n_{e-crit} . De plus, la pré-ionisation a tendance à diminuer $(E/N)_{crit}$ et τ_{crit} .

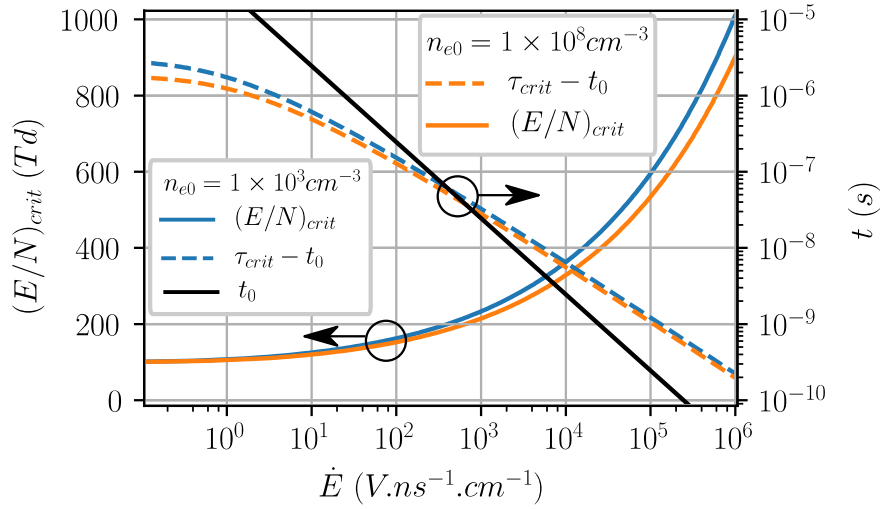


Figure 120: Résultats du modèle selon l'équation (69) pour une grande gamme de \dot{E} .

De plus, on peut observer deux zones caractéristiques : la montée du champ est rapide lorsque $\tau_{crit}/2 > t_0$ et lente lorsque $\tau_{crit}/2 < t_0$. La transition entre ces deux régions représente un champ électrique réduit d'environ 200 Td obtenu lorsque le champ de claquage est atteint en moins de 100 ns.

Nous proposons que le mécanisme représenté par l'équation (69) est responsable de l'augmentation du champ électrique réduit $(E/N)_{crit}$ lorsque nous diminuons d_{gap} par l'intermédiaire de \dot{E} .

Toutefois ce mécanisme basé sur le champ Laplacien est seulement valable hors de la chute cathodique. Nous proposons que le champ électrique réduit appliqué aux bornes de l'espace inter-électrodes est la combinaison entre le champ dans la chute cathodique et le champ électrique réduit requis selon l'équation (69).

Dans la section précédente, nous avons remarqué que le champ proche de la cathode avait presque la même forme pour toutes nos mesures. Nous approximations donc la chute cathodique comme une gaine de taille d_c dans laquelle le champ réduit E_c/N est constant à l'intérieur. Le champ électrique réduit E/N appliqué aux bornes de l'espace inter-électrodes peut donc être approximé par l'équation (71) :

$$\frac{E}{N} \approx \frac{1}{d_{gap}} \left[\frac{E_c}{N} d_c + (d_{gap} - d_c) \left(\frac{E}{N} \right)_{crit} \right] \quad (71)$$

L'application de champs électriques réduits importants par l'utilisation de géométries micrométriques est liée au fait que $(E/N)_{crit}$ augmentera en augmentant \dot{E} et que d_{gap} se rapproche de d_c .

7.2 Impact du confinement de la décharge sur l'écoulement

Dans cette section, nous étudions les effets du confinement de la décharge sur l'écoulement du panache étudié dans le chapitre 6.

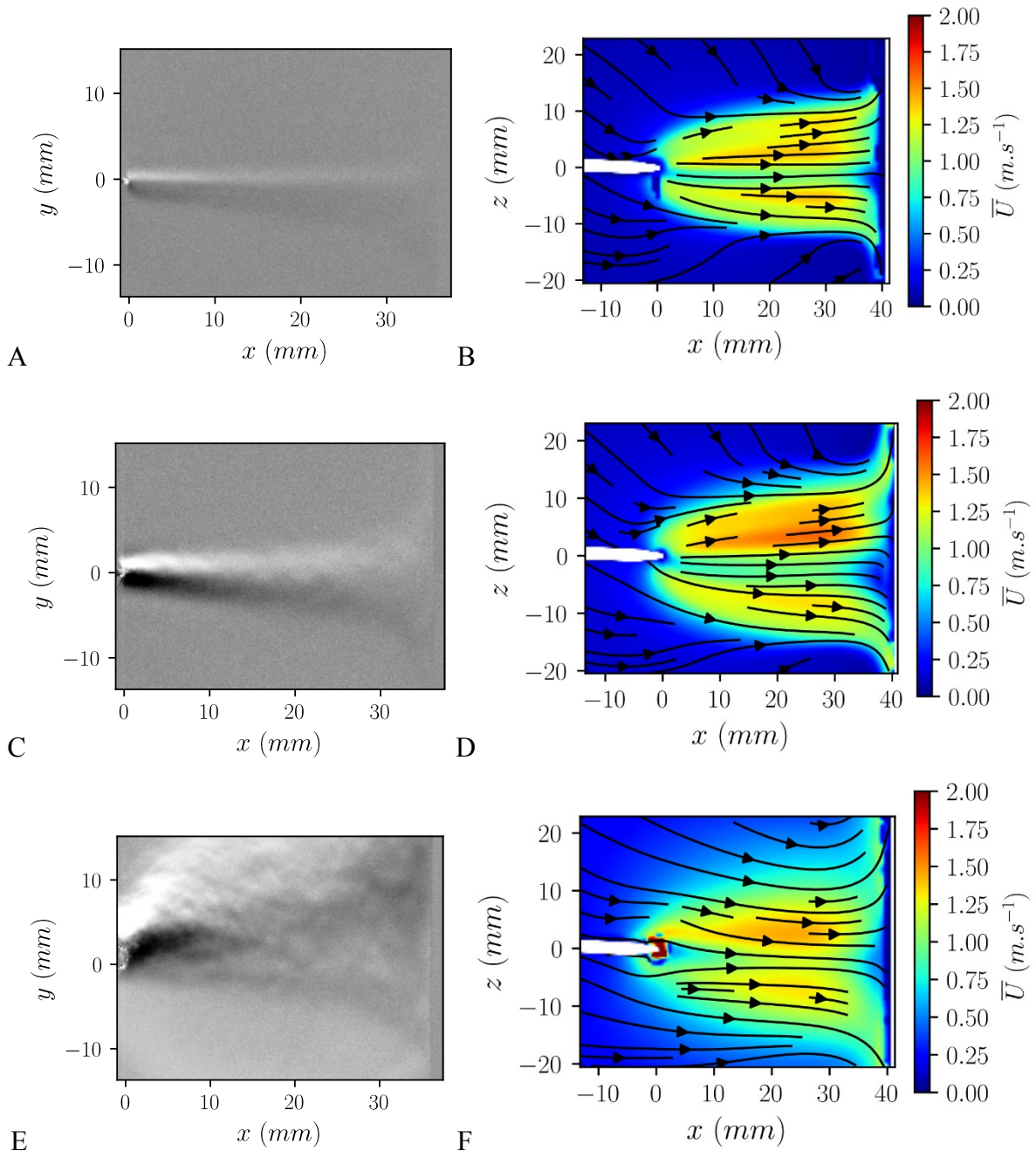


Figure 121: A) Photographie Schlieren dans le plan XY et B) champ de vitesse dans le plan XZ pour $d_{gap} = 50 \mu\text{m}$ et $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$. C)D) Pour $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ E)F) Pour $d_{gap} = 2 \text{ mm}$. Du fait de la taille du champ pour les photographies Schlieren, nous utilisons une distance $d_{plaque} = 35 \text{ mm}$ avec $V_{plaque} = -14 \text{ kV}$. Dans le cas des champs de vitesse obtenus par PIV, nous avons utilisé $V_{plaque} = -16 \text{ kV}$ et $d_{plaque} = 40 \text{ mm}$. Un temps d'exposition de $1 \mu\text{s}$ moyenné 200 fois est utilisé pour les photographies Schlieren.

L'essentiel de cette étude est présenté sur les figures 121A à F. Elles montrent des visualisations Schlieren dans le plan XY avec des champs de vitesse mesurés par PIV dans le plan XZ. Nous observons que la vitesse des champs de vitesse moyenne ne change pas significativement lorsque l'espace inter-électrodes augmente. En revanche, la trace thermique observée sur les visualisations Schlieren est plus marquée et le diamètre du panache s'élargit lorsque la distance d_{gap} augmente.

L'énergie totale de la décharge diminue lorsque la distance inter-électrodes diminue (voir section 7.3). Il est alors attendu que la trace thermique change significativement si une grande part de l'énergie est déposée dans le chauffage et si le flux de chaleur transporté par l'écoulement reste semblable. Ce comportement nous suggère que lorsque nous diminuons la distance d_{gap} , cela contribue à transférer moins d'énergie dans le chauffage du gaz alors que la topologie et la vitesse du panache est maintenue.

La partie thermique a été principalement abordée dans la section 5.2. Nous avons vu que le chauffage opère en plusieurs étapes. Dans un premier temps, il y a un mécanisme de chauffage rapide lié à l'excitation électronique de N_2 et sa désexcitation par collisions avec O_2 [20,24]. Par la suite nous observons une expansion thermique [39] qui correspond aussi aux constantes de temps typiques du transfert d'énergie des modes vibrationnels vers les modes translationnels [169].

Dans un premier temps nous avons remarqué que la montée de température dans la phase diffuse pour $d_{gap} = 200 \mu m$ que pour $d_{gap} = 1 mm$ semble conduire à des températures similaires. La différence ne provient pas de l'étape de chauffage rapide.

Dans notre chapitre 5 nous avons déterminé pour $d_{gap} = 200 \mu m$, que la constante de temps de l'expansion thermique était de l'ordre $1 \mu s$. Dans le cas de $d_{gap} = 50 \mu m$, la diffusion thermique par conduction pourrait jouer un rôle important car une estimation de la constante de temps avec $l = 25 \mu m$ nous donne une constante de temps de $1,5 \mu s$.

Le transfert de chaleur, et surtout l'énergie moins importante déposée pour $d_{gap} = 50 \mu m$ pourrait être responsable de la trace thermique moins visible sur la figure 114A. De plus, la section précédente nous montre que le champ électrique réduit E/N augmente lorsque l'espace inter-électrodes est réduit (voir figure 116B). Une production plus efficace de charges à l'échelle micrométrique pourrait expliquer que la vitesse de l'écoulement ne change pas significativement.

7.3 Efficacité des micro-plasmas NRP

Dans cette dernière partie, nous nous intéressons à l'efficacité des micro-plasmas NRP. Cet aspect constitue le cœur de notre travail. Dans la section 7.3.1, nous reprenons les données relatives à l'apparition de la phase filamentaire dans les cas millimétriques et micrométriques. Cela nous permettra de constater que dans un cas l'énergie est transférée principalement dans cette phase filamentaire tandis que dans l'autre, elle est déposée dans la phase homogène.

Pour finir, nous déterminerons l'efficacité de production des charges en fonction de d_{gap} dans la section 7.3.2.

7.3.1 Phase de dépôt d'énergie

Nous avons montré dans la section 4.4.2 que la phase contractée était attribuée à la production d'électrons jusqu'à une densité électronique $n_e > 1 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ mais aussi à une température électronique importante. Nous avons déjà observé dans le chapitre 4 que le mécanisme de la filamentation était accéléré lorsque la distance inter-électrodes était réduite.

Au milieu de l'espace inter-électrodes, le diamètre de la phase filamentaire est le même pour $d_{gap} \in [100 \mu\text{m}; 1 \text{mm}]$ lors de la contraction.

Une autre information peut être constatée sur les figures 122A et B qui mettent en correspondance la tension aux bornes de la décharge V_{plasma} , la puissance déposée P_{plasma} et le diamètre pour $x = d_{gap}/2$ avec $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ et $d_{gap} = 1 \text{mm}$. Nous observons une différence importante entre le cas micrométrique et le cas millimétrique : la puissance est déposée dans la phase où la décharge est large pour $d_{gap} = 1 \text{mm}$ alors que pour $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$, la décharge est déjà contractée lorsque le maximum de puissance est atteint.

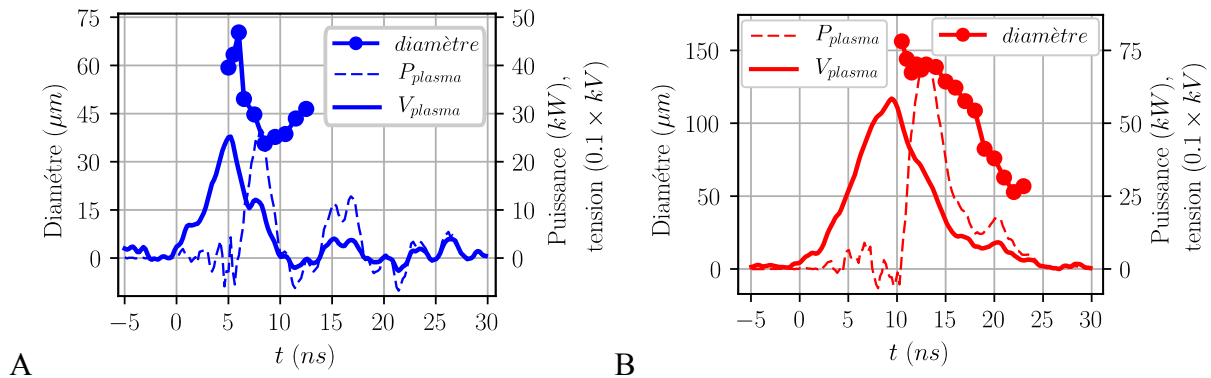


Figure 122: Mesure de la puissance électrique en traits pointillés superposés à la mesure de diamètre pour $x = d_{gap}/2$ en trait plein et $F_{NRP} = 8 \text{kHz}$. Nous représentons deux distances A) $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ (bleu) et B) $d_{gap} = 1 \text{mm}$ (rouge).

La figure 122 indique que pour les distances inter-électrodes millimétriques, l'énergie est principalement déposée dans la phase homogène, dans un volume important, alors que pour les configurations micrométriques, l'énergie est déposée dans la phase filamentaire, et donc dans un volume très restreint. Cet aspect est renforcé car le diamètre de la phase homogène pour $d_{gap} = 200 \mu\text{m}$ est plus petit que celui de la phase homogène pour $d_{gap} = 1 \text{mm}$.

Nous allons vérifier ce constat avec l'émission des bandes vibrationnelles du SPS $N_2(2 \rightarrow 5)$ en zone proche de cathode et dans le milieu du gap sur les figures 123A et B.

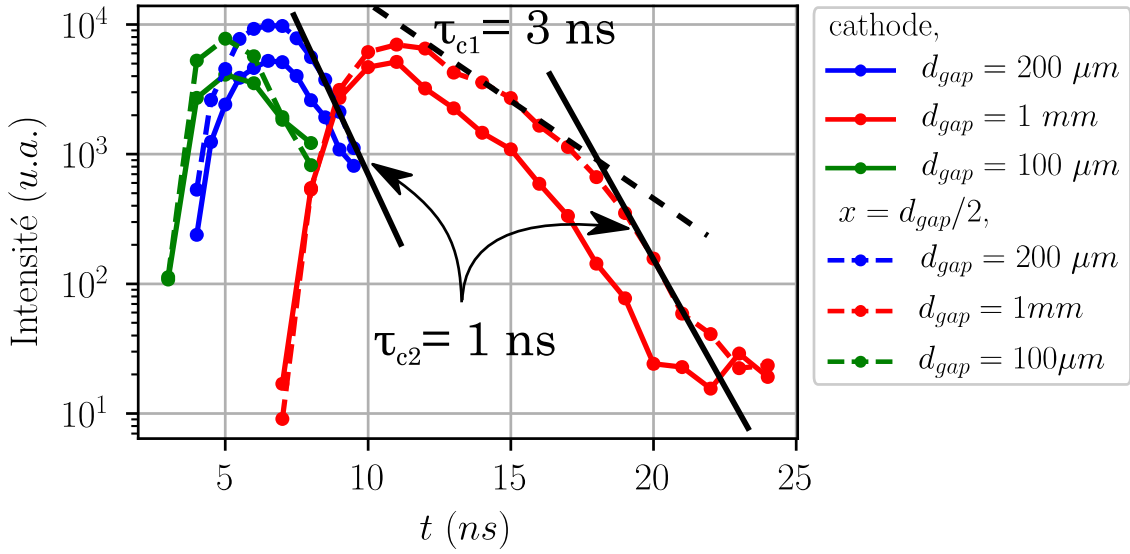


Figure 123: Intensité des bandes vibrationnelles de $N_2(2 \rightarrow 5)$ pour $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$ et $d_{gap} = 100 \mu\text{m}$, $200 \mu\text{m}$ et 1 mm respectivement associés aux lignes vertes, bleus et rouges. La ligne pleine correspond à une mesure dans la chute cathodique et la ligne en pointillés correspond à un point dans le milieu du gap. Le temps d'exposition est $t_{exp} = 3 \text{ ns}$.

En ce qui concerne le cas $d_{gap} = 1 \text{ mm}$, la durée de vie de l'émission du SPS N_2 est plus longue et plus éloignée du temps d'exposition de notre système de mesure $t_{exp} = 3 \text{ ns}$. On observe une décroissance en deux temps avec $\tau_{c1} \approx 3 \text{ ns}$ pour $t \in [12 \text{ ns}; 18 \text{ ns}]$ et $\tau_{c2} \approx 1 \text{ ns}$ pour $t \in [18 \text{ ns}; 22 \text{ ns}]$. Selon la position dans le gap, τ_c ne change pas significativement.

Nous observons que les temps de décroissance caractéristiques de l'intensité du SPS $N_2(2 \rightarrow 5)$, notés τ_c sont sensiblement les mêmes pour tous les gaps aux alentours de $\tau_c = 0,85 \pm 0,15 \text{ ns}$.

Nous utilisons un modèle de cette émission décrit par l'équation (72) qui a été appliqué dans l'article de Rusterholtz *et al.* [20]. Nous prenons $k_{qO_2} = 3,7 \times 10^{10} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, $k_{qN_2} = 0,46 \times 10^{10} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ et $\tau_0 = 39 \text{ ns}$ (voir section 3.3.5 et extrait de Pancheshnyi *et al.* [146]).

$$\tau_c = (k_{qO_2} n_{O_2} + k_{qN_2} n_{N_2} + \tau_0^{-1})^{-1} \quad (72)$$

Pour de l'air à pression atmosphérique à $T_{gaz} = 370 \text{ K}$, nous obtenons $\tau_c = 0,46 \text{ ns}$. Il est attendu que ce type de décharge dissocie fortement le dioxygène. Par exemple, Rusterholtz *et al.* [20] rapporte un taux de dissociation de 50 %. Dans notre étude, une dissociation de $65 \% \pm 15 \%$ de l'oxygène pourrait expliquer que $\tau_{c2} = 0,85 \pm 0,15 \text{ ns}$.

La première décroissance $\tau_{c1} \approx 3 \text{ ns}$ est donc possible seulement si l'état $N_2(C)$ est alimenté par un processus. Cela pourrait être dû à la réaction d'impact électronique car la tension et la puissance restent importantes dans la décharge pour $t \in [12 \text{ ns}; 18 \text{ ns}]$.

L'analyse de la décroissance appuyant le constat fait suite à la présentation des figures 122A et B. Pour $d_{gap} = 1 \text{ mm}$, l'énergie est dépensée plutôt sur l'excitation et l'ionisation moléculaire de N_2 dans un large volume tandis que dans le cas du micro-plasma, l'énergie est dépensée sur un volume plus restreint sur la phase filamentaire.

7.3.2 Densité énergétique et efficacité

Dans cette section, nous estimons l'efficacité des micro-plasmas NRP par rapport aux décharges millimétriques. Nous utilisons comme critère l'énergie dépensée pour une charge transférée dans le plasma ε_e en eV dont l'expression est l'équation (73) avec N_{e-tot} le nombre d'électrons produits.

$$\varepsilon_e = U_{plasma}/N_{e-tot} \quad (73)$$

Dans ce travail, nous disposons des mesures électriques pour calculer N_{e-tot} . Nous considérons une décharge composée uniquement d'ions positifs et d'électrons. Nous sommes dans des temps très courts, donc nous négligeons les phénomènes de diffusion et la recombinaison des électrons en ions négatifs.

La mobilité des électrons μ_e est plus de $200 \times \mu_i$, la mobilité des ions. Le courant est donc représentatif du mouvement des électrons pendant ce temps très court. Dans notre circuit, nous pensons que la charge collectée Q provient de l'ionisation et que la densité de courant sur la surface de la cathode j_c est majoritairement due au déplacement des ions J_i . Ces ions sont créés dans la chute cathodique. Nous pensons que cette zone est le moteur de l'ionisation. Cela indique que chaque charge que nous collectons à la cathode est lié à un électron qui traverse le gap. La charge collectée est donc représentative de N_{e-tot} .

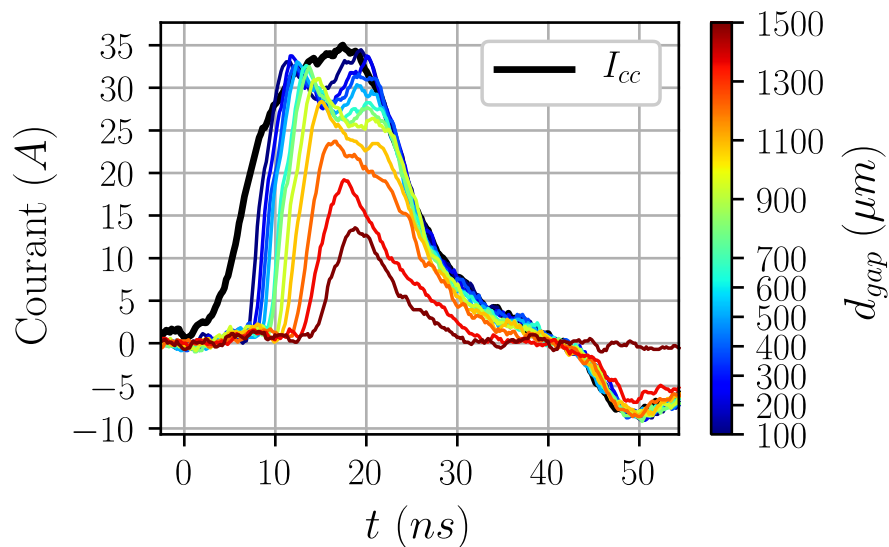


Figure 124: Courant I_{plasma} traversant la décharge pour $d_{gap} \in [100 \mu\text{m}; 1,5 \text{ mm}]$ lorsque $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$. Les conditions de l'alimentation sont maintenues constantes comme le montre la courbe de court-circuit notée I_{cc} (trait épais noir).

Dans le cadre de ces hypothèses, nous estimons $N_{e-tot} = Q/e$. La charge Q en C qui peut s'exprimer par l'équation (74) et correspond à l'intégration du courant de décharge I_{plasma} qui est présentée sur la figure 124 pour plusieurs gaps.

$$N_{e-tot} = Q/e = \frac{1}{e} \int I_{plasma} dt \quad (74)$$

Nous négligeons l'émission des électrons à la cathode *i. e.* les émissions par effet de champ et thermoionique. En prenant $r = 23 \mu m$ (sections 4.2.2 et 7.3.1) et $I_{plasma} = 36 A$, $J_c \approx 2 \times 10^6 A.cm^2$. J_i peut être estimé en multipliant la densité volumique des ions à la cathode avec la vitesse de Bohm $v_i = \sqrt{k(T_e + T_i)/m_i}$ avec m_i la masse d'un ion N^+ . A $t = 15 ns$, nous avons mesuré $n_e = 1,25 \times 10^{19} cm^{-3}$ (section 4.4.1) et $T_e = 72 kK$ (section 5.2.2). Nous pouvons donc estimer que $J_i = 1,3 \times 10^6 A.cm^2$ lorsque $T_i \ll T_e$ et $n_i = n_e$.

Le déplacement des ions constitue donc la majorité de la densité de courant : $J_c \approx J_i$. La charge que nous collectons provient donc de l'ionisation dans l'espace inter-électrodes.

Le second paramètre nécessaire à notre calcul est l'énergie par impulsion U_{plasma} déposée dans la décharge.

La figure 125 présente la variation de U_{plasma} pour des distances $d_{gap} \in [50 \mu m; 1,5 mm]$. L'énergie est obtenue à partir des courbes de tension (figure 115, p 178) et de courant (figure 124). Nous observons sur la figure 125 que l'énergie croît en fonction de d_{gap} jusqu'à un maximum pour $d_{gap} = 1300 \mu m$. Cela est dû au fait que pour $d_{gap} > 1300 \mu m$, le temps de conduction du courant poursuivant le claquage n'est pas assez long par rapport aux distances d_{gap} plus petites.

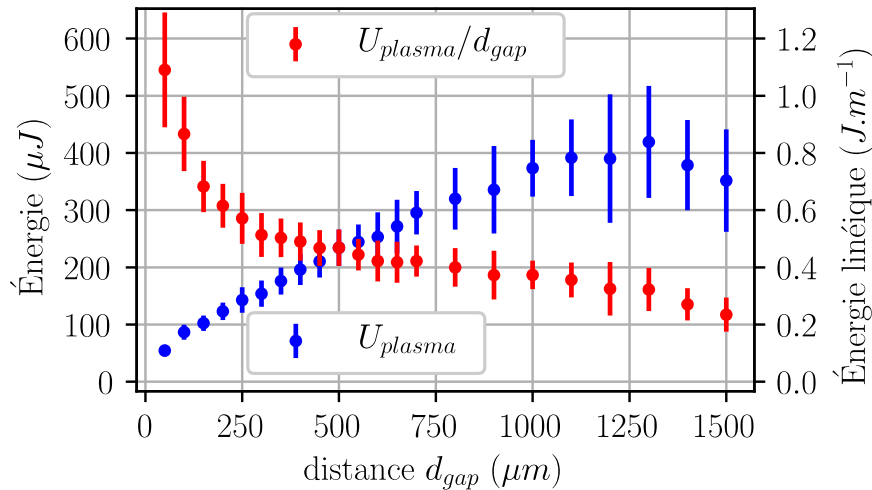


Figure 125: Énergie déposée notée U_{plasma} (bleu) dans la décharge pour différentes distances d_{gap} lorsque $F_{NRP} = 8 kHz$. L'énergie linéique (rouge) est calculée avec U_{plasma}/d_{gap} .

Nous affichons également les résultats en terme d'énergie linéique. Nous avons constaté que le diamètre de la phase filamentaire ne varie pas significativement pour $d_{gap} \in [200 \mu m; 1 mm]$ (section 4.2.2). De plus, la section 7.3.1 nous indique que lorsque l'on augmente d_{gap} , l'énergie tend à être dissipée dans la phase diffuse, donc dans un volume plus grand. L'énergie volumique aurait donc la même allure que l'énergie linéique avec une diminution plus accentuée lorsque d_{gap} augmente. Pour $d_{gap} = 200 \mu m$, l'énergie volumique est $U_{plasma}/V = 225 J.cm^{-3}$ avec $V = d_{gap}\pi r^2$ et $r = 20 \mu m$.

Il apparait que la densité énergétique est plus importante lorsque d_{gap} diminue. La phase filamentaire et micro-plasma est donc associée à des densités volumiques d'énergie très importantes.

La figure 126 présente l'énergie par électron ε_e en eV en fonction de d_{gap} calculée à partir des courbes des figures 124 et 125 et des expressions (73) et (74). A titre indicatif, nous affichons également les données extraites d'études ressemblant à notre configuration parmi lesquelles nous trouvons Horst *et al.* [26], Rusterholtz *et al.* [20], Pai *et al.* [184], et Walsh *et al.* [45].

D'après la courbe utilisant seulement nos données, ε_e semble décroître en fonction de d_{gap} et se rapprocher du point de Stoletov dans l'air qui est l'énergie minimale théorique pour produire une charge par ionisation Townsend dans un champ électrique. Une extrapolation de nos données de la figure 126 indique $\varepsilon_e = 51 eV$ pour $d_{gap} = 0 \mu m$.

D'après Macheret *et al.* [43], le point de Stoletov est atteint pour un champ $E/N \approx 1000 Td$.

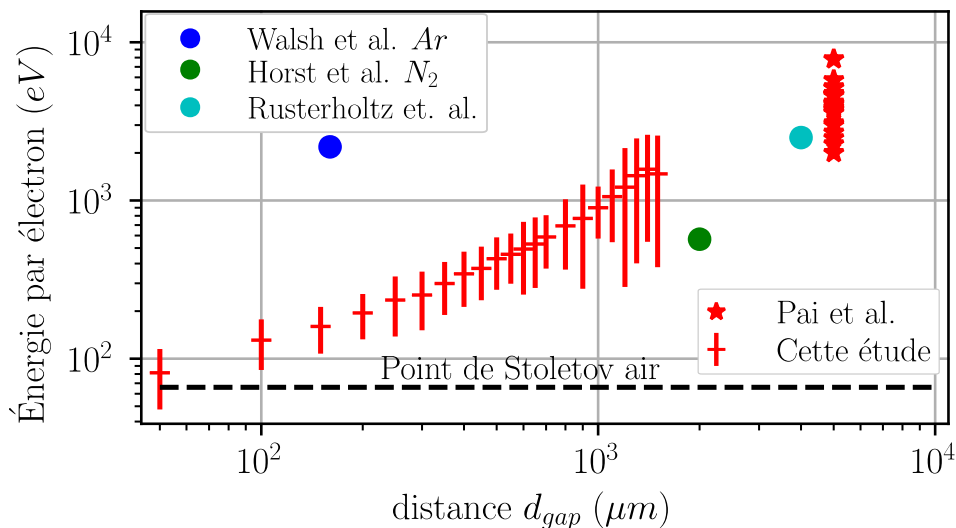


Figure 126: Estimations du coût énergétique d'une charge dans le plasma en utilisant la charge Q . Les données de Pai *et al.* [184] correspondent à $F_{NRP} \in [1 kHz, 30 kHz]$ et $T_{gaz} = 1000 K$. Rusterholtz *et al.* [20] correspondent à $F_{NRP} = 10 kHz$ et $T_{gaz} = 1500 K$. Horst *et al.* [26] correspondent à $F_{NRP} = 1 kHz$ dans de l'azote avec une impulsion longue et Walsh *et al.* [45] dans de l'argon avec une impulsion très courte $\sim 3 ns$.

Cette valeur particulière du champ électrique représente approximativement le champ mesuré dans la chute cathodique ($\sim 1100 Td$ pour $d_{gap} = 200 \mu m$). On pourrait donc considérer que cette zone produit efficacement les électrons. S'il est vrai que la taille et le champ de la chute cathodique reste constant avec d_{gap} , alors réduire d_{gap} revient à augmenter en proportion la zone efficace de la décharge. L'énergie minimale est obtenue pour $d_{gap} = 50 \mu m$ qui représente la taille de la chute cathodique. Toutefois, le champ électrique moyen appliqué pour ce cas est significativement plus élevé que le champ de la chute cathodique d'après la figure 116 (p 179) avec $E/N = 1750 Td$.

Le coût énergétique d'ionisation pour les décharges NRP a déjà été présenté dans Chu *et al.* [51] (p 157). Néanmoins, elle est présentée en fonction de la fréquence de répétition des impulsions F_{NRP} . En effet, nous attendons que F_{NRP} , E/N et d_{gap} auront un impact important sur la charge collectée.

Nous utilisons la figure 127 afin d'expliquer ce principe. La charge maximum collectée sera toujours limitée par la courbe de courant en court-circuit notée I_{cc} sur la figure 127. La maximisation de la charge produite sera pilotée par les deux paramètres I_{max} et τ_{crit} qui représentent respectivement le courant maximum traversant la décharge et le moment du claquage.

Notre analyse de la section 7.1.2 à propos du claquage pulsé nous indique que le fait d'augmenter \dot{E} et F_{NRP} , par l'intermédiaire de n_{e0} , pourrait diminuer τ_{crit} laissant plus de temps pour que le courant circule et augmenter N_{e-tot} . De plus, la réduction de d_{gap} diminue l'énergie tout en réduisant la taille du plasma mais aussi τ_{crit} .

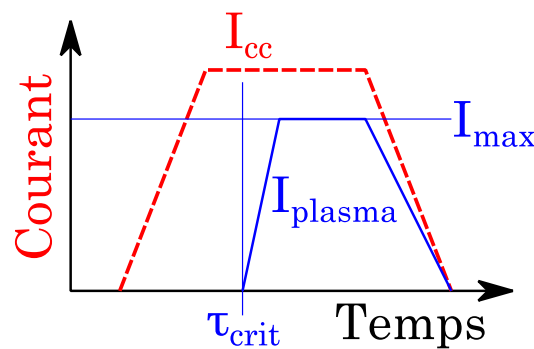


Figure 127: Schéma explicatif du courant de conduction. La décharge commence à conduire à partir de $t = \tau_{crit}$ puis croît jusqu'à un courant maximum I_{max} . En tout point, $I_{plasma} < I_{cc}$ le courant de court-circuit.

Dans cette section, nous avons exposé des mesures de U_{plasma} permettant de calculer l'énergie dépensée par électron ε_e . La réduction de la distance d_{gap} permet d'accroître la densité énergétique et d'obtenir des efficacités proches du point de Stoletov. De plus, confiner l'espace inter-électrodes à des tailles proches de l'épaisseur de la chute cathodique permet de conserver la zone « efficace » de la décharge.

7.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons souhaité reprendre tous les points qui concernent le confinement des décharges NRP. Nous avons commencé par des aspects qui sont souvent abordés dans les micro-plasmas avec la redistribution des charges et le champ électrique réduit. Nous avons remarqué que le confinement de la décharge permettait d'appliquer des champs plus importants.

Nous avons développé deux raisons principales pour ce comportement. La première est l'augmentation de la proportion de la chute cathodique dans la première phase car sa taille et son champ restent constants à $d_c \approx 50 \mu m$ et $E_c \approx 230 kV.cm^{-1}$. La deuxième raison devrait être liée à la combinaison entre la pulsation du champ électrique et la réduction du gap : l'augmentation de la dérivée temporelle du champ dE/dt permet d'augmenter le champ maximum appliqué.

Dans la section 7.2, nous avons étudié trois gaps : $d_{gap} = 50 \mu m, 200 \mu m$ et $2 mm$. Les trois réacteurs NRP induisent des écoulements équivalents, mais la proportion de l'énergie introduite en chaleur semble moins importante lorsque l'on réduit l'espace inter-électrodes. Nous expliquons ce phénomène par les résultats de la première section qui indiquent que le champ réduit E/N est plus important pour les gaps micrométriques.

Dans la dernière section, nous avons abordé l'efficacité des micro-plasmas. L'énergie dépensée par charge est moins importante dans le cas des micro-plasmas. Nous reprenons également des résultats sur la filamentation et nous avons notamment remarqué que dans le cas millimétrique, l'énergie était principalement déposée dans la phase diffuse, alors que dans le cas micro-plasma, l'énergie est déposée dans la filamentation.

8 Conclusion générale

8.1 Bilan, contribution

Les plasmas opérant dans l'air à pression atmosphérique sont très intéressants pour les applications, ils permettent de travailler avec des systèmes relativement simples et peu contraignants techniquement. La pression élevée accélère la chimie et les composés de l'air, comme les oxydes, sont recherchés dans les applications. Néanmoins, le contrôle des réactions souhaitées avec une bonne efficacité énergétique peut se révéler délicat avec l'existence des niveaux ro-vibroniques et d'oxygène qui tendent à dissiper l'énergie en chaleur. Des stratégies existent pour opérer dans des conditions stables et favorables énergétiquement parlant. Nous nous sommes concentrés sur deux d'entre elles : le confinement spatial des décharges et la pulsation nanoseconde répétitive du champ électrique.

Dans cette dernière partie, nous concluons sur l'apport de notre travail. Ce dernier avait d'abord pour objectif de déterminer si la combinaison entre les décharges nanosecondes répétitives (NRP) avec le confinement spatial à l'échelle micrométrique présentait des caractéristiques intéressantes pour les applications communes des plasmas froids. Nous avons employé principalement la spectroscopie d'émission et les mesures électriques afin de répondre à cette question.

Dans un premier temps, nous avons étudié la phase de claquage des micro-plasmas NRP pour une distance $d_{gap} = 200 \mu m$ et une fréquence de répétition $F_{NRP} = 8 kHz$. Une étude comparative avec une décharge millimétrique nous a aidé à comprendre le régime micro-plasma. Des images intensifiées montrent que le claquage s'opère par une première phase d'aspect diffus qui évolue en une phase filamentaire plus lumineuse. Nous avons constaté que le premier est caractéristique d'une densité électronique modérée ($< 10^{17} cm^{-3}$) et le spectre est dominé par l'excitation et l'ionisation moléculaire. L'aspect filamentaire est quant à lui associé à une densité électronique de l'ordre de $10^{19} cm^{-3}$ avec un spectre dominé par l'émission de lignes atomiques ioniques et d'un fond continu. Cette phase est donc synonyme d'un ratio de dissociation et d'ionisation de presque 100 %. Trois indices appuient cette conclusion : il n'y a pas d'émission de bandes moléculaires, les électrons ne s'associent pas avec des ions moléculaires car leur recombinaison est trop lente, et la relaxation de la température électronique est elle aussi trop lente.

C'est pourquoi dans un second temps, l'étape de recombinaison de ce régime de micro-plasma NRP a été étudiée pour $d_{gap} = 200 \mu m$. L'aspect et le spectre de la décharge sur plusieurs microsecondes ont été exposés. Ces spectres nous ont servi à étudier le chauffage dans le micro-plasma NRP. Des températures électroniques importantes de l'ordre de $6 eV$ ($72 kK$) ont été mesurées tandis que nous montrons des indices qui tendent à penser que le gaz n'accumule pas des effets de chauffage en état stationnaire, même pour une fréquence de répétition élevée. Nous pensons que l'expansion toroïdale, déjà étudiée pour les décharges NRP, est responsable de ce refroidissement rapide.

Par la suite, nous avons étudié la recombinaison des électrons pour $t \in [0 \text{ ns}; 400 \text{ ns}]$. Celle-ci est principalement pilotée par une réaction à trois corps $A^+ + 2e \rightarrow A + e$. Il existe notamment une cohérence entre les mesures de la densité électronique, la température électronique et l'émission des lignes des atomes excités O et N . L'évolution de la température électronique déduite du modèle à trois corps semble indiquer que l'émission continue est liée à du *bremsstrahlung* électrons-ions.

Par la suite, l'écoulement qui transporte les espèces chimiques produites par le micro-plasma NRP a été étudié par vélocimétrie d'images de particules. A proximité de la décharge (40 mm), nous avons placé une troisième électrode sur laquelle une tension (-14 kV) était appliquée. Il en a résulté un écoulement qui n'est pas axisymétrique avec une vitesse centrale d'environ $1,5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ pour $d_{gap} = 200 \text{ } \mu\text{m}$ et $F_{NRP} = 8 \text{ kHz}$. Par la variation de la tension sur la troisième électrode, nous avons démontré qu'il s'agissait d'un phénomène de vent ionique.

Sur l'un des plans, le profil de vitesse est fin et la vitesse maximale se trouve positionnée au centre. Sur l'autre plan, le profil est large et en forme de selle. Nous avons expliqué cette forme particulière par la configuration géométrique en comparant l'écoulement obtenu avec celui généré par une décharge couronne. Nous avons soulevé deux points importants relatifs à la forme de l'écoulement : la cartographie du champ Laplacien et les conditions aérodynamiques en zone très proche du micro-plasma. Les champs de la vitesse fluctuante ont été expliqués par la dynamique tourbillonnaire qui prend naissance en zone proche du réacteur.

Enfin, dans un dernier chapitre, nous avons présenté l'ensemble des résultats nécessaires pour répondre à notre sujet principal : le confinement micrométrique de décharges NRP. Les principaux effets de confinement des décharges NRP peuvent se résumer ainsi :

- le champ électrique est augmenté par la part plus importante de la chute cathodique et le temps de montée plus rapide du champ accroît le champ électrique maximum appliqué ;
- l'énergie est principalement déposée dans la phase filamentaire alors que pour le cas millimétrique, l'énergie est déposée dans la phase diffuse ;
- le coût énergétique pour produire une charge est moins important lorsque le gap est réduit ;
- le remplacement d'air « frais » dans l'espace inter-électrodes est plus rapide, la fréquence de répétition pouvant être appliquée sans l'accumulation de chaleur est donc plus importante ;
- en réduisant le gap, la vitesse de l'écoulement généré à l'aide de la troisième électrode ne diminue pas, mais celui-ci est plus fin avec une trace thermique moins importante sur les visualisations Schlieren.

En conclusion, nous avons montré que les décharges micro-plasmas NRP sont capables de produire des espèces réactives dont la densité et l'efficacité est remarquable. Des densités importantes d'espèces chargées et réactives sont générées comme dans un arc électrique, mais la température du gaz peut redescendre rapidement à température ambiante. Bien que leur

volume soit petit, ces décharges sont susceptibles de traiter de larges surfaces via un écoulement en appliquant une tension sur cette surface. De plus, les fréquences de l'ordre de $F_{NRP} \in [10 \text{ kHz}; 100 \text{ kHz}]$ couplées à une distance inter-électrodes entre $100 \mu\text{m}$ et 1 mm sont très utiles pour ajuster la température d'opération du système afin de sélectionner les espèces qui seront produites.

8.2 Perspectives

Nos études de la transition des aspects homogènes et filamentaires et de la stabilisation du champ électrique dans la zone cathodique ont souvent été limitées par notre temps d'exposition du matériel utilisé. Du matériel avec une résolution temporelle et spatiale plus importante permettrait d'étudier pleinement ces étapes de transition dans le but d'observer le mécanisme de production des charges dans la phase filamentaire. Il semble que la densité du gaz et le champ électrique réduit soient deux des paramètres principaux qui régissent le temps de transition du mécanisme.

L'étude de la température des électrons et du gaz est un point clef. Nous avons donné quelques indices indiquant que l'équilibre thermodynamique n'était pas atteint. Prendre davantage de mesures de T_e en utilisant une méthode appropriée dans la phase de recombinaison permettrait de valider nos conclusions sur la réaction à trois corps. Une technique d'absorption pourrait être utilisée afin de mesurer le chauffage, mais des précautions doivent être prises pour réaliser la mesure au bon endroit car la phase filamentaire est plus fine et moins stable que la phase homogène (spatialement et temporellement).

L'étude présentée dans le sixième chapitre propose deux hypothèses principales par rapport à la forme de l'écoulement : le sillage des électrodes et la position de la décharge par rapport au champ électrique Laplacien. Un ajustement de la géométrie avec l'ajout d'une surface ou l'utilisation d'une décharge à cathode creuse, par exemple, pourrait valider ces hypothèses et produire un écoulement avec des vitesses plus importantes. Nous avons brièvement réalisé une analogie avec les panaches thermiques. Cette analogie mériterait d'être approfondie, en définissant un nombre de Richardson pour les écoulements EHD par exemple.

Concernant les applications, nous avons montré que nous pouvons diriger un flux de gaz ou d'ions vers une zone à traiter qui est beaucoup plus large que la décharge en elle-même. Cette configuration pourrait être utile pour toutes les configurations qui se présentent comme une surface en face du réacteur. Cela inclut les surfaces libres de liquides conducteurs comme dans des applications biologiques *in vitro* ou la synthèse de nanomatériaux. De plus, plusieurs paramètres peuvent être ajustés comme le flux d'ions en changeant le potentiel de la troisième électrode, ou le flux de NO en faisant varier l'espace inter-électrodes et la fréquence de répétition des impulsions.

Notre étude pourrait également être appliquée au contrôle d'écoulement. En général, l'allumage de la décharge et la forme du champ électrique Laplacien ne peuvent pas être découplés l'un de l'autre. Par exemple, pour générer une décharge couronne, l'utilisation d'une configuration asymétrique est requise. Une configuration géométrique beaucoup plus

souple du micro-plasma NRP permettrait de découpler la création des charges et la forme du champ électrique les faisant dériver.

Notre travail s'est principalement concentré sur les décharges NRP, mais la question de l'utilisation d'un autre type de décharge étincelle plus simple à générer techniquement en découle. Par exemple, les « transcient spark » [125,185] sont des étincelles qui peuvent être produites avec une fréquence de répétition proche de nos conditions, mais avec un champ électrique moins important du fait du temps de montée plus long et une alimentation DC. Les micro-décharges à cathode creuse peuvent aussi générer un plasma à forte densité en mode pulsé ou continu [47–49].

Références

- [1] I. Langmuir, Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A. **14**, 627 (1928).
- [2] *Gas Discharge Physics* | Yuri P. Raizer | Springer (n.d.).
- [3] K. D. Bayoda, *Propriétés électriques, Optiques et Mécaniques D'une Décharge de Surface à Barrière Diélectrique Nanoseconde Pulsée. Application à La Mesure de Vitesse Pariétale et Au Contrôle Des écoulements Aérodynamiques* (Poitiers, 2016).
- [4] A. B. Murphy, J. Phys. Appl. Phys. **43**, 434001 (2010).
- [5] Goecke S. F. et. al., Fr Aunhofer IRB Verl. (2005).
- [6] G. J. M. Hagelaar and L. C. Pitchford, Plasma Sources Sci. Technol. **14**, 722 (2005).
- [7] J. Dutton, J. Phys. Chem. Ref. Data **4**, 577 (1975).
- [8] V. Lisovski, J.-P. Booth, K. Landry, D. Douai, V. Cassagne, and V. Yegorenkov, J. Phys. Appl. Phys. **39**, 660 (2006).
- [9] L. B. Loeb and A. F. Kip, J. Appl. Phys. **10**, 142 (1939).
- [10] C. Montijn and U. Ebert, J. Phys. Appl. Phys. **39**, 2979 (2006).
- [11] S. Nijdam, F. M. J. H. van de Wetering, R. Blanc, E. M. van Veldhuizen, and U. Ebert, J. Phys. Appl. Phys. **43**, 145204 (2010).
- [12] E. M. van Veldhuizen, P. C. M. Kemps, and W. R. Rutgers, IEEE Trans. Plasma Sci. **30**, 162 (2002).
- [13] A. J. Palmer, Appl. Phys. Lett. **25**, 138 (1974).
- [14] J. I. Levatter and S.-C. Lin, J. Appl. Phys. **51**, 210 (1980).
- [15] D. Packan, *Repetitive Nanosecond Glow Discharge in Atmospheric Pressure Air /* (2003).
- [16] D. Pai, *Etude Des Plasmas Générés Par Impulsions électriques Nanosecondes Répétitives Dans L'air Préchauffé à Pression Atmosphérique* (Paris, 2008).
- [17] DZ Pai, DA Lacoste, and CO Laux, J. Appl. Phys. **107**, 093303 (2010).
- [18] D. Rusterholtz, *Nanosecond Repetitively Pulsed Discharges in Atmospheric Pressure Air* (Paris, 2012).
- [19] F. Tholin, *Numerical Simulation of Nanosecond Repetitively Pulsed Discharges in Air at Atmospheric Pressure: Application to Plasma-Assisted Combustion* (Châtenay-Malabry, Ecole centrale de Paris, 2012).
- [20] D. L. Rusterholtz, D. A. Lacoste, G. D. Stancu, D. Z. Pai, and C. O. Laux, J. Phys. Appl. Phys. **46**, 464010 (2013).
- [21] D. Z. Pai, D. A. Lacoste, and C. O. Laux, Plasma Sources Sci. Technol. **19**, 065015 (2010).
- [22] G. D. Stancu, F. Kaddouri, D. A. Lacoste, and C. O. Laux, J. Phys. Appl. Phys. **43**, 124002 (2010).
- [23] N. A. Popov, Plasma Phys. Rep. **27**, 886 (2001).
- [24] N. A. Popov, Plasma Sources Sci. Technol. **25**, 044003 (2016).

Références

- [25] T. Shao, V. F. Tarasenko, C. Zhang, E. K. Baksht, P. Yan, and Y. V. Shut'Ko, *Laser Part. Beams* **30**, 369 (2012).
- [26] R. M. van der Horst, T. Verreycken, E. M. van Veldhuizen, and P. J. Bruggeman, *J. Phys. Appl. Phys.* **45**, 345201 (2012).
- [27] F. Sainct, *Etude de la réactivité de décharges électriques nanoseconde à la pression atmosphérique dans la vapeur d'eau* (Ecole Centrale Paris, 2014).
- [28] Shcherbanev, *Filamentary Nanosecond Surface Dielectric Barrier Discharge at Elevated Pressures. Streamer-to-Filamentary Transition and Application for Plasma Assisted Combustion*. (Ecole Polytechnique, 2016).
- [29] S. A. Stepanyan, A. Y. Starikovskiy, N. A. Popov, and S. M. Starikovskaia, *Plasma Sources Sci. Technol.* **23**, 045003 (2014).
- [30] D. Mariotti and R. M. Sankaran, *J. Phys. Appl. Phys.* **43**, 323001 (2010).
- [31] M. S. Benilov, *J. Phys. Appl. Phys.* **41**, 144001 (2008).
- [32] Y. Cressault, R. Hannachi, P. Teulet, A. Gleizes, J.-P. Gonnet, and J.-Y. Battandier, *Plasma Sources Sci. Technol.* **17**, 035016 (2008).
- [33] D. Staack, B. Farouk, A. Gutsol, and A. Fridman, *Plasma Sources Sci. Technol.* **17**, 025013 (2008).
- [34] J. Hopwood, F. Iza, S. Coy, and D. B. Fenner, *J. Phys. Appl. Phys.* **38**, 1698 (2005).
- [35] J. Choi, F. Iza, J. K. Lee, and C. M. Ryu, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **35**, 1274 (2007).
- [36] B.-D. Huang, K. Takashima, X.-M. Zhu, and Y.-K. Pu, *J. Phys. Appl. Phys.* **49**, 045202 (2016).
- [37] D. B. Go and A. Venkattraman, *J. Phys. Appl. Phys.* **47**, 503001 (2014).
- [38] S. Stepanyan, J. Hayashi, A. Salmon, G. D. Stancu, and C. O. Laux, *Plasma Sources Sci. Technol.* **26**, 04LT01 (2017).
- [39] D. A. Xu, M. N. Shneider, D. A. Lacoste, and C. O. Laux, *J. Phys. Appl. Phys.* **47**, 235202 (2014).
- [40] A. Lo, A. Cessou, C. Lacour, B. Lecordier, P. Boubert, D. A. Xu, C. O. Laux, and P. Vervisch, *Plasma Sources Sci. Technol.* **26**, 045012 (2017).
- [41] S. Vacquié, M. Aubès, and Club "Arc Electrique" (Paris), *L'arc électrique* (Eyrolles, Paris, 2000).
- [42] D. S. Nikandrov, L. D. Tsendin, V. I. Kolobov, and R. R. Arslanbekov, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **36**, 131 (2008).
- [43] S. O. Macheret, M. N. Shneider, and R. C. Murray, *Phys. Plasmas* 1994-Present **13**, 023502 (2006).
- [44] A. Belasri, J. P. Boeuf, and L. C. Pitchford, *J. Appl. Phys.* **74**, 1553 (1993).
- [45] J. L. Walsh, F. Iza, and M. G. Kong, *Eur. Phys. J. D* **60**, 523 (2010).
- [46] X.-M. Zhu, J. L. Walsh, W.-C. Chen, and Y.-K. Pu, *J. Phys. Appl. Phys.* **45**, 295201 (2012).
- [47] K. H. Schoenbach, R. Verhappen, T. Tessnow, F. E. Peterkin, and W. W. Byszewski, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 13 (1996).

Références

- [48] C. Lazzaroni, P. Chabert, A. Rousseau, and N. Sadeghi, *Eur. Phys. J. D* **60**, 555 (2010).
- [49] J. S. Sousa, G. Bauville, and V. Puech, *Plasma Sources Sci. Technol.* **22**, 035012 (2013).
- [50] I. G. Koo, M. Y. Choi, J. H. Kim, J. H. Cho, and W. M. Lee, *Jpn. J. Appl. Phys.* **47**, 4705 (2008).
- [51] P. K. Chu, editor, *Low Temperature Plasma Technology: Methods and Applications* (CRC Press, Boca Raton, 2014).
- [52] M. Scapinello, L. M. Martini, G. Dilecce, and P. Tosi, *J. Phys. Appl. Phys.* **49**, 075602 (2016).
- [53] I. Adamovich, S. D. Baalrud, A. Bogaerts, P. J. Bruggeman, M. Cappelli, V. Colombo, U. Czarnetzki, U. Ebert, J. G. Eden, P. Favia, D. B. Graves, S. Hamaguchi, G. Hieftje, M. Hori, I. D. Kaganovich, U. Kortshagen, M. J. Kushner, N. J. Mason, S. Mazouffre, S. M. Thagard, H.-R. Metelmann, A. Mizuno, E. Moreau, A. B. Murphy, B. A. Niemira, G. S. Oehrlein, Z. L. Petrovic, L. C. Pitchford, Y.-K. Pu, S. Rauf, O. Sakai, S. Samukawa, S. Starikovskaia, J. Tennyson, K. Terashima, M. M. Turner, M. C. M. van de Sanden, and A. Vardelle, *J. Phys. Appl. Phys.* **50**, 323001 (2017).
- [54] S. Samukawa, M. Hori, S. Rauf, K. Tachibana, P. Bruggeman, G. Kroesen, J. C. Whitehead, A. B. Murphy, A. F. Gutsol, S. Starikovskaia, Uwe Kortshagen, J.-P. Boeuf, T. J. Sommerer, M. J. Kushner, U. Czarnetzki, and N. Mason, *J. Phys. Appl. Phys.* **45**, 253001 (2012).
- [55] S. M. Starikovskaia, *J. Phys. Appl. Phys.* **47**, 353001 (2014).
- [56] A. Seydou Moumouni, *Etude Expérimentale Des Effets Hydrodynamiques Des Décharges Nanosecondes Répétitives Pulsées (NRP) Dans L'interaction Plasma-Flamme* (Chasseneuil-du-Poitou, Ecole nationale supérieure de mécanique et d'aérotechnique, 2016).
- [57] S. V. Pancheshnyi, D. A. Lacoste, A. Bourdon, and C. O. Laux, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **34**, 2478 (2006).
- [58] G. Pilla, D. Galley, D. A. Lacoste, F. Lacas, D. Veynante, and C. O. Laux, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **34**, 2471 (2006).
- [59] S. A. Stepanyan, M. A. Bouhmedi, G. Vanhove, P. Desgroux, N. Popov, and S. Starikovskaya, in *52nd Aerosp. Sci. Meet.* (American Institute of Aeronautics and Astronautics, 2014).
- [60] E. Moyroud, T. Wenzel, R. Middleton, P. J. Rudall, H. Banks, A. Reed, G. Mellers, P. Killoran, M. M. Westwood, U. Steiner, S. Vignolini, and B. J. Glover, *Nature* **550**, 469 (2017).
- [61] D. Carolan, C. Rocks, D. Babu Padmanaban, P. Maguire, V. Svrcek, and D. Mariotti, *Sustain. Energy Fuels* **1**, 1611 (2017).
- [62] M. A. Lieberman and A. J. Lichtenberg, *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing*, 2nd ed (Wiley-Interscience, Hoboken, N.J, 2005).
- [63] G. Arnoult, T. Belmonte, and G. Henrion, *Appl. Phys. Lett.* **96**, 101505 (2010).
- [64] W.-H. Chiang, C. Richmonds, and R. M. Sankaran, *Plasma Sources Sci. Technol.* **19**, 034011 (2010).

- [65] D. Z. Pai, K. (Ken) Ostrikov, S. Kumar, D. A. Lacoste, I. Levchenko, and C. O. Laux, *Sci. Rep.* **3**, (2013).
- [66] J. Ehlbeck, U. Schnabel, M. Polak, J. Winter, T. von Woedtke, R. Brandenburg, T. von dem Hagen, and K.-D. Weltmann, *J. Phys. Appl. Phys.* **44**, 013002 (2011).
- [67] E. Robert, M. Vandamme, L. Brullé, S. Lerondel, A. Le Pape, V. Sarron, D. Riès, T. Darny, S. Dozias, G. Collet, C. Kieda, and J. M. Pouvesle, *Clin. Plasma Med.* **1**, 8 (2013).
- [68] M. Ito, T. Ohta, and M. Hori, *J. Korean Phys. Soc.* **60**, 937 (2012).
- [69] G. J. Buonopane, C. Antonacci, and J. L. Lopez, *Plasma Med.* **6**, (2016).
- [70] G. Collet, E. Robert, A. Lenoir, M. Vandamme, T. Darny, S. Dozias, C. Kieda, and J. M. Pouvesle, *Plasma Sources Sci. Technol.* **23**, 012005 (2014).
- [71] K. Chakravarthy, D. Dobrynin, G. Fridman, G. Friedman, S. Murthy, and A. A. Fridman, *Plasma Med.* **1**, (2011).
- [72] D. B. Graves, *J. Phys. Appl. Phys.* **45**, 263001 (2012).
- [73] J. S. Sousa, G. Bauville, B. Lacour, V. Puech, M. Touzeau, and J.-L. Ravanat, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 141502 (2010).
- [74] M. S. Simeni, *Quantum Cascade Laser Absorption Studies of Nitric Oxide Production by Nanosecond Pulsed Discharges in Air and in Combustible Mixtures* (Ecole Centrale Paris, 2015).
- [75] D. Barros, J. Borée, B. R. Noack, A. Spohn, and T. Ruiz, *J. Fluid Mech.* **805**, 422 (2016).
- [76] T. Darny, *Etude de La Production Des Espèces Réactives de L'oxygène et de L'azote Par Décharge Plasma Gun à Pression Atmosphérique Pour Des Applications Biomédicales* (Orléans, 2016).
- [77] P. Chassaing and R. Crampagne, *Turbulence en mécanique des fluides: Analyse du phénomène en vue de sa modélisation à l'usage de l'ingénieur* (2000).
- [78] P. Audier, D. Sciamarella, and G. Artana, *Phys. Fluids* **28**, 017103 (2016).
- [79] J. Golda, J. Held, B. Redeker, M. Konkowski, P. Beijer, A. Sobota, G. Kroesen, N. S. J. Braithwaite, S. Reuter, M. M. Turner, T. Gans, D. O'Connell, and V. S. der Gathen, *J. Phys. Appl. Phys.* **49**, 084003 (2016).
- [80] W. R. Quinn, *Exp. Therm. Fluid Sci.* **5**, 203 (1992).
- [81] P. M. Sforza, M. H. Steiger, and N. Trentacoste, *AIAA J.* **4**, 800 (1966).
- [82] P. Sforza and N. Trentacoste, *AIAA J.* **5**, 885 (1967).
- [83] H. Yu and S. S. Girimaji, *Phys. Fluids* **17**, 125106 (2005).
- [84] M. W. Thring and M. P. Newby, *Symp. Int. Combust.* **4**, 789 (1953).
- [85] F. Plourde, M. V. Pham, S. D. Kim, and S. Balachandar, *J. Fluid Mech.* **604**, 99 (2008).
- [86] A. O. M. Mahmoud, J. Bouslimi, and R. B. Maad, *Fire Saf. J.* **44**, 475 (2009).
- [87] E. J. List, *Annu. Rev. Fluid Mech.* **14**, 189 (1982).
- [88] T. S. van den Bremer and G. R. Hunt, *J. Fluid Mech.* **750**, 210 (2014).
- [89] M. J. Johnson and D. B. Go, *Plasma Sources Sci. Technol.* **26**, 103002 (2017).

Références

- [90] J. Seyed-Yagoobi, *J. Electrostat.* **63**, 861 (2005).
- [91] D. B. Go, S. V. Garimella, T. S. Fisher, and R. K. Mongia, *J. Appl. Phys.* **102**, 053302 (2007).
- [92] J. Wu, P. Traoré, C. Louste, L. Dascalescu, F. B. Tian, and A. T. Pérez, *IEEE Trans. Ind. Appl.* **51**, 669 (2015).
- [93] P. Audier, M. Fénot, N. Bénard, and E. Moreau, *Appl. Phys. Lett.* **108**, 084103 (2016).
- [94] E. Moreau and G. Touchard, *J. Electrostat.* **66**, 39 (2008).
- [95] C. Gouriou, P. Traoré, and C. Louste, *IEEE Trans. Ind. Appl.* **53**, 2471 (2017).
- [96] J. Casanovas, A. Chemin, J. P. Guelfucci, R. Grob, and J. P. Crine, *Rev. Phys. Appliquée* **22**, 1037 (1987).
- [97] Z. Yan, *Étude Des Panaches électrohydrodynamiques Plans* (Poitiers, 2014).
- [98] B. Malraison, P. Atten, and A. T. Perez, *J. Phys. III* **4**, 75 (1994).
- [99] J. Mizeraczyk, A. Berendt, and J. Podlinski, *J. Phys. Appl. Phys.* **49**, 205203 (2016).
- [100] N. Benard, P. Audier, E. Moreau, K. Takashima, and A. Mizuno, *J. Electrostat.* **88**, 15 (2017).
- [101] M. Robinson, *Trans. Am. Inst. Electr. Eng. Part Commun. Electron.* **80**, 143 (1961).
- [102] E. Moreau, N. Benard, J.-D. Lan-Sun-Luk, and J.-P. Chabriat, *J. Phys. Appl. Phys.* **46**, 475204 (2013).
- [103] A. Debien, N. Benard, L. David, and E. Moreau, *Appl. Phys. Lett.* **100**, 013901 (2012).
- [104] E. Defoort, N. Benard, and E. Moreau, *J. Electrostat.* **88**, 35 (2017).
- [105] D. F. Colas, A. Ferret, D. Z. Pai, D. A. Lacoste, and C. O. Laux, *J. Appl. Phys.* **108**, 103306 (2010).
- [106] D. B. Go, T. S. Fisher, and S. V. Garimella, *J. Phys. Appl. Phys.* **42**, 055203 (2009).
- [107] M. Ghazanchaei, K. Adamiak, and G. S. P. Castle, *J. Electrostat.* **73**, 103 (2015).
- [108] E. Moreau, *J. Phys. Appl. Phys.* **40**, 605 (2007).
- [109] S. B. Leonov, I. V. Adamovich, and V. R. Soloviev, *Plasma Sources Sci. Technol.* **25**, 063001 (2016).
- [110] E. A. CHRISTENSON and P. S. MOLLER, *AIAA J.* **5**, 1768 (1967).
- [111] J. P. Boeuf and L. Garrigues, *J. Appl. Phys.* **84**, 3541 (1998).
- [112] J. Lawton and F. J. Weinberg, *Electrical Aspects of Combustion* (Clarendon P, Oxford, 1969).
- [113] I. A. Elagin, D. I. Begal', I. A. Ashikhmin, and Y. K. Stishkov, *Tech. Phys. Lett.* **43**, 98 (2017).
- [114] I.A. Elagin, D.I. Begal, I.A. Ashikhmin, and Yu.K. Stishkov, (2016).
- [115] V. Boucinha, *Etude de l'écoulement induit par une décharge à barrière diélectrique surfacique - Contribution au contrôle des écoulements subsoniques par actionneurs plasmas* (Université d'Orléans, 2009).

Références

- [116] M. Forte, *Contrôle D'écoulement Par Actionneur Plasma de Type Décharge à Barrière Diélectrique : Application à L'amélioration de La Pulvérisation Dans Les Injecteurs de Turboréacteurs* (Poitiers, 2007).
- [117] J. Jolibois, *Etude et Développement D'un Actionneur Plasma à Décharge à Barrière Diélectrique : Application Au Contrôle D'écoulement Sur Profil D'aile* (Université de Poitiers, Poitiers, 2006).
- [118] J. P. Boeuf, Y. Lagmich, T. Unfer, T. Callegari, and L. C. Pitchford, *J. Phys. Appl. Phys.* **40**, 652 (2007).
- [119] N. Zouzou and E. Moreau, *J. Phys. Appl. Phys.* **44**, 285204 (2011).
- [120] P. G. S. Settles, in *Schlieren Shad. Tech.* (Springer Berlin Heidelberg, 2001), pp. 25–38.
- [121] C. E. Willert, D. M. Mitchell, and J. Soria, *Exp. Fluids* **53**, 413 (2012).
- [122] A. V. Mezhiba and E. G. Friedman, *Power Distribution Networks in High Speed Integrated Circuits* (Springer Science & Business Media, 2004).
- [123] N. S. Tabrizi, M. Ullmann, V. A. Vons, A. Schmidt-Ott, and U. Lafont, *J. Nanoparticle Res.* **11** 2 (2008).
- [124] G. Colonna, V. Laporta, R. Celiberto, M. Capitelli, and J. Tennyson, *Plasma Sources Sci. Technol.* **24**, 035004 (2015).
- [125] M. Janda, V. Martišoviš, K. Hensel, L. Dvonč, and Z. Machala, *Plasma Sources Sci. Technol.* **23**, 065016 (2014).
- [126] P. Bruggeman, D. Schram, M. Á. González, R. Rego, M. G. Kong, and C. Leys, *Plasma Sources Sci. Technol.* **18**, 025017 (2009).
- [127] M. A. Gigosos, M. Á. González, and V. Cardeñoso, *Spectrochim. Acta Part B At. Spectrosc.* **58**, 1489 (2003).
- [128] M. A. Gigosos and V. Cardeñoso, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **29**, 4795 (1996).
- [129] H. R. Griem, *Plasma Spectroscopy* (McGraw-Hill, 1964).
- [130] J. J. Olivero and R. L. Longbothum, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **17**, 233 (1977).
- [131] N. Konjević, M. Ivković, and N. Sakan, *Spectrochim. Acta Part B At. Spectrosc.* **76**, 16 (2012).
- [132] N. Dardaine, *Estimation de La Densité électronique Dans Les Plasmas Froids D'air à Pression Atmosphérique Grâce à L'effet Stark* (Université de Poitiers, Poitiers, 2017), p. 15.
- [133] C. O. Laux, T. G. Spence, C. H. Kruger, and R. N. Zare, *Plasma Sources Sci. Technol.* **12**, 125 (2003).
- [134] C. O. Laux, *Optical Diagnostics and Radiative Emission of Air Plasmas* (Stanford, 1993).
- [135] P. M. Capitelli, P. C. M. Ferreira, P. B. F. Gordiets, and P. A. I. Osipov, in *Plasma Kinet. Atmospheric Gases* (Springer Berlin Heidelberg, 2000), pp. 95–104.
- [136] C. Park, *J. Thermophys. Heat Transf.* **18**, 527 (2004).
- [137] C. Park, *Nonequilibrium Hypersonic Aerothermodynamics* (1989).

Références

- [138] J. Voráč, P. Synek, L. Potočnáková, J. Hnilica, and V. Kudrle, *Plasma Sources Sci. Technol.* **26**, 025010 (2017).
- [139] C. A. Bye and A. Scheeline, *Appl. Spectrosc.* **47**, 2022 (1993).
- [140] D. R. Noll, in *Laser-Induc. Breakdown Spectrosc.* (Springer Berlin Heidelberg, 2012), pp. 7–15.
- [141] Y. Y. Creighton, *Pulsed Positive Corona Discharges: Fundamental Study and Application to Flue Gas Treatment* (Technische Universiteit Eindhoven, 1994).
- [142] S. V. Pancheshnyi, S. V. Sobakin, S. M. Starikovskaya, and A. Y. Starikovskii, *Plasma Phys. Rep.* **26**, 1054 (2000).
- [143] K. V. Kozlov, H.-E. Wagner, R. Brandenburg, and P. Michel, *J. Phys. Appl. Phys.* **34**, 3164 (2001).
- [144] P. Paris, M. Aints, F. Valk, T. Plank, A. Haljaste, K. V. Kozlov, and H.-E. Wagner, *J. Phys. Appl. Phys.* **38**, 3894 (2005).
- [145] S. V. Pancheshnyi, S. M. Starikovskaia, and A. Y. Starikovskii, *Chem. Phys. Lett.* **294**, 523 (1998).
- [146] S. V. Pancheshnyi, S. M. Starikovskaia, and A. Y. Starikovskii, *Chem. Phys.* **262**, 349 (2000).
- [147] G. Dilecce, P. F. Ambrico, and S. D. Benedictis, *J. Phys. Appl. Phys.* **43**, 195201 (2010).
- [148] G. Dilecce, P. F. Ambrico, and S. De Benedictis, *Chem. Phys. Lett.* **431**, 241 (2006).
- [149] D. Z. Pai, M. A. Cappelli, and C. O. Laux, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **39**, 2258 (2011).
- [150] N. Bolouki, K. Tomita, S. Hassaballa, Y. Yamagata, and K. Uchino, *Jpn. J. Appl. Phys.* **54**, 016101 (2015).
- [151] B.-D. Huang, K. Takashima, X.-M. Zhu, and Y.-K. Pu, *J. Phys. Appl. Phys.* **48**, 125202 (2015).
- [152] R. S. Sigmond, *J. Appl. Phys.* **56**, 1355 (1984).
- [153] N. A. Popov, *Plasma Phys. Rep.* **36**, 812 (2010).
- [154] E. Marode, *J. Appl. Phys.* **46**, 2005 (1975).
- [155] E. Marode, F. Bastien, and M. Bakker, *J. Appl. Phys.* **50**, 140 (1979).
- [156] J. D. Zuber, K. L. Jensen, and T. E. Sullivan, *J. Appl. Phys.* **91**, 9379 (2002).
- [157] N. W. Harris, F. O'Neill, and W. T. Whitney, *Appl. Phys. Lett.* **25**, 148 (1974).
- [158] C. S. Lakshminarasimha and J. Lucas, *J. Phys. Appl. Phys.* **10**, 313 (1977).
- [159] S. Pancheshnyi, *Plasma Sources Sci. Technol.* **14**, 645 (2005).
- [160] L. G. Christophorou, *Radiat. Phys. Chem.* 1977 **12**, 19 (1978).
- [161] N. L. Aleksandrov and E. M. Anokhin, *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **44**, 115202 (2011).
- [162] D. A. A. Radzig and P. B. M. Smirnov, in *Ref. Data At. Mol. Ions* (Springer Berlin Heidelberg, 1985), pp. 429–438.
- [163] G. H. Wannier, *Phys. Rev.* **87**, 795 (1952).

Références

- [164] P. M. Capitelli, P. C. M. Ferreira, P. B. F. Gordiets, and P. A. I. Osipov, in *Plasma Kinet. Atmospheric Gases* (Springer Berlin Heidelberg, 2000), pp. 119–154.
- [165] Gen. Phys. Inst., Moscow, Russia, I. A. Kossyi, A. Y. Kostinsky, A. A. Matveyev, and V. P. Silakov, *Plasma Sources Sci. Technol.* **1**, 207 (1992).
- [166] M. Kono, K. Niu, T. Tsukamoto, and Y. Ujiie, *Symp. Int. Combust.* **22**, 1643 (1989).
- [167] G. B. Castela and M. Luis, *Direct Numerical Simulations of Plasma-Assisted Ignition in Quiescent and Turbulent Flow Conditions* (Paris Saclay, 2016).
- [168] A. Lo, A. Cessou, P. Boubert, and P. Vervisch, *J. Phys. Appl. Phys.* **47**, 115201 (2014).
- [169] A. Lo, A. Cessou, and P. Vervisch, *J. Phys. Appl. Phys.* **47**, 115202 (2014).
- [170] A. Lo, A. Cessou, C. Lacour, B. Lecordier, P. Boubert, D. A. Xu, C. O. Laux, and P. Vervisch, *Plasma Sources Sci. Technol.* **26**, 045012 (2017).
- [171] Y. B. Zeldovich and Y. P. Raizer, *Physics of Shock Waves and High-Temperature Hydrodynamic Phenomena* (FOREIGN TECHNOLOGY DIV WRIGHT-PATTERSON AFB OH, 1965).
- [172] N. A. Popov, *J. Phys. Appl. Phys.* **44**, 285201 (2011).
- [173] B. Du, N. Sadeghi, T. V. Tsankov, D. Luggenhölscher, and U. Czarnetzki, *Plasma Sources Sci. Technol.* **21**, 045015 (2012).
- [174] S. A. Shcherbanev, A. Y. Khomenko, S. A. Stepanyan, N. A. Popov, and S. M. Starikovskaia, *Plasma Sources Sci. Technol.* **26**, 02LT01 (2017).
- [175] F. Cabannes, J. Chapelle, and M. Venugopalan, in *Spectrosc. Plasma Diagn.* (Wiley-Interscience New York, 1971), p. 367.
- [176] E. Iordanova, J. M. Palomares, A. Gamero, A. Sola, and J. J. A. M. van der Mullen, *J. Phys. Appl. Phys.* **42**, 155208 (2009).
- [177] M. J. Wright, D. Bose, G. E. Palmer, and E. Levin, *AIAA J.* **43**, 2558 (2005).
- [178] M. S. Benilov and A. Marotta, *J. Phys. Appl. Phys.* **28**, 1869 (1995).
- [179] M. Mitchner and C. H. Kruger, (1973).
- [180] R. S. Devoto, *Phys. Fluids* **16**, 616 (1973).
- [181] A. P. Vouros, T. Panidis, A. Pollard, and R. R. Schwab, *Int. J. Heat Fluid Flow* **51**, 383 (2015).
- [182] Z. Trávníček and V. Tesař, *Int. J. Heat Mass Transf.* **47**, 2329 (2004).
- [183] S. Pancheshnyi, *J. Phys. Appl. Phys.* **46**, 155201 (2013).
- [184] DZ Pai, DA Lacoste, and CO Laux, *J. Appl. Phys.* **107**, 093303 (2010).
- [185] M. Janda, T. Hoder, A. Sarani, R. Brandenburg, and Z. Machala, *Plasma Sources Sci. Technol.* **26**, 055010 (2017).