

Etude expérimentale de la production d'un courant d'ions négatifs appliquée à la fusion thermonucléaire contrôlée par utilisation de techniques spectroscopiques et confrontation des résultats expérimentaux à un modèle numérique

Jounayd Bentounes

▶ To cite this version:

Jounayd Bentounes. Etude expérimentale de la production d'un courant d'ions négatifs appliquée à la fusion thermonucléaire contrôlée par utilisation de techniques spectroscopiques et confrontation des résultats expérimentaux à un modèle numérique. Physique des plasmas [physics.plasm-ph]. Université de Mostaganem (Algérie), 2018. Français. NNT: . tel-02913542

HAL Id: tel-02913542 https://theses.hal.science/tel-02913542v1

Submitted on 9 Aug 2020 $\,$

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.



REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE



THESE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES PHYSIQUE DE L'UNIVERSITE DE MOSTAGANEM

Préparée dans le cadre d'une codirection entre l'université de Mostaganem et le Laboratoire de Physique Subatomique & Cosmologie (LPSC) (IN2P3 (CNRS), Université Grenoble Alpes).

Spécialité : Physique appliquée

Présentée par :

Jounayd BENTOUNES

Thèse dirigée par : Mounir TERKI HASSAÏNE et

Codirigée par : Stéphane BECHU

Préparée au sein du Laboratoire de Physique Subatomique & Cosmologie (LPSC) et du Laboratoire d'Electromagnétisme et Optique Guidée (LEOG)

Etude expérimentale de la production d'un courant d'ions négatifs appliquée à la fusion thermonucléaire contrôlée par utilisation de techniques spectroscopiques et confrontation des résultats expérimentaux à un modèle numérique

Thèse soutenue publiquement le 27/09/2018,

Devant le jury composé de :

M. Abdelhalim Benachenhou (Professeur, Université de Mostaganem)PrésidentM. Mounir Terki Hassaïne (Maître de conférences A, Université de Mostaganem)Directeur de thèseM. Stéphane Béchu (Directeur de recherche CNRS, LPSC Grenoble)Codirecteur de thèseM. Noureddine Hassini (Professeur, Université de Mostaganem)ExaminateurM. Zahir Harrache (Maître de conférences A, Université d'Oran)ExaminateurM. Amir Aid Driss (Maître de conférences A, Université d'Oran)ExaminateurM. Noureddine Benderdouche (Professeur, Université de Mostaganem)Invité

"no amount of experimentation can ever prove me right; a single experiment can prove me wrong (...)"

- Albert Einstein

Attributed to Einstein. Quoted in Alice Calaprice, The Quotable Einstein (1996), 224.

Cette thèse est dédiée à ma mère et mon père;

Merci d'avoir fait de moi un homme.

A ma sœur et mon frère.

A ma femme ;

Pour son engouement et son soutien, tout au long de cette thèse.

A mon petit bébé d'amour 'Neïla'.

A mes deux grands-mères...

Remerciements,

Cette thèse a été réalisée en co-direction avec le Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie (LPSC) de l'université de Grenoble. Je souhaite tout d'abord remercier son directeur le Pr. Arnaud Lucotte de m'avoir accueilli, mais aussi le Pr. Ana Lacoste de m'avoir acceptée au sein de son équipe.

Mes remerciements à Mr. Abdelhalim Benachenhou, qui a accepté de présider le jury de soutenance. Que Mr. Noureddine Hassini, Mr. Zahier Harache et Mr. Aid Dris soient remerciés d'avoir accepté de juger ce travail.

J'exprime ma gratitude à Mr. Terki Hassaïne Mounir, qui a encadré ce travail de recherche.

J'adresse tous mes remerciements à Stéphane Béchu. Qui, par sa ténacité, et ses capacités, a su résoudre tous les problèmes tant théoriques, qu'expérimentaux que nous avons rencontré parfois. Merci d'avoir accepté de diriger cette thèse !! Je te remercie également pout ta confiance, ta disponibilité, tes galettes des rois et tes brioches au chocolat...

Je remercie Armelle Michau du Laboratoire des Sciences des Procédés et des Matériaux (LSPM) (Paris Nord), pour ses calculs numériques. Merci encore à Mr. Panagiotis Svarnas, et Spyros Aleiferis du High Voltage Laboratory (HVL) (Patras –Gréce-), pour leur aide dans la rédaction de l'article.

Un spécial remerciement au Pr. Jean Louis Lemaire, Lisette Gavilan, Stéphane et Spyros pour les très bons, et particuliers moments passés ensemble au synchrotron Soleil, malgré nos nombreuses nuits blanches !! Merci encore à Stéphane de m'avoir permis de vivre une telle expérience.

Aux autres maintenant, et j'en oublie certainement !

Un grand Merci à Alexandre Bés, le "saint-Turbo", pour sa disponibilité et de ses nombreux dépannages... Merci encore pour la bonne ambiance et le climat convivial que tu crées... "Mauricette, tu la vois celle-là, tu la vois !!".

Je n'oublie certainement pas Laurent Bonny, qui, par son aide précieuse, les problèmes de mécanique et d'informatique, n'étaient plus un obstacle...

Merci à Ionela Iliescu, avec qui je partageais mon bureau, de m'avoir supportée, et surtout supportée mes blagues pourries !! T'inquiètes, on restera en contact, et je t'enverrai toujours des e-mails depuis mon Nokia 3310... Une chose est sûre, les remerciements c'est bien, mais les "Baklawas" c'est mieux...

Merci aussi à Mahfoud Yamouni, qui par sa persistance, a su faire "intégrer" les membres du CRPMN. Je suis sûr, si tu continues comme ça encore pour quelques temps, tous les membres de l'équipe déménageraient au Bled.

Que Maxime Cerisier soit remercié pour les agréables moments qu'on a partagés. Avec ta philosophie, et tes histoires, le trajet presqu'ile-Victor Hugo du tram B, paraissait trop court. C'est dommage que tu ne prenais pas aussi la ligne C3... Sans oublier évidemment mes potes de Mostaganem, Moustapha (Muss), Amine (La petite), Madjid (Badé), Karim (Guelloul) et Rachid (Petit homme).

Résumé

La présente thèse rentre dans le cadre du projet ITER et DEMO, qui ont pour but de contrôler la fusion thermonucléaire. Pour initier les réactions de fusion au cœur du tokamak (i.e. le réacteur de fusion), il est nécessaire de chauffer le plasma de fusion. L'une des méthodes utilisées, est l'injection de neutres (IDN). Cette technique consiste à créer des ions négatifs dans une source de plasma froid extérieure ; extraire ces ions, les accélérer et les neutraliser avant de les injecter dans le réacteur de fusion. Les ions négatifs d'hydrogène peuvent être créés en surfaces et/ou en volume. Les mécanismes de surfaces requièrent l'injection du césium qui, par sa contamination de la ligne de chauffage, pose de nombreux problèmes. Le but de cette thèse, est d'améliorer la production d'ions négatifs sans utiliser le césium. Pour ce faire, le réacteur ROSAE-III (ecR hydrOgen plaSma for neutrAl bEam), a été développé et conçu par le groupe PMN du laboratoire LPSC. Ce réacteur à plasma ECR (2.45 GHz), privilégie les mécanismes de volume, qui, à l'inverse des mécanismes de surface, ne requièrent pas de césium. Une étude détaillée des principes fondamentaux de la production des H est réalisée, et les voies possibles d'optimisation sont explorées au moyen de : sondes électrostatiques, photodetachment laser, spectroscopie d'émission optique dans la région spectrale du visible et de l'ultraviolet du vide (VUV) et finalement par spectroscopie d'absorption et de fluorescence induite dans la région spectrale de l'ultraviolet du vide en utilisant le rayonnement synchrotron dans un montage expérimental spécial (i.e. source SCHEME-II). L'investigation a été menée dans deux positions différente : la zone de production (proche des sources ECR), et la zone de diffusion (i.e. à 79mm en aval des sources ECR), sous des conditions de pression et puissance différentes.

Les ions négatifs sont produits dans ROSAE-III, en volume, principalement, par attachement dissociatif (*AD*), qui requiert des électrons froids, et des molécules d'hydrogène rovibrationnellement excitées $H_2(X'\Sigma_g^+, v'')$. L'avantage de ROSAE-III, est qu'il peut abriter à sa surface interne, un cylindre en verre borosilicate (Pyrex TM), ainsi, la surface faisant face au plasma peut soit avoir un fort coefficient de recombinaison (γ = 0.5 pour l'inox), soit modéré (~ γ =0.004 pour le Pyrex TM). Dans le but d'augmenter la production des molécules ro-vibrationnellement excitées, par désorption recombinative (*DR*), et générer par conséquence une densité supérieure d'ions négatifs H⁻, des matériaux (tungstène, inox, tantale et HOPG), ont été placés dans la zone de production du plasma. De cette manière, la densité absolue des ions négatifs a été multipliée par un facteur 3.5, passant de 5×10¹³ m⁻³ à 17.5× 10¹³ m⁻³.

La source SCHEME-II, conçue pour être montée sur la ligne DESIRES du synchrotron SOLEIL, nous a permis de déterminer les densités relatives d'atomes et de molécules excitées.

Les résultats expérimentaux, ont été soutenus par un modèle numérique collisionnel en 1 dimension du plasma d'hydrogène.

Mots clefs : Plasma ECR, ions négatifs d'hydrogène, injection des neutres, fusion thermonuclèaire, ITER, sonde de Langmuir, Photodetachement laser, source H⁻, rayonnement synchrotron.

Abstract

The present Phd thesis is an input within the frame of ITER and DEMO projects, which aim to control nuclear fusion reactions. To maintain fusion reactions in a tokamak (i.e. Fusion machine), the plasma fusion should be constantly heated. One of the heating methods used, is the so-called Neutral Beam Injection (NBI). This technique involves the creation of negative ions in an external cold plasma source; after being extracted, they will be accelerated, neutralized, before being injected into the fusion reactor. Negative hydrogen ions are created on surfaces and / or in volume. The surface mechanisms require cesium injection, which could contaminate the accelerating stage, and could lead to voltage disruptions. This thesis aims to improve the production of negative ions, in cesium-free plasma. For this purpose, the ROSAE-III (ecR hydrOgen plaSma for neutrAl bEam) reactor has been developed and designed by the PMN team of the LPSC. This multi-dipolar ECR (Electron Cyclotron Resonance) plasma reactor (2.45 GHz) favors the volume mechanisms, which, unlike the surface mechanisms, does not require cesium. A detailed study of the fundamental principles of the production of H is carried out, and the different ways of optimization are explored by means of: electrostatic probes, laser photodetachment, optical emission spectroscopy in the visible range and in the VUV range and absorption spectroscopy and laser induced fluorescence (LIF) in the VUV using synchrotron radiation. Two different positions (close and far from the ECR driving zone) are investigated under various conditions of pressure and power.

Negative ions are produced in ROSAE-III, in the plasma volume by dissociative attachment (DA). This reaction requires cold electrons, and hydrogen ro-vibrationnally excited molecules H_2 ($X'\Sigma_g^+, v''$). The advantage of ROSAE-III is the possibility to change the plasma facing materials: borosilicate glass cylinder (Pyrex TM), with low recombination coefficient ($\gamma = 0.004$), or moderate ($\sim \gamma = 0.5$ for metallic surfaces). In order to increase the hydrogen ro-vibrationally excited molecules density, by recombinative desorption (RD), and consequently to generate a higher density of negative ions H⁻ via DA, materials (tungsten, stainless steel, tantalum and HOPG) have been investigated. Hence, the absolute density of negative ions has been multiplied by a factor of 3.5, from 5×10¹³ m⁻³ to 17.5×10¹³ m⁻³.

The SCHEME-II source, designed to be mounted on the DESIRES beam line of the SOLEIL synchrotron, allowed us to determine the relative densities of atoms and excited molecules.

The experimental results were supported by a 1-dimensional model of the hydrogen plasma, developed at the LSPM laboratory (Villetaneuse) which confirmed our results.

Key words: ECR plasma, hydrogen negative ions, neutral beam injection, thermonuclear fusion, ITER, Langmuir probe, laser photodetachment, H^{-} source, synchrotron radiation.

Constantes et notations:

 n_e : la densité électronique du plasma (m⁻³) n_i : la densité des ions négatifs (m⁻³) Φ : potentiel (V) $\boldsymbol{\Phi}_1$ - $\boldsymbol{\Phi}_2$: différence de potentiel (V) T_e : température électronique (eV) T_i : température ionique (eV) T_H : température des atomes H (eV) T_g : température du gaz (K) \mathcal{E}_{θ} : permittivité du vide (8,85 × 10⁻¹² F m⁻¹) τ_E : le temps de confinement de l'énergie (s) ω_{CE} : fréquence cyclotronique électronique (Hz) k_B : constant de Boltzmann (1,38 × 10⁻²³ J K⁻¹) q : charge élémentaire $(1,6 \times 10^{-19} \text{C})$ *m*_e: masse de l'électron $(9,1 \times 10^{-31} \text{ kg})$ *mi*: masse de l'ion (kg) λ_D : la longueur de Debye (nm) \emptyset : travail de sortie (eV) Ω : fréquence de Larmor (Hz) $\gamma_{\rm H}$: coefficient de recombinaison I_s : intensité du courant collecté par la sonde (mA) A_s : surface collectrice de la sonde électrostatique (m²) *F* : Force de Lorentz (N) Ψ_{\perp} : coefficient de diffusion perpendiculaire $\Psi_{//}$: coefficient de diffusion parallèle χ : potentiel réduit (V) σ : section efficace de collision (m²) $C(\lambda)$: la réponse de l'appareil A^X : la probabilité de transition

 τ_{X^*} : la durée de vie radiative (s)

 \vec{F}_s : le flux de transport

Acronymes :

CNRS : Centre National de la Recherche Scientifique.

CEA : Commissariat à l'Energie Atomique.

LPSC : Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie, UMR 5821, 38026 Grenoble.

CRPMN : Centre de Recherche Plasma Matériaux Nanostructures.

LPP : Laboratoire de Physique des Plasmas, UMR 7648, Ecole Polytechnique – 91118 Palaiseau.

LSPM: Laboratoire des Sciences et Procédés des Matériaux, Université Paris 13.

ECR : Electron Cyclotron Resonance (RCE : Résonance Cyclotronique Electronique).

IPP : Institut Max Planck de Physique des Plasmas, Munich, Allemagne.

ITER: International Thermonuclear Experimantal Reactor.

DEMO : DEMOnstration fusion power plant, le démonstrateur technologique qui devrait succéder au réacteur expérimental de fusion nucléaire ITER.

JET : Joint European Tokamak.

TOKAMAK : Ce terme vient du russe « TOroïdalnaïa KAmera MAgnetnymi Katushkami». Qui

signifie : Chambre toroïdale avec bobines magnétiques.

IDN: Injection De Neutres (NBI en anglais).

ROSAE : ECR hydrOgèn plaSma for neutrAl bEam.

SOLEIL : Source **O**ptimisée de Lumière d'Énergie Intermédiaire du LURE, L'Orme des Merisiers, Saint-Aubin, 91192 Essonne.

DESIRS : Dichroïsme Et Spectroscopie par Interaction avec le Rayonnement Synchrotron.

DESY: Deutsches Elektronen-Synchrotron, Hamburg Germany.

VUV : Ultra-Violet du Vide.

LIF : Laser Induced Fluorescence (FIL : Fluorescence Induite par Laser).

TALIF : Two-photon Absorption Laser Induced Fluorescence.

LIF - VUV : Laser Induced Fluorescence dans le domaine spectral VUV (< 200 nm).

SOMMAIRE

INTRODUCTION GENERALE	1
I.1 MOTIVATIONS	2
I.2 LA FUSION THERMONUCLEAIRE	2
I.3 LE TOKAMAK	5
I.3.1 PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT I.3.2 PROJET ITER	5 6
I.4 LE CHAUFFAGE DU PLASMA	10
I.4.1 Chauffage par ondes I.4.2 Le chauffage par Injection De Neutres (IDN)	10 11
I.5 PRESENTATION DU TRAVAIL	14
I.5.1 ASPECT HISTORIQUE I.5.2 Perspective I.5.3 Articulation de la these	14 15 17
NOTIONS FONDAMENTALES SUR LA PRODUCTION DES IONS NEGATIFS	19
NOTIONS FONDAMENTALES SUR LES PLASMAS	20
II.1 INTRODUCTION	20
II.2 DEFINITION	20
II.3 COMPORTEMENT DU PLASMA	21
II.4 TAUX D'IONISATION	21
II.5 TEMPERATURE ELECTRONIQUE	22
II.6 LONGUEUR DE DEBYE	24
II.7 LA GAINE	25
LES SOURCES D'IONS NEGATIFS	27
II.8 L'ION NEGATIF	27
II.9 MECANISMES DE PRODUCTION DES FAISCEAUX D'IONS NEGATIFS	
II.9.1 LA PRODUCTION EN SURFACE	
II.9.2 LA PRODUCTION EN VOLUME	
II.10 PROCESSUS DE PERTES	
II.10.1 PROCESSUS REDUISANT LA DENSITE DE MOLECULES EXCITEES	
II.10.2 LES PROCESSUS DE DESTRUCTION DES IONS H ⁻	
II.11 SYNTHESE DES PRINCIPAUX MECANISMES	

II.12 CINETIQUE VIBRATIONNELLE	.39
II.13 CINETIQUE (OU PROCESSUS) PRINCIPALE DE NOTRE ETUDE	.43
LES DIFFERENTS TYPES DE SOURCES D'IONS H	.45
II.14 LES SOURCES DE SURFACE	.45
II.14.1 Les sources Penning II.14.2 Les sources magnétrons	.45 .46
II.15 LES SOURCES EN VOLUME	.47
II.15.1 Source à filaments W II.15.2 Les sources RF	.47 .48
II.15.3 LA SOURCE ECR	.50
II.16 CONCLUSION	.53
DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX ET DIAGNOSTICS	.54
III.1 INTRODUCTION	.55
III.2 LE REACTEUR ROSAE-III	.55
 III.2.1 BREF HISTORIQUE SUR LES PLASMAS DIPOLAIRES	.55 .57 .58 .60 .62 .64 .66 .66 .66 .70 .71
III.3.5 MESURES DANS LES PLASMAS MAGNETISES III.3.6 Etude de la population electronique isotope chaude III.3.7 Mesure de la fonction de distribution en energie des electrons	.75 .76 .77
III.4 LE DIAGNOSTIC PAR PHOTO-DETACHEMENT LASER	.80
III.4.1 Description III.4.2 Type et phases d'enregistrement du photo-detachement Laser III.4.3 Mesure de la densite relative n_i^-/n_e	.80 .83 .83
III.5 LE DIAGNOSTIC OPTIQUE	.84
III.5.1 Spectroscopie d'emission optique dans le visible III.5.2 Mesure des temperatures III.5.3 Mesure des densites par actinometrie III.5.4 Spectroscopie d'emission optique dans le VUV	.85 .88 .90 .96

III.6 LA SOURCE SCHEME	97
III.6.1. Spectroscopie d'absorption III.6.2. Fluorescence induite par Laser (LIF) III.6.3 La ligne DESIRS du Synchrotron SOLEIL III.6.4 Description de la source SCHEME	98 98 99 100
III.7 PARAMETRES EXPERIMENTAUX	103
III.7.1 Materiau III.7.2 Pression III.7.3 Puissance	103 104 104
III.8 LE MODELE NUMERIQUE	104
III.9 CONCLUSION	106
MESURES EXPERIMENTALES ET DISCUSSIONS	108
IV.1 INTRODUCTION	109
IV.2 REPRODUCTIBILITE	109
RESULTATS OBTENUS DANS LE REACTEUR ROSAE-III	111
IV.3 PAROIS EN PYREX TM	111
IV.3.1 COMPORTEMENT DU PLASMA ROSAE-III EN FONCTION DE LA PRESSION IV.3.2 Comportement du plasma ROSAE-III en fonction de la puissance	111
IV.4 PAROI EN ACIER INOXYDABLE	116
IV.4.1 Comportement du plasma ROSAE-III en fonction de la pression IV.4.2 Comportement du plasma ROSAE-III en fonction de la puissance IV.4.3 Conclusion	116 119 122
IV.5 ETUDE COMPARATIVE INOX-PYREX	123
IV.5.1 Comparaison du rendement de production des ions h ⁻ IV.5.2 Le choix de la couverture de chambre IV.5.3 conclusion	123 124 126
ÉTUDE DE L'EFFET DE SURFACE SUR LA PRODUCTION D'IONS H ⁻	127
IV.6. INTRODUCTION	127
IV.7. CARACTERISATION DES MATERIAUX PLACES PROCHE DES SOURCES I	ECR 128
IV.7.1. Pyrex-Tungstene IV.7.2. Pyrex-Acier inoxydable IV.7.3. Pyrex-Tantale IV.7.4 Pyrex-HOPG	128 134 140 146
IV.8 COMPARAISON ENTRE LES DIFFERENTS MATERIAUX	152
IV.8.1 Densite des ions negatifs IV.8.2 Rendement de la production des ions negatifs	152 153

IV.9 LE POSITIONNEMENT DES MATERIAUX AU FOND DU REACTEUR	
(POSITION 2)	161
IV.9.1 La densite et la temperature electronique	
IV.9.2 La densite des ions negatifs	163
IV.9.3 DISCUSSIONS	164
IV.10 CONCLUSION	
RESULTATS OBTENUS DANS LA SOURCE SCHEME-II	
IV.12 INTRODUCTION	
IV.13 LA DETECTION DES ATOMES D'HYDROGENE H	
IV.14 DETECTION DES MOLECULES VIBRATIONNELLEMENT EXCITEES	
IV.15 CONCLUSION	
V. CONCLUSION GENERALE	171
VI. RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUE	174
VII. ANNEXES	
VII.1 PUBLICATIONS ET COMMUNICATIONS	
VII.2 FILTRES NUMÉRIQUES	
VII.3 LE COEFFICIENT DE RECOMBINAISON	
VII.4 LE CHAMP MAGNETIQUE DANS ROASE-III	
VII.5 LA CONCEPTION DE L'EXTRACTEUR	191

AVANT-PROPOS

La population mondiale ne cesse de croître et, avec elle, la consommation d'énergie. L'urgence est particulièrement forte, où plus d'un milliard d'habitants vivent sans électricité dans les pays en voie de développement où la croissance économique est élevée et s'accélère. Malgré un effort important dans le domaine des énergies renouvelables, cette demande supplémentaire est, à l'échelle mondiale, satisfaite dans une très large mesure par un recours toujours plus grand aux combustibles fossiles. Alors que les écologistes, de leur côté, lancent des cris d'alarme sur les effets probables du réchauffement climatique.

C'est l'un des défis majeurs de ce siècle que de concilier la croissance inévitable de la consommation énergétique mondiale avec l'inéluctable épuisement des ressources fossiles (le pic de production se situerait autour de 2030-2050) et le respect de notre environnement. En l'absence de stockage efficace de l'énergie intermittente en provenance des sources renouvelables, il est en effet improbable que ces dernières puissent à elles seules remplacer les sources génératrices de gaz à effet de serre. Le choix d'un bouquet énergétique adapté est plus que jamais à l'ordre du jour.

Pour y parvenir, la seule approche envisageable est d'accentuer l'effort de recherche et de développement de sources à forte densité énergétique (plus grande quantité d'énergie pour une quantité de matière donnée) et un usage optimisé et combiné des ressources renouvelables.

Le nucléaire répond en partie à l'ensemble de ces exigences, il ne rejette ni gaz à effet de serre, ni polluant acide, ni poussières. A condition d'assurer une gestion des déchets radioactifs qui soit sûre, claire et rigoureuse. Mais les événements et les accidents tragiques de centrales nucléaires qui se sont produits dernièrement en Ukraine et au Japon, renforcent chaque jour davantage les exigences de la sûreté face aux risques nucléaires.

La préparation du futur conduit donc à s'interroger sur la nature et le type de nouveaux réacteurs maîtrisant les risques associés à l'énergie de fission : pas de déchets radioactifs à durée de vie extrême, pas de danger d'emballement et de prolifération. La mise en œuvre de la fusion thermonucléaire contrôlée, bien qu'elle requiert encore considérablement d'efforts, si elle pouvait devenir disponible industriellement, éviterait l'essentiel de ces difficultés.

Depuis la fin des années 60, deux voies ont été développées pour la fusion des isotopes de l'hydrogène contrôlée : le confinement inertiel et le confinement magnétique. C'est dans le cadre de la seconde voie qu'a été développée la filière des « tokamaks ». À partir de 1970, des nouveaux défis sont relevés et des installations de plus en plus performantes ont été construites et exploitées de par le monde. Le projet de réacteur international **ITER** est la dernière étape de recherche, avant la construction d'un prototype industriel. Ces dernières années, les recherches progressent de façon considérable dans tous les domaines, que cela soit au niveau de la physique, des matériaux, des technologies et sur l'image d'un réacteur de fusion du futur.

Ainsi, différents acteurs répondent à ce souci et mènent sur plusieurs installations expérimentales, dans des conditions de compétitivité optimales, des opérations d'envergure relatives au lancement de nouvelles technologies de production nécessaire à la génération de réacteurs de fusion. Par exemple, le **JET**(*Joint European Torus*), construit entre 1978 et 1982, qui se consacre à la physique des plasmas performants sur des temps courts (quelques secondes). La machine **Tore Supra**, plus spécialisée sur la maîtrise des plasmas moins performants mais sur des durées beaucoup plus importantes (6 minutes et plus). Tore Supra devient ainsi un véritable banc d'essai pour **ITER** (*International Thermonuclear Experimental Reactor*), base expérimentale de l'étude des matériaux faisant face au plasma ; un pas supplémentaire sur la maîtrise de la combustion entretenue d'un plasma deutérium-tritium sur des temps longs. Il mobilise un partenariat international de 35 pays pour sa conception, sa réalisation et son fonctionnement.

De nombreux chercheurs accompagnent la construction de cette machine internationale. L'objectif est l'identification des défis technologiques à relever, comme l'érosion des matériaux constituant l'enceinte de confinement des tokamaks et le développement d'une source d'ions négatifs pour le système de chauffage par injection de neutres. L'équipe Plasma-Matériaux-Nanostructrures (**PMN**) du Laboratoire de Physique Subatomique et Cosmologie (**LPSC**) de Grenoble (France), dont la vocation est de mener des recherches fondamentales et appliquées, s'inscrit pleinement dans cet axe.

Au sein du laboratoire, l'équipe Plasma-Matériaux-Nanostructrures développe, depuis 2007, une activité de recherche sur la production d'ions négatifs.

Les résultats exposés ici constituent une étape de ce travail. Ce projet de thèse doit amener, à l'aide d'un réacteur plasma de petit volume, développé par l'équipe du **PMN** dés 2012, à mieux comprendre les interactions plasma d'hydrogène / matériaux pour la production d'ions négatifs.

Ces travaux nécessitent aussi le développement de diagnostics particuliers nécessaires pour obtenir une meilleure caractérisation du plasma.

CHAPITRE I

INTRODUCTION

<u>GÉNÉRALE</u>

Ce chapitre introduit la problématique de cette thèse, en précisant quelques notions sur la fusion thermonucléaire par confinement magnétique, notamment le projet ITER. Ce réacteur de fusion magnétique devra démontrer à terme la viabilité de cette technologie pour produire de l'énergie électrique. Le chauffage par injection de neutres IDN (ou NBI) est expliqué, surtout le fonctionnement de la source d'ions négatif. Finalement, l'aspect historique de son développement et les perspectives envisagées dans le domaine seront abordés.

I.1 Motivations :

La production d'énergie par fission nucléaire est actuellement une importante source de production d'électricité sans émissions de carbone. Toutefois, face à des risques majeurs pour l'environnement (pas d'utilisation de produits d'éléments radioactifs de longue période) et ses aspects économiques actuels en font une option peu attrayante pour de nouvelles capacités de production énergétique. Le concept de la fusion par confinement magnétique, si elle pouvait devenir disponible industriellement viable, présente des avantages de premier ordre en matière de sûreté nucléaire. Elle ambitionne de produire une énergie propre et sûre en recréant sur Terre les mécanismes à l'œuvre au cœur des étoiles. La domestiquer serait, si on y parvient, une alternative considérable à nos sources actuelles d'énergie non renouvelables.

Toutefois, sa disponibilité nécessite l'aboutissement d'un important programme de recherches en amont de la phase industrielle. Des physiciens enthousiastes avaient imprudemment prédit pour l'an 2000, et avaient ainsi fortement sous-estimé les difficultés que la nature mettrait sur leur chemin. Ainsi, il est largement temps de mettre en œuvre aussi vite que possible, toutes les connaissances acquises dans le domaine de la fusion par confinement magnétique : ITER¹ reste la clé de voûte du programme de recherches. Il s'agit d'un programme de recherche expérimental. L'objectif à long terme est de produire de l'électricité en récupérant la chaleur produite par la réaction de fusion nucléaire. Nous allons définir les caractéristiques nécessaires au développement de sources d'ions négatifs, essentielles pour initier la réaction de fusion au sein du plasma.

I.2 La fusion thermonucléaire :

La fusion nucléaire est une réaction par laquelle deux noyaux atomiques fusionnent pour former un noyau plus lourd et une ou plusieurs particules (protons, neutrons ou photons). Avant d'entrer dans le rayon d'action des forces nucléaires a très courte portée ($\sim 10^{-15}$ m) et de fusionner, deux noyaux doivent avoir une énergie cinétique suffisante pour franchir la barrière de potentiel induite par leur propre répulsion coulombienne.

La première observation expérimentale d'une réaction de fusion nucléaire date de 1934, par le bombardement d'une cible de lithium par des protons accélérés à une énergie supérieure à la barrière de potentiel induite par la répulsion coulombienne des noyaux. La hauteur de la barrière augmente avec la charge du noyau, excluant pour un réacteur de fusion sur terre tous les combustibles autres que l'hydrogène et ses deux isotopes (D : deutérium et T : tritium). La fusion entre un noyau du deutérium (noté D) et un noyau du tritium (noté T), dite réaction D/T, qui donne un noyau d'hélium et un neutron, est considérée comme la meilleure candidate comme source d'énergie future (**Fig. I.1**).

Avec un amorçage à une température du plasma de 110 millions de kelvin (correspondant à une énergie cinétique des noyaux d'environ 10keV), il s'agit de la réaction la plus favorable, qu'on retrouve dans les machines de fusion actuelles (Tokamak).

¹ ITER : le chemin, en latin



Figure I.1 Réaction de fusion nucléaire : un noyau de deutérium et un noyau de tritium fusionnent en un noyau d'hélium.

L'énergie de la réaction D/T (**réaction I.1**) est libérée sous forme cinétique par un neutron de 14 MeV (correspondant à 80% de l'énergie thermique, qui est utilisé pour le chauffage du fluide caloporteur circulant dans la paroi du réacteur), et une particule α (noyau d'hélium comportant deux protons et deux neutrons) de 3,5 MeV, source d'auto-chauffage du plasma de fusion. Elle comporte un taux de réaction dix fois supérieur à celui des autres réactions potentielles (D-D, D-He...).

D + T \longrightarrow He (3.5MeV) + n (14.1MeV) (I.1)

La section efficace est maximale pour une énergie de 65keV et elle décroit très rapidement à mesure que l'énergie baisse, étant 1000 fois inférieure à sa valeur maximale pour E_{CM} = 7keV. Cette dernière grandeur (la "section efficace") quantifie la probabilité de vaincre les forces de répulsion électrostatique et fusionner deux noyaux en provoquant des collisions inélastiques entre ces particules. Une certaine énergie est donc indispensable pour franchir cette barrière et arriver dans la zone, très proche du noyau, où se manifestent les forces nucléaires capables de l'emporter sur la répulsion des noyaux (**Fig. I.2**).



Figure I.2 Variation des sections efficaces en fonction de l'énergie d'interaction (keV) (Document CEA).

Pour déclencher et entretenir cette réaction, il faut des conditions physiques de températures et de pressions extraordinaires. L'atome s'ionise et l'on entre alors, dans le quatrième état de la matière, le **plasma**, un état naturel au cœur des étoiles. Sur Terre, nous n'avons pas cette facilité, et il faut déployer des efforts considérables pour créer les conditions favorables à la fusion. Le plasma est chauffé à l'aide d'une source de puissance extérieure, les particules α produites par la fusion D-T' apporteront alors à leur tour de l'énergie au plasma. Ces deux sources d'énergie doivent compenser le refroidissement du plasma dû au rayonnement et à la conduction-convection. Pour qu'un tel système soit auto-entretenu il faut que la puissance de fusion soit au moins égale à la puissance électrique. Un des défis de la recherche est donc de construire un réacteur qui consiste à confiner un plasma chaud de D-T, un milieu thermiquement isolé, dans lequel cette réaction de fusion se produit pendant une durée suffisamment longue. John Lawson **[1]** établira en 1957, le critère éponyme, qui résulte du bilan de puissance entre sources (réactions de fusion) et pertes du réacteur: il traduit la condition d'auto-entretien des réactions de fusion (les pertes sont compensées par l'énergie produite lors de la fusion D-T). Le critère de Lawson s'exprime au travers de trois paramètres :

- la densité du plasma *n* (en pratique, on considère que le plasma est composé de deutérium et de tritium en proportions égales),
- la température du plasma *T*,
- le temps de confinement de l'énergie τ_E .

Numériquement, il est défini par les deux conditions suivantes : le produit entre la densité des ions (n) et le temps de confinement de l'énergie (τ_E) soit supérieur à une certaine valeur, et que la température T soit suffisamment élevée.

Pour la réaction D/T, le critère de Lawson s'écrit :

$$n \times \tau_{\rm E} > 1.5 \times 10^{20} \text{ m}^{-3}.\text{s pour } \text{T} \ge 10 \text{keV}$$
 (I.2)



Figure I.3 Le critère de Lawson en fonction de la température pour trois types de réaction.

Précisément, il faut maintenir une densité de 10^{20} ions par m³ à une température de 10 keV (10^8 °K), avec un temps de confinement de l'énergie supérieur à 3 secondes. Dans le cas de la fusion par confinement magnétique, la condition d'ignition est remplie quand la puissance de fusion compense à elle seule les pertes d'énergie du plasma (fonctionnement du réacteur sans alimentation extérieure), l'objectif est que le triple produit $n \times \tau_E \times T$ atteigne la valeur minimale de 3×10^{21} m⁻³ keV×s. Mais force est de reconnaître qu'au stade actuel de nos connaissances, si la majorité des phénomènes limitant la durée du confinement dans les machines existantes sont connus, on n'a toujours pas réussi à réaliser un réacteur à bilan positif. La machine la plus performante actuellement pour réaliser ce type de confinement est le **Tokamak**.

I.3 Le Tokamak :

Le Tokamak², chambre toroïdale avec bobines magnétiques, est une chambre de confinement à champ magnétique extrêmement fort qui s'oppose, à l'expansion du plasma. Il a été inventé au début des années 1950 par les Russes Igor Tamm et Andreï Sakharov. Il est destiné à contrôler un plasma pour étudier la possibilité de la production d'énergie par fusion nucléaire.

I.3.1 Principe de fonctionnement :

C'est un système à géométrie torique dont les lignes principales de champ magnétique suivent la direction toroïdale. Les particules chargées du plasma sont ainsi piégées sur ces lignes de champ. Ce qui évite au plasma de se dilater jusqu'au contact des parois physiques de la machine, et empêcher ainsi son refroidissement et sa pollution. Cependant, en courbant le champ magnétique on induit une dérive verticale des particules chargées vers la paroi. Dans un tokamak, ces dérives sont compensées par l'effet du champ créé par le courant dans le plasma lui-même, et par des bobines de compensation. On obtient ainsi des lignes de champ hélicoïdales comme le montre la **Fig. I.4**.



Figure I.4 Topologie torique des lignes magnétiques d'un tokamak

²TOKAMAK : Ce terme vient du russe « TOroïdalnaïa KAmera MAgnetnymi Katushkami».

Un anneau de plasma placé dans un champ magnétique *toroïdal* créé par un solénoïde replié est le plus simple des systèmes fermés. Le plasma est parcouru par un fort courant toroïdal obtenu par induction, l'anneau étant le secondaire à un tour d'un transformateur. Ce courant crée un champ magnétique *poloïdal* qui contribue à la formation de lignes de champ enroulées en hélice sur des tores emboîtés. Le plasma participe ainsi à son propre confinement. Dans une telle configuration, les dérives sont compensées et les particules confinées suivent les deux types de trajectoires. Le principe de fonctionnement du tokamak est illustré **Fig. I.5**.



Figure I.5 Schéma de principe de fonctionnement d'un tokamak

I.3.2 Projet ITER :

I.3.2.1 Évolution des machines de fusion :

Les premières mesures effectuées sur le tokamak russe montrèrent que la température électronique atteignait 1keV et un temps de confinement très supérieur à ceux obtenus sur les machines européennes et américaines. La publication de ces résultats provoqua un engouement mondial pour les tokamaks et des machines furent construites et testées aux USA, en Europe, en URSS et au Japon. Ainsi, grâce aux expériences de fusion par confinement magnétique réalisées sur Tokamaks, les instabilités macroscopiques du plasma, même dans le domaine non linéaire, sont maintenant bien maîtrisées et les performances de ces machines, mesurées par le triple produit $n \times \tau_E \times T$ et par la durée de décharge, ont toutes les deux fait des progrès remarquables.

La plus grande puissance fusion a été atteinte en 1997 pendant de courtes durées, sur le JET ³, exploité en Angleterre a réalisé plus de 16 MW de fusion en utilisant un mélange D/T **[2]**, et Tore Supra à Cadarache a démontré un fonctionnement stable pendant une durée supérieure à 5 minutes **[3]**. Une étape importante a aussi été franchie en technologie, avec l'utilisation de supraconducteurs à haut champ critique et de surfaces refroidies en continu face au plasma.

³ JET : Joint European Tokamak

On a atteint et même dépassé, dans plusieurs grands tokamaks (Jet et Tore Supra), les températures et les densités requises, mais il reste encore à améliorer la valeur du temps de confinement τ_E . Celuici croît rapidement avec la taille du plasma et la valeur du champ magnétique. On peut voir sur la **Fig. I.6** les progrès réalisés depuis plusieurs décennies.



Figure I.6 Evolution des performances du triple produit ($n \times \tau_E \times T$) dans les machines de Fusion (Document CEA)

I.3.2.2 Le réacteur ITER :

La communauté des chercheurs impliqués dans les études sur la fusion est maintenant prête à effectuer un pas supplémentaire. Il ne fait maintenant plus de doute que le principe de confinement en géométrie toroïdale doit permettre, si la taille est suffisante et sous réserve d'une technologie appropriée, à obtenir le gain d'énergie nécessaire au fonctionnement d'un réacteur. Toutes les expériences réalisées jusqu'ici, appuyées par les simulations, montrent que les réacteurs devront avoir une taille optimale pour produire l'électricité de façon efficace (augmenter le rapport volume/ surface du plasma confiné et limiter les pertes). C'est l'objectif principal d'ITER (*International Thermonuclear Experimental Reactor*) : produire simultanément une puissance fusion de 500 MW, un facteur d'amplification de 10 pour une décharge d'une durée de 1000 secondes. Le projet est né en Novembre 1985, l'Union Soviétique propose de construire la prochaine génération de Tokamak intégrant la collaboration de partenaires majeurs du programme : les Etats-Unis, l'Europe et le Japon. La première phase d'études et d'ingénierie d'ITER démarre en avril 1988 et s'achève en décembre 1990.



La phase suivante ou phase de coordination des activités techniques est achevé fin 2002. Elle a pour objectif de préparer les procédures nécessaires pour la construction et l'exploitation en commun d'ITER et du choix du site porté sur Cadarache. Les premiers plasmas d'ITER sont en cours, la phase d'exploitation devrait durer un minimum de 20 ans.

I.3.2.3 Description du projet :

ITER sera un Tokamak supraconducteur de taille sans précédent. L'utilisation d'aimants supraconducteurs permet l'accès aux décharges de longue durée. Le tableau ci-dessous décrit les principaux paramètres du projet, par comparaison aux autres machines.

Paramètres	Tore Supra	JET	ITER
Grand rayon du plasma (m)	2.25	3	6.21
Petit rayon du plasma (m)	0.7	1.25	2.0
Volume du plasma (m3)	25	155	837
Courant plasma (MA)	1.7	5-7	15
Champ magnétique (T)	4.5	3.4	5.3
Durée des impulsions (s)	120 s	10	> 300 s
Type de Plasma	D-D	D-D / D-T	D-T
Puissance thermonucléaire (Pth)	$\sim kW$	50kW/10MW	500 MW
Q = Pth / puissance de chauffage	~ 0	~1	>10
Puissance neutronique au bord	20 W/m ²	60 kW/m ²	0.57 MW/m ²

Tableau I.1 Comparatif des caractéristiques de Tore Supra, JET et ITES (Document CEA)

Les défis associés à la réussite du projet ITER sont à la fois de nature scientifique comme l'interaction plasma paroi, confinement du plasma, contrôle des phénomènes physiques comme les ELMs (*Edge localized mode*)..., et technique de construction et d'ingénieries. Le revêtement de la " première paroi " sera soumis à un flux de chaleur comparable à celui au niveau de la surface du soleil.

L'acier de la structure, d'une épaisseur de 45 cm, doit être adapté au flux de neutrons, c'est à dire être à " basse activation ", pour que la radioactivité secondaire induite par les collisions sur cette paroi soit de courte période, pour ne pas perdre l'avantage de non production directe de déchets radioactifs. Les gageures concernent essentiellement l'intégration des technologies, en provenance des laboratoires de recherche sur la fusion par confinement magnétique des quatre coins du monde.

La production d'énergie au sein d'ITER implique, selon le critère de Lawson (*Cf.* Chap. I.2), de porter les composants de la réaction (noyaux de deutérium et de tritium) à une température de plus de 100 millions de kelvins. Pour ce faire, des sources d'énergie auxiliaires (des systèmes de chauffage additionnel), sont installées en périphérie, comme l'injection d'atomes de deutérium à haute énergie au cœur du plasma chaud.

Le réacteur ITER sera équipé de deux faisceaux d'atomes neutres de deutérium, résultant de l'accélération d'ions négatifs D⁻ produits au sein de grandes sources d'ions. Le paragraphe suivant présente les différents mécanismes de chauffage du plasma.

En parallèle de l'aspect de recherche fondamentale bien balisé évoqué, ITER sera également, et même surtout, une machine de développement technologique vers la préparation active de la phase d'exploitation. La **Fig. I.7** schématise les principaux composants d'ITER.



Figure I.7 Les principaux composants d'ITER (Document CEA IRFM) (Le fluide calorifique est de l'eau à 400 °K)

I.4 Le chauffage du plasma :

Quelle que soit la façon dont on crée le plasma à l'intérieur d'une structure de confinement, il n'a jamais d'emblée la température requise pour les réactions de fusion. Le courant inductif circulant dans l'anneau de plasma du Tokamak (**Fig. I.5**) permet un préchauffage du plasma par effet Joule (appelé également chauffage par régime ohmique). C'est la méthode la plus simple et le premier mécanisme de chauffage du plasma. Il ne peut, à lui seul, porter le plasma à la température requise. Ce chauffage ohmique trouve toutefois son utilité pour amorcer le plasma, il permet l'ionisation du gaz et d'atteindre une intensité de courant circulant dans le plasma de 15 MA pour ITER **[4]**.

Effectivement, le plasma devenant moins collisionnel (le libre parcours moyen des particules du plasma devient du même ordre de grandeur que ses dimensions caractéristiques) avec l'élévation de température la résistivité du plasma devient trop faible, la température ionique sature au-delà d'une température de l'ordre de 10 millions de degrés (2keV), bien en dessous du seuil d'amorçage des réactions D-T (~ 10keV).



Figure I.8 Chauffages additionnels du plasma [4].

Pour atteindre son objectif (une puissance de chauffage externe de 50 MW), ITER doit introduire des systèmes de chauffage supplémentaires. Ils sont en mesure de coupler des dizaines de mégawatts de puissance au foyer thermonucléaire, le centre du plasma. Les deux méthodes principales envisagées pour chauffer le plasma jusqu'à la température d'ignition sont l'absorption résonnante d'ondes électromagnétiques dans le domaine de fréquences radio (RF) et l'injection d'un faisceau de particules neutres énergétiques.

I.4.1 Chauffage par ondes :

Le chauffage par ondes radiofréquences consiste à coupler au plasma une onde électromagnétique (EM). Le plasma peut absorber l'énergie d'ondes électromagnétiques aux fréquences caractéristiques du milieu, de manière à être en résonance : lorsque le champ électrique de l'onde est parallèle, en phase, et oscille à la fréquence de la particule le long de la ligne de champ magnétique.

Les particules du plasma sont alors accélérées dans la région de couplage et transmettent ensuite leur énergie cinétique au plasma par collisions successives. L'émission de l'onde EM est transmise au plasma par des antennes (ou guides d'ondes) radiofréquence qui revêtent en périphérie l'enceinte de confinement (*cf.* **Fig. I.6**). Il existe plusieurs types de chauffage RF, les trois principaux utilisent des ondes à la fréquence cyclotronique électronique (ω_{CE}), cyclotronique ionique (ω_{Ci}) et hybride inférieure (($\omega_{CE}.\omega_{Ci})^{1/2}$). Cette méthode est complémentaire à l'injection de neutres, qui reste le système le plus efficace [**5**].

I.4.2 Le chauffage par Injection De Neutres (IDN) :

I.4.2.1 Problématique IDN :

Le chauffage le plus couramment utilisé pour atteindre 10 keV est l'injection d'atomes neutres à haute énergie, dite injection de neutres (IDN), au œur du plasma. La méthode consiste à créer et accélérer un faisceau d'ions négatifs de deutérium (\overline{D}) à haute énergie (1MeV), en dehors de la machine de confinement. Ce faisceau est ensuite neutralisé avant de pénétrer dans la chambre du plasma. Ces atomes neutres sont insensibles au champ magnétique de confinement et pénètrent le plasma sans déflexion, quelles que soient les conditions physiques locales (densité et instabilités du plasma). Ces neutres sont ionisés sous l'effet de collisions, en majorité au œur du plasma, lieu du futur siège des réactions de fusion D-T. Les collisions de ces ions rapides, piégés le long des lignes de champ magnétique, aux particules du plasma redistribuent l'énergie et la température du plasma augmente.

ITER comportera initialement deux injecteurs de neutres (IDN) délivrant une puissance totale de 33 MW. L'injecteur de neutres d'ITER est un système de 15 m de longueur, 9 m de largeur et 5 m de hauteur, comportant deux faisceaux de puissance 17 MW d'atomes neutres de deutérium d'énergie 1 MeV. L'IDN est disposé (*Cf.* **Fig. I.6**) selon une ligne d'injection quasi-tangentielle au cercle intérieur du tore, de façon à traverser la plus grande distance possible à travers le plasma du réacteur. Il est composé de trois parties principales : une source d'ions, un accélérateur, et un neutraliseur.



Figure I.9 Schéma de la ligne d'injection de neutres d'ITER [4].

Les **Figs. I.9** et **I.10** résument le principe d'une ligne d'injection de neutres. Les ions négatifs sortant de la source (voir processus de création décrit en I.4.2.3) seront accélérés par un champ électrique entre la grille du plasma et l'accélérateur. La deuxième étape consiste à neutraliser le faisceau dans une cellule de gaz qui est aussi appelée 'Neutraliseur'. Après cette opération, il contient approximativement 60% de neutres D°, 20% d'ions négatifs D⁻, 20% d'ions positifs D⁺ et des électrons.

Les particules chargées sont interceptées par des plaques métalliques refroidies à l'eau, grâce à un déflecteur électrostatique puis, le faisceau de neutre résultant, passe à travers le champ magnétique du tokamak et rentre dans le plasma thermonucléaire en lui transférant son énergie par collisions.



Figure 1.10 Principe d'une ligne d'injection de neutres [4].

I.4.2.2 Les sources d'ions négatifs :

Jusqu'à maintenant, l'injection de neutres a toujours été réalisée à partir d'une source d'ions positifs. Or, le faisceau de 1MeV nécessaire pour ITER est impossible à réaliser avec ce type de source. À ce niveau d'énergie, le rendement de neutralisation par échange de charges d'ions D⁺ est quasi nul, alors qu'il reste élevé (~ 55% à 1MeV) pour des ions négatifs D⁻ (voir **Fig. I.11**) en raison de la faible énergie de liaison de l'électron à l'atome (~ 0,6eV).



Figure I.11 Efficacité du processus de neutralisation (en %) en fonction de l'énergie du faisceau [6].

La source d'ions négatifs est elle-même un plasma, mais dont les propriétés s'apparentent davantage à celles des plasmas dits « froids » ; ces derniers sont largement utilisés à diverses fins tels que les applications de traitements de surface en biomédecine, physique...

En raison de la conception et du mode de fonctionnement de ces sources de plasma (appelées : sources plasma multi-dipolaire, i.e. fort aimants permanents pour le couplage de résonance cyclotronique électronique, faible pression et densité électronique élevée), elles sont bien adaptées pour l'étude des mécanismes fondamentaux impliqués dans les sources d'ions négatifs utilisés dans les accélérateurs à fusion par confinement magnétique.

Dans ce type de plasma multi-dipolaire, les ions négatifs sont produits en volume, ainsi qu'en surface par bombardement des atomes et ions produits dans la source : l'ensemble des processus de formation seront détaillés au chapitre suivant. La température électronique dans cette région doit être faible (Te < 1eV), pour éviter un taux de destruction important des ions D^- (d'énergie de liaison ~ 0,6eV).

Dans la source ITER, un champ magnétique B transverse, de l'ordre de 5 mTesla, parallèle à la grille d'extraction, agit comme un filtre ralentisseur, ce qui augmente le temps de séjour des électrons dans le filtre, d'où une augmentation du nombre de collisions électron-neutre, donc des pertes d'énergie électronique, et une réduction significative de la température électronique.

L'utilisation des ions négatifs présente ainsi un grand intérêt pour la production d'un faisceau de neutres. Le succès des futurs réacteurs (ITER, DEMO⁴) repose en grande partie sur le développement d'un tel système de chauffage.

⁴ DEMO pour DEMOnstration

I.4.2.3 Mode de production des ions :

La source de neutre est un plasma froid, situé en dehors du tokamak, et dans lequel deux principaux types de processus de création ont lieu : en surface où l'attachement direct d'un électron à un atome au contact de la surface d'un matériau à faible travail de sortie et en volume dans le cœur du plasma **[7, 8,9]**.

• Dans les sources en volume, les ions négatifs sont créés par attachement dissociatif (*AD*) entre molécules vibrationnellement excitées et des électrons froids (<1eV).

$$H_2(v'', J'') + e_{Cold}^- \longrightarrow H^- + H$$
 (I.3)

Les ions négatifs créés en volume sont généralement à très basse énergie (Ti<<Te).

• La production en surface, par le bombardement de particules énergétiques, se fait en trois mécanismes :

4 La capture de deux électrons par un ion positif incident :

$$H_x^+ + surf \longrightarrow H^- + \dots$$
 (I.4)

🖊 La simple capture d'un électron par un atome énergétique incident :

$$H + surf \longrightarrow H^{-} + \dots \tag{I.5}$$

4 La pulvérisation d'un atome adsorbé sous forme d'un ion négatif :

$H + surf \longrightarrow H^{-}$	(I.6)
$H_x^+ + H_{ads} \longrightarrow H^- + \dots$	(I.7)

I.5 Présentation du travail :

L'étude du développement de sources d'ions négatifs est primordiale pour la mise au point de réacteur de fusion par confinement magnétique. Elle permet d'avoir une conception globale des problèmes. Les difficultés sont néanmoins largement compensées par les intérêts que cela apporte, c'est pourquoi nous nous y intéressons. Le travail sur de nouvelle source d'ions H⁻ nécessite la connaissance préalable des autres types de source (points forts, points faibles). L'étude de leurs caractéristiques permet de connaître les insuffisances de la source étudiée pour pouvoir prétendre aux mêmes performances. Cette recherche est une des préoccupations majeures de l'équipe PMN du laboratoire LPSC.

I.5.1 Aspect historique :

Les observations d'ions négatifs induits par faisceaux d'ions positifs sont nombreuses. Elles ont commencé durant une même période avec les travaux de Maazouz et al. **[10]** et Wurz et al. **[11]**. Le premier a montré une conversion de 1 à 6% du faisceau d'ions d'hydrogène en ions négatifs et ce, pour une énergie de 1keV et 4keV, en fonction de l'angle d'incidence avec la surface.

Dans **[11]** Wurz et al., les auteurs confirment l'observation d'un pourcentage de conversion de 5,5% pour l'hydrogène et de 29% pour la conversion d'oxygène.

Afin d'améliorer la densité du faisceau des neutres, Kraus **[12]** a ajouté de l'argon (20%) à l'hydrogène : une amélioration de plus de 30% dans la production d'ions négatifs a été observée. Hopkins **[13]** a confirmé l'effet de l'argon sur la production des ions négatifs, en appliquant un potentiel RF à la grille d'extraction (2 à 10 kHz), il a pu obtenir une augmentation conséquente, d'un facteur 4 sur les précédents résultats.

Afin de minimiser les pertes des ions négatifs (par neutralisation) dans les étages d'accélération, de nombreux travaux des mesures des ions négatifs dans différents types de plasma à basse pression ($P_{source} < 0,3$ Pa) ont été également faits (**[14, 15, 16]**).

Pour la source d'ions négatifs d'ITER, en plus de la condition de production d'un plasma à basse pression de deutérium (≤ 0.2 Pa), dense (0.5 m³ de volume plasma), homogène (la production de D⁻ doit être homogène à $\pm 10\%$ sur toute la surface d'extraction pour conserver une faible divergence du faisceau et une bonne transmission le long de la ligne), des résultats expérimentaux de production en surface ont montré une augmentation du rendement d'ions négatifs sur les surfaces couvertes de césium [17, 18, 19, 20].

La présence de césium favorise la libération d'électrons de la paroi suite à la rétro-diffusion d'impacts de H, H^+ , H_2^+ , H_3^+ **[21]**. En effet, lorsqu'une surface polarisée négativement est bombardée par les ions d'hydrogène du plasma à des énergies supérieures à 100 eV, une réflexion importante de ces ions se produit ainsi qu'une émission d'atomes d'hydrogène adsorbés. Une fraction de ces atomes pulvérisés et rétrodiffusés peut devenir des ions négatifs par un transfert de charge avec la surface. Cette fraction dépend fortement du travail de sortie du matériau : un faible travail de sortie amène à un rendement d'ions négatifs élevé.

Ainsi, dans les processus d'attachement en surface en raison de sa propriété de réduire le travail de sortie, le césium permet d'augmenter le rendement de production des ions négatifs. C'est la grille métallique, interface entre la source plasma et l'accélérateur, qui sera couverte de césium et soumise au bombardement des ions positifs. Toutefois, le césium peut échapper à la source d'ions et polluer la décharge et contaminer l'étage d'accélération du dispositif d'injection de neutres. Actuellement, un important effort de recherche **[22, 23]** est entrepris pour développer une source de production d'ions négatifs sans césium. Le graphite est un des plus prometteurs matériaux destinés à être utilisés comme matériaux de surface. En effet, il peut être source de production d'ions négatifs par bombardement d'ions positifs H⁺ **[24, 25, 26]**. D'un point de vue théorique, car au plasma d'hydrogène il y a une réaction chimique entre H et C pour donner des molécules CxHy.

I.5.2 Perspective :

À ce jour, aucune source d'ions négatifs ne rassemble les spécifications nécessaires au dispositif de chauffage du plasma de fusion d'ITER; elle est pourtant la clé de voûte des performances et de la fiabilité de l'ensemble du système.
Des sources prototypes à échelle réduite sont en cours d'étude dans divers laboratoires :

- En Italie, à Padoue (Consortium RFX) **[27]**, les deux bancs SPIDER, pour le développement et l'optimisation de la source d'ions négatifs et MITICA, qui permettra d'étudier et optimiser le système dans son ensemble (source, accélérateur, neutraliseur, etc.).

- en Allemagne, à l'IPP⁵ Garching **[21]**, on citera l'expérimentation sur la source RF, la source ELISE qu'on présente à la **Fig. I.12**.

- en France, les travaux du CEA et le CNRS, via la « Fédération de Recherche sur la Fusion par Confinement Magnétique » (FR-FCM), pour le développement des modèles physiques (plasma froid magnétisé de la source, de l'accélérateur et du neutraliseur), ou encore, l'étudie et l'exploration de nouveaux concepts sur la formation des ions négatifs sans l'utilisation de césium dans le plasma.



Figure I.12 Coupe verticale de la source d'ions développée à l'IPP Garching [21]

La recherche actuelle autour des systèmes d'injection de neutres ne se limite pas à ITER. Un réacteur de fusion (**DEMO**nstration fusion power plant) nécessitera des puissances de faisceaux de neutres D₀ de 27 MW avec des énergies d'injection de 0,8 MeV, et un fonctionnement de 7200s **[28]**. Le système IDN devra avoir un rendement très élevé ($P_{neutres}/P_{élect cons} > 60\%$) pour minimiser la puissance électrique consommée par la centrale **[29]**. La neutralisation s'opère actuellement par collision entre des particules chargées et atomes d'un gaz neutre.

⁵ IPP : Institut Max Planck de Physique des Plasmas

Ce principe du neutraliseur à gaz présente deux inconvénients, l'efficacité limitée de son processus de neutralisation (~55 %), et son faible rendement global de l'injecteur de neutres à (~ 30%).

Pour les futurs réacteurs ITER et DEMO, le développement actuel d'une méthode de neutralisation plus efficaces du faisceau, basée sur le photo-détachement par laser d'ions négatifs à haute énergie (pour DEMO, 2 MeV, 30 A), pourrait être une solution satisfaisante. Elle permettrait de s'affranchir de ces imperfections et d'améliorer le rendement des injecteurs de neutres, l'efficacité globale (chauffage IDN + RF) étant supérieure à 60 % **[30]**.

I.5.3 Articulation de la thèse :

Les processus en volume sont plus complexes car ils nécessitent le passage par plusieurs étapes successives, mais ce sont les types de production recherchés en priorité dans le cadre de ce travail puisqu'ils ne requièrent aucune utilisation de césium ou autres additifs.

Notamment, le mécanisme d'attachement dissociatif (AD) par collision entre une molécule d'hydrogène excitée et un électron froid, ce qui donne un ion négatif et un atome d'hydrogène :

$$H_2(v^*, J^*) + e^{-}(\text{froid}) \to H^- + H$$
(I.8)

Ainsi l'amélioration de la création des ions négatifs en volume, peut être le résultat de l'augmentation soit de $H_2(v^*, J^*)$, soit des électrons froids, soit des deux. La littérature montre que certains matériaux comme le tantale ou le tungstène, contribuent à la production de $H_2(v^*, J^*)$ [31].

Le travail exposé ici constitue une étape de ce long travail, il présente une vue d'ensemble des résultats fondamentaux obtenus à l'aide d'un réacteur plasma de petit volume. Il a été développé par le laboratoire LPSC dès 2012, pour des études fondamentales relatives à l'interaction plasma/surface sur les mécanismes de création, le taux de production d'ions négatifs H⁻ et leurs caractérisations (mesure de la densité absolue) par photo-détachement.

Ainsi, le chapitre II, commence par des notions fondamentales sur les plasmas. Il donne ensuite, les mécanismes de création et de pertes des ions négatifs, pour enfin, présenter les différents types de sources d'ions H⁻.

Le chapitre III expose les méthodes expérimentales employées dans ce travail. Il donne un bref historique et une description détaillée sur le réacteur utilisé "**ROSAE-III**". Le but de ce réacteur cylindrique de 152mm de diamètre, et 210mm de longueur, est d'évaluer le rôle des mécanismes de surface sur la production d'ions négatifs dans les plasmas ECR.

Ce chapitre présente le schéma de principe de la source puis expose une revue détaillée des outils de diagnostic installés, nécessaires pour les mesures sur les ions. Il est indispensable de connaître précisément les caractéristiques du plasma, et donc de mesurer certains paramètres importants, tels que la densité plasma, la température électronique et le potentiel plasma.

Ces données seront obtenues par différentes techniques, décrites dans ce même chapitre, comme :

- Les sondes électrostatiques de Langmuir, permettant de déterminer les différents paramètres du plasma (température électronique, densité électronique, potentiel plasma et potentiel flottant) ;
- La spectroscopie d'émission optique, dans le spectre visible et le VUV. Elle nous instruira sur la densité d'hydrogène atomique, l'énergie cinétique moyenne des atomes d'hydrogène, la distribution des premiers niveaux vibrationnels de la molécule H₂ ainsi que les états vibrationnels élevés par l'enregistrement de la bande Lyman ;
- La technique de photo-détachement laser, permet de déduire la densité absolue des ions H. La température des ions H est accessible par utilisation de deux pulses successifs à délais variables.

Avec l'ensemble de ces moyens, nous avons étudié les influences de nombreux paramètres (pression, puissance, matériaux...). La méthode d'analyse des résultats expérimentaux est également décrite dans ce chapitre.

La dernière partie du chapitre III, la section III.6, présente brièvement un second réacteur, développé également dans l'équipe PMN, il s'agit de la source "SCHEME-II" (cylindrique de 160mm de diamètre), exploitée lors d'une campagne d'expérimentation au Synchrotron Soleil (*CEA* - Plateau de Saclay) en 2017. Ce dernier, n'utilise pas de sources micro-ondes mais trois filaments en tungstène pour l'excitation du gaz. Le rayonnement VUV synchrotron est utilisé pour l'absorption et les mesures de fluorescence induite. Ce dispositif a été développé dans le but de mesurer les densités absolues des molécules vibrationnellement excitées, par LIF ou absorption. Elle est essentielle à la détermination de la contribution de chaque matériau dans le processus de désorption recombinative d'atomes en molécules ro-vibrationnel excitées.

Les résultats obtenus par le réacteur ROSAE-III sont présentés en chapitre IV, et corroborés par un modèle 1D. Ainsi, la section IV.3 présente ceux obtenus avec des parois en Pyrex TM. Les résultats des mesures avec de l'acier inoxydable sont exposés en section IV.4. En IV.5, une comparaison entre les deux couvertures de chambre est donnée. Enfin, en section IV.8, les résultats obtenus avec l'inox, le tungstène, le tantale et le HOPG sont présentés.

Les résultats obtenus avec la source SCHEME-II sont présentés en chapitre IV. Dans les sections IV.13 et IV.14, respectivement, la détection des atomes H, et la détection des molécules $H_2(p^*, J^*)$.

En chapitre V, une conclusion sur le travail de cette thèse et les principaux axes de développement, concernant une source étendue achèvent ce mémoire.

CHAPITRE II

NOTIONS FONDAMENTALES SUR LA PRODUCTION DES IONS NÉGATIFS

Ce chapitre est une brève présentation du contexte lié à ce travail. Seront abordées les notions théoriques nécessaires à l'analyse du sujet et à la compréhension des termes utilisés dans ce travail. Il est divisé en trois parties : la première partie sera dédiée à l'étude et la définition des paramètres importants comme : la température électronique, la densité électronique, le potentiel plasma, le potentiel flottant et la longueur de Debye.

La seconde décrit les processus impliqués dans la production et la destruction des ions négatifs, en volume et en surface. Ainsi, la densité des ions négatifs dans un plasma d'hydrogène est déterminée par l'équilibre entre formation et perte. L'évaluation de l'importance de ces processus est une partie importante de notre étude. Notamment, l'excitation vibratoire des molécules d'hydrogène.

La dernière partie se consacrera à une revue et une étude rapide sur l'élaboration de différentes sources d'ions H⁻ fonctionnant de par le monde.

Notions fondamentales sur les plasmas

II.1 Introduction :

Les plasmas, qui sont des gaz ionisés, se trouvent au cœur du fonctionnement d'ITER. Ces gaz qui évoluent en interaction permanente avec les champs électrique et magnétique, sont présents partout dans l'univers visible ainsi que dans notre vie quotidienne et ils manifestent des comportements extrêmement variés selon les milieux où on les observe. Leur étude a permis de dégager des lois et des concepts généraux qui constituent aujourd'hui une spécialité de la physique à part entière, autour de laquelle s'est développée une communauté de physiciens des plasmas regroupés en Réseau Plasmas Froids du CNRS et en fédération FR-FCM (Fédération de Recherche Fusion par Confinement Magnétique).

Les questions liées à la fusion magnétique participent à cet ensemble. Les observations expérimentales dans les machines qui ont précédé ITER (comme le français Tore Supra à Cadarache et l'européen JET en Angleterre) ont induit de nombreux progrès théoriques en physique des plasmas, et toutes les avancées théoriques dans ce domaine ont aidé aux progrès de ces machines.

II.2 Définition :

Un plasma est formé de particules chargées et de particules neutres. Avec cette définition, on comprend que 99% de l'univers soit constitué de plasmas. Sur terre, on peut en créer expérimentalement dans les laboratoires en ionisant un gaz, par apport de l'énergie afin d'arracher des électrons aux atomes (ou aux molécules) de gaz et ainsi obtenir un système d'ions, d'électrons et d'atomes neutres (ou de molécules).



Figure II.1 Evolution de l'état de la matière en fonction de l'énergie apportée

On dit également parfois que l'état plasma est le quatrième état de la matière. En effet, si on considère un corps à l'état solide, en le chauffant, ce corps devient tout d'abord liquide, puis se vaporise et passe à l'état gazeux, et enfin les atomes du gaz s'ionisent et on obtient l'état plasma.

L'énergie apportée au milieu gazeux afin d'induire l'ignition du plasma, est un champ électrique. Une fois les premiers électrons germes produits par les rayonnements cosmiques ionisants sont accélérés par ce champ, il s'en suit un mécanisme d'avalanche qui conduit à l'ionisation partielle ou totale du gaz et donc à la production du plasma. Cette ionisation du gaz produit une augmentation brutale et importante de la conductivité du gaz. Cette énergie assure ensuite le maintien de l'ionisation des atomes et molécules de gaz, qui se recombinent rapidement à l'intérieur du plasma et sur les parois.

II.3 Comportement du plasma :

Initialement, alors que la physique des plasmas était encore une science jeune, il était difficile de prévoir que des instabilités variées et des phénomènes de turbulence allaient se révéler un handicap majeur au confinement qu'on voulait imposer au plasma de fusion et compliquer ainsi la tâche des physiciens.

Aux échelles les plus grandes⁶, les plus faciles à décrire, le plasma se comporte de façon assez similaire aux gaz ordinaires, à l'exception, bien sûr, de sa réaction aux champs électromagnétiques. Mais il est également l'objet de mécanismes plus fins, qui prennent naissance à très petite échelle⁷ et dont on n'a su mener l'étude à bien qu'assez récemment, grâce en particulier à la simulation numérique. Celle-ci est en effet aujourd'hui une réalité familière mais elle n'a atteint la puissance de calcul suffisante qu'au cours de ces dernières années pour être capable de simuler un système ayant des échelles de grandeurs si différentes.

A ces échelles, contrairement à ce qu'on connaît avec les gaz habituels, le comportement collectif du plasma n'est pas déterminé par les collisions entre particules, et les notions habituelles telles que température et pression deviennent insuffisantes pour décrire l'évolution du milieu. La plupart de ces phénomènes sont maintenant analysés et compris en détail. Ces progrès ont d'ailleurs reposé sur les apports croisés entre ces différentes communautés de chercheurs, tant pour les connaissances que pour les techniques de modélisation. Les plasmas sont classés en fonction de leurs densités, leurs degrés d'ionisation et leurs températures.

II.4 Taux d'ionisation :

Les particules chargées jouent un rôle fondamental : ce sont les électrons à énergie suffisante (généralement >10eV), qui dissocient et ionisent les atomes ou molécules de gaz, pour former des radicaux et des ions. Un plasma est donc un ensemble de particules chargées et de particules neutres, qui bougent aléatoirement dans toutes les directions, et qui est globalement neutre.

⁶ Plusieurs centaines de kilomètres pour les plasmas naturels et quelques dizaines de centimètres pour les plasmas de laboratoires.

 $^{^7}$ de quelques mètres pour les plasmas naturels à quelques μm pour les plasmas artificiels.

Le comportement d'un plasma est totalement différent de celui d'un gaz (neutre) de par la nature des constituants : des particules chargées pour un plasma, des particules neutres pour un gaz.

Gaz	Plasma			
Dans un gaz les collisions binaires dominent. Les	Une particule chargée interagit avec beaucoup			
interactions entre les particules sont des interactions	d'autre, du fait des interactions coulombiennes.			
à courte portée (forces de Van der Waals), qui	En effet, la force de coulomb dérive d'un			
dérivent d'un potentiel en 1/r ⁷	potentiel en $1/r^2$,			
La portée p de ces interactions est très inférieure à	ainsi la portée des interactions est très			
la distance moyenne d entre particules : p«d	supérieure à la distance moyenne d entre			
	particules : p»d			
	Les effets collectifs dominent			

Tableau II.1 Comparaison entre un gaz neutre et un plasma

La conclusion qu'on peut tirer est que les effets qui régissent la physique des plasmas sont, en général, fondamentalement différents de ceux qui régissent les gaz.

On dit parfois qu'un plasma est un gaz ionisé et l'on définit alors le taux d'ionisation du plasma α par la relation :

$$\alpha = \frac{n_e}{n_e + n_0}$$
(II.1)

Où n_e représentent la densité électronique et n_0 la densité de neutres.

Selon le plasma, ce taux peut varier dans de grandes proportions : de 10^{-6} à 10^{-3} pour les plasmas faiblement ionisés et de 10^{-2} à 1 pour les plasmas fortement ionisés.

- Le plasma faiblement ionisé, ou « *plasma froid* » est créé au sein de réacteurs initialement remplis de gaz neutres à basse pression (~100 Pa) et alimentés par une source extérieure d'énergie. Ce plasma est un milieu hors équilibre thermodynamique où coexistent des électrons (~10³ K à 10⁴K), des ions et des neutres (~100 K). Il est très faiblement ionisé (10⁻⁷ à 10⁻² ions par espèce neutre) et donc constitué essentiellement d'atomes et de molécules neutres $n_e << n_o$.

- À l'opposé, un « *plasma chaud* » de fusion thermonucléaire est à l'équilibre thermodynamique et toutes les espèces sont à la même température : plusieurs dizaines de millions de degrés. Il est totalement ionisé. Le plasma se caractérise par le comportement collectif de ses composantes électriquement chargées, sous l'effet des forces d'interaction coulombiennes à longue portée.

II.5 Température électronique :

Dans l'étude des plasmas, on utilise constamment la notion de température électronique, de température ionique ou de température de neutres. Il est donc indispensable de connaître la signification physique de ces termes **[32]**.

Avant d'aborder le cas du plasma, on considère celui d'un gaz à l'équilibre thermodynamique : les particules constituantes se déplacent dans toutes les directions et la distribution la plus probable des vitesses est la distribution maxwellienne. Pour simplifier, on traite d'abord le cas où les particules bougent dans une seule direction.

La distribution maxwellienne à une seule dimension s'écrit :

$$f(u) = A \exp(-\frac{mu^2}{2k_B T})$$
(II.2)

Avec $\frac{1}{2}mu^2$: énergie cinétique des particules de vitesse u

 k_{B} : Constante de Boltzmann

f(u)du: représente le nombre de particules par m³ ayant une vitesse comprise entre $u \, \text{et} \, u + du$. Sur la fonction de distribution, on constate que la valeur moyenne de la vitesse est nulle, ce qui traduit en fait que les particules n'ont pas de vitesse dirigée.

La densité n, ou nombre de particules par m³, est obtenue en intégrant la fonction de distribution sur toutes les vitesses possibles :

$$n = \int_{-\infty}^{+\infty} f(u) du$$
 (II.3)

La constante A est reliée à la densité n par la relation suivante :

$$A = n \sqrt{\left(\frac{m}{2\pi \ k_B T}\right)} \tag{II.4}$$

La largeur de la fonction de distribution est liée au paramètre T, que nous appelons la température. Pour comprendre la signification exacte de T, on peut estimer l'énergie cinétique moyenne des particules avec une telle distribution :

$$E_{moy} = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{2} m u^2 f(u) du}{\int_{-\infty}^{+\infty} f(u) du}$$
(II.5)

On obtient alors la valeur de E_{mov} en fonction de T

$$E_{moy} = \frac{1}{2} k_B T \tag{II.6}$$

Ainsi l'énergie cinétique moyenne est égale à $\frac{1}{2}k_BT$ (dans un problème unidimensionnel). On définit alors la vitesse (d'agitation) thermique v_{th} par :

$$v_{th} = \sqrt{\frac{2k_BT}{m}}$$
(II.7)

Dans le cas général d'un problème tridimensionnel, la distribution maxwellienne s'écrit :

$$f(u, v, w) = A_3 \exp(-\frac{m(u^2 + v^2 + w^2)}{2k_B T})$$
 (II.8)

Avec $A_3 = n(\frac{m}{2\pi k_B T})^{\frac{3}{2}}$

L'énergie cinétique moyenne est alors égale à $\frac{3}{2}k_BT$.

Le résultat général est que l'énergie cinétique moyenne est égale à $\frac{1}{2}k_BT$ par degré de liberté. On

constate ainsi que T et E_{moy} sont liées.

Dans un plasma, les particules constituantes sont les électrons, les ions et les atomes (ou molécules) de gaz et on distingue généralement plusieurs températures. Dans les décharges à basse pression ($<10^{-1}$ torr) qui nous intéressent les électrons ne sont presque jamais en équilibre thermodynamique avec les ions et les atomes (ou molécules) du gaz, beaucoup plus lourds.

En effet, ces décharges sont alimentées par une source d'énergie électrique et la puissance appliquée chauffe essentiellement les électrons, beaucoup plus mobiles que les ions, qui eux échangent de l'énergie avec les atomes (ou molécules) de gaz. Les ions et les électrons ont donc des températures T_i et T_e différentes, avec T_e beaucoup plus élevée que T_i , qui est sensiblement égale à celle des neutres (300 K). Les ions et les électrons sont à l'équilibre thermodynamique ($T_i = T_e$) uniquement dans les plasmas de fusion et les plasmas interstellaires, et parfois dans les torches à plasma, dits plasmas thermiques.

En physique des plasmas, on exprime très fréquemment les températures en unités d'énergie. Pour convertir un électron-volt en Kelvin, on utilise, par convention, la valeur de k_BT (plutôt

que $\frac{3}{2}k_BT$). Ainsi le facteur de conversion est égal à 1 eV= 11600 K.

Quand on parle, par exemple, d'une température électronique de 2eV, ceci signifie que $k_BT = 2 \text{ eV}$ et que $E_{moy} = 3 \text{ eV}$ (dans un problème 3D). Typiquement, la température électronique d'un plasma basse pression est comprise entre 2 et 5eV.

II.6 Longueur de debye :

Nous avons rappelé précédemment que, dans un plasma, les interactions collectives dominent. Mais les forces s'exerçant entre les particules chargées du plasma ne dérivent pas strictement du potentiel coulombien. En effet, on montre que la répartition de potentiel autour d'une charge q_0 dans un plasma est donnée par résolution d'équation de Poisson :

$$V(r) = \frac{q_0}{r} \exp(-\frac{r}{\lambda_D})$$
(II.9)

Avec λ_D : la longueur de Debye

L'expression de λ_D est la suivante :

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\varepsilon_0 k_B T_e}{n_e e^2}}$$
(II.10)

Avec T_e : température électronique,

 n_e : densité électronique,

 k_B : constante de Boltzmann.

On peut interpréter ce potentiel de la manière suivante : la particule de charge q_0 perturbe le plasma globalement neutre. Des particules de charges opposées à q_0 sont alors attirées vers la charge et forment un écran autour de celle-ci, de façon à assurer l'équilibre du plasma. Ainsi sur une épaisseur de quelques λ_D autour de la charge q_0 (sphère de Debye), l'électro neutralité n'est plus respectée. Elle l'est par contre à l'extérieur de cette sphère, ou les effets collectifs dominent.

Une première conséquence de ce potentiel « écranté » est que les dimensions d'une enceinte à plasma doivent être bien plus grandes que la longueur de Debye λ_D . Ceci est toujours vérifié dans les plasmas denses de laboratoire, pour lesquels λ_D est de l'ordre du millimètre.

Par exemple, pour un plasma de densité 10^{10} cm⁻³ et de température électronique 3eV, la longueur de Debye est égale à 130 µm.

II.7 La gaine :

Les plasmas de décharge sont par définition créés dans des enceintes fermées. Les parois du réacteur représentent donc des surfaces, qui sont en contact avec le milieu plasma. Il existe entre le plasma, milieu globalement neutre $(n_i = n_e = n_0)$, et les parois, une distribution de charges et de potentiel représenté dans le schéma suivant.



Figure II.2 Variations radiales des potentiels et de la densité dans un réacteur plasma.

On observe une région où il y a rupture de la neutralité, que l'on appelle gaine. La charge d'espace est positive dans le cas d'une surface ayant un potentiel inférieur au potentiel plasma. Cette zone assure la continuité du potentiel électrique et de la densité entre le plasma et la surface.

La différence de potentiel dans la gaine repousse les électrons les moins énergétiques et attirent les ions de manière à égaler les flux globaux d'ions et d'électrons aux parois. Ainsi le cœur du plasma reste globalement neutre (**Fig. II.2**).

Cette zone découle du fait de la différence de mobilité entre les électrons et les ions. Cette différence de mobilité entraîne une perte initiale des électrons plus grande que celle des ions au niveau de la paroi. Ainsi le plasma se charge à un potentiel plus élevé que les parois (le potentiel plasma), créant ainsi une zone où l'électroneutralité n'est plus respectée et où il y a séparation des charges positives et négatives aux abords des parois qu'on nommera la gaine.

II.7.1 Le potentiel plasma V_p :

Un plasma de laboratoire est un milieu qui est à un potentiel positif V_p par rapport à la masse, qui est en général l'enceinte du réacteur. En effet, les électrons, dont la mobilité est beaucoup plus élevée que celle des ions, ont tendance à partir sur les parois. C'est pour limiter les pertes en électrons que le potentiel plasma V_p est supérieur au potentiel des parois du réacteur.

II.7.2 Le potentiel flottant Vf:

Dans le cas où la surface est isolée électriquement, elle se charge à un potentiel négatif par rapport au plasma, potentiel que l'on appelle le potentiel flottant. La différence entre le potentiel flottant et le potentiel plasma est telle que les flux d'électrons et d'ions soient égaux.

Le potentiel flottant V_f est le potentiel que prend un corps isolé dans le plasma. Il correspond à l'égalité du flux d'ions positifs et du flux d'électrons collectés par la sonde. Ce potentiel est inférieur au potentiel plasma V_p pour attirer les ions et repousser les électrons de plus forte mobilité.

En effet, l'enceinte du réacteur est généralement reliée à la terre par le système de pompage et sert de référence des potentiels (V=0), tandis que le milieu plasma est un potentiel V_p positif (appelé potentiel plasma) par rapport à cette référence. V_p est toujours supérieur au potentiel des parois, car cela permet de confiner la majorité des électrons à l'intérieur du réacteur.

La gaine permet donc de conserver l'état plasma en maintenant des électrons dans le réacteur, mais elle assure aussi des flux égaux d'ions et d'électrons sur les parois.

Les sources d'ions négatifs

Un ion négatif est un atome neutre avec un électron supplémentaire dans le nuage électronique. Ses applications sont nombreuses dans différentes branches de la physique, particulièrement dans les sources d'ions dans le cadre de l'injection des neutres pour la fusion magnétique. Ceci nous mène à présenter les processus fondamentaux de créations et de pertes des ions négatifs. Nous verrons ensuite comment ont été conçues les différentes sources d'ions négatifs à partir de ces différents processus.

II.8 L'ion négatif :

D'un point de vue fondamental, les ions négatifs sont intéressants : dans de tels systèmes, faiblement liés, les interactions inter-électroniques jouent un rôle essentiel pour la stabilité du système. Les lois de l'électrostatique prévoient que l'attraction entre une particule chargée et une particule neutre est nulle. L'existence des ions négatifs parait donc improbable. L'ion H⁻, particulièrement, constitue l'un des systèmes des plus intéressants dans lequel la corrélation électronique est forte et cruciale pour son existence. L'existence de l'ion H⁻ dans son état 1s2 lié et stable n'a été démontré théoriquement qu'en 1929 par Bethe **[33]**.

Pour expliquer l'existence des ions négatifs, il faut considérer l'atome comme une particule composite constituée d'un noyau chargé positivement et d'un nuage électronique. Plusieurs études théoriques et expérimentales sur les sections efficaces de photo-détachement (taux d'électrons libérés en fonction de l'énergie du photon absorbé) de l'ion H⁻ ont été conduites par Bryant et al. **[34]**.

Lors de la formation d'un ion négatif, l'électron libre se rapprochant de l'atome interagit avec le nuage électronique entraînant la polarisation de l'édifice atomique, il y a induction d'un dipôle électrique. Le potentiel d'interaction généré par ce dipôle induit est responsable de la force qui lie l'électron libre à l'atome formant ainsi l'ion négatif. De la sorte, pour former un ion négatif H⁻, un électron présent dans le métal de la surface de la paroi du réacteur va devoir passer des bandes de conduction du métal à un niveau d'énergie de l'atome d'hydrogène.

Il s'agit là de l'une des importantes propriétés physiques qui peut être déterminée par ce type de mesures, appelé niveau d'affinité électronique (AE). Elle est proche de $E_a = 0,754 \text{ eV}$ pour l'anion H⁻[35].

L'affinité électronique est le paramètre caractéristique d'un atome neutre pour décrire la facilité avec laquelle il peut former un ion négatif. Par définition, il s'agit de la différence entre l'énergie de l'état fondamental de l'atome ou de la molécule neutre et de l'énergie de celui de l'ion négatif. L'affinité électronique doit être positive. L'électron doit traverser la barrière de potentiel :

 $\emptyset - E_a. \tag{II.11}$

La grandeur \emptyset est appelée travail de sortie. Elle varie typiquement autour 4-5 eV selon les métaux. Elle est égale à :

$$\emptyset = E_t - E_F \tag{II.12}$$

 E_F est appelée niveau de Fermi (valeur limite E des niveaux d'énergie du métal) et E_t est la barrière de potentiel que doit franchir l'électron pour quitter l'intérieur du métal.



Les ions négatifs peuvent se former, si les conditions physiques sont convenables, soit dans un milieu riche en électrons lents soit par échange de charge lors des collisions entre ion-atome, ion molécule ou ion-ion. On rappellera ici les principaux processus de formation des ions négatifs H⁻.

II.9 Mécanismes de production des faisceaux d'ions négatifs :

Ils existent, tel que mentionné en introduction (cf. paragraphe I.4.2), deux principaux mécanismes pour produire des faisceaux intenses d'ions négatifs H ou D :

- Le mécanisme appelé "production en surface", réalisé en 1972 par Y.Belchenko. Il réussit à former des ions négatifs, par le transfert direct d'électrons, d'une surface métallique en envoyant un flux d'atomes ou d'ions positifs sur ce métal **[36, 37]**.

- Une autre approche, décrite par M. Bacal en 1977, permet de produire des ions négatifs dans un plasma. Ils se forment via des processus collisionnels entre des électrons froids et des molécules excitées **[38]**, par le mécanisme d'attachement dissociatif (AD). C'est la "production en volume".

Nous allons étudier plus précisément ces deux derniers modes de production puis nous verrons ensuite quels sont les mécanismes de destruction des ions négatifs.

II.9.1 La production en surface :

Les processus pour la formation de l'ion H^{-} sur une surface métallique sont : i) la capture d'un électron par un atome d'hydrogène ; ii) la double capture, par un ion H_{x}^{+} frappant la surface,

de deux électrons, ou par pulvérisation d'un atome adsorbé sous forme d'un ion négatif (*cf.* mécanismes cité I.4 à I.7). Ils ont été observés dès 1931 **[39]**, et de nombreux travaux théoriques et expérimentaux ont été réalisés afin d'expliquer la production en surface de H⁻.

Les ions positifs peuvent être neutralisés au voisinage de la surface à travers un processus de neutralisation résonnante dans un état excité, suivi d'une désexcitation Auger vers l'état fondamental. Les atomes arrivant sur le métal peuvent ainsi être implantés dans la surface ou réfléchis dans une autre direction. Le flux incident peut également libérer par "sputtering" l'hydrogène adsorbé par le métal. Une fraction des atomes quittant la surface pourra être chargée négativement grâce à un échange de charge résonnant avec le métal. Ce processus d'ionisation est illustré par la figure suivante, elle présente le diagramme d'énergie du métal ainsi que celui d'un atome d'hydrogène statique devant celui-ci :



Figure II.4 Modification du niveau d'affinité électronique d'un ion H^{-} devant un métal [40]

Pour former un ion négatif H⁻, un électron va devoir passer des bandes de conduction du métal au niveau d'affinité de l'énergie de l'atome d'hydrogène (E_a = 0.754 eV), tandis que ceux des métaux communs utilisés dans les sources de plasma (acier inoxydable, cuivre, aluminium, etc.) dépassent 4 eV. Afin de comprendre ce mécanisme, examinons d'abord la physique des électrons du métal. Ils sont régis par la statistique de Fermi-Dirac et peuplent les niveaux d'énergie du métal jusqu'à une valeur limite $E = E_F$ appelée niveau de Fermi.

Plus précisément, les électrons s'organisent, en raison des corrélations coulombiennes (répulsions électrostatiques) et des corrélations de Pauli (principe d'exclusion de Pauli), de manière à minimiser le recouvrement de leurs fonctions d'onde. Plusieurs méthodes expérimentales pour la production des ions négatifs en surface ont été étudiées par Kawano et al. **[41, 42, 43]**.

Quand un électron quitte le métal, il apparaît une charge positive image qui exerce une force de rappel. Il existe donc une barrière de potentiel E_t que doit franchir l'électron pour quitter l'intérieur du métal. Par conséquent, il faut fournir une énergie minimale (travail de sortie) $\emptyset = E_t$ - E_F pour extraire un électron du métal vers l'infini. Les métaux contiennent une quantité abondante d'électrons faiblement liés (électrons de conduction). Une énergie entre 4,5 à 6 *eV*est suffisante pour arracher un électron de la surface.

Pour former l'ion H, l'électron doit traverser la barrière de potentiel Ø - Ea. Il faut donc réduire cette valeur le plus possible afin d'avoir une chance de produire des ions négatifs. Une méthode consiste à déposer sur le métal des atomes à faible travail de sortie. Le travail d'extraction pour les métaux alcalins oscille entre 2 à 3 eV. En couvrant ainsi la surface d'un métal par une monocouche d'atomes alcalin, une redistribution de la densité d'électrons à la surface provoque ainsi une baisse de ce dernier. Le césium est souvent utilisé dans les sources d'ions négatifs pour augmenter leur rendement⁸ (cf. réaction I.8) [44,45]. De plus, l'interaction attractive entre l'ion négatif et sa charge positive image dans le métal provoque un déplacement du niveau d'affinité vers le niveau de Fermi. Ainsi, pour de très faibles distances atome-métal, le niveau d'affinité peut même descendre en dessous du niveau de Fermi. L'interaction entre les différents niveaux d'énergie entraîne un élargissement du niveau d'affinité et permet ainsi le passage d'un électron du métal à l'atome d'hydrogène pour former un ion H. On dit aussi qu'il y a échange de charge résonnant. L'électron va osciller entre le métal et l'atome jusqu'à ce que l'atome soit suffisamment loin pour qu'il n'existe plus aucune interaction avec le métal. Il existe donc une certaine probabilité pour qu'un ion H stable soit formé dans cette opération. Néanmoins, ce type de production présente quelques inconvénients, on notera :

- la divergence du faisceau extrait qui reste très élevée, pour cause de forte énergie efficace des ions négatifs⁹,
- la pollution des grilles d'extraction (qui nécessite des procédures de nettoyage),
- le moyen d'une couverture efficace de la surface du convertisseur [46],
- le césium peut polluer les étages d'accélération et y provoque des claquages électriques [46],
- et surtout, la contamination des parois du tokamak par l'utilisation du césium, ce qui pourrait causer des problèmes de tenue à haute tension **[46]**,

Ce qui fait que, depuis les années 80, des recherches ont été menées sur la substitution du césium par le baryum **[47]**, le carbone (C) **[48, 49]**, le graphite pyrolytique hautement orienté (HOPG) et le diamant dopé au bore (BDD) **[50]**. Mais les résultats prometteurs obtenus sur de petites sources prototypes de production en volume **[51]**, font que les recherches se sont orientées vers les sources en volume.

Dans le cadre de ce travail, les plasmas sont générés en hydrogène pur et les parois sont fabriquées à partir de matériaux classiques (acier inoxydable, pyrex, etc.) avec des fonctions de travail relativement élevées. Par conséquent, le processus de production directe de surface n'est pas abordé.

⁸ Sur la base de ce mécanisme, de nombreuses sources ont été développées pour les applications de fusion.

⁹ Ce qui nécessite une consommation de Cs importante (0,16 g/h prévue pour ITER).

II.9.2 La production en volume :

Dans le cas d'une production en volume, le processus de création des ions H, est liée à l'existence de molécules d'hydrogène excitées ro-vibrationnellement $H_2(v^*, J^*)$. Ce processus est plus complexe car il nécessite plusieurs étapes successives.

Toutefois, c'est cette voie de production que j'ai étudié dans le cadre de ce travail car elle ne requièrt aucune utilisation de césium. Si différentes expériences dés 1953 ont montré qu'il était possible d'extraire des ions négatifs d'un plasma d'hydrogène **[52, 53]**, les mécanismes de créations restaient à découvrir.

Ce n'est qu'en 1975, que Kuchinskii **[54]** imagina que les ions négatifs pouvaient être créés à partir de l'attachement dissociatif d'un électron sur des molécules H_2 vibrationnellement excitées : lorsqu'un électron froid entre en collision avec une molécule excitée à un niveau vibrationnel élevé, celle-ci se dissocie en attachant un électron, alors, il y a formation d'un ion H⁻ et d'un atome d'hydrogène (réaction I.3).

En 1980, M. Bacal, en utilisant la technique de diagnostic photodétachement, mesura la densité d'ions négatifs dans le volume de la source « Camembert » ainsi que la population de molécules excitées **[55]**. En combinant ces mesures expérimentales aux résultats théoriques, il a été démontré que les ions H⁻ provenaient essentiellement de cette réaction d'attachement dissociatif (AD). Wadehra et Bardsley **[56, 57]** calculèrent la section efficace de cette réaction ; ces calculs seront confirmés par l'expérience d'Allan et Wong **[58]**.

Ce phénomène d'attachement dissociatif dépend de la température des électrons. Il demande des conditions très particulières : à la fois, la présence d'électrons froids et d'électrons chauds. Ces derniers ne doivent cependant ne pas avoir une énergie trop importante car ils favoriseraient alors des processus de destruction. Il ressort de la courbe des taux de réactions (**Fig. II.5**), qu'une énergie autour de 1 eV est idéale sachant que le détachement électronique représenté par un trait fin est quasiment négligeable pour des électrons de cette énergie.



Figure II.5 Taux de réactions de l'attachement dissociatif AD (gras) et du détachement d'électrons (trait fin).

Dans le mécanisme de l'attachement dissociatif, la production d'ions H⁻se fait en deux temps, car au préalable la présence de molécules excitées dans leur niveau vibrationnel de l'état fondamental électronique est nécessaire. L'électron incident est temporairement capturé dans le voisinage de la molécule H₂, formant un ion négatif H₂⁻ temporaire. La décomposition de cet ion peut conduire à l'AD avec formation d'un ion négatif et d'un atome neutre :

$$H_2 + e^- \rightarrow H_2^- \rightarrow H^- + H$$
 (II.13)

Ou à l'auto-détachement avec la possibilité de changer l'état vibratoire de la molécule (processus eV, cité ci-dessous :

$$H_2(v'') + e \rightarrow H_2 \rightarrow H_2(v'' + \Delta v'')$$
(II.14)

Les travaux théoriques [59, 60] et expérimentaux [61] montrent que la section efficace d'attachement dissociatif est plus importante sur des molécules ro-vibrationnelles excitées à v > 5 et, en même temps, le seuil d'énergie du procédé est réduit. La Fig. II.6 donne les valeurs de la section efficace pour la dépendance de l'état de vibrationnel et rotationnel des molécules.



Figure II.6 État de la section efficace d'attachement dissociatif AD. Les valeurs de seuils énergétiques et les sommets de la section efficace sont issues **[60]**.

On explique l'amélioration de la section efficace d'attachement dissociatif à des états rovibrationnels élevés, par un accroissement dans la gamme des séparations internucléaires sur lesquelles la capture d'électrons peut se produire lorsque la molécule est excitée intérieurement [61]. Cette plage est augmentée en raison d'une amplitude vibratoire accrue pour l'excitation vibrationnelle ou du fait de tension par force centrifuge pour l'excitation rotationnelle.

Il est intéressant de noter que le taux d'attachement semble dépendre de l'énergie interne totale et pas tellement du partage spécifique entre les modes vibrationnel et rotationnel **[62]**. En raison de la plus grande séparation énergétique des niveaux vibrationnels, l'excitation rotationnelle peut jouer un rôle important seulement si la molécule est excitée par vibration.

Les taux de réaction de l'AD (pour une température électronique de 1 eV) sont présentés à la **Fig. II.7 [63]**. Le taux maximal est proche de 10^{-8} cm³s⁻¹ et correspond à une énergie interne de 4 eV. Au-dessus de cette énergie, le processus d'attachement devient exo-énergétique. Une augmentation supplémentaire de l'énergie interne, n'a pas d'effet bénéfique pour le taux de réaction de l'AD.



Figure II.7. Taux d'attachement dissociatif d'électrons, à des niveaux de rotation v = 0, 2 et 4 et à température électronique de 1 eV. La ligne verticale à 3,994 eV définit l'énergie interne au-dessus de laquelle le processus d'attachement devient exoénergique [63].

Plusieurs autres modèles **[63, 64]** montrent également que l'amplitude de la section efficace d'attachement dissociatif AD dans la gamme de faible énergie augmente rapidement avec l'augmentation du nombre quantique vibratoire de la molécule cible (AD augmente de près de cinq ordres de grandeur de v'' = 0 à v'' = 8-9).

Dans les plasmas à basse pression (cas de nos travaux), la distribution d'énergie est plus complexe. Les collisions entre molécules et électrons chauds, jouent un rôle important dans la production des états ro-vibrationnels **[65]**. Ainsi, dans les plasmas étudiés, la cinétique vibrationnelle joue le rôle le plus important.

En raison de la sensibilité de l'AD sur l'énergie interne des molécules, d'autres mécanismes de production d'ions négatifs ont également été proposés (ex. états métastables de H_2 (C³ Π_u) et aux états moléculaires de Rydberg). Cependant, en production en volume, bien que l'importance de ces mécanismes supplémentaires soit définitivement discutée, la prédominance de l'affinité dissociative (AD) sur les molécules excitées vibrationnellement à l'état fondamental semble incontestable. Un effort important de diagnostic mené par Mosbach [66] a permis la comparaison de la densité de H⁻ mesurée par photodétachement laser¹⁰ à celle calculée à partir du spectre des niveaux vibrationnellements excités des molécules d'hydrogène mesurées par fluorescence induite par laser (LIF)¹¹.

^{10, 11} Techniques décrites au chapitre III.

Ainsi, plusieurs processus peuvent engendrer les molécules vibrationnellement excitées, qui sont susceptibles de favoriser le mécanisme de l'attachement dissociatif, en ce qui suit, nous citerons :

II.9.2.1 Les processus E-V :

Ils se produisent en présence d'électrons dits "chauds". En effet ils peuvent amener les molécules par collisions inélastiques à des niveaux d'excitations suffisamment élevés pour donner naissance au processus d'attachement dissociatif. Dans ce type de réaction, un électron énergétique excite la molécule d'hydrogène en la faisant passer de son état fondamental vers un état singulet (spin nul) électronique supérieur. Puis, par désexcitation radiative, cette molécule revient vers son état fondamental électronique dans un niveau vibrationnel plus grand que celui qu'elle avait au départ. Le processus en question est le suivant :

$$e^{-} + H_2(X'\Sigma_g^+, v''=0) \rightarrow e^{-} + H_2(B'\Sigma_U^+, C'\Pi_U, ...) \rightarrow e^{-} + H_2(X'\Sigma_g^+, v''>0) + hv$$
 (II.15)

II.9.2.2 Les processus e-V :

Ce processus, moins efficace que le premier, permet d'obtenir des molécules vibrationnellement excitées par l'interaction d'un électron froid (~ eV) avec une molécule d'hydrogène en l'excitant vers des niveaux vibrationnels supérieurs.

$$e_{froid} + H_2(v_1) \rightarrow e + H_2(v_2 > v_1)$$
(II.16)

Les niveaux vibrationnels de plus en plus élevés sont peuplés ainsi niveaux par niveaux. Toutefois, un transfert d'énergie vibrationnelle de la molécule à l'électron est possible.

II.9.2.3 Les processus V-V :

Les processus (V-V) (vibration-vibration) sont des processus d'excitation par transfert de vibration. Autrement dit, une molécule ayant une excitation vibrationnelle la moins élevée va transmettre de l'énergie à une autre molécule plus excitée. Ce processus est plus favorable que la réaction inverse car elle est exothermique.

$$H_2(v'') + H_2(v') \to H_2(v''-1) + H_2(v'+1) + \Delta E \text{ avec } v' > v''$$
(II.17)

II.9.2.4 Les processus de désorption recombinative :

Les autres processus pouvant donner des molécules d'hydrogène excitées sont les réactions de recombinaison des différentes particules du plasma avec les parois.

$$H + H(adsorbé par la paroi) \rightarrow H_2(v'')$$

$$H_2^+ + e(parois) \rightarrow 2H \rightarrow H_2(v'')$$

$$H_3^+ + e(parois) \rightarrow H_2(v'') + H$$
(II.18)

N.B : Il existe d'autre processus produisant les ions H, par recombinaison dissociative ou dissociation polaire, mais ils sont beaucoup plus marginaux.

Cependant, il y a un autre facteur important qui affecte le mécanisme d'attachement dissociatif, la température des électrons. Ce paramètre devient évident quand on examine la courbe de la **Fig. II.6** qui présente la variation de la section efficace en fonction de l'énergie des électrons : on y constate une diminution exponentielle de σ_{max} en fonction de T_e. Ce comportement est lié au processus de capture d'électrons par la molécule, un mécanisme en deux étapes, comme on l'a déjà souligné, par la formation d'ions négatifs temporaires. Pour former cet ion temporaire, l'électron incident est principalement capturé par une séparation internucléaire où la différence entre les courbes potentielles de H₂ et H₂⁻ est égale à l'énergie des électrons **[62]**. Pour les électrons à haute énergie, cela se produit à des valeurs plus infimes, ce qui implique une probabilité d'auto-détachement plus élevée.

Pour résumer la théorie présentée jusqu'à présent, la production des ions négatifs exige des molécules excitées à des niveaux vibrationnels élevés et des électrons à basse température. Si on étudie la vitesse de réaction, pour chaque niveau vibrationnel, en fonction de la température des électrons, on observe l'existence de deux tendances différentes. Pour des niveaux vibrationnels élevés ($v "\geq 9$), la vitesse de réaction diminue de façon continue, alors que pour les niveaux inférieurs (v "<6), elle augmente pour enfin se saturer à partir d'une température égale à 1 eV. Ce qui suggère que pour une meilleure efficacité, et un taux de réaction élevé, la température électronique devrait avoisiner 1eV, avec des niveaux ro-vibrationnels ($v "\geq 5$).

La Fig. II.8 présente en (a) les variations des taux de réaction de l'AD en fonction de la température électronique et en (b), en supposant des vibrations en distribution maxwellienne, elle indique les coefficients du taux de réaction de l'AD pour différentes températures vibratoires.



Figure II.8. Variations du taux de réaction de l'AD en fonction de la température électronique, pour différents états vibrationnels en a), et en fonction de la température électronique, pour différentes T_{vib} en b).

II.10 Processus de pertes :

On citera ici les deux processus participant aux pertes :

1. La première cause est celle de la réduction de la densité de molécules d'hydrogène dans l'état vibrationnel par désexcitation sur la paroi du réacteur.

2. L'électron supplémentaire faiblement lié à l'atome pour former l'ions négatifs H⁻, il pourra être détruit également par plusieurs processus : la neutralisation mutuelle dans les collisions avec les ions positifs, le détachement des électrons dans les collisions avec les particules neutres et le détachement des électrons dans les collisions avec les électrons.

II.10.1 Processus réduisant la densité de molécules excitées :

Les parois sont le siège de création de molécules d'hydrogène dans l'état vibrationnel excité par désorption recombinative mais aussi celui de leur désexcitation.

II.10.1.1 Les processus V-T :

Les processus (V-T ou V-t) (vibration-translation) sont des processus de désexcitation moléculaire par transfert de mode.

$H_2(v'') + H \longrightarrow H_2(v' < v'') + H$	(II.19)
$H_2(v'') + H_2(v') \rightarrow H_2(v''-1) + H_2(v')$	(II.20)

II.10.1.2 Processus par dissociation et ionisation :

Les électrons chauds d'une température électronique (Te \geq 20 eV), contribuent à la destruction des molécules ro-vibrationnellement excitées par dissociation.

II.10.2 Les processus de destruction des ions H⁻ :

II.10.2.1 Les processus de Neutralisation Mutuelle (NM):

Le processus le plus important est probablement celui de recombinaison ion-ion appelé aussi neutralisation mutuelle. Il est important dans le sens où le coefficient de réaction est le plus important parmi tous les autres processus.

$$H^{-} + H^{+} \rightarrow H + H(n=2)$$
(II.21)
$$H^{-} + H^{+} \rightarrow H + H(n=3)$$
(II.22)

Dans les plasmas à basse température où les températures des espèces lourdes sont de l'ordre de ~ 0,1 eV, la neutralisation mutuelle (NM) a des sections efficaces élevées. Pour des énergies inférieures à 0,1 eV, la section efficace de NM à partir d'ions positifs atomiques (H⁺) atteint des valeurs supérieures à 10^{-13} cm², tandis que celles des ions positifs (H₂⁺,H₃⁺) sont d'environ un ordre de grandeur supérieur **[67, 68]**. La section efficace de ces deux réactions citées (II.21 et II.22) est présentée dans la **Fig. II.9a**.



Figure II.9a. La variation de la section efficace de collision pour le mécanisme de perte d'ions négatifs H^{-} par neutralisation mutuelle avec un atome positif Ions H⁺[69].

II.10.2.2 Détachement associatif :

Dans la gamme de faible énergie, les pertes d'ions négatifs par les neutres sont dominées par le détachement associatif (DA). Il s'agit du processus inverse à la création d'ions H⁻ par attachement dissociatif (réaction I.3).

$$H + H \rightarrow e + H_2$$
 (II.23)

II.10.2.3 Détachement direct :

Ce processus de détachement par les atomes et les molécules devient important pour des énergies de collisions inter espèces supérieures à 10eV. Le décollement d'électrons dépend de l'énergie des électrons, mais sa section efficace ne dépasse pas 4×10^{-15} cm². La **Fig. II.9b** mentionne les valeurs des sections efficaces pour les trois mécanismes (DA, DNA et DM) de perte des ions H⁻. Malgré une forte proportion d'atomes, ce processus reste marginal.



Figure II.9b. La variation de la section efficace pour le mécanisme de perte d'ions négatifs H^- par collision avec les neutres : par détachement associative DA, détachement non associative DNA et détachement par les molécules DM [69].

II.10.2.4 Détachement direct par électrons (E-D) :

Ce processus compte beaucoup dans la destruction des ions H⁻, il bénéficie du précédent effet de masse (la densité atomique peut avoir jusqu'à plusieurs ordres de grandeur de plus que celle des électrons). Le détachement direct est le suivant :

$$e^{+}H^{-} \rightarrow H + 2 e^{-}(E-D)$$
 (II.24)

Afin d'éviter les pertes des ions négatifs dues au détachement d'électrons, de nombreuses sources d'ions possèdent un filtre magnétique **[70, 71]**, i.e. un champ magnétique qui sépare la source en deux régions : une région qui se caractérise par une présence intense d'électrons chauds qui favorisent l'ionisation et l'excitation. La seconde, une région de production d'ions négatifs, où les électrons de faible énergie et les molécules excitées vibrationnellement ne seront pas affectés par le champ magnétique. Ils peuvent donc diffuser et créer des ions négatifs par AD.



Figure II.9c. La variation de la section efficace pour le mécanisme de détachement par collisions électroniques ED **[69]**.

De toute évidence, la neutralisation mutuelle (NM) domine les pertes des ions négatifs dans les plasmas à basse température, y compris les pertes par diffusion vers la paroi de la chambre, caractérisée par une durée de vie (τ)¹²: dans les sources volumiques, les pertes de diffusion H⁻ sur les parois peuvent être ignorées.

¹² Les pertes sont inversement proportionnelles à cette durée de vie (τ .) $\frac{1}{\tau_{-}} = \frac{s}{4V} u_{-}^{th} \exp(-\frac{eV_p}{kT_{-}})$. S surface totale de la paroi, V volume source, u_{-}^{th} vitesse thermique des ions négatifs, V_p potentiel plasma et T température ionique.

II.11 Synthèse des principaux mécanismes :

Le **Tab. II.2** résume les principaux mécanismes associés à la production aux pertes d'atomes, de molécules excitées et d'ions négatifs H⁻en plasma d'hydrogène.

$\begin{array}{llllllllllllllllllllllllllllllllllll$	Mécanismes de production	
$\begin{array}{llllllllllllllllllllllllllllllllllll$	atomes	
$\begin{array}{ll} \label{eq:constraint} \hline \begin{tabular}{lllllllllllllllllllllllllllllllllll$	Dissociation (Diss.)	$e_{bot} + H_2 \rightarrow H + H$
$\begin{array}{ll} \underbrace{\textit{molicules}}_{\substack{\{L > 0 \ o \ e'\}}} & e + H_2(X^{I}\Sigma_{g}^{+}, v^{"}=0) \rightarrow e + H_2(B^{I}\Sigma_{g}^{+}, C^{I}\Pi_{g}^{+}) \rightarrow e + H_2(X^{I}\Sigma_{g}^{+}, v^{"}) + bv \\ \underbrace{(L > 0 \ o \ e')}_{\substack{\{L > 0 \ o \ e'\}}} & e + H_2(X^{I}\Sigma_{g}^{+}, v^{"}) \rightarrow e + H_2(X^{I}\Sigma_{g}^{+}, v^{"}) + bv \\ \underbrace{(L > 0 \ o \ e')}_{\substack{\{L < S \ eV\}}} & e + H_2(X^{I}\Sigma_{g}^{+}, v^{"}) \rightarrow e + H_2(X^{I}\Sigma_{g}^{+}, v^{"}) + \Delta v^{"}) \\ \underbrace{(L > 0 \ o \ e')}_{\substack{\{L < M \ e'\}}} & H + H_{at} \rightarrow H_2(X^{I}\Sigma_{g}^{+}, v^{"}) \rightarrow e + H_2(X^{I}\Sigma_{g}^{+}, v^{"}) + \Delta v^{"}) \\ \underbrace{(L < 0 \ o \ e')}_{\substack{\{L < M \ e'\}}} & H + H_{at} \rightarrow H_2(X^{I}\Sigma_{g}^{+}, v^{"}) \rightarrow H^{-} + H \\ \underbrace{(L < 0 \ o \ e')}_{\substack{\{L < M \ e'\}}} & H + H_{at} \rightarrow H_2(X^{I}\Sigma_{g}^{+}, v^{"}) \rightarrow H^{-} + H \\ \underbrace{(L < 0 \ o \ e')}_{\substack{\{L < M \ e'\}}} & H + H_{at} \rightarrow H_2(X^{I}\Sigma_{g}^{+}, v^{"}) \rightarrow H^{-} + H \\ \underbrace{(L < 1 \ eV)}_{\substack{\{L < M \ e'\}}} & H + H_{at} \rightarrow H_2(X^{I}\Sigma_{g}^{+}, v^{"}) \rightarrow H^{-} + H \\ \underbrace{(L < 1 \ eV)}_{\substack{\{L < M \ e'\}}} & H + H_{at} \rightarrow H_2(X^{I}\Sigma_{g}^{+}, v^{"}) \\ \underbrace{(L < 1 \ eV)}_{\substack{\{L < M \ e'\}}} & H + H_{at} \rightarrow H_2(X^{I}\Sigma_{g}^{+}, v^{"}) \rightarrow H^{-} + H \\ \underbrace{(L < 1 \ eV)}_{\substack{\{L < M \ e'\}}} & H + H_{at} \rightarrow H_2(X^{I}\Sigma_{g}^{+}, v^{"}) \rightarrow H^{-} + H \\ \underbrace{(L < 1 \ eV)}_{\substack{\{L < M \ e'\}}} & H + H_{at} \rightarrow H_2 \\ \underbrace{(L < N \ e'\}}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H + H_{at} \rightarrow H_2 \\ \underbrace{(L < V \ e'\}}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H + H_{at} \rightarrow H_2 \\ \underbrace{(L < V \ e'\}}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H + H_{at} \rightarrow H_2 \\ \underbrace{(L < V \ e'\}}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H + H_{at} \rightarrow H_2 \\ \underbrace{(L < V \ E'}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H + H_{at} \\ \underbrace{(L < V \ E'}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H + H_{at} \\ \underbrace{(L < V \ E'}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H + H_{at} \\ \underbrace{(L < V \ E'}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H + H_{at} \\ \underbrace{(L < V \ E'}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H \\ \underbrace{(L < V \ E'}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H \\ \underbrace{(L < V \ E'}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H \\ \underbrace{(L < V \ E'}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H \\ \underbrace{(L < V \ E'}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H \\ \underbrace{(L < V \ E'}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H \\ \underbrace{(L < V \ E'}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H \\ \underbrace{(L < V \ E'}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H \\ \underbrace{(L < V \ E'}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H \\ \underbrace{(L < V \ E'}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H \\ \underbrace{(L < V \ E'}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H \\ \underbrace{(L < V \ E'}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H \\ \underbrace{(L < V \ E'}_{\substack{\{L \ e'\}}} & H \\ (L $		
Excitation electronique (E-V) $(I_{c} \geq 20 \ eV)$ Excitation electronique (e-V) $(I_{c} \leq s \ eV)$ Eley-Rideal (E-R), Langmuir- Hinshelwood (L-H), Hot atoms $(E_{c H} < 0 \ s \ eV)$ Eley-Rideal (E-R), Langmuir- H + H _{st} \rightarrow H ₂ ($X'\Sigma_{g}^{+}, v'') \rightarrow e + H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'' + \Delta v'')$ $H + H_{st} \rightarrow H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'') \rightarrow e + H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'' + \Delta v'')$ $H + H_{st} \rightarrow H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'') \rightarrow e + H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'' + \Delta v'')$ $H + H_{st} \rightarrow H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'') \rightarrow H^{-} + H$ $H + H_{st} \rightarrow H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'') \rightarrow H^{-} + H$ $H + H_{st} \rightarrow H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'') \rightarrow H^{-} + H$ $H + H_{st} \rightarrow H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'') \rightarrow H^{-} + H$ $H + H_{st} \rightarrow H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'') \rightarrow H^{-} + H$ $H + H_{st} \rightarrow H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'') \rightarrow H^{-} + H$ $H + H_{st} \rightarrow H_{2}$ $H + H + H + H_{st} \rightarrow H_{2}$ $H + H + H + H + H_{st} \rightarrow H_{2}$ $H + H + H + H + H_{st} \rightarrow H_{2}$ $H + H + H + H + H_{st} \rightarrow H_{2}$ $H + H + H + H + H_{st} \rightarrow H_{2}$ $H + H + H + H + H_{st} \rightarrow H_{2}$ $H + H + H + H + H_{st} \rightarrow H_{2}$ $H + H + H + H + H + H_{2} + e$ H + H + H + H + H + H + H + H + H + H +	<u>molécules</u>	
$\begin{array}{ll} (L \geq 20 \ dL') \\ \text{Excitation electronique (e-V)} \\ \text{Excitation electronique (E-R), Langmuir-Hinshelwood (L-H), Hot atoms} \\ \text{Excitation electron} \\ \text{Excitation} \\ Excitatio$	Excitation electronique (E-V)	$e + H_2(X'\Sigma_g^+, \mathbf{v}''= 0) \to e + H_2(B'\Sigma_u^+, C'\Pi_u^+) \to e + H_2(X'\Sigma_g^+, \mathbf{v}'') + hv$
Excitation electronique (e-V) $(I_{c} < s \ eV)$ Eley-Rideal (E-R), Langmuir- Hinshelwood (L-H), Hot atoms $(Ee_{H} < 0.5 \ eV)$ ions négatifis Attachement Dissociatif (AD) $(I_{c} < t \ eV)$ Ionisation directe $H + H_{ad} \rightarrow H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'') \rightarrow H_{2}^{-2}C_{g/a}^{*}) \rightarrow H^{-} + H$ $(I_{c} < t \ eV)$ Ionisation directe $H + Surface \rightarrow H^{-}$ Mécanismes de pertes atomes Eley-Rideal (E-R), Langmuir- Hinshelwood (L-H), Hot atoms Recombinaison associative $H + H_{ad} \rightarrow H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'')$ $H + H_{ad} \rightarrow H_{2}$ Metalement Dissociatif (AD) $e + H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'') \rightarrow H_{2}^{-} \rightarrow H^{-} + H$ $H + H_{ad} \rightarrow H_{2}$ Molécules Attachement Dissociatif (AD) $e + H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'') \rightarrow H_{2}^{-} \rightarrow H^{-} + H$ $H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'') \rightarrow H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'') + H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+}, v'$	$(T_e > 20 \ eV)$	$II \Delta Z \Delta \Sigma^{\dagger} \Sigma^{\dagger} $
$\begin{array}{llllllllllllllllllllllllllllllllllll$	Excitation electronique (e-V) $T < 5 \cdot 10$	$e + H_2(X^* \mathcal{Z}_g, \mathbf{v}^*) \rightarrow e + H_2(X^* \mathcal{Z}_g, \mathbf{v}^* + \Delta \mathbf{v}^*)$
Eley-Rideal (E-R), Langmuir- Hinshelwood (L-H), Hot atoms $(E_{eH} < 0.5 eV)$ ions négatifs Attachement Dissociatif (AD) $(I_c < 1 eV)$ Ionisation directe $H + Surface \rightarrow H^-$ Mécanismes de pertes <i>atomes</i> Eley-Rideal (E-R), Langmuir- Hinshelwood (L-H), Hot atoms Recombinaison associative $H + H_{ad} \rightarrow H_2(X'\Sigma_g^+, v'')$ Hinshelwood (L-H), Hot atoms Recombinaison associative $H + H_{ad} \rightarrow H_2(X'\Sigma_g^+, v'')$ <i>Hinshelwood</i> (L-H), Hot atoms Recombinaison associative $H + H_{ad} \rightarrow H_2$ <i>molécules</i> Attachement Dissociatif (AD) $e + H_2(X'\Sigma_g^+, v'') \rightarrow H_2^- \rightarrow H^- + H$ $(I_c < 1 eV)$ Déexcitation vibrationnelle Relaxation V-V Relaxation V-V Relaxation V-t <i>H</i> + $H^+ \rightarrow H + H$ <i>h</i> + $H^+ \rightarrow H + H$ <i>h</i> + $H^+ \rightarrow H_2(X'\Sigma_g^+, v'') + H_2(X'\Sigma_g^+, v'', I) + H_2(X'\Sigma_g^+, V', I) + H_2($	(1e < 5eV)	
Eley-Rideal (E-R), Langmuir- Hinshelwood (L-H), Hot atoms $(E_{c H} < 0.5 \text{ eV})$ ions négatifs Attachement Dissociatif (AD) $(T_c < 1 \text{ eV})$ Ionisation directe $H + Surface \rightarrow H^-$ Mécanismes de pertes <i>atomes</i> Eley-Rideal (E-R), Langmuir- Hinshelwood (L-H), Hot atoms Recombinaison associative $H + H_{ad} \rightarrow H_2(X'\Sigma_g^+, v'') \rightarrow H_2^- (\Sigma_{g/g}^+) \rightarrow H^- + H$ $(T_c < 1 \text{ eV})$ $Doise view of (L-H), Hot atoms Recombinaison associative H + H_{ad} \rightarrow H_2(X'\Sigma_g^+, v'') \rightarrow H_2^- \rightarrow H^- + H(T_c < 1 \text{ eV})Déexcitation vibrationnelle Relaxation V-V Relaxation V-V Relaxation V-t H_2(X'\Sigma_g^+, v'') + H_2(X'\Sigma_g^+, v''-1) + H_2(X'\Sigma_g^+, v'-1) + H_2(X'\Sigma_g^+, v-1) +$		
Hinshelwood (L-H), Hot atoms $\begin{array}{llllllllllllllllllllllllllllllllllll$	Eley-Rideal (E-R), Langmuir-	$U + U \rightarrow U (V^{\uparrow} \Sigma^{+} - "))$
$\begin{array}{ll} (Ee_{H} < 0.5 \ eV) \\ \hline \underline{ions\ negatifis} \\ \text{Attachement Dissociatif (AD)} \\ \text{Attachement Dissociatif (AD)} \\ e^{+} H_2(X'\Sigma_g^+, v'') \rightarrow H_2^-(^2\Sigma_{g/a}^+) \rightarrow H^- + H \\ (T_e < 1 \ eV) \\ \hline \text{Ionisation directe} \\ \hline H + Surface \rightarrow H^- \\ \hline \text{Mécanismes de pertes} \\ \hline \underline{atomes} \\ \text{Eley-Rideal (E-R), Langmuir-} \\ \text{Hisshelwood (L-H), Hot atoms} \\ \text{Recombinaison associative} \\ H^+ H_{ad.} \rightarrow H_2(X'\Sigma_g^+, v'') \\ \hline \text{Misshelwood (L-H), Hot atoms} \\ \text{Recombinaison associative} \\ \hline H^+ H_{ad.} \rightarrow H_2 \\ \hline \underline{molécules} \\ \text{Attachement Dissociatif (AD)} \\ e^+ H_2(X'\Sigma_g^+, v'') \rightarrow H_2^- \rightarrow H^- + H \\ (T_e < 1 \ eV) \\ \hline Déexcitation vibrationnelle \\ \text{Relaxation V-V} \\ \text{Relaxation V-V} \\ \text{Relaxation V-t} \\ \hline H_2(X'\Sigma_g^+, v'') + H_2(X'\Sigma_g^+, v''-0) \rightarrow H_2(X'\Sigma_g^+, v''-1) + H_2(X'\Sigma_g^+, v''=0) \\ \hline H_2(X'\Sigma_g^+, v'') + H \rightarrow H_2(X'\Sigma_g^+, v'') + H \\ \hline \underline{ions\ négatifis} \\ \text{Neutralisation Mutuelle (NM)} \\ H^- + H^+ \rightarrow H + H \\ Détachement Electronique (DE) \\ \hline H^- + e \rightarrow H + e + e \\ \hline \end{array}$	Hinshelwood (L-H), Hot atoms	$\Pi + \Pi_{ad} \longrightarrow \Pi_2(\Lambda \angle_g, V)$
$\begin{array}{ll} \underline{ions\ nigatifs}\\ Attachement\ Dissociatif\ (AD)\\ (T_{c} < 1\ eV) \end{array} e^{+H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+},v'') \rightarrow H_{2}^{-2}\Sigma_{g/g/}^{+}) \rightarrow H^{-} + H}\\ \hline \\ \underline{Ionisation\ directe}\\ H + Surface \rightarrow H^{-}\\ \hline \\ \underline{Mecanismes\ de\ pertes}\\ \underline{atomes}\\ Eley-Rideal\ (E-R),\ Langmuir-\\ Hinshelwood\ (L-H),\ Hot\ atoms\\ Recombinaison\ associative \end{aligned} H + H_{ad.} \rightarrow H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+},v'')\\ \hline \\ \underline{Mishelwood\ (L-H),\ Hot\ atoms\\ H + H_{ad.} \rightarrow H_{2}\\ \hline \\ \underline{molecules}\\ Attachement\ Dissociatif\ (AD)\\ e^{+H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+},v'') \rightarrow H_{2}^{-} \rightarrow H^{-} + H}\\ \hline \\ \underline{f_{2}(X'\Sigma_{g}^{+},v'') + surface \rightarrow H_{2}\\ Relaxation\ V-V\\ H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+},v'') + H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+},v'=0) \rightarrow H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+},v''-1) + H_{2}(X'\Sigma_{g}^{+},v'=0)\\ Relaxation\ V-t\\ \hline \\ \underline{ions\ nigatifs}\\ Neutralisation\ Mutuelle\ (NM)\\ H^{-} + H^{+} \rightarrow H + H\\ Détachement\ Electronique\ (DE)\\ H^{-} + e \rightarrow H + e + e \end{array}$	(Ес _Н < 0,5 eV)	
IntermsIntermsIntermsAttachement Dissociatif (AD) $e + H_2(X'\Sigma_g^+, v'') \rightarrow H_2^-(^2\Sigma_{g/u}^+) \rightarrow H^- + H$ Inisation directe $H + Surface \rightarrow H^-$ Mécanismes de pertesatomesEley-Rideal (E-R), Langmuir- $H + H_{ad} \rightarrow H_2(X'\Sigma_g^+, v'')$ Hinshelwood (L-H), Hot atomsRecombinaison associative $H + H_{ad} \rightarrow H_2$ moléculesAttachement Dissociatif (AD) $e + H_2(X'\Sigma_g^+, v'') \rightarrow H_2^- \rightarrow H^- + H$ $(I_c < teV)$ Déexcitation vibrationnelle $H_2(X'\Sigma_g^+, v'') + surface \rightarrow H_2$ Relaxation V-V $H_2(X'\Sigma_g^+, v'') + H_2(X'\Sigma_g^+, v''-0) \rightarrow H_2(X'\Sigma_g^+, v''-0) + H_2(X'\Sigma_g^+, v''-0)$ Relaxation V-t $H_2(X'\Sigma_g^+, v'') + H \rightarrow H_2(X'\Sigma_g^+, v'') + H$ ions négatifsNeutralisation Mutuelle (NM) $H^- + H \rightarrow H + H$ Détachement Electronique (DE) $H^- + e \rightarrow H + e + e$	ions négatifs	
Interface of $H_{2}(X^{\dagger}\Sigma_{g}^{+}, v^{*}) \rightarrow H_{2}(X^{\dagger}\Sigma_{g}^{+}, v^{*}) \rightarrow H_{2}(X^{\dagger}\Sigma_{g}^{+}, v^{*})$ Ionisation directe $H + Surface \rightarrow H^{-}$ Mécanismes de pertes <u>atomes</u> Eley-Rideal (E-R), Langmuir- $H + H_{ad} \rightarrow H_{2}(X^{\dagger}\Sigma_{g}^{+}, v^{*})$ Hinshelwood (L-H), Hot atoms Recombinaison associative $H + H_{ad} \rightarrow H_{2}$ <u>molécules</u> Attachement Dissociatif (AD) $e + H_{2}(X^{\dagger}\Sigma_{g}^{+}, v^{*}) \rightarrow H_{2}^{-} \rightarrow H^{-} + H$ $(T_{i} < t eV)$ Déexcitation vibrationnelle $H_{2}(X^{\dagger}\Sigma_{g}^{+}, v^{*}) \rightarrow H_{2}^{-} \rightarrow H^{-} + H$ Relaxation V-V $H_{2}(X^{\dagger}\Sigma_{g}^{+}, v^{*}) + H_{2}(X^{\dagger}\Sigma_{g}^{+}, v^{*} = 0) \rightarrow H_{2}(X^{\dagger}\Sigma_{g}^{+}, v^{*} = 0)$ Relaxation V-t $H_{2}(X^{\dagger}\Sigma_{g}^{+}, v^{*}) + H \rightarrow H_{2}(X^{\dagger}\Sigma_{g}^{+}, v^{*}) + H$ <u>ions négatifs</u> Neutralisation Mutuelle (NM) $H^{-} + H^{+} \rightarrow H + H$ Détachement Electronique (DE) $H^{-} + e \rightarrow H + e + e$	Attachement Dissociatif (AD)	$e + H_{2}(X^{1}\Sigma^{+}X^{2}) \rightarrow H_{2}^{-\ell}\Sigma^{+}L_{2}) \rightarrow H^{-} + H_{2}$
$\begin{array}{llllllllllllllllllllllllllllllllllll$	$(T_e < 1 eV)$	$c \sim 11_2(11 - g_{g}), c \sim 11_2 (1 - g_{g})$
$\begin{array}{llllllllllllllllllllllllllllllllllll$	(
Mécanismes de pertesatomesEley-Rideal (E-R), Langmuir- Hinshelwood (L-H), Hot atoms Recombinaison associative $H + H_{ad.} \rightarrow H_2(X^{t}\Sigma_{g}^{+}, \mathbf{v}^{"})$ Hinshelwood (L-H), Hot atoms Recombinaison associative $H + H_{ad.} \rightarrow H_2$ molécules Attachement Dissociatif (AD) $(T_i < t eV)$ $e + H_2(X^{t}\Sigma_{g}^{+}, \mathbf{v}^{"}) \rightarrow H_2^{-} \rightarrow H^{-} + H$ Désecitation vibrationnelle Relaxation V-V Relaxation V-t $H_2(X^{t}\Sigma_{g}^{+}, \mathbf{v}^{"}) + Surface \rightarrow H_2$ $H_2(X^{t}\Sigma_{g}^{+}, \mathbf{v}^{"}) + H_2(X^{t}\Sigma_{g}^{+}, \mathbf{v}^{"}= 0) \rightarrow H_2(X^{t}\Sigma_{g}^{+}, \mathbf{v}^{"}= 0)$ $H_2(X^{t}\Sigma_{g}^{+}, \mathbf{v}^{"}) + H \rightarrow H_2(X^{t}\Sigma_{g}^{+}, \mathbf{v}^{"}) + H$ Neutralisation Nutuelle (NM) Détachement Associatif (DA) $H^{-} + H^{+} \rightarrow H + H$ $H^{-} + H^{-} + e$	Ionisation directe	$H + Surface \rightarrow H^{-}$
$\begin{array}{llllllllllllllllllllllllllllllllllll$	Mécanismes de pertes	
Eley-Rideal (E-R), Langmuir- Hinshelwood (L-H), Hot atoms Recombinaison associative $\begin{array}{llllllllllllllllllllllllllllllllllll$	<u>atomes</u>	
Hinshelwood (L-H), Hot atoms Recombinaison associative $H + H_{ad.} \rightarrow H_2$ molécules Attachement Dissociatif (AD) $e + H_2(X^{T}\Sigma_{g}^{+}, \nabla^{"}) \rightarrow H_2^{-} \rightarrow H^{-} + H$ $(T_i < 1 eV)$ Déexcitation vibrationnelle Relaxation V-V Relaxation V-t $H_2(X^{T}\Sigma_{g}^{+}, \nabla^{"}) \rightarrow H_2(X^{T}\Sigma_{g}^{+}, \nabla^{"}-1) + H_2(X$	Eley-Rideal (E-R), Langmuir-	$H + H_{ad.} \rightarrow H_2(X'\Sigma_g^+, v'')$
Recombinaison associative $H + H_{ad} \rightarrow H_2$ <i>molécules</i> Attachement Dissociatif (AD) $e + H_2(X^{\dagger}\Sigma_g^+, v^{"}) \rightarrow H_2^- \rightarrow H^- + H$ $(T_e < 1 eV)$ $H_2(X^{\dagger}\Sigma_g^+, v^{"}) + surface \rightarrow H_2$ Déexcitation vibrationnelle $H_2(X^{\dagger}\Sigma_g^+, v^{"}) + H_2(X^{\dagger}\Sigma_g^+, v^{"-1}) + H_2(X^{\dagger}\Sigma_g$	Hinshelwood (L-H), Hot atoms	
$\begin{array}{ll} \underline{\textit{mol}\acute{eules}} \\ \text{Attachement Dissociatif (AD)} & e + H_2(X^{\prime}\Sigma_g^+, \mathbf{v}^{\prime\prime}) \rightarrow H_2^- \rightarrow H^- + H \\ (T_e < 1 \ eV) \\ \text{Déexcitation vibrationnelle} & H_2(X^{\prime}\Sigma_g^+, \mathbf{v}^{\prime\prime}) + \textit{surface} \rightarrow H_2 \\ \text{Relaxation V-V} & H_2(X^{\prime}\Sigma_g^+, \mathbf{v}^{\prime\prime}) + H_2(X^{\prime}\Sigma_g^+, \mathbf{v}^{\prime=0}) \rightarrow H_2(X^{\prime}\Sigma_g^+, \mathbf{v}^{\prime-1}) + H_2(X^{\prime}\Sigma_g^+, \mathbf{v}^{\prime=0}) \\ \text{Relaxation V-t} & H_2(X^{\prime}\Sigma_g^+, \mathbf{v}^{\prime\prime}) + H \rightarrow H_2(X^{\prime}\Sigma_g^+, \mathbf{v}^{\prime}) + H \\ \underline{\textit{ions négatifs}} \\ \text{Neutralisation Mutuelle (NM)} & H^- + H^+ \rightarrow H + H \\ \text{Détachement Associatif (DA)} & H^- + H \rightarrow H_2 + e \\ \text{Détachement Electronique (DE)} & H^- + e \rightarrow H + e + e \end{array}$	Recombinaison associative	$H + H_{ad.} \rightarrow H_2$
$\begin{array}{ll} \underline{\textit{molécules}} \\ \text{Attachement Dissociatif (AD)} & e + H_2(X^{T}\Sigma_g^+, \mathbf{v}^{"}) \to H_2^- \to H^- + H \\ (T_e < 1 \ eV) \\ \text{Déexcitation vibrationnelle} \\ \text{Relaxation V-V} \\ \text{Relaxation V-V} \\ \text{Relaxation V-t} \\ \underline{\textit{H}}_2(X^{T}\Sigma_g^+, \mathbf{v}^{"}) + H_2(X^{T}\Sigma_g^+, \mathbf{v}^{"}=0) \to H_2(X^{T}\Sigma_g^+, \mathbf{v}^{"}-1) + H_2(X^{T}\Sigma_g^+, \mathbf{v}^{"}=0) \\ H_2(X^{T}\Sigma_g^+, \mathbf{v}^{"}) + H \to H_2(X^{T}\Sigma_g^+, \mathbf{v}^{"}+H) \\ \underline{\textit{ions négatifs}} \\ \text{Neutralisation Mutuelle (NM)} \\ \text{Détachement Associatif (DA)} \\ H^- + H \to H_2 + e \\ \text{Détachement Electronique (DE)} \\ \end{array}$		
Attachement Dissociatif (AD) $e + H_2(X'\Sigma_g^+, v'') \rightarrow H_2^- \rightarrow H^- + H$ $(T_e < 1 eV)$ Déexcitation vibrationnelle $H_2(X'\Sigma_g^+, v'') + surface \rightarrow H_2$ Relaxation V-V $H_2(X'\Sigma_g^+, v'') + H_2(X'\Sigma_g^+, v'= 0) \rightarrow H_2(X'\Sigma_g^+, v''-1) + H_2(X'\Sigma_g^+, v''= 0)$ Relaxation V-t $H_2(X'\Sigma_g^+, v'') + H \rightarrow H_2(X'\Sigma_g^+, v''-1) + H_2(X'\Sigma_g^+, v''= 0)$ <i>ions négatifs</i> Neutralisation Mutuelle (NM)Neutralisation Mutuelle (NM) $H^- + H^+ \rightarrow H + H$ Détachement Associatif (DA) $H^- + H \rightarrow H_2 + e$ Détachement Electronique (DE) $H^- + e \rightarrow H + e + e$	<u>molécules</u>	
$\begin{array}{ll} (I_{*} < 1 \ eV) \\ \text{Déexcitation vibrationnelle} \\ \text{Relaxation V-V} \\ \text{Relaxation V-t} \\ Implies the second of the $	Attachement Dissociatif (AD)	$e + H_2(X'\Sigma_g^+, v'') \rightarrow H_2^- \rightarrow H^- + H$
$\begin{array}{llllllllllllllllllllllllllllllllllll$	$(T_e < 1 eV)$	$TI \Delta T \Sigma^{+} $ $m \to c \to TI$
Relaxation V-V $H_2(X \ 2_g, v^-) + H_2(X \ 2_g, v^-) \to H_2(X \ 2_g, v^-) + H_2(X$		$\Pi_2(\Lambda \ \Delta_g, \nabla) + surface \to \Pi_2$ $\Pi_2(\Lambda \ \Delta_g, \nabla) + II (\Lambda \ \Sigma^{\dagger} \Sigma^{\dagger}, \Sigma^{\dagger}) \to II (\Lambda \ \Sigma^{\dagger} \Sigma^{\dagger}) \to II (\Lambda \ \Sigma$
Relaxation V-t $H_2(A \ Z_g, V) + H \rightarrow H_2(A \ Z_g, V) + H$ <u>ions négatifs</u> Neutralisation Mutuelle (NM) $H^- + H^+ \rightarrow H + H$ Détachement Associatif (DA) $H^- + H \rightarrow H_2 + e$ Détachement Electronique (DE) $H^- + e \rightarrow H + e + e$	Relaxation V-V	$\Pi_2(\Lambda \ \Delta_g \ , \nabla \) + \Pi_2(\Lambda \ \Delta_g \ , \nabla \ -0) \to \Pi_2(\Lambda \ \Delta_g \ , \nabla \ -1) + \Pi_2(\Lambda \ \Delta_g \ , \nabla \ -0)$
ions négatifsNeutralisation Mutuelle (NM) $H^- + H^+ \rightarrow H + H$ Détachement Associatif (DA) $H^- + H \rightarrow H_2 + e$ Détachement Electronique (DE) $H^- + e \rightarrow H + e + e$	Relaxation v-t	$\Pi_2(\Lambda \ \mathcal{L}_g \ , \mathbb{V} \) + \Pi \to \Pi_2(\Lambda \ \mathcal{L}_g \ , \mathbb{V} \) + \Pi$
Neutralisation Mutuelle (NM) $H^- + H^+ \rightarrow H + H$ Détachement Associatif (DA) $H^- + H \rightarrow H_2 + e$ Détachement Electronique (DE) $H^- + e \rightarrow H + e + e$	ions négatifs	
Détachement Associatif (DA) $H^- + H \rightarrow H_2 + e$ Détachement Electronique (DE) $H^- + e \rightarrow H + e + e$	Neutralisation Mutuelle (NM)	$H^- + H^+ \rightarrow H + H$
Détachement Electronique (DE) $H^- + e \rightarrow H^+ e^+ e^-$	Détachement Associatif (DA)	$H^- + H \rightarrow H_2 + e$
1 \ /	Détachement Electronique (DE)	$H^- + e \rightarrow H^+ e^+ e^-$
	1 ()	

Tableau II.2	Principau	x processu	ıs de	création	et de	pertes
des atomes,	molécules	excitées et	t ions	négatifs	[72]	•

II.12 Cinétique vibrationnelle :

Dans les cinétiques vibrationnels des plasmas moléculaires, à basse pression et à basse température, la fonction de distribution vibrationnelle $(VDF)^{13}$ conjuguée aux phénomènes de dissociation/association joue un rôle important dans la redistribution des énergies **[73]**. De plus, comme H₂ n'a pas de moment dipolaire électrique, les molécules H₂ excitées vibrationnellement ont une durée de vie importante **[74]** qui leur permet de constituer une grande partie des particules du plasma. Le chapitre suivant présente brièvement les principales voies d'excitation et de désactivation des états vibratoires.

II.12.1 Processus en volume impliquant des niveaux vibrationnels :

L'excitation vibrationnelle directe de la molécule H_2 , comme toutes molécules homonucléaires, est un processus peu efficace. En conséquence, les mécanismes les plus efficaces en volume dans un plasma, impliquent l'excitation indirecte par un état temporaire, et ont pour résultat un très grand nombre de processus de collisions molécules/électrons. D'autre part, dans les plasmas à basse pression, le très grand parcours libre moyen des particules augmente le processus de diffusion vers la paroi pour les espèces neutres. Selon le matériau de la chambre et son état, les mécanismes, comme la désorption recombinative, peuvent avoir une contribution importante à l'enrichissement du spectre vibrationnel **[65]**.

Un processus d'excitation vibrationnel possible implique la capture d'un électron et la formation d'un ion négatif moléculaire temporaire (*cf.* paragraphe II.9 sur la production d'ions négatifs). Si le mécanisme de DA n'intervient pas, l'électron est auto-détaché. Ainsi, la molécule neutre peut se retrouver à différents niveaux vibrationnels (excitation eV, réaction (II.16)). Cependant, le changement le plus probable dans l'état vibrationnel est \pm 1, ce qui signifie que :

- un grand nombre de collisions sont nécessaires pour la population de niveaux élevés [75];
- le processus eV peut aussi avoir une contribution considérable sur la production des molécules d'hydrogène excitées [66].

Une source efficace de peuplement des niveaux vibrationnels élevés de la molécule, est la désexcitation radiative de plus haut niveaux électroniques excités générés par des collisions entre molécules à l'état fondamental avec des électrons énergétiques (excitation EV, réaction II.15). Les excitations « singulet », autorisées, conduisent à une désintégration radiative spontanée d'une manière directe ou successive. On a vu auparavant (voir II.9.2.1) que les niveaux vibrationnels finaux de l'état fondamental ne seront pas nécessairement les mêmes que ceux au départ. B¹ Σ_{u}^{+} et C¹ Π_{u} sont les états singuliers du premier état électronique excité (n = 2), à partir duquel la décroissance vers l'état fondamental est autorisée. L'excitation du premier état électronique a une section efficace importante que celle des niveaux supérieurs. Cela en fait le principal mécanisme d'excitation vibrationnelle.

Les probabilités de remplir un niveau vibrationnel de l'état fondamental à travers le B¹ Σ_{u}^{+} et C¹ Π_{u} en tant que fonction du niveau vibrationnel initial est calculée par Hiskes **[76]**, il y découle que :

- 1. D'une part, il est plus probable que les « singulets » se décomposent au niveau vibrationnel dont ils ont été excités. Il explique également que l'accumulation des états vibrationnels supérieurs est partiellement responsable de la cinétique vibrationnelle non équilibrée des plasmas à basse température et basse pression [77].
- 2. D'autre part, les faibles niveaux vibrationnels ont une plus grande chance d'être excités à des niveaux vibrationnels élevés par le singulet $B^{1}\Sigma_{u}^{+}$ que par le singlet $C^{1}\Pi_{u}$.

La collision avec des électrons de faible énergie ($T_e < 1 eV$), mécanisme de détachement associative (DA), produit des ions négatifs, mais est considérée comme un mécanisme de perte pour les molécules ro-vibrationnellement excitées **[78]**.

Les états vibrationnels peuvent également être influencés par des collisions de particules lourdes. L'échange d'énergie vibrationnelle/vibrationnelle entre deux molécules redistribue l'énergie entre les niveaux vibrationnels. Les changements, avec un nombre de vibrations égale à \pm 1, sont les plus probables. Ce mécanisme affecte principalement la répartition de la population des niveaux vibrationnels élevés.

Les collisions avec des neutres peuvent également conduire à un échange d'énergie vibrationnelle/translationnelle. Ce processus implique des collisions avec des molécules [79] et des collisions avec des atomes [80] (cf. processus VT et Vt, II.10.1.1). Les ions positifs peuvent aussi détruire des molécules excitées par conversion ionique [81]. Si les molécules excitées par vibration ne sont pas désexcitées ou détruites par l'un des procédés mentionnés ci-dessus, elles seront finalement perdues en partie sur les parois de la chambre [80, 82].

La Fig. II.10 présente les taux de formation et les fréquences de pertes lorsqu'ils ont été calculés pour une source <u>ECR (magnétique)</u> multipolaire d'un plasma H_2 . Elle indique que les mécanismes VT et eV contribuent au taux de formation des états vibrationnels élevés. Toutefois, ils sont également responsables d'un grand nombre de pertes. Ainsi, l'énergie vibrationnelle des états vibrationnels élevés est redistribuée vers les états inférieurs. L'énergie soustraite est libérée en énergie de translation de la molécule ou en énergie cinétique de l'électron. En revanche, le processus EV possède une fréquence de perte très faible. Ce qui le place comme principal processus de peuplement des états vibrationnels élevés.



Figure II.10. Taux de formation (à gauche) et fréquence de perte (à droite) des états vibratoires dans un plasma par décharge multipolaire ECR.

Il existe un mécanisme supplémentaire qui concerne la formation de molécules vibrationnellement excitées, il s'agit de la désorption recombinative des atomes sur les parois de la chambre plasma. Dans certaines conditions, suivant les paramètres du plasma, la nature du matériau, la température de la paroi, ce processus peut influencer fortement les vibrations et la rotation cinétique **[65]**. Le paragraphe suivant présente brièvement ses principes de base.

II.12.2 Processus en surface impliquant des niveaux vibrationnels :

Les parois de la chambre ont un effet important sur divers procédés élémentaires tels que la diffusion élastique de particules, l'adsorption, la neutralisation, les mécanismes dissociatifs et associatifs. La recombinaison d'atomes du plasma revêt une importance particulière dans les sources d'ions négatifs, car il peut convertir des atomes d'hydrogène en molécules vibrationnellement excitées **[83]**. De cette façon, la densité de molécules excitées vibrationnellement peut être augmentée et la densité des atomes d'hydrogène pouvant détruire les ions négatifs par des processus de DA sont atténués.

L'influence de la surface dépend de l'interaction des espèces du plasma avec les atomes de la surface et de la morphologie de la surface. Cette action est quantifiée par le coefficient de recombinaison, rapport du nombre de particules recombinées au nombre total de particules. Les mécanismes de recombinaison atomique, à savoir Elay-Rideal (ER), Langmuir-Hinshelwood (LH) et 'atomes chauds' sont représentés sur la **Fig. II.11**. Tous nécessitent l'adsorption préalable d'un atome sur la surface :

 $(H)_{gas} + surface(H)_{ads} \longrightarrow H_2^*(v", J")$ (II.25)



Figure II.11. Vue schématique des mécanismes de désorption recombinatives [69]

Sur la base d'un modèle 1D simplifié du profil du potentiel à proximité d'une surface, deux descriptions d'adsorption sont possibles : la physisorption et la chimisorption. Dans le premier cas, l'atome adsorbé, est situé dans un puits de potentiel peu profond, de type van der Waals ou dipôle électrostatique (les forces d'attraction se trouvent à longue distance des atomes de surface). Dans le schéma de chimisorption, l'atome, situé encore plus près de la surface, crée une liaison chimique caractérisée par un puits de potentiel plus profond [65].

Dans la recombinaison ER (réaction II.28), un atome libre du plasma s'approche de la surface et se recombine avec un atome adsorbé. Tandis que la recombinaison de LH (réaction (II.29)) implique deux atomes adsorbés capables de migrer à la surface et de se recombiner avec chacun d'eux. Les deux réactions sont exothermiques (ΔE est l'énergie libérée lors de la désorption de la molécule).

$$(H)_{ads} + (H)_{gas} \longrightarrow (H_2 (\mathbf{v}^{"}, \mathbf{J}))_{gas} + surface + \Delta \mathbf{E}$$
(II.26)
$$(H)_{ads} + (H)_{ads} \longrightarrow (H_2 (\mathbf{v}^{"}, \mathbf{J}))_{gas} + surface + \Delta \mathbf{E}$$
(II.27)

La recombinaison des atomes chauds **[84]**, se trouve entre ces deux mécanismes et implique un atome du plasma faiblement lié à la surface. Cet atome, désigné comme atome chaud, peut facilement se diriger vers la surface et se recombiner avec un atome adsorbé **[65]**. Tous ces mécanismes peuvent être quantifiés par un coefficient de recombinaison macroscopique thermique. Ce coefficient est le résultat de l'intégration de la distribution d'énergie translationnelle des atomes et comprend tous les paramètres de chaque état ro-vibrationnel.

II.13 Cinétique (ou processus) principale de notre étude :

D'après les sections précédentes, il apparait que les deux principales voies de création d'ions négatifs sont : l'ionisation directe à la surface d'un matériau à bas travail de sortie [85] et/ou l'attachement dissociatif (AD) dans le volume du plasma.

Comme solution optimum au futur programme DEMO (*DEMOnstration Power Plant*), le choix officiellement retenu comme dispositif de production d'ions H⁻ (et D⁻) est la source d'ions MANITU (*Multi Ampere Negative Ion Test Unit*). Elle associe un très fort taux de dissociation du di-hydrogène (13 %) et une injection de césium (matériau à bas travail de sortie, 1.8eV contre 4.4eV pour le fer), pour une production de surface par ionisation directe (H+Cs_{surface} \rightarrow H⁻), ou par double capture (H⁺+Cs_{surface} \rightarrow H⁻). A l'heure actuelle, cette source s'approche seulement des spécifications d'ITER, mais reste très loin des spécifications requises pour DEMO (50MW durant 300h contre 17MW pendant 400s pour ITER).

A long terme, le césium pourra être un handicap sérieux, son utilisation va diminuer de manière considérable la durée de vie de la source. En plus, il apporte des contraintes d'entretien et de fonctionnement non négligeables : nettoyage des surfaces en zone activée par le tritium, stabilité, l'injection du cs...

L'autre inconvénient est, qu'en raison de sa diffusion probable dans l'espace d'accélération, il peut alors devenir source de claquages à haute tension ou générer des particules parasites (ions négatifs Cs, CsH, électrons) dans l'accélérateur. Ce qui risque de perturber l'efficacité de l'extracteur. D'autre part, l'utilisation du césium entraîne des contraintes de sécurité assez importantes : étant pyrophorique, il peut s'enflammer spontanément à la température ambiante, au contact de l'air lors de l'ouverture de la chambre.

Malheureusement, il n'existe pas encore d'autres solutions alternatives fiables, il apparait donc crucial de proposer une autre solution que l'adjonction de césium pour améliorer le rendement des injecteurs de neutres.

Mon travail de thèse doit permettre d'évaluer le rendement de production d'ions négatifs H⁻ via des mécanismes de surface de type Eley-Rideal (E-R), Langmuir-Hinshelwood (L-H) ou d'Atomes Chauds (Hot Atoms - H-A) **[86]**, sur différents matériaux.

Ceux-ci, permettent la création de molécules excitées ro-vibrationnellement $H_2(X^1\Sigma_g^+, \nu'')$ supplémentaires à celles créées en volume (par collision entre une molécule H_2 et un électron chaud). Une fois excitées, ces molécules contribuent indistinctement, par le mécanisme AD, à la création d'ions négatifs.

Ces réactions d'extrême surface nécessitent pour *L-H* et H-A la diffusion d'un atome au voisinage de la surface jusqu'à un second atome d'hydrogène adsorbé. Il se produit alors la recombinaison et la désorption d'une molécule $H_2(X^1\Sigma_g^+, v'')$.

Le second mécanisme, *E*-R, implique qu'un atome d'hydrogène, de faible énergie (~ 0,3 eV), arrive sur un second atome adsorbé à la surface du matériau pour produire une molécule $H_2(X^1\Sigma_g^+, \nu'')$.

Les différents types de sources d'ions H

Le chauffage par injection de neutres et donc les sources d'ions négatifs sont essentielles pour atteindre les conditions d'amorçage des réactions de fusion. La source d'ions négatifs doit avoir un faisceau extrait à très faible divergence. Il est alors possible de transporter ce faisceau sur de grandes distances et injecter une grande densité d'énergie dans le plasma du tokamak. La source d'ions doit être performante et fiable, capable de produire, sans interruption, plusieurs milliampères d'ions sur une durée de fonctionnement relativement longue (400s pour ITER et 300 h pour DEMO) **[30]**.

À ce jour, il n'existe aucune source ayant atteint l'ensemble des spécifications nécessaires. Nous avons mentionné (cf. paragraphe I.5.2), des sources prototypes en cours d'étude dans divers laboratoires. Je présente ici de façon exhaustive les différentes sources adaptables à un système d'injection ainsi que leurs points faibles et points forts. Je distingue les sources d'ions négatifs en surface de celles produisant les ions négatifs en volume.

II.14 Les sources de surface :

Les sources de plasma fonctionnant par des processus de surface SPS (Sources Plasma Surface) regroupent les sources Penning et magnétron.

II.14.1 Les sources Penning :

Les sources Penning, quoiqu'ayant une bonne luminosité, ont l'inconvénient d'avoir une durée de fonctionnement sans interruption qui n'excède pas 900 h, alors qu'une source de type ECR peut fonctionner ~3,5 années. Comme elles fonctionnent sur le principe de production en surface, il n'est pas nécessaire de travailler avec des volumes trop importants. La surface de la chambre plasma ne couvre qu'une dizaine de millimètre carré limitant ainsi toute perte par interaction avec les autres espèces dans le plasma. L'une des sources les plus performantes fonctionne au laboratoire Rutherford à Oxford, elle produit un courant d'ions H⁻ de 35 mA. Elle peut fonctionner pendant 26 jours en continu et son impulsion ne dure que 200-250 μ s avec une répétition à 50 Hz **[87]**.



En comparaison, la source du laboratoire de Los Alamos (USA) délivre un courant maximum de 250 mA et son impulsion peut durer 1 ms à une fréquence de 5 Hz **[88]**. Alors que celle du Centre de Sciences Nucléaires et de Sciences de la Matière à Orsay, pour l'accélérateur ARAMIS, les ions négatifs sont produits par pulvérisation d'une surface solide, contenant l'élément à ioniser, par un faisceau d'ions Césium **[89]**. Ces derniers sont produits par ionisation de surface au contact d'un ioniseur sphérique.



Figure II.13 La source Penning d'ARAMIS

L'avantage des sources Penning est qu'elles sont capables de produire de très forts courants d'ions H⁻ et sont actuellement les sources les plus intenses au monde (pouvant atteindre 20mA). Leurs défauts majeurs résident essentiellement sur leur durée de vie ainsi que leur fonctionnement en impulsion ayant une durée difficilement supérieure à 1 ms **[89]**.

II.14.2 Les sources magnétrons :

Les sources magnétrons sont, comme les sources « Penning », elles aussi consommatrices de césium. Elles sont constituées d'une cathode centrale entourée par une anode avec une différence de potentiel entre les deux électrodes de typiquement de 150 V et un courant de décharge d'environ 40 A. Un plasma pulsé (2.45GHz) est ainsi formé entre ces deux électrodes par injections pulsées d'hydrogène par une valve. Un champ magnétique axial (~100G) permet de confiner le plasma et de respecter une rotation des électrons et ions autour de la cathode.

La principale différence avec les sources de type Penning réside sur la position du trou d'extraction ; celui-ci étant en face de la cathode, il va favoriser une extraction de particules moins sélective et par conséquent avec une plus large gamme d'énergie. Ces sources sont parmi les plus performantes en matière de durée de vie, certaines peuvent dépasser les 7000 h en régime pulsé. Cependant, ils présentent deux inconvénients majeurs¹⁴ :

- Le premier vient de la forte énergie des ions négatifs dans le plasma (>100eV), ce qui engendre une mauvaise optique, des divergences importantes (~ de 40 mrad) ont été mesurées avec ce type de sources [90].

- Le second inconvénient est dû à l'utilisation du césium qui pourrait migrer dans le dispositif d'extraction et induire des claquages entre les étages haute-tension.

II.15 Les sources en volume :

La mise en évidence du processus d'attachement dissociatif sur des molécules excitées a permis d'optimiser les sources pour la production en volume. Or, ce phénomène d'attachement dissociatif dépend de la température des électrons. Il demande à la fois des électrons de faible température électronique (~1 eV) et d'électrons chauds.

II.15.1 Source à filaments :

Ces sources utilisent des filaments chauffés pour emmettre des électrons. Ces électrons sont accélérés par application d'une différence de potentiel entre le filament et le réacteur (~50 eV et 70W). Ces sources n'ont qu'une durée de vie de seulement 500 h **[91]**, à cause de la dégradation du filament. Elles peuvent fonctionner avec ou sans césium.

Elle combine de cette manière les processus de créations en volume et en surface, ce qui rend ces sources très intenses. De nombreuses études ont été réalisées sur ces sources, nous citerons la première, construite par les japonais, en 1986 à JAERI. Elle est capable d'extraire un faisceau d'ions H de 60 mA avec du césium, sans cela il n'est que de 14 mA, à 50 kV avec une émittance de 0,1 mm.mrad. En revanche, les impulsions ne sont que de 0,2 ms à 50 Hz et la durée de fonctionnement sans interruption, limitée à 500 heures **[92]**. Ainsi, Leung et Bacal ont réalisé une source où le plasma était séparé en deux régions par un filtre magnétique **[93]** :

- La zone où est produit le plasma par des filaments chauffés, La température des électrons (Te) dépend de la tension de polarisation entre les filaments et la chambre contenant le plasma (entre 50 et 70eV).

- La zone d'extraction, qui contient un plasma froid, Te proche de 1 eV, ce qui est propice à la production d'ions négatifs par AD.

Les molécules excitées dans la zone chaude diffusent librement à travers le filtre magnétique alors que seuls les électrons ayant subi assez de collisions, donc perdu beaucoup d'énergie peuvent diffuser.

¹⁴Ces problèmes ont conduit les chercheurs à s'intéresser de plus près à la production en volume.



Figure II.14 Seconde Source à filaments, se trouvant à Francfort, est capable de produire des courants de 120 mA, d'une durée de 1,2 ms (répétition de 50 Hz) avec une extraction de 35 kV.

II.15.2 Les sources RF :

Ce type de source offre de très bonnes performances et reste le plus largement utilisé dans de nombreux laboratoires de recherche. Elles permettent de créer des plasmas sur une large gamme de densités ($10^8 - 10^{12}$ cm⁻³). Elles sont constituées d'une chambre dans laquelle est introduite une antenne (R.F) recouverte de céramique et peut produire un faisceau de particules de ~ 30 à 50 mA de courant.

A titre d'exemple, la source du laboratoire LBNL de Berkeley (**Fig II.15**) est capable de fournir des courants d'ions H⁻ de 50 mA avec une émittance de 0,2 mm.mrad, durant 1 ms à 60 Hz. La décharge se fait à l'aide d'une onde à 13.56 MHz. La présence de l'antenne à l'intérieur du plasma constitue l'inconvénient majeur de ce type de source. Le plasma endommage très vite la couche de céramique protégeant l'antenne RF, ce qui réduit significativement la durée de vie de la source.





Afin de pallier à ce problème, la source de DESY à Hambourg a opté pour une antenne externe **[94]**. Les utilisateurs de la source annoncent une durée de fonctionnement de plus de 25000 h, sans dégradation de l'antenne, alors qu'elle n'atteignait en moyenne que 980 h pour DESY. Le défaut de cette source est qu'elle ne peut atteindre qu'environ 200 μ s de longueur d'impulsion, ce qui limite son application.



Figure II.16 Source DESY

Nous prenons également comme exemple, le réacteur expérimental PHISIS (Fig. II.17), dédié à l'étude des interactions plasma-surface au laboratoire de Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires (PIIM) à Marseille. Il est constitué d'un réacteur plasma comportant une chambre source cylindrique et une chambre de diffusion sphérique [26].



Figure II.17 Source PHISIS, du laboratoire PIIM, de l'université d'aix Marseille, avec laquelle mon stage de Magister a été réalisé [26]. L'antenne, de longueur 200mm et de rayon 80mm, entourant la chambre source est de type « antenne hélicon ». Elle permet de générer des plasmas aussi bien en mode capacitif, inductif ou hélicon. Cette antenne est reliée à une boite d'accord et un générateur RF 13.56 MHz. Le cylindre au-dessus du réacteur (**Fig. II.17**) délivre de la puissance RF au gaz et assure une protection de l'antenne, qui n'est ainsi pas en contact avec le plasma.

Autour de l'enceinte sont enroulées deux bobines, chacune est constituée de 800 spires et produit un champ magnétique sur l'axe de 40 Gauss par ampère. Les bobines sont montées de telle sorte qu'elles permettent d'avoir un champ magnétique uniforme dans la source, ce qui assure un confinement du plasma dans la source, permettant de limiter la perte des espèces chargées aux parois. Le plasma fonctionne à basse puissance RF injectée, sous basse pression (entre 0.2Pa et 2Pa).

Dans la chambre de diffusion, plusieurs passages sous vide et fenêtres sont réalisés, ce qui permet respectivement d'introduire les capteurs de pression, et sonde de Langmuir (Smartprobe[®]), et d'étudier le plasma par spectrométrie de masse. Ainsi, on peut étudier, dans des conditions maîtrisées l'interaction plasma – surface, et caractériser l'érosion des matériaux par le plasma, la création d'ions négatifs en surface, l'émission secondaire d'électrons...

II.15.3 La source ECR :

Les sources d'ions à résonance électronique cyclotronique (*electron cyclotron resonance ion source*, ECR ion source) sont des sources principalement utilisées pour la production d'ions en grande quantité. Il s'agit d'une chambre ou règne un champ magnétique intense créé à l'aide d'aimants permanents, ce qui permet à la fois le confinement d'un plasma, d'où sont extraits les ions, et la résonance des électrons qui le composent.

L'équipe PMN étudie et développe des sources d'ions à la Résonance Cyclotronique Electronique (Les réacteurs et sources développés par l'équipe, seront présentés en détail dans le chapitre suivant). L'avantage de ce type de sources, est que la production des ions négatifs, se fait principalement en volume par attachement dissociatif (AD), donc, pas besoin de césium. Le principe de fonctionnement de ces sources ECR sera détaillé dans les sections III.2.2 et III.2.3 (*cf.* chapitre III). A titre d'exemple, nous présentons en **Fig. II.18**, un schéma d'une source d'ions H⁻ ECR développé au CEA Saclay.



Figure II.18 Vue générale sur une source d'ions H ECR à Saclay [95].

Le **Tableau. II.3**, non exhaustif, résume les caractéristiques (courant de pulse, taux et longueur de l'impulsion, cycle et efficacité) pour les modèles de sources étudiés **[96]**.
	Source	Courant de pulse (mA)	Taux de répétition Hz	Longueur de l'impulsion (ms)	Cycle utile (%)	Tension d'extraction (kV)	Intervalle entre maintenance (Jours)	Efficacité Puissance (mA/kW)	Cs
Magnétron	BNL-AGS [97]	95	7.5	0.7	0.5	35	26	67	Oui
	ANL-IPNS [98]	48	30	0.07	0.2	20	16	9.0	Oui
	FNAL [99]	75	15	0.07	0.1	20	16	2.5	Oui
Multicusp	DESY-HERA [100_101]	60	5	0.1	0.05	18	52	8	Non
КГ	[100, 101] SSC [102]	60	10	0.1	0.1	35	1	2.1	Oui
Penning	RAL-ISIC [103]	35	50	0.2	1.0	18	26	8.75	Oui
	INR-MMF [104]	50	100	0.2	2.0	20		8.0	Oui
	LANL (4X) [105]	250	5	1	0.5				Oui
Mulicusp surface convertor	KEK-KENS [106] LANL-LANSCE [107]	18 20	20 120	0.2	0.4 12	50 80	14 4	4.5 1.6	Oui Oui
Multicusp à filaments	Jyvaskyla [108]	3	CW	CW	1.0	5.8	6	3	Non
	Frankfort [109]	120	50	1.2	6.0	35	20	2.4	Oui
	Joint project [110]	60	50	0.2		50	20		
ECR	CEA-Saclay [95]	1.4	5-20	1-5	1-5	12	>6mois	1.56	Non

Tableau II.3 Caractéristiques des principales sources d'ions H

II.16 CONCLUSION :

Dans ce chapitre, les principaux paramètres d'un plasma ont été définis, comme la densité électronique, la température électronique et la longueur de Debye, les potentiels plasma et flottant et les gaines de charge espace. Des notions sur des plasmas dits chauds (par opposition aux plasmas froids) ; plasmas presque totalement ionisés avec des densités et des températures très élevées ; sont données.

Les plasmas chauds sont produits essentiellement dans des tokamaks, puissante machine de confinement magnétique où des réactions de fusion nucléaire peuvent être obtenues. Nous avons parlé brièvement du comportement du plasma en soulignant les efforts scientifiques et technologique à mettre en œuvre par des physiciens et des ingénieurs pour arriver à initier les réactions de fusion.

En seconde partie de ce chapitre, une présentation des différents processus de créations et de pertes d'ions H^- est faite. La production d'ions H^- se fait en surface et/ou en volume : les processus de surface correspondent à l'attachement direct d'un électron par un atome au contact d'une surface et les processus en volume se produisant dans l'enceinte même de la source.

Les processus d'attachement en surface requièrent généralement l'ajout de césium dont le travail de sortie est très bas (1.8 eV). Les processus en volume nécessitent des électrons froids et des molécules ro-vibrationnellement excitées. Ce sont les types de production recherchés en priorité dans le cadre de ce travail puisqu'ils ne requièrent aucune utilisation de césium et autres additifs. Les processus amenant à la création en volume sont alors exposés dans la suite de ce chapitre.

Cette thèse s'intéresse essentiellement au second processus : la réaction dite de désorption recombinative (*DR*). Ce processus implique une assistance en surface par les mécanismes de recombinaison des atomes H du plasma avec la surface : processus de Langmuir-Hinshelwood (L-H), Eley-Rideal (E-R). Ils permettent la création supplémentaire de molécules excitées rovibrationnellement H₂ (v^* , J^*) à celles créées en volume : ce qui contribue favorablement à augmenter la densité d'ions négatifs, à l'issue d'une seconde étape (mécanisme *AD*).

Ce chapitre présente les principales sources d'ions H permettant d'atteindre de forts courants d'ions négatifs extraits (>50mA). Cela nous a permis de distinguer à la fois les avantages et les inconvenants de ces sources. La dernière source citée, la source ECR, apporte de nombreux avantages par rapport aux autres sources existantes, du fait qu'elle peut fonctionner sans césium.

CHAPITRE III

DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX ET DIAGNOSICS

Après un bref historique, la description détaillée du réacteur « **ROSAE-III** », développé au sein du laboratoire LPSC par le groupe PMN (Plasmas-Matériaux-Nanostructures), avec lequel la majorité des résultats ont été obtenus, constituera la première partie de ce chapitre. Dans un second temps, nous présenterons les techniques de caractérisation de la source plasma et des matériaux. Nous exposerons également les méthodes des diagnostics utilisés et les paramètres expérimentaux pour la caractérisation, en termes de densité, de température et de population des espèces du plasma d'hydrogène, dans leurs états, fondamental et excité par : sonde de Langmuir, photo-détachement laser, émission optique visible et VUV.

En fin de chapitre, on découvrira la source « **SCHEME-II** », également conçue et développée au laboratoire LPSC. Cette dernière nous sera utile pour l'étude de la désorption recombinative des atomes en utilisant le rayonnement synchrotron SOLEIL. La présentation d'un modèle numérique accompagne et clôt cette étude expérimentale.

III.1 Introduction :

Au cours de la dernière décennie, des sources plasmas multi-dipolaires ont été utilisées **[111]** et elles trouvent des applications de plus en plus nombreuses, telles que le traitement des matériaux, les dépôts de couches minces ou les accélérateurs pour l'hadron-thérapie (traitement médical à l'aide de faisceaux d'ions de carbone de haute énergie). D'autre part, en raison de la conception et le mode de fonctionnement de ces sources de plasma, à savoir des aimants permanents puissants pour le couplage par Résonnance Cyclotronique Électronique (RCE), la basse pression de travail et une densité électronique élevée, ils sont bien adaptés à l'étude des mécanismes fondamentaux impliqués dans la production d'ions négatifs pour le chauffage du plasma de fusion d'ITER.

Ainsi, ce chapitre présente la conception et l'étude de sources plasma micro-onde très basse pression utilisant le couplage par résonance cyclotronique électronique (RCE). Un bref historique sera donné sur l'évolution de la chambre magnétique multipolaire utilisée : du réacteur Camembert III à la chambre métallique plus petite ROSAE III. J'expose également, une réflexion sur les diagnostics utilisés : sonde électrostatique, photo-détachement laser, émission visible et VUV. Ces outils permettent la caractérisation de la densité des différentes espèces dans le plasma, la température électronique et la population absolue (densité) des ions négatifs.

III.2 Le réacteur ROSAE III :

Parmi les axes de recherche suivis par l'équipe PMN, il est de concevoir, construire et tester des prototypes de sources plasma. Ces études nécessitent des outils de caractérisation plasma, tels que les sondes de Langmuir, la spectroscopie optique. Il a fallu plusieurs années d'études et d'améliorations à l'équipe de recherche pour franchir le pas décisif et aboutir à des dispositifs industriels fiables, basés sur le concept de sources plasma dipolaires à couplage RCE.

III.2.1 Bref historique sur les plasmas dipolaires :

Le principe de distribution ou répartition de puissance appliqué à la génération de plasma a été employé pour la première fois avec succès en 1988 **[112]**. La puissance micro-onde est injectée sur des applicateurs filaires, ou antennes, disposés entre des barres d'aimants de polarités alternées. Ces aimants assurent le confinement magnétique du plasma et les conditions nécessaires au couplage RCE.

Toutefois, ces premiers réacteurs ont montré des inconvénients et des limitations dans leur conception même : apparition de phénomènes parasites, difficulté de générer des plasmas uniformes sur de grandes longueurs et limitation de la densité du plasma à la densité critique.

Afin de contourner ces limitations, la solution adoptée consiste à étendre le concept de distribution en passant d'un réseau unidimensionnel de sources linéaires à un réseau bidimensionnel de sources plasma RCE élémentaires localisées. De cette manière, des sources plasmas uniformes à basse pression sont produits sur de grandes dimensions, de l'ordre du mètre carré, peuvent être réalisées. Ces sources peuvent être alimentées en micro-ondes à partir d'un nombre égal de génératrices micro-ondes pilotées indépendamment.



Figure III.1 Plasma ECR appliqué à un réseau de sources linéaires

La difficulté réside d'abord dans la réalisation d'une source de plasma élémentaire, bien que conceptuellement simple, l'optimisation de ces sources de plasma dipolaires est complexe. Cela nécessite des compétences en propagation des micro-ondes, en circuit micro-onde et dispositif magnétique, ainsi qu'en réacteurs plasma. Ces sources élémentaires sont constituées d'un aimant permanent cylindrique (dipôle magnétique) disposé à l'extrémité d'une structure coaxiale dans lesquels se propagent les micro-ondes. Ensuite, il faut savoir la manière d'assembler un grand nombre de ces sources élémentaires selon un réseau bidimensionnel. Ce type de sources plasma a été inventé à la fin des années 90. Le premier brevet relatif à cette nouvelle génération de plasmas dits multi-dipolaires a été déposé en 1999 par Lagarde et Pelletier **[113]**.

Ce qui a permis le passage entre des structures de laboratoire et des dispositifs industrialisables, le développement allant jusqu'à leur intégration dans des machines de "*process*" pour les applications industrielles. Les deux premiers réacteurs plans basés sur ce principe ont été réalisés par la société MetalProcess, l'un à partir d'un réseau à maille hexagonale, avec des sources élémentaires présentant le même sens d'aimantation, l'autre à partir d'un réseau à maille carrée, avec sens d'aimantation alterné.

Une fois mis au point, les plasmas multi-dipolaires ont démontré leur efficacité pour des traitements de surface de grandes dimensions, et présentent de très nombreux avantages technologiques en termes de flexibilité et fiabilité :

- ✓ simplicité de chaque source élémentaire ;
- ✓ interactions magnétiques réduites entre aimants ;
- ✓ plasmas denses (les micro-ondes n'ont pas à se propager dans le plasma) ;
- ✓ effets de bord réduits ;
- ✓ amorçage du plasma à très basse pression et à faible niveau de puissance micro-onde.

Plus récemment, A. Lacoste et S. Béchu déposèrent un second brevet **[111]** couvrant les applications de production de plasmas en volume, ouvrant la voie à des applications comme la pulvérisation assistée par plasma multi-dipolaire ou le nettoyage des surfaces. Ce type de sources dipolaires est également très bien adapté pour les études sur la production d'ions négatifs.

Les avantages de ces sources se trouvent dans leur capacité à produire des plasmas de haute densité à faible pression, en présence simultané d'électrons, à la fois chauds et froids. On notera que c'est de la volonté d'améliorer les réacteurs plasma existants qu'est né ce concept particulier de source individuelle. Les limitations, nées de l'utilisation de filaments dans les sources d'ions, sont ainsi dépassées **[114]**.

III.2.2 Principe de fonctionnement des Plasmas ECR :

A basse pression, la puissance se perd au niveau des parois, favorisant la création d'électrons chauds, plutôt que de l'ionisation. L'utilisation d'un champ magnétique permet de palier à cette limitation (la pression doit être suffisamment faible pour que le libre parcours moyen des ions soit de l'ordre de grandeur de la dimension de la chambre). Un électron mobile interagissant avec un champ magnétique subit une force de Lorentz perpendiculaire à son mouvement (*d*. **Fig. III.2**). La force étant perpendiculaire à sa vitesse, l'électron décrit un cercle autour de la ligne de champ magnétique (la variation de la vitesse de l'électron change le rayon « appelé : rayon de Larmor » de son orbite mais pas sa période (r larmor = $\frac{mv}{qB}$). Les électrons sont entraînés en rotation autour des lignes de champ magnétique à la fréquence de Larmor Ω .



Figure III.2 Interaction d'un électron mobile avec un champ magnétique

L'onde électromagnétique de fréquence de 2,45 GHz sera en phase avec les électrons et transférera son énergie à chaque cycle. C'est le principe de couplage à Résonnance Cyclotronique Electronique. Ce phénomène de résonance communique aux électrons une grande quantité d'énergie, les lignes de champ magnétique « piègent » les électrons en les forçant à décrire des cercles plutôt que de diffuser librement vers les parois. La probabilité qu'un électron chaud ionise une molécule ou un atome est accrue alors en raison de l'augmentation de la longueur de son trajet, ce qui leur permet d'augmenter la densité du plasma. De cette façon se crée le plasma autour de l'extrémité aimantée et peuvent être maintenus à une pression de quelques mTorr, quand les plasmas conventionnels sont difficiles à obtenir.



Figure III.3 Schéma de déplacement d'un électron sur une ligne de champ.

Par opposition au réacteur ECR classique où la zone de chauffage est localisée à la périphérie du réacteur, les sources dipolaires permettent d'initier le plasma à leur extrémité. Le champ magnétique constant et suffisamment puissant (875 G) est généré par un dipôle magnétique (aimant Sm₂Co₁₇), localisé à l'extrémité d'une structure coaxiale où se propage des micro-ondes (2,45 GHz). Afin d'éviter le chauffage de l'aimant permanant par impact électronique, une circulation d'eau est aménagée dans l'axe central de la source. La **Fig. III.4** montre un schéma de configuration d'une source ECR.



Figure III.4 Schéma de configuration d'une source ECR. Refroidissement non représenté.

III.2.3 Fonctionnement d'une source dipolaire :

Par cette configuration novatrice et en utilisant un nombre suffisant de sources dipolaires, il devient alors possible d'obtenir des plasmas homogènes de grands volumes ou uniformes sur de grandes surfaces. La fiabilité est améliorée par rapport à un réacteur ayant une seule source de couplage puissance électrique/plasma, car la puissance appliquée à chaque source est faible (< 150 W). La source plasma n'est pas rayonnante (elle n'est pas conçue comme une antenne) et le couplage efficace entre le plasma et l'onde électromagnétique permet d'absorber 95 % de la puissance incidente. La figure suivante schématise le champ magnétique généré par l'aimant permanant d'une source dipolaire.



Figure III.5 Schéma de plasma source dipolaire ECR [115]

Nous relatons ici les résultats d'une étude menée par le groupe PMN **[116]**. Une source dipolaire élémentaire a été placée à l'intérieur d'une chambre cylindrique en acier inoxydable, avec un écart (gap) de 4,5mm entre l'extrémité de la ligne coaxiale et l'aimant (*cf.* **Fig. III.6**).



Figure III.6 V ue d'une source de plasma élémentaire **[116]** : La forme en cacahuètes représente la ligne de champ magnétique d'égale intensité (875×10^4 T)

Dans le voisinage du gap (à savoir quelques millimètres de la surface de l'aimant, dans le plan médian), les résultats montrent que :

- Pour une puissance maximale de 1,0 kW, répartie sur 7 sources (i.e. 140W/source), et une pression entre 1mTorr, la température électronique et la densité électronique sont respectivement égales à, 1.5eV et 10^{16} m⁻³;

- Pour la même puissance et une pression de 3mTorr, la température et la densité électroniques, sont respectivement égales : 0.75eV et 3.5×10^{16} m⁻³ [117].



Figure III.7 Source de plasma dipolaire – LPSC Grenoble

Une telle source plasma permet donc de produire un plasma ayant toutes les caractéristiques pour favoriser l'attachement dissociatif et de la production d'ions négatifs.

III.2.4 Réacteur source d'ions H- "Camembert III" :

La première utilisation d'un réseau de sources plasma dipolaires pour la génération d'ions négatifs H, est attribuée à Ivanov et al. **[118]** en 2004. Pour ce faire, le réacteur **"Camembert III"**, représenté schématiquement par la **Fig. III.8**, a été équipé de sept (07) sources dipolaires.





Ce réacteur est consacré à des études fondamentales sur les caractéristiques du plasma et à la production d'ions négatifs H⁻, par des mécanismes en volume. Le début effectif des recherches sur la production d'ions négatifs date de 2003, date de signature de la collaboration entre le Laboratoire de Physique des Plasmas (LPP) de l'école polytechnique et le groupe PMN du laboratoire LPSC de Grenoble. Une coopération accrue depuis 2007, date du transfert du réacteur « **Camembert III** », conçu par Mme M. Bacal, depuis le LPP au LPSC.

La paroi latérale de la chambre magnétique de « **Camembert III** » est en acier inoxydable, d'une hauteur de 450 mm et d'un diamètre de 440 mm. Un réseau multipolaire de sept sources est installé sur la bride supérieure : une source se trouve sur l'axe de symétrie de la chambre et les six autres sont réparties tout autour (sur un cercle de 162 mm de diamètre). Le réseau est alimenté à partir d'un seul magnétron de 1,2 kW de puissance (2.45GHz), celle-ci est partagée en sept parties égales (voir **Fig. III.9b**). La même figure montre l'installation, le long de la surface de paroi latérale, de seize barres aimants permanents cylindriques Sm₂Co₁₇, implantées alternativement Nord/Sud.

Ce dispositif a permis de déterminer les meilleures conditions expérimentales de création en volume des ions négatifs H^{\cdot}. Plusieurs études théoriques (*cf.* bibliographie citée en chapitre. I) font apparaître que certains matériaux peuvent produire des molécules excitées vibrationnellement H₂ (v^* , J^*), et ainsi augmenter la production d'ions négatifs par *AD*. Une étude expérimentale sur le graphite et le tantale a été menée sur Camembert III **[55]**.

Une étude faite en deux volets :

i) mesure de la densité d'ions H⁻, en fonction de la pression de travail à puissance fixe (1 000 W), sans matériau, afin de connaître précisément la densité d'ions négatifs produite par des réactions de volume;

ii) mesures similaires effectuées au voisinage du matériau étudié.

Les résultats obtenus ont montré, que pour :

- Un réacteur vide (sans matériau), la pression pour laquelle la densité maximale d'ions négatifs H (soit $2 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$) est atteinte. Cet optimum pour le réacteur Camembert III se situe entre 4 et 5 mTorr et, dans cette gamme de pression, la densité d'électrons mesurée est de l'ordre de $3 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$ pour une température inférieure à 0,7 eV. Cette valeur de température correspond parfaitement à celle obtenue par Graham [120] et Bacal [121] pour atteindre un rendement maximum de production d'ions H⁻ par attachement dissociatif (AD).

- Pour l'étude de matériau, il s'avère que dans cette gamme de pression, propice à la production en volume, aucune influence de la nature du matériau sur la densité d'ions négatifs H⁻ n'a été observée. La difficulté d'observer une quelconque influence du matériau par rapport à un autre est certainement due à une trop faible surface active du matériau exposée au plasma. Ainsi, les expériences menées avec de petites surfaces (3×10^{-4} m²) de graphite ou de tantale **[55]** n'ont pas permis de mettre en évidence des mécanismes de surface de type Eley - Rideal (E-R) ou Langmuir - Hinshelwood (L-H), alors que, pour le même réacteur, les travaux menés par Bacal **[121]** ont pu les observer avec une surface plus grande (0.6 m²).À plus haute pression (10-30 mTorr) et pour des surfaces de matériaux (Ta et C) plus importantes (Ø 47 mm), une influence du matériau (par rapport à l'inox) avait été observée **[122,123]**.

Parallèlement à ces recherches concernant les matériaux, suite au rôle important pour la production d'ions H⁻, des études relatives aux atomes d'hydrogène ont été effectuées. Des mesures (TALIF/mesures d'absorption laser à 656 nm), que ce soit dans le plasma de diffusion ou au voisinage proche d'une source dipolaire, n'ont pas donné de résultats significatifs.

Cette évaluation, de l'importance relative des différentes réactions de pertes et de créations d'espèces dans la structure Camembert III, montre bien que, malgré la pertinence du réacteur à la production d'ions

négatifs par AD, une autre conception est nécessaire. Notamment, pour la recherche fondamentale sur la possibilité d'amélioration des mécanismes de production des ions d'hydrogène négatifs H⁻ en volume, tout en intégrant l'effet de surface. A cet effet, le groupe PMN (laboratoire LPSC) propose une nouvelle configuration expérimentale dénommée "**ROSAE III**".

III.2.5 Évolution vers le réacteur ROSAE III :

D'après les résultats présentés précédemment, particulièrement sur le nombre non significatif de production des molécules ro-vibrationnellement excitées par le dépôt d'une couche de tantale ou de graphite sur les parois du réacteur Camembert III (aucune augmentation de la densité d'ions négatifs n'a été constatée), une réflexion sur les modifications à apporter au réacteur a été engagée par S. Béchu **[123]**, auteur des travaux cités et initiateur du projet. Tirant parti de ses travaux de recherche antérieurs et des résultats obtenus par Camembert III, il mit en œuvre, simultanément ou dans des conditions expérimentales homologues, des diagnostics complémentaires afin d'obtenir une approche nécessairement globale de l'influence du matériau sur le fonctionnement du plasma d'hydrogène.

La connaissance précise du plasma produit par une source dipolaire (cf. paragraphes III.2.2 et III.2.3) et des mécanismes de production des espèces essentielles (réaction en volume et en surface) à la formation d'ions négatifs (cf. Tableau 2.1) va permettre d'évaluer les modifications à apporter à l'actuel réacteur Camembert III. La nouvelle structure expérimentale baptisée **ROSAE** pour EC**R** hydr**O**gèn pla**S**ma for neutr**A**l b**E**am et optimisée pour l'étude de la production d'ions H⁻par mécanismes de surface a été conçue.

Par souci de clarté, les calculs effectués, pour une géométrie OD, sur la production et les pertes d'espèces instantanées pour l'atome d'hydrogène, dans Camembert III (avant et après modification de la structure expérimentale) seront détaillés en annexe II. Ces calculs permettent de comparer les mécanismes de volume et de surface (désorption) de molécules ro-vibrationnement excitées et ionisation directe et d'estimer les modifications à apporter au réacteur Camembert III.

Ainsi, un cylindre de Pyrex TM de Ø 200 mm, muni d'orifices (*cf.* **Fig. III.9**), est placé verticalement au centre du réacteur, un disque de même nature mobile est inséré dans la partie basse de ce cylindre afin de limiter le volume de plasma. Ce qui permet, de limiter l'expansion du plasma dans la structure et de modifier le coefficient de recombinaison γ de l'hydrogène atomique. Il s'ensuit une très nette augmentation de la concentration en hydrogène atomique dans le plasma et une réduction des ions négatifs H^{-} . Le but étant de caractériser la production de surface de ces molécules excitées, il est donc essentiel de limiter les autres sources de production.



Figure III.9 Modification du réacteur Camembert III en dispositif ROSAE [72].

La seconde évolution porte sur le changement du cylindre intérieur par un DN150 au lieu de Camembert-III, et le passage de sept à quatre sources dipolaires, ce qui a pour conséquence :

- une diminution du volume du plasma.
- une augmentation significative du rapport surface/volume pour accroitre les effets de surface.

ROSAE est donc une source multi-dipolaire à micro-ondes, un prototype réduit du réacteur "Camembert". Cette nouvelle chambre a été conçue de manière à être plus facile à utiliser et à manipuler pendant plusieurs heures de fonctionnement.

Remarque : le dispositif ROSAE-II n'a pas fonctionné correctement : il s'agissait d'un cylindre à double enveloppe refroidie par air contenant une seule source dipolaire. L'absence de surface métallique autour de la source induisait un très mauvais couplage onde/plasma et une très faible densité plasma, d'où l'évolution en ROSAE-III.

III.2.6 Description du réacteur ROSAE- III :

On distingue, sur la photo ci-dessous, l'ensemble des éléments du réacteur ROSAE III : chambre du réacteur, sources ECR, tuyaux de refroidissement, pompe turbomoléculaire, sonde électrostatique, et en périphérie, les différents outils de diagnostics et autres éléments utilisés.



Figure III.10 Photos du réacteur ROSAE III et des différents dispositifs de diagnostics.

En position 1, on observe la chambre du réacteur, il s'agit d'un cylindre en acier inoxydable (304-L), de 152mm de diamètre et 214 mm de longueur. Le vide limite atteint est de 2×10^{-6} mbar. Cette valeur est atteinte en deux étapes :

- 1. Le pompage primaire, assuré par une pompe à palettes (Alcatel 2012 A), elle nous permet d'atteindre une pression de l'ordre de 10⁻³mbar.
- Le pompage secondaire, effectué par deux pompes turbo moléculaire (Alcatel ATP 150l/s) (position 6), afin d'aboutir à une pression résiduelle limite de 10⁻⁶ mbar.

Quatre sources dipolaires, situées à une extrémité du cylindre métallique de ROSAE-III (position N° 04 de la **Fig. III.10**), entretiennent une décharge micro-ondes (2.45GHz) pour une puissance maximale de 200W grâce à un générateur à état solide (SAIREM[®]). Ces sources sont chacune équipées d'un adaptateur d'impédance, ce qui permet de réduire au minimum la puissance réfléchie. Le gaz (H₂ ou H₂+Ar) est injecté dans l'enceinte à travers un débit mètre massique (Mass Flow) qui permet de contrôler son débit.

Sur la surface latérale de la chambre, position 2 et 3 de la **Fig. III.10**, on discerne des emplacements qui permettent d'accueillir les instruments de diagnostics. Cette configuration, par le choix de l'emplacement de l'appareil de mesure, permet de réaliser nos mesures en deux endroits différents du plasma.

Par ailleurs, sur la même figure, on affiche des images sur les appareillages de mesure, tels que :

- Pour les mesures optiques : le spectromètre d'émission VUV (emplacement N°17) et le spectromètre d'émission visible (emplacement N°13). En place N°12, se trouve le système optique par lentilles à quatre focales, permettant un balayage afin de déterminer le profil radial des espèces neutres du plasma.
- Pour les mesures électrostatiques: on distingue la sonde de Langmuir et son bras mobile (indication N°09 et 14).
- Le Laser Nd :YAG(N°12), qui par la technique du photo-détachement, permet de mesurer la densité absolue des ions H⁻. Le signal de photo-détachement est enregistré par l'oscilloscope, repéré en position 15.
- Et enfin le système de refroidissement à eau (tuyau rouge visible en N° 05), utilisé pour refroidir le réacteur, les pompes turbomoléculaires et les sources.

La **Fig. III.11** schématise cette même chambre avec plus de précision le positionnement des deux emplacements pour nos investigations expérimentales (position A et B), emplacement du matériau à analyser (position 1 et 2), positions des outils de diagnostic, des enregistreurs et autres éléments inhérents à notre manipulation.



Figure III.11 Schéma de ROSAE III et outils de diagnostics, le tube mobile en PyrexTM couvrant la chambre du réacteur est représenté en rouge.

- La position « A » de la **Fig. III.11**, la position la plus proche des sources ECR, à 9mm par rapport à leurs extrémités, marque la zone où la majorité des espèces du plasma sont créées.
- La position « B », elle, distante de la précédente de 70 mm, correspond à la région de diffusion des espèces.
- Les positions «1» et «2», respectivement au niveau des sources et au fond de la chambre, correspondent à l'emplacement du matériau à étudier.

L'avantage de ce réacteur, réside dans la possibilité d'y introduire un cylindre en verre borosilicate (Pyrex TM), de 5mm d'épaisseur (en rouge sur la **Fig. III.11**) en même temps que deux disques latéraux, de même nature. Ainsi, la totalité de l'intérieur de la chambre en acier est couverte par ce matériau. De cette manière, le plasma d'hydrogène fait face à un matériau à faible coefficient de recombinaison (γ_{H} = 0.004 pour le Pyrex TM à 280°K). L'acier inoxydable, ayant un γ_{H} de 0.5. Le changement de matériaux Pyrex TM ou Inox, permet ainsi une recombinaison plus au moins importante des atomes d'hydrogène sur les surfaces interne du réacteur **[124,125]**.

L'ensemble des mesures et les moyens de diagnostic : électrostatique, photo-détachement laser et optique (Visible et VUV), à réaliser dans la zone de création (Position « A ») et la zone de diffusion (position « B »), seront détaillés dans les paragraphes qui suivent.

III.3 Le diagnostic par sondes de Langmuir :

III.3.1 Introduction :

Dans le but d'effectuer des mesures sur les ions négatifs d'hydrogène, il est indispensable de connaître précisément le plasma, et donc de mesurer certains paramètres importants. Les sondes de Langmuir (ou sondes électrostatiques) doivent leur nom au physicien américain Irving Langmuir, qui fut le premier à mettre au point et exploiter ce diagnostic en 1926 **[126]**. Elles présentent, pour l'expérimentateur, un moyen attrayant pour obtenir rapidement et à faible coût des informations absolues sur les densités électronique N_e et ionique N_i , la température des électrons T_e , le potentiel plasma V_p et le potentiel flottant V_f . De plus, ce diagnostic est le seul moyen expérimental permettant une mesure absolue et locale de la fonction de distribution en énergie des électrons FDEE.

La connaissance de cette distribution statistique, en fonction des conditions expérimentales, s'avère essentielle pour valider un modèle théorique prédictif du comportement d'un plasma. Enfin, ces sondes, bien qu'intrusives, sont intrinsèquement locales.

A cet effet, dans notre dispositif expérimental, on utilisera deux sondes de Langmuir SmartProbe[©] de chez Scientific Systems, avec 0.23 mm de diam. / 4 mm de long. & 0.18 mm de diam. / 7.6 mm de long, respectivement, en A et B. Une sonde fixe, placée à proximité de la source ECR (position [A] sur la **Fig. III.11**). Elle nous permettra, comme nous l'avons déjà cité, de mesurer les paramètres en zone de création du plasma. En revanche, afin de déterminer le profil des paramètres plasmas, le long de la chambre (position [B] du schéma III.11), en zone de diffusion du plasma, nous avons opté pour l'utilisation d'une sonde électrostatique mobile.

Pour cela, la sonde est ajustée sur un bras mobile automatisé, ce qui permet de se déplacer radialement dans la chambre, de la paroi jusqu'au centre du plasma, par pas de 5mm. A chaque étape, des mesures locales sont effectuées et enregistrées automatiquement dans le système d'acquisition des données. Et, ainsi de suite, jusqu'à obtenir le profil radial de chaque paramètre du plasma.

III.3.2 Description :

Une sonde de Langmuir est généralement une tige métallique de tungstène qui va collecter un courant en fonction de la différence de potentiel appliquée entre l'extrémité de la sonde et une référence de potentiel (généralement le corps du réacteur). Le diamètre du support doit être inférieur au plus petit libre parcours moyen (\approx quelques millimètres) et la surface de collection en accord avec la densité estimée (\approx quelques mm²).

La méthode d'analyse repose sur un principe de base relativement simple : elle consiste à analyser la variation du courant collecté par la sonde en fonction de la tension de polarisation appliquée.

L'analyse de la caractéristique courant-tension $I_s = f(V_s)$ et de sa dérivée, dont un exemple est représenté sur la **Fig. III.12**, permet de déterminer les paramètres fondamentaux du plasma. Cette méthode est couramment utilisée en physique des plasmas, étant donné la simplicité de fabrication et d'utilisation de telles sondes.



Figure III.12 Exemple de courbe obtenue par le système de sonde SmartProbe[®] Sonde cylindrique - Puissance = 150W - Pression de 9mTorr En bleu : la courbe expérimentale, en rouge : la courbe théorique et en vert : la dérivée première de I(V)

Le terme électrostatique renvoie à l'utilisation d'un champ électrostatique crée par application d'une différence de potentiel ($Vs = \Phi_s - \Phi_p$) entre l'élément de sonde, *i.e.* une surface conductrice convexe quelconque placée au potentiel Φ_s , et le potentiel du plasma Φ_p . En fonction du signe de cette différence de potentiel, les espèces chargées se trouvant au voisinage de la sonde sont attirées ou repoussées suivant leurs signes.

Un courant *I*_s correspondant à la somme algébrique des flux de particules positives et négatives collectées est alors mesuré. Ainsi, cette technique expérimentale simple permet, en fonction d'hypothèses qu'il convient de valider, d'obtenir de façon locale et absolue presque tous les paramètres plasma : Il apparaît donc intéressant de bien en maîtriser l'utilisation et d'en souligner les limites pour garantir la fiabilité de ces paramètres : N_e, N_i, T_e, V_p, V_f, f_{dee} et éventuellement la vitesse de dérive V_{dérive} des électrons pour des plasmas anisotropes.

Ces sondes peuvent être planes, cylindriques ou sphériques, nous allons préciser ci-dessous les avantages et les inconvénients de chacune.

1. Sondes collectrices planes :

Il s'agit d'un disque de métal, très fin et de petit diamètre : ce disque est relié par un fil électrique, entouré d'une gaine isolante, à un générateur, permettant de polarisé la sonde. Le disque de métal est de petites dimensions afin de ne pas perturber le plasma. Les matériaux les plus utilisés pour fabriquer une sonde sont le tantale, le tungstène et le molybdène. En effet, ces matériaux résistent bien à la chaleur, à la pulvérisation.

L'isolation électrique est réalisée à l'aide de tubes de céramique, qui est un composant également très résistent à la chaleur. Le fil, quant à lui, est recouvert de téflon. Cette isolation assure que la surface de collection de la sonde est exactement égale à la somme des aires de chaque face du disque métallique : seul ce conducteur doit collecter du courant.

La sonde introduite dans le réacteur par une ouverture et reliée par un câble coaxial à un générateur de tension pilotable, généralement [-100V; +100V] pour une puissance de quelques KW. Seuls le disque métallique et une petite longueur d'isolant pénètrent à l'intérieur de l'enceinte. La figure ci-dessous nous montre la constitution d'une sonde plane.



Figure III.13 a) Schéma d'une sonde plane. b) Photographie d'une sonde plane.

2. Sondes collectrices cylindriques :

C'est le type de sondes le plus simple à réaliser. La forme de la surface de collection est désormais cylindrique. On utilise des fils de tantale ou de tungstène. Ce choix s'explique par la haute température de fusion du matériau. Un fil de platine (Pt) sera préféré en cas de mesures au plasma SF₆, car le platine est inerte chimiquement vis-à-vis du fluor (F).



Figure III.14 Exemples de forme de sonde électrostatique [127], a) Sphérique, b) cylindrique.

Nous présentons en **Fig. III.15** l'allure d'une courbe $I_s = f(V_s)$, obtenue avec une sonde simple cylindrique expérimentale. Les potentiels plasma¹⁵ (Φ_p correspond au point d'inflexion de la courbe **[128]**) et flottant sont indiqués dessus.



Figure III.15 Allure d'une courbe $I_s = f(V_s)$ sonde simple cylindrique expérimentale [72].

III.3.3 Fonctionnement d'une sonde électrostatique :

Les hypothèses de base pour l'utilisation des sondes de Langmuir sont les suivantes [129] :

- la gaine est non collisionnelle ;
- le plasma est un milieu équipotentiel, stationnaire où il se produit suffisamment de collisions entre particules (électrons-électrons et ions-ions) pour que les fonctions de distributions soient considérées isotropes maxwelliennes;
- les dimensions de la sonde, support et partie collectrice, sont faibles par rapport aux libres parcours moyens des espèces du plasma;
- les particules chargées arrivant sur la surface collectrice sont toutes neutralisées et l'émission secondaire est nulle.

L'analyse morphologique de la courbe $I_s = f(V_s)$ présentée sur la **Fig. III.16**, amène à distinguer clairement, sur cette caractéristique obtenue à l'aide d'une sonde plane, trois régions distinctes : les zones de collection ionique pour des potentiels $\Phi_s << \Phi_P$ où les ions sont essentiellement collectés et électronique pour $\Phi_s > \Phi_P$ où les espèces chargées négativement sont attirées vers la sonde. L'analyse fine de cette courbe doit s'effectuer en ayant à l'esprit le rôle de la barrière électrostatique qui permet de repousser les particules chargées ayant le même signe.



a. Sonde plane, courbe théorique.

b. Sonde cylindrique, courbe expérimentale.

Figure III.16 Caractéristique morphologique d'une sonde plane Image d'enregistrement réel par S. Béchu [127] : Pression 0.1 Torr, Puissance = 800 W, Ar pur.

1. Zone répulsive $V_s \langle \langle V_f \, : \,$

La sonde est polarisée très négativement par rapport au plasma, elle attire donc les ions positifs et repousse les électrons. Il se forme autour de la sonde une gaine d'ions. Cette zone de charge d'espace positive limite le courant extrait, qui est purement ionique. Ainsi, si la sonde est polarisée négativement à -10 V, i.e. V_s= $\Phi_s - \Phi_p = -10$ V, seuls les électrons ayant une énergie cinétique supérieure à 10 eV en direction de la sonde pourront franchir la barrière de potentiel et atteindre la surface collectrice et ainsi contribuer au courant collecté.

2. Zone attractive $V_s angle V_p$:

C'est le cas inverse du précédent, la sonde attire les électrons et repousse pratiquement tous les ions (température des ions \approx température des neutres ≈ 300 K). Le courant recueilli est alors purement électronique (La gaine est une gaine d'électrons) :

* Pour V=V_p, il n'y a plus de gaine, ni électronique, ni ionique. La sonde collecte les courants thermiques ioniques et électroniques. Les électrons étant beaucoup plus énergétiques que les ions, le courant collecté est essentiellement électronique.

* Pour V= $V_{\rm f}$ le courant collecté par la sonde est nul. Les courants électronique et ionique sont égaux.

3. Zone exponentielle $V_f \langle V_s \langle V_p :$

Autour du potentiel flottant, le courant augmente de façon exponentielle si la distribution est Maxwellienne, la sonde attire les ions sans repousser tous les électrons de température T_e . En effet, contrairement aux ions, les électrons du plasma ont une température (donc une énergie) élevée, typiquement de l'ordre de quelques eV. Cette énergie va permettre à certains électrons de franchir la barrière de potentiel présente devant la sonde polarisée à une tension inférieure au potentiel plasma. Entre V_f et V_p , elle recueille essentiellement un courant électronique, alors qu'en dessous de V_f , le courant est dû aux ions positifs.

Á partir du développement et des adaptations des principales théories rendant compte de la collection des espèces chargées au travers de la gaine et des expressions analytiques des courants, on peut par l'analyse complète de cette caractéristique de sonde (comme on l'a auparavant souligné) déterminer les paramètres fondamentaux d'un plasma. C'est ce que nous développons dans le paragraphe suivant et détaillons certaines de ces utilisations.

III.3.4 Détermination des paramètres caractéristiques d'un plasma :

L'exemple type de caractéristique de la sonde présenté en Fig. III.17 permet de déterminer les paramètres caractéristiques d'un plasma.



Figure III.17 Interprétation d'une caractéristique de sonde

Les grandeurs sont calculées, soit directement de la caractéristique $I_s = f(V_s)$, soit à partir de sa dérivée première ou seconde, soit parfois par utilisation de la méthode des pentes, qui consiste à tracer en coordonnées semi logarithmiques (si maxwelienne, sinon dérivée seconde pour une sonde cylindrique), du courant électronique.

Le tracé de la caractéristique permettra aussi de déterminer certains paramètres qu'on décrira par la suite :

(i) Tout d'abord, le potentiel flottant est obtenu immédiatement de la caractéristique $I_s(V_s)$:

En effet, c'est le potentiel pour lequel le courant collecté par la sonde est nul.

(ii) Pour la détermination du potentiel plasma, plusieurs méthodes sont envisageables :

La méthode généralement employée utilise le fait que la caractéristique $I_s = f(V_s)$ présente un point d'inflexion au niveau du potentiel plasma. On peut donc déterminer V_p en traçant la dérivée première ou seconde de la caractéristique. V_p correspond alors au maximum de la dérivée première I'(V) et à une racine de la dérivée seconde I''(V). Ce coude est clairement visible lorsque l'on travaille avec des sondes de grande dimension (planes par exemple).

En revanche, il est plus difficile à distinguer avec des petites sondes cylindriques. Pour les sondes planes, on utilise aussi parfois la méthode des pentes, qui consiste à tracer en coordonnées semi logarithmiques le courant électronique I_e en fonction de la tension de polarisation V. Le potentiel plasma V_p est alors l'abscisse du point de concours de la partie linéaire (pour V_s $\langle V_p \rangle$) et de l'asymptote de la partie saturation électronique (V_s \rangle V_p) (point B sur la **Fig. III.16**).

(iii) Pour déterminer la valeur de la température électronique :

On utilise la variation exponentielle du courant électronique pour des tensions inférieur à V_p. En effet, en traçant le courant électronique en coordonnées semi logarithmiques en fonction de V, on doit obtenir une droite d'équation, si et seulement si la FDEE est Maxwellienne :

$$\ln \left| I_e \right| = cste + \frac{e(V - V_p)}{kT_e}$$
(III.1)

Si on exprime T_e en électron volts, la pente de cette droite est directement égale à $\frac{1}{T_e}$. Deux relations pratiques permettent un calcul rapide de la température électronique :

$$T_e(eV) = \frac{\Delta V(V)}{2.3}$$
 où $T_e(K) = 5040\Delta V(V)$ (III.2)

Où ΔV est la variation de tension correspondant à une variation d'une décade du courant électronique (*f.* Fig. III.17).

Les exemples ci-dessous, issus des travaux de S. Béchu, instruisent sur ces méthodes. Il s'agit d'une représentation semi-logarithmique de la caractéristique $I_s = f(V_s)$ appliqué à une sonde cylindrique dans un plasma d'argon.



Figure III.18 Représentation semi-logarithmique du courant électronique collecté I_e en fonction du potentiel V_s appliqué à une sonde cylindrique dans un plasma d'argon.

(iv) La densité électronique :

Elle est généralement obtenue à partir de la valeur du courant mesuré à $V=V_p$. En effet, lorsque la sonde est polarisée au potentiel plasma, le courant ionique peut être négligé devant le courant thermique électronique I_{the}. Connaissant l'expression de I_{the} qui est :

$$\left|I_{the}\right| = \frac{1}{4} A_s e n_{e0} \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}}$$
(III.3)

 A_s représente la surface de la sonde et n_{e0} est la densité électronique dans le du plasma : on peut ainsi en déduire la valeur de la densité électronique.

K_B: constante de Boltzmann (1,38.10⁻²³ J.K⁻¹).

(v) Pour la densité ionique :

Dans le cœur d'un plasma électropositif (i.e. ne contenant que des ions positifs et des électrons), elle est égale à la densité électronique.

(vi) Exemples d'enregistrement de caractéristiques de sondes :

Nous illustrons, ci-dessous, quelques exemples d'enregistrement de la caractéristique $I_s = f(V_s)$ obtenues par une sonde cylindrique, dans un plasma d'hydrogène, dans nos propres conditions expérimentales¹⁶.



Figure III.19 Exemples d'enregistrement de caractéristique $I_s = f(V_s)$. a. Acier inoxydable, b. PyrexTM. P=150W, p=9mTorr.

¹⁶ Puissance 600 W, pression de 9 mTorr, pour de l'acier et du Pyrex.

III.3.5 Mesures dans les plasmas magnétisés :

Ce paragraphe va nous permettre de détailler certaines utilisations des sondes dans des plasmas magnétisés. Cet argumentaire, développé pour répondre aux conditions expérimentales particulières présentées dans les chapitres suivants, s'inspire abondamment des travaux et des cours de S. Béchu [72].

D'après l'expression de la force de Lorentz \vec{F}^{17} , la trajectoire d'une particule chargée animée d'une vitesse \vec{v} est modifiée par la présence d'un champ magnétique \vec{B} . Il est donc essentiel de tenir compte de la présence du champ magnétique lors de l'analyse des courbes de sonde $I_s = f(V_s)$ mais aussi lors du choix de la géométrie et de l'orientation de la sonde par rapport à \vec{B} . Une première procédure d'analyse a été développée dans les années 1970 pour traiter les mesures de sonde réalisées au voisinage de plasma de fusion [130, 131, 132,133]. Ces auteurs utilisent deux coefficients de diffusion $\Psi_{I/}$ (parallèle) et Ψ_{\perp} (perpendiculaire) pour tenir compte de la présence d'un champ magnétique uniforme orienté perpendiculaire à la sonde. L'étude par sondes de Langmuir des plasmas magnétisés nécessite donc un choix judicieux de l'orientation de la sonde par rapport aux lignes de champ. D'autres auteurs, tels que Laframboise et Rubinstein, ont quant à eux généralisé les calculs orbitaux au voisinage de la sonde dans plusieurs articles [134,135]. Ces théories complètes prennent en compte aussi bien l'intensité du champ magnétique appliqué que son orientation par rapport à la sonde. Ainsi, il devient possible d'estimer l'impact du champ magnétique sur la courbe $I_s = f(V_s)$ connaissant le module de \vec{B} et son orientation par rapport à la sonde.

Dans notre cas, en position A, la sonde est orientée perpendiculairement au champ magnétique, en ces conditions, le coefficient Ψ_{\perp} , tel que défini par Popov et al. **[136]**, reste négligeable : sa valeur est de 2.5 10^{-3} pour un champ de 2.5 10^{-4} T. Quant à la position B¹⁸, elle, indépendante de l'orientation du vecteur magnétique par rapport à la sonde ; dans ce cas également, on montre que l'amplitude des deux coefficients de diffusion $\Psi_{//et}$ Ψ_{\perp} restent négligeables, respectivement, pour un champ magnétique inférieur à 10^{-4} T, correspondent les valeurs de $\Psi_{\perp} \approx 0,01$ et $\Psi_{//\approx} 0,4$.

En conclusion, dans les deux positions A et B, sous l'hypothèse d'un plasma isotrope, la théorie de Druyvesteyn reste valable **[137]**. Le rapport des densités (ions négatifs et électrons) reste inférieur à 0,05. Par conséquent, le potentiel au bord de la gaine ou le critère de Bohm n'est pas affecté **[138]**.

III.3.6 Etude de la population électronique isotope chaude :

Certains travaux **[139]**, avertissent que la production de plasma par couplage RCE génère immanquablement la présence de populations isotropes importantes d'électrons chauds. Leur présence se signale immédiatement par une dérive du potentiel flottant vers des valeurs plus négatives (par rapport au potentiel plasma) que celles observées couramment ou calculées par la relation suivante :

$$V_f = -\frac{k_B T_e}{2q} \left[1 + ln \left(\frac{m_i}{2\pi m_e} \right) \right]$$
(III.4)

Toutefois ce décalage du potentiel flottant est souvent difficile à relier à une température. En effet, la densité de ces espèces plus chaudes reste faible. Ainsi, la relation (III.4) qui suppose une seule population maxwellienne d'électrons n'est plus valable et une analyse particulière de la courbe $I_s = f(V_s)$ doit être menée.

Sur la **Fig. III.18** (exemple (b)), représentation semi-log du courant électronique I_e collecté au voisinage d'une source dipolaire, deux populations maxwelliennes distinctes sont présentes (froide et chaude). Les températures moyennes de ces deux groupes d'électrons sont 4,5 eV et 26 eV respectivement. En revanche, le rapport des densités des deux populations est de l'ordre de 25. Il est donc nécessaire d'utiliser un algorithme particulier pour l'analyse des courbes caractéristiques $I_s = f(V_s)$ obtenues.

De ce fait, pour estimer cette population d'électrons, un logiciel automatique d'analyse de courbes $I_s = f(V_s)$ procédant par étapes a été développé par S. Béchu. Les courants ioniques et électroniques sont décrits par des relations analytiques (*cf. eq.* III.5 et III.6) qui sont des approximations à quelques pourcent près des abaques calculés par Laframboise [140] ou Chen [141].

$$I_i = qA_s n_i \sqrt{\frac{2kT_e}{\pi m_i}} (\beta + |\chi|)^{\alpha} \qquad \text{(III.5)} \qquad I_i = a \left(\frac{\chi}{b}\right)^c \qquad \text{(III.6)}$$

Ce logiciel, développé sous Matlab[®], procède en 9 étapes à la résolution par convergence non linéaire sur la zone exponentielle pour déterminer n_e et T_e (densité et température) des électrons froids et chauds, ainsi que la densité ionique n_i . Après lissage et l'élimination d'éventuels points aberrants, on commence par une première estimation de la densité n_i à V_p par utilisation du courant de Bohm, à *Te* fixée. Ensuite, on détermine la densité ionique n_i par convergence non linéaire sur la zone de saturation ionique, ajustement d'une courbe synthétique représentative du courant ionique pur $I_i = f(V_s)$ issu des théories radiales et orbitales (i.e. OML¹⁸, Laframboise et ABR¹⁹) sur la courbe expérimentale $I_s = f(V_s)$.

On poursuit par une procédure de convergence non linéaire (méthode de Nelder-Mead [144]) sur la branche de saturation électronique (si elle existe). Ensuite, le potentiel plasma est recalculé par itération, c'est-à-dire par une nouvelle estimation de la densité et de la température des populations d'électrons et nouvelle procédure, jusqu'à convergence, pour déterminer n_i . Cette procédure est réitérée une seconde fois en prenant comme paramètres d'entrée pour les densités et températures les valeurs obtenues à l'issue de la première itération.

¹⁸ OML : Orbital Motion Limited **[142]**, théorie des plasmas peu denses à des pressions de l'ordre de la centaine de mTorr (i.e. plasmas RF) qui suppose des trajectoires orbitales dans la gaine. L'énergie et le moment cinétique sont supposés conservés et le rapport du rayon de sonde sur la longueur de Debye doit être tel que : $rs/\lambda D \le 3$.

¹⁹ ABR :Allen-Boyd-Reynolds**[143]**, théorie simplifiée, elle suppose qu'il n'y a aucun mouvement orbital, tous les ions sont tirées radialement dans la sonde.

Cet algorithme, que l'on peut qualifier de standard, a été plus ou moins complexifié suivant les auteurs [145,146] et prend moins de une seconde.

Les **Figs. III.20** a) et b) présentent des résultats d'analyse de la zone exponentielle d'une courbe $I_s = f(V_s)$ expérimentale, présentant un potentiel flottant très négatif. La convergence finale du modèle, trait rouge, est très similaire à l'allure de la courbe expérimentale (carrés bleus).

Ainsi, la méthode d'analyse automatique explicitée ci-dessus a permis d'extraire de cette courbe les caractéristiques, température et densité, des deux populations d'électrons froids et chauds (cf. Fig. III.21a), respectivement n_{e1} , T_{e1} , n_{e2} , T_{e2} , ainsi que le potentiel plasma, le potentiel flottant et la fonction de distribution en énergie des électrons. Le courant I_{dc} , courant collecté par la sonde (maximum de la courbe $I_s = f(V_s)$), nous sera utile pour le diagnostic Laser par photo-détachement, afin de déterminer la densité des ions H (cf. paragraphe III.3.4).



Figure III.20 a. Résultat de l'ajustement sur une courbe expérimentale filtrée (verte) du modèle à deux températures maxwelliennes (courbes noires) sur la partie répulsive pour les électrons. b. ajustement sur toute la courbe expérimentale filtrée (bleue) de modèles pour les zones inférieure et supérieure à Vp = 0.

III.3.7 Mesure de la fonction de distribution en énergie des électrons :

Druyvesteyn fut le premier à démontrer **[147]** que, pour un plasma isotrope, la dérivée seconde du courant électronique collecté par une sonde convexe de forme quelconque est proportionnelle à la fonction de distribution en énergie (*f.* eq. III.7).

$$G(\varepsilon) = \frac{2 m_e}{q^2 A_s} \sqrt{\frac{2 q V_s}{m_e}} \frac{d^2 I_e}{d V_s^2} \qquad (m^{-3} e V^{-1})$$
(III.7)

Ainsi, il est possible de déterminer les paramètres plasma sans aucune hypothèse sur le type de fonction de distribution du plasma pourvue qu'elle soit isotrope. La densité et la température s'obtiennent par intégration de cette fonction de distribution :

$$n_e = \int_0^{\varepsilon \max} G(\varepsilon) d\varepsilon$$
 et $T_e = \frac{2}{3} \int_0^{\varepsilon \max} \varepsilon G(\varepsilon) d\varepsilon$ (III.8)

Dans le cas d'une double population d'électrons, ce qui est avéré dans quelques de nos résultats par la présence d'électrons chauds et froids, il convient de déconvoluer la *fdee* expérimentale en composantes qui peuvent être ou non maxwelliennes. Cette déconvolution est réalisée en utilisant la fonction d'ajustement non linéaire fminsearch.m de MatLab[®] (déjà exploitée pour l'analyse séquentielle des courbes $I_s = f(V_s)$). Les équations III.9 et III.10 donnent les expressions des *FDEE* théoriques maxwellienne et druyvesteynienne **[148]** employées dans les procédures d'ajustement non linéaires.

$$f_{Maxwell}(V_s) = 2n_e \sqrt{\frac{V_s}{\pi}} (T_e)^{-\frac{3}{2}} e^{-\frac{V_s}{T_e}}$$
 (m⁻³ eV⁻¹) (III.9)

$$f_{Druveystein}(V_s) = 2\pi n_e \left(\frac{2q}{m_e}\right)^{\frac{3}{2}} 1.04 \frac{\sqrt{\pi V_s}}{2} \left(\frac{m_e}{2\pi k_B T_e}\right)^{\frac{3}{2}} e^{-0.55 \left(\frac{V_s}{T_e}\right)^2} \qquad (\text{m}^{-3}.\text{eV}^{-1})$$
(III.10)



Figure III.21 Déconvolutions de la fdee (cercles rouges) issue de la courbe $I_s = f(V_s)$, a. caractéristique bruitée ($\sigma = 0,1$) présentée **Fig. III.20a**, et non bruitée, **b**. en deux populations (courbes noires pointillées) d'électrons froids et chauds. La somme de ces deux populations correspond à la courbe bleue **[72]**.

La Fig. III.21a présente le résultat de ce type d'ajustement sur la *FDEE* obtenue à partir de la courbe théorique $I_s = f(V_s)$ bruitée ($\sigma = 0,1$), caractéristique reproduite en Fig. III.20a. La Fig. III.21b permet de s'assurer de la validité de la procédure car le modèle (ligne bleue) est parfaitement ajusté sur la courbe rouge (courbe $I_s = f(V_s)$) initiale non bruité.

Cette méthode requiert toutefois le calcul de la dérivée seconde du courant de sonde pour une excursion en énergie allant jusqu'à quelques dizaines de volts en dessous de V_p . Pour effectuer ces calculs, plusieurs auteurs préconisent l'utilisation d'un fenêtrage gaussien, employé pour le lissage de données spectrales, au lissage des courbes $I_s = f(V_s)$ [149, 150, 151,152]. Il existe différentes possibilités de fenêtrage (Gaussien, Kaiser ou Flat Top), il appartient à l'expérimentateur de choisir cette fonction.

Dans ses travaux, S. Béchu **[72]** présente les résultats de ce type de filtrage appliqué à une courbe $I_s = f(V_s)$ synthétique sur laquelle a été volontairement ajouté un bruit gaussien d'écart type σ =0,1 proportionnel au courant collecté (courbe $I_s = f(V_s)$ rouge **Fig. III.21a**). La **Fig. III.21b** présente son traitement par les trois types de filtres cités ci-dessus. Pour ce faire, il a utilisé la fonction « FiltFilt .m» de MatLab.

Cette fonction applique deux fois un filtre classique de manière symétrique : ainsi, le signal est filtré mais n'est pas déphasé. On constate que le filtre joue efficacement son rôle, car les courbes verte, noire et bleue correspondant aux différents fenêtrages utilisés ne déforment pas la courbe initiale non bruitée représentée en traits rouges pointillés.

Une fois cette opération de filtrage effectuée, il convient de calculer la dérivée seconde de la courbe $I_s = f(V_s)$. La méthode de Savitsky-Golay (S-G) [153] permet de filtrer et de calculer simultanément les dérivées première et seconde.



Fig. III.22 a. Courbe synthétique $I_s(V_s)$ bruitée ($ne_1 = 1018 \text{ m}^3$, $Te_1 = 1,5 \text{ eV}$, $ne_2 = 0,1 1018 \text{ m}^3$, $Te_2 = 15 \text{ eV}$ et écart type du bruit. Gaussien appliqué : $\sigma = 0,1$). **b**. Résultat de l'utilisation de la fonction filtfilt.m de MatLab en utilisant différents fenêtrages (Gaussien, Kaiser et Flat Top).

Les courbes présentées sur la **Fig. III.23** permettent de comparer la dérivée seconde théorique (courbe bleue) au résultat obtenu par la méthode de S-G appliquée à la courbe $I_s = f(V_s)$ de la **Fig. III.22a**. Ainsi, bien que bruitée initialement, il est possible de calculer la dérivée seconde de la courbe de sonde. Pour la suite de nos travaux, c'est ce formalisme que nous utiliserons, pour l'ensemble des enregistrements $I_s = f(V_s)$ des caractéristiques des sondes électrostatiques.



Fig. III.23 Comparaison des dérivées secondes théorique (trait continu bleu) et obtenue à partir de la courbe bruitée par utilisation successive d'un filtre (fenêtre de Kaiser) et de la méthode de Savitsky-Golay d'ordre 5 (trait continu et points rouges). Le développement des programmes d'analyse des courbes $I_s = f(V_s)$ obtenues est réalisé au sein même de l'équipe Plasma du laboratoire²⁰. Tous ces programmes sont automatiques, sauf celui permettant le calcul et la déconvolution de la *FDEE*: *i.e. n* courbes $I_s = f(V_s)$ sont placées dans un répertoire et le programme les traite à la suite pour déterminer les paramètres plasma sans intervention de l'opérateur.

En revanche, il est nécessaire à l'opérateur de connaître les conditions expérimentales de la mesure pour utiliser le bon programme : i.e. présence d'un champ magnétique / faisceau d'électrons / sonde émissive / analyseur électrostatique / ...

III.4 Le diagnostic par photo-détachement laser :

Parmi les outils de diagnostic utilisés pour l'étude des sources d'ions négatifs : le laser, qui par la technique du Photo-détachement, permet de mesurer la densité absolue des ions H⁻. L'intérêt de ce type d'outil, est de corréler la densité d'ions H⁻ produite avec le courant extrait.

Nous préciserons, dans ce qui suit, sous quelles conditions la technique de photo-détachement permet d'obtenir la densité relative d'ions négatifs n_i^-/n_e . La connaissance de cette quantité est très importante. Il est utile de connaître la distribution de densité d'ions H⁻ pour évaluer la performance globale de la source et pour optimiser l'extraction de ces ions.

III.4.1 Description :

Le principe du photo-détachement est l'interaction d'un photon avec un ion négatif, le menant ainsi vers un niveau excité virtuel. Pour se stabiliser l'ion négatif redistribue l'énergie excédentaire reçue à un électron du cortège électronique.

Ceci entraîne sa libération vers le continuum avec une énergie cinétique égale à la différence entre l'énergie du photon et l'intervalle énergétique entre le niveau de départ de l'ion négatif et le niveau d'arrivée de l'atome neutre. L'électron émis ne laisse alors derrière lui qu'un atome neutre avec lequel il n'interagit quasiment plus faisant de son mouvement celui d'un électron libre : la figure ci-dessous représente ce processus de photo-détachement.

²⁰ Même si je n'ai pas développé ces softs, je les ai exploités de façon autonome durant ma thèse.



Figure III.24 Schématique du processus de photo-détachement

Le photo-détachement laser est la seule méthode existante actuellement capable de mesurer à la fois la densité et la vitesse des ions négatifs à l'intérieur d'un plasma. L'outil de diagnostic utilise l'étude de la formation de ces électrons libres par un tir de laser.

La réaction peut s'écrire de la manière suivante :

$$H + hv \longrightarrow H + e^-$$
 (III.11)

La technique de photo-détachement pour la mesure de la densité relative d'ions négatifs dans un plasma a été proposée par Taillet **[154]**; pour l'étude des ions négatifs dans un plasmoïde formé dans l'oxygène.

Le principe étant de mesurer l'augmentation de la densité électronique dans la région illuminée, consécutive au tir du laser et la relier à la densité d'ions négatifs présents dans le plasma. À l'Ecole Polytechnique, M.Bacal **[155]** utilise un diaphragme placé à l'entrée de la source. La **Fig. III.25** représente le schéma de l'expérience réalisée.



Figure III.25 Représentation schématique du couvercle supérieur et du trajet du faisceau laser.

Suite au tir du laser, la sonde collecte une impulsion de courant (découplée du courant continu par une capacité et mesurée sur une résistance) Δi , proportionnelle à la densité d'ions H⁻. Le courant continu i_{de} est lui proportionnel à la densité électronique. En analysant les caractéristiques (durée, forme) de l'impulsion de courant collectée par la sonde, nous pouvons recueillir des informations sur la densité relative des ions négatifs. La mesure du rapport $\Delta i/i_{dc}$ peut donner, sous certaines conditions (*cf.* paragraphe III.3.4.3 ci-dessous), la densité relative n_i/n_e . Une mesure indépendante de la densité électronique n_e est nécessaire pour obtenir n_i^- .

Le Laser utilisé dans notre expérience est un laser Quantel Brillant, de type Nd :YAG, opérant une longueur d'ondes de 1064nm et une énergie maximale de tir de 150mJ avec une largeur de pulse d'environ 6nm, d'une durée de 5ns, pour une fréquence 50Hz. Une sonde de Langmuir cylindrique²¹ polarisée positivement +40V, i.e. à une valeur bien supérieure au potentiel du plasma, de manière à ce qu'elle collecte un courant électronique. Elle est placée au centre du faisceau laser de diamètre 2.0mm²² (i.e. plus grand que le diamètre absorbé de 0.5mm, calculé selon (**[156, 157,158]**)) et d'une énergie de 120mJ/cm².

La sonde collectera ainsi l'excès d'électrons sous forme d'impulsion de courant après le tir du laser (**Fig. III. 26**). La quantité des ions H⁻ ainsi détruite est calculée suivant la formule²³ :

$$\frac{\Delta n_{-}}{n_{0}} = 1 - e^{\left(\frac{E\sigma}{S.h\gamma}\right)}$$
(III.12)

Cette formule indique qu'il est possible de calibrer la mesure en faisant varier le diamètre du faisceau.

²¹ Diamètre 0.36mm, longueur 10.6mm.

²²Le diamètre du faisceau laser peut être changé en intercalant sur le trajet du faisceau des disques de diamètres variables et la sonde peut être déplacée radialement hors du faisceau laser.

²³ S : étant la surface du faisceau laser, E l'énergie du laser, σ la section efficace de réaction, n_0 la densité d'ions négatifs avant destruction et γ est la fréquence du laser.

III.4.2 Type et phases d'enregistrement du photo-détachement Laser :

La Fig. III.26 montre le signal typique de variation du courant de sonde sur l'écran de l'oscilloscope en mode de tir continu de 5ns/pulse. On distingue sur cet enregistrement trois parties :



Figure III.26 Signal type d'enregistrement du photodétachement Laser²⁴, obtenu en ROSAE-III.

(i) Phase 1 : Le signal commence par une montée très rapide (effet du photo-détachement des électrons). Ces électrons sont monocinétiques d'énergie 0,455 eV : différence d'énergie entre les photons incidents de 1,2 eV et l'affinité électronique de l'atome d'hydrogène de 0,745 eV.

(ii) Phase 2 : Il se produit ensuite, pendant un laps de temps très court (de l'ordre de l'impulsion laser), une période caractérisée par un plateau : Les électrons thermiques sont à l'origine du plateau.

(iii) Phase 3 : Ensuite le signal diminue jusqu'à une valeur inférieure à sa valeur initiale avant de retourner à l'équilibre. Les particules positives n'ayant pas été affectées par le tir laser se retrouvent expulsées de la zone perturbée, par l'apparition d'un champ électrique supplémentaire, pour donner ce que M.Bacal appelle l'« *overshot*».

III.4.3 Mesurede la densité relative n_{-}/n_{e} :

Pour déterminer n./n_e, nous mesurons le courant électronique sur le plateau du signal de photodétachement et le courant continu collecté par la sonde. Bacal et al. **[159, 160, 161]** ont montré que le rapport de ces deux courants est égal à n./n_e lorsque plusieurs conditions sont remplies²⁵:

1) l'amplitude du signal de photo-détachement est indépendante du flux du laser ;

2) l'amplitude du signal de photo-détachement doit être indépendante du diamètre du faisceau laser. En effet, la sonde ne mesure correctement la variation de densité électronique que si elle collecte des électrons d'une distance suffisante.

²⁴La durée totale de l'impulsion de courant est bien supérieure à la durée de l'impulsion du laser (max. 50 ns). Cette durée va de 0,25 µs jusqu'à 2 µs, respectivement pour le diamètre le plus faible utilisé (0,1 cm) au plus grand (1,2 cm).

²⁵ P. Devynck **[162]** ajoute une troisième condition : le diamètre du faisceau qui détermine la durée du signal doit être suffisamment grande pour que l'excès d'électrons créé par le photo-détachement soit thermalisé au moment de la mesure.

- Avant le tir, le courant mesuré par la sonde est donné par :

$$I_{dc} = n_e f(e.\frac{V-V_p}{kT_e}, \frac{R_s}{\lambda_D})$$
(III.13)

f étant la fonction de Laframboise et λ_D la longueur de Debye.

- Après le tir, la densité en électrons dans la région illuminée passe de $n_e a n_e + n_e$, tandis que la densité d'ions H⁻ devient nulle, car tous les ions H- sont détruits. La densité d'ions positifs n'est pas affectée par le photo-détachement ; elle est la même dans la région illuminée et dans le reste du plasma. Comme la température des électrons, quelques temps après le photo-détachement, est égale à la température thermique. Le courant mesuré par la sonde est donc :

$$I_{pd} = (n_e + n_-) f(e.\frac{V - V_p}{kT_e}, \frac{R_s}{\lambda_{D2}})$$
(III. 14)

 λ_{D2} étant la longueur de Debye avec la nouvelle densité $n_i + n_i$.

L'amplitude du signal due au photo-détachement est donc I_{pd} - I_{ds} . Nous pouvons d'autre part supposer que $n_e >> n$: les vitesses des électrons et des ions H⁻ sont inégales, un déséquilibre des flux de particules négatives à l'interface des deux régions peut se produire, car le flux de particules négatives quittant la région illuminée (les électrons) est plus important que le flux de particules négatives entrant dans la région illuminée (les ions négatifs). Par conséquent, on peut confondre λ_{D2} avec λ_D .

Le calcul de la densité d'ions H se fait désormais à partir de la formule suivante :

$$\Delta \dot{i} / \dot{i}_{dc} = n / n_e$$
 (III.15)

La finalité de l'équation (III.15) ne se limite pas à la détermination de la densité relative, mais à la déduction et au calcul de la densité absolue.

III.5 Le diagnostic optique :

Ce diagnostic est très utilisé dans la physique des plasmas et nombre de paramètres (température, concentration...) peuvent être ainsi déterminés. Il s'agit d'une mesure quantitative de l'émission optique provenant des atomes ou des molécules stimulées à de hauts niveaux d'énergie. Ce diagnostic est très complémentaire aux mesures par sondes de Langmuir et a l'avantage d'être parfaitement non intrusif par rapport à ces dernières.

Cette méthode de mesure nous permet d'estimer les densités absolues des espèces neutres (atomes et molécules) d'hydrogène, soit :

- d'une manière directe par la méthode LIF²⁶, absorption...,
- ou indirecte, par actinométrie en spectroscopie d'émission visible.

²⁶ Méthode dite active car la phase plasma est excitée par une onde lumineuse et l'onde transmise ou diffusée est détectée pour être analysée, elle sera détaillée par la suite.

III.5.1 Spectroscopie d'émission optique dans le visible :

La SEO (Spectroscopie d'Emission Optique) est un diagnostic simple qui consiste à analyser la lumière émise par le plasma, il présente les caractéristiques suivantes :

- La détermination se fait in situ, bien que la lumière soit observée à travers un hublot à bonne transmission aux longueurs d'onde analysées,
- ✓ Méthode non destructif, une façon d'observation pure et simple du plasma,
- ✓ Présente des informations sur les espèces réactives du plasma,
- ✓ Mise en œuvre simple, avec une bonne sensibilité suivant le dispositif de détection employé.

III.5.1.1 Intensité d'une raie spectrale dans le visible :

En absence d'auto-absorption de la lumière émise par le plasma sur tout le trajet optique, de la source au système de mesure, hypothèse justifiée pour des pressions inférieures à 0,1 torr et une densité de plasma inférieure à $\approx 10^{11}$ cm⁻³, l'intensité d'une raie spectrale $I_{\lambda i}$ est donnée par la relation :

$$I_{\lambda i} = R_{\lambda} n_i^* A_{ij} \Delta V \frac{\Delta \Omega}{4\pi}$$
(III.16)

 R_{λ} est la réponse du système à la longueur d'onde considéré, n_i^* la densité d'espèces dans l'état excité i, A_{ij} : Coefficient d'Einstein, ΔV le volume de plasma observé sous l'angle solide $\Delta \Omega$.

Quand les processus collisionnels sont négligeables (pression inférieur à 0,1 Torr), les espèces dans l'état excité se désexcitent radiativement en un temps τ_i (durée de vie de l'espèce excitée, de l'ordre de 10⁻⁹ s), cette densité peut calculée par la relation :

$$n_i^* = \tau_i \frac{dn_i^*}{dt} \tag{III.17}$$

On peut donc écrire l'intensité de la raie sous la forme :

$$I_{\lambda i} = C_{exp} \frac{dn_i^*}{dt}$$
(III.18)

 C_{exp} est une constante expérimentale, elle dépend de la fonction d'appareil et des constantes de l'atome pour la transition considérée.

Les processus d'excitation des atomes sont de plusieurs types :

- (i) bombardement électronique direct,
- (ii) bombardement électronique indirect,
- (iii) collision avec un atome excité,
- (iv) réaction chimique luminescente.

Dans le cas du bombardement électronique direct, il est possible de calculer le terme $\frac{dn_{A^*}}{dt}$ en fonction de la densité n_A de l'espèce dans l'état fondamental avec la relation :

$$\frac{dn_{A^*}}{dt} = n_A K_{eA^*} n_e \tag{III.19}$$

 K_{eA^*} (m⁻³.s⁻¹) est le taux de réaction et n_e la densité du plasma (m⁻³).

Cette relation peut être également écrite en introduisant la section efficace de la réaction considérée $\sigma_{eA^*}(m^2)$ d'après la relation :

$$\frac{dn_{A^*}}{dt} = n_A \int_{V_S}^{+\infty} \sigma_{eA^*} V f(V) d^3 V$$
 (III.20)

En conclusion, dans un modèle d'excitation par collision électronique directe à partir du fondamental, suivi d'une émission radiative, l'intensité de la raie émise par l'atome excité est proportionnelle à l'intégrale, de l'énergie seuil de la réaction jusqu'à l'infini (queue de la fonction de distribution), de la fonction de distribution en énergie des électrons et de la densité des atomes dans l'état fondamental.

La **Fig. III.27** représente un enregistrement dans du spectre d'émission dans un plasma d'hydrogène obtenu dans ROSAE III, dans la série de Balmer (H $_{\alpha}$, H $_{\beta}$ et H $_{\gamma}$). Les valeurs des raies se situent, respectivement, entre 656,18 - 656,40 nm (désexcitation du niveau n=3 à n=2) pour H $_{\alpha}$, entre 486,05 - 486,25 nm (désexcitation du niveau n=4 à n=2) pour H $_{\beta}$ et entre 433,95 - 434,15 nm (désexcitation du niveau n=5 à n=2) pour H $_{\gamma}$. Les raies des molécules excitées sont rappelées sur la petite fenêtre, au milieu de l'image, elle correspond à la bande Fulcher H_{fulcher}, la longueur spectrale de la bande s'étend entre 619 - 632 nm.



Figure III.27 Spectre d'émission dans un plasma d'hydrogène obtenu dans ROASE III. La petite fenêtre correspond à la bande Fulcher [163].

III.5.1.2 Schéma du montage :

Le schéma de la **Fig. III.28** montre le montage type d'un spectromètre classique. Le système complet comporte un collimateur tubulaire simple qui permet de limiter l'angle de collection de la lumière, une fibre optique avec ou sans lentille de focalisation.

La fibre permet de prendre l'image d'un volume élémentaire de plasma et de transmettre la lumière sur la fente d'entrée du spectromètre. Un réseau de diffraction décompose cette lumière incidente en différentes longueurs d'onde sur la fente de sortie. Juste derrière la fente, l'intensité lumineuse, amplifiée et transformée en un signal électrique par un photomultiplicateur (d'électrons), ou tout autre système de détection (barrette CCD), est mesurée et enregistrée.

Le hublot fixé sur la paroi du réacteur ne doit pas dégradée la transmission de la lumière à analyser par déposition d'impuretés et/ou irradiation par les neutres.



III.5.1.3 Le spectromètre visible dans ROSAE III :

Le spectromètre, d'une longueur focale de 1m, utilisé offre une combinaison unique de vitesse, de précision et de haute résolution. Il est conçu pour une utilisation sur un large domaine spectral, s'étendant de l'UV proche (~300nm) à l'IR (1000nm). et permettant d'obtenir des performances optimales. Il s'agit d'un spectromètre optique à haute résolution Horiba Jobin-Yvon FHR 1000, à réseaux de diffraction plan de 1200 traits/mm et 2400 traits/mm.

Il est équipé de deux détecteurs : Un photomultiplicateur Hamamatsu R928, et une caméra CCD *SyncerityJobin-Yvon* 1024 x 256 Pixels. L'étalonnage de la longueur d'onde est réalisé avec un lampe au mercure Hg, tandis qu'une lampe tungstène-halogène-quartz, de spectre d'émission connu (*Newport* [©]6333, spectre d'émission du corps noir 3300 K, pour une tension de 12V) est utilisée pour la calibration spectrale de la totalité de l'ensemble optique en fonction des unités relatives.

Dans le but de réaliser des mesures ponctuelles dans le plasma et de pouvoir enregistrer un profile spatial, nous utiliserons un système optique à quatre focales '4f system' (*d*. figure III.10, Position N°02, et schéma
de la **Fig. III.11**). La position de l'extrémité de la fibre optique, sur la fente d'entrée du spectromètre, peut être ainsi déplacée et orientée grâce à un système de mesure de positionnement.

La spectroscopie d'émission, dans le visible sera utilisée pour atteindre les premiers niveaux vibrationnel v" = 0, 1, 2, 3, 4 de la molécule $H_2(X'\Sigma_g^+, v'')'$. Ainsi, la répartition relative de ces premiers niveaux vibrationnels et rotationnels sera alors accessible. Bien que ceux-ci ne soient pas les principales sources de création des ions H⁻ par attachement dissociatif.

Du dépouillement des données de l'enregistrement de la bande de Fulcher- α , on obtient la température rotationnelle de la molécule H₂, de laquelle, on en déduit celle du gaz. De l'élargissement la raie Dopler, notamment la raie H_β, raie de désexcitation de n=4 au niveau n=2, on calcule la température (ou énergie cinétique moyenne) de l'atome H. La densité absolue des atomes H, sera elle, calculée par la méthode de l'actinométrie. Les diagnostics et les méthodes utilisées seront décrits dans les paragraphes qui suivent.

III.5.2 Mesure des températures :

III.5.2.1 Température rotationnelle de H2 et du gaz :

Parmi les raies d'émission visible du spectre optique d'hydrogène, présenté dans la **Fig. III.27**, la branche Q(2-2) de la bande Fulcher- α (6224-6280 Å[°]) est particulièrement intéressante pour déterminer la température rotationnelle des molécules H_2 et celle du gaz **[164, 165]**. Cette branche correspond aux transitions ro-vibroniques $d^3\Pi_u^-, \upsilon'=2, N \rightarrow a^3\Sigma_a^+, \upsilon''=2, N$, où : υ' et υ'' sont, respectivement, les nombres quantiques vibrationnels du niveau le plus élevé au plus bas, N étant le nombre quantique rotationnel. La relation (III.21) suivante donne la corrélation entre les intensités de la raie de transition expérimentale I_{a2N}^{d2N} de la branche Q(2-2) et la température des états rotationnels des molécules d'hydrogène T_{d2N}^{rot} .

$$\ln \left[\frac{I_{a2N}^{d2N} (\lambda_{a2N}^{d2N})^{3}}{g_{a,s} \cdot (2N+1)} \right] = -\frac{B_{d2N} \cdot N(N+1)}{T_{d2N}^{rot}(H_{2})}$$
(III.21)

où d2N et a2N correspondent respectivement aux niveaux $d^3\Pi_u^-, \upsilon'=2, N$ et $a^3\Sigma_a^+, \upsilon''=2, N$. $g_{a,s}$ est la statistique des différents niveaux (égale à 1 pour les valeurs pairs du nombre quantique rotationnel N, et 3 pour les valeurs impairs), λ_{a2N}^{d2N} est la longueur d'onde de transition et B_{d2N} est une constante rotationnelle.

En traçant $\ln \left\{ I_{a2N}^{d2N} \cdot \left(\lambda_{a2N}^{d2N} \right)^3 \cdot \left[g_{a,s} \cdot (2N+1) \right]^{-1} \right\}$ en fonction de $B_{d2N} \cdot N(N+1)$ (graphique de Boltzmann, *cf.* figure III.31), on obtient une droite, à partir de laquelle on peut déterminer la valeur de $T_{d2N}^{rot}(H_2)$, qui n'est autre que l'inverse de la pente de cette droite, si B_{d2N} est en °K.

Pour les plasmas à basse pression, cas du réacteur ROSAE-III, la température du gaz T_g est reliée à la température rotationnelle par la relation [166]:

$$T_g = 2 \cdot T_{d2N}^{rot}(H_2)$$
 (III.22)

La figure suivante, représente le graphique de Boltzmann obtenu dans ROSAE-III, avec deux matériaux différents, Acier et Pyrex TM, pour la couverture intérieure de la chambre et en deux positions de mesure différentes (A et B). Les mesures sont faites pour une puissance P = 150 W et une pression p = 9mTorr.



Figure III.29 Graphique de Boltzmann pour la branche Q(2-2) dans la bande rotationnelle de H_2 système Fulcher- α , (positions A et B, matériaux Acier et Pyrex TM, P= 150 W et p=9 mTorr).

III.5.2.2 Température de l'hydrogène atomique :

La température des atomes d'hydrogène à l'état fondamental est obtenue directement, à partir de la raie d'émission de la série de Balmer H_β, après la soustraction des atomes et molécules chauds (**Fig. III.30**). En déterminant la largeur de la raie à la mi-hauteur $\Delta \lambda_{exp}$, on peut calculer l'élargissement Doppler $\Delta \lambda_D^{27}$:

$$\Delta \lambda_D^2 = \Delta \lambda_{exp}^2 - \Delta \lambda_{app}^2$$
(III.23)

La figure suivante montre le profil typique de la raie d'émission H_{β} :



Figure III.30 Profil de la raie d'émission H $_{\beta}$ obtenue dans ROSAE-III, en position B. (Couverture de la chambre en acier, à 9 mTorr et 150 W). On observe sur ce profil l'existence de deux populations d'atomes (chauds et froids).

La température des atomes, en fonction de l'élargissement Doppler et la longueur d'onde λ de la raie, est donnée (en °Kelvin) par la relation [165] :

$$T_H = \left(\frac{\Delta\lambda_{Doppler}}{\lambda} 716 \times 10^9\right)^2$$
(III.24)

III.5.3 Mesure des densités par actinométrie :

Pour estimer la concentration en hydrogène atomique [H] dans le plasma en fonction des conditions expérimentales, la méthode la plus efficace est sans nul doute la fluorescence laser à 2 photons LIF ²⁸ (*Laser Induced Fluorescence*). Cette technique permet, outre la possibilité d'effectuer des mesures absolues, d'accéder à la concentration en hydrogène atomique [H] en post-décharge, là où subsiste des atomes d'hydrogène, mais plus assez d'électrons rapides pour les exciter.

Toutefois, cette méthode reste très complexe (2 lasers de forte puissance sont nécessaires à l'obtention du rayonnement à 205 nm) et très onéreuse ($\approx 150 \text{ k}$ €). Elle est également difficile à mettre en œuvre et à entretenir : ce qui la restreint à quelques laboratoires spécialisés. Il est donc nécessaire pour nous, dans notre structure expérimentale, de développer une technique alternative à la LIF pour estimer la concentration en hydrogène atomique /H] en fonction de nos conditions opératoires.

L'objectif de cette thèse est justement l'utilisation systématique de diagnostics complémentaires, mis en œuvre simultanément, et dans des conditions expérimentales homologues, afin d'obtenir une approche nécessairement globale de l'influence du matériau sur le fonctionnement du plasma d'hydrogène.

III.5.3.1 La densité relative :

Dans les processus d'interaction plasma surface, la connaissance des paramètres fondamentaux est indispensable, pour mieux comprendre les mécanismes. Pour ce faire, la méthode de spectroscopie d'émission, dans le domaine du visible, appelée actinométrie sera utilisée.

²⁸ Cette méthode sera utilisée lors de nos expériences sur le réacteur SCHEME (III.6) au synchrotron SOLEIL (Gif Sur Yvette). Elle sera décrite, brièvement, au paragraphe présentant le réacteur.

Elle permet de déterminer la valeur relative de la concentration d'une espèce et donc le flux relatif correspondant, en admettant une hypothèse sur la température d'équilibre de ces espèces. Elle consiste à mesurer la concentration d'une espèce réactive, en comparant son émission optique à celle provenant d'un gaz inerte, appelé actinomètre ou traceur, introduit délibérément en très faible quantité (~1%) dans la décharge.

La densité relative [X] d'une espèce donnée X à l'état fondamental, pourrait donc être déterminée par la technique d'actinométrie. Le principe de cette méthode a été décrit par de nombreux auteurs **[167,168]**, elle repose sur les hypothèses suivantes :

- (i) La quantité de l'actinomètre à introduire doit être faible et de manière constante, et, également, elle ne doit pas affecter les mécanismes réactionnels du plasma ;
- (ii) La transition de l'état fondamental, des espèces réactives X et actinomètre A, aux états électroniques excités X* et A* est, essentiellement, le résultat de transition directe par collision électronique.
- (iii) La désexcitation des deux espèces est principalement de type radiatif et non pas collisionnel, ce qui est bien vérifié pour les décharges à basse pression (p < 1 Torr);
- (iv) Les sections efficaces d'excitation doivent avoir une forme similaire et présenter les mêmes énergies de seuil ;
- (v) Tous les autres mécanismes d'excitation ou désexcitation seront à négliger.

Ainsi, une relation simple existe entre les intensités des raies d'émission des espèces excitées I(X*), et la densité de ces espèces à l'état fondamental [X], qui permet de déterminer les densités relatives :

$$[X] = K \times \frac{I(X^*)}{I(A^*)} \times [A]$$
(III.25)

Où : K est une constante.

Dans notre cas, le gaz de référence sera l'argon, il servira d'actinomètre pour l'hydrogène. Il s'agit de l'addition d'un pourcentage réduit de l'argon (environs 1%) dans le plasma d'hydrogène. Ainsi, comme nous venons de le démontrer, par simple comparaison de l'intensité des raies de désexcitation de l'hydrogène atomique (H et H) et de l'argon, on pourra évaluer la densité des atomes d'hydrogène à l'état fondamental (H=1). Les rapports d'intensités des raies (I_H/I_{Ar}) donne une estimation sur la quantité relative d'atomes. Car, suivant les travaux de Fantz **[169]** indique que le rapport $H_{\gamma}/H_{fulcher}$ est proportionnel à H/H_2 , c'est-à-dire au rapport entre les densités des atomes et des molécules d'hydrogène. Ce diagnostic a l'avantage de ne pas nécessiter de modélisation.

III.5.3.2. Le choix des paires actinométriques :

Les raies atomiques, les plus intéressantes, à considérer sont:

- pour l'hydrogène, dans la série de Balmer (H_{α} , H_{β}),
- et pour l'argon, la raie $\operatorname{Ar}^*(2p^1)$ et $\operatorname{Ar}^*(2p^9)$.

Concernant l'hydrogène : L'émission H_{α} pose plusieurs problèmes : Elle est, sous certaines conditions, auto-absorbante [170]. Une augmentation de l'émission H_{α} est constatée à l'introduction de l'argon dans la décharge, dû principalement à un transfert d'énergie de l'Ar métastable, entre Ar*(1s3) et H(n=1), qui conduit à une production supplémentaire de $H^*(n=3)$, production non prise en compte dans l'équation d'équilibre [171]. Et enfin, la neutralisation mutuelle entre les ions positif et négatif [172], ce qui est une autre possibilité de surestimation de l'intensité de H_{α} . La raie H_{β} , elle, n'appose aucune difficulté, ce qui la rend plus appropriée aux mesures d'actinométrie.

Concernant l'argon : L'émission Ar_{811} est estimée à travers la désexcitation $Ar^*(2p^9)$, i.e. à travers les états excités par collision d'électrons avec les atomes d'argon à l'état fondamental. Cette excitation pourrait ne pas se faire directement, une excitation en deux étapes est possible, via l'état métastable Ar (1s⁵). Ce processus est plus favorable énergétiquement – 13.08 eV pour l'excitation directe, contre respectivement, 11.5 eV et 1.53 eV, pour la première phase et la deuxième phase de l'excitation en deux étapes.

Seulement, la condition ii sur les hypothèses de validité de l'actinométrie, stipule que le résultat d'une transition directe est seule tolérée, contrairement à une excitation en deux étapes.

Alors que l'état excité conduisant à l'émission Ar₇₅₀ est exclusivement produit par impact électronique direct, ce qui fait de cette raie d'émission une meilleure candidate pour l'actinométrie.

En conclusion, la paire actinométrique (H β /Ar₇₅₀) reste la plus fiable et sera donc adoptée pour la suite de nos travaux. Ce choix est d'ailleurs recommandé par les travaux de Iordanova et al. **[166]**.

III.5.3.3. Tableau des mécanismes d'excitation et de désexcitation :

Le **Tab. III.1** donne les différents mécanismes d'excitation (directe et dissociative) et de désexcitation (radiative et non radiative). L'énergie de seuil et la section efficace σ sont également citées pour les réactions d'excitation. Tandis que pour les réactions de désexcitation, on mentionne les valeurs de longueur d'onde(λ), la probabilité de transition (\mathcal{A}), la durée de vie radiative (τ) et les coefficients de quenching (q). en tenant compte de la température du gaz Tg, suivant la relation :

$$q = \sigma \times \langle v \rangle = \sigma \times \sqrt{8kT_g/\pi\mu}$$
Où:

$$\mu = m_{H_2} \cdot m_{Ar} / (m_{H_2} + m_{Ar})$$
(III.26)

Processus cinétiques

Excitation			
A. excitation directe par collision électronique	Section efficace de l'impact électronique	L'énergie de seuil	
$H(n=1) + e \rightarrow H^*(n=4) + e$	$\sigma_{H(n=4)}^{exc}$ [173]	12.75 eV	<i>{1}</i>
$Ar + e \rightarrow Ar^*(2p^1) + e$	σ^{exc}_{Ar750} [174]	13.47 eV	{2}
<u>B. excitation dissociative de H₂ par collision</u> <u>électronique</u>			
$H_2 + e \rightarrow H^*(n=3) + H(n=1) + e$	$\sigma_{H(n=3)}^{dis}$ [173]	16.6 eV	<i>{3-a}</i>
$H_2 + e \rightarrow H^*(n=4) + H(n=1) + e$	$\sigma_{H(n=4)}^{dis}$ [173]	17.2 eV	<i>{3-b}</i>

Désexcitation

<i>ésexcitation</i> A. Désexcitaion radiative	Longueur d'onde (Å), Probabilité de transition A (s ⁻¹) Et durée de vie radiative τ (ns)	
H _a $H^*(n=3) \rightarrow H^*(n=2) + hv$ H _b $H^*(n=4) \rightarrow H^*(n=2) + hv$ Array $Ar^*(2n) \rightarrow Ar(1s_2) + hv$	$6563A^{\circ}, A_{3\to2}^{H} = 4.41 \times 10^{7} s^{-1}, \tau_{3\to2}^{H} = 10 \text{ ns [175]}$ $4861A^{\circ}, A_{4\to2}^{H} = 8.42 \times 10^{6} s^{-1}, \tau_{4\to2}^{H} = 47 \text{ ns [175]}$ $7504A^{\circ}, A_{750}^{Ar} = 4.45 \times 10^{7} s^{-1} [176], \ \tau_{2P^{1}}^{Ar} = 22 \text{ ns}$	$\{4-a\}$ $\{4-b\}$
B. Désexcitation non-radiative (quenching) ²⁹	[177] <i>Coefficients de quenching</i>	
$H^*(n=4) + H_2 \rightarrow H + H_2 + \Delta E$	$q_{H_2}^{H^*(n=4)} = 7.3 \times 10^{-10} cm^3 \cdot s^{-1}$ [178]	<i>{6}</i>
$H^*(n=3,4) + Ar \rightarrow H + Ar + \Delta E$	$q_{Ar}^{H^*} = 4.6 \times 10^{-10} cm^3 \cdot s^{-1}$ [179]	<i>{7}</i>
$Ar^{*}(4p) + H_2 \rightarrow Ar + H_2 + \Delta E$	$q_{H_2}^{Ar_{750}^*} = 3.5 \times 10^{-10} cm^3 \cdot s^{-1}$ [180]	<i>{8}</i>
$Ar^{*}(4n) + Ar \rightarrow Ar + Ar + \Lambda F$		(α)

Tableau III.1 Récapitulatif des différents processus cinétiques (excitation et désexcitation) des atomes H et Ar.

²⁹ Les coefficients de quenching q, des réactions (6) et (8), sont calculés à partir des sections efficaces du quenching σ [178].

III.5.3.4 La densité absolue :

direct excitation (2) radiative decay (5)

La densité absolue des atomes H peut être déterminée sans tenir compte des conditions actinométriques. Elle se calcule à partir des processus cinétiques du **Tab. III.1**, incluant uniquement les atomes excités H produits directement par les molécules H_2 (dissociation excitative) et les processus de désexcitation non-radiative tel que le quenching **[179, 180]**. Dans ce cas, toutes les réactions du **Tab. III.2**, doivent être prises en compte. Par conséquent, les équations d'équilibre sont (III.27) pour les H^{*} et (III.28) pour les Ar^{*}:

$$\frac{d[H^*]}{dt} = \underbrace{n_e \cdot [H] \cdot k_H^{exc}}_{\text{direct excitation (1)}} + \underbrace{n_e \cdot [H_2] \cdot k_H^{dis}}_{\text{H_2}} - \underbrace{[H^*] \cdot \tau_{H^*}^{-1}}_{\text{radiative decay (4)}} - \underbrace{[H^*] \cdot [H_2] \cdot q_{H_2}^{H^*} - [H^*] \cdot [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}_{\text{quenching (6), (7)}} = 0 \quad \text{(III.27)}$$

$$\frac{d[Ar^*]}{dt} = \underbrace{n_e \cdot [Ar] \cdot k_{Ar}^{exc}}_{\text{Ar}} - \underbrace{[Ar^*] \cdot \tau_{Ar^*}^{-1}}_{\text{Ar}^*} \underbrace{-[Ar^*] \cdot [H_2] \cdot q_{H_2}^{Ar^*} - [Ar^*] \cdot [Ar] \cdot q_{Ar}^{Ar^*}}_{\text{discond}} = 0 \quad \text{(III.28)}$$

[H], [H^{*}], [Ar] et [Ar^*] sont, respectivement, les densités des atomes à l'état fondamental et à l'état excité, de l'hydrogène et de l'Argon. L'unité de la densité électronique est en m⁻³, q_X^{Y*} est le coefficient de quenching des espèces excitées [H^*] par un atome ou une molécule [Ar].

quenching (8),(9)

 τ_{X^*} est la durée de vie radiative des espèces excitées X^{*}, qui est l'inverse de ce qui est donné en relation (III.29), pour une transition $i \rightarrow j$, où A^X est la probabilité de transition (coefficient d'Einstein) :

$$\tau_{j \to i}^{-1} = \sum_{f < j} A_{j \to f} = A_{j \to 1} + \dots + A_{j \to i}$$
(III.29)

Les k_x (en m³.s⁻¹) sont les coefficients d'excitation pour les réactions {1}, {2} et {3} du **Tab. III.2**. Ils peuvent être calculés par la relation (III.30) :

$$k_{X} = \sqrt{\frac{2 \cdot q_{e}}{m_{e}}} \cdot \int_{\varepsilon_{thres}}^{+\infty} \sigma_{X}(\varepsilon) \cdot \sqrt{\varepsilon} \cdot f(\varepsilon) \cdot d\varepsilon$$
(III.30)

Avec m_e : la masse électronique, q_e : la charge de l'électron, ε : l'énergie en eV, $f(\varepsilon)$: la fonction de distribution en énergie des électrons (FDEE, exprimée en eV⁻¹), ε_{thres} : l'énergie de seuil (en eV) et $\sigma_X(\varepsilon)$: section efficace de l'excitation par impact électronique (exprimée en m²).

Comme l'énergie d'électron est, $E(J) = 1/2 \cdot m \cdot v^2 = q_e \cdot \varepsilon(eV)$ on peut dire que le terme $\sqrt{2q_e \varepsilon/m_e} = v$ représente une vitesse (m.s⁻¹).

Les expressions (III.27) et (III.28) deviennent :

$$n_e \cdot \left([H] \cdot k_H^{exc} + [H_2] \cdot k_H^{dis} \right) = [H^*] \cdot \left(\tau_{H^*}^{-1} - [H_2] \cdot q_{H_2}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*} \right)$$
(III.31)

$$n_{e} \cdot \left([Ar] \cdot k_{Ar}^{exc} \right) = [Ar^{*}] \cdot \left(\tau_{Ar^{*}}^{-1} - [H_{2}] \cdot q_{H_{2}}^{Ar^{*}} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{Ar^{*}} \right)$$
(III.32)

En divisant (III.31) par (III.32), on obtient (III.33) :

$$\frac{[H] \cdot k_{H}^{exc} + [H_{2}] \cdot k_{H}^{dis}}{[Ar] \cdot k_{Ar}^{exc}} = \frac{[H^{*}]}{[Ar^{*}]} \cdot \left(\frac{\tau_{H^{*}}^{-1} - [H_{2}] \cdot q_{H_{2}}^{H^{*}} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^{*}}}{\tau_{Ar^{*}}^{-1} - [H_{2}] \cdot q_{H_{2}}^{Ar^{*}} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{Ar^{*}}}\right)$$
(III.33)

Comme déjà évoquée en paragraphe III.5.1.1, l'intensité d'un atome à l'état excité X^{*} peut être exprimée par (III.34), où hv_X est l'énergie de transition et $C(\lambda_X)$ est une constante expérimentale qui dépend de la réponse de l'appareil à une longueur d'onde λ_X (qui correspond à une fréquence v_X):

$$I(X^*) \propto [X^*] \cdot A^X \cdot \tau^X \cdot h v^X \cdot C(\lambda^X)$$
(III.34)

Le rapport de deux intensités de raies d'émission, est donné par (III.35)

$$\frac{I(H^*)}{I(Ar^*)} = \frac{[H^*]}{[Ar^*]} \cdot \frac{A^H \cdot \tau^H \cdot \lambda_{Ar} \cdot C(\lambda_H)}{A^{Ar} \cdot \tau^{Ar} \cdot \lambda_H \cdot C(\lambda_{Ar})}$$
(III.35)

Finalement, la densité absolue des atomes H peut être calculée par la relation (III.36) :

$$[H] = \underbrace{\frac{I(H^*) \cdot A^{Ar} \cdot \tau^{Ar} \cdot \lambda_H \cdot C(\lambda_{Ar}) \cdot k_{Ar}^{exc}}{I(Ar^*) \cdot A^H \cdot \tau^H \cdot \lambda_{Ar} \cdot C(\lambda_H) \cdot k_H^{exc}}_{\text{"classical" actinometry with explicit k "constant"}} \cdot [Ar] \cdot \underbrace{\left(\frac{\tau_{H^*}^{-1} - [H_2] \cdot q_{H_2}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}{\tau_{Ar^*}^{-1} - [H_2] \cdot q_{H_2}^{Ar^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{Ar^*}}\right)}_{\text{quenching processes}}} \cdot \underbrace{\left(\frac{\tau_{H^*}^{-1} - [H_2] \cdot q_{H_2}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}{q_{dissociative excitation}}\right)}_{\text{dissociative excitation}} \cdot \underbrace{\left(\frac{\tau_{H^*}^{-1} - [H_2] \cdot q_{H_2}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}{q_{H^*}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}\right)}_{\text{dissociative excitation}} \cdot \underbrace{\left(\frac{\tau_{H^*}^{-1} - [H_2] \cdot q_{H_2}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}{q_{H^*}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}\right)}_{\text{dissociative excitation}} \cdot \underbrace{\left(\frac{\tau_{H^*}^{-1} - [H_2] \cdot q_{H_2}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}{q_{H^*}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}\right)}_{\text{dissociative excitation}} \cdot \underbrace{\left(\frac{\tau_{H^*}^{-1} - [H_2] \cdot q_{H_2}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}{q_{H^*}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}\right)}_{\text{dissociative excitation}} \cdot \underbrace{\left(\frac{\tau_{H^*}^{-1} - [H_2] \cdot q_{H^*}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}{q_{H^*}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}\right)}_{\text{dissociative excitation}} \cdot \underbrace{\left(\frac{\tau_{H^*}^{H^*} - [H_2] \cdot q_{H^*}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}{q_{H^*}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}\right)}_{\text{dissociative excitation}} \cdot \underbrace{\left(\frac{\tau_{H^*}^{H^*} - [H_2] \cdot q_{H^*}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}{q_{H^*}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}\right)}_{\text{dissociative excitation}} \cdot \underbrace{\left(\frac{\tau_{H^*}^{H^*} - [H_2] \cdot q_{H^*}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{Ar}^{H^*}}{q_{H^*}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{H^*}^{H^*}}\right)}_{\text{dissociative excitation}} \cdot \underbrace{\left(\frac{\tau_{H^*}^{H^*} - [H_2] \cdot q_{H^*}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{H^*}^{H^*}}{q_{H^*}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{H^*}^{H^*}}\right)}_{\text{dissociative excitation}} \cdot \underbrace{\left(\frac{\tau_{H^*}^{H^*} - [H_2] \cdot q_{H^*}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{H^*}^{H^*}}{q_{H^*}^{H^*} - [Ar] \cdot q_{H^*}^{H^*}}\right)}_{\text{dissociative excitation}} \cdot \underbrace{\left(\frac{\tau_{H^*}^{H^*} - [H_2] \cdot q_{H^*}^{H^*} - [H_2] \cdot q_{H^*}^{H^*}}{q_{H^*}^{H^*} - [H_2] \cdot q_{H^*}^{H^*}}\right)}_{\text{dissociative excitation}} \cdot \underbrace{\left(\frac{\tau_{H^*}^{H^*} - [H_2] \cdot q_{H^*}^{H^*} - [H$$

Avec λ : la longueur d'onde de transition, A^X : la probabilité de transition, τ_{X^*} : la durée de vie radiative, $q_X^{Y^*}$: les coefficients de quenching (cf. références tableau III.2). La constante de la réponse de l'appareil C(λ) en fonction de la longueur d'onde est donnée par le tableau :

		Ouverture des	
		fentes	
Transition	$\lambda~(\text{\AA})$	25 µm	50 µm
Нβ	4861	0.911	0.884
Ar_{750}	7504	0.134	0.145
Fulcher- α (2-2)Q1	6224	0.731	0.750

Tableau III.2 Valeur de la réponse de l'appareil $C(\lambda)$ pour des longueurs d'ondes des raies utilisées.

Les coefficients k_X sont calculés par la relation (III.30), en tenant compte de la section efficace d'excitation $\sigma_X(\varepsilon)$ et l'énergie de seuil $\varepsilon_{\text{thres}}$ (cf. **Tab. III.1**). Quant à la fonction de distribution en énergie des électrons $f(\varepsilon)$, elle est déterminée par les mesures de la sonde de Langmuir (cf. paragraphe III.3.1).

Les concentrations [Ar] et [H₂] sont déterminées par la relation (III.37) (i.e. la pression d'Ar est supposée égale à 2% de la pression totale), à condition de satisfaire les hypothèses suivantes :

- (i) Les gaz sont supposés obéir à la loi des gaz parfaits (III.38);
- (ii) Les concentrations sont calculées avant la dissociation et/ou l'excitation du gaz.

$$\begin{cases} P_{H_2} + P_{Ar} = P_{tot} \\ P_{H_2} = \frac{98}{2} = 49 \end{cases} \Rightarrow P_{Ar} = \frac{P_{tot}}{50} \Rightarrow [Ar] = \frac{1}{50} \cdot \frac{P_{tot}}{k_B T_g} \text{ and } [H_2] = \frac{49}{50} \cdot \frac{P_{tot}}{k_B T_g} \qquad \text{(III.37)}$$
$$P_X = [X] \cdot k_B T_g \qquad \text{(III.38)}$$

 $O\hat{u}$: T_g (en K) et P_{tot} (en Pa) sont respectivement la température et la pression du gaz, P_X la pression partielle de l'espèce X.

Il en sort, que le degré de dissociation D du gaz soit déterminé par la formule :

$$D = \frac{[H]}{[H] + 2[H_2]}$$
(III.39)

III.5.4 Spectroscopie d'émission optique dans le VUV :

Dans les plasmas basse pression, où les excitations par impact électronique sont dominantes **[181]**, les transitions dans le domaine VUV deviennent très importante **[182]**, ce qui rend ce moyen de diagnostic incontournable. Auparavant, dans les expériences menées dans le laboratoire, ce moyen a donné de bons résultats : ce qui nous encourage à poursuivre dans cette voie, bien que, contrairement à l'émission optique dans le visible, le dispositif expérimental requiert un montage sous vide avec le réacteur.

Pour cette partie de mesures dans ROSAE-III, nous avons utilisé un spectromètre d'émission optique VUV Horiba[®] H20-UVL. Il s'agit d'un monochromateur spécialement conçu pour des analyses dans le domaine spectral 100-400 nm, lors de l'utilisation sous vide (avoisinant les 10⁻⁶ mbar), avec une longueur focale de 0.2 m. Ses fentes micrométriques, avec un entraînement à vis sans fin, procurent des résultats précis et rapide. Afin d'obtenir de meilleure résolution, nous l'avons couplé à un PMT³⁰ dans l'UV.

La Fig. III.31 nous présente un enregistrement typique du spectre d'émission en VUV, pour l'atome d'hydrogène. On observe aisément trois positions de raie :

- La première, est la raie Lyman-α à 121.6 nm, qui est la première raie de la série Lyman. Elle correspond à la transition du premier état excité, à l'état fondamental de l'atome d'hydrogène (2p→1s).
- Deux bandes prennent la suite, la bande Werner (84-158 nm) et la bande Lyman (92-170 nm).

³⁰ Tube photomultiplicateur HAMATSU[®].

Ces deux bandes correspondent aux transitions des deux états singulets ($B^{1}\Sigma_{u}^{+}$ et $C^{1}\Pi_{u}$) à l'état fondamental de la molécule d'hydrogène ($X_{1}\Sigma_{g}^{+}$), ce qui nous intéresse particulièrement, car cela donne des informations sur les densités relatives des molécules excitées aux états vibrationnels élevés, et qui sont susceptibles de créer des ions négatifs par détachement associatif. Les raies les plus intenses de la bande Lyman et la bande Werner sont observées respectivement à 160nm et 120nm.



Figure III.31 Spectre typique de l'émission VUV d'un plasma d'hydrogène dans ROSAE-III. (Couverture de chambre en acier, p=9 mTorr et P=150W). Position B.

III.6 La source SCHEME :

Cette source, également conçu et développé par l'équipe PMN du laboratoire LPSC, constitue en un montage expérimental spécial pour l'étude de la désorption recombinative des atomes. L'objectif premier de la source SCHEME est de mesurer les densités absolues des molécules d'hydrogène rovibrationnellement excitées à l'état fondamental H_2^* (r", f"), en utilisant la spectroscopie d'absorption et la fluorescence induite par le rayonnement Synchrotron³¹. Mais, comme on l'a précisé auparavant, cette technique reste très complexe et difficile à mettre en œuvre. Or, la ligne DESIRS³² du synchrotron SOLEIL, installée à Gif Sur Yvette, offre de grandes possibilités dans le domaine de la spectroscopie VUV. De ce fait, afin de bénéficier des performances de très haut niveau et des opportunités de cette source de lumière présente à SOLEIL, nous avons déménagé le réacteur SCHEME et conçu, en une semaine, une série de mesures, dans le domaine VUV, en vue de déterminer le rôle des différents matériaux sur la production des molécules vibrationnellements excitées par la désorption recombinative.

Pour cela, nous commencerons par un bref rappel des principes de la spectroscopie d'absorption et de la Fluorescence Induite par Laser (i.e. en anglais, Light Induced Fluorescence LIF), ou dans notre cas par un rayonnement synchrotron, dont le principe reste le même. On introduira également une rapide description du Synchrotron SOLEIL et communiquera quelques données sur la ligne de lumière DESIRS.

³¹ Un synchrotron est un accélérateur d'électrons destiné à produire un rayonnement électromagnétique. Cette lumière est canalisée pour venir frapper la matière à explorer.

³² DESIRS est une ligne de lumière sur un onduleur couvrant la gamme VUV (5-40 eV) avec une très haute résolution.

III.6.1. Spectroscopie d'absorption :

L'émission optique, déjà évoquée dans les paragraphes précédents, fait partie des techniques spectroscopiques dites passives; elle se contente d'analyser la lumière émise par le plasma. Hormis, l'utilisation d'une technique poussée, telle que l'actinométrie, l'émission optique ne peut déterminer directement les densités absolues des espèces. Cependant, la spectroscopie optique d'absorption, qui fait partie des techniques spectroscopiques actives, permet de détecter et mesurer les densités absolues des espèces du plasma, en utilisant une source de rayonnement (Laser, faisceau synchrotron, etc.).

Le principe de cette technique consiste à faire traverser le plasma par un rayonnement d'intensité initiale connue $I_0(\lambda)$, et de mesurer son intensité à la sortie du plasma $I_T(\lambda)$. En appliquant la loi de Beer Lambert, qui relie les deux intensités, on peut en déduire, les densités des espèces du plasma [183]:

$$\frac{I_T(\lambda)}{I_0(\lambda)} = \exp(-A(\lambda))$$
 (III.40)

 $A(\lambda)$ est l'absorbance, qui est reliée à la densité n de l'espèce par la relation:

$$A(\lambda) = \sigma(\lambda) \int_0^L n(x) dx$$
 (III.41)

 $\sigma(\lambda)$ est la section efficace d'absorption, elle dépend de la longueur d'onde λ , de la position x le long du faisceau et de la largeur L du plasma traversée par le faisceau.

III.6.2. Fluorescence induite par Laser (LIF) :

Afin de déterminer la densité d'une espèce par l'utilisation de la LIF, on excitera les particules par un faisceau Laser, ou bien, et c'est notre cas, par un rayonnement synchrotron. La désexcitation de ces particules, induit une lumière, appelée fluorescence. A partir du signal de fluorescence, on détermine la densité absolue des espèces, comme détaillé dans **[184]**.

Généralement, la LIF comporte un système à trois niveaux énergétiques, comme représenté sur la **Fig. III.32**. La lumière laser (ou du faisceau synchrotron) est utilisée pour exciter les particules de l'état fondamental |I > (cf. Fig. III.32) à un état excité de plus grande énergie |2 >. A partir de cet état excité |2 >, les particules se désexcitent vers l'état initial, ou vers un autre état moins énergétique |3 >.





³³ $B_{ij}\rho$, $B_{ji}\rho$, A_{ji} sont les coefficient d'Einstein, correspondant à l'absorption, l'émission stimulée et l'émission spontanée, ρ est la densité de puissance du faisceau laser (en J s m⁻³).

III.6.3 La ligne DESIRS du Synchrotron SOLEIL :

Le synchrotron SOLEIL³⁴, installé sur le plateau de Saclay, fonctionne depuis 2008. Il s'agit d'une source de troisième génération, conçue pour obtenir des sources de rayonnement très brillantes, très stable et adaptables à diverses applications **[185]**.

Le premier maillon de la chaîne des équipements de base de SOLEIL est l'accélérateur linéaire, d'une longueur de 16 m, appelé LINAC. Son rôle est de fabriquer un faisceau d'électrons pulsés d'énergie de 100 MeV. Après cette première accélération, les paquets d'électrons sont injectés vers un deuxième accélérateur, le booster, synchrotron de 157 m de périmètre, leur énergie passe alors de 100 MeV à 2,75 GeV.

Une fois cette énergie atteinte et les caractéristiques du faisceau affinées, les électrons sont transférés dans un anneau de stockage de 354 m de périmètre. Il s'agit en fait d'un polygone de 32 côtés, où deux types d'aimants sont présents : les dipôles (ou aimants de courbure) font tourner les électrons, qui émettent alors du rayonnement électromagnétique, et des aimants quadripôles et hexapolaires. Il s'agit de lentilles magnétiques chargées de focaliser les paquets de particules et de conserver leurs qualités. En ce lieu, s'effectue la séparation entre les électrons et les photons (rayonnement synchrotron).

Le spectre de ce rayonnement synchrotron comprend toutes les longueurs d'onde, depuis l'infrarouge jusqu'aux rayons X, en passant par le visible et l'ultraviolet. On dit souvent que c'est un faisceau blanc. Ces propriétés remarquables ouvrent la voie à un nombre croissant d'utilisations en physique, chimie, sciences de l'environnement ... La lumière synchrotron est dirigé ensuite par des systèmes optiques vers les stations expérimentales, dites "ligne de lumière", chacune, d'une vingtaine de mètres de long en moyenne, constitue un véritable laboratoire spécialisé pour un domaine bien défini (voir schéma ci-dessous).



Figure III.33 Schéma de principe d'une machine synchrotron

La ligne de lumière DESIRS³⁵ **[186]** dispose d'une branche expérimentale dédiée à la spectroscopie d'absorption en phase gaz dans l'UV et le VUV. Ce faisceau synchrotron, monochromatique dans le domaine du VUV, comporte une vingtaine d'onduleurs permettant de couvrir la gamme 5 eV à 40 keV (ou 30-250 nm) avec une pureté spectrale, un haut flux de photons (\approx de 10¹³-10¹⁴ photons/s) et des polarisations totalement variables (de circulaire à linéaire). Elle associe un spectromètre unique à très haute résolution spectrale (un pouvoir de résolution $\lambda/\delta\lambda$ de l'ordre de 200000 avec le monochromateur et jusqu'à 1000000 avec un spectromètre à transformée de Fourier), et une chambre (environnementéchantillon) permettant des mesures sous des conditions très variées : c'est sur ce type de chambre que notre spectromètre d'absorption va être couplé pour enregistrer les spectres d'action dans la gamme VUV. Elle permet de sélectionner, dans la gamme définie pour la ligne, la longueur d'onde adaptée à nos expériences.

Le développement d'un tel outil de diagnostic, constitue une bonne alternative aux mesures des densités absolues. Ces mesures seront complémentaires aux résultats obtenus dans ROSAE-III qui, rappelons-le, ne donnent accès ni aux densités absolues ni aux niveaux vibrationnels élevés ($v^{"} > 4$).

III.6.4 Description de la source SCHEME:

Le dispositif expérimental est présenté dans la **Fig. III.35 [69]**. La source est adaptée pour pouvoir se coupler à la ligne monochromatique DESIRS. L'extrémité de la ligne de lumière est raccordée à une petite chambre, séparée de la chambre principale par une fenêtre en MgF₂. On produira, dans la petite chambre, séparément du réacteur, un vide de 10^{-7} mbar, nécessaire au fonctionnement du faisceau. Le rayonnement du Synchrotron est haché par un système de fourche oscillante à déplacement électromagnétique, fonctionnant sous vide, et oscillant à une fréquence constante de 130 Hz.

Pour atteindre un vide avoisinant 10⁻⁶ mbar, dans la chambre principale de la source est équipée d'une pompe turbomoléculaire de 800 l/s. Deux autres pompes, de même type, mais de débit moindre (50 l/s), sont placées, dans la partie centrale et la première chambre auxiliaire (chambre 1 sur le schéma), mais par souci de clarté, elles ne sont pas représentées sur le schéma. Les deux gaz, l'hydrogène et le Krypton, sont introduits dans la chambre via un débitmètre massique (*MassFlow*). La pression est contrôlée avec précision par un capteur de pression absolue (Baratron).

Pour la mesure en spectroscopie d'absorption, nous avons utilisé un photomultiplicateur HAMAMATSU PMT (R1259), placé sur l'axe du faisceau Un pico-ampèremètre (Keithley) est utilisé pour mesurer le courant du PMT. Le spectre d'absorption est enregistré directement sur l'un des ordinateurs de la ligne DESIRS. Pour les mesures de fluorescence, un système de focalisation optique se compose de deux miroirs concave (50.8 mm de diamètre) et parabolique (hors axe).

La fluorescence est focalisée sur un second photomultiplicateur HAMAMATSU PMT (R10825), dont la sortie est reliée à un amplificateur synchrone (lock-in amplifier en anglais), de marque StanfordResearch SR830 ; le signal est également enregistré sur l'ordinateur de la ligne DESIRS.

³⁵ DESIRS : Dichroïsme Et Spectroscopie par Interaction avec le Rayonnement Synchrotron

Trois filaments chauffés sont utilisés pour dissocier les molécules **[187]**. La température de ces filaments est contrôlée par des mesures de courant et tension afin de déterminer leur résistivité électrique. Pour pas contaminer la chambre avec du tungstène évaporé, il a été convenu de maintenir leur température inférieure à 2500 K.

La partie centrale de la chambre, en acier inoxydable, contient un cylindre de cuivre, de diamètre de 130 mm. Ce cylindre est refroidi, par un écoulement continu d'air sec comprimé refroidi à la température d'azote liquide³⁶. Sa surface interne est recouverte avec un tube en Pyrex TM. Le but du Pyrex TM est, comme dans le cas de ROSAE-III, de diminuer le coefficient de recombinaison des atomes H. Ainsi, la désorption recombinative sur la surface du matériau étudié, placé face au plasma sur la surface de Pyrex TM, est favorisée.

Le tube de pyrex a un diamètre de 120 mm, et une longueur de 100 mm (cf. Figs. III.34 et III.35). Deux dispositions sont prévues pour le substrat du matériau :

- la première, dans le fond, sous forme d'un disque de 140 mm de diamètre, couvrant une des deux parties latérales de la chambre.
- La seconde, sous forme d'anneau de largeur 35 mm, (i.e. la surface de l'anneau et du disque sont identique), déposé à côté des filaments.



Figure III.34 Schéma de la source SCHEME couplée à la ligne DESIRS du synchrotron SOLEIL



La photo suivante, **Fig. III.35**, les numéros en blanc indiquent les différents éléments de l'expérience et leurs emplacements autour de la source SCHEME et sa position par rapport à la ligne de lumière DESIRS.

1. La source SCHEME.

- 2. Pompe turbomoléculaire 600 l/s.
- 3. Pompe turmoléculaire 50 l/s.
- 4. Photomultiplicateur PMT (R1259).
- 5. Photomultiplicateur PMT (R10825).
- 6. Amplificateur Lock-in.
- 7. Ligne du faisceau DESIRS.
- 8. Système d'acquisition du signal, de la ligne.
- 9. Vue interne sur le réacteur SCHEME.
- 10. Filaments.

Figure III.35 Photo de la source SCHEME, reliée à la ligne DESIRS du synchrotron SOLEIL.

La coupe transversale, **Fig. III.36** ci-dessous, présente, avec plus de clarté, le recouvrement du tube en Pyrex avec le cuivre et l'orientation du passage du faisceau de lumière de la ligne DESIRS au cœur de ce dernier, ainsi que les différents systèmes de refroidissement et de pompage. Les sorties pour les différentes mesures sont également indiquées.



Figure III.36 Coupe transversale de la source SCHEME (Position1 sur la Fig. III.35)

Le krypton, gaz atomique assimilé à un gaz parfait sert à étalonner les mesures réalisées sur l'hydrogène. Son utilisation permet un fonctionnement plus facile et les références pour les coefficients d'absorption et les enregistrements spectroscopiques sont nombreux et connus. Par conséquent, dans nos mesures d'acquisition instantanée du signal d'absorption et de la fluorescence, la transition 10.032 eV (123.584 nm) du krypton est utilisée.

On a pu ainsi démontrer le bon fonctionnement du dispositif optique. La Fig. III.37 présente les résultats obtenus à 10mTorr. Les deux signaux (pics d'absorption et fluorescence), obtenus dans SCHEME sont clairement observés.



Figure III.37 Signal d'absorption et de la LIF pour le krypton pur (p = 10 mTorr).

En bleu : signal d'absorption, en rouge : signal de fluorescence, obtenus dans SCHEME.

III.7 Paramètres expérimentaux :

L'étude mener consiste à déterminer l'influence des paramètres, tels que : pression, puissance, matériau, température, milieu du plasma, sur la création des ions négatifs H⁻.

III.7.1 Matériau :

Nous avons déjà mentionné que le matériau de la paroi de la chambre de la source d'ions peut avoir un impact important sur la production d'ions négatifs. Afin d'évaluer cet impact, et après l'étude comparative entre le Pyrex TM et l'acier inoxydable, quatre matériaux ont été choisis pour nos expériences : graphite pyrolytique hautement orienté (HOPG), tantale, inox et enfin le tungstène.

Le matériau, placé sur le Pyrex TM, faisant face au plasma, au fond de la chambre, en position 1, en premier lieu. Ensuite, pour la même surface, le meilleur d'entre eux, c'est-à-dire celui qui donne les meilleurs résultats, est déposé en position 2 sur le schéma de ROSAE-III (**Fig. III.11**). L'objectif de cette dernière manipulation est de préciser le rôle de la position, les autres paramètres expérimentaux seront fixés comme suit : pression de 9mtorr et puissance fixe de 150W.

Cette source de molécules ro-vibrationnellement excitées, similaire au réacteur ROSAE-III, va permettre une caractérisation de la production des molécules vibrationnellement excitées, non plus dans le volume du plasma, mais à la surface des matériaux cités. À la différence de la production en volume, ces mécanismes nécessitent des atomes d'hydrogène pour produire des molécules excitées. Cette étude permettra ainsi d'approfondir les connaissances sur les mécanismes de surface en plasma d'hydrogène.

III.7.2 Pression :

La pression du vide de la chambre avoisine les 10⁻⁶ mbar, cette pression est connue comme étant la pression de base. Il est souhaitable qu'elle soit la plus basse possible, pour éviter toute contamination surtout par la vapeur d'eau. Une fois cette pression atteinte, le gaz peut être injecté dans la chambre.

L'arrivée du gaz dans le réacteur se fait par une ouverture percée dans la chambre de diffusion, différents gaz peuvent être injectés dans la source : hydrogène, argon (pour les mesures d'actinométrie), azote (pour éviter la formation de la vapeur d'eau lors de la remise à l'air). Une jauge Penning (baratron MKS), position 8 de la photo 3.11, qui fonctionne dans la gamme entre 10⁻² à 10⁻⁷ mbar, permet de mesurer avec précision la pression du gaz dans la source. Notre pression de travail, pour l'hydrogène, se situe entre 3 et 15mTorr, par pas de 3mTorr.

III.7.3 Puissance :

Afin de connaître précisément la densité d'ions négatifs produite par des réactions de volume, nous travaillerons sans matériau, à puissance fixe 150 W et en fonction de la pression. Par la suite, des mesures similaires seront effectuées, à la pression constante de 9mtorr, pour une puissance du générateur microondes variant de 75 à 200W, la valeur maximale du générateur de puissance étant égale à 200 W. Le changement de la puissance se fera par pas de 25W, au voisinage du matériau à étudier afin d'en apprécier l'effet.

III.8 Le modèle numérique :

Dans le cadre de nos travaux, un groupe de chercheurs du laboratoire LSPM a développé un modèle numérique collisionnel en 1D du plasma d'hydrogène créé par une source dipolaire. Le modèle décrit partiellement la décharge. Les résultats obtenus par ce code seront comparés à nos résultats expérimentaux et permettrons de mieux comprendre les phénomènes observés. Les profils du champ magnétique³⁷sont simulés par le logiciel COMSOL[®], puis intégrés dans le modèle, comme paramètre d'entrée. Le modèle collisionnel 1D utilise des équations de continuité décrivant la conservation de masse pour les espèces et les niveaux d'excitation (considéré comme espèce à part entière) et une équation de conservation de l'énergie des électrons **[188]**. Il décrit également, la chimie du plasma d'hydrogène le long des lignes de champ magnétique. Par souci de simplicité, la direction du champ magnétique est prise parallèlement à l'axe de l'aimant.

³⁷ Les profils sont indexés en annexe.

Les réactions chimiques et le transport des espèces d'hydrogène sont étudiés le long du plan équatorial de l'aimant, c'est-à-dire dans la direction radiale, entre la surface de l'aimant et les parois du réacteur. Le transport des espèces chargées est perpendiculaire au champ magnétique. Pour se mettre dans les mêmes conditions de l'expérimentation, la puissance injectée est prise comme paramètres d'entrée. Il est à préciser, que le modèle ne tient pas compte des phénomènes électrostatiques. Le **Tab. III.3**, ci-dessous, résume et donne les différentes espèces prises en compte dans ce modèle :

Les molécules H ₂ à des	Les atomes H aux états	Les ions positifs	Les espèces chargées
états vibrationnels excitées	électroniques excités	d'hydrogène	négativement
	H(n=1)	H^{+}	H
$H_2(v''=0,J'')$			
	H(n=2)	H_2^+	e
$H_2(v'' = 1-14,J'')$			
	H(n=3)	H_3^+	

Tableau III.3 Les espèces chargées et neutres prises en compte dans le code numérique 1D

Les états rotationnels des molécules sont considérés en équilibre avec la température du gaz ; les autres niveaux (J") ne sont pas pris en compte.

Pour chaque espèce considérée, l'équation de continuité s'écrit :

$$\frac{dn_s}{dt} = -\vec{\nabla}.\vec{F}_s + W_s \tag{III.42}$$

Où : n_s est la densité, \vec{F}_s est le flux de transport dans la direction considérée et Wsest le taux total de la réaction.

Il est supposé que le plasma est ambipolaire et que le transport est perpendiculaire au champ magnétique. Le flux de transport est donné par :

• Pour les neutres :

$$\vec{F}_{s} = -D_{s}\vec{\nabla}n_{s}$$
 (III.43)

• Pour les cations :

$$\vec{F}_{s} = -D_{a\perp} \vec{\nabla} n_{s}$$
 (III.44)

• Pour les anions :

$$\vec{F}_{s} = 0 \tag{III.45}$$

Où : D_s est le coefficient de diffusion de l'espèce [189],

D_a⊥, coefficient de diffusion ambipolaire, est défini par :

$$D_{a\perp} = \frac{\mu_{i\perp} D_{e\perp} + \mu_{e\perp} D_{i\perp}}{\mu_{i\perp} + \mu_{e\perp}}$$
(III.46)

 $D_{e^{\perp}}$ et $D_{i^{\perp}}$ sont donnés par la relation [190]:

$$D_{s\perp} = \frac{D_s}{1 + \left(\frac{\omega_c}{v_{ela}}\right)^2} \propto \frac{1}{B^2}$$
(III.47)

 ω_c et v_{ela} sont respectivement, les fréquences de collision cyclotronique et élastique.

Pour l'électron, la diffusion Bohm est aussi prise en compte, suivant la relation :

$$D_B = \frac{T_e}{16B} \tag{III.48}$$

L'équation de la continuité des espèces est couplée avec l'équation de l'équilibre énergétique de l'électron :

$$\frac{dn_e \langle \varepsilon_e \rangle}{dt} = -\vec{\nabla} \cdot \vec{F_e^{NR\vec{J}}} + P_{ECR} - P_{coll}$$
(III.49)

Où l'expression de $\overline{F_e^{NRf}}$ est [191]:

$$\overline{F_e^{NRf}} = -h_e D_a \bot \vec{\nabla} n_e, \qquad \text{(III.50)}$$

avec : h_e l'enthalpie des électrons, P_{coll} : puissance perdue par collision et P_{ECR} : la puissance injectée.

Concernant les conditions aux limites, il est supposé que toutes les particules se recombinent sur les parois du réacteur. Pour les atomes H, comme dans l'expérimentation, il est considéré qu'ils se recombinent en fonction de la nature de la surface, selon un coefficient de recombinaison γ , qui rappelons-le, $\gamma=0.5$ pour l'acier et 0.05 pour le PyrexTM. Également, il nous faut noter que les positions A et B ne sont pas exactement les positions de calcul et que, seulement, les résultats obtenus sur les ions négatifs et les atomes H, qui sont le moins sensible au champ magnétique, seront utilisés pour l'étude comparative avec les résultats expérimentaux.

III.9 CONCLUSION :

Au fil de ce chapitre, notre but était de présenter les dispositifs expérimentaux, les diagnostics plasma et le modèle numérique. Cette partie présente une source dipolaire ECR et son principe de fonctionnement.

La description du réacteur ROSAE III, qui utilise quatre sources de plasmas multi-dipolaires, et sur lequel la majorité des expériences de cette thèse ont été réalisées, a été donnée. Sans oublier la présentation de la chambre du réacteur et son évolution du réacteur multipolaire Camembert III en dispositif ROSAE, dédié à l'étude des mécanismes de surface de production de molécules $H_2(X_1\Sigma_g^+, \nu^{"})$ et d'ions négatifs H⁻.

Nous avons également présenté les diagnostics utilisés : sondes électrostatiques, photodétachement laser, spectroscopie d'émission optique dans la région spectrale du visible et de l'ultraviolet du vide et, finalement, par spectroscopie d'absorption et de fluorescence induite dans la région spectral de l'ultraviolet du vide, en utilisant la radiation synchrotron dans un montage expérimental spécial (SCHEME).

La performance et le fonctionnement de chaque diagnostic est expliqué :

- Le diagnostic par sonde électrostatique reste attrayant pour obtenir des mesures absolues sur les densités électronique N_e et ionique N_i, la température des électrons T_e, le potentiel plasma V_p, le potentiel flottant V_f et sur la fonction de distribution en énergie des électrons f_{dee};
- La méthode du Photodétachement permet de corréler la densité d'ions H produite avec le courant extrait et de mesurer la densité absolue des ions H ;
- La spectroscopie d'émission optique dans le visible et VUV, permet d'estimer les densités relatives des atomes [H] et molécules [H₂], ainsi que la température des H et du gaz.
- La spectroscopie d'absorption, pour déterminer les densités absolues des atomes et molécules d'hydrogène.

La présentation d'un modèle numérique accompagne et clôt l'étude expérimentale. Ce code va nous permettre, en chapitre suivant, d'expliquer les phénomènes observés ou mesurés expérimentalement.

CHAPITRE IV

MESURES EXPERIMENTALES ET DISCUSSIONS

Le chapitre quatre englobe trois parties distinctes, il présente les discussions sur les résultats expérimentaux obtenus sur la production d'ions négatifs H^{-} , à commencer par une caractérisation et une évaluation de la reproductibilité des résultats pour différents paramètres du plasma.

Une étude préliminaire nous permettra d'évaluer l'efficacité du matériau de la paroi de la source ROSAE-III, elle consacrera la première partie de ce chapitre. Ainsi, nous entamerons un examen comparatif entre deux matériaux, Inox et Pyrex TM. Cette étude se fera suivant les variations des différents paramètres plasmas en fonction de la pression, de la puissance et de l'influence de la distance r par rapport à la position de la zone de diffusion et de couplage dans ROSAE-III. Un calcul théorique (modèle numérique 1D) apportera un élément de comparaison supplémentaire.

Dans la section suivante, à la lumière du résultat obtenu, l'influence de la surface en contact avec le plasma sur la production des ions négatifs d'hydrogène sera analysée. L'effet de la position du matériau, par rapport à la source plasma, sur les caractéristiques du plasma, en fonction de la pression et de la puissance sera discuté. Une comparaison entre les matériaux étudiés sera établie et une interprétation sur le taux de production des ions négatifs donnée.

La troisième et dernière partie concerne l'expérience avec la source nommée SCHEME, menée sur la ligne de lumière DESIRS du synchrotron SOLEIL. Le but est de déterminer, par absorption VUV, la densité absolue des molécules ro-vibrationnellement excitées H_2 (v^* , J^*). La contribution exacte de chaque matériau dans la production des ions négatifs par la désorption recombinative sera ainsi analysée et interprétée.

IV.1 Introduction :

Le plasma dans ROSAE-III est étudié pour deux matériaux "de référence" ayant des coefficients de recombinaison différents, à savoir une couverture de la surface de la chambre en acier inoxydable (304-L) et en verre borosilicate (Pyrex TM). Le premier, l'acier inoxydable, étant le matériau de prédilection de fabrication des réacteurs plasma ; le second, le verre borosilicaté (Pyrex TM), à faible coefficient de recombinaison, par rapport à l'acier (respectivement γ_H =0,004 et 0,5, *cf* § *III.2*).

Cette étude préliminaire est doublement intéressante, elle permet d'évaluer la part de la production en volume par rapport à la production en surface : en configuration Inox (condition habituelle des réacteurs plasma) les molécules ro-vibrationnelles $H_2(v", J")$ peuvent provenir d'une excitation en volume par chocs inélastiques entre électrons chauds de la zone ECR et les molécules H_2 à l'état fondamental et de réactions de désorption recombinative à la surface des parois d'inox ; en configuration Pyrex TM les mécanismes de surface deviennent négligeables par rapport à ceux ayant lieu en volume. Certains résultats expérimentaux de cette comparaison seront confrontés à ceux obtenus par le modèle numérique collisionnel à une dimension (1-D) du plasma d'hydrogène, présenté dans le chapitre III.8. Les résultats obtenus par ce code permettront de confirmer ou non les hypothèses formulées à la suite de l'analyse des résultats.

Dans une seconde phase, la configuration de la structure ROSAE-III, ainsi définie, permet d'étudier, dans les mêmes conditions expérimentales, des matériaux différents pour comparer leurs effets sur la production des ions négatifs. Nous présenterons les résultats obtenus avec les différents matériaux, tels que l'inox, le tungstène, le tantale et l'HOPG. Les discussions et interprétations porteront sur l'impact de la nature du matériau, sa position dans l'enceinte sur les variations des paramètres plasma : densité électronique, température électronique, potentiel plasma et potentiel flottant, en fonction de la pression de l'hydrogène et de la puissance injectée.

Afin d'approfondir la contribution exacte de chaque matériau dans la production des ions négatifs, notamment par la désorption recombinative, on utilisera une seconde source nommée SCHEME-II. Afin de mesurer la densité relative des molécules ro-vibrationnellement excitées pour chaque matériau. Ces mesures ont eu lieu sur la ligne DESIRS du synchrotron SOLEIL (Saclay-Palaiseau).

IV.2 Reproductibilité :

L'objectif est de suivre les variations des paramètres plasma $(n_e/T_e/V_p/V_f)$ pour une des conditions expérimentales (Pression, Puissance, position de mesure, type de gaz et flux de pompage) identiques en fonction du temps mais aussi après ouverture/fermeture du réacteur et/ou extinction du plasma. Par cette série de mesures, on s'assure de la reproductibilité des mesures qui est essentielle pour être capable de distinguer ces effets de surface induits par les différents matériaux.

Ainsi, durant trois jours, à des intervalles de temps irréguliers, avec des coupures et rallumage du plasma et deux remises à l'air de la chambre, avec ouverture et pompage du réacteur, ces paramètres de base du plasma (densité électronique n_e , potentiel plasma V_p , température électronique Te), ont été mesurés par sonde électrostatique. La **Fig. IV.1** regroupe les résultats expérimentaux obtenus avec une couverture de la paroi de la surface du réacteur en inox, à une pression de 9mTorr et une puissance de 150 W.

Les résultats obtenus sont stables dans le temps (chaque mesure est effectuée 15 minutes après l'allumage du plasma, pour s'assurer de sa stabilité et de son équilibre thermique). La densité électronique n_e , en carrés noirs, de valeur moyenne $5,30 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$, avec une incertitude absolue de $\pm 0,17 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$, soit une variabilité de $\pm 3\%$. Le potentiel plasma V_p , en triangles bleus, de valeur moyenne 6,6 V, avec une incertitude de $\pm 0,1$ V, soit un écart de $\pm 1,5\%$. Pour la température électronique Te, en cercles rouges, sa valeur moyenne mesurée est de 0,90 eV, avec une incertitude de $\pm 0,04$ eV, soit une fluctuation de $\pm 4\%$.



Figure IV.1 Mesures de reproductibilité : p = 9mTorr ; P = 150 W ; Paroi en Inox. Les paramètres du plasma sont obtenus par mesures de sonde électrostatique, durant trois jours. Les traits noirs en continu représentent le ré-allumage du plasma, tandis que les traits en discontinu représentent la mise à l'air de la chambre (Ouverture et pompage).

En conclusion, on remarque que les résultats cités et reproduits sur la figure ci-dessus, confirment bien la reproductiblité des mesures. Les valeurs enregistrées restent groupées autour de leur valeur moyenne, avec une faible marge d'incertitude. Ces résultats démontrent la stabilité de fonctionnement du plasma et la posssibilité d'utiliser ce réacteur avec ce protocole de mesure (t_0 +15min) pour les études concernant les matériaux.

Résultats obtenus dans le réacteur ROSAE-III

Le but de cette étude est de comparer deux types de matériaux de surface pour la paroi du réacteur : l'acier inoxydable et le Pyrex TM. Nous commencerons cette première partie par donner les tendances de variation des paramètres plasmas : la densité électronique, la température électronique, le potentiel plasma et le potentiel flottant, et ce, séparément pour chaque type de surface, dans la zone de diffusion (Position B), à différentes puissances et pressions.

IV.3 Parois en Pyrex TM:

IV.3.1 Comportement du plasma ROSAE-III en fonction de la pression :

Nous débuterons par discerner les variations des caractéristiques plasma ($n_e/T_e/V_p/V_f$) en fonction de la pression pour plusieurs valeurs de la puissance du réacteur, à la position B.

IV.3.1.1 Variation de la densité et de la température électronique :

Les **Figs. IV.2a** et **IV.2b** donnent respectivement les variations de la densité et de la température électronique, pour différentes puissances en fonction de la pression.



Figure IV.2 Variations en fonction de la pression, parois en PyrexTM. a. la densité des e⁻, b. la température des e⁻.

La tendance constatée est que, quelle que soit la valeur de la puissance (variation de 75 W à 175 W, par pas de 25 W), la densité électronique augmente en fonction de la pression. Pour la puissance minimale de 75 W, elle passe respectivement d'une valeur d'environ $0,4\times10^{15}$ m⁻³ à $1,5\times10^{15}$ m⁻³, pour une pression évoluant de 3mTorr à 15mTorr. Et pour la valeur maximale de puissance, soit 175W, elle varie de ~ $1,2\times10^{15}$ à $3,1\times10^{15}$, respectivement pour une pression de

3mTorr et 15mTorr. Ces variations indiquent que le couplage puissance micro-ondes/plasma reste efficace sur cette gamme de pression.

Quant à la température électronique, elle diminue en fonction de la pression, pour toutes les puissances. La température maximale est égale à 1,8eV, obtenue à 3mTorr/75W, la minimale est de 1,1eV, mesurée à la même puissance et à une pression de 15mTorr. Cette baisse de température est due à l'augmentation des collisions entre particules et les électrons, engendrée par l'augmentation de la pression.

IV.3.1.2 Variation du potentiel plasma et flottant :

Les **Figs. IV.3a** et **IV.3b**, présentent respectivement, les variations du potentiel plasma et flottant en fonction de la pression, pour différentes puissances.



Figure IV.3 Variations en fonction de la pression, parois en Pyrex TM. a. le potentiel plasma. b. le potentiel flottant.

Une même tendance pour les deux potentiels, plasma et flottant est observée. Pour la puissance minimale de 75W, on constate une chute importante des deux potentiels : le premier diminue de $V_P = 11,5V$ à $V_p=7V$, quand on fait varier la pression de 3mTorr à 15mTorr ; le potentiel flottant, quant à lui, diminue de $V_f = 7,5V$ à 5,7V, pour la même variation de pression. Concernant les autres puissances, les deux potentiels présentent des profils quasi-similaires : les valeurs de V_p mesurées ont tendance à croitre pour V_p à partir de 6mTorr, alors que V_f est croissant à partir de 9mTorr seulement.

IV.3.1.3 Variation de l'enregistrement du spectre VUV :

Il nous paraît également intéressant de suivre les variations d'intensité des raies d'émission dans le domaine VUV. La **Fig. IV.4** présente les spectres VUV à plusieurs pressions, à puissance constante de 150W, pour une chambre avec une couverture en Pyrex TM.

On perçoit une tendance collective des intensités de toutes les différentes bandes du spectre VUV qui nous intéressent : les bandes Lyman, Werner et de la raie Lyman- α ; leurs intensités augmentent toutes en fonction de la pression, pour le même réglage du spectromètre.



Figure IV.4 Variations des intensités d'émission des raies des bandes Werner et Lyman du spectre VUV, de 110-170 nm, pour différentes pressions. Enregistrement sur le réacteur ROSAE-III, parois en Pyrex TM, pour une puissance de 150W. Spectres normalisés à la bande Lyman (157nm).

IV.3.2 Comportement du plasma ROSAE-III en fonction de la puissance :

Après avoir présenté les variations de n_e , T_e , V_p et V_f en fonction de la pression pour différente puissance, seront présentés ci-après les variations de ces mêmes paramètres en fonction de la puissance pour plusieurs valeurs de la pression, de 3mTorr à 15mTorr par pas de 3mTorr.

IV.3.2.1 Variation de la densité et de la température électronique :

La Fig. IV.5 donne, pour différentes pressions, la variation de la densité électronique a) et de la température électronique b) en fonction de la puissance.



Figure IV.5 Variations en fonction de la puissance de, **a**. la densité des e⁻, et **b**. la température des e⁻. Parois en PyrexTM.

Comme en fonction de la pression, la densité du plasma augmente en fonction de la puissance, quelle que soit la pression. Cette tendance est prévisible car pour la même concentration de molécules, il y a plus de puissance disponible pour "chauffer" les électrons. Ceux-ci peuvent produire plus de collisions inélastiques et ainsi générer plus d'électrons consécutivement à ces collisions.

Ainsi, à 3mTorr, la densité passe d'une valeur de $0,4 \times 10^{15}$ m⁻³ pour atteindre ~ $1,2 \times 10^{15}$ m⁻³, pour une augmentation de puissance de 75W à 175W. Pour une seconde valeur de pression (6mTorr) et pour un même intervalle de puissance, la densité électronique augmente de $0,6 \times 10^{15}$ m⁻³ à ~ $1,8 \times 10^{15}$ m⁻³. Aux deux autres valeurs de pression, 9mTorr et 12mTorr, également pour une même variation de puissance, entre 75W et 175W, la densité électronique, croît de ~ $1,1 \times 10^{15}$ m⁻³ à ~ $2,6 \times 10^{15}$ m⁻³ et de ~ $1,4 \times 10^{15}$ à $2,4 \times 10^{15}$. La densité maximale de la densité électronique, est atteinte à 15mTorr et 175W et a pour valeur 3×10^{15} m⁻³.

Concernant la température électronique, on observe une faible augmentation en fonction de la puissance. Les valeurs obtenues à 75W/3mTorr et 150W/15mTorr ne sont pas à retenir pour l'interprétation. L'augmentation constante est due à une augmentation de la zone de production du plasma : celle-ci s'étend plus en aval des sources dipolaires. Ainsi, certains des électrons chauds issus de la zone ECR atteignent la zone de mesure et contribuent à augmenter la température locale du plasma.



IV.3.2.2 Variation du potentiel plasma et flottant :

Les **Figs. IV.6a** et **IV.6b**, donnent l'évolution du potentiel plasma et flottant en fonction de la puissance, pour des pressions égales à 3, 6, 9, 12 et 15mTorr.

Figure IV.6 Variations en fonction de la puissance, de : a. le potentiel plasma. b. le potentiel flottant. Parois en PyrexTM.

Les variations du potentiel flottant présentées à la **Fig IV.6b**, varie d'une manière quasi similaire à celles du potentiel plasma, données en **Fig IV.6a**. Pour toute la gamme de pression allant de 3mTorr à 15mTorr, la valeur de ce dernier augmente avec la puissance injectée. Ainsi, un minimum de 7V est mesuré à 12mTorr/75W, et un maximum de 10V à 15mTorr/175W. Cette variation est due à l'augmentation de la température électronique en fonction de la puissance (**Fig IV. 5b**). En effet, quand Te augmente les électrons auront des énergies plus fortes, et pour les maintenir confiner au cœur du plasma, le potentiel plasma croit.

IV.3.2.3 Variation de l'enregistrement du spectre VUV :

La **Fig. IV.7** représente le spectre VUV, pour les différentes puissances, de 100 W à 200 W, variable par pas de 25 W et à une pression constante égale à 9mTorr, pour une bande spectrale comprise entre 110 et 170nm. À partir de la **Fig. IV.7**, une même tendance se dégage pour la puissance que pour l'enregistrement effectué en fonction de la pression (*cf. IV.3.1.3*): Les intensités des bandes et des raies spectrales augmentent, notamment pour les bandes Lyman, Werner et de la raie Lyman- α ; elles sont minimales à 100W et maximales à 200W.



Figure IV.7 Spectres VUV pour différentes puissances. Spectres enregistrés dans le réacteur ROSAE-III, parois en Pyrex TM, bande spectrale de 110-170 nm à une pression de 9mTorr. Spectres normalisés à la bande Lyman (157nm).

IV.4 Paroi en acier inoxydable :

Tout comme pour le Pyrex TM, nous présentons, les variations des mêmes paramètres plasma $(n_e/T_e/V_p/V_f)$ en fonction de la pression et de la puissance, en position B. Ici, le plasma fait face à la paroi d'inox et plus à celle de quartz (Pyrex TM).

IV.4.1 Comportement du plasma ROSAE-III en fonction de la pression :

Les puissances explorées sont identiques à celles du paragraphe IV.3.1, i.e. 75, 100, 125, 150 et 175W, sont présentées ci-après les variations des paramètres plasmas en fonction de la pression.

IV.4.1.1 Variation de la densité et de la température électronique :

Nous présentons à la Fig. IV.8 les variations de la densité électronique en a.) et la température en b.) en fonction de la pression.



Figure IV.8 Variations en fonction de la pression, parois en acier inoxydable. a. la densité des e⁻, b. la température des e⁻.

La même tendance que celle observée pour la paroi en Pyrex TM apparait : la densité électronique augmente en fonction de la pression, et ce, pour toutes les puissances. Il nous faut également signaler la présence d'un début de saturation, dès qu'on atteint la pression de 12mTorr. Néanmoins, ce palier reste discret pour la valeur minime de puissance (75W), la densité électronique de 0.5×10^{15} m⁻³ à 3mTorr croît presque linéairement jusqu'à sa valeur autour de 2×10^{15} m⁻³ pour 15mTorr. À la puissance supérieure de 100W, la densité commence à saturer dès 9mTorr, elle augmente avec une légère pente, de 1×10^{15} m⁻³ à 3mTorr pour atteindre n_e = 2.2×10^{15} m⁻³. Au-delà d'une puissance de 125W, même si les tendances restent identiques, par contre, la pente de progression est plus forte, la densité électronique est de 1.5×10^{15} m⁻³, 2×10^{15} m⁻³ et $\sim 2.2 \times 10^{15}$ m⁻³ pour la plus faible pression de 3mTorr pour augmenter à 5×10^{15} m⁻³, 2×10^{15} m⁻³, respectivement pour 125W, 150W et 175W. Comparativement au Pyrex TM, la valeur maximale atteinte à 15mTorr/175W de 5.7×10^{15} m⁻³ avec l'inox est deux fois plus importante, à cette même position dans le plasma, pour le Pyrex TM, qui est seulement de 3×10^{15} m⁻³. Ceci pourrait s'expliquer par la pulvérisation des parois de Pyrex TM qui générerait des espèces comme l'oxygène qui pourraient attacher des électrons en formant des O⁻.

Quant à la température électronique, les courbes de la **Fig. IV.8b** présentent une décroissance quasi-linéaire en fonction de la pression. Comme dans le cas du Pyrex TM, cette diminution s'explique aussi par la perte d'énergie des électrons par collisions, lorsqu'on augmente la pression.

IV.4.1.2 Variation du potentiel plasma et flottant :

Les **Figs. IV.9a** et **IV.9b** présentent respectivement les variations du potentiel plasma et du potentiel flottant en fonction de la pression, toujours aux mêmes puissances que précédemment. Ils existent une quasi similitude pour les courbes de variation du potentiel plasma et flottant en fonction de la pression, quelle que soit la puissance.



Figure IV.9 Variations en fonction de la pression, parois en acier inoxydable. a. le potentiel plasma b. le potentiel flottant.

À 75W, le potentiel plasma varie de 4,5V à 5,25V, tandis que le potentiel flottant varie de 2,2V à 3,5V, respectivement à 3 et 15mTorr. Quand on augmente la puissance à 100W, les deux potentiels présentent une chute de 16% au passage de 3mTorr à la pression de 6mTorr, une diminution de 5,1V à 4,3V pour le premier et de 2,6V à 1,8V pour le second, au-delà, les

potentiels atteignent à 15mTorr, les valeurs maximales de $V_p = \sim 5,5V$ et $V_f = 3,4V$. Pour une puissance injectée supérieure, la décroissance est moins accentuée pour le potentiel plasma que pour le potentiel flottant.

Concernant le potentiel flottant, il passe d'environ 2.6V pour les deux puissances à 3mTorr à ~3,65V pour 15mTorr. Pour la puissance de 125W, le potentiel plasma passe de 5,8V à ~6,5V et le flottant de 2,8V à 4V, pour 3 et 15mTorr de pression.

IV.4.1.3 Variation de l'enregistrement du spectre VUV :

Nous présentons à la **Fig. IV.10**, le spectre VUV enregistré avec des parois en acier inoxydable, pour plusieurs pressions à une puissance de 150W, pour une bande spectrale allant de 110 à 170nm.

Ces spectres montrent que l'influence de la pression est faible. Seul le spectre obtenu à 3mTorr est moins intense que les autres.



Figure IV.10 Spectres VUV pour différentes pressions, enregistré dans ROSAE-III à parois en acier inoxydable. Spectres normalisés à la bande Lyman (157nm).

IV.4.2 Comportement du plasma ROSAE-III en fonction de la puissance :

Nous abordons maintenant les effets de la puissance, à la même position de mesure : Position « B » à 79mm en aval des sources plasma. Les variations des paramètres plasmas : densité et température électronique, potentiel plasma et flottant, ainsi que des spectres VUV sont présentés. Et ce, pour plusieurs valeurs de la pression, de 3mTorr à 15mTorr, par pas de 3mTorr, en fonction de la puissance.

IV.4.2.1 Variation de la densité et de la température électronique :

En Fig. IV.11, les variations de la densité électronique en a.) et de la température électronique en b.) sont présentées pour différentes pressions, en fonction de la puissance, toujours avec le réacteur ROSAE III avec une chambre en acier inoxydable.



Figure IV.11 Variations en fonction de la puissance, parois en acier inoxydable. a. la densité des e⁻. b. la température des e⁻.

La première observation est que la densité électronique varie d'une manière croissante en fonction de la puissance avec une pente différente suivant la pression. Elle est plus faible pour les pressions basses et augmente à plus haute pression. Ainsi, pour la pression minimale de 3mTorr, la courbe verte de la **Fig. IV.11a** présente une augmentation faible de la densité électronique, de $0,5\times10^{15}$ m⁻³ à $2,4\times10^{15}$ m⁻³. L'augmentation est plus importante à 6mTorr. n_e varie de 1×10^{15} m⁻³ à $3,75\times10^{15}$ m⁻³, pour une puissance de 75 à 175W. Après 125W apparait une saturation. Au-delà de 6mTorr, pour les pressions 9, 12 et 15mTorr, le même palier est enregistré. La densité électronique atteint sa valeur maximale, ~ $5,8\times10^{15}$ m⁻³ à 175W, pour une pression 15mTorr.

En ce qui concerne la température électronique, comme pour la densité électronique, une tendance à la croissance s'affiche également, et ce, quelle que soit la pression. À la puissance minimale de 75W, les valeurs mesurées sont, respectivement dans l'ordre de progression des cinq pressions, de 1,05, 1,15, 1, 0,98 et 0,95 eV pour atteindre leurs valeurs maximales, à la puissance injectée de 175W, soient 1,55eV pour 3mTorr, ~1,4eV pour 6mTorr, 1,48eV pour 9mTorr, 1,37eV pour 12mTorr et 15mTorr.

IV.4.2.2 Variation du potentiel plasma et flottant :

Ce sous-paragraphe abordera les tendances du potentiel plasma et flottant en fonction de la puissance, les résultats de mesures sont indiqués respectivement en **Figs IV. 12a**, et **12b**.



Figure IV.12 Variations en fonction de la puissance, parois en acier inoxydable. a. le potentiel plasma b. le potentiel flottant.

La première constatation à propos des variations du potentiel plasma, quelle que soit la valeur de la pression, est la faible croissance pour les faibles puissances (jusqu'à 100W) avec un second palier à 6,3V pour 3mTorr, et 6V pour 6mTorr ; les valeurs sont confondues à 6,8V pour les autres pressions. Alors que les valeurs minimales, obtenues à la puissance injectée de 75W, sont de 4,4V à 3 et 9mTorr, 4,3V pour la pression de 6mTorr et enfin 4,6V et 5,25V à 12mTorr et 15mTorr.

Pour le potentiel flottant, on ne peut ressortir, comme à chaque fois en ce qui le concerne, une allure nette aux courbes de variation. Si pour les pressions de 12 et 15mTorr, les valeurs du potentiel flottant restent pratiquement constantes, entre 3V et 3,5V. Une quasi similitude est également observée au faible puissance ($\leq 100W$) pour les pressions de 6 et 9mTorr : un fléchissement au passage de la puissance 75 à 100W, suivie d'une augmentation notoire pour la pression de 9mTorr et une recrudescence pour 6mTorr.

Les valeurs maximales du potentiel flottant sont tous enregistrées pour la puissance médiane de 125W, on note respectivement, de la plus faible à la plus grande, une tension pratiquement confondue à 2,8V (pression < 9mTorr) et 3,2V et 3,8V pour 12 et 15mTorr.

Nous présentons la différence de potentiel ΔV en **Tab. IV.1**, pour l'inox et le Pyrex TM, à 6mTorr.

	V_{p} - V_{f}	
	75W	175W
Pyrex TM	2V	3V
Inox	4,5V	6V

Tableau IV.1 Différence de potentiel dans le cas du PyrexTM et de l'inox, à 6mTorr.

IV.4.2.3 Variation de l'enregistrement du spectre VUV :

La Fig. IV.13 présente l'enregistrement du spectre VUV, pour différentes puissances, à 9mTorr de pression, d'une bande spectrale comprise entre 110 et 170 nm. Cet enregistrement montre que, les raies et les bandes spectrales sont plus intenses quand la puissance augmente.



Figure IV.13 Spectres VUV pour différentes puissances, enregistrés dans ROSAE-III, parois en acier inoxydable. Bande spectrale de 110-170 nm, Pression 9mTorr. Spectres normalisés à la bande Lyman (157nm).

IV.4.3 Conclusion :

Au terme de ce paragraphe, nous avons analysé l'influence d'un matériau de couverture différent de celui de l'inox en fonction de la puissance et de la pression pour deux types de couverture, Pyrex TM et acier inoxydable. Pour les deux cas, les différents paramètres plasma (n_e, T_e, V_p, V_f), ont été présentés. Les spectres VUV ont été enregistrés, dans le but d'évaluer les densités relatives des molécules excitées, pour chaque couverture de chambre, sous les mêmes conditions de pression et de puissance.

IV.5 Etude comparative Inox-Pyrex :

Ce paragraphe se consacre à l'étude comparative du plasma de ROSAE-III pour les deux surfaces «de référence » examinées précédemment, des matériaux ayant des coefficients de recombinaison différents, à savoir l'acier inoxydable et le verre de borosilicate (Pyrex TM). Le but de cette analyse est :

- L'évaluation du rendement de production d'ions négatifs, pour chaque couverture de chambre ;
- Le choix du type de couverture pour l'étude de l'effet des matériaux.

IV.5.1 Comparaison du rendement de production des ions H⁻:

Pour estimer le rendement de production d'ions négatifs H⁻ de chacune des couvertures faisant face au plasma, nous avons évalué le rapport n_i/n_e, mesuré dans la position B (à 79mm en aval des sources plasma). Ce dernier, donne la densité absolue des ions négatifs, par rapport à la densité des électrons présents dans le plasma. Ce qui permet de comparer directement, l'efficacité de chacun des matériaux de surface. Les résultats obtenus sont présentés dans la **Fig. IV.14**.



Figure IV.14 Rapport de densité n_i/n_e pour les deux matériaux étudiés, et différentes pressions. P=150W, Position B.
Cette figure montre que, sous les mêmes conditions de pression et de puissance, le rapport de densités, est supérieur dans le cas du PyrexTM. Le rendement pour ce dernier pourrait être deux fois plus supérieur (6 mTorr) que pour des parois en acier inoxydable. Ceci pourrait être expliquer par une présence plus importante de molécules ro-vibrationnellement excitées dans le cas du PyrexTM. En effet, les ions négatifs sont produits en volume par attachement dissociatif (AD), qui, rappelons-le, requiert des électrons froids, et des molécules ro-vibrationnellement excitées molécules excitées pourrait expliquer la différence dans la production des ions H⁻. Pour confirmer cela, nous présentons en **Fig. IV.15**, les spectres VUV pour les deux cas à 6mTorr et 150W.



Figure IV.15 Spectres d'émission VUV normalisés, Pyrex (en noir), acier inoxydable (en rouge) ; obtenus à 6mTorr, et 150W. Position B. Spectres normalisés à la bande Lyman (157nm).

Les raies d'émission VUV dans la bande Werner de la **Fig. IV.15**, sont légèrement plus intense dans le cas du PyrexTM. Ceci peut confirmer en partie notre hypothèse. Car seuls les mesures d'absorption dans le VUV, pourrait l'affirmer complètement.

IV.5.2 Le choix de la couverture de chambre :

Avant d'analyser l'effet des matériaux sur la production d'ions négatifs H⁻, nous devons d'abord faire le choix entre le PyrexTM et l'inox, pour couvrir l'enceinte de ROSAE-III. Ce choix sera motivé par les conditions suivantes : la couverture qui produit le plus d'ions négatifs H⁻, i.e. ceci donne l'avantage au PyrexTM, qui a un rendement supérieur (*cf.* IV.5.1) ; et celle qui a un faible coefficient de recombinaison, i.e. si on se fie à la littérature cela donne aussi l'avantage au PyrexTM

[125], mais nous devons le vérifier pour ROSAE-III. Cette deuxième condition est indispensable, si on part du principe que le matériau augmente la production des ions H⁻ par la désorption recombinative.

La **Fig. IV.16** représentant les rapports de densités (H_{β}/H_{f}) , obtenues expérimentalement, et les densités absolues des atomes obtenues par le biais du modèle 1D, montre clairement que la densité atomique est supérieure dans le cas du PyrexTM. Cette même figure, on constate qu'il y a un bon accord entre les variations relatives du rapport H_{β}/H_{f} et les résultats numériques. Il est donc ligitime de considérer les résultats issus du rapport H_{β}/H_{f} comme fiables pour décrire les variations relatives des [H] dans le plasma. Ce qui confirme que, pour toutes les conditions étudiées, que la densité atomique H est plus élevée lorsque la couverture Pyrex TM est utilisée.



Figure IV.16 Variations des rapports des intensités des raies d'émission H_{β}/H_{f} obtenues expérimentalement, et des densités absolues obtenues par le modèle 1D. P=150W, position B.

Ces résultats sont confirmés par les mesures expérimentales de la densité absolue des atomes H par actinométrie, et représentés dans la **Fig. IV.17** Les résultats numériques et expérimentaux indiquent, tous deux, un degré plus élevé de dissociation lorsque la chambre du plasma est recouverte avec le matériau en Pyrex TM; ce qui était souhaité. Ce résultat est valable à 79mm en aval des sources plasma (position B), ou devant les sources ECR (position A).



Figure IV.17 Résultats expérimentaux et numériques obtenus le long de l'axe du réacteur pour l'estimation de la densité absolue des atomes d'hydrogène H. La position A fait référence à une distance de 9mm des sources plasma et la position B à 79mm de ces sources. Les conditions opératoires sont identiques pour les valeurs mesurées et calculées. P = 9mTorr d'hydrogène pur et P = 150W de puissance injectée.

IV.5.3 Conclusion :

À la lumière de cette comparaison, il devient évident, que le PyrexTM, qui, en plus d'avoir un bon rendement de production des ions H⁻, l'absorption des atomes sur sa surface est minimale. Ce qui fait de lui un bon matériau de référence pour l'étude des autres matériaux.

On pourrait encore ajouter que, dans la position A, l'observation de la raie d'émission Balmer béta H $_{\beta}$, qu'on représente en **Fig. IV.18**, indique une température atomique de 0,1eV pour la population froide (la majorité des atomes) et de 3.5eV pour la plus population chaude. Cette valeur de 0,1eV, selon B. Jackson *and al* **[192]**, est dite parfaite pour favoriser la désorption recombinative sur la surface du graphite.

L'étude de l'influence des matériaux sera faite, en les plaçant sous forme de feuille, plaquée sur la surface interne du Pyrex TM devant les sources ECR.



Figure IV.18 Profil de la raie Balmer béta enregistré dans la zone de création (Pos. A), Elle présente un ensemble de deux populations atomiques, la population des atomes froids avec une température moyenne de 0,1eV, et chauds à 3,5eV. P= 150W, p= 9mTorr, couverture en Pyrex TM.

Étude de l'effet de surface sur la production d'ions H

IV.6. Introduction :

La source ROSAE-III ainsi structurée (configuration à revêtement en Pyrex TM, sera utilisée pour nos diagnostics et nous permettra d'étudier, dans les mêmes conditions expérimentales, de pression et de puissance, des matériaux différents pour comparer leurs effets sur la production des ions négatifs en surface. Ainsi, l'inox, le tungstène, le tantale et le HOPG sont des matériaux susceptibles de créer des molécules $H_2(v^p, J^p)$ par désorption recombinative.

La détermination³⁸ des paramètres de la source a été réalisée, au moyen de sondes électrostatiques, du photo-détachement et spectroscopie d'émission optique dans la gamme spectrale du visible.

En premier lieu, nous commencerons par une comparaison de chaque matériau avec une couverture exclusive en Pyrex TM. Un par un, les matériaux seront placés devant, tout près des sources ECR (Position.1). Ils sont sous forme de feuille de faible épaisseur 200 µm à 500 µm de 35 mm de large et de longueur égale au périmètre du tube Pyrex TM (Ø 120mm), ce qui représente 13% de la surface totale du Pyrex TM. Cette feuille mince forme un "ruban" qui est plaquée sur la face interne du tube Pyrex TM à deux positions : 1. Devant les sources ECR, 2. Au fond du réacteur. La caractérisation se fera suivant l'emplacement³⁹ du matériau par rapport à la source ECR.

³⁸ La description détaillée des différents diagnostics et leurs utilisations sont mentionnées, également, en chapitre III (cf. paragraphe III.3 à III.5)

³⁹ Les deux emplacements, position 1 et 2, sont montrés en chapitre III (cf. Fig. III.12).

On examinera ainsi la variation de l'ensemble des paramètres plasma : la densité électronique n_e , la température électronique T_e , le potentiel plasma V_p et le potentiel flottant V_f , en fonction de deux valeurs de pression de l'hydrogène (6 et 12mTorr), sur une plage de la puissance Microondes injectée, allant de 75 à 175W. Ensuite, on entamera une comparaison sur le taux de production des ions négatifs du matériau étudié par rapport au Pyrex TM. Et on terminera le paragraphe par une étude comparative entre tous les matériaux considérés.

En dernier lieu, le matériau sera placé au fond du réacteur (Position.2). Cette manipulation nous permettra d'estimer l'effet de la position du matériau sur la production des ions négatifs. Par souci d'allégement, cette expérience se fera uniquement pour le matériau le plus prometteur.

IV.7. Caractérisation des matériaux placés proches des sources ECR :

Pour les quatre matériaux le tungstène, l'inox, le tantale et le graphite HOPG, les résultats pour chaque paramètre plasma, seront présentés. L'analyse de chaque matériau, sera suivie d'une discussion et d'une interprétation des données.

IV.7.1. Pyrex-Tungstène :

La Fig. IV.19 présente les variations de la densité d'électrons présents dans le plasma à la position B, en fonction de la puissance micro-ondes injectée, pour deux pressions (6-12 mTorr) et deux matériaux (Pyrex-tungstène).



Figure. IV.19 Dépendance de la densité d'e⁻ en fonction de la puissance micro-ondes, symboles vides p=12mTorr, symboles pleins p=6mTorr.

Ces résultats ont été obtenus avec une sonde de Langmuir. Pour toutes ces conditions expérimentales, la tendance générale est un accroissement de la densité du plasma en fonction de la puissance. Cette augmentation est monotone à la pression de 6mTorr pour les deux matériaux et présente un palier à la pression de 12mTorr pour le tungstène essentiellement. A la pression de 6mTorr, la densité du plasma augmente d'un facteur proche de 5 entre $0,7 \times 10^{15}$ m⁻³ et $3,6 \times 10^{15}$ m⁻³ avec un écart maximal entre les deux conditions de matériaux (Pyrex/W), atteint à 125W de 30%. A la pression de 12mTorr, l'écart maximal se situe aussi à 125W et est de 60% entre les deux matériaux. A 175W, quelles que soient la pression, la nature du matériau, la densité se situe entre 2,75 et 4×10^{15} m⁻³.

D'après la **Fig. IV.20**, le changement de matériau n'induit pas d'effet significatif sur les valeurs de T_e . En tout Pyrex TM, à 12mTorr, la température électronique varie de 1,2 et 1,35eV, en fonction de la puissance. Elle passe aussi de 1,2 à 1,45eV pour une pression inférieure, égale à 6mTorr. A 12mTorr, avec le tungstène placé devant les sources ECR, Te augmente d'une manière régulière et atteint 1,5eV à 150W, puis diminue à ~1,35eV à 175W. A 6mTorr, elle est proche de 1,25eV, avec toutefois une singularité à 175W, où on note une légère augmentation (~1,45 eV).



Figure IV.20 La dépendance de la puissance de la température électronique, symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

Les variations des potentiels plasma et flottant en fonction de la puissance (**Fig. IV.21**), sont similaires. La différence de potentiel ΔV (V_p-V_f) avoisine 2V.



Figure IV.21 Influence de la puissance sur les potentiels : plasma (en continue) et flottant (en discontinue), symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

Le rapport des intensités des raies d'émission H_{β}/H_{f} est présenté à la **Fig. IV.22**. Il donne la densité relative des atomes H présents dans l'enceinte du plasma ROSAE-III.



Figure IV.22 Influence de la puissance sur le rapport des intensités des raies d'émission (atomiques/moléculaires), symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

D'après les résultats présentés à la Fig. IV.22, il n'y pas de différence de concentration relative en atomes H pour les deux pressions étudiées (6mTorr et 12mTorr), en présence de tungstène. Le

rapport H_{β}/H_{f} étant quasiment constant, proche de 2, pour la gamme de pression explorée. En revanche, en Pyrex TM seul, ce rapport à 150W passe de 2,5 à 5,5 en fonction de la pression. Ce qui semble indiquer que la surface de tungstène adsorbe les atomes d'hydrogène.

Les variations de la densité absolue des ions négatifs en fonction de la puissance sont données dans la Fig. IV.23.



Figure IV.23 Variations de la densité absolue des ions négatifs en fonction de la puissance, symboles vides p=12mTorr, symboles pleins p=6mTorr. Pour deux matériaux de couverture des parois : W et PyrexTM.

On constate sur ce graphe que la densité des ions négatifs H⁻ est plus importante pour le cas de l'utilisation du tungstène, aux deux pressions 6mTorr et 12mTorr. Cependant, la différence est plus imposante, dès qu'on dépasse une puissance de 100 W. La densité maximale est atteinte pour la condition 125W/12mTorr, on retrouve un facteur 4 entre le cas du tungstène (~1,8×10¹⁴ m⁻³) contre 0,55×10¹⁴ m⁻³ pour le Pyrex TM.

Cette tendance est confirmée par la mesure du rapport des densités n_i/n_e en fonction de la puissance (**Fig. IV.24**), en ne tenant compte que de la densité électronique pour chaque cas.



Figure IV.24 Variations du rapport des densités ionique sur densité électronique (n_i^-/n_e) avec la puissance, symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

Le rapport (n_i/n_e) est égal au rapport de l'intensité du pic de photodétachement sur l'intensité du courant collecté par la sonde avant le tir laser. Ainsi, ce rapport est indépendant de la densité du plasma, et permet de juger l'efficacité de production des ions H⁻ par le processus de l'*AD*. L'enregistrement ainsi obtenue prouve une plus grande quantité des ions négatifs pour le tungstène, quelle que soit la pression. L'écart reste quasi constant, sauf pour la situation 175W/12mTorr, où l'écart est plus important.

Discussions :

L'utilisation du tungstène comme matériau de couverture partielle du Pyrex TM faisant face au plasma a modifié la densité du plasma de 40% au maximum (125W/12mTorr), i.e. d'un facteur 1,7. La température des électrons n'est pas ou très peu affectée ainsi que les potentiels flottant ou plasma.

En revanche, la densité relative des atomes dans le plasma est affectée par cette couverture partielle (13% de la surface totale) d'un facteur 3 à 150W et 6mTorr. Cela tend à confirmer que les atomes d'hydrogène sont adsorbés à la surface du tungstène.

Enfin, la densité absolue des ions H⁻ à 125W et 12mTorr, présente une augmentation d'un facteur 5,5 entre la condition expérimentale tout Pyrex TM et l'utilisation du W, soit une augmentation de 450%. Le rapport n_i⁻/n_e donnant la densité relative suit la même tendance.

La **Fig. IV.25** permet de visualiser l'effet de la surface de W sur la production d'ions négatifs et de valider l'hypothèse d'une production par attachement dissociatifs (AD) : pour une même densité de plasma, la densité d'ions négatifs est systématiquement supérieure. La variation de n_i^{-1} en fonction de n_e est dans les deux cas considérés (Pyrex TM, Pyrex+W) linéaire, ce qui montre

que le mécanisme final de production de H⁻ se conserve. i.e. les ions H⁻ sont produits par AD mais le W favorise la production de molécules H₂ (v^*, J^*) .



Figure IV.25 La densité absolue des ions négatifs en fonction de la densité électronique, pour le Pyrex TM et le tungstène. Symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

Cette hypothèse de fonctionnement est confirmée par les résultats présentés à la **Fig. IV.26**. Sur cette figure sont représentées les variations de la densité absolue d'ions négatifs en fonction du rapport H_{β}/H_{f} . Sous Pyrex TM, le rapport H_{β}/H_{f} atteint 5,5 pour une densité n_{i}^{-} de 5×10^{13} m⁻³, alors que dans le cas de la couverture partielle avec le tungstène, ne dépasse pas 3 et n_{i}^{-} atteint 17,5×10¹³ m⁻³. La recombinaison à la surface du W favorise donc la production d'ions négatifs de façon indéniable **[31]**.



Figure IV.26 Variations des rapports des intensités des raies d'émission et de la densité des ions négatifs, Symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins : p = 6mTorr, la taille des symboles est proportionnelle à la densité électronique.

IV.7.2. Pyrex-Acier inoxydable :

Les résultats suivants concernent cette fois une couverture partielle du Pyrex TM avec de l'acier inoxydable. La surface placée sur la paroi Pyrex TM est identique à celle du tungstène et représente 13% de la surface totale.

La **Fig. IV.27** représente les variations de la densité d'électrons en fonction de la puissance. Sur cette figure, on retrouve les valeurs de la **Fig. IV.19** pour le Pyrex TM. L'observation des courbes de variation de la densité électronique avec la puissance (**Fig. IV.27**), en marron pour le pyrexinox et en noir pour le Pyrex TM, conjointement pour 6 et 12mTorr de pression d'hydrogène, dévoile que la densité électronique n_e pour le pyrex-inox est plus faible, que dans le cas du tout Pyrex TM, du moins jusqu'à 125 W, pour la pression de 12mTorr. A 150 W, on note un inversement des tendances, la densité atteint, à 175 W, $4,5 \times 10^{15}$ m⁻³ pour le pyrex-inox (contre $3,4 \times 10^{15}$ m⁻³ pour le Pyrex TM). Cependant, pour la pression de 6mTorr, la densité n_e est constamment plus élevée pour le Pyrex TM.



Figure IV.27 Variations de la densité électronique avec la puissance, converture de l'enceinte exclusivement en Pyrex TM (présentée en noir), et en pyrex-inox (en marron). Symboles vides p = 12mTorr, symbole pleins p = 6mTorr.

La **Fig. IV.28**, présente les variations de la température électronique T_e en fonction de la puissance. On remarque sur cette dernière, que les électrons sont plus chauds dans le Pyrex TM, quelle que soit la pression du gaz et la puissance injectée, hormis l'égalité retrouvé pour la mesure à 75 W/6mTorr, où Te est identique pour le Pyrex TM et le pyrex-inox (~1,2 eV). Pour le pyrex TM seul, Te est maximum 1,46 eV à 6mTorr/175W. Quant au cas du pyrex-inox, la variation est quasi linéaire pour une pression d'hydrogène de 12mTorr, et presque constante, avec une valeur moyenne de ~1,23 eV, à 6mTorr.



Figure IV.28 Variations de la température électronique en fonction de la puissance, couverture de l'enceinte exclusivement en Pyrex TM (présentée en noir), et en pyrex-inox (en marron). Symboles vides p=12mTorr, symboles pleins p=6mTorr.

De même que pour la mesure de la densité et la température électronique, on présente sur la **Fig. IV.29,** dans les mêmes conditions expérimentales, les valeurs du potentiel plasma V_p et du potentiel flottant V_f en fonction de la puissance.



Figure IV.29 Variations du potentiel plasma et du potentiel flottant en fonction de la puissance, couverture de l'enceinte exclusivement en Pyrex TM (présentée en noir), et en pyrex-inox (en marron). Symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

Selon cette figure, pour les pressions 6-12mTorr, les deux potentiels V_P et V_f ont une forme assez semblable pour le pyrex-inox, avec un écart ΔV quasi-constant. Cette différence de potentiel à laquelle les électrons sont soumis est discernable également sur la **Fig. IV.28**, dans laquelle la température électronique reste invariable.

On donne en **Fig. IV.30**, le rapport des intensités des raies d'émission H_{β}/H_{f} , pour le Pyrex TM, et pour une couverture partielle de ce dernier avec de l'acier inoxydable. Ce rapport permet d'évaluer la densité relative des atomes H présents dans la chambre du réacteur, pour les deux cas.



Figure IV.30 Variations du rapport des intensités des raies d'émission avec la puissance, couverture de l'enceinte exclusivement en Pyrex TM (présentée en noir), et en pyrex-inox (en marron). Symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

D'après cette figure, la présence de l'acier inoxydable n'influe pas ou peu la densité relative des atomes [H], pour les deux pressions étudiées (6mTorr et 12mTorr). Pour la gamme de puissance étudiée, le rapport H_{β}/H_{f} reste quasiment constant, avoisinant 2. En Pyrex TM seul, pour les deux pressions, ce rapport passe de 2 pour une puissance de 75W, à presque 4 pour une puissance injectée de 175W. ce qui montre que les atomes H sont adsorbés sur la surface de l'acier inoxydable.

Les résultats des densités absolues d'ions H⁻ présentées en **Fig. IV.31**, pour le Pyrex TM et une couverture partielle en acier inoxydable, affichent clairement une plus grande densité en présence de ce dernier, à 12mTorr. L'écart, est en revanche, moins prononcé à 6mTorr. Cependant, la différence est plus importante quand la puissance de 125W est dépassée. La densité maximale est de ~ 25×10^{13} m⁻³, atteinte à 12mTorr/175W, pour l'acier inoxydable. Sous les mêmes conditions, une densité de 5×10^{13} m⁻³ est enregistrée pour le Pyrex TM seul, soit un facteur 5 entre les deux couvertures de chambre.



Figure IV.31 Variations de la densité absolue des ions négatifs avec la puissance, couverture de l'enceinte exclusivement en Pyrex TM (présentée en noir), et en pyrex-inox (en marron). Symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

Le rapport n_i/n_e présenté en Fig. IV.32, confirme la tendance obtenue en Fig. IV.31. Ce rapport permet de connaître le rendement de la production des ions négatifs et d'évaluer par la suite l'influence du matériau. Ainsi, l'enregistrement obtenu montre une plus grande quantité d'ions négatifs pour une couverture partielle en acier inoxydable.



Figure IV.32 Variations du rapport des densités (ni/ne) en fonction de la puissance, couverture de l'enceinte exclusivement en Pyrex TM (présentée en noir), et en pyrex-inox (en marron), symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

Discussions :

Comme pour le cas du tungstène, l'inox est également, efficace pour améliorer la densité des ions négatifs certainement par la désorption recombinative. La plus faible densité atomique pour le pyrex-inox (**Fig. IV.30**), indique que les atomes d'hydrogène présents dans le plasma de la chambre du réacteur ROSAE-III, se recombinent en molécules sur la surface de l'inox. Si ces molécules sont dans un état ro-vibrationnel élevé obtenu par désorption recombinative (DR), alors par collisions avec des électrons froids, se transforment en ions négatifs, par attachement dissociatif (AD).

Une autre affirmation nous vient de l'étude des deux **Figs. IV.27** et **IV.28**. Elles soutiennent que la majorité des électrons présents dans le plasma sont froids. Ce résultat nous mène à examiner la variation de la densité électronique par rapport à celle de la densité absolue des ions négatifs (**Fig. IV.33**), elle indique que pour une même densité électronique, on obtient une densité plus élevée des ions négatifs pour le pyrex-inox. Cela tend à montrer que l'espèce minoritaire serait les molécules excitées $H_2(v^*, J^*)$. Lorsqu'elles sont produites à la surface du matériau augmenterait la production d'ions négatifs de manière significative.



Figure IV.33 Variations de la densité électronique avec la densité absolue des ions négatifs, couverture de l'enceinte exclusivement en Pyrex TM (présentée en noir), et en pyrex-inox (en marron). Symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

Pour appuyer l'existence du mécanisme de la désorption recombinative, on présente dans la **Fig. IV.34**, la variation de la densité des ions négatifs en fonction du rapport des intensités des raie d'émission H_{β}/H_{f} . Cette figure montre que pour une densité atomique plus faible, on produit plus d'ions négatifs. En effet, les atomes adsorbés sur la surface de l'inox, se désorbent en molécules excitées $H_2(v^*, J^*)$ par *DR*, qui produiront par la suite des ions négatifs par l'attachement dissociatif (*AD*). Ce qui prouve encore fois l'efficacité du matériau.



Figure IV.34 Variations de la densité des ions négatifs par rapport aux intensités des raies d'émission, couverture de l'enceinte exclusivement en Pyrex TM (présentée en noir), et en pyrex-inox (en marron). Symboles vides p=12mTorr, symboles pleins p=6mTorr. La taille des symboles est proportionnelle à la densité électronique.

IV.7.3. Pyrex-Tantale :

Nous continuons notre investigation sur l'effet des matériaux, avec le tantale. Les mesures sur la mesure de la densité électronique, en fonction de la puissance micro-ondes injectée, montrent, un accroissement quasi linéaire de la densité d'électrons, pour les deux matériaux et les deux pressions explorées (6-12mTorr) (**Fig. IV.35**). A la pression de 6mTorr, la densité du plasma augmente d'un facteur proche de 5 entre 0.5×10^{15} m⁻³ et 2.5×10^{15} m⁻³ avec un écart maximal entre les deux conditions de matériaux (Pyrex/tantale), atteint à 125W de 57%. A la pression de 12mTorr, l'écart maximal se situe aussi à 125W et est de 19%. La densité maximale est égale à 4.5×10^{15} m⁻³ atteinte à 12mTorr/175W pour le Pyrex TM.



Figure IV.35 Variations de la densité électronique avec la puissance. En noir l'enceinte en PyrexTM, en vert en pyrex-tantale. Symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

En **Fig. IV.36**, on retrouve les variations de la température électronique en fonction de la puissance. Le tantale n'induit pas d'effet significatif sur les valeurs de T_e . En tout Pyrex TM, à 12mTorr, la température électronique varie de 1,2 et 1,39 eV, en fonction de la puissance. Elle passe aussi de ~1,2 à 1,48eV pour une pression inférieure, égale à 6mTorr. A 12mTorr, avec une couverture partielle de tantale, à partir de 100W, Te augmente d'une manière régulière et atteint 1,42eV à 175W. A 6mTorr, elle est aussi croissante, pour atteindre une valeur maximale égale à 1,5eV à 175W, avec toutefois une singularité à 125W, où on note une légère diminution (~1,2eV).



Figure IV.36 Variations de la température électronique avec la puissance. En noir l'enceinte en PyrexTM, en vert en pyrex-tantale. Symboles vides p=12mTorr, symboles pleins p=6mTorr.

La **Fig. IV.37** présente un récapitulatif des mesures relevées sur le potentiel plasma et le potentiel flottant. On rappelle que les potentiels plasma et flottant sont obtenus immédiatement de la caractéristique $I_s(V_s)$ recueillie par une sonde électrostatique.

Tout comme dans les expériences précédentes, étude du Pyrex-Tungstène et le Pyrex-Inox (paragraphe **IV.7.1** et **IV.7.2**), l'évolution du potentiel plasma et du potentiel flottant est plutôt semblable, avec un écart ($V_P - V_f$) proche de 2V, quelque soit la pression et le matériau étudiés.



Figure IV.37 Variations des potentiels : plasma (Traits continus) et flottant (Traits discontinus) avec la puissance, en noir l'enceinte en Pyrex TM, en vert en pyrex-tantale. Symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

On évoquera également le rapport des intensités des raies d'émission H_{β}/H_{f} en **Fig. IV.38**. Les mesures montrent, que la quantité relative d'atomes présents dans le plasma varie quasi linéairement avec la puissance injectée, et est supérieure pour le PyrexTM quelle que soit la pression (6 ou 12mTorr). Le rapport H_{β}/H_{f} atteint son maximum de 3,5 pour le PyrexTM à 6mTorr/175W. Sous les mêmes conditions expérimentales, il est inférieur de 15%, pour une couverture partielle de tantale. Ceci semble aussi indiquer, que les atomes sont adsorbés sur la surface du tantale.



Figure IV.38 Variations du rapport des intensités des raies d'émission avec la puissance. En noir l'enceinte en Pyrex TM, en vert en pyrex-tantale. Symboles vides p=12mTorr, symboles pleins p=6mTorr.

En absolu, la production des ions négatifs est plus importante avec le tantale que dans le tout Pyrex TM, c'est ce que démontre la **Fig. IV.39**, particulièrement pour la pression d'hydrogène de 12mTorr. Pour cette dernière, on enregistre respectivement à 75 W et 175 W, des estimations de densité absolue d'ions négatifs H⁻ de 3×10^{13} m⁻³ à 18×10^{13} m⁻³ pour le Pyrex-tantale, contre 1.5×10^{13} m⁻³ à 4.5×10^{13} m⁻³ pour le Pyrex TM seul.

A 6mTorr, cette différence de densité est moins importante, mais seulement en absolue. Car, compte tenu de la densité électronique dans le plasma, la production reste plus grande dans le Pyrex-tantale, que dans le Pyrex TM.



Figure IV.39 Variations de la densité absolue des ions négatifs avec la puissance. En noir l'enceinte en Pyrex TM, en vert en pyrex-tantale. Symboles vides p=12mTorr, symboles pleins p=6mTorr.

Si on donne la représentation du rapport de la densité absolue des ions négatifs sur la densité électronique en fonction de la puissance (**Fig. IV.40**), on confirme l'assertion précédente. Sur cette figure, comme dans les **Figs. IV.24** et **IV.32**, l'efficacité de production des ions négatifs dans le Pyrex TM, pour les deux pressions reste assez constante en fonction de la puissance. Cependant, le rendement de production d'ions H⁻ est supérieur dans le cas du tantale.



Figure IV.40 Variations du rapport des densités (ions négatifs/ électrons) en fonction de la puissance. En noir l'enceinte en PyrexTM, en vert en pyrex-tantale. Symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

Discussions :

La couverture partielle (13% de la surface totale) du Pyrex TM, par du tantale n'a pas ou très peu affectée les paramètres plasma (i.e. n_e , T_e , V_p et V_f).

L'utilisation du tantale comme matériau de couverture partielle du Pyrex TM faisant face au plasma a modifié la densité du plasma de 57% au maximum (125W/6mTorr), i.e. d'un facteur 2,3. La température des électrons n'est pas ou très peu affectée ainsi que les potentiels flottant ou plasma.

Par contre, la densité relative des atomes dans le plasma est affectée par cette couverture d'un facteur 1,17 à 175W et 6mTorr. Cela tend à confirmer que les atomes d'hydrogène sont adsorbés à la surface du tantale.

Enfin, la densité absolue des ions H⁻ à 175W et 12mTorr, présente une augmentation de 400% le Pyrex TM seul et l'utilisation du tantale, soit une augmentation d'un facteur 4. Le rapport de la densité relative n_i^{-}/n_e présente des variations identiques, avec un rendement encore plus important pour le tantale.

Pour mieux visualiser l'effet de la surface de Ta sur la production d'ions négatifs, nous présentons dans la **Fig. IV. 41** la densité absolue d'ions négatifs en fonction de la densité d'électrons. Ceci permet de valider l'hypothèse d'une production d'ions H⁻ par attachement dissociatif : pour une densité de plasma identique, la densité d'ions négatifs est automatiquement supérieure. Pour les deux cas (PyrexTM, Pyrex+Ta), la variation de n_i ⁻ en fonction de n_e est linéaire, ce qui montre que la Ta favorise la production de molécules H₂ (v ^{*}, J ^{*}), qui se transforment en H⁻ par AD.



Figure IV.41 Variations de la densité électronique en fonction de la densité absolue des ions négatifs. En noir l'enceinte en PyrexTM, en vert en pyrex-tantale. Symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

Les résultats des variations de la densité absolue d'ions négatifs en fonction du rapport H_{β}/H_{f} présentés dans la **Fig. IV.42** viennent confirmer cette hypothèse. En Pyrex TM seul, le rapport H_{β}/H_{f} atteint 3 pour une densité n_{i}^{-} de $5,25 \times 10^{13}$ m⁻³, alors que dans le cas de la couverture partielle avec le tantale, ne dépasse pas 2,2 et n_{i}^{-} atteint 17,5×10¹³ m⁻³. Donc, la recombinaison à la surface du Ta favorise forcément la production d'ions négatifs.



Figure IV.42 Variations de la densité absolue des ions négatifs en fonction des rapports des intensités des raies d'émission (atomiques/moléculaires). En noir l'enceinte en Pyrex TM, en vert en pyrex-tantale. Symboles vides p=12mTorr, symboles pleins p=6mTorr. La taille des symboles est proportionnelle à la densité électronique.

IV.7.4. Pyrex-HOPG:

L'échantillon graphite HOPG (*Highly Oriented Pyrolitic Graphite*) est place devant les source ECR couvrant ainsi 13% de la surface totale du pyrexTM.

Les mesures des paramètres plasma par sonde de Langmuir, montrent que la densité d'électrons augmente en fonction la puissance injectée (**Fig. IV.43**), sous PyrexTM, pour les deux pressions explorées (6-12mTorr), passant respectivement, 0.9×10^{15} m⁻³ à 3.8×10^{15} m⁻³ et de 1.6×10^{15} m⁻³ à 4.75×10^{15} m⁻³. Elle augmente également dans le cas d'une couverture partielle en HOPG à 12mTorr, pour atteindre 6.4×10^{15} m⁻³ à 175W. Pour ce dernier, une saturation à ~ 1.5×10^{15} m⁻³ est enregistrée à partir de 125W, pour une pression de 6mTorr. L'écart maximal entre les deux matériaux se situe à 6mTorr et 175W, il est de 63%. A la pression de 12mTorr, l'écart maximal se situe aussi à 175W et est de 28% entre les deux matériaux.



Figure IV.43 Variations de la densité électronique avec la puissance micro-ondes injectée. En noir l'enceinte en Pyrex TM, en bleu en pyrex-HOPG. Symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

La **Fig. IV.44**, présente les variations de la température d'électrons en fonction de la puissance injectée. En tout Pyrex TM, à 12mTorr, la température électronique varie de 1,08 à 1,49eV, en fonction de la puissance. Elle passe aussi de 1,19 à 1,54eV pour une pression inférieure, égale à 6mTorr. A 12mTorr, sous HOPG, Te diminue en fonction de la puissance passant de 1,45eV à 1,23eV. A 6mTorr, avec le HOPG placé devant les sources ECR, Te augmente puis se stabilise à 1,52eV à 125W, avec toutefois une singularité à 150W, où on note une légère diminution (~1,45 eV).



Figure IV.44 Evolutions de la température électronique avec la puissance Micro-ondes injectée. En noir l'enceinte en Pyrex TM, en bleu en pyrex-HOPG. Symboles vides p=12mTorr, symboles pleins p= 6mTorr.

La Fig. IV.45, montre des variations similaires des potentiels flottant et plasma. Toutefois, la différence ΔV est proche de 2V.



Figure IV.45 Variations des potentiels : plasma (en continu) et flottant (en discontinu) avec la puissance. En noir l'enceinte en Pyrex TM, en bleu en pyrex-HOPG. Symboles vides p= 12mTorr, symboles pleins p= 6mTorr.

On donne en **Fig. IV.46** le rapport des intensités des raies d'émission H_{β}/H_{f} en fonction de la puissance micro-ondes injectée. Ce rapport est supérieur sous Pyrex TM, quelles que soient la pression et la puissance utilisées. A 6mTorr/175W, où il atteint son maximum pour le Pyrex TM, il est 57% moins inférieur avec une couverture partielle en HOPG, sous les mêmes conditions. Ceci indique que les atomes sont adsorbés sur la surface du HOPG également.



Figure IV.46 Variations du rapport des intensités des raies d'émission avec la puissance micro-ondes injectée, en noir l'enceinte en Pyrex TM , en bleu en pyrex-HOPG. Symboles vides p= 12mTorr, symboles pleins p= 6mTorr.

La **Fig. IV.47** donne les variations de la densité absolue d'ions négatifs H⁻ en fonction de la puissance injectée. L'évolution des densités ionique en Pyrex TM et en Pyrex-HOPG reste assez similaire à 6mTorr. Cependant, les tendances changent radicalement pour 12mTorr, où la

croissance pour le HOPG est linéaire. Mais, dans les deux cas, la densité absolue reste supérieure pour le HOPG. A 6mTorr, la densité maximale pour le HOPG est égale à $7,5 \times 10^{13}$ m⁻³, atteinte à 125W. Sous les mêmes conditions, elle est de $3,7 \times 10^{13}$ m⁻³ pour le Pyrex TM, soit un facteur 2. En revanche, à 12mTorr, l'écart est plus important, à 175W, on retrouve un facteur 4 entre le cas du HOPG (~17,5×10¹³ m⁻³) contre 4×10¹³ m⁻³ pour le Pyrex TM.



Figure IV.47 Evolutions des densités absolues des ions négatifs avec la puissance micro-ondes injectée. En noir l'enceinte en PyrexTM, en bleu en pyrex-HOPG. Symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

Le rapport des densités n_i/n_e en fonction de la puissance (**Fig. IV.48**), confirme les tendances obtenues pour la densité absolue d'ions négatifs H⁻. Cette même figure, montre qu'en tenant compte de la densité d'électrons présents dans le plasma, à 6mTorr, l'écart entre les densités relatives pour le Pyrex TM et le HOPG, est plus important que l'écart entre les densités absolues d'ions négatifs pour les deux matériaux. Cependant, le rapport n_i/n_e reste constant quelle que soit la pression, pour chacun des matériaux. Ceci permet de juger l'efficacité de la production d'ions négatifs H⁻ par le mécanisme d'attachement dissociatif (*AD*).



Figure IV.48 Evolutions du rapport des densités (n_i/n_e) avec la puissance micro-ondes injectée. En noir l'enceinte en PyrexTM, en bleu en pyrex-HOPG. Symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

Discussions :

Le HOPG, utilisé comme matériau de couverture partielle du Pyrex TM a modifié la densité du plasma de 63% au maximum (175W/6mTorr), i.e. d'un facteur 2,6. La tendance de la température des électrons est modifiée par le HOPG à 12mTorr. Les potentiels flottant et plasma ne sont pas affectés.

La densité relative des atomes dans le plasma est affectée par cette couverture partielle (13% de la surface totale) d'un facteur 2 à 175W et 6mTorr. Cela tend à confirmer que les atomes d'hydrogène sont adsorbés à la surface du HOPG.

La densité absolue des ions H⁻ présente une augmentation d'un facteur 4 à 175W et 12mTorr, entre le Pyrex TM seul et l'utilisation du HOPG, soit une augmentation de 330%. Le rapport n_i/n_e donnant la densité relative suit la même tendance, avec un écart supérieur à 6mTorr entre les deux matériaux.

La **Fig. IV.49** permet de visualiser l'effet de la surface de HOPG sur la production d'ions négatifs et de valider l'hypothèse d'une production par attachement dissociatifs (AD) : pour une densité de plasma égale, la densité d'ions négatifs est systématiquement supérieure. La variation de n_i⁻ en fonction de n_e est dans les deux cas considérés (Pyrex TM, Pyrex+HOPG) linéaire, ce qui montre que la production d'ions H⁻ se fait par attachement dissociatif (AD) mais le HOPG favorise la production de molécules H₂ (v^*, J^*).



Figure IV.49 Variations de la densité électronique en fonction de la densité absolue des ions négatifs, en noir l'enceinte en Pyrex TM, en bleu en pyrex-HOPG. Symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr. La puissance indiquée fait référence à la puissance totale injectée.

Ce mode de fonctionnement supposé est confirmé par les résultats de la **Fig. IV.50**, où sont représentées les variations de la densité absolue d'ions négatifs en fonction du rapport H_{β}/H_{f} . Ces résultats montrent que le rapport H_{β}/H_{f} ne dépasse pas 2,2 pour une couverture partielle en HOPG pour une densité n_{i}^{-} qui atteint 17×10^{13} m⁻³. Sous Pyrex TM, le rapport H_{β}/H_{f} atteint 5 pour une densité n_{i}^{-} qui ne dépasse pas 5×10^{13} m⁻³. Ceci confirme d'une manière irréfutable, que les atomes se recombinent aussi à la surface du HOPG, favorisant la production d'ions négatifs.



Figure IV.50 Evolutions de la densité absolue des ions négatifs avec le rapport H_{β}/H_{f} en noir l'enceinte en Pyrex TM, en pyrex-HOPG. bleu en Symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr. La puissance indiquée fait référence à la puissance totale injectée. La symboles taille des est proportionnelle à la densité électronique.

IV.8 Comparaison entre les différents matériaux :

Dans cette section, nous allons comparer les taux de production d'ions négatifs obtenus avec les différents matériaux étudiés : tungstène, inox, tantale et HOPG. Le Pyrex TM seul, a déjà été discuté (*cf.* **IV.7.1, IV.7.2, IV.7.3** et **IV.7.4**), sera donné comme matériau de référence dans ce qui suit, et ne sera pas commenté.

IV.8.1 Densité des ions négatifs :

La Fig. IV.51 présente les variations de la densité absolue d'ions négatifs produits en fonction de la puissance injectée, et ce, pour chaque matériau, et les deux pressions explorées (6 et 12mTorr). Ces résultats montrent que le tungstène, à 12mTorr, permet de produire, notamment aux puissances injectées de 75, 100 et 125 W, le plus d'ions négatifs. A la même pression, et aux puissances égales à 150 et 175W, l'acier inoxydable est le plus performant.



Figure IV.51 Variations de la densité absolue des ions négatifs en fonction de la puissance pour tous les matériaux étudiés, symboles vides p = 12 mTorr, symboles pleins p = 6 mTorr.

La Fig. IV.52 donne les rapports des densités n_i/n_e pour chaque matériau, en fonction de la puissance micro-ondes injectée, et les deux pressions étudiées (6-12 mTorr).



Figure IV.52 Variations des rapports de la densité ionique et la densité électronique (ni/ne) en fonction de la puissance pour tous les matériaux étudiés. Symboles vides p = 12mTorr, symboles pleins p = 6mTorr.

Cette figure, montre que le rapport des densités peut être multiplié par un facteur 5 au maximum, entre le matériau le plus performant, et celui qu'il l'est le moins, i.e. le cas du HOPG et l'acier inoxydable à 75W/6mTorr : le rapport passe de 0,06 à 0,3. Ceci sans tenir compte du Pyrex TM, qui a le plus faible rendement.

IV.8.2 Rendement de la production des ions négatifs :

Pour que l'analyse comparative ne présente aucune difficulté et éviter toute difficulté d'interprétation ; nous allons, dans ce qui suit, modifier la présentation des résultats. On ne se limite pas à l'utilisation de figures, les schémas seront exposés sous forme de graphique, en colonne. Cet appui visuel, plus simple et clair, sera plus pratique. Il nous permettra de comparer directement les densités absolues et le rendement entre les matériaux étudiés, à 6 et 12 mTorr indépendamment.

IV.8.2.1 Pression d'hydrogène de 6 mTorr :

Pour cette pression, nous allons comparer la densité absolue des ions négatifs pour les différents matériaux et sur l'ensemble de la plage de puissance 75 W à 175 W, par pas de 25 W. Chaque matériau est identifié par une couleur de colonne (**Fig. IV.53**).

En absolue, le HOPG donne la densité d'ions négatifs la plus élevée à 75, 100 et 125 W, respectivement : 3×10^{13} m⁻³, 5×10^{13} m⁻³ et 7×10^{13} m⁻³. Le tungstène, fourni une densité supérieure à 150 et 175W, soit 7, 3×10^{13} m⁻³ et 8, 2×10^{13} m⁻³. Le tantale et l'inox sont moins performants. Toutefois, l'inox, pour la puissance de 175 W, avec une densité absolue de 8×10^{13} m⁻³, se positionne en deuxième place.

Mais, comme on l'a précisé précédemment, la densité absolue des ions négatifs, ne peut, à elle seule, déterminer la performance du matériau. Il faut la rapprocher à la quantité d'électrons dans la chambre du plasma (i.e. par rapport à la densité électronique). Le rapport des densités ioniques et électroniques n_e/n_i peut nous fournir ce renseignement.



Figure IV.53 Densités absolues d'ions négatifs pour les matériaux étudiés, p = 6 mTorr. La puissance totale injectée est indiquée pour chaque groupe de données.

Ainsi, dans la **Fig. IV.54**, les rapports de densités sont identifiés de la même façon pour chaque matériau étudié (même forme et même couleur que précédemment). De ce fait, ce nouveau graphique nous renseigne que, à cette pression, le HOPG (en bleu sur le graphe) reste le matériau le plus performant, pour chaque puissance. Il se détache avec un rapport ni/ne, respectivement pour 75, 100, 125, 150 et 175W, de 0,03, 0,035, 0,047, 0,052 et 0,038. Donc, une efficacité de production d'ions négatifs plus importante.

Le Tungstène à 75, 100, 125 et 150W, donne respectivement des rapports de 0,029, 0,027 et 0,032. L'Inox, surtout à la puissance de 75 W, est le moins performant, avec seulement un rapport de 0,006, mais donne un rapport de 0,032 à 175W juste derrière le HOPG.



Figure IV.54 Les rapports des densités (ni/ne) pour tous les matériaux étudiés. p=6mTorr. La puissance totale injectée est indiquée pour chaque groupe de données.

IV.8.2.2 Pression d'hydrogène 12mTorr :

A 12mTorr, c'est le Tungstène qui génère une plus grande valeur de la densité absolue d'ions négatifs. Elle est respectivement de 5×10^{13} m⁻³, 14×10^{13} m⁻³ et $17,5 \times 10^{13}$ m⁻³, pour 75, 100 et 125W. Tandis que pour une puissance injectée égale à 150 et 175W, on a une densité plus conséquente pour l'acier inoxydable, elle est de 18×10^{13} m⁻³ et 24×10^{13} m⁻³ (**Fig. IV.55**).



Figure IV.55 Densités absolues d'ions négatifs pour tous les matériaux étudié, p= 12 mTorr. La puissance totale injectée est indiquée pour chaque groupe de données.

Le HOPG, tout comme le tantale, génèrent des densités d'ions négatifs plus modestes. Mais, comme auparavant, on ne peut pas conclure sur la prépotence du matériau, il nous faut également joindre le rapport des densités ioniques et électroniques (ni/ne), qu'on présente en **Fig. IV.56**. On remarque sur ce graphe que, contrairement au cas d'une pression de 6m'Torr (**Fig. IV.54**), pour les cinq puissances de référence, aucun matériau ne se démarque. A chaque puissance, on a un classement de performance différent : à puissance basse, moins de 100 W, c'est le tungstène, en colonne rouge hachurée, qui se distingue ; on note des rapports n_i^-/n_e de 0,0255 à 75 W et 0,041 à 125 W. À cette dernière puissance (125W), c'est le HOPG qui donne le meilleur rendement (0,047). Et à 150 et 175W, c'est l'acier inoxydable qui présente des rapports supérieurs de 0,053 et 0,055. Le tantale, quant à lui, se classe en troisième position à 75, 100 et 175W, avec des rapports n_i^-/n_e de 0,033 et 0,034.



Figure IV.56 Rapports des densités (ni/ne) pour tous les matériaux étudiés ; p=12 mTorr. La puissance totale injectée est indiquée pour chaque groupe de données.

IV.8.2.3 Discussions :

Pour plus de compréhension, on regroupera, en premier lieu, dans la Fig. IV.57, les résultats de la densité absolue des ions négatifs en fonction de la densité électronique pour les quatre configurations de matériau étudiées et, simultanément, aux deux pressions de référence 6 et 12mTorr. L'ensemble des valeurs mentionnées dans la figure ci-dessous sont prélevées du paragraphe caractérisant l'influence des matériaux, particulièrement du réseau de courbes (donnée indépendamment) des Figs. IV.25, IV.33, IV.41 et IV.49.



Figure IV.57 Variations de la densité absolue des ions négatifs en fonction de la densité électronique. Symboles ouverts : p = 12 mTorr, symboles pleins : p = 6 mTorr.

On fait de même dans la **Fig. IV.58** pour la densité des ions négatifs en fonction de la densité atomique du plasma, eux pareillement présentés indépendamment dans le réseau des **Figs. IV.26, IV.34, IV.42** et **IV.50**.



Figure IV.58 Densités absolues des ions négatifs en fonction du rapport des intensités des raies d'émission (atomiques/moléculaires). Symboles ouverts : p = 12 mTorr, symboles pleins : p = 6 mTorr. La taille des symboles est proportionnelle à la densité électronique.

Sur la Fig. IV.57, quels que soient la nature du matériau, la pression ou la puissance étudiée, la variation de la densité d'ions négatifs est proportionnelle à la densité d'électrons. De plus, le coefficient de proportionnalité est le même ce qui suggère un même mécanisme de production des H⁻ à partir des électrons. Pour le Pyrex TM, à la même densité électronique, la densité d'ions négatifs est moindre, ce qui suggère une plus grande densité de molécules excitées en présence de matériaux (quelque soit) par rapport à une paroi en Pyrex TM seul.

Sur la Fig. IV.58, les courbes de tendances à 6 et 12 mTorr présentent des pentes différentes. Pour un même rapport relatif d'atomes/molécules égal à 2, la quantité d'ions négatifs produits à 12 mTorr est près de 5 fois supérieure alors que la pression n'est multipliée que par 2.

Dans le but de confirmer que les molécules ro-vibrationnellement excitées résultent bien en majorité de la désorption recombinative (*DR*) et non pas par la désexcitation radiative (*EV*), une modélisation a été réalisée par le code 1D. La **Fig. IV.59**, présente les variations spatiales des molécules ro-vibrationnellement excitées ($v = 6,7,8; J^*$), en fonction du coefficient de recombinaison du matériau γ faisant face au plasma. EV fait référence aux molécules ro-vibrationnellement excitées, qui résultent seulement de ce mécanisme. Qui rappelons-le, génère ce type de molécules, par collisions entre électrons chauds, et des molécules d'hydrogènes à l'état fondamental $H_2(X^1\Sigma_g^+, v_i)$; ceci, produit des molécules excitées à des états électroniques élevés (n=2), appelés : états singulets $B^1\Sigma_u^+$ et $C^1\prod_u$, qui, en se désexcitant se transforment en molécules ro-vibrationnellement excitées selon l'éq. **IV.1**. L'indication EV+RD, fait référence aux mécanismes décrits précédemment, et à la contribution de la désorption recombinative. La position 0 (mm), se réfère au bout des sources, 9mm à la position A et 79mm à la position B (zone de diffusion).

$$H_2(X^1\Sigma_g^+, v_i) + e_{hot} \rightarrow H_2^*(B^1\Sigma_u^+, C^1\prod_u ...) + e_{cold} \rightarrow H_2(X^1\Sigma_g^+, v_f) + e_{cold} + hv$$
(IV.1)



Figure IV.59 Variations spatiales des molécules H_2 ($v^*=6,7,8$; J^*), en fonction du coefficient de recombinaison γ (0.5 pour le Ta ou W, 0.004 pour le Pyrex TM, obtenus par le modèle numérique 1D. EV ou EV+RD indiquent les mécanismes considérés. Positions A et B, 12mTorr, 150W.

Selon la **Fig. IV.59**, quand l'effet du matériau n'est pas pris en compte (i.e. sans la contribution de la désorption recombinative (RD), le cas de EV, la densité des états rovibrationnels décroit d'un facteur ~10 entre la position A (9mm) et la position B (79mm), pour les deux matériaux. En position A, où les molécules sont créées que par le processus EV, la densité observée en présence du matériau (pour un coefficient de recombinaison $\gamma = 0,5$) est quasiment deux fois supérieure à celle observée avec le Pyrex TM seul ($\gamma = 0,04$). Cependant, quand la désorption recombinative est prise en compte (cas EV+RD), pour les mêmes coefficients de recombinaison γ , la densité relative des molécules H₂ (v =7, J *) montre une augmentation d'un facteur 30, i.e. de 10⁻⁴ à 3×10⁻³ (a.u.). En position B, la densité des molécules excitées est aussi élevée : 5×10⁻³ (a.u.) pour v*=7. Ces résultats théoriques, montrent clairement que, les matériaux augmentent la densité des molécules ro-vibrationnellement excitées par désorption recombinative (RD), et que l'EV reste négligeable devant ce dernier. Ce qui explique l'augmentation de la densité absolue en présence du matériau.

Les spectres d'émission VUV, pour les bandes Lyman et Werner, présentés à la Fig. IV.60, permettent de suivre les désexcitations des états singulets $B^1 \sum_u^+$ et $C^1 \prod_u$ [169, 193].



Figure IV.60 Spectres d'émissions VUV enregistrés aux deux positions A et B, avec une couverture en Pyrex TM (lignes rouge et noir), et en position A en présence d'un matériau (ligne bleue pour le tungstène et verte pour le tantale). Les conditions expérimentales ainsi que les réglages du spectromètre étaient identiques. Les spectres sont normalisés au maximum de la bande Lyman (157nm).

La Fig. IV.60, montre que les intensités relatives des raies spectrales de la bande Lyman restent identiques quelques soient la position (A ou B), ou le matériau utilisé (tungstène, tantale ou Pyrex TM) [31]. Ce qui veut dire, que le mécanisme EV n'explique pas l'augmentation de la densité absolue des ions négatifs. Tout ceci, constitue des preuves indirectes de la responsabilité de la *DR*, dans la création des molécules ro-vibrationnellement excitées. Toutefois, la preuve directe
réside dans la mesure des intensités absolues de ces molécules ro-vibrationnelles par absorption. Ces mesures ont été réalisées lors d'une campagne expérimentale effectuée au synchrotron SOLEIL de la ligne de lumière DESIRS, et sont présentées dans la **Fig. IV.61**.



Figure IV.61 Absorbance des molécules d'hydrogène ro-vibrationnellement excitées à l'état fondamental. a. l'état BX03. b. l'état BX04. En rouge, le Pyrex TM seul, le bleu pour le tungstène et noir pour le tantale ; position B, p=12mTorr, P=175W.

Les notations BX03 et BX04 de la **Fig. IV.61**, correspondent respectivement, aux transitions : $B(v'=0) \leftarrow X(v'=3)$ et $B(v'=0) \leftarrow X(v'=4)$. En plus des transitions vibrationnelles, on observe aussi les transitions rotationnelles : R0, R1, R2 et R3, ainsi que, P1 et P2. Pour la transition BX03(**Fig. IV.61a**), le tungstène croit l'absorption de la transition P1 de 55%. La plus grande augmentation est de 68% pour la transition R3, en comparaison avec le cas où le Pyrex TM est seul face au plasma. L'augmentation moyenne des transitions observées (de 127,44 nm à 127,98 nm) en présence du tungstène est de 64%. Le tantale aussi augmente l'absorption de ces transitions, mais d'une manière moins importante : 8% pour P1 et 9% pour R3. L'augmentation moyenne sur toutes les transitions étaient de 15%. Pour la transition BX04, observée de 133,32 nm à 133,88 nm (**Fig. IV.61b**), de la même façon que BX03, des augmentations sont enregistrées. Quand le tungstène est en place, les transitions P1 et R3 augmentent, respectivement, de 80% et 56%. La moyenne de l'augmentation pour cette transition (BX04) est de 70%. L'effet du tantale est aussi élevé pour cette transition : P1 et R3 croissent respectivement, de 45 et 40%, quant à la moyenne, elle est de 40%.

Ces mesures sont une observation directe des niveaux ro-vibrationnels $v^*=3$ et 4 des molécules excitées. Ces niveaux vibrationnels même peu élevés. *BX03* et *BX04* permettent, notamment pour *BX04* d'augmenter la section efficace de collision pour la réaction d'attachement dissociatif de 4 ordres de grandeur de 2×10^{-21} cm² à 3×10^{-17} cm² pour H₂ ($v^*=4$, J^*)[57]. De plus, d'après Hassouni *et al.* [194] la distribution de ces états ro-vibrationnels est équivalente en terme de densité relative M_{vib}/M_{tot} entre $v^*=4$ et $v^*=8$ pour le quartz ($\gamma_{H}=0,001$) $M_{vib}/M_{tot}=10^{-6}$ a.u. seules les surface recombinantes induisent une distribution non-homogène M_{vib}/M_{tot} ($v^*=4$) $\approx 3 \times 10^{-4}$ a.u. et M_{vib}/M_{tot} ($v^*=4$)= 10^{-5} a.u. Mais ces niveaux sont inférieurs à ceux requis pour l'*AD*. Cependant, cela nous méne à soupçonner que les densités des molécules à des états ro-vibrationnels plus élevés ($v^*\geq 4$) sont augmentées aussi par la présence du matériau. Toutefois, ces mesures de l'absorption VUV confirment en partie l'effet significatif de la *DR* sur la surface des matériaux, ce qui explique l'augmentation de la densité absolue des ions négatifs.

IV.9 Le positionnement des matériaux au fond du réacteur (Position 2) :

Le but de ce paragraphe est de voir, si la position du matériau dans la chambre du plasma ROSAE-III a un impact sur la désorption recombinative, et par conséquent sur la production des ions négatifs. Le matériau a la même surface, que dans la position 1. La seule différence, est qu'il est déposé, en position 2, tout au fond de l'enceinte (*cf.* **Fig. III.11**). Seuls les résultats obtenus pour le HOPG, à 12mTorr sont présentés.

IV.9.1 La densité et la température électronique :

Les dispositions à l'évolution de la densité électronique et de la température électronique, à une pression du gaz d'hydrogène de 12mTorr, avec la puissance injectée, en position 1 et 2 (pour comparaison) et pour l'échantillon HOPG, sont données respectivement dans la **Fig. IV.62** et **IV.63**.



Figure IV.62 Variations de la densité des électrons en fonction de la puissance. Symboles hexagonaux : Position 1, près de la source ECR et symboles sphériques : Position.2, à l'extrémité du réacteur ; p=12mTorr. Symboles carrés pour le Pyrex TM seul donné comme référence.

Les résultats présentés à la **Fig. IV.62**, indiquent que les variations de la densité plasma en fonction de la puissance, à 12 mTorr, dans les deux configurations expérimentales sont similaires : croissantes monotones. Toutefois, un écart quasi constant de 30% est observé. Le plasma est plus dense lorsque le HOPG est placé loin des sources ECR.



Figure IV.63 Variations de la température des électrons en fonction de la puissance. Symboles hexagonaux : Position 1, près de la source ECR et symboles sphériques : Position.2, à l'extrémité du réacteur ; p=12mTorr. Symboles carrés pour le Pyrex TM seul donné comme référence.

Les variations de la température électronique en fonction de la puissance, données en **Fig. IV.63** ne présentent pas un effet significatif du positionnement du matériau.

IV.9.2 La densité des ions négatifs :

De même que pour la densité et la température électronique, nous exposons en **Fig. IV.64** et **IV.65**, à 12mTorr de pression d'hydrogène, respectivement la densité absolue des ions négatifs et le rapport des densités ioniques et électroniques (n_i^{-}/n_e) , simultanément pour les deux positions du HOPG, et dans les mêmes conditions expérimentales.



Figure IV.64 Variations de la densité absolue des ions négatifs en fonction de la puissance. Symboles hexagonaux : Position 1, près de la source ECR et symboles sphériques : Position.2, à l'extrémité du réacteur ; p=12mTorr. Symboles carrés pour le PyrexTM seul donné comme référence.

En absolu, les tendances de la densité des ions négatifs (**Fig. IV.64**), pour les puissances à moins de 100 W, sont similaires pour les deux positions, i.e. devant les sources ECR (Pos.1) et au fond du réacteur (Pos.2). À partir de 125W, la densité absolue des ions négatifs, pour la position.1 (devant les sources ECR), devient de plus en plus prépondérante, jusqu'à ce que l'écart atteigne une différence de 9×10^{13} m⁻³, soit le double de la valeur en position 2. Mais n'oublions pas que les résultats de la **Fig. IV.62** nous renseignent que la densité électronique au fond du réacteur est plus élevée que devant les sources. Ce qui veut dire que nous obtenons une influence du matériau beaucoup plus efficace en position 1, soit tout près des sources ECR.

C'est ce que justifie la variation du rapport entre la densité absolue des ions négatifs et la densité électronique n_i/n_e (**Fig. IV.65**). Elle démontre clairement, sur l'ensemble des puissances (de 75 W à 175 W), que le rapport n_i/n_e est toujours supérieur pour la position 1. On rappelle que ce rapport donne l'efficacité de production des ions négatifs.



Figure IV.65 Variations du rapport des densités en fonction de la puissance. Symboles hexagonaux : Position 1, près de la source ECR et symboles sphériques : Position.2, à l'extrémité du réacteur ; p=12mTorr. Symboles carrés pour le Pyrex TM seul donné comme référence.

IV.9.3 Discussions :

À partir de ces résultats, le positionnement du matériau dans le réacteur ROSAE-III semble jouer un rôle très important dans la production des ions négatifs. Le rendement est supérieur d'un facteur 2,5 entre les deux positions à 175W/12mTorr (**Fig. IV.65**).

Lorsque le HOPG est placé devant les sources (position 1), la densité des électrons froids mesurée dans la zone de diffusion, en aval des sources plasma, est plus faible, ce qui veut dire que ces électrons sont utilisés dans l'attachement dissociatif (*AD*), pour produire les ions négatifs. Surtout à partir de 125W, où la différence entre les densités commence à être considérable (**Fig. IV.62**). Car à cette puissance, dans la position.1, les électrons deviennent plus froids (**Fig. IV.63**), ce qui favorise le mécanisme de l'attachement dissociatif (**Fig. IV.64**).

La Fig. IV.66 présente les variations de la densité absolue des ions négatifs H⁻ en fonction de la densité électronique. On remarque sur cette figure que pour une densité électronique identique 3×1015 par exemple, deux fois plus de H sont produits lorsque le HOPG est placé devant les sources plutôt qu'à l'extrémité du réacteur. Cette différence dans la production d'ions négatifs s'explique probablement par la diffusion et l'énergie des atomes H, ou peut être la conséquence d'un flux d'atomes plus faible arrivant à la surface du matériau.

En effet, quand on se positionne devant les sources ECR (Pos.1), les atomes ont l'énergie idéale pour la désorption recombinative (cf. Fig. IV. 18) [24].

En revanche, à l'extrémité du réacteur, les atomes H doivent parcourir le long de l'enceinte pour atteindre le matériau, ce qui suppose des collisions entre particules et des pertes lors du trajet. Du coup, arrivant au fond du réacteur (position 2), les atomes n'ont ni l'énergie adéquate pour la

désorption recombinative, ni la quantité suffisante, en comparaison avec la zone de création, position 1.



Figure IV.66 Densités d'ions négatifs en fonction de la densité électronique. Pour le HOPG. Symboles hexagonaux : Position 1, près de la source ECR et symboles sphériques : Position.2, à l'extrémité du réacteur ; p=12mTorr. Symboles carrés pour le PyrexTM seul donné comme référence.

Pour résumé, en position.1, la quantité d'atomes et importante, et ils ont l'énergie adéquate pour la désorption recombinative (*DR*). Ils se recombinent avec d'autres atomes adsorbés sur la surface du HOPG et repartent en molécules ro-vibrationnellement excitées. Ces dernières, rencontrent des électrons froids dans la zone de diffusion (Pos. B, *cf.* Fig. III.11), et se transforment ainsi en ions négatifs.

En position 2, à l'extrémité du réacteur, la densité d'ions négatifs est plus faible par rapport à la position 1, devant les sources, car la quantité de molécules ro-vibrationnellement excitées H₂ (v^* , J^*) est moins importante à cette position. Nous présentons également en **Fig. IV.67**, la densité des ions négatifs en fonction du rapport des intensités des raies d'émission, mesurées dans la zone de diffusion (Position B du réacteur). Là aussi, on remarque que pour la même proportion d'atomes H dans le plasma, pour la même pression, un facteur 2,5 est enregistré entre les deux positions, i.e. $17,5 \times 10^{13}$ m⁻³ contre 7×10^{13} m⁻³. D'après la **Fig. IV.17**, le gradient est faible entre les deux positions, ce qui veut dire que seul le flux local doit être différent **[195]**.



Figure IV.67 Variations de la densité des ions négatifs en fonction des rapports des intensités des raies d'émission (atomiques/moléculaires) mesurées dans la zone de diffusion (Pos.B), pour le HOPG, à p=12mTorr. Symboles hexagonaux : Position 1, près de la source ECR et symboles sphériques : Position.2, à l'extrémité du réacteur. Symboles carrés pour le Pyrex TM seul donné comme référence. La taille des symboles est proportionnelle à la densité électronique.

IV.10 Conclusion :

La modification de la chambre du réacteur ROSAE-III nous a permis une caractérisation de la production des ions négatifs à partir de molécules ro-vibrationnellement excitées, créées par la désorption recombinative à la surface du matériau. Cette étude nous a permis d'approfondir les connaissances sur les mécanismes de surface en plasma d'hydrogène et d'analyser l'impact indirect du processus de production pour différents matériaux, selon leurs natures et leurs positions dans le réacteur.

Le point essentiel de notre prospection est la démonstration que l'ajout d'un matériau avec une enceinte recouverte de verre borosilicate augmente la production des ions négatifs H^{$\overline{}$}. L'ensemble des matériaux considérés ont eu la capacité à produire plus de molécules rovibrationnellement excitées par désorption recombinative. Donc, une aptitude à la création d'ions négatifs par l'attachement dissociatif(AD), après leurs collisions avec des électrons froids. Les calculs numériques, ainsi que les mesures d'émission et d'absorption optique dans le VUV, ont permis d'écarter le mécanisme EV, et de mettre en avant la DR.

Ces mécanismes, déjà évoqués (cf. Chap.II), sont résumés dans le schéma de la Fig. IV.68. Les différents matériaux étudiés : tungstène, inox, tantale et HOPG, ont tous démontré leur efficacité. Le rendement de ces derniers, varie en fonction du matériau et des conditions de pression et de puissance utilisées.



Figure IV.68 Schéma expliquant la contribution de la surface dans la création des ions négatifs, par la désorption recombinative.

Le **Tab. IV.2**, résume les résultats obtenus et donne le matériau le plus performant pour chaque condition.

Puissance MO	La densité absolue des ions négatifs		Le rendement (rapport ni/ne)	
injectée (W)	6mTorr	12mTorr	6mTorr	12mTorr
75	HOPG	Tungstène	HOPG	Tungstène
100	HOPG	Tungstène	HOPG	Tungstène
125	HOPG	Tungstène	HOPG	HOPG
150	Tungstène	Inox	HOPG	Inox
175	Tungstène	Inox	HOPG	Inox

Tableau. IV.2 Récapitulatif des résultats obtenus dans l'étude des matériaux. Chaque case où est indiqué un matériau correspond à une condition de plasma. Le matériau mentionné est le plus performant des quatre matériaux étudiés.

Le rôle du positionnement du matériau, à l'intérieur de la chambre du plasma ROSAE-III (position 1 et 2), dans la production des ions négatifs, a été examiné. En position 1, devant les sources ECR, le rendement est nettement meilleur que dans la position 2, au fond du réacteur. Il est à noter que, dans cette même position, sans que les résultats ne soient présentés dans ce manuscrit, les matériaux ont été déposés sous forme de disque : Ce cas de figure n'a donné aucune dissemblance, les mêmes constats ont été observés.

En conclusion finale, il nous paraît que pour avoir un meilleur rendement dans la production des ions négatifs et dans le but de l'améliorer, il est avantageux d'ajouter, tout près des sources ECR, un matériau dans l'enceinte du réacteur ROSAE-III, recouverte de verre borosilicate Pyrex TM.

Résultats obtenus dans la source SCHEME-II

IV.11 Introduction :

Dans le but de déterminer la contribution exacte de chaque matériau dans la production des ions négatifs par la désorption recombinative, il est indispensable de mesurer la densité absolue des molécules ro-vibrationnellement excitées pour chacun d'eux. Le moyen d'y parvenir est l'utilisation d'un faisceau lumineux très énergétique, tel que les systèmes lasers complexes et coûteux, à longueur d'onde variable dans le VUV.

L'objectif premier de la source SCHEME-II⁴⁰ est justement de déterminer les densités absolues, au moyen de la fluorescence induite (technique de la LIF) et de la spectroscopie d'absorption dans le VUV, utilisant le faisceau synchrotron. Et, de créer ainsi un cadre de recherche caractéristique de l'absorption, où la densité absolue des molécules ro-vibrationnellement excitées sera déterminée (*Cf.* paragraphe III.6). Le second objectif est d'étudier la distribution des molécules qui sont produits par désorption recombinante sur des surfaces de divers matériaux.

Pour s'assurer que les molécules ro-vibrationnellement excitées présentent dans l'enceinte ne proviennent que de la désorption recombinante, la chambre SCHEME-II sera remplie avec un gaz atomique non excité, sans la présence d'un plasma. Ainsi la production des états ro-vibrationnels⁴¹. Cette chambre est recouverte par du Pyrex TM, tout comme dans le cas de ROSAE III, toujours dans le but de limiter la désorption recombinative sur la surface du matériau étudié. La nouvelle source SCHEME-II, ainsi conçue, a été installée dans la ligne DESIRS du synchrotron SOLEIL. Et, les résultats obtenus sont identifiés en cette section.

IV.12 La détection des atomes d'hydrogène H :

Avec la source ROSAE-III, le processus pour la production d'ions négatifs, à travers la formation de molécules ro-vibrationnellement excitées, a été évaluée dans un plasma ECR. Seulement, pour étudier la désorption recombinante, dans SCHEME-II, la présence d'hydrogène atomique doit être confirmée. Sa détection peut être obtenue par la méthode d'un rayonnement monochromatique, centré dans la transition de la Lyman- α à 10.196 eV (121.566 nm), c'est l'expérience que nous avons menée au plateau de Saclay avec la source SCHEME. Mais, malgré l'utilisation d'un système de collecte de la lumière et un amplificateur Lock-in, le signal de fluorescence n'a pas été observé. Cependant, les raies d'absorption des atomes H dans leur état fondamental a été obtenu avec succès. Cette mesure confirme que les molécules sont dissociées par les filaments chauds **[196]**.

⁴⁰ Une description détaillée du réacteur, ainsi que des diagnostics d'absorption et de la fluorescence induite par un faisceau synchrotron est donnée en chapitre I.6.

⁴¹ n'est due qu'un mécanisme de surface.

Ces atomes détectés, sont les réactifs de la désorption recombinative en surface, qui est le mécanisme étudié. La raie d'absorption de la Lyman- α est présentée dans la **Fig. IV.69a**, tandis que la **Fig. IV.69b** présente la dépendance à la pression de l'absorbance de la Lyman- α [197].



Figure IV.69 *a*. Raie d'absorption de l'atome H (n=1), obtenue à 100mTorr, avec trois filaments chauffés à 1800°K.

Figure IV.69 b. l'absorbance de la raie Lyman- α en fonction de la pression.

IV.13 La détection des molécules vibrationnellement excitées :

La Fig. IV.70 présente le spectre d'absorption de la molécule vibrationnellement excitée H₂ (X₁ Σ_g^+ , $p^*=2$, J^*). Pour cette mesure, les filaments ont été chauffés à 1800°K puis 2000°K. L'augmentation du spectre d'absorption à cette température, qui est présenté sur la même figure, confirme que la densité des molécules ro-vibrationnellement excitées dépend de la densité des atomes d'hydrogène. Des mesures d'absorption (choisies sur la base de facteurs favorables de Franck-Condon) ont également été effectués [122] sur des états excités supérieurs ($p^*=3-5$). Malheureusement, en raison de la limitation dans le temps de la disponibilité du faisceau synchrotron, l'étude comparative des différents matériaux n'a pas pu être réalisée. Cependant, ces mesures préliminaires prouvent que : a) la possibilité d'utiliser le faisceau synchrotron pour le diagnostic d'absorption en plasma d'hydrogène à basse pression. b) la présence du mécanisme de l'excitation vibrationnelle par la désorption recombinative. Bien que d'autres travaux dans ce sens soient envisagés, il existera toujours des limitations liées à la disponibilité du faisceau synchrotron.



Figure IV.70 Spectres d'absorption de H_2 (v''=2, J'') à p=100mTorr en ordonnée, le courant collecté et en abscisse, la longueur d'onde du rayonnement incident. R0, R1, R2 et R3 sont les composantes rotationnelles de l'état vibrationnel. Le spectre rose pour une température des filaments à 1800°K, le bleu pour 2000°K.

IV.14 Conclusion :

En conclusion, ce dispositif expérimental a démontré la possibilité de réaliser des mesures de la LIF et l'absorption pour le Krypton, et l'absorption pour les atomes H, et les molécules vibrationnellement excitées (v", J"), en utilisant un rayonnement synchrotron.

Au cours de ce premier essai expérimental dans Synchrotron Soleil, le concept de la source a été prouvé et la possibilité d'utiliser un rayonnement synchrotron pour détecter les états vibratoires démontrée. Cependant, la limitation dans le temps du faisceau synchrotron reste un obstacle pour ce genre de manipulation.

<u>CHAPITRE V</u>

CONCLUSION GENERALE

V. Conclusion générale :

• **<u>Conclusion et perspectives :</u>**

A l'issue ce travail de thèse, j'ai démontré qu'il est possibilité d'augmenter, sans utiliser de césium, la densité d'ions négatifs dans un plasma utilisant des sources multi-dipolaires microondes (2.45 GHz) fonctionnant à la Résonance Cyclotronique Electronique (ECR).

Pour y parvenir, j'ai exploité deux dispositifs expérimentaux : le réacteur ROSAE-III, équipé de 1 à 4 sources plasma, et la source SCHEME-II, équipée en premier temps de deux filaments, (i.e. résultats présentés dans la section IV.11), puis d'une source plasma (i.e. l'enregistrement des spectres de la **Fig. IV. 61**), développés et conçus par le groupe PMN, du laboratoire LPSC. Dans ces deux dispositifs, les ions négatifs d'hydrogène sont supposés être créés principalement en volume, par attachement dissociatif (*AD*), entre une molécule $H_2(v^*, J^*)$ et un électron froid ($T_e \approx$ 1eV). Les molécules $H_2(v^*, J^*)$ sont créées par collision inélastique avec un électron chaud ($T_e \ge$ 15eV). J'ai mis en évidence le rôle fondamental des parois du réacteur dans la production des H_2 (v^*, J^*) .

Toutefois, lors de cette thèse, on changeait la nature de la surface en contact avec le plasma. Pour ce faire, un tube en verre borosilicate a été ajusté à l'intérieur du cylindre en inox (304 L) du réacteur ROSAE-III. Ainsi, le volume intérieur du réacteur a changé de moins de 7% alors que le coefficient de recombinaison γ a été divisé par près de 100, $\gamma = 0,5$ pour l'inox et $\gamma = 0,004$ pour le Pyrex TM à la même température.

Dans cette première étape décrite dans les chapitres IV.3, IV.4 et IV.5, toute la surface du réacteur a été modifiée et le plasma était alors face à une paroi d'inox ou de Pyrex TM. A pression et puissance identiques 12 mTorr et 175 W, respectivement, les densités absolues d'ions négatifs H⁻ étaient de 16×10^{13} m⁻³ et 9×10^{13} m⁻³ pour l'inox et le Pyrex TM.

Ce premier résultat fut confirmé par l'étude menée en fonction de la pression et de la puissance dans ces deux conditions expérimentales.

Les mesures de spectroscopie d'émission optique dans le spectre visible ont montré que l'utilisation d'une paroi Pyrex TM enrichissait notablement le plasma en atome d'hydrogène de 3×10^{18} m⁻³ à 9×10^{18} m⁻³, pour une pression de 9 mTorr et une puissance de 150W.

La spectroscopie d'émission dans le spectre VUV a confirmé ce fait et indique en plus que les états singulets $B^1 \Sigma_u^+$ et $C^1 \prod_u$ n'étaient pas affectés par ce changement de nature de paroi. Le mécanisme E-V n'est donc pas modifié lorsque γ passe de 0,5 à 0,004.

Il apparait donc que cet accroissement de la densité de H⁻ soit la conséquence de la désorption recombinative des atomes sur la surface d'inox.

La seconde étape de mes travaux de recherche présentée aux chapitres IV.7 et IV.8 a permis une étude comparative des matériaux suivants : Pyrex TM/ Tungstène/ Inox/ Tantale/ HOPG. Dans cette étude, seule 13% de la paroi de Pyrex TM placée à l'intérieur du réacteur ROSAE-III a été

couverte par le matériau étudié. Ainsi, des matériau plus onéreux et plus difficile à se procurer ont pu être étudiés (cas du HOPG).

Ainsi, la densité absolue des ions négatifs a été multipliée par un facteur 3.5, pour la même densité d'électrons froids présents dans le plasma, passant de 5×10^{13} m⁻³ à 17.5×10^{13} m⁻³, en utilisant le HOPG. Pour expliquer ces résultats, des calculs numériques ainsi que des mesures d'émission et d'absorption optique dans le VUV ont été réalisées. Le code 1D, a montré clairement que les molécules ro-vibrationnelles (v = 6,7 et 8) étaient produites par DR. Les spectres d'émission VUV, ont permis de démontrer que les états singulets $B^1 \sum_{u}^{+}$ et $C^1 \prod_{u}$ générés par EV, sont créés en volume, indépendamment de la surface, et que la densité des molécules ro-vibrationnellement excitées, engendrée par ces états singulets reste faible, ce qui constitue une preuve expérimentale indirecte, qui justifie l'augmentation des molécules H₂ (v, J^*) par DR, et d'ecarter le mécanisme EV [**31**]. Afin d'estimer la quantité de ces molécules excitées $H_2(X^{\dagger}\Sigma_g^+, v'')$, produites par la contribution du matériau à des états (v = >4). Nous avons réalisé des mesures avec la source SCHEME-II. En la plaçant, dans la ligne de lumière DESIRS du synchrotron SOLEIL, nous avons démontré la possibilité d'utiliser un rayonnement synchrotron pour détecter les états vibratoires [**197**]. D'autres expériences menées récemment sur le même dispositif, ont permis de mesurer la densité absolue des états vibratoires plus élevés.

Les mesures d'absorption VUV, qui permetent une mesure directe des états H₂ (v^{*},J^{*}), ont montré une augmentation significative des densités relatives des molécules *BX03* et *BX04*.

Ces molécules, ro-vibrationnellement excitées $(v^* \ge 5, J^*)$, se transforment en ions négatifs, par attachement dissociatifs (*AD*) en rencontrant des électrons froids. C'est ce qu'explique l'augmentation de la densité d'ions négatifs.

Il est à noter que le positionnement du matériau, joue un rôle prépondérant ; c'est ce que les résultats menés sur le HOPG en le plaçant à la position 2 (au fond du réacteur) ont démontré.

Finalement, dans le futur, nous aspirons, à trouver un moyen pour augmenter encore plus, à la fois la densité des molécules ro-vibrationnellement excitées, et des électrons froids, en couplant par exemple, le réacteur ROSAE-III à une autre source où seront produits des électrons faiblement énergétiques.

Dans une perspective à court terme, on prévoit d'assembler un extracteur, et de le coupler au réacteur ROSAE-III, afin d'en extraire les ions négatifs produits. Notons que pour sa conception, l'extracteur (cf. annexe VII.5) a tout d'abord été simulé par le logiciel COMSOL[©] (logiciel de calcul utilisant la méthode des éléments finis). Le but de cette simulation est de trouver une configuration d'électrodes optimale pour produire un faisceau d'ions négatifs possédant un faible angle de divergence, et de determiner le champ magnétique adéquat.

Enfin, nous estimons que l'objectif visé par cette thèse est largement atteint, et les résultats obtenus ont donné lieu à plusieurs publications et communications, nationale et internationale (présentés dans la section V.II.1).

VI. Références bibliographique:

[1] J. D. Lawson, "Some Criteria for a Power Producing Thermonuclear Reactor," *Proc. Phys. Soc. B*, vol. 70, no. 1, pp. 6–10, 1957.

[2] M. Keilhacker *et al.*, "High fusion performance from deuterium-tritium plasmas in JET," *Nucl. Fusion*, vol. 39, no. 2, p. 209, 1999.

[3] J. Jacquinot and on behalf of the EURATOM-CEA, "Recent developments in steady-state physics and technology of tokamaks in Cadarache," *Nucl. Fusion*, vol. 43, no. 12, p. 1583, 2003.

[4] A. Simonin *et al.*, "Les sources d'ions négatifs pour le chauffage par injection d'atomes à haute énergie dans les plasmas de fusion," *Reflets phys*, vol. 40, pp. 15–17, 2014.

[5] M. Hanada *et al.*, "Development of negative ion sources for the {ITER} neutral beam injector," *Fusion Eng. Des.*, vol. 56–57, pp. 505–509, 2001.

[6] R. S. Hemsworth and T. Inoue, "Positive and negative ion sources for magnetic fusion," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, vol. 33, no. 6, pp. 1799–1813, 2005.

[7] A. Chutjian, A. Garscadden, and J. M. Wadehra, "Electron attachment to molecules at low electron energies," *Phys. Rep.*, vol. 264, no. 6, pp. 393–470, 1996.

[8] L. G. Christophorou and J. K. Olthoff, "Electron interactions with plasma processing gases: present status and future needs," *Appl. Surf. Sci.*, vol. 192, no. 1–4, pp. 309–326, 2002.

[9] M. Bacal, "Physics aspects of negative ion sources," Nucl. Fusion, vol. 46, no. 6, pp. S250--S259, 2006.

[10] M. Maazouz *et al.*, "H⁻ formation in the scattering of hydrogen ions on an Al surface," *Surf. Sci.*, vol. 364, no. 2, pp. L568–L574, 1996.

[11] P. Wurz, R. Schletti, and M. R. Aellig, "Hydrogen and oxygen negative ion production by surface ionization using diamond surfaces," *Surf. Sci.*, vol. 373, no. 1, pp. 56–66, 1997.

[12] W. Kraus *et al.*, "Development of large {RF} driven negative ion sources for neutral beam injection," *Fusion Eng. Des.*, vol. 66–68, pp. 491–495, 2003.

[13] M. B. Hopkins and K. N. Mellon, "Enhanced production of negative ions in low-pressure hydrogen and deuterium discharges," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 67, no. 4, pp. 449–452, 1991.

[14] E. Stoffels, W. W. Stoffels, and G. M. W. Kroesen, "Plasma chemistry and surface processes of negative ions," *Plasma Sources Sci. Technol*, vol. 10, pp. 311–317, 2001.

[15] A. Kono, "Negative ions in processing plasmas and their effect on the plasma structure," *Appl. Surf. Sci.*, vol. 192, no. 1–4, pp. 115–134, 2002.

[16] M. Wada, "Formation and destruction processes of negative ions in a bounded plasma," *Thin Solid Films*, vol. 316, no. 1–2, pp. 128–133, 1998.

[17] S. R. Walther, K. N. Leung, and W. B. Kunkel, "Production of H⁻ions with addition of cesium or xenon to a hydrogen discharge in a small multicusp ion source," *J. Appl. Phys.*, vol. 64, no. 7, pp. 3424–3428, 1988.

[18] T. Okuyama and Y. Mori, "Cesium catalysis effect of H⁻ ion production in volume production type of H⁻ ion source," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 63, no. 4, pp. 2711–2713, 1992.

[19] R. Middleton, "A survey of negative ions from a cesium sputter source," *Nucl. Instruments Methods*, vol. 144, no. 3, pp. 373–399, 1977.

[20] R. Middleton, "A versatile high intensity negative ion source," Nucl. Instruments Methods Phys. Res., vol. 214, no. 2, pp. 139–150, 1983.

[21] U. Fantz *et al.*, "Physical performance analysis and progress of the development of the negative ion RF source for the ITER NBI system," *Nucl. Fusion*, vol. 49, no. 12, p. 125007 (9pp), 2009.

[22] V. Dudnikov, G. Dudnikova, and J. P. Farrell, "Surface plasma source for heavy negative ion production," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 73, no. 2, pp. 906–909, 2002.

[23] Y. Belchenko, "Surface negative ion production in ion sources," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 64, no. 6, pp. 1385–1393, 1993.

[24] B. Jackson and D. Lemoine, "Eley–Rideal reactions between H atoms on metal and graphite surfaces: The variation of reactivity with substrate," *J. Chem. Phys.*, vol. 114, no. 1, p. 474, 2001.

[25] X. Sha, B. Jackson, and D. Lemoine, "Quantum studies of Eley–Rideal reactions between H atoms on a graphite surface," *J. Chem. Phys.*, vol. 116, no. 16, p. 7158, 2002.

[26] J. Bentounes, "Production des ions négatifs en surface de graphite dans un plasma d'hydrogène et de deutérium," Thèse Magister, Mostaganem, 2008.

[27] P. Sonato, "Design of the MITICA neutral beam injector," *Proc. 24th IAEA Fusion Energy Conf*, International Atomic Energy Agency, Vienne. 2012.

[28] P. Sonato et al., "Conceptual design of the beam source for the DEMO Neutral Beam Injectors," New J. Phys., vol. 18, no. 12, p. 125002, 2016.

[29] J. Pamela, A. Bécoulet, D. Borba, J.-L. Boutard, L. Horton, and D. Maisonnier, "Efficiency and availability driven R&D issues for {DEMO}," *Fusion Eng. Des.*, vol. 84, no. 2–6, pp. 194–204, 2009.

[30] A. Simonin *et al.*, "R{&}D around a photoneutralizer-based NBI system (Siphore) in view of a DEMO Tokamak steady state fusion reactor," *Nucl. Fusion*, vol. 55, no. 12, p. 123020, 2015.

[31] J.Bentounes, S J L .Béchu, F. Biggins, A .Michau, L . Gavilan, J. Menu, L . Bonny, D. Fombaron, A .Bès, Y A.Lebedev, V . Shakhatov, P. Svarnas, M T . Hassaine, J L . Lemaire and A . Lacoste "Effects of the plasma-facing materials on the negative ion H⁻ density in an ECR (2.45 GHz) plasma," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 27, no. 5, p. 13, 055015, 2018.

[32] F. F. Chen, Introduction to plasma physics and controlled fusion, 2nd ed. 2011.

[33] H. A. Bethe, "Berechnung der Elektronenaffinität des Wasserstoffs," Z. Phys., vol. 57, pp. 815–821, 1929.

[34] H. Bryant, "Fermi National Accelerator Laboratory," Available from: http://wwwbd. fnal.gov/pdriver/laser/Bryant.pdf. [Accessed 15 April 2013].

[35] T. Andersen, "Atomic negative ions: structure, dynamics and collisions," *Phys. Rep.*, vol. 394, no. 4–5, pp. 157–313, 2004.

[36] Y. I. Belchenko, G. I. Dimov, V. G. Dudnikov, and A. A. Ivanov, "Formation of negative ions in a gas discharge," *Dokl. Akad*, vol. 213, no. 6, pp. 1283–5, 1973.

[37] Y. I. Belchenko, G. I. Dimov, and V. G. Dudnikov, "A powerful injector of neutrals with a surface-plasma source of negative ions," *Nucl. Fusion*, vol. 14, no. 1, p. 113, 1974.

[38] M. Bacal, "Proc. Symp. on the Production and Neutralization of Negative Hydrogen Ions and Beams," New York, 1977.

[39] K. S. Woodcock, "The Emission of Negative Ions under the Bombardment of Positive Ions," *Phys. Rev.*, vol. 38, no. 9, pp. 1696–1703, 1931.

[40] D. Riz, "Etude expérimentale de sources à fort courant d'ions négatifs D-," Université Pierre et Marie Curie, 1996.

[41] H. Kawano, "Experimental methods and techniques for negative-ion production by surface ionization," Part I. Int. J. Mass Spectr. Ion Phys., vol. 50, no. 1–2, pp. 1–33, 1983.

[42] H. Kawano, "Experimental methods and techniques for negative-ion production by surface ionization," Part II. Int. J. Mass Spectr. Ion Phys., vol. 50, no. 1–2, pp. 33–75, 1983.

[43] H. Kawano, "Experimental methods and techniques for negative-ion production by surface ionization," Part III. Int. J. Mass Spectr. Ion Phys., vol. 50, no. 1–2, pp. 77–128, 1983.

[44] H. Andersen and P. Tykesson, "A pig sputter source for negative ions," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 22, pp. 1632–1636, 1975.

[45] P. Tykesson, H. Andersen, and J. Heinemeir, "Further investigations of ANIS (the Aarhus Negative Ion Source)," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. NS-23, pp. 1104–1108, 1976.

[46] M. Bacal and M. Wada, "Negative hydrogen ion production mechanisms," *Appl. Phys. Rev.*, vol. 2, no. 2, p. 21305, 2015.

[47] C. F. A. van Os, W. B. Kunkel, C. Leguijt, and J. Los, "Modeling of H- surface conversion sources; binary (H-Ba) and ternary (H-Cs/W) converter arrangements," *J. Appl. Phys.*, vol. 70, no. 5, pp. 2575–2583, 1991.

[48] L. Schiesko, M. Carrère, J. M. Layet, and G. Cartry, "A comparative study of H⁻ and D⁻ production on graphite surfaces in H₂ and D₂ plasmas," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 19, no. 4, p. 45016, 2010.

[49] L. Schiesko, M. Carrère, G. Cartry, and J. M. Layet, "H⁻ production on a graphite surface in a hydrogen plasma," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 17, no. 3, p. 35023, 2008.

[50] P. Kumar *et al.*, "Enhanced negative ion yields on diamond surfaces at elevated temperatures," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 44, no. 37, p. 372002, 2011.

[51] J. W. Kwan *et al.*, "One-ampere, 80-keV, long pulse H⁻ source and accelerator," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 57, no. 5, pp. 831–839, 1986.

[52] W. L. Fite, "Production of Negative Ions and Noise in Negative Ion Beams," *Phys. Rev.*, vol. 89, no. 2, pp. 411–415, Jan. 1953.

[53] L. E. Collins and R. H. Gobbett, "Extraction of negative hydrogen ions from a duoplasmatron ion source," *Nucl. Instruments Methods*, vol. 35, pp. 277–282, 1965.

[54] V.V. Kuchinskii and al., Opt. Spectrosc, vol. 39, p. 598, 1975.

[55] M. Bacal, "Proc. Symp. on the Production and Neutralization of Negative Hydrogen Ions and Beams," New York, p. 95, 1980.

[56] J. M. Wadehra and J. N. Bardsley, "Vibrational- and Rotational-State Dependence of Dissociative Attachment in e-H₂ Collisions," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 41, no. 26, pp. 1795–1798, 1978.
[57] J. N. Bardsley and J. M. Wadehra, "Dissociative attachment and vibrational excitation in low-energy collisions of electrons with H₂ and D₂," *Phys. Rev. A*, vol. 20, no. 4, pp. 1398–1405, Oct. 1979.

[58] M. Allan and S. F. Wong, "Effect of Vibrational and Rotational Exictation on Dissociative Attachment in Hydrogen" *Phys. Rev. Lett.*, vol. 41, no. 26, pp. 1791–1794, 1978.

[59] J. M. Wadehra, "Dissociative attachment to rovibrationally excited H₂," *Phys. Rev. A*, vol. 29, no. 1, pp. 106–110, 1984.

[60] R. Celiberto, R. K. Janev, A. Laricchiuta, M. Capitelli, J.M. Wadehra and D.E. Atems, "Cross Section Data for Electron-Impact Inelastic Processes of Vibrationally Excited Molecules of Hydrogen and Its Isotopes", *At. Data Nucl. Data Tables*, vol. 77, pp. 161–213. 2001.

[61] R.K. Janev, D. Reiter and U. Samm, "Collision Processes in Low-Temperature Hydrogen Plasmas" (Forschungszentrum Jülich Report Jül-4105). 2003.

[62] H.P. Gauyacq, "Dissociative attachment in e⁻-H₂ collisions", J. Phys. B At. Mol. Phys. vol. 18 pp.1859–72. 1985.

[63] M. Cízek, J. Horácek, and W. Domcke, "Nuclear dynamics of the H2- collision complex beyond the local approximation: associative detachment and dissociative attachment to rotationally and vibrationally excited molecules," *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 31, no. 11, pp. 2571–2583, 1998.

[64] J. Horáček, M. Čížek, K. Houfek, P. Kolorenč, and W. Domcke, "Dissociative electron attachment and vibrational excitation of H₂ by low-energy electrons: Calculations based on an improved nonlocal resonance model," *Phys. Rev. A*, vol. 70, no. 5, p. 52712, Nov. 2004.

[65] M. Capitelli, G. Colonna, and A. D'Angola, *Fundamental Aspects of Plasma Chemical Physics*, 1st ed. New York: Springer-Verlag New York, 2012.

[66] T. Mosbach, "Population dynamics of molecular hydrogen and formation of negative hydrogen ions in a magnetically confined low temperature plasma," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 14, no. 3, pp. 610–622, 2005.

[67] R. K. Janev et al., "Collision Processes in Low-Temperature Hydrogen Plasmas," 2003.

[68] M. J. J. Eerden *and al.*, "Cross section for the mutual neutralization reaction $H_2^+ + H^-$, calculated in a multiple-crossing Landau-Zener approximation," *Phys. Rev. A*, vol. 51, no. 4, pp. 3362–3365, 1995.

[69] S. Aleiferis, "Étude expérimentale de la production d'ions négatifs H⁻ par des plasmas à la résonance cyclotron électronique," Thèse doctorat, Université Grenoble-Alpes, 2016.

[70] J. P. Boeuf, B. Chaudhury, and L. Garrigues, "Physics of a magnetic filter for negative ion sources. I. Collisional transport across the filter in an ideal, 1D filter," *Phys. Plasmas*, vol. 19, no. 11, p. 113509, 2012.

[71] J. P. Boeuf, J. Claustre, B. Chaudhury, and G. Fubiani, "Physics of a magnetic filter for negative ion sources. II. E × B drift through the filter in a real geometry," *Phys. Plasmas*, vol. 19, no. 11, p. 113510, 2012.

[72] S. Béchu, "Caractérisations électrostatique et optique du fonctionnement de sources plasma micro-onde dipolaires. Application à la production de faisceaux d'électrons et d'ions H⁻," Thèse d'habilitation, LPSC, Université Grenoble-Alpes, 2010.

[73] M. Capitelli *and al.*, "Elementary processes and kinetics of H2 plasmas for different technological applications," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 11, no. 3, pp. A7–A25, 2002.

[74] J.-S. Yoon *et al.*, "Cross Sections for Electron Collisions with Hydrogen Molecules," *J. Phys. Chem. Ref. Data*, vol. 37, no. 2, pp. 913–931, 2008.

[75] M. Capitelli *et al.*, "Vibrational kinetics, electron dynamics and elementary processes in H_2 and D_2 plasmas for negative ion production: modelling aspects," *Nucl. fusion*, vol. 46, no. 6, p. S260, 2006.

[76] J. R. Hiskes, "Cross sections for the vibrational excitation of the $H2X 1\Sigma + g(v)$ levels generated by electron collisional excitation of the higher singlet states," *J. Appl. Phys.*, vol. 70, no. 7, pp. 3409– 3417, 1991.

[77] T. Mosbach, H. M. Katsch, and H. F. Döbele, "In situ Diagnostics in Plasmas of Electronic-Ground-State Hydrogen Molecules in High Vibrational and Rotational States by Laser-Induced Fluorescence with Vacuum-Ultraviolet Radiation," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 85, no. 16, pp. 3420–3423, 2000.

[78] D. Pagano, C. Gorse, and M. Capitelli, "Modeling Multicusp Negative-Ion Sources," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, vol. 35, no. 5, pp. 1247–1259, 2007.

[79] A. A. Matveyev and V. P. Silakov, "Kinetic processes in a highly-ionized non-equilibrium hydrogen plasma," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 4, no. 4, p. 606, 1995.

[80] C. Gorse, M. Capitelli, M. Bacal, J. Bretagne, and A. Laganà, "Progress in the non-equilibrium vibrational kinetics of hydrogen in magnetic multicusp H⁻ ion sources," *Chem. Phys.*, vol. 117, no. 2, pp. 177–195, 1987.

[81] A. Ichihara, O. Iwamoto, and R. K. Janev, "Cross sections for the reaction $H^+ + H_2$ (v = 0-14) $\rightarrow H + H_2^+$ at low collision energies," *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 33, no. 21, p. 4747, 2000.

[82] J. R. Hiskes and A. M. Karo, "Analysis of the H₂ vibrational distribution in a hydrogen discharge" *Appl. Phys. Lett.*, vol. 54, no. 6, p. 508, 1989.

[83] M. Bacal, "Physics aspects of negative ion sources," Nucl. Fusion, vol. 46, no. 6, pp. S250--S259, 2006.

[84] J. Harris and B. Kasemo, "On precursor mechanisms for surface reactions," *Surf. Sci.*, vol. 105, no. 2, pp. L281–L287, 1981.

[85] R. E. KIEL, "Electrostatic probe theory for free molecular cylinders.," *ALAA J.*, vol. 6, no. 4, pp. 708–712, Apr. 1968.

[86] J. Amorim, J. Loureiro, and D. Schram, "Formation of H⁻ ions via vibrational excited molecules produced from recombinative wall desorption of H atoms in a low-pressure H2 positive column," *Chem. Phys. Lett.*, vol. 346, no. 5–6, pp. 443–448, 2001.

[87] A. P. L. and J. K. P. C. Gabor, b D. C. Faircloth, D. A. Lee, S. R. Lawrie, "Diagnostic experiments at a 3 MeV test stand at Rutherford Appleton Laboratory "United Kingdom...," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 81, no. 02B718, 2010.

[88] J. D. Sherman, W. B. Ingalls, G.Rouleau, and H. Smith, "Review of Scaled Penning H- Surface Plasma Source with Slit Emitters for High Duty Factor Linacs," *AIP Conf. Proc.*, vol. 642, no. 1, p. 288, 2002.

[89] N.electrostatics Corporation, available from: "http://www.pelletron.com/products/snics/," 2018.

[90] J. W. Kwan *et al.*, "One-ampere, 80-keV, long pulse H⁻ source and accelerator," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 57, no. 5, pp. 831–839, 1986.

[91] R. Scrivens, "Proton and Ion Sources for High Intensity Accelerators," *EPAC2004 Proc.*, pp. 103–107, 2004.

[92] F. Naito, J. Kek, and J. Project, "the Jaeri / Kek Joint Project and Its Performance," in *Proceedings of LINAC2002, Gyeongju, Korea*, 2002, pp. 566–570.

[93] K. N. Leung, K. W. Ehlers, and M. Bacal, "Extraction of volume-produced H⁻ ions from a multicusp source," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 54, no. 1, pp. 56–61, 1983.

[94] J. Peters, "Internal Versus External Rf Coupling Into a Volume Source," in *Proceedings of EPAC 2002, Paris, France*, 2002, pp. 1727–1729.

[95] F. H. R. Gobin*, K. Benmeziane, O. Delferrière, R. Ferdinand, "Recent results of the 2.45 GHz ECR source producing H⁻ ions at CEA/SACLAY," Rapport CEA, 2014, France.

[96] K. Benmeziane, "Étude d'une source ECR d'ions H-pour accélérateurs de forte puissance," Thèse doctorat, Université PARIS XI ORSAY, 2004.

[97] Ludewig, H., Axe, J., Hastings, J., Roser, T., Todosow, M., & Schaeffer, M. (1996). "BNL-AGS complex as a spallation target test-bed" (BNL-NUREG--63379). United States.

[98] Argonne National Lab, IL (United States) (1995). IPNS upgrade: A feasibility study (ANL-95/13). United States.

[99] P. Karns, D. Bollinger, and A. Sosa, "Recent Operation of the FNAL Magnetron H⁻ Ion Source," 2017.

[100] A. Meseck, "The Electron Distribution in HERA and the Consequences for the H1 Detector after the Luminosity Upgrade," Hamburg U., 2000.

[101] J.Peters, "The status of DESY H - sources," Rev. Sci.Instrum, vol. 69, p. 992, 1998.

[102] F.W. Guy, J.W. Hurd, D. Raparia, K. Saadatmand, W.A. Whittenberg, "SSC radio-frequencyquadrupole beam: comparison of experimental and simulated results", *Particle Accelerator Conference 1993. Proceedings of the 1993*, pp. 3130-3132 vol.4, 1993.

[103] S. Lawrie, "Recent H⁻ Diagnostics, Plasma Simulations and 2X Scaled Penning Ion Source Developments at the Rutherford Appleton Laboratory," in *17th international conference on ion sources*, 2017.

[104] A. Belov, V. N. Zubec, E. S. Nikulin, O. T. Frolov, and V. Yakushev, "The INR of RAS proton linac injector beam study," *Probl. At. Sci. Technol.*, pp. 44–48, 2012.

[105] J. D. Sherman, W. B. Ingalls, G.Rouleau., and H. . Smith., "Review of Scaled Penning H-Surface Plasma Source with Slit Emitters for High Duty Factor Linacs," *AIP Conf. Proc.*, vol. 642, no. 1, p. 288, 2002.

[106] Y.Ishikawa, "Studies of condensed matter with a pulsed neutron source (KENS)," *Pulsed neutron source*, vol. 120, no. 1–3, pp. 3–14, 2002.

[107] E. G. Joseph D. Sherman, Edwin Chacon-Golcher, B. J. M. Geros, Edward Jacobson, Patrick Lara, and ana i nomas J. aug. Schaller, Ralph R, Peter Naffziger, Gary Rouleau, Stuart C. Stevens, Jr., "Physical Insights and Test stand Results for the LANSCE H Surface Converter Source," in *10th International Symposium on the Production and Neutralization of Negative Ions and Beams*, 2004.

[108] J. Komppula, T. Kalvas, H. Koivisto, J. Laulainen, and O. Tarvainen, "An Experimental Study of Waveguide Coupled Microwave Heating with Conventional Multicusp Negative Ion Source," vol. 1655, 2015.

[109] K. M. V. W. Bernd Schweizer, Ulrich Ratzinger, Bodo Klump, "A high intensity 200 mA proton source for the FRANZ-Project (Frankfurt-Neutron-Source at the Stern-Gerlach-Center).," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 8 2, p. 02A743, 2014.

[110] F. Naito and J. J. P. T., KEK, Tsukuba, Japan, "The JAERI/KEK Joint project and its performence," in *LINAC*, 2002.

[111] A. Lacoste, S. Béchu, J. Pelletier, and Y. Arnal, "Dispositif de confinement de plasma," vol. FR 02 03 9. France, 2002.

[112] M. Pichot, A. Durandet, J. Pelletier, Y. Arnal, and L. Vallier, "Microwave multipolar plasmas excited by distributed electron cyclotron resonance: Concept and performance," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 59, no. 7, pp. 1072–1075, 1988.

[113] T. Lagarde and J. Pelletier, "Procédé de production de plasmas élémentaires en vue de créer un plasma uniforme pour une surface d'utilisation et dispositif de production d'un tel plasma," vol. FR 99 10 2. France, 1999.

[114] R. Gobin *et al.*, "Two approaches for H⁻ ion production with 2.45 GHz ion sources," *Nucl. Fusion*, vol. 46, no. 6, pp. S281--S286, 2006.

[115] G. J. M. Hagelaar, K. Makasheva, L. Garrigues, and J.-P. Boeuf, "Modelling of a dipolar microwave plasma sustained by electron cyclotron resonance," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 42, no. 19, p. 194019, 2009.

[116] S. Béchu *et al.*, "Multi-dipolar microwave plasmas and their application to negative ion production," *Phys. Plasmas*, vol. 20, no. 10, pp. 101601–101608, 2013.

[117] M. Bacal, J. A. A. Ivanov, C. Rouille, P. Svarnas, S. Bechu, and J. Pelletier, "ECR-Driven Multicusp Volume H⁻ Ion Source," *AIP Conf. Proc.*, vol. 763, no. 1, pp. 203–213, 2005.

[118] A. A. Ivanov Jr *et al.*, "H- ion production in electron cyclotron resonance driven multicusp volume source," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 75, no. 5, pp. 1750–1753, 2004.

[119] P. Svarnas, B. M. Annaratone, S. Bechu, J. Pelletier, and M. Bacal, "Study of hydrogen plasma in the negative-ion extraction region," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 18, p. 45010, 2009.

[120] W. G. Graham, "The kinetics of negative hydrogen ions in discharges," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 4, no. 2, p. 281, 1995.

[121] M. Bacal, "Pressure and electron temperature dependence of H⁻ density in a hydrogen plasma," J. Appl. Phys., vol. 52, no. 3, p. 1247, 1981.

[122] S. Bechu, D. Lemoine, M. Bacal, A. Bes, and J. Pelletier, "Production of H⁻ Ions by Surface Mechanisms in Cs-free Multi-dipolar Microwave Plasma," *AIP Conf. Proc.*, vol. 1097, no. 1, pp. 74–83, 2009.

[123] S. Bechu, A. Bes, D. Lemoine, J. Pelletier, and M. Bacal, "Investigation of H⁻ production by surface interaction of the plasma generated in 'Camembert III' reactor via distributed electron cyclotron resonance at 2.45 GHz (abstract) a)," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 79, no. 2, p. 02A505, 2008.

[124] H. Wise and B. J. Wood, "Reactive Collisions Between Gas and Surface Atoms," in *Adv. At. Mol. Phys.*, vol. 3, D. R. Bates and I. Estermann, Eds. New York, 1967, pp. 291–353.

[125] B. J. Wood and H. Wise, "KINETICS OF HYDROGEN ATOM RECOMBINATION ON SURFACES1," *J. Phys. Chem.*, vol. 65, no. 11, pp. 1976–1983, 1961.

[126] H. M. Mott-Smith and I. Langmuir, "The Theory of Collectors in Gaseous Discharges," *Phys. Rev.*, vol. 28, no. 4, pp. 727–763, Oct. 1926.

[127] S. Béchu, A. Bès, L. Bonny, A. Lacoste, "Mesures des paramètres électrostatiques d'un plasma par sondes de Langmuir Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie," in *Atelier Diagnostics Plasma – Orléans*, 2014.

[128] N. Hershkowitz, "How Langmuir probes work" in *Plasma Diagnostics*, Academic P., O. A. and D. L. Flamm, Ed. Boston, vol. 1, 1989.

[129] J. E. Allen, R. L. F. Boyd, and P. Reynolds, "The Collection of Positive Ions by a Probe Immersed in a Plasma," *Proc. Phys. Soc. Sect. B*, vol. 70, no. 3, p. 297, 1957.

[130] N. Hershkowitz, "Surface Analysis and Interactions" in *Plasma Diagnostics*, Academic P., O. A. and D. L. Flamm, Ed. Boston, vol. 1, 1989.

[131] F. F. Chen, in Plasma Diagnostic Techniques, R. H. Huddlestone and S. L. Leonard, Eds. (Academic Press Inc., New York, 1965), Chap. 2.

[132] J. D. Swift and M. J. R. Schwar, *Electrical probes for plasma diagnostics*, London, Iliffe Books; New York, American Elsevier. 1969.

[133] N. Hershkowitz and M. H. Cho., "Measurement of plasma potential using collecting and emitting probes," J. Vac. Sci. Technol, vol. A 6, pp. 2054–2059, 1988.

[134] J. Laframboise and J. Rubinstein, "Theory of a cylindrical probe in a collisionless magnetoplasma," *Phys. Fluids*, vol. 19, pp. 1900–1908, 1976.

[135] J. Rubinstein and J. G. Laframboise, "Theory of a spherical probe in a collisionless magnetoplasma," *Phys. Fluids*, vol. 25, pp. 1174–1182, 1982.

[136] K. Popov. Tsv, P. Ivanova, M. Dimitrova, J. Kovačič, T. Gyergyek, and M. Čerček, "Langmuir probe measurements of the electron energy distribution function in magnetized gas discharge plasmas," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 21, no. 2, p. 25004, 2012.

[137] M. J. Druyvesteyn, Z. Phys, vol. 54, p. 790, 1930.

[138] J. E. Allen, "A note on the Bohm criterion for electronegative gases," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 13, no. 1, pp. 48–49, 2004.

[139] I. D. Sudit and R. C. Woods, "A workstation based Langmuir probe system for low-pressure dc plasmas," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 64, no. 9, pp. 2440–2448, 1993.

[140] J. G. Laframboise, "Theory of spherical and cylindrical langmuir probes in a collisionless, maxwellian plasma at rest," Toronto, UTIAS report N°100, 1966.

[141] F. F. Chen, "Chapter 2," in *Plasma Diagnostic Techniques*, Academic P., R. H. Huddlestone and S. L. Leonard, Eds. New York, 1965.

[142] H. M. Mott-Smith and I. Langmuir, "The Theory of Collectors in Gaseous Discharges," *Phys. Rev.*, vol. 28, no. 4, pp. 727–763, Oct. 1926.

[143] J. E. Allen, R. L. F. Boyd, and P. Reynolds, "The Collection of Positive Ions by a Probe Immersed in a Plasma," *Proc. Phys. Soc. Sect. B*, vol. 70, no. 3, p. 297, 1957.

[144] J. A. Nelder and R. Mead, "A simplex for function minimization," *Comput. J.*, vol. 7, pp. 308–313, 1965.

[145] J.H. Rogers, J.S. De Groot, and D.Q. Hwang, "Validating cylindrical Langmuir probe techniques," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 63, pp. 31–36, 1992.

[146] L. S. Pilling and D. A. Carnegie, "Validating experimental and theoretical Langmuir probe analyses," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 16, pp. 570–580, 2007.

[147] M. J. Druyvesteyn, Z. Phys, vol. 64, p. 697, 1930.

[148] W. P. S. Tan, "Langmuir probe measurement of electron temperature in a Druyvesteyn electron plasma," J. Phys. D. Appl. Phys., vol. 6, no. 10, pp. 1206–1216, 1973.

[149] J. I. F. Palop, J. Ballesteros, M. A. Hernández, and R. M. Crespo, "Sheath structure in electronegative plasmas," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 16, no. 1, p. S76, 2007.

[150] F. Magnus and J. T. Gudmundsson, "Digital smoothing of the Langmuir probe I-V characteristic," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 79, no. 7, p. 73503, 2008.

[151] H. C. Hayden, "Data smoothing routine'," C. Phys., vol. 1, pp. 74-75, 1987.

[152] C. D. Taylor and D. P. Nicolas, "An adaptative data-smoothing routine," *Comput. Phys.*, vol. 3, no. 2, pp. 63–64, 1989.

[153] A. Savitzky and M. J. E. Golay, "Smoothing and Differentiation of Data by Simplified Least Squares Procedures," *Anal. Chem.*, vol. 36, no. 8, pp. 1627–1639, 1964.

[154] J. Taillet and C. R., Acad Sci. Paris Ser., vol. B 269, p. 52, 1969.

[155] M. Bacal, G. W. Hamilton, A. M. Bruneteau, H. J. Doucet, and J. Taillet, "Measurement of H⁻ density in plasma by photodetachment," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 50, no. 6, pp. 719–721, 1979.

[156] S. Christ-Koch, U. Fantz, M. Berger, and N. Team, "Laser photodetachment on a high power, low pressure rf-driven negative hydrogen ion source," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 18, no. 2, p. 25003, 2009.

[157] M. Bacal, "Photodetachment diagnostic techniques for measuring negative ion densities and temperatures in plasmas," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 71, no. 11, pp. 3981–4006, 2000.

[158] R. Dodd, S. D. You, P. M. Bryant, and J. W. Bradley, "Negative ion density measurements in a reactive dc magnetron using the eclipse photodetachment method," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 19, no. 1, p. 15021, 2010.

[159] M. Bacal, G. W. Hamilton, A. M. Bruneteau, H. J. Doucet, and J. Taillet, "Measurement of H⁻ density in plasma by photodetachment," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 50, no. 6, pp. 719–721, 1979.

[160] M. Bacal and G. W. Hamilton, "H⁻ and D⁻ Production in Plasmas," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 42, no. 23, pp. 1538--1540, 1979.

[161] M. Bacal, A. M. Bruneteau, and M. Nachman, J. Phys. Lett., vol. 42, p. L-5, 1981.

[162] P. Devynck, "Mesure de la densité et de la vitesse des ions H- par photodétachement laser," *Rev. Phys. Appl.*, vol. 24, no. 2, pp. 207–214, 1989.

[163] U. Fantz and B. Heger, "Spectroscopic diagnostics of the vibrational population in the ground state of H₂ and D₂ molecules," *Plasma Phys. Control. Fusion*, vol. 40, no. 12, p. 2023, 1998.

[164] M. Osiac, B. P. Lavrov, and J. Röpcke, "Intensity distributions in R and P branches of (0–0) band of the A 1 $\Pi \rightarrow$ X 1 Σ + electronic transition of the BH molecule and determination of gas temperature in non-equilibrium plasmas," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, vol. 74, no. 4, pp. 471–491, 2002.

[165] L. Tomasini, A. Rousseau, G. Gousset, and P. Leprince, "Spectroscopic temperature measurements in a H₂ microwave discharge," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 29, no. 4, p. 1006, 1996.

[166] S. Iordanova, I. Koleva, and T. Paunska, "Hydrogen Degree of Dissociation in a Low Pressure Tandem Plasma Source," *Spectrosc. Lett.*, vol. 44, no. 1, pp. 8–16, 2011.

[167] J. W. Coburn and M. Chen, "Optical emission spectroscopy of reactive plasmas: A method for correlating emission intensities to reactive particle density," *J. Appl. Phys.*, vol. 51, no. 6, pp. 3134–3136, 1980.

[168] R. D'Agostino, F. Cramarossa, S. De Benedictis *and al.*, "Optical emission spectroscopy and actinometry in CCl₄-Cl₂ radiofrequency discharges," *Plasma Chem. Plasma Process.*, vol. 4, no. 3, pp. 163–178, 1984.

[169] U. Fantz *et al.*, "Spectroscopy—a powerful diagnostic tool in source development," *Nucl. Fusion*, vol. 46, no. 6, pp. S297--S306, 2006.

[170] C. G. Parigger, L. D. Swafford, D. M. Surmick, M. J. Witte, A. C. Woods, and G. Gautam, "Hydrogen Alpha Self-Absorption Effects in Laser-Induced Air Plasma," *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 548, no. 1, p. 12043, 2014.

[171] O. Krogh, T. Wicker, and B. Chapman, "The role of gas phase reactions, electron impact, and collisional energy transfer processes relevant to plasma etching of polysilicon with H2 and Cl2," *J. Vac. Sci. Technol. B*, vol. 4, no. 6, pp. 1292–1300, 1986.

[172] U. Fantz and D. Wünderlich, "A novel diagnostic technique for H⁻(D⁻) densities in negative hydrogen ion sources," *New J. Phys.*, vol. 8, p. 301, 2006.

[173] B. P. Lavrov and A. V Pipa, "Account of the fine structure of hydrogen atom levels in the effective emission cross sections of Balmer lines excited by electron impact in gases and plasma," *Opt. Spectrosc.*, vol. 92, no. 5, pp. 647–657, 2002.

[174] M. Hayashi, "Bibliography of Electron and Photon Cross Sections with Atoms and Molecules Published in the 20th Century - Argon -," *NIFS-DATA-072*, ISSN 0915-6364, 2003.

[175] W. L. Wiese, M. W. Smith, and B. M. Glennon, *Atomic Transition Probabilities Volume 1 (Hydrogen through Neon)*, vol. 1. NSRDS-NBS4 National Standards Reference Data Series, 1966.
[176] Available from: <u>http://www.nist.gov</u>

[177] M. J. G. Borge and J. Campos, "Lifetime of levels belonging to the 3p54p configuration of Ar(I)," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, vol. 24, no. 4, pp. 263–268, 1980.

[178] M. J. Wouters, J. Khachan, I. S. Falconer, and B. W. James, "Quenching of excited Ar I and H by H₂ in a gas discharge," *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 32, p. 2869, 1999.

[179] A. Rousseau, A. Granier, G. Gousset, and P. Leprince, "Microwave discharge in H₂: influence of H-atom density on the power balance," *J. Phys. D Appl. Phys.*, vol. 27, p. 1412, 1994.

[180] A. Gicquel, M. Chenevier, K. Hassouni, A. Tserepi, and M. Dubus, "Validation of actinometry for estimating relative hydrogen atom densities and electron energy evolution in plasma assisted diamond deposition reactors," *J. Appl. Phys.*, vol. 83, no. 12, pp. 7504–7521, 1998. [181] M. Capitelli *et al.*, *Fundamental Aspects of Plasma Chemical Physics*, Springer N. New York: Springer-Verlag New York, 2016.

[182] J. Komppula and O. Tarvainen, "VUV diagnostics of electron impact processes in low temperature molecular hydrogen plasma," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 24, no. 4, p. 45008, 2015. [183] K. Laqua, W. H. Melhuish, and M. Zander, "Molecular absorption spectroscopy, ultraviolet and visible (UV/VIS)," *Pure Appl. Chem.*, vol. 60, no. 9, pp. 1449–1460, 1988.

[184] P. Vankan, D. C. Schram, and R. Engeln, "Atomic and molecular hydrogen densities in a plasma expansion," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 14, no. 4, p. 744, 2005.

[185] Description of Desirs line beam, available from: <u>http://www.synchrotron---</u>soleil.fr/portal/page/portal/Recherche/LignesLumiere/DESIRS.

[186] L. Nahon *et al.*, "DESIRS: a state-of-the-art VUV beamline featuring high resolution and variable polarization for spectroscopy and dichroism at SOLEIL," *J. Synchrotron Radiat.*, vol. 19, no. 4, pp. 508–520, 2012.

[187] A. I. Livshits, F. El Balghiti, and M. Bacal, "Dissociation of hydrogen molecules on metal filaments in H- ion sources," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 3, no. 4, p. 465, 1994.

[188] L. C. DELACQUA, "Modélisation/diagnostics de production de poussières dans un plasma H₂ au contact d'une cible C/W, contribution à l'étude des interactions plasma/surface dans les machines de fusion thermonucléaire," Phd thesis, Université Paris XIII, 2012.

[189] C. K. Birdsall, "Particle-in-cell charged-particle simulations, plus Monte Carlo collisions with neutral atoms, PIC-MCC," *Plasma Sci. IEEE Trans.*, vol. 19, no. 2, pp. 65–85, 1991.

[190] M. A. Lieberman and A. J. Lichtenberg, *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing,* 2nd Edition, vol. 1. John Wiley and Sons, 2005.

[191] J.-L. Delcroix and A. Bers, *Physique des plasmas 1*. Paris: InterEditions CNRS {é}d., 1994.
[192] B. Jackson and D. Lemoine, "Eley–Rideal reactions between H atoms on metal and graphite surfaces: The variation of reactivity with substrate," *J. Chem. Phys.*, vol. 114, no. 1, p. 474, 2001.

[193] J. M. Ajello, S. K. Srivastava, and Y. L. Yung, \Laboratory studies of UV emissions of H₂ by electron impact. The Werner and Lyman-band systems," Physical Review A, vol. 25, no. 5, 1073 pp. 2485-2498, 1982.

[194] K. Hassouni, G. Lombardi, A. Gicquel, M. Capitelli, V. A. Shakhatov, and O. De Pascale, "Nonequilibrium vibrational excitation of H2 in radiofrequency discharges: A theoretical approach based on coherent anti-Stokes Raman spectroscopy measurements," *Phys. Plasmas*, vol. 12, no. 7, p. 73301, 2005.

[195] O. Gabriel, D. C. Schram, and R. Engeln, "Formation and relaxation of rovibrationally excited H2 molecules due to plasma-surface interaction," *Phys. Rev. E*, vol. 78, no. 1, p. 16407, 2008.

[196] U. Fantz and D. Wünderlich, "Franck–Condon factors, transition probabilities, and radiative lifetimes for hydrogen molecules and their isotopomeres," *At. Data Nucl. Data Tables*, vol. 92, no. 6, pp. 853–973, 2006.

[197] S. Bechu, S. Aleiferis, J. Bentounes, L. Gavilan, V. A. Shakhatov, A. B_es, P. Svarnas, S. Mazou_re, N. de Oliviera, R. Engeln, and J. L. Lemaire, \Detection of rovibrationally excited molecular hydrogen in the electronic ground state via synchrotron radiation," *Applied Physics Letters*, vol. 111, p. 074103, aug 2017.

VII. ANNEXES :

VII.1 Publications et communications : <u>Articles :</u>

J.Bentounes, S J L.Béchu, F. Biggins, A.Michau, L. Gavilan, J. Menu, L. Bonny, D. Fombaron, A.Bès, Y A.Lebedev, V. Shakhatov, P. Svarnas, M T. Hassaine, J L. Lemaire and A. Lacoste "Effects of the plasma-facing materials on the negative ion H⁻ density in an ECR (2.45 GHz) plasma," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 27, no. 5, p. 13, 055015, 2018.

S. Béchu, S. Aleiferis, J. Bentounes, L. Gavilan, V A. Shakhatov, A. Bès, P. Svarnas, S. Mazouffre, N. de Oliviera, R. Engeln and J L Lemaire, "Detection of rovibrationally excited molecular hydrogen in the electronic ground state via synchrotron radiation," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 111, no. 7, p. 74103, 2017.

S. Aleiferis, <u>J. Bentounes</u>, S. Béchu, P. Svarnas, A. Bés, A. Lacoste, L. Gavilan, J.L. Lemaire, "Experimental study of H atom recombination on different surfaces in relation to H⁻ negative ion production," *AIP Conf. Proc.*, vol. 1869, no. 1, p. 20011, 2017.

J. Bentounes, M. Terki Hassaïne, G. Cartry, M. Carrére, "Génération des ions négatifs en surface dans un plasma d'hydrogène et de deutérium", *proceeding*, Université de Mostaganem, Avril 2010.

Actes de communications:

S. Béchu, <u>J.Bentounes</u>, S. Aleiferis, P. Svarnas, V.A. Shakhatov, Yu. A. Lebedev, A. Bés, A. Lacoste, "Study of the production of vibrationally excited molecules of hydrogen $H_2(v')$ on surfaces by indirect and direct diagnostics", CNRS conférence centre Paul Langevin, Aussois, Sep 11-16. 2016.

S. Aleiferis, <u>J. Bentounes</u>, S. Béchu, P. Svarnas, A. Bés, A. Lacoste, L. Gavilan, J.L. Lemaire, "Experimental study of H atom recombination on different surfaces in relation to H⁻ negative ion production", NIBS'2016, OXFORD, Sep 12-16. 2016.

J. Bentounes, M. Terki Hassaïne, G. Cartry, M. Carrére, "Chauffage du réacteur à fusion thermonucléaire ITER par injection de neuters", 10éme congrès de la physique et de ses application, université de Mostaganem, 20-22 Nov 2012.

<u>J. Bentounes</u>, M. Terki Hassaïne, G. Cartry, M. Carrére, "Caesium free negative ion sources for neutral beam injectors : a study of negative ion production on graphite surface in hydrogen plasma behaviours during plasma treatment", 10éme congrès de la physique et de ses application, université de Mostaganem, 20-22 Nov 2012.

<u>J. Bentounes</u>, M. Terki Hassaïne, "La spectroscopie à très basse température", Journées scientifiques, université de Mostaganem, 25-26 Mai 2011.

J. Bentounes, M. Terki Hassaïne, G. Cartry, M. Carrére, "Production des ions négatifs dans un plasma d'hydrogène", Journées scientifiques, Université de Mostaganem, Avril 2010.

VII.2 Filtres numériques :

D'après "The Black Art of Smoothing" by David I. Wilson, Electrical & Automation Technology, 2006.



Figure. VII.1 Fenêtrage « Flat-Top » : Allure w(n) et réponse en fréquence du filtre pour lequel N est le nombre total d'échantillons et n est un entier tel que 0 < n < N-1.



Figure. VII.2 Fenêtrage « Kaiser »: Allure w(n) et réponse en fréquence du filtre



Figure. VII.3 Fenêtrage « Gaussian »: Allure w(n) et réponse en fréquence du filtre

VII.3 Le coefficient de recombinaison:



Figure. VII.4 Coefficient de recombinaison γ pour le Pyrex TM, en fonction de la température de ce dernier.

VII.4 Le champ magnétique dans ROASE-III:



Figure. VII.5 Coupe dans ROSAE-III, section suivant le milieu des aimants (Sec-AA), simulée par COMSOL[®] Multiphisycs.



Figure. VII.6 Coupe dans ROSAE-III (à droite), position B : 79mm de l'extrémité des aimants (Sec-BB), à gauche, les lignes de champ correspondantes, simulées par COMSOL[®] Multiphisycs.



Figure. VII.7 Coupe dans ROSAE-III (à droite), position A : 9mm de l'extrémité des sources (Sec-CC), à gauche, les lignes de champ correspondantes, simulées par COMSOL[®] Multiphisycs.



Figure. VII.8 Coupe dans ROSAE-III (à droite), suivant le milieu du réacteur (Sec-DD), à gauche, les lignes de champ correspondantes, simulées par COMSOL[®] Multiphisycs.



Figure. VII.9 Coupe dans ROSAE-III (à droite), suivant deux sources (Sec-EE), à gauche, les lignes de champ correspondantes, simulées par COMSOL[®] Multiphisycs.

VII.5 La conception de l'extracteur :



Figure. VII.10 Vue du système d'extraction démonté.



Figure. VII.11. a) l'électrode d'extraction démontée, les petits trous sont faits pour diminuer la pression entre les électrodes. b) Ouverture circulaire (2mm) c) Fente (largeur 0.5mm, longueur 10mm).



Figure. VII.12. Schéma de l'extracteur monté sur la source plasma ECR.