



**HAL**  
open science

# Caractérisation spectroscopique et couplage thermique de plasmas micro-onde dans des capillaires

Fabien Coquery

► **To cite this version:**

Fabien Coquery. Caractérisation spectroscopique et couplage thermique de plasmas micro-onde dans des capillaires. Plasmas. Université Paris-Saclay, 2021. Français. NNT : 2021UPAST023 . tel-03272569

**HAL Id: tel-03272569**

**<https://theses.hal.science/tel-03272569v1>**

Submitted on 28 Jun 2021

**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.

# Caractérisation spectroscopique et couplage thermique de plasmas micro-onde dans des capillaires

**Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay**

École doctorale n° 579 SMEMAG, Sciences Mécaniques et  
Energétiques, Matériaux et Géosciences

Spécialité de doctorat : Énergétique

Unité de recherche : Université Paris-Saclay, CNRS, CentraleSupélec, Laboratoire  
EM2C, 91190, Gif-sur-Yvette, France

Référent : CentraleSupélec

**Thèse présentée et soutenue à Gif-sur-Yvette, le 26/03/2021, par**

**Fabien COQUERY**

## Composition du jury :

**Jacques Robert**

Professeur, Université Paris-Saclay, LPGP

Président

**Guillaume Lombardi**

Professeur, Université Sorbonne Paris Nord, LSPM

Rapporteur & examinateur

**Ludovic De Poucques**

Maître de conférences, HDR, Université de Lorraine, IJL

Rapporteur & examinateur

**Sedina Tsikata**

Chargée de recherche, CNRS, ICARE

Examinatrice

**Gabi-Daniel Stancu**

Professeur, CentraleSupélec, EM2C

Directeur de thèse

**Olivier Leroy**

Chargé de recherche, CNRS, LPGP

Co-encadrant de thèse

**Tiberiu Minea**

Professeur, Université Paris-Saclay, LPGP

Invité

# Sommaire

	Page
Résumé . . . . .	i
Abstract . . . . .	iii
Remerciements . . . . .	v
<b>1 Introduction . . . . .</b>	<b>1</b>
1.1 Plan du manuscrit . . . . .	1
1.2 Généralités sur les plasmas . . . . .	2
1.3 État de l'art général des décharges plasmas . . . . .	6
1.3.1 Sources plasma basse pression . . . . .	6
1.3.2 Sources plasma à pression atmosphérique . . . . .	8
1.4 Plasmas micro-onde et capillaire . . . . .	11
1.4.1 Microplasmas . . . . .	11
1.4.2 Sources "Surface Wave Launcher" (Surfatron) . . . . .	13
1.4.3 Strip-line et microstrip . . . . .	16
1.4.4 Plasmas micro-onde dans des capillaires . . . . .	19
1.5 Questions ouvertes sur les plasmas micro-onde dans des capillaires . . . . .	24
<b>2 Dispositif expérimental . . . . .</b>	<b>26</b>
2.1 Génération du plasma micro-onde dans des capillaires . . . . .	26
2.1.1 Appicateurs pour la génération du plasma . . . . .	26
2.1.2 Capillaires et circuit de gaz . . . . .	30
2.2 Configurations pour bilan de puissance du plasma . . . . .	33
2.2.1 Puissance micro-onde et disposition puissances-mètres . . . . .	34
2.2.2 Fuites de champ micro-onde . . . . .	35
2.2.3 Température en surface des éléments de couplage micro-onde et de gaz de post-décharge . . . . .	36
2.2.4 Température en surface de capillaire . . . . .	38
2.2.5 Rayonnement visible du plasma . . . . .	42
2.3 Système pour étude du couplage thermique . . . . .	44
2.4 Configuration pour mesures de densité d'argon métastable par TD:LAS . . . . .	45
2.5 Dispositif pour mesures de densité électronique et de température du plasma par OES . . . . .	48
<b>3 Caractérisation macroscopique et couplage thermique de la décharge . . . . .</b>	<b>52</b>
3.1 Étude des différents applicateurs et de leur couplage de puissance . . . . .	52
3.2 Caractérisation paramétrique de la décharge . . . . .	57

3.2.1	Études en gaz non-réactif à basse pression . . . . .	57
3.2.2	Études en gaz réactif . . . . .	68
3.2.3	Études à la pression atmosphérique et comparaisons avec basse pression . . . . .	71
3.3	Couplage thermique . . . . .	74
3.3.1	Convection naturelle et forcée : analyse des résistances thermiques . . . . .	74
3.3.2	Résultats du couplage thermique sur les paramètres macroscopiques . . . . .	78
3.4	Conclusion . . . . .	81
<b>4</b>	<b>Bilan de puissance du plasma . . . . .</b>	<b>82</b>
4.1	Constitution du bilan de puissance . . . . .	83
4.2	Bilan au niveau des deux puissances-mètres . . . . .	87
4.3	Chauffage éléments de couplage micro-onde . . . . .	89
4.3.1	Transferts conducto-convectifs . . . . .	89
4.3.2	Transferts radiatifs . . . . .	93
4.3.3	Résultats de puissance thermique dissipée par les éléments de couplage micro-onde . . . . .	94
4.4	Fuites de champ micro-onde . . . . .	97
4.5	Émission radiative optique du plasma . . . . .	103
4.6	Chimie et thermique de post-décharge . . . . .	104
4.7	Mesure de la puissance couplée au plasma à travers le capillaire . . . . .	106
4.8	Résultats de bilans de puissance complet du plasma . . . . .	108
4.8.1	Bilan sans plasma . . . . .	108
4.8.2	Bilan avec plasma d'argon . . . . .	109
4.8.3	Bilan en milieu réactif et à pression atmosphérique . . . . .	113
4.9	Conclusion . . . . .	115
<b>5</b>	<b>Caractérisation spectroscopique et couplage thermique de la décharge . . . . .</b>	<b>116</b>
5.1	Méthodologie et principes de la spectroscopie optique d'émission (OES) . . . . .	117
5.1.1	Conversion des images en spectres . . . . .	117
5.1.2	Température du gaz par distribution de Boltzmann de OH et N <sub>2</sub> (C) . . . . .	119
5.1.3	Densité électronique par élargissement Stark de la raie H <sub>β</sub> . . . . .	122
5.2	Méthodologie et principes de la spectroscopie d'absorption par diode laser (TD:LAS) . . . . .	127
5.3	Caractérisation de la densité électronique et de la température du plasma . . . . .	131
5.3.1	Gaz rare à basse pression . . . . .	131
5.3.2	Gaz rare à pression atmosphérique . . . . .	138
5.3.3	Gaz réactif à basse pression . . . . .	141
5.3.4	Plasma jet . . . . .	146
5.3.5	Mesures d'argon métastable par TD:LAS . . . . .	150
5.4	Résultats du couplage thermique sur la densité électronique et la température du plasma . . . . .	156
5.5	Discussions/conclusions . . . . .	159
<b>6</b>	<b>Conclusion générale . . . . .</b>	<b>160</b>
	<b>Bibliographie . . . . .</b>	<b>162</b>

# Résumé

---

Les micro-plasmas micro-onde peuvent être générés par des ondes de surface dans des capillaires de petits diamètres (100-1000  $\mu\text{m}$ ) à l'aide de dispositifs de couplage adaptés ; ces décharges sont caractérisées par une forte densité de puissance, en raison de leur diamètre réduit, et une importante réactivité chimique en gaz moléculaire, montrées à la fois par des résultats expérimentaux et des modélisations numériques. La connaissance des caractéristiques locales, en particulier la réactivité de tels plasmas, relève d'un enjeu majeur pour l'étude de ces décharges et ouvre la possibilité d'applications multiples.

D'autres aspects fondamentaux de ces plasmas sont en revanche rarement, voire n'ont encore jamais été étudiés. La constitution d'un bilan de puissance complet de ces décharges, c'est à dire l'étude de la conversion de la puissance micro-onde initialement délivrée par la source micro-onde en d'autres formes de puissance, dont la part délivrée au plasma, a été pour la première fois réalisée de façon précise ; traditionnellement seules les puissances micro-onde incidente et réfléchie sont mesurées, menant à une surestimation systématique de la puissance couplée au plasma. Également, les dimensions particulières de telles décharges, avec un rapport surface/volume très important, ouvrent la possibilité d'un contrôle du flux thermique, et donc potentiellement des paramètres plasmas, par un système de contrôle thermique externe le long du capillaire permettant de modifier les conditions de flux aux limites. Ce type de contrôle des paramètres plasmas, utilisé pour la première fois sur de telles décharges, est non intrusif et permet d'obtenir un spectre de décharges plus large, augmentant la possibilité d'applications potentielles.

Le dispositif expérimental mis en place a permis de répondre à ces questions ; ce dernier permet de générer des micro-plasmas micro-onde dans des capillaires de faible diamètre ( $\leq 1$  mm), en employant plusieurs types d'applicateurs, avec un contrôle précis de nombreux paramètres de la décharge. Plusieurs configurations de décharge ont été réalisées afin de pouvoir caractériser le plasma, notamment son bilan de puissance par de multiples diagnostics, thermiques et optiques (mesure de puissance par puissance-mètres, de fuites de champ micro-onde par sonde électromagnétique, de température par thermocouple et par imagerie infrarouge). Des diagnostics de spectroscopie d'émission (OES) et absorption laser avec des diodes laser accordables (TD:LAS) ont donné accès aux densités de métastables d'argon et d'électrons et à la température du gaz. Un contrôle thermique externe a également été employé afin de comprendre les effets d'un couplage thermique sur cette décharge.

Les études réalisées ont permis d'obtenir des résultats intéressants et novateurs sur les micro-plasmas micro-onde générés dans des capillaires. Premièrement, la caractérisation d'un nouvel applicateur micro-onde plus compact, le strip-line, a permis d'obtenir une efficacité de couplage comparable à d'autres applicateurs traditionnellement utilisés.

La constitution du bilan de puissance de la décharge a permis de mettre en évidence des sous-estimations importantes des pertes de puissance sous forme de puissance réfléchiée et de pertes de chaleur dans les éléments de couplage micro-onde, et à l'inverse le caractère négligeable du transfert de puissance en fuites de champ micro-onde, rayonnement optique du plasma ainsi que sous forme et de réactivité chimique et chaleur en post-décharge. Là où les hypothèses traditionnellement utilisées supposent un transfert de puissance au plasma supérieur à 90 % de la puissance micro-onde initiale, le bilan de puissance révèle que seuls 4 à 20 % de cette puissance se retrouve effectivement dans le plasma, ou de 24 à 51 % en considérant que toute la puissance non-mesurée se retrouvée également couplée au plasma. Nos études ont montré qu'il y a une surestimation systématique de la puissance micro-onde transmise au plasma d'un facteur d'au moins 2 à 3 dans les valeurs traditionnellement rapportées dans la littérature.

Les études de spectroscopie d'émission optique réalisées avec une résolution spatiale micrométrique ont permis d'obtenir les premiers profils radiaux de densité électronique (par élargissement Stark des raies de  $H_{\beta}$ ) et de température rotationnelle (par distribution de Boltzmann de  $OH(A)$  et  $N_2(C)$ ) dans des décharges confinées dans des capillaires. Il a été mis en évidence d'importantes inhomogénéités radiales et longitudinales. Les températures rotationnelles au centre de la décharge, en argon pur et à basse pression, sont de l'ordre de 1000 K, avec un écart de 10 % entre le centre et la paroi interne du capillaire, pour une densité électronique de  $1 \times 10^{14} \text{cm}^{-3}$  au centre, et 50 % de moins au bord. A pression atmosphérique et/ou en milieu réactif (avec ajout d'une fraction d'air < 2,0 %) la température rotationnelle croît d'au moins 60 % (typiquement de 1000 à 1600 K) avec un gradient radial plus important pour toutes autres conditions expérimentales similaires, tandis que la densité électronique décroît d'au moins 40 % (typiquement de 1,8 à  $1,1 \times 10^{14} \text{cm}^{-3}$ ), et un gradient radial plus faible. On mesure également par spectroscopie d'absorption par diode laser une densité d'argon métastable en sortie du capillaire de l'ordre de  $3 \times 10^{12} \text{cm}^{-3}$  en argon pur, qui décroît très fortement avec l'ajout de fraction de gaz réactif, confirmant le rôle important de ces métastables dans la réactivité chimique du plasma.

Enfin, l'utilisation du système de couplage thermique externe ne présente pas d'effet significatif sur le volume de plasma généré ni sur l'efficacité du couplage, mais on constate une forte diminution de la pression du gaz en amont du capillaire (jusqu'à 20 %) et également un large contrôle des paramètres plasmas, à savoir une diminution de la température rotationnelle du gaz et de la densité électronique d'au moins 40 % (typiquement de 1000 à 600 K et de 1,8 à  $1,0 \times 10^{14} \text{cm}^{-3}$ ), et également des gradients radiaux de ces grandeurs plus faibles.

Les résultats obtenus dans le cadre de cette thèse ne serviront pas seulement pour la compréhension fondamentale des décharges micro-ondes générées dans des capillaires mais ouvrent également la voie vers de nouvelles possibilités pour des applications. Le contrôle important de multiples paramètres, comme les profils radiaux de densité électronique et de température de gaz, ainsi que le profil longitudinal de pression, par le biais d'un système de couplage thermique externe le long du capillaire permet de nouvelles possibilités pour des processus physico-chimiques de tels plasmas. Ces sources micro-plasma peuvent servir pour la production de radicaux, nécessaire pour des traitements de surface, ou des applications énergétiques et environnementales ou encore pour des applications pour des lasers de haute puissance, comme des dispositifs d'accélération d'électrons.

*La soutenance peut être visionnée sur ce lien : <https://www.youtube.com/watch?v=eXW95Nce2GE>*

# Abstract

---

Microwave micro-plasmas can be generated by surface waves in small diameters capillaries (100-1000  $\mu\text{m}$ ) using coupling launchers. These discharges exhibit high power densities due to their reduced volume and important chemical reactivity, both shown by numerical models and experimental investigations. The knowledge of the local characteristics, particularly the reactivity of these plasmas, is a major issue for the study of these discharges and is a key for many potential applications.

Several fundamental aspects of these plasmas are, however, barely, if ever, studied. An accurate power balance of such discharges, e.g. the knowledge of the fraction of the initial power really used to sustain the discharge, has never been made before. Only the incident and reflected powers are traditionally measured, leading to a systematic overestimation of the power coupled into the discharge. Moreover, the small dimensions of such discharges, with large surface over volume ratio, leave open the possibility of the heat flux control, and potentially the plasma parameters. Here an external heat control system, allowing the variation of the heat exchange at the wall, was implemented for the first time. This control of plasma parameters is non-intrusive, and modifies the discharge characteristics over a wide range.

Using microwave plasma generation in small diameters ( $\leq 1$  mm) capillaries, different designs of the wave launcher have been employed to tune several discharge parameters and to perform their characterization. Various discharge configurations were made and characterized, in particular their power balance using thermal and optical diagnostics (measurements of microwave power with powermeters, microwave leaks with electromagnetic probe, surface temperature with thermocouples and infrared imaging) and their reactivity (electron and argon metastable densities) and gas temperature, via spectroscopic diagnostics, namely optical emission spectroscopy (OES) and tunable diode laser absorption spectroscopy (TD:LAS). An external heat coupling device was also used in order to evaluate its effects on the discharge parameters.

The studies carried out lead to very interesting results on microwave plasmas generated in capillaries. Firstly, an innovative more compact microwave launcher, a line-strip, was characterized, and its microwave coupling efficiency was found to be comparable to other types of launchers traditionally used.

The power balance of the discharge showed the systematical underestimations of power losses through reflected microwave power and dissipations as heat into the microwave coupling elements. Conversely, we found negligible microwave power leaks, optical radiation of the plasma, and the power transferred as chemical reactivity and gas heating in the post-discharge. The conventional assumptions often used in literature consider a value  $> 90$  % for the injected microwave power transferred to the plasma. However, our power balance shows that only 4 to 20 % of this power is effectiely used to sustain the plasma (or in the best case 24 to 51 % if all the non-measured part of the incident power is considered coupled to the plasma). Our studies found that the power transferred into the plasma is generally overestimated at least by a factor 2 to 3.

The optical emission spectroscopic measurements were radially resolved at micrometer scale and showed important inhomogeneities of the rotational temperature (using Boltzmann distribution population of OH(A) and N<sub>2</sub>(C)) and local electron density (using H<sub>β</sub> Stark broadening). The rotational temperatures found in the discharge center, in low pressure argon case, are typically in the 1000 K range, with about 10 % variation between the plasma center and the capillary wall. An electron density of 1×10<sup>14</sup>cm<sup>-3</sup> is found in the plasma center with a 50 % decrease at the border. At atmospheric pressure and/or with a small addition of reactive gas (air, < 2.0 %), the rotational temperature measured raised at least of 60 % (typically from 1000 to 1600 K) showing a more important radial gradient, whereas the electron density decreases by at least 40 % (typically from 1.8 to 1.1×10<sup>14</sup>cm<sup>-3</sup>) with a diminished radial gradient. The density of argon metastable measured by laser absorption spectroscopy is found around 3×10<sup>12</sup>cm<sup>-3</sup> in pure argon at the capillary exit at atmospheric pressure, with a density strongly decreasing when a fraction of reactive gas is added to the noble gas, showing the key role of these species on plasma chemical reactivity.

Finally, an external thermal coupling has been found to have neither effects on plasma volume nor on the coupling efficiency, but strong effects on the pressure measured upstream of the capillary (decreases by at least 20 %) and an important control of the plasma parameters, namely a decrease of the rotational temperature and electron density by at least 40 % (typically from 1000 to 600 K and from 1.8 to 1.0×10<sup>14</sup>cm<sup>-3</sup>) and showing lower gradients.

The results obtained in this thesis will serve not only for the fundamental understanding of the capillary microwave discharges, but also, they open up the way for new possibilities of applications. For instance, the significant tuning of the radial profiles of the electron density and gas temperature and the longitudinal pressure profile by the heat transfer control across the capillary, may provide new paths for the plasma physico-chemical processes. These plasma sources could serve for tailoring the radical production that is necessary for material processing, energy and environmental applications or for high laser power applications such as devices for electron acceleration.



# Remerciements

---

En premier lieu, je souhaite remercier Ludovic De Poucques et Guillaume Lombardi d'avoir accepté d'être rapporteurs de ce manuscrit de thèse. Leur travail de lecture attentif de ces pages, leurs commentaires et remarques justes ont été très utiles pour moi. Je remercie également Sedina Tsikita et Jacques Robert d'avoir accepté d'être respectivement examinatrice et président du jury. Leurs remarques chaleureuses sur ce manuscrit ainsi que sur la soutenance, et plus globalement l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail m'ont fait chaud au coeur. Je souhaite également remercier Tiberiu Minea, qui, en dépit de son emploi du temps très chargé, a consacré du temps pour le suivi de ce projet, relire ce manuscrit, et donné des conseils et des remarques très riches grâce à son expertise.

Je remercie très chaleureusement mon directeur de thèse Gabi Stancu et mon co-encadrant Olivier Leroy. C'est en grande partie grâce à eux, leur implication dans ce projet, leur excellence scientifique et leur exigence vis à vis de mon travail, que j'ai pu amener ce projet à son terme. Merci à Olivier avec qui j'ai fait mes toutes premières décharges dans des capillaires et ses explications et son aide précieuse sur les sources plasma micro-onde. Merci enfin à Gabi, qui avec beaucoup de patience, m'a initié à ces domaines que sont la spectroscopie fine d'émission et d'absorption laser, et tous les aspects relatifs aux transferts thermiques, un domaine qui était entièrement nouveau pour moi. Je suis tout particulièrement reconnaissant du temps consacré de leur part pendant l'écriture et les nombreuses relectures de ce manuscrit, une période qui fût difficile pour moi, et sans eux je n'y serais clairement pas arrivé. Merci beaucoup encore pour cette qualité d'encadrement au quotidien.

Je remercie également mes collègues doctorants, avec qui j'ai passé mes journées au cours de ces dernières années : Nicolas, dont nos parcours se croisent depuis notre Master, et qui m'a été d'une aide importante sur toute la partie spectroscopique et Specair, Arnaud, qui m'a également apporté une aide considérable, y compris au tout dernier moment le jour de la soutenance, et même après, Erwan, avec qui j'ai partagé ma première (petite) salle de manip, et qui m'a fait découvrir les arcanes du laboratoire, Ciprian, pour les très nombreuses discussions entre nos salles voisines, mais également tous les autres membres de l'axe (ou la team) plasma que j'ai côtoyé : Serguey, Sean, Augustin, Victorien, Coentin, Jean, Pierre et Ulysse.

Je remercie Sébastien Ducruix de m'avoir accueilli dans le laboratoire EM2C. Les conditions de travail y sont exceptionnelles, et m'ont permis de mener à bien ce projet de thèse. Merci également à Christophe Laux, animateur de l'axe Plasma du laboratoire, une équipe soudée et très dynamique, dont j'ai beaucoup apprécié faire partie. Je souhaite également remercier d'autres permanents du laboratoire qui m'ont beaucoup aidé pendant ces années. Merci à Erika et Yannick de l'atelier, qui ont su me fabriquer/réparer des pièces qui m'ont beaucoup aidé dans le cadre de ce travail très expérimental, et m'ont également donné de très bonnes idées. Merci aussi à toute l'équipe de gestion du laboratoire, Noï, Nathalie et Brigitte, qui m'ont toujours accueilli avec le sourire et su m'aider sur de nombreux problèmes.

Je souhaite aussi remercier Charles et Joël du laboratoire LPGP, où je suis passé dans le cadre du projet tout au long de ces années, et qui m'ont apporté une aide matérielle et technique précieuse, notamment sur la fabrication des premiers applicateurs strip-line.

Bien au-delà des personnes qui m'ont soutenu directement sur le travail de cette thèse, je souhaite remercier de très nombreuses personnes qui m'ont accompagnées pendant ces années, et même avant. C'est grâce à elles que j'ai pu en arriver là, et je les remercie très chaleureusement.

Merci à mes ami.e.s d'enfance, que j'ai connu lors de mes jeunes années, mes premières rencontres mais également celles qui m'ont permis d'évoluer d'un petit garçon introverti à celui que je suis devenu aujourd'hui. Les aléas de la vie nous ont envoyés vers des routes très diverses, mais je ne vous oublie pas. Merci à Laure, Audrey, François, Baptiste, Teddy, Aurélie, Julie, Maïté, Axel, Camille et Jordan.

Je souhaite remercier mes amis rencontrés aux classes prépa à Bourges, avec qui nous avons tissé des liens solides et qui restent toujours très forts malgré les années et la distance qui nous éloignent désormais, mais qui n'empêchent pas nos traditionnelles rencontres annuelles qui sont toujours des moments mémorables! Merci à Pti'Louis, PE, Loulou, Jérémy, Grand Louis, Charles, Christine, et aussi Arnaud, parti trop tôt.

Remerciements très particuliers également à l'ensemble des personnes que j'ai côtoyé au sein de la TIPS (Troupe d'Improvisation de Paris-Sud/Saclay). Cette discipline a été pour moi un réel coup de coeur, un véritable lieu où j'ai pu m'épanouir, prendre confiance en moi, me nourrir de la ferveur de la scène, avec tout un ensemble de projets à faire naître et organiser. J'y ai trouvé une véritable famille. De nos multiples spectacles à nos week-ends en passant par de simples soirées sans ambition ni préparation et qui s'étendaient jusqu'à l'aube ("quand t'es à la TIPS, tu ne penses plus à demain!"), bref, merci pour tous ces moments précieux! Et forcément, comme j'y ai passé beaucoup de temps et que la troupe n'a cessé de s'agrandir, la liste de noms qui va suivre est très longue, mais toutes ces personnes ont une place importante dans mon coeur. Merci à Floriane, Amélie, Amine, Julien, Aurélien, Samih, Kévin, Camille, Fred, Hervé, Saliha, Thomas, Alexandre, Fanny, Constantin, Virgile, Lisa, Selim, Gabriel, Julie, Maÿlis, Alban, Andrew, Claire, Maëlle, Margaux, Paul-Rémi, Simon, Zoé, Raphaël, Brice, Jonas, Louis, Marguerite, Jules, Olympe, Amandine, Martin, Noémie, Bilal, Xavier et Robin notre professeur!

Merci également à l'ensemble de la troupe des Gibbons Masqués, où j'ai pu retrouver une partie de mes premiers camarades de jeu théâtral, pour pouvoir pousser plus loin cette passion de l'improvisation, et toujours plus de spectacles de qualité et de bons moments ensembles! Merci à Jérémy, Édouard, Sophie, Bichon, Josselin, Luc, Camille, Nicolas, Capucine, Élodie, Hugo et Antoine.

Je remercie également mes camarades (et futurs collègues!) rencontrés au cours de l'année de fin de rédaction et de soutenance de cette thèse, au sein du Master MEEF Physique-Chimie. Malgré les conditions particulières dans lesquelles se sont déroulées cette année, vous avez su être un souffle d'air frais pour moi et les deux fronts que je devais gérer (thèse et concours). Vous serrez toutes et tous de merveilleux enseignants! Merci à Ludovic, Robin, Malo, Robin, Lindsay, Thomas, Laetitia, Jason, Eleanor, Maria, Damien, Julien et Clément.

Remerciements très spéciaux aussi pour les (nombreuses) personnes avec qui j'ai pu partager mon quotidien en collocation pendant toutes ces années. Vous avez toutes et tous été une force pour moi, y compris dans les moments les plus compliqués, notamment l'écriture de ce manuscrit, mais aussi pour tous les chers instants de tous les jours! Je suis ravi d'avoir partagé avec vous un chez-moi, qui est devenu un chez-nous. Merci à Nicolas, Julia, Florian, Yaëlle, Lesly, Olivier, Maxime, Florian, Thibault, Arthur, Baptiste, Dany et Antoine.

Je souhaite également remercier l'ensemble de ma famille qui m'a toujours soutenu. Sans eux, rien de tout cela n'aurait été possible, et malgré la distance, je ne les oublie pas!

Enfin, pour terminer sur une note plus originale et aigre-douce, je souhaiterais porter une dédicace toute particulière à la pandémie globale de coronavirus ; elle qui m'a forcé de stopper net toutes ces activités qui me tenaient à coeur, me cloîtrant face à ce manuscrit que j'ai dû finir tant bien que mal (mais au fond peut-être plus rapidement que si elle n'avait jamais eu lieu ?), qui m'a privé d'une réelle soutenance et de célébrations en présence de mes proches. Merci et bon vent j'espère !

Merci également à toi, lecteur ou lectrice du futur, que je ne connais pas encore, mais si tu lis ces lignes, c'est que tu portes de l'intérêt à ce travail, ou que tu es devenue une personne importante dans ma vie :)



# Introduction

---

## 1.1 Plan du manuscrit

Au cours du siècle dernier, les plasmas dits "artificiels" (par opposition à ceux trouvables à l'état naturel) ont connu un intérêt croissant qui a généré de nombreuses études, permettant une meilleure description des propriétés de ce milieu et des phénomènes qui le régissent, ainsi qu'à la naissance de divers procédés permettant d'utiliser les plasmas pour diverses applications, dont la liste continue de s'allonger ces dernières années. Ces plasmas possèdent de nombreux avantages allant de leur réactivité chimique importante et sélective en gaz moléculaire, leur coût énergétique relativement bas ainsi qu'une large plage de fonctionnement.

En particulier, l'utilisation de sources micro-onde permet d'obtenir des plasmas de densité de puissance assez conséquente, et l'absence d'une électrode en contact avec le plasma permet l'augmentation de la stabilité de la décharge et d'éliminer une source de pollution métallique. Ces décharges peuvent être utilisées à basse pression pour des applications de traitement de surface ou de dépôt, très employés par exemple en micro-électronique, mais de telles sources peuvent aussi servir à générer des plasmas à pression atmosphérique, pour des utilisations dans des domaines tels que le biomédical, la stérilisation, la combustion assistée, l'agro-alimentaire et l'agriculture, les sources lumineuses ...

Ces sources micro-onde peuvent fonctionner avec des cavités résonnantes, dites "applicateurs" (microstrip, surfatron, strip-line ...) qui créent des ondes de surface sur un diélectrique à l'intérieur duquel on pourra générer le plasma. En particulier, il est donc possible de confiner un plasma micro-onde à l'intérieur d'un capillaire, donnant donc lieu à une importante densité de puissance.

L'objet de ce manuscrit de thèse est l'étude expérimentale de plasmas micro-onde générés par des ondes de surface à l'aide de différents applicateurs, totalement ou partiellement confinés dans des capillaires pour des pressions allant de quelques millibars à la pression atmosphérique, dans des gaz non réactifs ou moléculaires, au sein de la décharge ou en post-décharge. Nos études se porteront principalement sur l'aspect du bilan de puissance, du couplage thermique ainsi que de la caractérisation des espèces et de la température de ce plasma.

Dans le **chapitre 1**, une revue des diverses sources plasmas sera présentée, depuis la genèse, jusqu'aux développements récents de systèmes proches de celui utilisé dans ce projet de thèse. Un état de l'art non exhaustif des sources plasmas y sera présenté, tout particulièrement pour le cas des plasmas micro-onde générés dans des capillaires. Les résultats fondamentaux déjà connus sur ces décharges particulières ainsi que les questions encore ouvertes concernant ces plasmas seront également présentés.

Le **chapitre 2** présentera le dispositif expérimental qui sera utilisé pour générer le plasma, ainsi que les multiples configurations permettant de réaliser les différents diagnostics nécessaires à la caractérisation de la décharge.

Les premiers résultats expérimentaux seront présentés dans le **chapitre 3**. On y trouvera tout d'abord des études paramétriques macroscopique afin de décrire le comportement de la décharge et son régime de fonctionnement, puis une étude du couplage thermique de la décharge par un contrôle d'écoulement externe sera présentée.

Le **chapitre 4** sera consacré au bilan de puissance du système. Il y sera présenté un protocole expérimental pour mesurer les sources de pertes et de conversion de la puissance, pour en conclure sur l'importance de ces divers canaux grâce à des bilans de puissance complets.

Dans le **chapitre 5** seront présentés les résultats de campagnes de mesures spectroscopiques permettant de réaliser une caractérisation des paramètres microscopiques du plasma. Une étude par diagnostics d'émission spectroscopique (OES) permettra d'obtenir la densité électronique, ainsi que le profil de température du plasma avec une résolution radiale tandis que des mesures d'absorption laser (TD:LAS) permettront de déterminer la densité d'argon métastable produit. Le rôle de différents paramètres (puissance micro-onde, débit de gaz ...) ainsi que les effets d'un couplage thermique externe sur les valeurs de température du gaz, densité électronique et densité d'argon métastable seront présentés.

Finalement, les conclusions et des perspectives seront présentées dans le **chapitre 6**.

## 1.2 Généralités sur les plasmas

Tout exposé généraliste sur les plasmas commence traditionnellement par rappeler que le plasma est souvent défini comme "le quatrième état de la matière" (ainsi nommé pour la première fois par Irving Langmuir en 1928 [1]) et qu'il constituerait plus de 99 % de la matière visible de l'univers [2] [3]. Néanmoins, ces affirmations, pourtant souvent les premières briques présentées à des étudiants ou au grand public pour décrire les plasmas sont fortement à nuancer ; en premier lieu, le plasma n'est pas vraiment un état de la matière, dans le sens où il n'y a pas de transition de phase pour passer d'un plasma à l'un des trois autres états "classiques" de la matière ; en second lieu, si le plasma constitue une part si importante de la matière visible de l'univers, c'est parce qu'il est le principal composant des étoiles, dont les phénomènes physiques mis en jeu pour les décrire sont extrêmement différents d'une très large majorité des plasmas, dont ceux qui vont être abordés dans ce manuscrit.

Les plasmas, contrairement à ce que la seconde affirmation précédente laisse supposer, sont en réalité très absents de la vie quotidienne d'un être humain : le plasma observable est bien souvent très distant, comme le Soleil et les autres étoiles, ou encore d'autres phénomènes astrophysiques plus exotiques (aurores boréales, queues des comètes) qui sont qualifiés de plasmas "naturels". Les plasmas observables sur Terre quotidiennement peuvent également être "naturels" comme la foudre ou bien les flammes (bien que leur qualification en tant que "plasma" reste discutable) mais également "industriels", comme les éclairages des tubes dits "néons", certains téléviseurs (utilisant un écran plasma) ou toute décharge électrique créée dans l'air par un appareil électrique (e.g. filtres électrostatiques). Outre ces exemples de plasmas observables au quotidien, il existe également une très grande variété de plasmas industriels servant pour diverses applications, détaillés dans la partie 1.3. En effet, les plasmas sont caractérisés par une impor-

tante réactivité chimique en gaz moléculaire, souvent sélective, justifiant souvent leur intérêt pour des applications, car étant énergiquement moins coûteux.

Le plasma peut être décrit comme un milieu gazeux dont la dynamique n'est pas régie uniquement par des propriétés thermodynamiques (température et pression) mais aussi par les lois de l'électromagnétisme, le plasma étant non-neutre à l'échelle microscopique (même si globalement neutre) donc un milieu ionisé sensible aux champs électromagnétiques, mais également par ses propriétés chimiques, étant composé de particules hors d'un état stable, radiatives ou non. L'étude du plasma est donc particulièrement complexe et fait appel à de nombreux domaines de la physique.

Il peut être généré de multiples manières, mais nécessite dans tous les cas un apport d'énergie pour créer suffisamment de paires électron-ion. Cet apport d'énergie peut être électrique, thermique, ou radiatif (absorption de photons émis par laser par exemple). Étant donné le caractère instable de la plupart des espèces du plasma, les transferts d'énergie seront importants : ils peuvent être radiatifs, par émission, absorption, diffusion d'un photon par une particule, ou collisionnels, avec transfert d'énergie, de charge ou de quantité de mouvement entre les particules.

Afin de caractériser un plasma, il est nécessaire de connaître un certain nombre de ses paramètres physiques. En premier lieu il est important de connaître sa température, ou plutôt ses températures : un plasma de décharge étant en effet souvent hors de l'équilibre thermodynamique, une série de températures sera nécessaire à évaluer pour le décrire. En particulier, le plasma étant constitué d'une partie d'électrons libres, leur température, qualifiée "d'électronique"  $T_e$  sera définie par (en supposant l'ensemble d'électrons à l'équilibre thermique entre eux) :

$$\frac{1}{2}m_e v^2 = \frac{3}{2}k_B T_e \quad (1.1)$$

Avec :

- $m_e = 9,11 \times 10^{-31}$  (kg) : Masse d'un électron.
- $v$  (m/s) : Vitesse moyenne des électrons.
- $k_B = 1,38 \times 10^{-23}$  (J/K) : Constante de Boltzmann.

Cette température est très souvent exprimée en électrons-volts (eV) avec  $1 \text{ eV} \simeq 11600\text{K}$ . Lorsque le plasma est hors de l'équilibre thermodynamique, cette température des électrons est plus élevée que celles des ions  $T_i$ , qui est souvent à l'équilibre avec celle des neutres  $T_n$ . Ce dernier équilibre est atteint si les collisions entre les particules neutres et les ions sont suffisantes pour assurer un échange énergétique efficace entre ces particules dites "lourdes".

L'autre paramètre "classique" pour classifier un plasma est sa densité  $n$  totale de particules par unité de volume. La neutralité globale du plasma implique que :

$$\sum_z z n_{z,i} = n_e \quad (1.2)$$

Avec  $z$  : Charge de l'ion de densité  $n_{z,i}$ .

Connaissant la densité des porteurs de charge, on peut en déduire le degré d'ionisation  $\alpha$ , compris entre 0 (gaz neutre totalement neutre) et 1 (plasma totalement ionisé) et défini comme :

$$\alpha = \frac{\sum_z n_{z,i}}{\sum_z n_{z,i} + n_n} \quad (1.3)$$

Le plasma étant localement non neutre, il existe des fluctuations de la densité de charge. Pour de faibles températures électroniques, cette oscillation, appelée pulsation plasma (ou de Langmuir) est définie pour les électrons par :

$$\omega_{pe} = \sqrt{\frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0}} \quad (1.4)$$

Avec :

- $e = 1,60 \times 10^{-19}$  (C) : Charge élémentaire.
- $\epsilon_0 = 8,85 \times 10^{-12}$  (F/m) : Permittivité diélectrique du vide.

Concernant la propagation des ondes électromagnétiques (EM) dans le milieu plasma, on observe qu'une onde EM ne peut traverser le plasma que si sa pulsation  $\omega$  est supérieure à  $\omega_{pe}$ . De la même façon, on peut définir une pulsation ionique  $\omega_{pi}$ , très inférieure à  $\omega_{pe}$  en raison du rapport de masse des particules. Ainsi, un champ extérieur appliqué à un plasma pourra, selon sa fréquence, affecter différemment les électrons et les ions.

Enfin, un autre paramètre classique pour décrire l'état d'un plasma est la longueur de Debye  $\lambda_D$ . Elle décrit la distance au-delà de laquelle le champ Coulombien d'une charge sera écarté par les particules avoisinantes. Ainsi, pour une échelle d'observation supérieure à  $\lambda_D$  on pourra considérer que la condition de neutralité globale du plasma est respectée.

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B}{e^2 \left( \frac{n_e}{T_e} + \sum_z z^2 \frac{n_{i,z}}{T_i} \right)}} \simeq \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T_e}{n_e e^2}} \quad (1.5)$$

A l'aide du couple de paramètres que sont la température électronique et la densité de particules chargées, on peut classer les plasmas dans diverses "familles" comme montré dans la figure 1 [4].

Pour simplifier très grandement, on pourrait regrouper les plasmas en 4 grandes familles :

- Les plasmas de fusion : très hautes densité et température. A l'état naturel, ils constituent le centre des étoiles, là où les conditions sont suffisantes pour engager des réactions de fusion nucléaire. Sur Terre, des expériences de très grande échelle tentent de reproduire ces conditions avec pour objectif ultime la production d'une énergie plus propre et renouvelable que la fission nucléaire. C'est le cas du projet ITER, se basant sur la fusion par confinement magnétique ; et aussi le Laser Méga Joule, par confinement inertiel. Dans tous ces cas, les plasmas de fusion sont totalement ionisés.



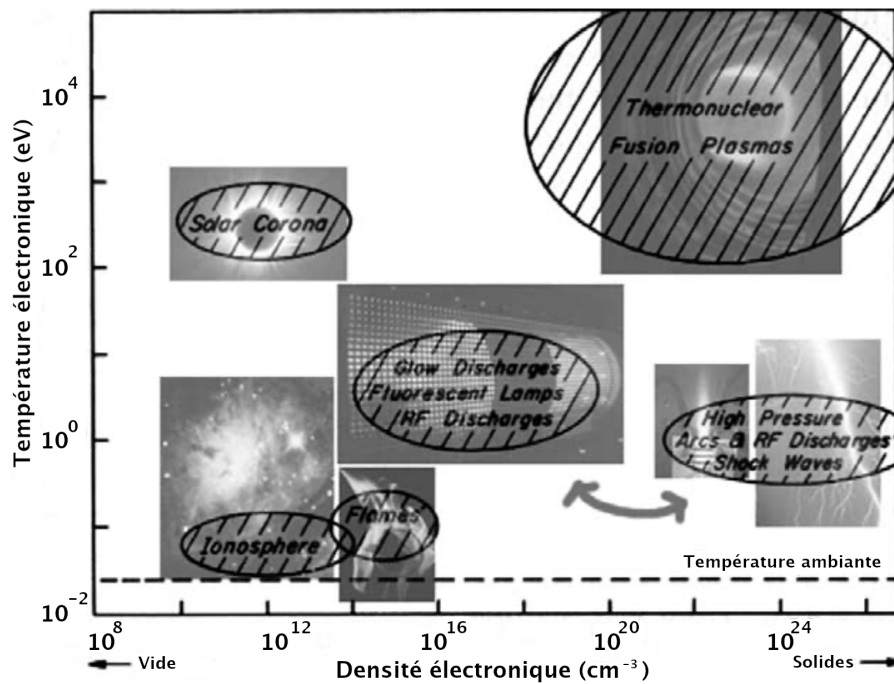


FIGURE 1 – Différents types de plasmas classifiés en fonction de leur température et de leur densité, tiré de [4].

- Les plasmas spatiaux : faible densité, température basse à haute. Ils constituent notamment toute la matière ionisée éjectée d'une étoile vers le vide spatial, comme les vents solaires et les différents phénomènes lorsque cette matière se retrouve piégée à proximité du champ magnétique des corps célestes comme les planètes.
- Les plasmas thermiques : température élevée. Générés à des densités proches de la pression atmosphérique, ils sont souvent à l'équilibre thermodynamique, avec des températures de l'ordre de l'électron-volt et des taux d'ionisation proches de 1. C'est le cas de diverses torches à plasma pouvant servir pour des applications industrielles (soudure, gravure ...) et des arcs électriques.
- Les plasmas froids hors état d'équilibre : densité faible à moyenne. Ces plasmas, sont caractérisés par des électrons chauds, de l'ordre de l'électron-volt, mais des "lourds" (ions et neutres) froids, à la température ambiante, donc un état hors de l'équilibre thermodynamique. Leur taux d'ionisation est généralement compris entre  $10^{-5}$  et  $10^{-2}$ .

Tous les plasmas mentionnés ultérieurement dans ce manuscrit font partie de cette quatrième famille. Au sein d'un tel plasma, une grande partie de sa dynamique est régie par les collisions. Les électrons, légers et énergétiques, collisionnent avec les neutres (à une fréquence  $\nu_{en}$ ); si ces collisions sont inélastiques, l'électron peut transmettre une partie de son énergie, principalement sous forme d'énergie interne (chimique par exemple) c'est à dire en excitation de la partie neutre vers un état énergiquement plus élevé, voire en l'ionisant, plutôt que sous forme cinétique, la différence de masse entre électrons et neutres faisant que l'échauffement de ces derniers est peu efficace. Cette situation est possible pour des pressions inférieures ou égales à la pression atmosphérique. Une plus haute pression implique une augmentation du taux de collisions, d'où des transferts entre électrons et neutres plus importants, réduisant l'écart entre les températures; on se rapproche de la situation d'équilibre thermodynamique.

Notre étude portant principalement sur ces plasmas froids hors équilibre, il est nécessaire de séparer cette famille en deux sous-ensembles, à la dynamique bien distincte, basés sur le seul critère de la pression : les plasmas froids à pression atmosphérique (ou sub-atmosphérique) et les plasmas froids à basse pression. Un état de l'art sur ces types de plasmas, leurs sources, propriétés et applications sera présenté ci-dessous.

## 1.3 État de l'art général des décharges plasmas

Les plasmas froids hors équilibre thermodynamique dits "artificiels" (ou de décharge) ont un très long historique de sources et d'applications extrêmement variées : de la genèse avec des tubes de décharge pour mettre en évidence les porteurs de charge aux derniers avancements sur les applications biomédicales, par exemple, retraçons plus d'un siècle d'histoire de ces plasmas froids hors équilibre, de la basse pression à la pression atmosphérique.

### 1.3.1 Sources plasma basse pression

Les premières sources de décharges plasma "artificielles" connues remontent au 19<sup>ème</sup> siècle : dans les années 1830, Faraday observe l'existence de décharges lumineuses dans des tubes de verre contenant du gaz à basse pression ionisé [5]. Ce phénomène, alors simple curiosité scientifique, a été étudié plus précisément par Geissler, qui à partir de 1857 a développé des tubes à décharge de formes et couleurs variées, pour des aspects décoratifs et commerciaux, à l'origine des éclairages "néon" contemporains. En 1878 Crookes a développé un tube à décharge qui porte son nom, l'un des mieux documentés de ces premiers prototypes (visible figure 2) où le plasma est généré à basse pression ( $10^{-3}$  mbar environ) entre deux électrodes avec une tension de l'ordre de 10 à 100 kV [6]. Néanmoins, cette seconde configuration requiert que la cathode soit chauffée pour produire des électrons par émission thermo-ionique.

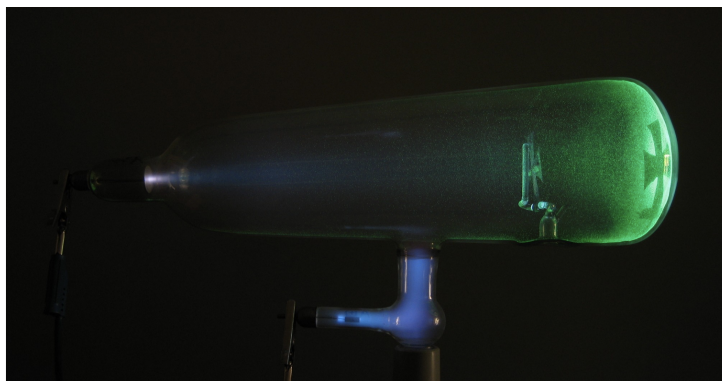


FIGURE 2 – Tube de Crookes [7].

Le fonctionnement de ces sources plasma peut être défini ainsi : le gaz contenu dans le tube possède une densité d'électrons libres non nulle, tout comme l'air ambiant (de l'ordre de  $10^3 \text{ m}^{-3}$ ), provenant de phénomènes naturels, comme les rayons UV du Soleil qui traversent l'atmosphère, la radioactivité naturelle ... Ces électrons, dit "germes" vont être accélérés par le champ électrique continu entre les deux électrodes ; la faible pression du gaz faisant que ces électrons acquièrent en moyenne plus d'énergie cinétique avant d'entrer en collision avec une autre particule. Un électron ayant suffisamment d'énergie et collisionnant avec une particule neutre peut alors ioniser cette particule, les deux électrons libres

pouvant alors à leur tour être accélérés par le champ électrique et ioniser d'autres particules. On appelle ce phénomène l'avalanche électronique. Les électrons vont progressivement se déplacer vers l'anode, à l'inverse des ions qui vont se déplacer vers la cathode, malgré une mobilité bien plus faible, due à leur masse. Un canal conducteur se crée entre les électrodes, ouvrant donc un passage du courant.

L'impact des ions sur la cathode peut à son tour éjecter des électrons, c'est l'émission secondaire, dépendant en grande partie du matériau composant la cathode et de l'énergie transportée par les ions [8]. Si l'alimentation électrique n'est pas pulsée ou le temps d'application de la haute tension est trop important, cette émission secondaire s'amplifie, en partie à cause du chauffage des électrodes, le courant augmente et la décharge, jusqu'alors dans un régime luminescent (dit "glow"), peut passer à un "arc" électrique, où les ions, les électrons et les neutres se thermalisent, le plasma n'est donc plus qualifiable de "froid" [9].

Pour un gaz donné, une décharge ne pourra s'amorcer que si le libre parcours moyen (e.g. la distance moyenne parcourue entre deux collisions) des électrons germes est suffisant pour atteindre l'énergie d'ionisation du gaz neutre, et qu'une collision ionisante soit possible. Il y a donc un équilibre à trouver entre trois paramètres : différence de potentiel entre les électrodes, distance inter-électrodes, et pression ; ces paramètres interviennent dans les conditions d'amorçage qui sont données par la loi de Paschen [10].

Ces types de décharges luminescentes ne sont pas homogènes le long de l'axe entre les deux électrodes : elles sont en effet caractérisées par différentes "régions", présentées figure 3, certaines radiatives, d'autres non. L'existence de ces zones provient de successions de phénomènes entre les électrodes (accélération des électrons, collisions ionisantes ou non, recombinaisons, variation du champ électrique et de la densité de porteurs de charges locaux ...) [11].

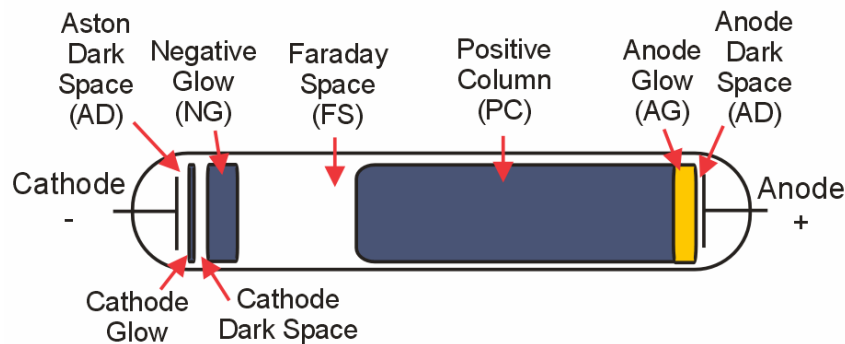


FIGURE 3 – Différentes zones le long d'une décharge continue dans un tube à basse pression, tiré de [12]

Le principe même de beaucoup de sources plasmas est resté le même encore aujourd'hui : un gaz à basse pression auquel on applique une différence de potentiel suffisamment importante entre deux électrodes. Les plasmas froids à basse pression peuvent également être générés par des procédés utilisant des ondes haute fréquence, et aidés ou non par des champs magnétiques. En effet, à basse pression le libre parcours moyen peut atteindre les dimensions du réacteur, et le nombre de collisions est alors trop faible pour maintenir la décharge. On utilise alors des "pièges" électriques et/ou magnétiques, souvent créant un champ magnétique derrière la cathode pour en contrôler le bombardement et l'érosion, on parle alors de décharge "magnétron" [13] [14].

Les plasmas générés à basse pression possèdent des propriétés physiques qui les rendent intéressants pour des applications clés dans de nombreux domaines industriels : il est en effet possible de contrôler l'érosion/le traitement de surface d'un substrat et également son dépôt sur une épaisseur de quelques couches atomiques, voire de la monocouche [15]. Ces procédés sont particulièrement recherchés dans le

domaine de la micro-électronique, au développement exponentiel depuis 50 ans, et peuvent également être utilisés pour de la croissance de diamants [16] ou de nanotubes de carbone [17]. Un exemple de configuration de plasma magnétron DC pour du dépôt de couches minces est présenté figure 4.

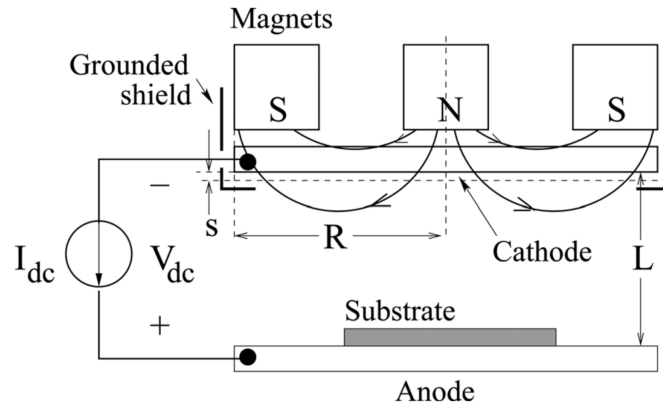


FIGURE 4 – Configuration de plasma magnétron DC pour du dépôt de couches minces [18].

### 1.3.2 Sources plasma à pression atmosphérique

Étymologiquement parlant, la différence entre cette famille de plasmas et la précédente n'est basée que sur le critère de la pression. Ce détail n'est pas anodin : l'élimination des pompes à vide représente un grand avantage pour les plasmas à pression atmosphérique, en particulier pour des applications industrielles à grande échelle. De plus, certaines de ces applications ne sont possibles qu'à pression atmosphérique, en particulier celles liées de près aux sciences du vivant, difficilement compatibles avec des pressions sub-atmosphériques.

L'histoire des sources plasmas froids à pression atmosphérique est en réalité plus ancienne que celle des plasmas à basse pression. Historiquement, la première décharge plasma référencée remonte à 1857 avec le tube à ozone de Siemens, présenté figure 5 [19] [20].

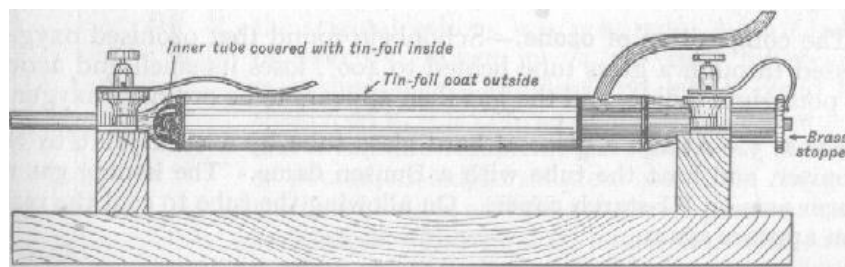


FIGURE 5 – Tube à Ozone de Siemens, 1857 [19].

Cette décharge, dite à barrière diélectrique, ou DBD, est générée à l'intérieur d'un tube de verre parcouru par un flux d'air, à l'extérieur duquel sont apposées deux électrodes. Le terme DBD est en réalité étendu à toute configuration de décharge dans laquelle on trouve au moins une épaisseur de diélectrique entre deux électrodes, plusieurs configurations sont présentées figure 6. Lorsqu'un diélectrique est apposé directement sur une électrode, elle n'est pas en contact direct avec le plasma, et n'est ainsi pas bombardée ou érodée, ce qui évite la pollution du plasma par des impuretés métalliques. De plus, l'intérêt du diélectrique est de répartir les charges sur sa surface pour avoir une décharge plus homogène volumiquement, et

également d'éviter un passage à l'arc par une décharge trop localisée, ce qui donnerait donc un plasma thermique. Selon les conditions expérimentales (nature du gaz, pression, géométrie des électrodes ...) les décharges sont généralement composées de filaments cylindriques du diamètre de l'ordre de la centaine de micromètre (appelés aussi "streamers") et de durée de vie de l'ordre de la dizaine de nanosecondes [21] mais dans certaines conditions on peut obtenir une décharge volumique et homogène, alors appelée glow à la pression atmosphérique [22].

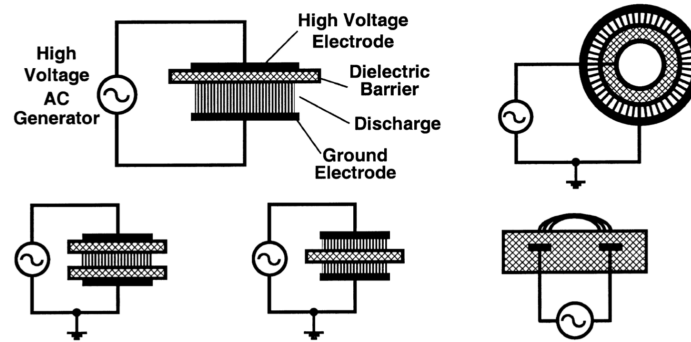


FIGURE 6 – Différentes configurations de décharges DBD [23].

L'utilisation de telles décharges s'est pendant presque un siècle cantonnée à celle du premier prototype, à savoir la génération d'ozone [24] [25] pour différentes applications industrielles, comme le traitement des eaux [26] parfois avec un plasma généré directement en milieu liquide présenté figure 7 [27]. Il est important de noter que ces effets de traitement des eaux sont dus à la fois à la production d'ozone mais aussi à la forte production de rayonnement UV provenant des excimères créés par la décharge [28]. Ces décharges peuvent donc être utilisées comme sources de rayonnement UV ou VUV [29].

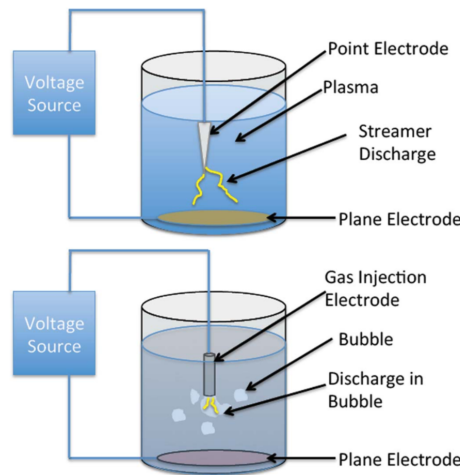


FIGURE 7 – Configurations de plasmas DBD générés dans l'eau [27].

Même si les configurations DBD et ses dérivées ont historiquement représenté un champ d'étude important des plasmas froids à pression atmosphérique, elles ne constituent pas l'intégralité des sources possibles. De tels plasmas peuvent également être obtenus en l'absence de diélectrique entre les électrodes, la maîtrise du courant les traversant sera donc cruciale pour éviter un passage à l'arc, chauffant les ions. On ne sera donc plus en régime continu (DC) mais en régime pulsé (AC).

Les plasmas froids à pression atmosphérique peuvent ainsi être générés par des sources radio-fréquence, RF, ou micro-onde, MO. Dans le premier cas, on est dans le régime du MHz, les électrons vont donc pouvoir suivre les oscillations du champ électrique, tandis que les ions seront seulement soumis à sa moyenne temporelle, en raison de leur inertie importante due à leur masse. Dans le cas des ondes micro-ondes, la longueur d'onde sera par définition comprise entre le mètre et le millimètre, soit une fréquence entre 300 MHz et 300 GHz ; la pulsation de l'onde peut être alors très grande devant la pulsation plasma électronique, les ions et les électrons ne peuvent alors plus suivre les oscillations du champ, et sont donc soumis à sa moyenne temporelle. Ces configurations possèdent en outre l'avantage d'une absence d'électrode, qui peut s'éroder, diminuant la stabilité de la décharge dans le temps, et la polluant par des vapeurs métalliques. Ces sources micro-onde sont donc exemptes d'impuretés et très stables dans le temps, propriétés très recherchées pour des applications robustes.

Toutes ces sources de plasmas froids à pression atmosphérique trouvent un large spectre d'applications. Sur une thématique similaire au traitement des eaux, les plasmas froids ont également trouvé des applications dans le domaine du traitement de l'air et des composés organiques volatils (COV). En effet, la réactivité chimique de ces plasmas permet la dissociation de molécules organiques polluantes, avec des effets sur la dissociation des oxydes d'azotes repérés dès les années 1920 [30]. Leur utilité s'est généralisée au traitement de diverses molécules organiques comme le propane [31] le dioxyde de soufre [32] le chlorobenzène [33] ... Le procédé emploie parfois des catalyseurs solides pour y fixer la molécule organique et/ou ses sous-produits [34]. Ces configurations ont de meilleurs rendements que les procédés industriels classiques ; en effet, l'énergie injectée dans le plasma est principalement utilisée pour l'excitation des particules (le gaz reste froid) contrairement aux procédés industriels, qui consistent en général à simplement chauffer les gaz d'échappement, perdant une grande partie de l'énergie dans le chauffage du diazote, ne contribuant pas à la dissociation des polluants.

Ces plasmas possèdent également un potentiel important pour de la combustion assistée par plasma. L'utilisation d'un plasma, de puissance bien inférieure à la puissance d'une flamme, permet en effet de la stabiliser, et également de la maintenir dans des mélanges plus pauvres en carburants, là où la flamme ne peut exister sans l'assistance du plasma [35] [36] [37].

Les applications biomédicales sont un autre grand domaine pour lequel ces plasmas possèdent un potentiel important ; les premières expériences sur cette thématique datent de seulement quelques dizaines d'années, ce sujet est considéré comme novateur. Les mécanismes mis en jeu dans ces plasmas sont extrêmement complexes, étant à la frontière entre la physique, la chimie et la biologie. Ce domaine s'axe autour de deux principales opportunités d'application : le traitement des plaies [38] pour une guérison plus rapide et moins coûteuse, et le traitement de certaines tumeurs cancéreuses [39] [40]. Un exemple de tels plasma est présenté figure 8. Les effets qui peuvent être observés sont une combinaison de multiples sources : le rayonnement UV [41] le champ électrique [42] et la chimie de la décharge [43].

Enfin, parmi les derniers procédés plasma en développement, ces dernières années ont vu l'émergence du domaine de l'agriculture plasma, et plus généralement de l'interaction plasma/nourriture. Des effets sont observés sur le développement de levures [44] l'inactivation de spores résistantes aux traitements thermiques [45] [46], de champignons impactant le développement de plants de riz [47] ou encore de bactéries [48]. Il est à noter que l'application directe d'un jet plasma sur les tissus biologiques à traiter n'est pas toujours une condition nécessaire à l'observation de ces effets : l'application du plasma à un échantillon liquide, puis sa mise en contact avec le milieu à traiter, donc une application indirecte du plasma peut être suffisante [49] [50].

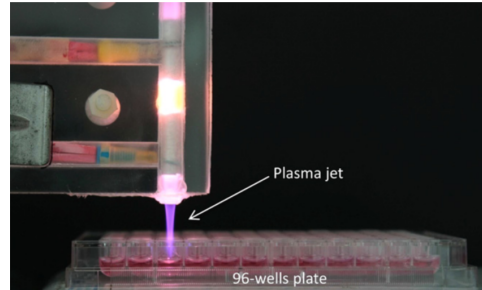


FIGURE 8 – Jet plasma appliqué à des sphéroïdes de cellules cancéreuses [40].

Cette revue très générale a volontairement omis de parler d'une grande partie de sources plasmas froids, à pression atmosphérique et basse pression. En raison de leur proximité avec les plasmas qui feront l'objet de ce manuscrit, ils seront décrits avec plus de détails dans la partie suivante.

## 1.4 Plasmas micro-onde et capillaire

### 1.4.1 Microplasmas

Les microplasmas sont des décharges dont au moins une des dimensions est de l'ordre de la dizaine ou de la centaine de micromètres. Ils peuvent être générés par la plupart des sources présentées jusqu'à présent et, conséquence de leur faible volume, avec une puissance relativement basse. Leur confinement spatial, couplé à une configuration DBD ou à des excitations par haute fréquence, empêche généralement le passage au régime d'arc, donnant un caractère hors état d'équilibre à ces décharges. Il est possible de multiplier ces microplasmas sur une même source pour en constituer un réseau, pouvant servir à des fins d'éclairage [51]. L'un des inconvénients, encore conséquence de leurs dimensions, est qu'une large portion du plasma sera en contact avec les électrodes, lorsqu'il y en a. Le développement de ces dispositifs sur les deux dernières décennies a donné lieu à de très nombreuses configurations [52], dont seule une part non-exhaustive pourra être présentée.

Une des configurations possibles pour la génération de telles décharges est basée sur les cathodes creuses, dont un exemple est présenté figure 9. Une telle décharge peut fonctionner à pression atmosphérique dans l'argon, en DC ou pulsé, pour une tension inférieure au kV, donnant des décharges "glow", qui peuvent devenir filamenteuses en augmentant le courant ou la pression [53]. Une telle configuration a également un potentiel pour générer des états excités en forte densité, comme l'ozone ou le singulet  $\Delta$  de l'oxygène moléculaire (un état métastable de  $O_2$  à très longue durée de vie), aux propriétés importantes dans le contexte des plasmas biomédicaux [54]. La génération de ces espèces est rendue possible par la configuration "creuse" de la cathode, qui "piège" et accélère les électrons dans son axe, et crée un mouvement d'oscillation de ces derniers [55].

Pour un traitement de surface précis, les faibles dimensions du dispositif sont importantes mais également le simple fait d'établir un contact entre le milieu plasma et la surface que l'on souhaite traiter. Ainsi se sont développées des sources plasmas à bas coût pour divers traitements de surface, appelées "plasma pen" ou "plasma pencil" [57]. De tels dispositifs arrivent même jusqu'au stade commercial, où ils sont vendus pour des utilisations de désinfection de l'eau ou de traitement de la peau [58] (pour la cicatrisation des plaies, l'effacement des marques, grains de beauté, ou même tatouages).

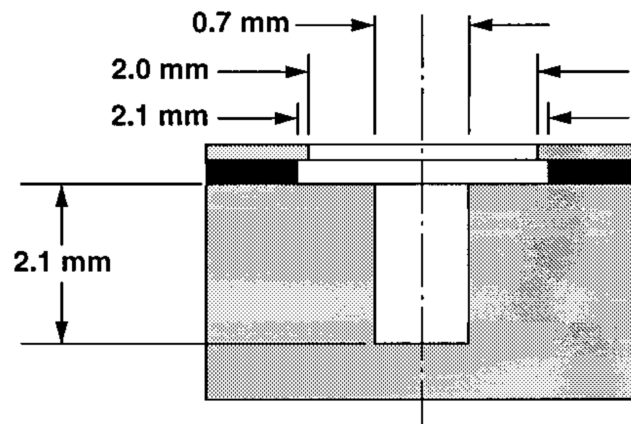


FIGURE 9 – Représentation d'une microcathode creuse. L'anode formant une cavité, en bas, est séparée de la cathode, creuse en son centre, par un diélectrique (en noir) [56].

Il est également possible de placer l'électrode à haute tension à l'intérieur d'un tube, lui-même entouré par une électrode cylindrique reliée à la masse, les deux électrodes séparées par un milieu diélectrique, à la manière de la configuration des cathodes creuses [59]. A puissance modérée le plasma reste confiné autour du tube. Augmenter la puissance permet à ce jet de plasma de s'étendre au-delà et de former une "plume plasma". Néanmoins, à des puissances supérieures, des streamers peuvent se former entre l'électrode à haute tension et le diélectrique à proximité de l'électrode à la masse. Cet effet est à éviter en raison de son aspect aléatoire et inconstant ainsi que des dommages qu'il peut causer aux surfaces traitées. Une telle configuration est présentée figure 10.

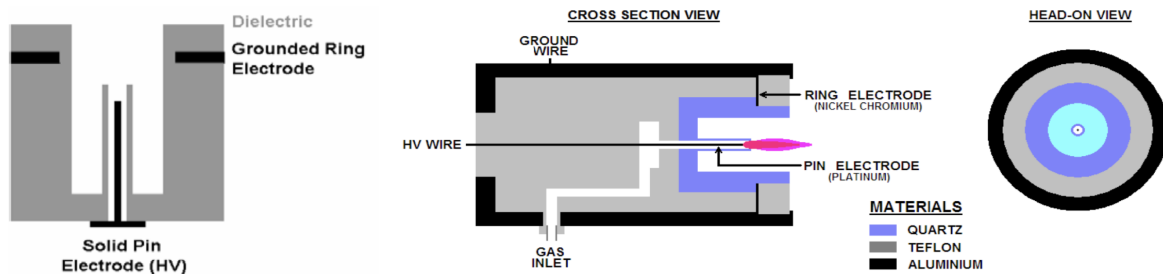


FIGURE 10 – Représentation d'une configuration de décharge plasma générée dans un capillaire par une électrode. L'électrode à haute tension a un diamètre de  $50 \mu\text{m}$ , le capillaire de  $200 \mu\text{m}$  et l'électrode à la masse de  $1 \text{ mm}$  [59].

Des microplasmas peuvent également être générés à l'aide de décharges impulsionnelles, par exemple des décharges nanosecondes répétitives et pulsées (NRP) [60] [61]. Elles sont créées entre deux électrodes distantes de quelques millimètres, dont l'une est portée à haute tension (de l'ordre du kV ou de la dizaine de kV) pendant un temps très court (dizaine de nanosecondes), empêchant le passage à l'arc. L'aspect répétitif permet une accumulation des espèces réactives permettant de maintenir la décharge, d'un diamètre de l'ordre de la centaine de micromètres. Selon le contrôle des paramètres de décharge, elle pourra exister dans 3 régimes différents (corona, glow ou spark), avec un chauffage et une diffusion plus ou moins importante. Ces plasmas possèdent l'avantage d'être énergiquement peu coûteux (de l'ordre de  $1 \text{ mJ}$  par impulsion), la surtension étant appliquée pendant un temps très court, et l'énergie apportée est dirigée vers la chimie de la décharge plutôt que le chauffage (e.g. taux de dissociation de  $\text{O}_2$  de l'ordre de 50 %) [62] [63] [64].



### 1.4.2 Sources "Surface Wave Launcher" (Surfatron)

Les sources à plasma fonctionnant avec des ondes de surfaces ont été développées progressivement à partir des cavités résonnantes à haute fréquence où le plasma était généré dans un tube de verre directement placé dans la cavité, à basse pression (de l'ordre du millibar) [65]. La théorie qui explique ces ondes de surface sera brièvement résumée dans cette partie.

L'équation de dispersion d'une onde électromagnétique dans un plasma infini homogène et non magnétisé s'exprime ainsi [66] :

$$\omega^2 = \omega_p^2 + c^2 k^2 \quad (1.6)$$

Avec  $\omega$ , pulsation de l'onde électromagnétique,  $\vec{k}$  son vecteur d'onde et  $\omega_p$  la pulsation plasma définie dans la partie 1.2.

On peut alors définir une permittivité du plasma  $\epsilon_p = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}$ , ou bien en prenant en compte les collisions électrons-neutres de fréquence  $\nu_{en}$  :

$$\epsilon_p = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\nu_{en})} \quad (1.7)$$

Cette permittivité s'annule pour le cas de l'égalité entre la pulsation de l'onde et la pulsation plasma, soit, à 2,45 GHz, pour une densité électronique critique de  $n_c = 7,4 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ . Pour une densité électronique inférieure à cette densité critique, la partie réelle du vecteur d'onde sera très grande devant sa partie imaginaire d'après l'équation de dispersion, l'onde pourra donc se propager dans le plasma avec une atténuation très faible. A l'inverse, pour une densité électronique supérieure, l'onde sera évanescence, avec une décroissance exponentielle sur sa longueur de pénétration. Cette longueur,  $\delta$ , donnée par l'équation de dispersion, peut se simplifier pour les plasmas denses  $n_c \ll n_e$  :

$$\delta = \frac{c}{\sqrt{\omega_p^2 - \omega^2}} \simeq \frac{c}{\sqrt{\omega_p^2}} \quad (1.8)$$

Lorsque le milieu considéré n'est plus un plasma infini mais semi-infini, et au-dessus duquel se trouve un matériau diélectrique semi-infini de permittivité  $\epsilon_d$ , au niveau de l'interface entre ces deux milieux on aura deux équations de propagation, pour  $\vec{k}_p$ ,  $\vec{k}_d$ , respectivement pour le plasma et le diélectrique, que l'on pourra décomposer entre leurs composantes normales à l'interface, notées  $n$ , et transverses, notées  $t$  [66].

$$k_{pn} = \sqrt{\frac{\omega^2 - \omega_p^2}{c^2 - k_{pt}^2}} \quad (1.9)$$

$$k_{dn} = \sqrt{\frac{\epsilon_d \omega^2}{c^2 - k_{dt}^2}} \quad (1.10)$$

Les conditions aux limites font qu'à l'interface plasma/diélectrique, il y a égalité des deux termes,  $k_{pt} = k_{dt}$ . Une onde micro-onde se propageant depuis le diélectrique vers l'interface avec le plasma pourra, à l'instar d'une onde lumineuse incidente vers un milieu d'indice optique différent, être diffractée ou réfléchié selon l'angle d'incidence. Néanmoins, dans le cas d'un plasma de densité supérieure à la densité critique, une onde ne peut pénétrer dans le milieu plasma, donc toutes les ondes qui devaient se propager dans le plasma en ondes volumiques se retrouvent transmises sans réflexion le long de l'interface, leur amplitude décroissant exponentiellement à la fois dans le milieu diélectrique et le plasma ; c'est ce qu'on appelle, *les ondes de surface*. Cette dernière va donc se propager le long du diélectrique au niveau de son interface avec le plasma, pour fournir de l'énergie à ce dernier. L'énergie est transférée par le champ électrique de l'onde de surface aux électrons du plasma par absorption collisionnelle, avec une puissance proportionnelle à  $\frac{\nu_{ep}}{(\nu_{en}^2 + \omega^2)} E^2$ , avec E la valeur du champ électrique de l'onde de surface.

L'onde incidente vers le diélectrique provient d'une cavité recevant une onde haute fréquence transmise par une ligne coaxiale. Cette cavité est conçue pour être résonnante à la fréquence utilisée, une onde stationnaire s'établira alors en son sein, ne dissipant que peu d'énergie, et pouvant s'échapper par un "gap" en direction du diélectrique, donnant naissance à l'onde de surface. La génération du plasma modifie alors l'impédance de la cavité, problème pouvant être contourné par une adaptation de la fréquence [67] ou de la longueur de la cavité [68]. Néanmoins ces systèmes ne permettent pas la génération d'un volume de plasma important tout en nécessitant des cavités de grand volume et une basse pression du gaz traversant le tube diélectrique [69].

L'idée d'utiliser des cavités résonnantes pour créer des ondes de surface se propageant le long de la colonne de plasma tout en l'ionisant date des années 1970, même si la théorie et la mise en évidence de ces ondes se propageant le long de colonnes de plasmas est antérieure de 10 ans [70]. On trouve trace de deux premiers modèles, avec un prototype qui ne porte pas encore le nom de "surfatron" [71], et un autre modèle baptisé cavité Beenakker [72].

Le surfatron est caractérisé par un "gap" dans la cavité, zone où le champ électrique est fort et peut fuir sous forme d'une onde de surface s'il est traversé d'un tube composé d'un matériau diélectrique. Si un gaz traverse le tube, on peut alors générer un plasma. Le premier système décrit, présenté figure 11, fonctionnait à des fréquences radio (de l'ordre de la centaine de MHz), à basse pression (inférieure au Pascal) dans l'argon pour des puissances de l'ordre de 100 W et une puissance RF réfléchié inférieure à 20 %.

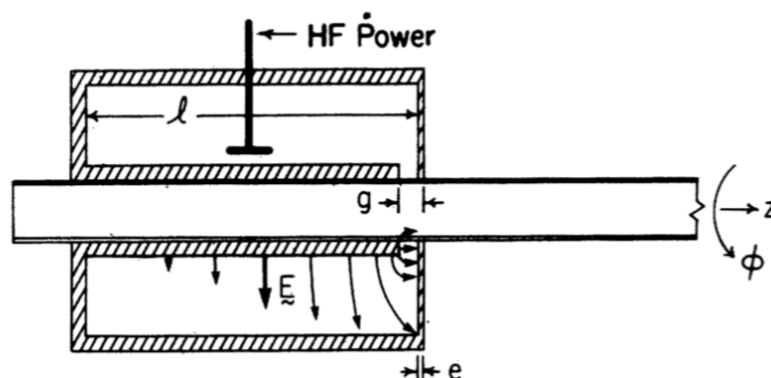


FIGURE 11 – Premier prototype de cavité haute fréquence résonnante pour la génération de plasma [71]. "g" indique l'épaisseur du gap, et "l" la longueur de la cavité.

Le plasma était généré avec cet applicateur dans des tubes de 25 mm de diamètre, et sa longueur augmentait linéairement avec la puissance RF incidente, jusqu'à 1 m de long pour 60 W absorbés. La première cavité Beenackker décrite fonctionnait à 2,45 GHz dans l'argon ou l'hélium à pression atmosphérique, pour des puissances de 20 à 200 W avec une puissance réfléchie de l'ordre de 5 %. Une étude plus approfondie du surfatron, à la fois théorique [73] et expérimentale [74] a permis de l'optimiser pour un fonctionnement à pression atmosphérique et pour atteindre une puissance réfléchie de 0 % en jouant sur les différentes dimensions de la cavité. Il est à noter que ces puissances réfléchies sont mesurées directement par le générateur, un point qui sera discuté au cours de ce manuscrit. La longueur du plasma y est toujours proportionnelle à la puissance incidente, atteignant 50 cm pour 700 W, la température du gaz, mesurée par spectroscopie d'émission, est dans ce cas de 2500 K, et la densité électronique de l'ordre de  $3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ . Il est mentionné que le plasma peut, si le tube est ouvert, s'étendre dans l'air ambiant, sur quelques centimètres, pour donner lieu à une torche à plasma.

Ces premiers prototypes possèdent de multiples avantages, notamment la possibilité de générer des colonnes de plasma globalement homogènes et continues, de grands volumes, stables, confinées sans le besoin d'un champ magnétique extérieur, fonctionnant sur de larges plages de paramètres expérimentaux le tout en l'absence d'une électrode métallique et de ses conséquences sur la pollution du plasma par des vapeurs métalliques et sa durée de vie limitée. Ils furent, dans un premier temps, utilisés comme sources spectroscopiques, détecteurs pour de la chromatographie en phase gazeuse, en observant l'émission d'espèces suspectées présentes dans le milieu gazeux [75] ou bien encore comme source de pompage laser [76].

Diverses variations de ces modèles initiaux, surfatron et cavité Beenakker, furent étudiées ultérieurement pour la génération de plasmas de gaz rares dans des tubes à pression atmosphérique [77]. En particulier, fut répertorié le domaine d'existence et l'émission des plasmas en fonction de la cavité utilisée, du débit de gaz et de sa composition, de la puissance injectée, et du matériau du tube, confirmant la capacité de ces cavités à générer des plasmas dans des conditions très diverses. Un de ces exemples de domaine de stabilité d'une décharge est présenté figure 12.

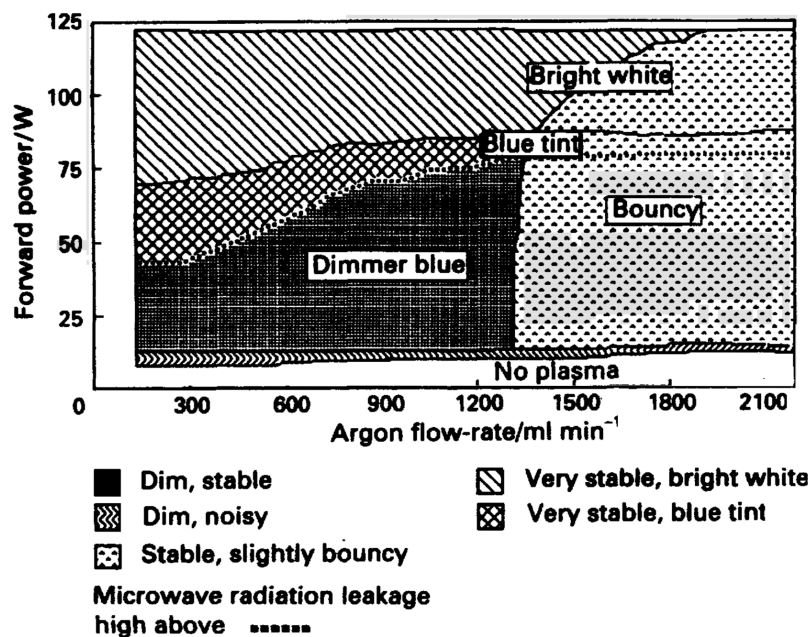


FIGURE 12 – Régime d'existence d'un plasma d'argon à pression atmosphérique généré par une cavité Beenakker dans un tube de quartz de 1 mm de diamètre interne et 6 mm de diamètre externe [77].

L'amélioration des moyens de calculs et de modélisation a permis de trouver des solutions pour résoudre les équations de Maxwell en 3D en tout point à l'intérieur des cavités résonnantes, pour évaluer la valeur du champ électrique local et ainsi concevoir des cavités plus compactes. Ceci a conduit à une optimisation du transfert d'énergie à un plasma micro-onde généré dans un capillaire par un surfatron, le tout avec une cavité n'ayant pas besoin d'un ajustement de ses dimensions ou de la fréquence utilisée [78]. Un exemple de modélisation de champ électrique dans cette structure est présenté figure 13.

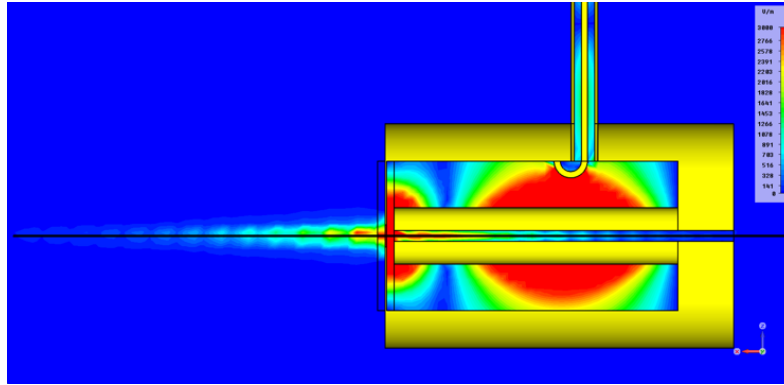


FIGURE 13 – Visualisation du champ électrique dans et autour d'un surfatron, ainsi que de l'onde de surface se propageant dans un capillaire traversant l'applicateur, contenant un plasma [79].

### 1.4.3 Strip-line et microstrip

Les différentes sources plasmas fonctionnant à partir d'ondes de surface ont continué d'évoluer pour donner naissance à l'applicateur strip-line. Son fonctionnement est basé sur le même principe que les cavités surfatron et cavité Beenackker, mais ces dernières requièrent une précision de conception importante (de l'ordre de la fraction de millimètre) étant donné la faible largeur du pic de résonance de ces cavités et sa forte dépendance en fréquence avec les dimensions. Le strip-line a donc été pensé pour être aussi efficace que les surfatrons et Beenackker avec une conception plus tolérante et pouvant être utilisé sur une plus large bande spectrale [80]. Un schéma de ce premier design est représenté figure 14. La principale différence avec les cavités résonnantes précédentes est la présence d'une bande conductrice, le "strip", au centre de la cavité. Cette dernière est percée d'un trou pour laisser passer un tube dans lequel sera générée la décharge ; le diamètre et la position de ce trou sur la surface du "strip" n'ont pas d'influence sur la fréquence de résonance.

Cette configuration permet de générer des plasmas continus dans des tubes diélectriques résistants à l'échauffement traversant la cavité, et ce pour différents gaz porteurs, à la fois à basse et haute puissance (jusqu'au kilowatt) et basse et haute pression (jusqu'à la pression atmosphérique). Un plasma peut ainsi être maintenu à pression atmosphérique dans un tube de quartz de 1 mm de diamètre interne à partir de 3 W dans l'argon et 15 W dans l'hélium [80].

D'autres configurations de strip-line ont vu le jour, le "strip" pouvant être cylindrique ou planaire, tandis que le milieu entre le "strip" et les parois de la cavité peut être constitué d'un diélectrique de permittivité constante au lieu du vide, et le tube de décharge peut être parallèle ou perpendiculaire au "strip" [81]. D'autres modèles ont également vu le jour avec seulement une surface métallique parallèle à la "strip" au lieu de deux. Néanmoins, ces modèles ont un couplage moins efficace en raison des fuites de champ micro-onde depuis la surface ouverte.

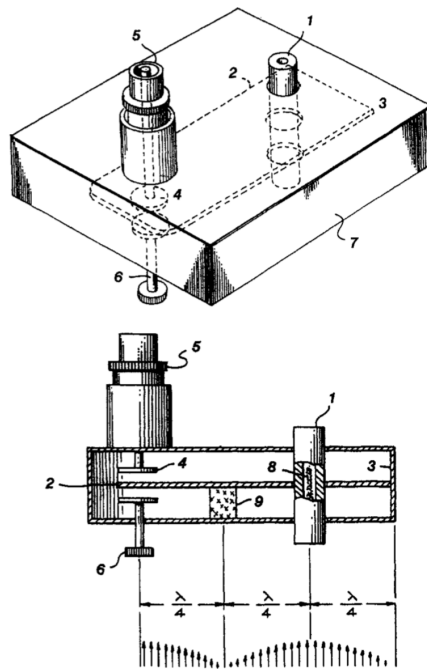


FIGURE 14 – Représentation du premier prototype de strip-line couplé à un connecteur coaxial. La décharge (8) est générée dans le tube (1) par le strip (2) ; l'onde stationnaire s'établit dans la cavité (7), après que l'onde micro-onde ait été rayonnée par l'antenne (4) et transmise par le câble coaxial (5). Un adaptateur d'impédance (6) permet un meilleur couplage de l'onde. [80].

Ces modèles ont ensuite connu une étape de miniaturisation pour donner naissance aux microstrips, qui sont donc des sources de microplasma. Cette configuration, semblable aux plasmas de type DBD, consiste en une électrode recevant l'onde haute fréquence, séparée d'une autre électrode reliée à la masse par un diélectrique. Le plasma est alors généré dans un tube traversant le diélectrique, ou alors directement dans l'air d'un diélectrique creux [82]. Les dimensions de cette configuration sont en général très faibles, la longueur des électrodes étant de l'ordre du centimètre, l'épaisseur de diélectrique les séparant inférieure au millimètre. Cela permet d'atteindre une densité de puissance dans le plasma de l'ordre de quelques centaines de  $\text{kW}/\text{cm}^{-3}$  [83].

Le premier de ces systèmes, présenté figure 15 permettait de générer un plasma à pression atmosphérique à partir de 10 W dans un canal de 1 mm de diamètre dans le diélectrique. Le plasma s'étend sur une longueur de 2-3 cm. Comme d'autres sources plasmas, sa première application fut la détection d'espèces dans l'état gazeux par spectroscopie d'émission.

Une autre configuration, dite "split ring resonator" [85], est basée sur le modèle d'une électrode recevant l'onde haute fréquence séparée de la masse par un diélectrique, mais la première électrode a la forme d'un anneau percé d'une fente, où le champ sera maximal. Le diamètre de l'anneau doit être choisi avec précision : il doit être un multiple de  $\frac{\lambda}{2}$ , avec  $\lambda$  longueur d'onde de fonctionnement, pour que la différence de potentiel soit maximale aux bornes de la fente. Le plasma peut alors être généré directement dans l'air dans l'espace de la fente, ou bien par onde de surface dans un tube traversant perpendiculairement cette dernière. Une modélisation du champ électrique par résolution des équations de Maxwell dans un environnement discrétisé est présentée figure 16. On constate comme attendu un champ électrique maximal au niveau de la fente, mais également un confinement important du champ entre les électrodes plutôt que vers l'extérieur, qui serait une fuite de champ et une perte nette de puissance pour la décharge.

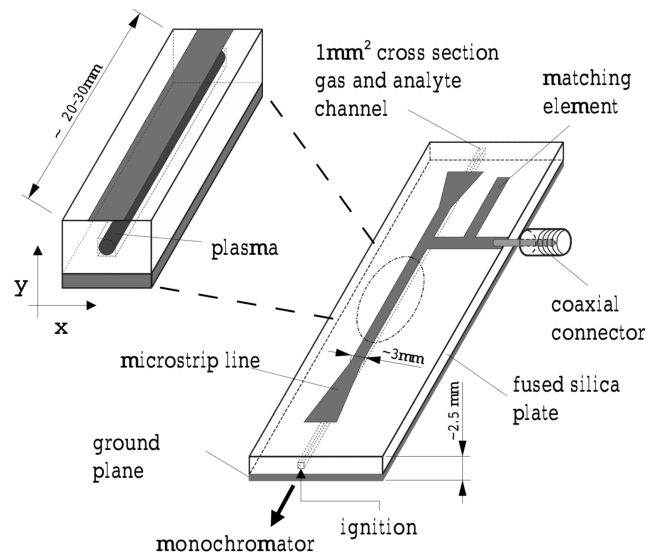
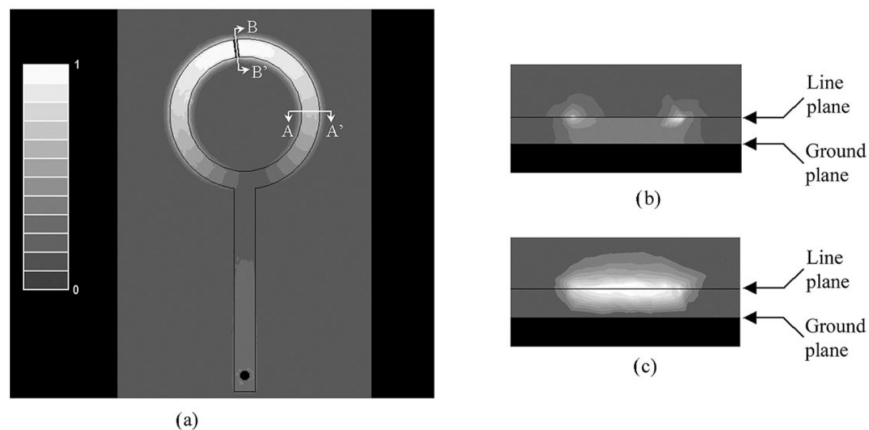


FIGURE 15 – Schéma du premier modèle de microstrip [84].

FIGURE 16 – (a) Modélisation du champ électrique (normalisé) dans un dispositif de Split-ring avec un espace de  $250 \mu\text{m}$  entre l'électrode et la masse. (b) représente la section en coupe de AA', et (c) celle de BB' à l'emplacement de la fente. [85].

Étant donné le très faible volume de plasma créé, inférieur au millilitre, et l'efficacité énergétique de la configuration, un plasma d'argon peut être maintenu avec seulement  $0,5 \text{ W}$  à la fois à pression atmosphérique et à basse pression. Contrairement aux décharges entre deux électrodes "classiques" on ne constate pas d'érosion ni de vapeurs métalliques, l'énergie atteignable par les ions bombardant les électrodes étant trop faible, même si leur densité est relativement importante. Cela permet un fonctionnement de la décharge stable dans le temps [86].

Le développement de ces sources "split ring resonator" s'étant fait en parallèle de celle des applicateurs strip-line, les modèles les plus récents sont une combinaison des deux principes avec un anneau conducteur percé d'un trou, entouré de matériaux diélectriques puis de surfaces métalliques mises à la masse.

### 1.4.4 Plasmas micro-onde dans des capillaires

En corroborant l'ensemble de ces concepts, il est possible de générer des plasmas micro-onde dans des capillaires à l'aide des sources utilisant des ondes de surface, et leur dimension leur permet généralement d'être qualifiés de micro-plasmas. Ils cumulent les avantages des plasmas générés par onde de surface, à savoir absence d'électrode, reproductibilité et facilité de génération, ainsi que ceux des microplasmas, c'est à dire une densité de puissance importante en raison du faible volume de plasma, la puissance injectée restant faible et accessible (de l'ordre du watt ou de la dizaine de watts typiquement). Dans de telles configurations, le rapport (volume de plasma)/(surface des parois en contact) sera faible, les réactions aux parois seront donc importantes. Les ondes de surface transmettent leur énergie sur une épaisseur de plasma  $\delta$  (voir partie 1.4.2), qui, pour un plasma de densité électronique de l'ordre de  $10^{14} \text{ cm}^{-3}$ , est de l'ordre de 0,5 mm. Étant donné le faible diamètre de la colonne de plasma, du même ordre de grandeur voire inférieur à  $\delta$ , la puissance micro-onde se transmet de façon globalement homogène dans un disque de la colonne de plasma, et peut donc atteindre le coeur du plasma (sur l'axe du capillaire).

Un certain nombre de plasmas présentés précédemment peuvent être qualifiés de plasmas micro-onde dans des tubes, mais leur diamètre interne, de l'ordre du centimètre, ne permet pas de les qualifier de "capillaires". Ainsi il sera ici peu fait mention du fonctionnement de ces décharges mais plutôt des caractéristiques particulières de telles configurations, de leurs applications, des diagnostics effectués et des résultats fondamentaux obtenus sur cette famille de plasmas. Parmi les points communs de toutes les études qui seront présentées ci-dessous, et spécifiques à ces configurations de plasmas micro-onde dans des capillaires, on peut notamment citer l'importante densité de puissance (supérieure à  $10^4 \text{ W.cm}^{-3}$ , contre au plus des densités de l'ordre du  $\text{kW.cm}^{-3}$  pour d'autres méthodes de génération de plasmas dans des capillaires comme les DC ou les DBD) et le fait que l'applicateur micro-onde doit être conçu spécifiquement pour la génération de plasma dans des capillaires de faible diamètre, ce qui implique une modélisation 3D du champ électrique au sein de la cavité de l'applicateur pour en déterminer les dimensions adaptées. Ces décharges possèdent naturellement les diverses propriétés relatives aux plasmas micro-onde : absence d'électrode et donc d'impuretés métalliques, fonctionnement continu et stationnaire générant un flux constant d'espèces réactives, faible puissance nécessaire à la génération du plasma et fort degré d'ionisation ( $\sim 10^{-3}$ ).

La génération de plasmas micro-onde par un surfatron a récemment été rendue possible dans des capillaires de très faibles diamètres, comme dans des fibres optiques creuses "kagomé" de  $60 \mu\text{m}$  de diamètre interne, comme présenté figure 17 tirée de [79]. Dans cet exemple, un plasma d'argon de plusieurs centimètres de long est généré grâce à un surfatron et une puissance micro-onde à 2,45 GHz incidente de 45 W, à basse pression (1 mbar) ; cette décharge est stable temporellement, et ne cause pas de dommages à la fibre optique dans laquelle elle est générée. De par la composition du matériau et du très faible diamètre du capillaire, on constate une séparation des charges à proximité de la paroi interne : les électrons plus mobiles vont se fixer à la paroi, à l'inverse des ions qui restent plus dans le coeur du plasma ; cette non-neutralité locale dans cette gaine crée un champ électrique qui inverse les effets, les ions étant accélérés vers la paroi, et les électrons décélérés. Cette décharge a également été étudiée par une modélisation 3D, donnant la valeur du champ électrique, la densité des électrons et des ions  $\text{Ar}^+$ , ainsi que la température du gaz. Malgré la très grande densité de puissance (de l'ordre de  $0,1 \text{ MW.cm}^{-3}$ ) cette température de gaz est donnée à la fois numériquement et expérimentalement (par spectroscopie d'émission de OH) comme comprise entre 950 et 1600 K (selon la valeur de densité électronique utilisée pour le calcul), la modélisation permettant d'en avoir le profil radial.

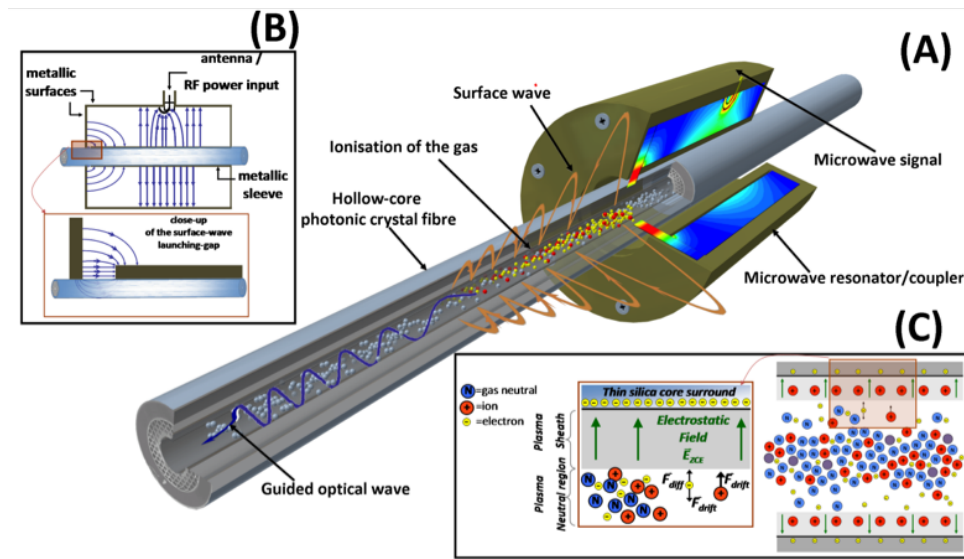


FIGURE 17 – Schéma de la configuration pour la génération d'un plasma d'argon micro-onde par un surfatron dans une fibre kagomé de 60  $\mu\text{m}$  de diamètre interne [79].

Les plasmas micro-onde dans des capillaires ont été utilisés pour générer des décharges basse pression par un surfatron dans des mélanges  $\text{O}_2/\text{N}_2$  afin d'étudier le rôle de l'oxygène atomique et du rayonnement UV pour des applications de stérilisation [41]. Seuls les effets de la post-décharge du plasma étaient étudiés ici. Le plasma était généré dans un tube de quartz de 6 mm de diamètre interne, et à une puissance de 100 W. Les résultats ont conclu sur un effet de stérilisation maximal pour de faibles taux d' $\text{O}_2$ , là où le flux d'UV est maximal, indiquant leur prédominance pour les effets recherchés.

Une étude de différents diagnostics spectroscopiques sur des mélanges  $\text{Ar}/\text{H}_2$  (jusqu'à 0,3 %) à pression atmosphérique pour des puissances comprises entre 50 et 100 W a permis de mesurer des paramètres du plasma [87]. Ici, le plasma est généré par un surfatron dans un capillaire de 1 mm de diamètre interne et 2,5 mm de diamètre externe. En particulier, des diagnostics de diffusion Rayleigh et Thomson ainsi que de l'élargissement Stark et des mesures de spectroscopie d'émission, résolus radialement sur la décharge, ont permis d'obtenir une température électronique de 1,2 eV (1,7 eV avec  $\text{H}_2$ ); une température de gaz maximale de 1700 K (1400 K en présence de dihydrogène); une densité électronique maximale de  $2,4 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$  ( $1,0 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$  avec dihydrogène). Les différents diagnostics donnent des résultats très proches.

De tels plasmas ont également été employés pour de l'assistance à la combustion [88]. Pour cela, un réacteur en forme de "croix" est utilisé, d'un des "bras" arrive un plasma d'argon généré par un surfatron, des deux bras perpendiculaires un mélange  $\text{CH}_4/\text{O}_2/\text{Ar}$ , et du dernier bras on allume une flamme. Le plasma permet l'autoallumage de la flamme à partir de 40-45 W pour une richesse de carburant de 0,8 (une valeur de 1 correspondant à la stoechiométrie entre le carburant et l'air). En revanche, une fois la flamme allumée, elle ne disparaît pas malgré une baisse de puissance en dessous de celle nécessaire pour son allumage, montrant une stabilisation de la flamme par le plasma, pouvant descendre jusqu'à 10 W, comme montré figure 18.



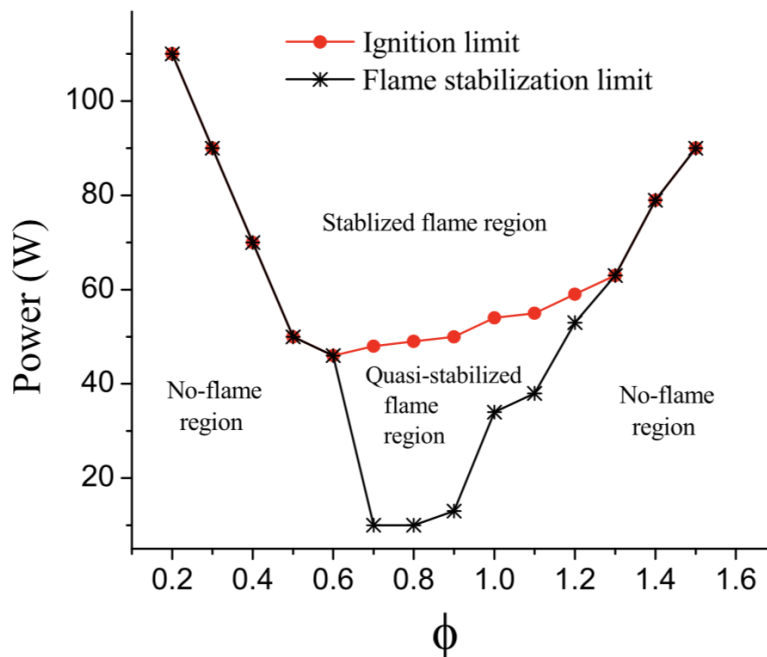


FIGURE 18 – Puissance plasma nécessaire pour l’allumage de la flamme et sa stabilisation en fonction de la richesse [88].

Une combinaison de simulations et de mesures de cavity ring-down spectroscopy ont permis de déterminer (pour une richesse de 0,7 et 2 mm à la sortie du réacteur) une température de flamme d’environ 2300-2400 K, quelle que soit la puissance plasma, et une densité de OH de  $1,4 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ . Il est à noter que OH est totalement absent lorsque la puissance plasma est insuffisante pour allumer la flamme, et que sa densité décroît avec la puissance, semblant indiquer l’importance du rôle de OH dans la stabilisation de la flamme.

L’effet du confinement ou non d’une décharge d’argon micro-onde à pression atmosphérique générée par un surfatron fut également étudiée par spectroscopie d’émission [89]. Elle a mis en évidence que dans le cas d’une décharge confinée dans un tube de quartz de 3 mm de diamètre interne, 5 mm de diamètre externe, l’augmentation de puissance permet un allongement du plasma (avec un régime linéaire, montré figure 19) sans modifier les propriétés de la colonne préexistante. A l’inverse, dans le cas d’un plasma généré directement dans l’air ambiant, l’augmentation de puissance n’a pas forcément pour conséquence l’allongement de la colonne de plasma, mais bien une augmentation de la densité électronique et de la température du gaz, à l’inverse de la température électronique qui décroît.

Différents diagnostics spectroscopiques ont permis de mesurer une température de gaz quasi-constante le long de la colonne, et d’environ 850 K pour 150 W de puissance micro-onde incidente, contre 450 K pour 20 W (cas non confiné, débit de 2,5 L/min d’argon) par émission de OH. L’élargissement Stark donne un profil de densité électronique globalement décroissant le long de la colonne, avec un maximum de  $5,0 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  pour 100 W, autres conditions inchangées. Pour des conditions fixes, on observe une tendance similaire entre la densité électronique et la densité du métastable d’argon  $1s_5$ , mesurée par méthode d’autoabsorption : pour des débits plus importants, le maximum de densité de ces espèces se décale simultanément plus loin dans la colonne de plasma, avec un pic d’argon métastable de  $3,0 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ , 1 mm après la sortie du surfatron, pour 30 W, cas non confiné et débit de 5 L/min. Cela laisse supposer un rôle important de ce métastable dans le processus d’ionisation.

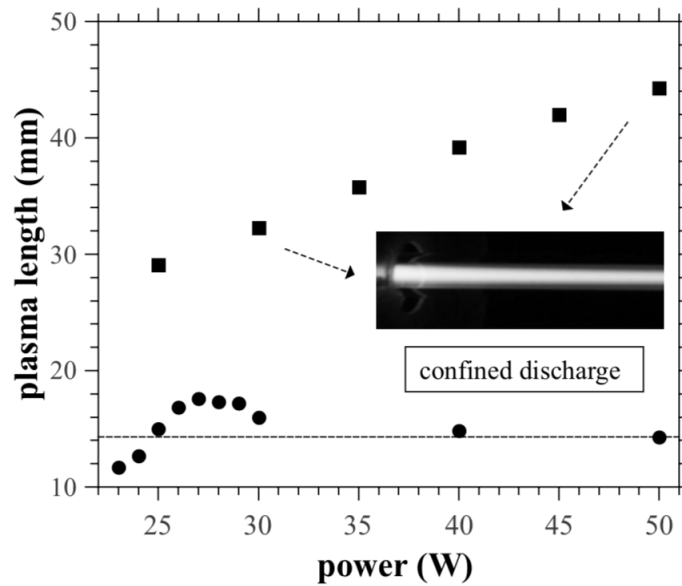


FIGURE 19 – Longueur de plasma en fonction de la puissance micro-onde pour un flux d'argon de 2,5 L/min dans deux cas : plasma confiné par un tube de 3 mm de diamètre interne (carrés) ou généré dans l'air ambiant (cercles) [89].

A partir de ce même dispositif, dans lequel on ajoute du gaz moléculaire (mélange Ar/O<sub>2</sub>, avec des fractions d'O<sub>2</sub> de l'ordre de 2 %), des mesures de densités d'ions par spectrométrie de masse, furent réalisées, ainsi qu'une étude numérique par un modèle cinétique 0D basé sur la résolution de l'équation de Boltzmann et des termes de création/perte des différentes espèces (argon et une partie de ses états excités/ionisés et électrons) [90]. L'ajout de gaz moléculaire ne change que peu les valeurs de densité électronique mesurées ( $2,7 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  sans O<sub>2</sub>;  $3,4 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  avec, 4 mm après la sortie du tube) mais permet d'avoir un profil longitudinal de densité électronique constant, là où il était légèrement croissant en s'éloignant de l'applicateur en argon pur. Sur la production d'argon métastable, l'ajout d'O<sub>2</sub> montre également un effet de "stabilisation" le long de la colonne, mais aussi une diminution importante (jusqu'à un facteur 6) de la quantité de métastables produits. Dans ce cas, les métastables perdent alors leur rôle prédominant dans la création d'espèces chargées.

Sur cette même configuration (sans ajout de gaz moléculaire dans le mélange gazeux), un spectromètre de masse permet d'identifier les espèces ioniques en présence. On constate une prédominance des ions Ar<sup>+</sup> sur toute la longueur de la colonne de plasma, qui contribue donc majoritairement à la formation d'autres espèces ioniques mesurées (Ar<sub>2</sub><sup>+</sup>, H<sub>2</sub>O<sup>+</sup>, N<sub>2</sub><sup>+</sup>, O<sub>2</sub><sup>+</sup>, ArH<sup>+</sup> ...) provenant de la présence d'impuretés d'air dans le mélange.

Une décharge majoritairement constituée d'argon produit également des états excités non radiatifs, dits "métastables". Ces derniers peuvent être mesurés par spectroscopie d'absorption par diode laser, dite TD:LAS (Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy) pour des plasmas RF [91], ou des microplasmas [92]. Une étude fut réalisée sur des plasmas micro-onde dans un capillaire (2 mm de diamètre interne, 6 mm externe) générés avec des puissances incidentes de l'ordre de 300 W [93]. Les résultats montrent que la densité d'argon métastable (état 1s<sub>5</sub>) reste globalement constante le long de la colonne (jusqu'à 15 cm après le centre de la décharge) et est comprise entre 1 et  $2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ , dans le cas d'une décharge d'argon pur, à un débit de 0,5 L/min. L'ajout de fractions de gaz moléculaire dans le mélange (N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> ou H<sub>2</sub>, jusqu'à 1 %) ne modifie pas l'allure du profil, mais les densités absolues de métastables mesurées

décroissent jusqu'à un facteur 5 ou 10 selon le gaz et sa fraction, indiquant une importante réactivité de ces états métastables avec le gaz moléculaire. Une étude énergétique a également montré que, dans le cas de mélange gazeux, une très large partie de la puissance transférée au plasma est en fait transmise à cette faible fraction de gaz moléculaire.

La mesure de la température du gaz, classiquement obtenue par mesure de la température rotationnelle de OH ou  $N_2(C)$ , suppose que ces températures soient à l'équilibre avec celle du gaz. Un moyen de passer outre cette hypothèse est de mesurer l'élargissement Van der Waals de raies d'argon, donnant accès à cette valeur de  $T_{gaz}$ . Un dispositif expérimental générant un plasma avec un surfatron à 2,45 GHz, dans un capillaire de 1 mm de diamètre interne, 4 mm de diamètre externe, à 13 mbar, avec un flux d'argon de 250 ml/min, a permis de réaliser cette mesure [94]. Les résultats obtenus donnent des résultats différents selon la raie d'argon utilisée : 800, 1100 et 1070 K pour respectivement des raies à 522,1 ; 549,6 et 603,2 nm (en supposant la température de gaz globalement homogène le long de la colonne) ce qui est globalement inférieur aux résultats obtenus pour la température rotationnelle de OH (1300-1500 K). Dans certains cas, l'équilibre rotation-translation n'est donc pas atteint.

Une étude de l'aspect hydrodynamique des plasmas dans des capillaires a également été menée à bien [95]. Ici le plasma d'argon est généré par un surfatron dans des capillaires de diamètres variés (180 à 690  $\mu\text{m}$  de diamètre interne, 1400  $\mu\text{m}$  de diamètre externe pour tous) pour des puissances de 10 à 100 W et à basse pression. Les paramètres plasmas, température de gaz, et densité électronique furent obtenus par spectroscopie d'émission. Pour modéliser l'aspect "fluide" du plasma, les pressions en amont et aval du capillaire furent mesurées par des jauges de pression, ainsi que la température externe du capillaire par une caméra infrarouge.

Par mesure d'émission de OH, la température du gaz montre un profil décroissant en s'éloignant du gap du surfatron, avec un pic à 1200 K au plus proche de ce dernier. De l'autre côté, la température externe du tube est mesurée à 500 K au maximum, et présente un profil similaire. De la même façon, on mesure par élargissement Stark un pic de densité électronique de  $6,0 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  près du gap, puis un profil décroissant. On constate qu'en amont du capillaire, l'allumage du plasma crée une importante élévation de la pression, supérieure à 1 bar pour les capillaires les plus fins (180  $\mu\text{m}$ ) et les débits les plus importants (de l'ordre de 500 ml/min). Le débit étant conservé le long de l'écoulement, l'allumage du plasma, chauffe le gaz neutre et crée ainsi un "bouchon" dans l'écoulement, le gaz doit alors accélérer pour compenser la baisse de densité. Une modélisation de ce phénomène le long du capillaire, à partir des données de température et de pression est présentée figure 20.

Des études spectroscopiques sur des plasmas d'air à basse pression (3 mbar) générés pour des puissances micro-onde de l'ordre de 100 W par un surfatron à 2,45 GHz et dans des capillaires de 690  $\mu\text{m}$  de diamètre interne furent réalisées [96]. Par spectroscopie d'émission, on a accès aux densités absolues de différentes espèces (atomiques, ioniques et moléculaires) aux températures rotationnelle et vibrationnelle de  $N_2(C)$ , la première donnant la température du gaz, sous l'hypothèse que les deux soient à l'équilibre. On mesure des valeurs de densités absolues maximales de  $1,3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ ,  $7,4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ ,  $3,6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ ,  $2,7 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  et  $7,4 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$  respectivement pour  $N_2(C)$ ,  $N_2(B)$ ,  $N_2^+(B)$ ,  $N(3p^4S)$  et  $O(3p^5P)$ . Ces densités présentent une tendance croissante avec la puissance, et décroissante avec la position axiale du capillaire. Les valeurs de température rotationnelle (et donc température du gaz) et vibrationnelle de  $N_2(C)$  sont respectivement comprises dans l'intervalle 700-1000 K et 7000-10000 K ; la différence d'un ordre de grandeur entre ces valeurs montrant que ce type de plasma est hors-équilibre thermodynamique, et que les mécanismes de transferts d'énergie vibrationnelle vers rotationnelle sont relativement faibles.

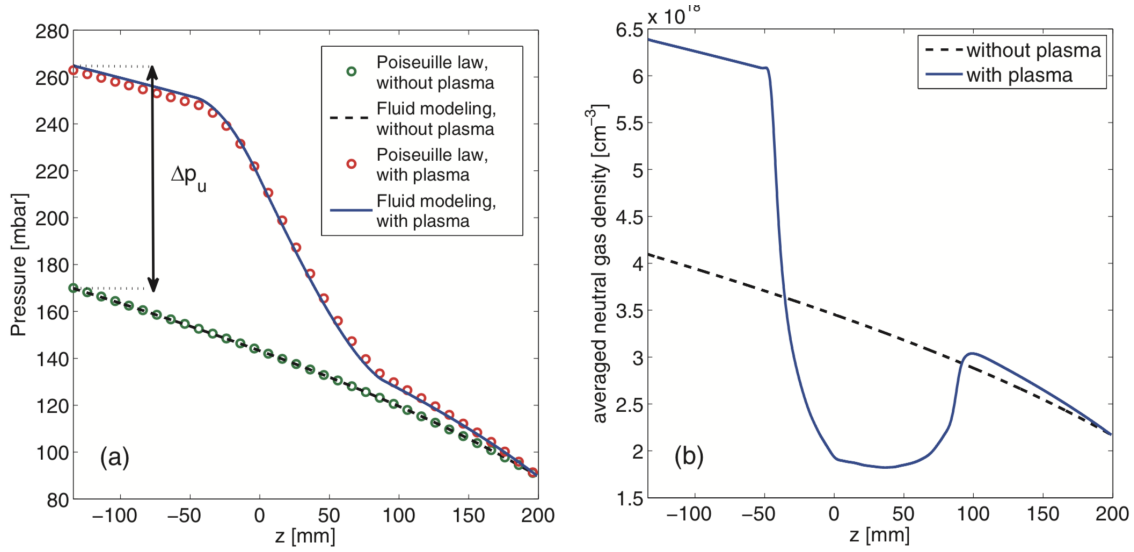


FIGURE 20 – Modélisation de la pression et de la densité le long de l'axe du capillaire, avec et sans plasma, pour un capillaire de  $690 \mu\text{m}$  de diamètre interne, un débit d'argon de  $43 \text{ ml/min}$ , et une puissance micro-onde de  $55 \text{ W}$  [95].

Cette décharge particulière a également été modélisée par un code 0D [97] utilisant les résultats expérimentaux de densité électronique et température de gaz, en simulant (en résolvant l'équation de Boltzmann puis la composition chimique du système) les densités de nombreuses espèces, ioniques ( $\text{N}^+$ ,  $\text{N}_2^+$ ,  $\text{O}^+$ ,  $\text{O}_2^+$ ,  $\text{NO}^+$  ...), atomiques ( $\text{O}(^3\text{P})$ ,  $\text{N}(^4\text{S})$ ,  $\text{N}(^2\text{D})$ , ...) moléculaires ( $\text{N}_2(\text{X}, v=0-59)$ ,  $\text{N}_2(\text{A-B-C})$ ,  $\text{O}_2(\text{X-A-B})$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{NO}(\text{X-A-B})$  ...) et les électrons. Ce modèle prédit une très forte dissociation de  $\text{O}_2$ , à l'inverse de  $\text{N}_2$ , l'espèce atomique majoritaire étant  $\text{O}(^3\text{P})$ , pour une densité de l'ordre de  $1-2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ , tandis que la densité calculée de l'état  $\text{N}(^4\text{S})$  (l'état atomique de N majoritaire) est de  $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ . Le modèle prédit également une forte concentration de NO produit (à l'inverse de  $\text{O}_3$ ) provenant principalement de recombinaison aux parois de l'ion  $\text{NO}^+$  (ion majoritaire avec  $\text{O}_2^+$ , ayant des densités de l'ordre de  $10^{12} \text{ cm}^{-3}$ , très proche de celle des électrons). Ces résultats numériques sont globalement en accord avec ceux obtenus expérimentalement, avec néanmoins une sous-estimation numérique de la densité des états excités  $\text{N}_2(\text{C})$  et  $\text{N}_2(\text{B})$  par rapport aux valeurs obtenues par spectroscopie d'émission.

## 1.5 Questions ouvertes sur les plasmas micro-onde dans des capillaires

La partie précédente a présenté une revue non exhaustive des connaissances acquises à ce jour sur les plasmas micro-onde générés dans des capillaires. La corrélation de plusieurs facteurs, à savoir le développement relativement récent des technologies permettant de générer des décharges dans des tubes de diamètre interne si faible, la configuration particulière de ces plasmas présentant des défis pour leur caractérisation complète, et la prise en compte traditionnelle d'approximations pour différents paramètres de ces plasmas, il reste naturellement plusieurs questions à ce jour non-répondues concernant ce type de plasma particulier.

En premier lieu, ces types de plasmas possèdent une large gamme de paramètres expérimentaux (puissance et fréquence micro-onde, type d'applicateur, composition et débit de gaz, pression ...) donnant un domaine

d'existence de la décharge ainsi que des paramètres macroscopiques (volume de plasma, différentiel de pression créé en amont, densité de puissance) propres à chaque configuration, qui nécessitent d'être caractérisés. En particulier, l'étude de l'optimisation du couplage de l'applicateur micro-onde est un enjeu important, afin d'avoir une meilleure connaissance de la puissance injectée dans la décharge, et pour avoir la possibilité de générer des plasmas dans des conditions moins favorables.

Également, les faibles dimensions radiales de ces plasmas conduisent à des effets aux parois des capillaires importants, ainsi qu'à des gradients de températures extrêmes. La paroi externe du capillaire, accessible sans perturbation directe du plasma, pourrait être un point d'application pour contrôler divers paramètres de la décharge, notamment par un couplage thermique, ce qui à ce jour, n'a jamais été étudié.

La question du transfert de puissance micro-onde au sein du plasma est également une question toujours ouverte. Traditionnellement, seule la mesure de la puissance des micro-ondes incidentes et réfléchies est réalisée, sans considérer les divers termes de pertes pouvant intervenir dans le système, donnant lieu à une surestimation de la puissance réellement couplée au plasma et de l'efficacité des coupleurs, compliquant la modélisation des phénomènes physiques microscopiques de la décharge. La réalisation d'un bilan de puissance complet et précis, encore jamais réalisé à ce jour sur de telles décharges, est donc nécessaire.

Finalement, la connaissance de la réactivité du plasma, en particulier la création d'espèces réactives ainsi que les paramètres plasma (densité électronique et température du gaz notamment) sont autant de paramètres à déterminer afin de caractériser les réactions ayant lieu au sein de la décharge. La connaissance de ces paramètres permet notamment de les confronter à des modèles numériques, ou bien de fournir des données nécessaires aux calculs de modélisation. En particulier, la mesure de ces paramètres microscopiques a d'ores et déjà été réalisée pour diverses configurations expérimentales, mais étant donné les très faibles dimensions radiales du système, ces études expérimentales sont lacunaires sur la résolution radiale de ces mesures, donnant donc des résultats moyennés sur le diamètre de la décharge ; la réalisation de mesures résolues radialement permettrait donc d'affiner la compréhension des échanges se produisant au sein de la décharge.

Le contenu de ce manuscrit apportera des réponses à ces questions encore ouvertes ; pour cela, de multiples études expérimentales seront réalisées sur une configuration particulière permettant de générer des plasmas micro-onde dans des capillaires, qui sera décrite dans le chapitre 2.

# Dispositif expérimental

---

Pour la réalisation de cette thèse, différents dispositifs expérimentaux, s'inspirant d'autres exemples de la littérature [95] [96] [98], ont été conçus et mis en place.

L'objectif était d'avoir des configurations relativement simples, permettant de générer des plasmas micro-onde (MO) dans des capillaires, de quelques millibars à la pression atmosphérique, dans des gaz purs ou des mélanges de gaz moléculaires avec contrôle d'échanges thermiques externes, et de pouvoir réaliser de multiples diagnostics, allant des mesures de températures en surface du guide d'onde et du gaz à la sortie du capillaire, jusqu'aux diagnostics spectroscopiques "Tunable diode laser absorption spectroscopy" (TD:LAS) et "Optical Emission Spectroscopy" (OES) pour caractériser le gaz et le plasma, notamment à travers des mesures de densités d'espèces (électrons, argon métastable) et la température du gaz.

## 2.1 Génération du plasma micro-onde dans des capillaires

### 2.1.1 Applicateurs pour la génération du plasma

Le plasma est généré et alimenté par un générateur micro-onde état solide (SAIREM GMS200WSM56) ajustable en puissance (de 0 à 200 W, par pas de 1 W) et en fréquence (de 2400 à 2500 MHz, par pas de 0,1 MHz). Le générateur permet également d'afficher la puissance réfléchie, avec une résolution de 1 W. La réponse du générateur fournie par le constructeur à 2,45 GHz et pour 50 W de puissance consigne est tracée sur la figure 21. La largeur à mi-hauteur est de 0,4 MHz, supérieure au pas en fréquence, mais permettant une sélectivité importante par rapport à la largeur totale de la bande accessible (100 MHz).

Le signal est ensuite transmis par un câble coaxial de 1,5 m de long, d'impédance  $50 \Omega$ , afin d'avoir la même impédance le long de la ligne et donc un couplage optimisé. Le signal est alors transmis à différents composants coaxiaux, à savoir un coupleur bi-directionnel permettant de mesurer la puissance micro-onde, ainsi que des connexions coaxiales pour transférer la puissance micro-onde à un applicateur plasma. Ces éléments, coupleur bi-directionnel, connexions et applicateur, dont les spécifications seront données ultérieurement, seront regroupés sous l'appellation « éléments de couplage micro-onde ».

On dispose, pour générer le plasma, de plusieurs applicateurs conçus à partir de simulations électromagnétiques résolvant les équations de Maxwell en 3D (par CST Microwave Studio) dans toute la géométrie considérée. Un exemple d'une de ces simulations, pour le cas du surfatron, est présentée figure 22.

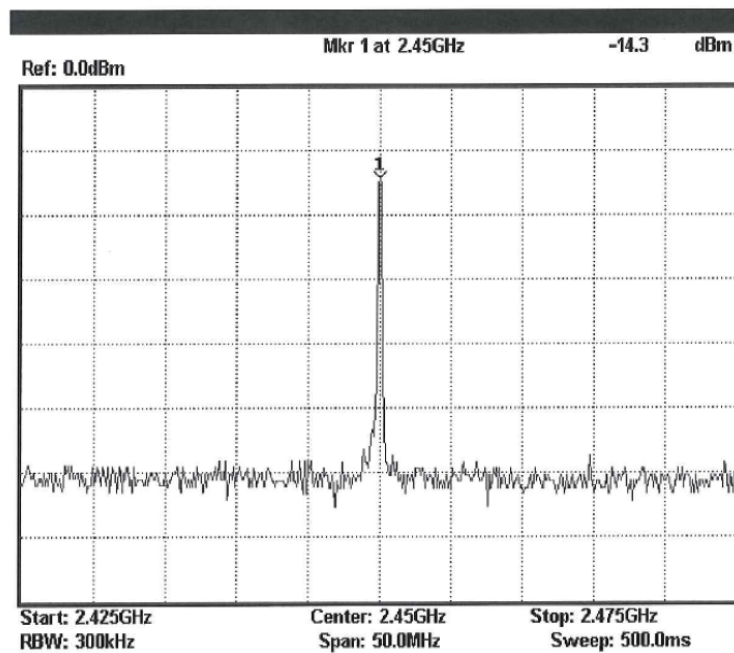


FIGURE 21 – Réponse spectrale du générateur micro-onde pour une puissance consigne de 50 W à 2,45 GHz, donnée par le constructeur.

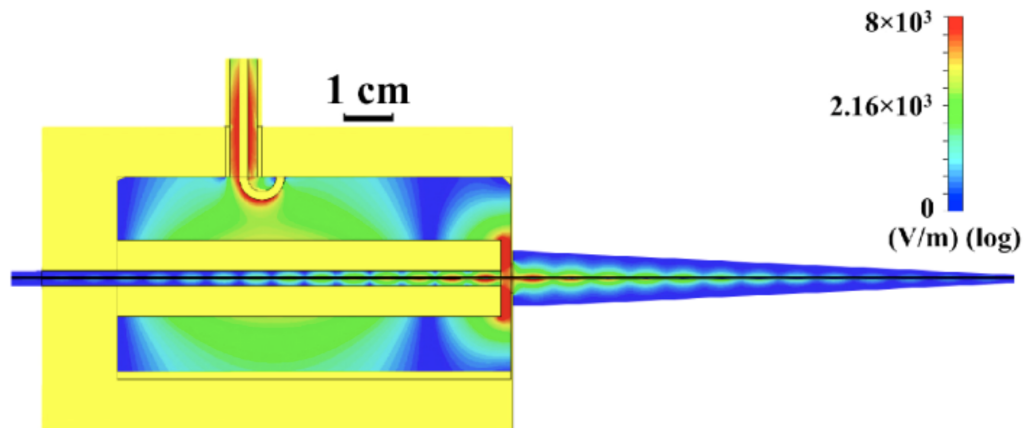


FIGURE 22 – Modélisation 3D du champ électrique à l'intérieur de l'applicateur surfatron d'après [79].

Les applicateurs utilisés sont conçus pour avoir un pic de résonance dans la plage d'émission du générateur, et sont inspirés des modèles décrits dans la partie 1.4.2 et 1.4.3 et leur réponse en réflexion a été mesurée par un analyseur de réseau (Agilent 8714ET) pour confirmer ou non les simulations. Tous ces applicateurs sont percés d'un trou de 3 mm de diamètre sur toute leur longueur pour permettre le passage du capillaire.

- Le premier est un applicateur de type "strip-line" circulaire. Il est composé d'un anneau en cuivre de quelques millimètres d'épaisseur et d'environ 40 mm et 20 mm de diamètres externe et interne respectivement. Cet anneau est pris en sandwich dans un cylindre plein composé de matériau diélectrique (téflon) de diamètre 70 mm et d'épaisseur 12 mm. Ce dernier est enfin encastré à son tour entre deux disques métalliques (inox) donnant un ensemble d'environ 100 mm de diamètre et d'épaisseur 24 mm. L'ensemble est finalement enfermé dans un cylindre en inox, pour ne pas laisser apparent les éléments en téflon, pouvant résulter en des fuites de champ micro-onde, point discuté ultérieurement.

La zone où le champ sera le plus intense, et donc le "centre" du plasma, est située au milieu de l'applicateur, une partie qui n'est donc pas optiquement accessible. Cette zone inaccessible optiquement correspond à une longueur de capillaire de 2,4 cm, soit l'épaisseur totale de l'ensemble. Une représentation "ouverte" de cet applicateur est présentée figure 23.

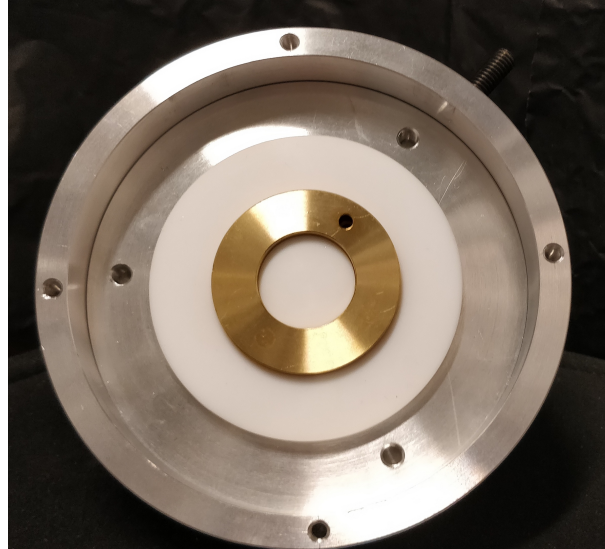


FIGURE 23 – Représentation de l'applicateur strip-line utilisé, sans disque métallique ni pièce de téflon sur une moitié de son épaisseur.

- Le second est un surfatron en aluminium. Il est composé d'un cylindre interne de diamètre 20 mm et partage son axe avec un cylindre externe de diamètre interne 40 mm et de longueur 70 mm. Ces deux cylindres sont fermés à leur extrémité par un disque. La longueur du cylindre interne est plus courte de 1 mm par rapport au cylindre externe, ce qui laisse donc un "gap" de cette même longueur, lieu où le champ électrique sera le plus intense, et donc où le plasma pourra être généré. Contrairement au strip-line, sa zone de plus fort champ est accessible optiquement, mais en revanche, seule une partie du plasma sera visible, en aval de l'applicateur, l'autre partie étant cachée par ce dernier (sur toute sa longueur, soit 7 cm); en pratique, la décharge plasma ne s'étendra jamais au-delà de cette longueur, donc seule la partie en aval de l'applicateur sera visible. Cet ensemble est ensuite fermé par un autre disque à proximité du gap. Une représentation "ouverte" de cet applicateur est présentée figure 24.

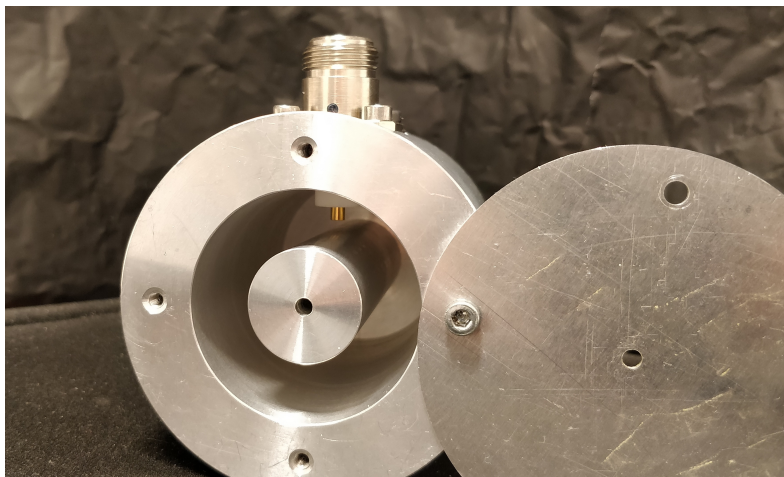


FIGURE 24 – Représentation de l'applicateur surfatron utilisé, sans disque métallique au niveau du "gap".



On dispose également d'un autre modèle de surfatron, ajustable. Les dimensions sont identiques au précédent, excepté une longueur totale plus grande (95 mm) mais le "fond" de la cavité peut se déplacer le long du cylindre interne, modifiant sa longueur et permettant de déplacer la position du pic de résonance. Cette étape permet un ajustement "grossier" de la fréquence de résonance de l'applicateur, qui peut se déplacer sur une distance spectrale de l'ordre de la centaine de MHz, pour qu'elle se situe dans la gamme spectrale atteignable par le générateur. On peut alors réaliser un ajustement "fin" à partir de la variation de fréquence du générateur pour se situer précisément sur le pic de résonance. Une photographie de cet applicateur est présentée figure 25.

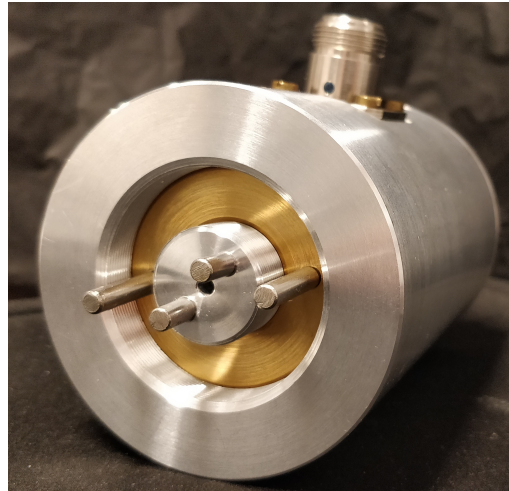


FIGURE 25 – Représentation de l'applicateur surfatron ajustable utilisé, au niveau de partie "déplaçable".

La réponse en fréquence du strip-line, avec et sans le revêtement métallique extérieur (respectivement "fermé" et "ouvert") ainsi que celle du surfatron ajustable, sont mesurées afin d'obtenir leur efficacité de couplage. Cette grandeur, définie comme le rapport  $\frac{P_{\text{inp}} - P_{\text{ref}}}{P_{\text{inp}}}$  est tracée pour le cas de ces 3 applicateurs, en l'absence de plasma, sur la figure 26.

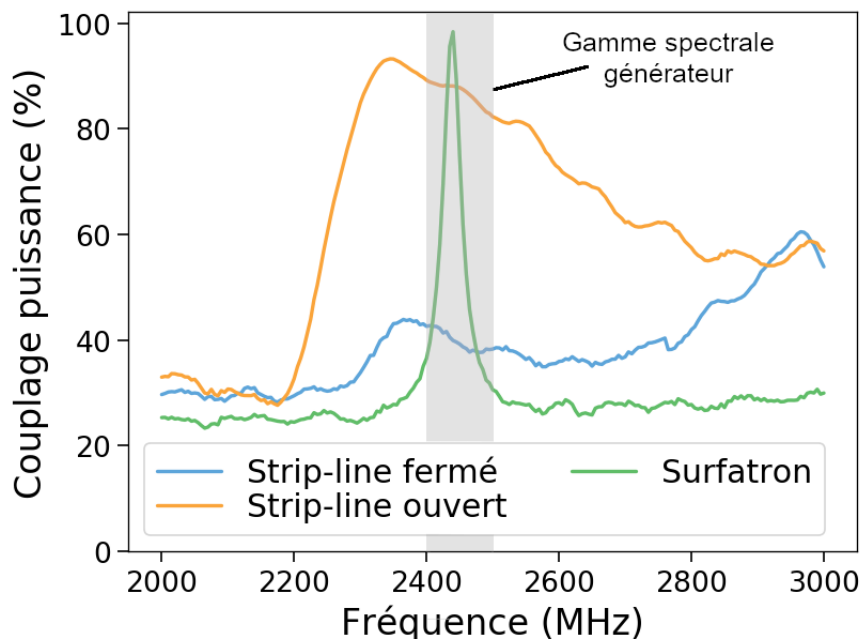


FIGURE 26 – Efficacité de couplage des applicateurs surfatron ajustable et strip-line, avec et sans revêtement métallique extérieur ("fermé" et "ouvert"), mesurée par analyseur de réseau.

Pour le cas du strip-line, en configuration "ouverte", on atteint un maximum de l'ordre de 90 % de couplage, mais ce maximum est hors de la gamme atteignable par le générateur, avant 2,4 GHz. Sur toute la plage spectrale atteignable par le générateur micro-onde, l'efficacité de couplage reste cependant élevée, de l'ordre de 80-85 %. En configuration "fermée", on constate que l'efficacité de couplage chute, à cause du revêtement métallique qui modifie complètement la résonance, et qui n'est pas prise en compte lors des modélisations. Le maximum sur la gamme atteignable par le générateur est ici à 40 %. Cependant cette réponse spectrale n'est valable que pour le cas sans plasma, et donne donc seulement une idée de l'efficacité de couplage pour l'allumage du plasma, sa présence modifiant l'impédance de la ligne, donc le couplage. La configuration "fermée", sera toujours celle utilisée en présence de plasma, pour se prémunir des fuites de champ micro-onde.

Par rapport au strip-line, l'efficacité du sufatron, est beaucoup plus "piquée" (une FWHM de l'ordre de 10 MHz, contre environ 300 MHz pour le strip-line) et un profil beaucoup plus proche d'une gaussienne, moins bruité. Le maximum d'efficacité de couplage se trouve dans la gamme atteignable par le générateur, autour de 2,43 GHz, pour une valeur supérieure à 95 %.

### 2.1.2 Capillaires et circuit de gaz

Le plasma est généré et confiné dans des capillaires de quartz de petit diamètre qui traversent l'applicateur utilisé. Des capillaires de longueurs variables (20 à 45 cm) et de diamètres internes et externes valant respectivement 1,0 et 2,0 mm, fabriqués par le laboratoire Xlim de l'Université de Limoges, ont été utilisés. Il est à noter que, pour des puissances consignées inférieures à 100 W, les capillaires ne subissent aucune dégradation même après plusieurs centaines d'heures d'utilisation avec un plasma généré, et peuvent donc être utilisés quasi-indéfiniment.

Ces capillaires font partie d'un circuit de gaz fermé et étanche, parcouru par un flux de gaz à la pression et la composition contrôlables, tel qu'il sera présenté figure 30. Pour cela, on dispose en entrée du circuit de plusieurs bouteilles de gaz (argon 99,99 %, air 99,99 %, AirLiquide) et de trois débitmètres contrôlables (Bronkhorst EL-Flow Select), avec les débits maximums et gaz de référence suivants (l'indication "n" des unités indique les conditions "normales" de température et de pression, à savoir 0°C et 1 atm) :

- 1000 nml/min, argon.
- 20 nml/min, air.
- 20 nml/min, dioxygène.

Ces débitmètres peuvent être considérés comme fiables jusqu'à 5 % de leur débit maximum, en dessous duquel leur incertitude, jusqu'alors inférieure à 1 %, peut monter jusqu'à 5 %. Chaque débitmètre peut être utilisé avec un gaz différent que celui de référence, mais il est alors nécessaire d'utiliser un facteur de correction (correspondant aux rapports des capacités thermiques des gaz) sur le débit de gaz. Ce facteur est égal à 1 pour l'air, le dioxygène et le diazote, qui peuvent donc être utilisés indifféremment sur les deux derniers appareils, et de 1,4 pour l'argon.

En sortie du circuit on dispose d'une pompe primaire (PFEIFFER Vaccum Duo 2.5) permettant d'atteindre une pression résiduelle de l'ordre de  $5 \times 10^{-3}$  mbar en absence de débit de gaz dans le circuit, d'un volume d'environ 6 litres.

La pression peut être mesurée en amont du capillaire par une jauge de pression absolue (MKS baratron 626C), fonctionnant de 0,01 à 1,1 bar, et en aval par une jauge Pirani (Alcatel ACC 1009) fonctionnant de  $10^{-5}$  à 100 mbar.

L'étanchéité du système a pu être testée après avoir pompé pendant plusieurs heures jusqu'à la pression résiduelle puis en mesurant la remontée en pression due aux fuites, sans pompage ni débit de gaz entrant. L'évolution temporelle de la pression (en aval du capillaire) est représentée figure 27 et présente un débit de fuites de  $5,12 \times 10^{-2}$  ml/min ; sachant que les débits les plus faibles utilisés par les débitmètres sont de l'ordre de 1 ml/min, et les conditions "standard" d'utilisation concernent des débits de 100-500 ml/min, ce "débit" de fuite peut être considéré comme négligeable (inférieur à 0,1 % du débit de gaz introduit). Notre dispositif sera donc aussi bien adapté pour la génération de plasma à pression atmosphérique, qu'à basse pression, jusqu'à quelques millibars.

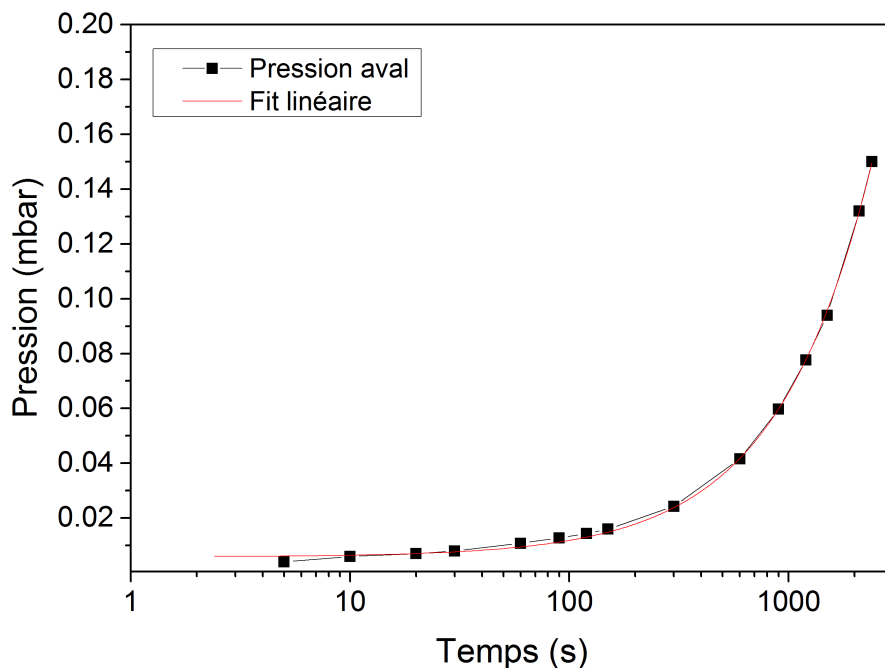


FIGURE 27 – Évolution temporelle de la pression dans le système après arrêt du pompage.

L'ensemble de ce dispositif permet donc la génération, le contrôle et le suivi d'une large gamme de plasmas micro-onde confinés dans des capillaires. La décharge ne peut néanmoins s'amorcer avec la seule présence des ondes de surface se propageant le long du capillaire depuis l'applicateur. Il est nécessaire d'ajouter des électrons germes à l'intérieur du tube à l'aide d'une Tesla coil, créant un arc électrique qui permet l'amorce de la décharge, lorsque les conditions (pression, débit, mélange de gaz, puissance et fréquence micro-onde ...) le permettent, telles qu'elles seront présentées dans le chapitre 3. Le plasma peut ensuite être alimenté uniquement par la puissance micro-onde délivrée par le générateur, tant que les conditions expérimentales restent dans son domaine d'existence.

Le plasma peut être confiné entièrement dans le capillaire lorsque le circuit de gaz est fermé, dans des gammes de pression allant du millibar à la pression atmosphérique, (figure 28) ou bien être en configuration de "jet", avec le tube ouvert en sortie, et donc uniquement à pression atmosphérique (figure 29), la pression à l'intérieur du capillaire étant alors légèrement supérieure à la pression atmosphérique. Ces configurations permettent respectivement de faire des études dans la décharge et également en post décharge.

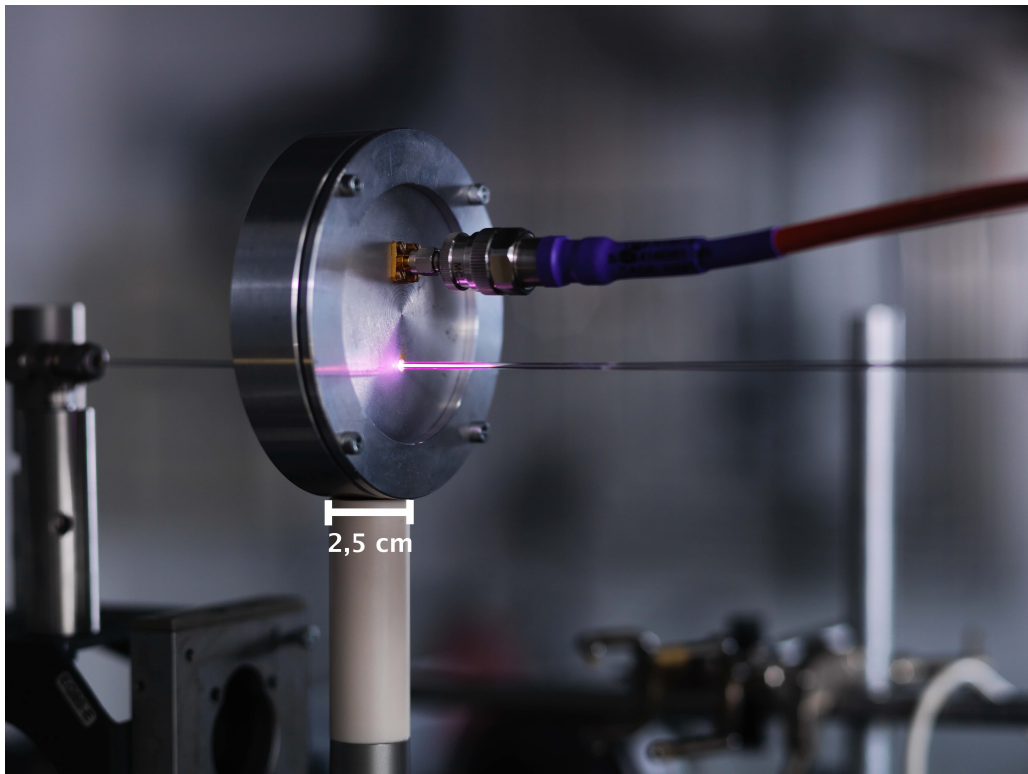


FIGURE 28 – Plasma d'argon pur généré grâce à l'applicateur strip-line, confiné dans le capillaire, à basse pression.

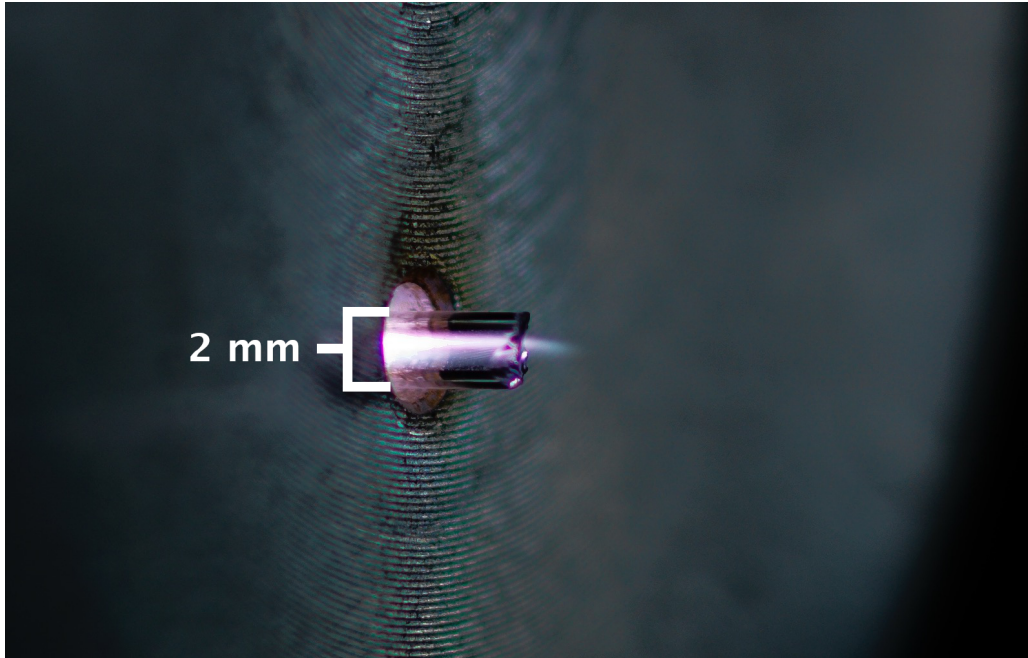


FIGURE 29 – Plasma d'argon en configuration dite "jet", généré par l'applicateur strip-line, à la pression atmosphérique.

Une représentation complète du dispositif expérimental est présentée figure 30. Ce setup sera néanmoins complété et/ou modifié pour réaliser des diagnostics/mesures particulières. Ces différentes configurations seront présentées successivement dans les parties suivantes.

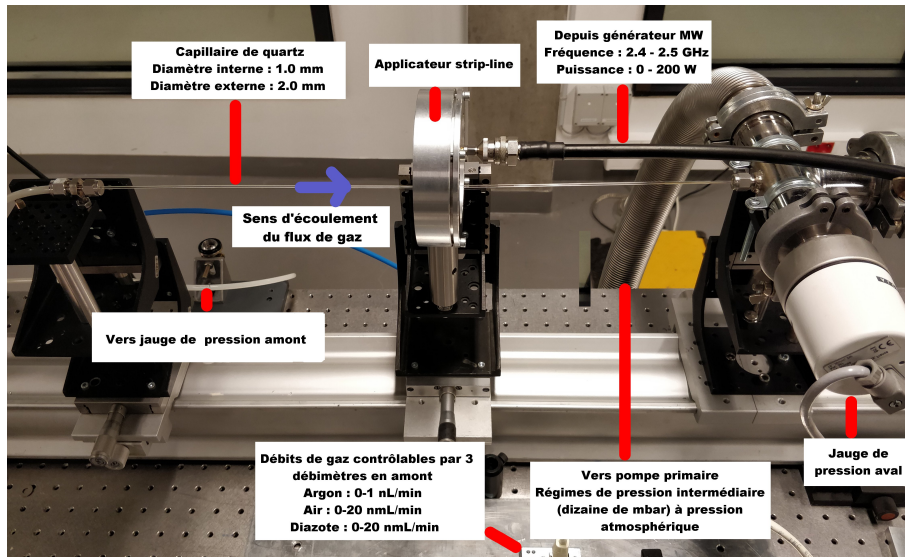


FIGURE 30 – Présentation générale du dispositif expérimental utilisé.

## 2.2 Configurations pour bilan de puissance du plasma

Une part importante des travaux effectués s'est focalisée sur la détermination du bilan de puissance du plasma. Elle nécessite en effet de multiples mesures, sous différentes formes (mesures électriques, de champ micro-onde, spectroscopiques ...) qui seront détaillées ci-dessous. Un schéma représentatif complet, présentant toutes ces sous-configurations possibles, est présenté figure 31.

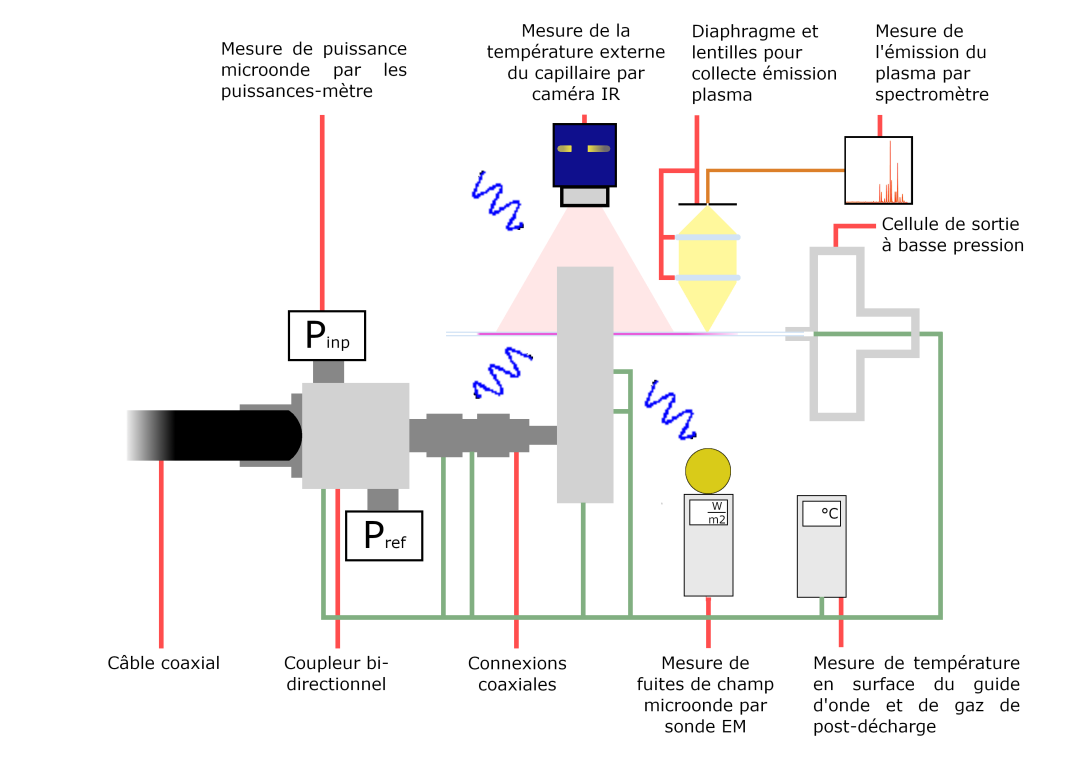


FIGURE 31 – Configuration utilisée pour le bilan de puissance du plasma. Les lignes vertes représentent les câbles des thermocouples ; la ligne orange la fibre optique de collecte de l'émission du plasma vers le spectromètre ; les "vagues" bleues les fuites de champ MO.

### 2.2.1 Puissance micro-onde et disposition puissances-mètres

Comme dit précédemment le générateur micro-onde nous donne la valeur de sa puissance délivrée, ainsi que la puissance qui lui est réfléchie, avec une résolution de 1 W, ce qui est insuffisant pour réaliser un bilan de puissance précis, comme cela sera montré ultérieurement. On utilise alors des puissances-mètres bien plus sensibles (Minicircuits PWR-6GHS) pour outrepasser ces mesures du générateur faiblement résolues. Ils permettent également de réaliser des mesures de puissance au plus près de la décharge (juste avant l'applicateur) ce qui présente l'avantage d'omettre la dissipation de puissance micro-onde pouvant se produire le long du câble coaxial.

Ces appareils fonctionnent pour une gamme de fréquence de 1 à 6000 MHz, et pour des lignes d'une impédance de 50  $\Omega$ , adaptée pour notre système. Ils ont une résolution temporelle de 100 ms, qui n'est pas utilisée ici puisque les mesures sont faites à l'état stationnaire. Leur incertitude, indiquée par le constructeur (pour des valeurs de puissance entre 3,16 mW et 31,6 mW et une fréquence entre 1 et 3000 MHz) est donnée à 3,5 % pour les valeurs typiques, 7,15 % pour les valeurs maximales.

Leur régime de fonctionnement est de 1  $\mu$ W à 100 mW, bien inférieur à la gamme délivrée par le générateur (1-200 W). Pour pallier cela on utilise un coupleur bi-directionnel, nous permettant de mesurer la puissance incidente et celle réfléchie, grâce à des "bras" de dérivation intégrant des atténuateurs. Le coupleur utilisé (MECA Electronics, 722N-30-3.100) est un modèle indiquant 30 dB d'atténuation sur chaque bras, avec  $\pm 0,3$  dB de tolérance, et une différence maximale de 1,2 dB entre les deux "bras". Après une mesure à l'analyseur de réseau, et après avoir soustrait l'atténuation due aux câbles, on constate des atténuations respectives des "bras" mesurant la puissance incidente et réfléchie de 30,44 dB et 30,53 dB. Ces valeurs sont en accord avec les spécifications du constructeur. Néanmoins ces valeurs, bien qu'indépendantes de la température du coupleur (vérifié par chauffage de ce dernier au-delà de 50 °C par source externe) fluctuent légèrement en fonction de l'orientation et l'inclinaison des câbles, avec une amplitude allant jusqu'à  $\pm 0,3$  dB, qui est leur tolérance. On pourra donc obtenir les puissances incidente et réfléchie  $P_{\text{inp}}$  et  $P_{\text{ref}}$  à partir de celles mesurées directement par les puissance-mètres  $P_{\text{inp\_mes}}$  et  $P_{\text{ref\_mes}}$  par :

$$P_{\text{inp}} = P_{\text{inp\_mes}} \times 10^{\frac{30,44 \pm 0,3}{10}} \quad (2.1)$$

$$P_{\text{ref}} = P_{\text{ref\_mes}} \times 10^{\frac{30,53 \pm 0,3}{10}} \quad (2.2)$$

Ici on doit noter que si l'on confronte les mesures données par le puissance-mètre avec celles indiquées par le générateur dans diverses conditions expérimentales, on constate un accord pour la puissance incidente, la différence étant au plus de quelques watts et l'erreur de moins de 5 %, et systématiquement la mesure de la puissance par le générateur sera supérieure à celle des puissances-mètres, comme on le verra dans la partie 3.1. En revanche, pour le cas de la puissance réfléchie l'écart est bien plus important, même pour de faibles puissances, l'écart ici atteint habituellement 25 %. La différence entre cette puissance réfléchie mesurée par le puissance-mètre et celle donnée par le générateur, de l'ordre de quelques watts, s'explique par la présence du câble coaxial et des connexions entre les deux points de mesure, sources de nombreuses pertes thermiques ; on vérifiera que ces pertes thermiques sont effectivement de cet ordre de grandeur.

### 2.2.2 Fuites de champ micro-onde

Malgré le blindage métallique de toute la ligne coaxiale transmettant la puissance micro-onde et celle de l'applicateur, une partie de la puissance va rayonner en dehors des éléments de couplage micro-onde, et donc sera à exclure des bilans de puissance.

Pour quantifier ces fuites de champ micro-onde, on utilisera une sonde électromagnétique (electrosmog meter, TES - 593) qui fonctionne sur la gamme 10 MHz - 8 GHz et mesure les 3 composantes spatiales des champs électromagnétiques, la mesure ne dépend donc pas de l'orientation de l'appareil. Néanmoins, dans la pratique, la mesure en un point de l'espace montre une variation de la puissance allant jusqu'à 50 % selon l'orientation de la sonde, elle même écrantant une partie du rayonnement. Dans les cas où est constatée une variation importante de la puissance en un point, plusieurs mesures avec des orientations différentes sont effectuées.

Les mesures peuvent être exprimées en différentes unités, on utilisera ici des  $\mu\text{W}/\text{cm}^2$  pour déterminer plus facilement la densité de puissance et donc les pertes de puissance micro-onde. La valeur mesurée sera également moyennée sur quelques secondes. La puissance transportée par une onde dépendant de sa fréquence, cette donnée n'étant pas mesurée par l'appareil, il faut donc appliquer un facteur de correction pour les valeurs de densité surfacique de puissance mesurées. La valeur indiquée par le constructeur est un facteur de 0,66 pour une onde à 2,40 GHz, la fréquence la plus proche de celle utilisée (2,45 GHz).

Malgré les possibles sources de perturbations extérieures (téléphones mobiles, Wi-Fi, sources RF, qui utilisent la même gamme de fréquence, une norme industrielle pour ne pas interférer avec les télécommunications) lorsque le générateur est éteint et la sonde utilisée en moyennage temporel, la densité de puissance mesurée est toujours égale à 0. Le bruit environnant n'est donc pas perturbatif.

Comme pour tout le bilan de puissance, les mesures sont faites à l'état stationnaire, qui est pris 30 minutes après mesure de l'équilibre thermique de l'applicateur, suivi par thermocouple en surface. Pour chaque point de mesure, la sonde est laissée fixe pendant quelques secondes, et dirigée vers l'applicateur, l'observateur placé derrière pour ne pas écranter une partie de la puissance micro-onde.

La sonde donnant une densité surfacique de puissance en un point, il est nécessaire de définir une géométrie fermée entourant toutes les sources de fuites micro-onde possibles, ici, l'applicateur. La valeur de la densité surfacique de puissance micro-onde sera mesurée en différents points de cette surface, dont on pourra définir un maillage, pour obtenir la fuite totale de puissance micro-onde.

La géométrie la plus simple pour notre dispositif a été choisie sous la forme d'un cube partageant son centre avec celui de l'applicateur. Ce point se situe quelques centimètres au-dessus de l'axe de passage du capillaire dans le cas du strip-line, et sur ce même axe pour le cas du surfatron. Ce cube virtuel aura pour dimensions  $40 \times 40 \times 40$  cm avec un écart entre deux points du maillage de 5 cm. On a donc 6 faces carrées, chacune avec 81 points de mesures en incluant ses arêtes, pour un total de 386 points uniques. Pour les points multiples, concernés par plusieurs arêtes, la valeur retenue est la moyenne par les diverses orientations utilisées pour les faces où apparaissent ces points. La géométrie utilisée est présentée sur la figure 32, où les différentes faces du cube sont numérotées pour présenter leurs résultats individuellement.

L'applicateur est placé sur une tige métallique au-dessus d'une table optique graduée (dont la surface métallique est très réfléchissante pour les micro-ondes ; cela donnera *a priori* une surestimation de la valeur des fuites pour la face (6) ainsi que de la fuite de champ totale), le reste du dispositif expérimental

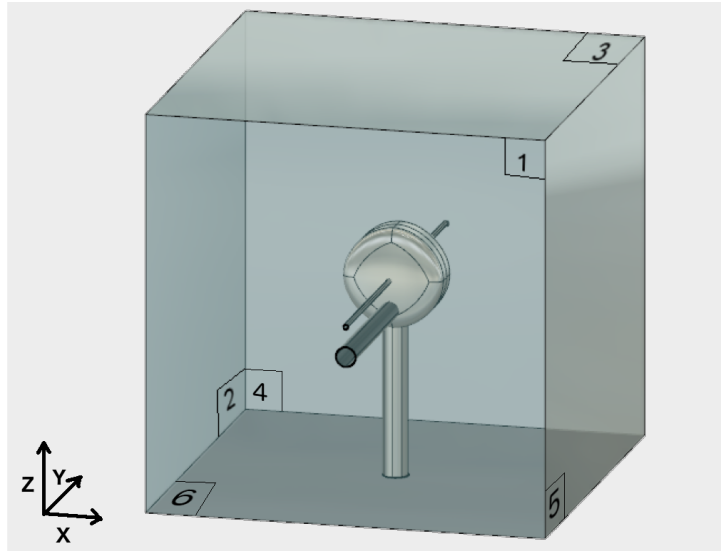


FIGURE 32 – Vue en 3D du cube virtuel autour de l'applicateur, ici le strip-line, sur la surface duquel les mesures de fuites de champ ont été réalisées. L'axe du capillaire traverse les faces (1) et (4), tandis que celui du câble coaxial ne traverse que la face (1).

sera totalement absent lors des mesures. En particulier, le capillaire sera absent et aucun autre équipement n'est présent à l'intérieur du cube, ni même à proximité de sa surface extérieure, et les murs de la pièce sont distants de plus de 5 mètres. La seule source de réflexion des micro-ondes proches sera la surface de la table optique, située 10 cm en dessous de la face (6).

### 2.2.3 Température en surface des éléments de couplage micro-onde et de gaz de post-décharge

Pour les bilans de puissance des transferts thermiques conducto-convectifs et radiatifs, la mesure de la température de l'air ambiant ainsi que de la surface externe du système défini est nécessaire. Ici, la surface externe du système consistera en celle des éléments de couplage micro-onde (en aval des puissances-mètres) ainsi que et la paroi externe du capillaire.

La mesure de la température de l'air ambiant peut simplement être faite à l'aide de thermocouples (Type K, Omega Engineering) de diamètre fin ( $100 \mu\text{m}$ ) pris suffisamment loin de toute surface. L'erreur typique d'une mesure au thermocouple indiquée par le constructeur est de l'ordre de  $0,5 \text{ }^\circ\text{C}$ . La mesure de la température des éléments de couplage micro-onde peut également se faire à l'aide de thermocouples dont la surface de contact avec la surface à mesurer est maximisée pour s'approcher le plus possible de la mesure de la température de la surface plutôt que de la couche mince se formant à proximité. Néanmoins, il existe toujours une incertitude de mesure qui est ici asymétrique ; la surface à mesurer étant toujours plus chaude que l'air environnant et le contact étant toujours imparfait entre le thermocouple et la surface, on mesurera toujours une valeur de température  $T_{\text{surface}}^{\text{mesurée}}$  inférieure à la température réelle  $T_{\text{surface}}^{\text{réelle}}$ , comme pourront l'attester les résultats présentés ultérieurement figure 37. On pourra estimer :

$$T_{\text{surface}}^{\text{réelle}} (^\circ\text{C}) \in [T_{\text{surface}}^{\text{mesurée}} - 0,5; T_{\text{surface}}^{\text{mesurée}} + 1,0] \quad (2.3)$$



La géométrie et l'émissivité de ces éléments de couplage micro-onde devront aussi être précisément définis. En particulier, on s'intéressera à la surface externe des éléments, mais également à leur orientation (horizontale ou verticale) qui aura son importance, comme détaillé ultérieurement dans la théorie des transferts conducto-convectifs dans la partie 4.3. Aucun des éléments n'étant d'une géométrie simple, ils seront approximés par des cylindres et des plans. On détaillera également l'émissivité  $\epsilon$  des matériaux qui composent ces surfaces, paramètre qui aura son importance pour les calculs des transferts radiatifs.

Le **coupleur bi-directionnel** peut aisément être approché par un parallélépipède de dimensions  $54 \times 51 \times 22$  mm. Lorsqu'il est utilisé avec un applicateur de type strip-line, les deux plans les plus larges ( $54 \times 51$ ) seront horizontaux, tandis que les 4 autres seront verticaux. Lorsque l'applicateur utilisé est de type surfatron, les plans horizontaux seront les  $51 \times 22$  mm ; les 4 autres étant verticaux. Pour toutes les orientations, on pourra définir pour chaque surface une longueur caractéristique  $L_c = \frac{\text{Surface}}{\text{Périmètre}}$ .

La surface externe du coupleur est composée d'aluminium non poli. Les tabulations d'émissivité d'un tel matériau étant très variable selon la composition du matériau, ses éventuels traitements lors de la conception, on ne pourra prendre qu'une fourchette très large :  $\epsilon_{\text{coupleur}} \in [0,04 ; 0,4]$  [99] [100].

La mesure de la température peut être faite sur chacun des plans décrits. Dans la pratique, la température est homogène sur tout le coupleur, avec des variations inférieures à 0,5 K entre deux plans.

Les **connexions** ne sont présentes qu'avec l'applicateur strip-line, entre ce dernier et le coupleur bi-directionnel. Leur géométrie plus complexe, pourra être approximée par une série de 6 cylindres en séries. Les diamètres respectifs de ces cylindres seront de  $[0,016 ; 0,021 ; 0,017 ; 0,021 ; 0,017 ; 0,009]$  (m) tandis que leurs longueurs seront  $[0,009 ; 0,017 ; 0,007 ; 0,017 ; 0,009 ; 0,012]$  (m). Tous ces cylindres auront leur axe orienté à l'horizontale.

Les connexions étant composées du même matériau que le coupleur, on devra prendre la même fourchette pour leur émissivité :  $\epsilon_{\text{connexions}} \in [0,04 ; 0,4]$ .

La température sur chacun des cylindres est homogène, mais il n'y a pas d'uniformité de la température sur tous les cylindres, l'écart pouvant être de l'ordre de 5 K entre les deux cylindres aux extrémités. Dans la pratique, on ne réalisera que 4 points de mesure, certains cylindres étant toujours à une température identique ou avec un écart inférieur à 0,5 K. En numérotant de 1 à 6 les cylindres, allant du plus proche du coupleur vers le plus proche de l'applicateur, le premier point de mesure de température sera valable pour les cylindres 1 et 2 ; le second uniquement pour le cylindre 3 ; le troisième pour les cylindres 4 et 5 ; et le dernier point de mesure pour le cylindre 6.

Enfin, l'**applicateur**, qui possède une surface bien plus grande que les autres éléments de couplage micro-onde sera également le plus chauffé, comme on le verra ultérieurement.

Dans le cas du **strip-line** on peut l'approximer par une composition d'un cylindre horizontal de longueur 28 mm et de diamètre 114 mm ainsi que de deux disques verticaux de diamètre 114 mm. La géométrie de ces disques peut également être discrétisée en une somme infinitésimale de rectangles, correspondant donc à une somme de plans verticaux.

L'émissivité du matériau, inox poli, est dans la même gamme que les précédents éléments  $\epsilon_{\text{SL}} \in [0,04 ; 0,4]$  mais dans le cas d'un applicateur recouvert d'un revêtement en graphite (Kontakt chemie graphit 33), on aura cette fois-ci une émissivité élevée et bien déterminée :  $\epsilon_{\text{SL\_graphite}} = 0,95$  [101] [102].

Expérimentalement, on trouve que la température à la surface d'une de ces 3 parties (cylindre et deux disques) est homogène avec des écarts inférieurs à 0,5 K, et donc dans la pratique, un seul point de mesure sera nécessaire. En revanche, les températures entre ces parties diffèrent parfois de quelques Kelvins.

Enfin, pour le cas du **surfatron**, on aura une géométrie composée d'un cylindre horizontal de longueur 75 mm et de diamètre 66 mm ainsi que de deux disques verticaux de rayon 66 mm, qui peuvent également être discrétisés en plans verticaux.

Les remarques concernant l'émissivité et l'homogénéité de la température sont les mêmes que pour le strip-line.

Une représentation des éléments de couplage micro-onde est présentée figure 33. Le coupleur bi-directionnel et les connexions sont à la même échelle, à l'inverse des autres éléments présentés.

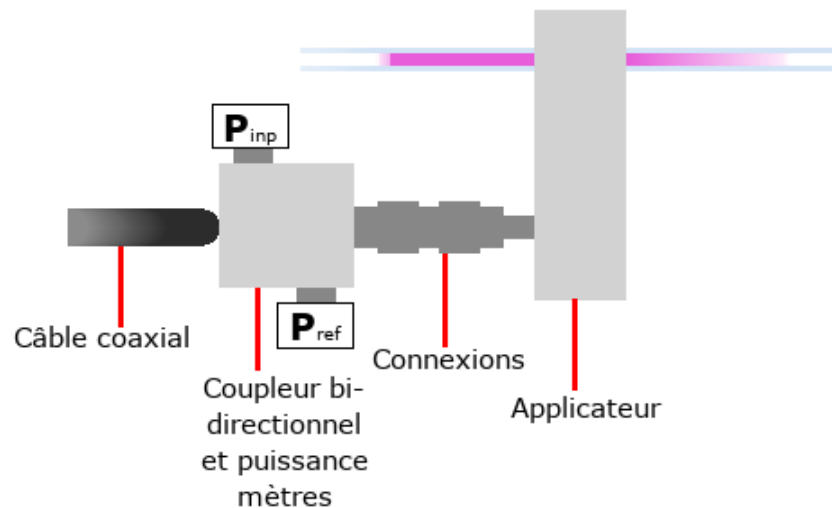


FIGURE 33 – Représentation des éléments de couplage micro-onde utilisés avec l'applicateur strip-line.

La température du gaz de post-décharge sera également mesurée, à l'extrémité aval du capillaire. Pour les mesures à pression atmosphérique, on peut simplement employer un thermocouple inséré directement à la sortie du capillaire, en s'assurant par le suivi de la pression qu'il ne perturbe pas l'écoulement. A basse pression, il est nécessaire d'utiliser un passage à vide entre la sortie du capillaire et la pompe primaire pour pouvoir placer un thermocouple à la sortie du capillaire sans modifier les conditions de la décharge.

#### 2.2.4 Température en surface de capillaire

Pour compléter le bilan de puissance, il sera nécessaire de mesurer la température externe du capillaire. Une série de problèmes se pose néanmoins pour la mesure de la température du capillaire. Son faible diamètre implique une forte courbure, et donc un contact avec un thermocouple imparfait. De plus, le thermocouple étant métallique, il perturbe la propagation de l'onde de surface, la mesure est donc perturbative et erronée. On emploie donc une caméra infrarouge (FLIR i7) fonctionnant dans la gamme [7,5 ; 13  $\mu\text{m}$ ]. Un exemple d'image obtenue par la caméra, montrant le champ de température en amont et en aval de l'applicateur avec un plasma à l'état stationnaire est présentée figure 34.

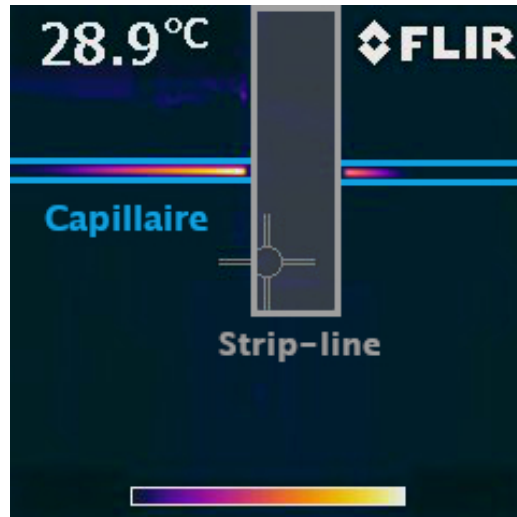


FIGURE 34 – Image obtenue par la caméra infrarouge montrant le profil de température de la surface externe du capillaire. Les positions du capillaire et du strip-line sont indiquées respectivement en bleu et gris. La valeur indiquée est celle de la "cible" ici placée sur le strip-line, mais la valeur exacte ne correspond pas, en raison de la valeur de l'émissivité utilisée.

Le fait que la mesure de la caméra se fasse dans la gamme du milieu infrarouge est problématique : dans cette gamme spectrale l'émissivité du quartz est dépendante de la longueur d'onde, comme présentée figure 35, reprise de [103] et [104]. La caméra IR nécessite en entrée une valeur d'émissivité du matériau mesuré, considérée comme constante. La moyenne de l'émissivité du quartz sur la gamme spectrale de la caméra étant 0,8, on lui donnera cette valeur arbitrairement, mais il est nécessaire de réaliser une calibration pour s'assurer de la précision des mesures.

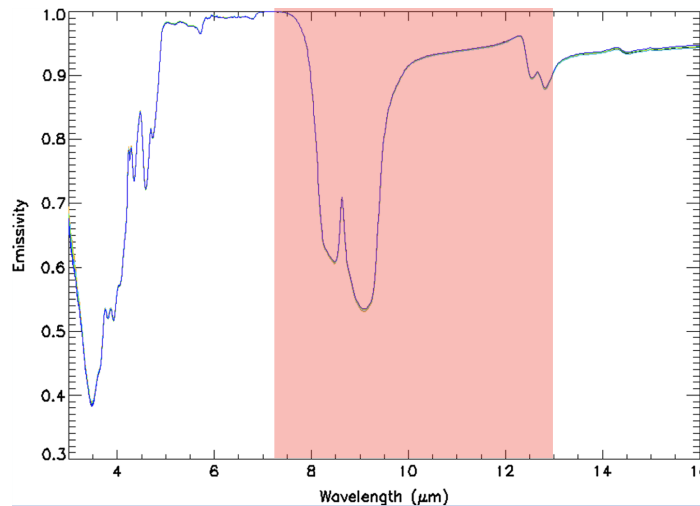


FIGURE 35 – Émissivité du quartz dans le moyen infrarouge [103] [104]. La gamme spectrale de la caméra utilisée est représentée par la bande de couleur pêche.

Pour réaliser cette calibration, il faut disposer d'une surface de quartz de plus faible courbure, et de température contrôlable ; on a ainsi utilisé des tubes de quartz de plus gros diamètre (10 cm) chauffés par un décapeur thermique depuis l'intérieur, afin de reproduire au mieux les conditions réelles (capillaire chauffé par le plasma depuis l'intérieur, et surface externe baignant dans un air à température ambiante sans convection forcée). La température est mesurée sur la surface externe du tube au même point, par la caméra IR et par un thermocouple ; les résultats sont représentés figure 36.

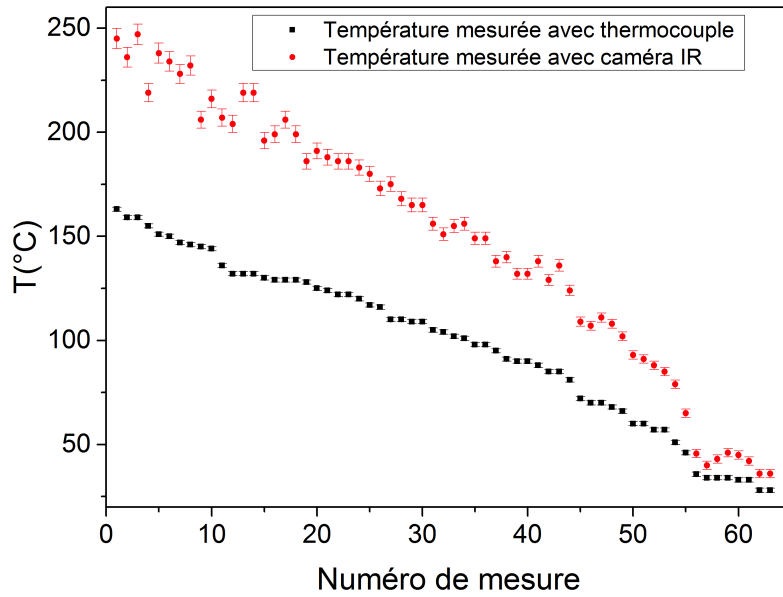


FIGURE 36 – Comparaison des mesures de température de surface de tube entre la camera IR et le thermocouple.

On constate une certaine inconsistance entre les mesures données par le thermocouple d'une part, et par la caméra d'autre part, confirmant qu'une simple mesure au thermocouple de la température externe du capillaire ne serait pas fiable, en raison du contact imparfait. Pour avoir un contact plus fiable, nous avons utilisé des pastilles thermosensibles (Omega, TL-8 et TL-10), dont l'apparence (couleur) change une fois une valeur de température dépassée. Étant directement collées à la surface du tube, le contact est supposément meilleur qu'un thermocouple. Le même protocole est alors utilisé pour comparer les mesures de caméra IR et celles données par les pastilles, et les résultats sont représentés figure 37.

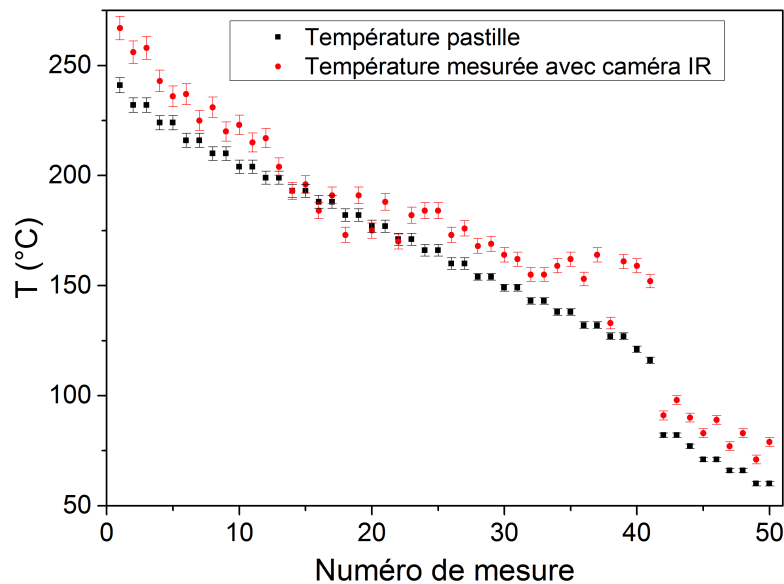


FIGURE 37 – Comparaison des mesures de température de surface du tube par pastilles thermosensibles et caméra IR.

L'accord entre les mesures est ici beaucoup plus proche. On peut donc en tirer une expression corrigée de l'expression liant la température de ces pastilles, que l'on suppose à l'équilibre avec celle du tube, et celle donnée par la caméra infrarouge. Ce résultat est présenté figure 38.

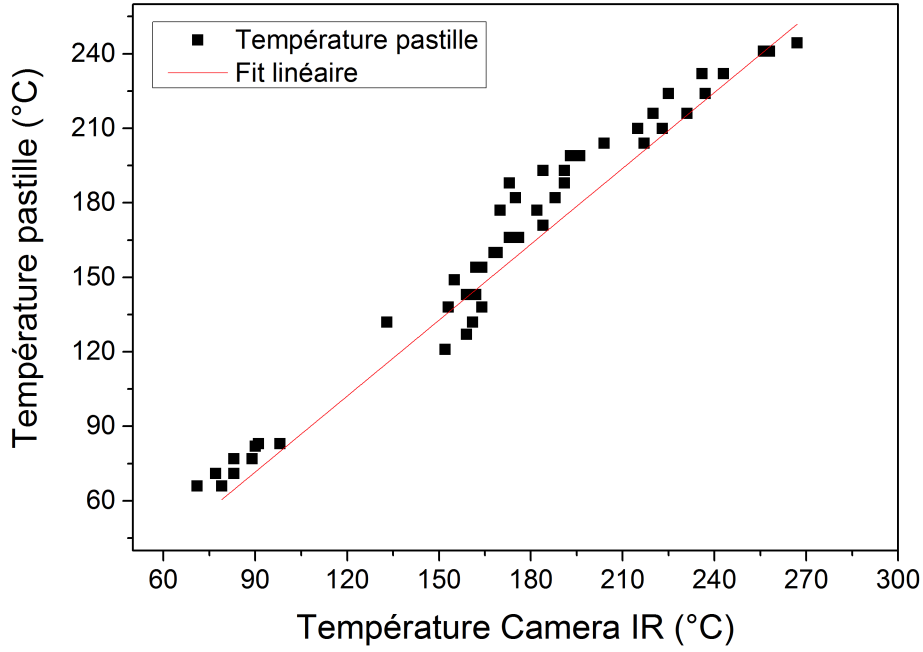


FIGURE 38 – Température des pastilles thermosensibles en fonction de celles mesurées par la caméra IR, pour la calibration de cette dernière.

On obtient une loi linéaire avec une pente égale à 1,02, ce sera donc le facteur de correction à utiliser pour nos mesures de température de paroi externe du capillaire par la caméra IR, avec une émissivité de 0,8.

Un dernier problème rencontré est la partie "centrale" de la décharge, au centre du strip-line ou au gap du surfatron, qui est inaccessible optiquement, ce qui empêche d'en mesurer la température. Les mesures de cette section seront donc faites hors de l'état stationnaire : après stabilisation de la décharge, le plasma est arrêté et l'applicateur déplacé pour donner un accès optique aux parties "cachées", le tout en un temps d'une à deux secondes pour assurer un état relativement proche de l'état stationnaire. Cela peut se justifier par le calcul du temps caractéristique de transferts thermiques typique du système  $\tau_c$ , caractérisant la durée du régime transitoire, entre l'instant de l'arrêt du plasma et le retour du capillaire à la température ambiante. On considère pour cela un modèle simple, d'un élément de longueur du capillaire  $dl$  homogène, et refroidi uniquement par convection naturelle avec de l'air, à la fois sur sa surface externe, et interne. On aura :

$$\tau_c = \frac{V \rho c_p}{h C C S} \quad (2.4)$$

Où  $\tau_c$  représente le temps caractéristique pour que le  $\Delta T = T_{\text{paroi\_externe\_capillaire}} - T_{\text{air}}^{\text{initial}}$ , au moment où l'on quitte l'état stationnaire, décroisse d'un facteur 2,71 ( $e^1$ ). Avec :

- $V = \pi(r_{\text{ext}}^2 - r_{\text{int}}^2)dl$  ( $\text{m}^3$ ) : Volume de quartz considéré.
- $\rho = 2,65$  ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ) : Densité massique du quartz.
- $c_p = 753$  ( $\text{J}/\text{kg}/\text{K}$ ) : Capacité thermique massique du quartz.

- $h^{CC}$  (W/K/m<sup>2</sup>) : Coefficient de transfert thermique, que l'on pourra prendre ici égal à 18 W/K/m<sup>2</sup> (cas d'un cylindre refroidi par convection naturelle externe, avec les dimensions du problème).
- $S = 2\pi(r_{ext} + r_{int})dl$  (m<sup>2</sup>) : Surface du capillaire en contact avec l'air ambiant.

Pour un capillaire de diamètres interne et externe, 1 mm et 2 mm, on aura  $\tau_c = 50$  s, un temps largement supérieur aux 2 secondes du cas pratique. Cette valeur est néanmoins surestimée, car ce calcul ne prend pas en compte le refroidissement du capillaire par le flux de gaz en convection forcée qui le traverse, toujours présent même après l'arrêt du plasma, ainsi que le refroidissement par rayonnement ... Dans la pratique, on constatera un  $\tau_c \simeq 6$  s, qui servira, comme montré dans le chapitre 4, pour extrapoler les valeurs de température de la paroi sur les zones où le capillaire est rendu optiquement inaccessible par la présence de l'applicateur ; le champ de température du capillaire présente en effet une discontinuité entre les points pris à l'état stationnaire, et ceux "cachés" par l'applicateur, pris hors état d'équilibre, qu'il faut donc extrapoler pour faire disparaître cette discontinuité au point limite visible par la caméra à l'état stationnaire.

### 2.2.5 Rayonnement visible du plasma

Il sera également nécessaire pour compléter le bilan de puissance de mesurer la puissance rayonnée par le plasma qui traverse le capillaire, donc de mesurer son émission. On parlera ici bien du rayonnement optique, et non pas du rayonnement thermique, correspondant à la gamme spectrale du visible, proche infrarouge et une partie de l'UV, pour laquelle le quartz est transparent. La configuration expérimentale utilisée est représentée schématiquement sur la figure 39.

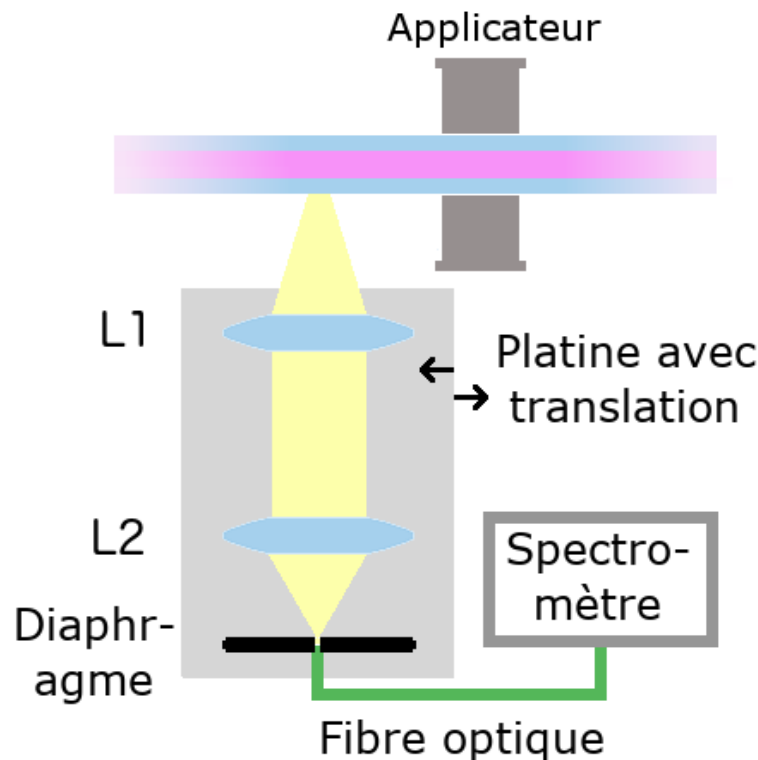


FIGURE 39 – Dispositif expérimental utilisé pour les mesures d'OES non résolues spatialement.

L'un des enjeux de la spectroscopie d'émission est le moyen de collecte et de décomposition spectrale du signal lumineux à mesurer. Ici, la lumière sera collectée par un jeu de deux lentilles minces convergentes, de distance focale  $f = 15$  cm, qui focalisent l'émission du plasma sur une fibre optique (Ocean Optics) de diamètre  $500 \mu\text{m}$ , devant laquelle se trouve un diaphragme de  $50 \mu\text{m}$  afin de ne collecter l'émission du plasma que depuis un volume cylindrique d'environ  $50 \mu\text{m}$  de diamètre et de longueur 1 mm. La fibre transmet alors le signal à un spectromètre (Ocean Optics, Maya 2000 pro) fonctionnant sur la gamme spectrale de 200 à 900 nm, pouvant donner des mesures en continu et sur toute la gamme spectrale accessible. Cet ensemble de lentilles et la fibre optique est placé sur une translation perpendiculaire à l'axe du capillaire, on pourra donc réaliser ces mesures à différentes positions le long du capillaire.

Un exemple de spectre du plasma mesuré est présenté figure 40, mesuré 1 cm en aval de l'applicateur, pour un débit d'argon de 500 ml/min, à basse pression (de l'ordre de 300 mbar en amont du plasma, 10 mbar en aval), et 20 W de puissance micro-onde consigne, pour un temps d'intégration de 10 ms et une moyenne sur 50 spectres.

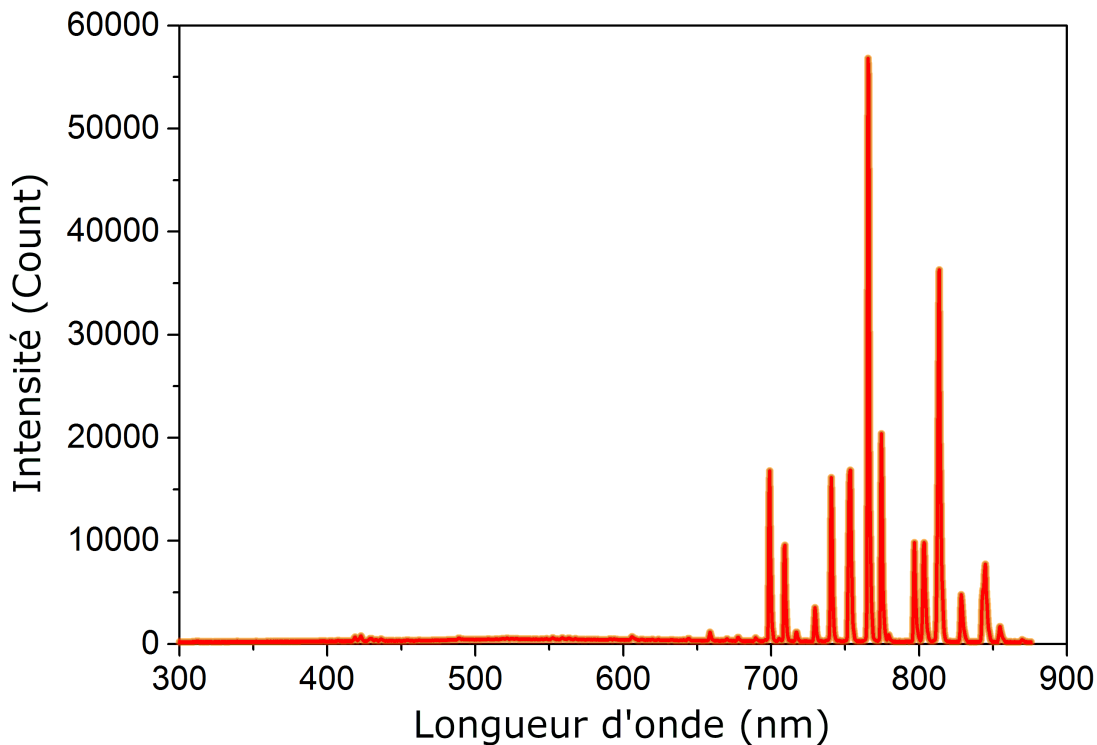


FIGURE 40 – Spectre d'émission du plasma collecté par le spectromètre Maya.

Le spectre est ici obtenu en unités relatives (arbitraires); il sera nécessaire de convertir ce résultat en unités absolues de luminance monochromatique ( $\frac{\text{W}}{\text{m}^2 \cdot \text{sr} \cdot \text{nm}}$ ). Pour cela, on utilise une sphère intégratrice calibrée (Gooch & Housego, OL 455-4-2) que l'on place au point de mesure de la décharge. Sa réponse calibrée permet la conversion entre unités relatives et absolues et donc de mesurer la puissance rayonnée par le plasma. La comparaison de l'intensité absolue de la sphère, fournie par le constructeur, et le signal mesuré par le spectromètre, est présentée figure 41.

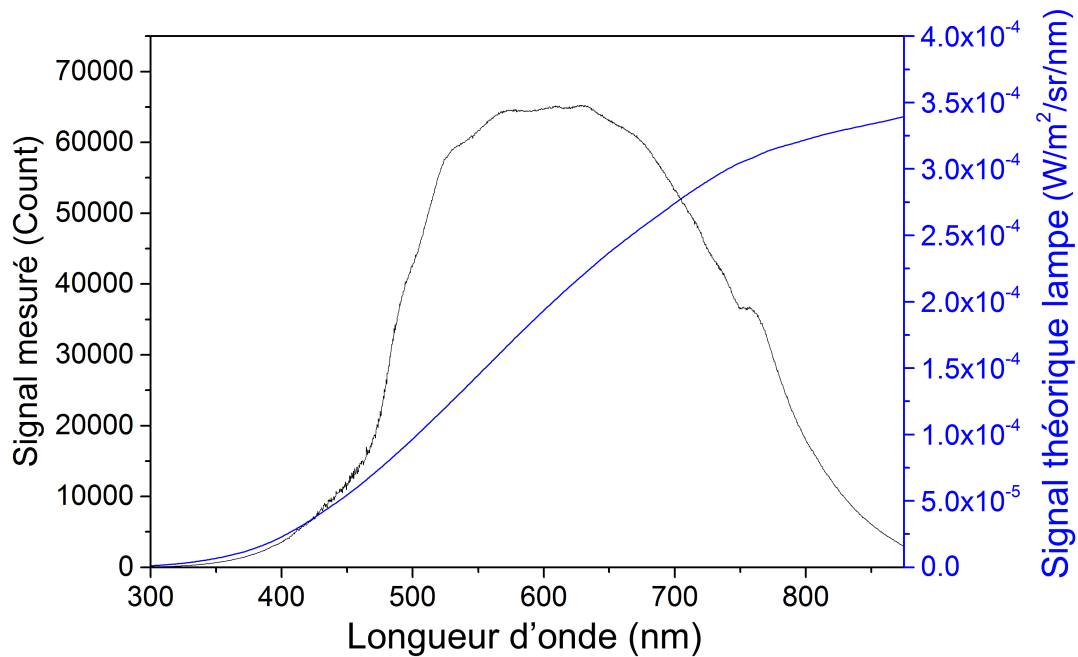


FIGURE 41 – Calibration absolue de la sphère intégratrice, et son signal mesuré par le spectromètre utilisé.

## 2.3 Système pour étude du couplage thermique

Pour réaliser une étude du couplage thermique entre le capillaire et le plasma, il sera nécessaire de concevoir un dispositif permettant d'imposer, ou du moins de contrôler, le flux thermique à la paroi externe du capillaire.

On dispose pour cela d'un système permettant d'appliquer un écoulement externe de gaz, à température ambiante, le long du capillaire et à une vitesse contrôlable pour imposer différentes conditions de températures à la paroi externe du capillaire. Le gaz soufflé, de l'air, sort par une section rectangulaire de  $81 \times 3,5$  mm et à une vitesse allant jusqu'à 14 m/s. Pour vérifier l'homogénéité de la vitesse de ce gaz de refroidissement atteignant le capillaire, des mesures par anémomètre ont été réalisées le long de la section du capillaire refroidie, avec pour référence  $v_{gaz} = 10$  m/s au centre de la section. On constate sur la figure 42 que la vitesse du gaz se trouve dans la gamme  $10 \text{ m/s} \pm 10 \%$  sur une longueur  $L = 6,9$  cm, on considérera donc la vitesse du gaz comme homogène sur cette longueur.

Une présentation de la configuration utilisée est visible sur la figure 43, où 50 % de la longueur totale du plasma est soumise à ce contrôle thermique externe.

Les différentes études paramétriques (présentées chapitre 3) seront réalisées avec cette même configuration, sans écoulement de gaz de refroidissement lors des études ne mettant pas en jeu ce couplage thermique.



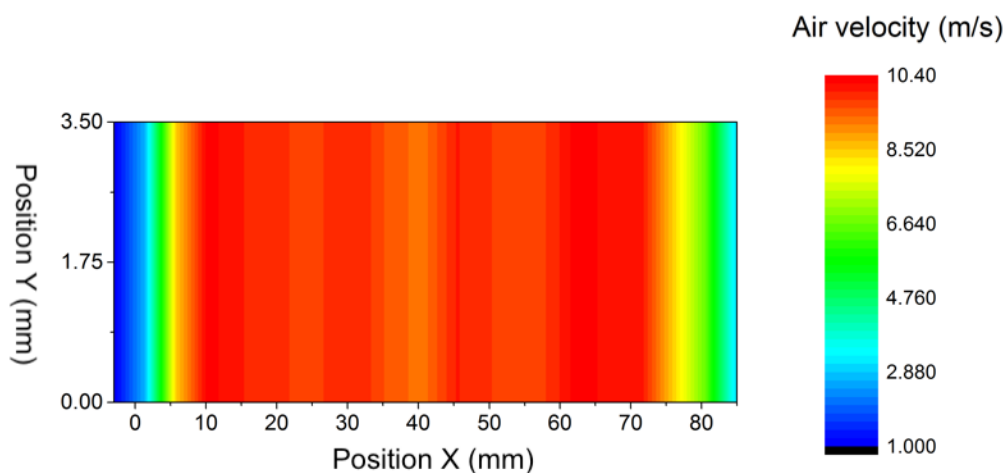


FIGURE 42 – Profil latéral de la vitesse du gaz de contrôle atteignant le capillaire, pour une valeur au centre de 10 m/s.

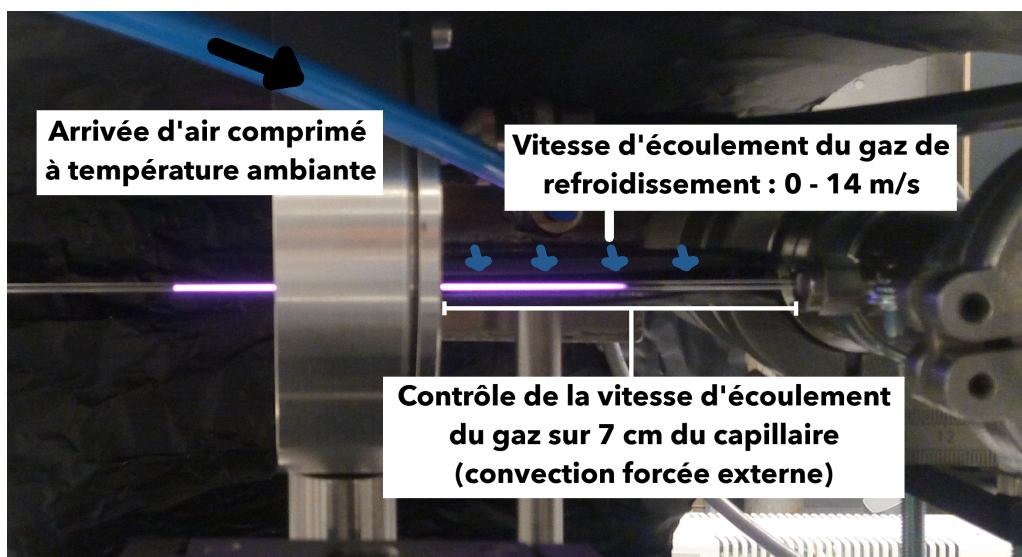


FIGURE 43 – Configuration utilisée pour les études sur le couplage thermique.

## 2.4 Configuration pour mesures de densité d'argon métastable par TD:LAS

Une partie des mesures sur le plasma nécessitent la mise en place de diagnostics optiques, d'émission ou d'absorption. Les capillaires étant transparents dans le domaine du visible, les diagnostics d'émission peuvent être réalisés avec le plasma entièrement confiné dans le tube ou en configuration de "jet", à l'inverse des mesures d'absorption, qui ne peuvent être réalisées que sur un "jet" à l'extérieur du capillaire, ce dernier induisant des réflexions du faisceau incident. Néanmoins, dans tous les cas, l'applicateur est métallique, et donc opaque, impliquant l'impossibilité de réaliser des mesures sur toute la section du tube couverte par ces applicateurs (e.g. : le centre de la décharge pour le strip-line, et la partie en amont du "gap" pour le surfatron).

La spectroscopie d'absorption est employée ici pour mesurer des états non radiatifs, notamment des états métastables, de façon non-intrusive, comme le contraignent les dimensions de notre dispositif expérimental. En particulier, elle permet d'obtenir la densité d'espèces ainsi que certains paramètres plasma, et aussi leur distribution spatiale dans le cas de mesures suffisamment résolues. Ici, le diagnostic d'absorption qui sera employé est la TD:LAS, pour Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy et l'état métastable sondé est le  $1s_5$ , noté également  $3s^2 3p^5(^2P_{3/2}^o)4s$ , à 11,55 eV, avec une absorption à  $\lambda = 801,698$  nm vers l'état  $3s^2 3p^5(^2P_{3/2}^o)4p$  à 13,09 eV.

Pour réaliser ces diagnostics TD:LAS, on dispose d'un laser Toptica DL100, centré sur 801,6 nm, et de puissance maximale 160 mW. Un boîtier de contrôle permet de régler la longueur d'onde du laser par modification de la cavité par sa température (réglage grossier) et le courant qui la traverse (réglage fin). On peut choisir d'avoir un laser à longueur d'onde fixée, ou bien de faire un scan spectral continu, d'amplitude contrôlable avec un maximum d'environ 100 pm sur une zone spectrale. L'enjeu est de trouver un couple de paramètres (température, courant, et intensité du "feedback") permettant une émission laser sans saut de mode (donnant un 'single mode') centrée sur la longueur d'onde de la transition de l'espèce mesurée, et d'amplitude suffisamment importante pour couvrir toute la gamme spectrale de la raie d'argon métastable. Dans nos conditions expérimentales, il est nécessaire d'avoir un balayage en longueur d'onde supérieur à 50 pm, afin d'obtenir un profil de raie d'absorption couvrant toute sa surface, y compris les "ailes" du pic.

Le dispositif expérimental utilisé pour réaliser ces mesures de TD:LAS est présenté sur la figure 44. Lorsque que de telles mesures seront réalisées, le plasma sera donc en configuration "jet", et l'axe du capillaire placé à la verticale, avec le flux de gaz vers le bas.

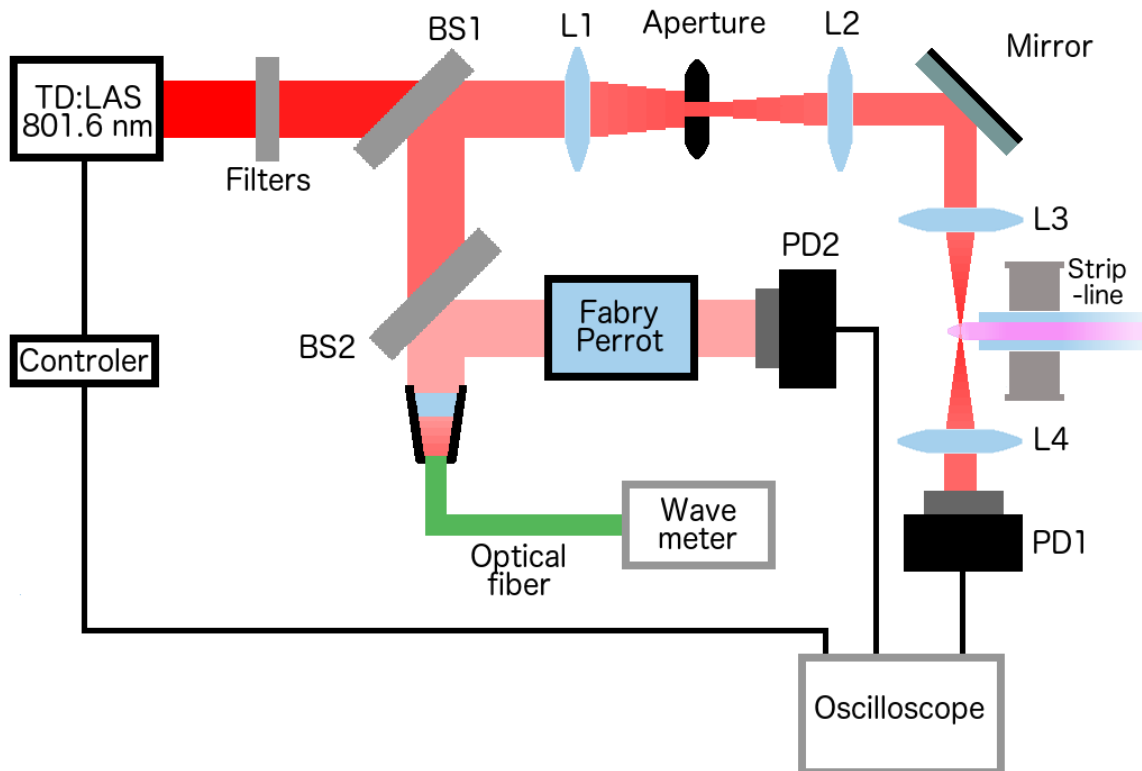


FIGURE 44 – Dispositif expérimental utilisé pour les mesures de TD:LAS.

Le faisceau laser traverse tout d'abord des filtres neutres pour éviter le phénomène de saturation de la transition, et des lames semi-réfléchissantes (BS1 et BS2) permettent de dévier une partie du faisceau pour calibrer l'échelle en longueur d'onde du signal mesuré. Une première partie (après BS1 et BS2) est dirigée vers un ondemètre (HighFinesse, WS-6), pour déterminer la longueur d'onde centrale du laser, et une seconde partie (l'autre moitié du faisceau après BS2) vers un Fabry-Perrot (longueur 10 cm, donnant des franges écartées de 2 GHz chacune) suivi d'un photo-détecteur (PD2; Electro-Optics Technology, ET-2020), qui permet de s'assurer que le scan est bien mono-mode, et de s'assurer du domaine spectral relatif scanné, ainsi que de sa linéarité. Un exemple de franges d'interférences obtenu par le Fabry Perrot pour reconstruire l'échelle en longueur d'onde du scan du laser est présenté figure 45. On y mesure 13 franges d'interférences, correspondant à une plage spectrale de  $13 \times 2$  GHz; la "baseline" représente l'évolution de l'intensité du laser au cours du temps.

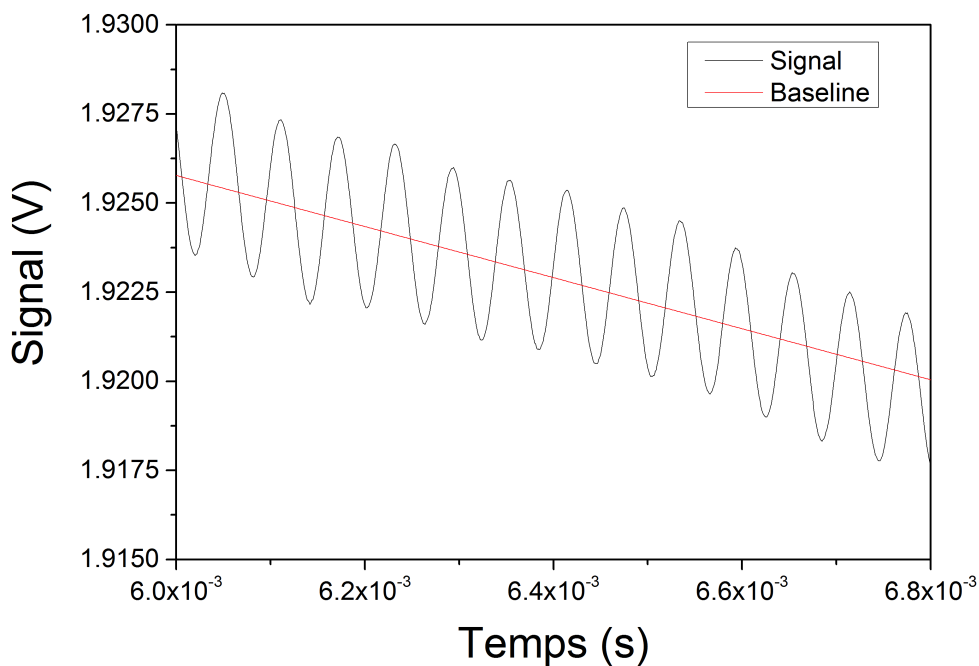


FIGURE 45 – Franges d'interférences obtenues par le Fabry Perrot de 2 GHz.

Le faisceau principal (provenant de l'autre moitié du faisceau après BS1) va ensuite être réduit spatialement par la combinaison des lentilles L1, L2 et le diaphragme entre les deux. Un miroir plan, puis une lentille mince (L3) permet ensuite de focaliser le faisceau au niveau du jet plasma. Le faisceau est finalement collecté par une dernière lentille (L4) pour transmettre le signal au photo-détecteur (PD1; Electro-Optics Technology, ET-2020) qui mesure le signal transmis. Les signaux des photo-détecteurs ainsi que le trigger du laser sont mesurés par un oscilloscope (Lecroy, HDO 6104).

Le diamètre du faisceau au niveau du jet est inférieur à  $50 \mu\text{m}$ , vérifié par une transmission du signal inchangée après passage du faisceau par un diaphragme de  $50 \mu\text{m}$  placé à la position du jet. Cette faible dimension du faisceau laser (20 fois plus faible que le diamètre interne du capillaire) lors de son passage dans le plasma permet d'effectuer un scan latéral du jet, et donc d'obtenir des mesures de densités d'espèces résolues spatialement puis un profil radial, le procédé permettant d'obtenir ce résultat, la transformée d'Abel, nécessitant une résolution spatiale au moins 10 fois inférieure au diamètre du plasma, soit  $100 \mu\text{m}$ . Le faisceau traverse le jet  $50 \mu\text{m}$  sous l'extrémité du capillaire.

Un exemple de signal mesuré par le photodétecteur situé en aval du capillaire, avec et sans présence du plasma, est présenté figure 46 ; on observe en noir le signal sans absorption, et en rouge l'intensité du laser avec une absorption due aux métastables de l'argon. La même région spectrale est scannée deux fois en un temps d'environ 2 s.

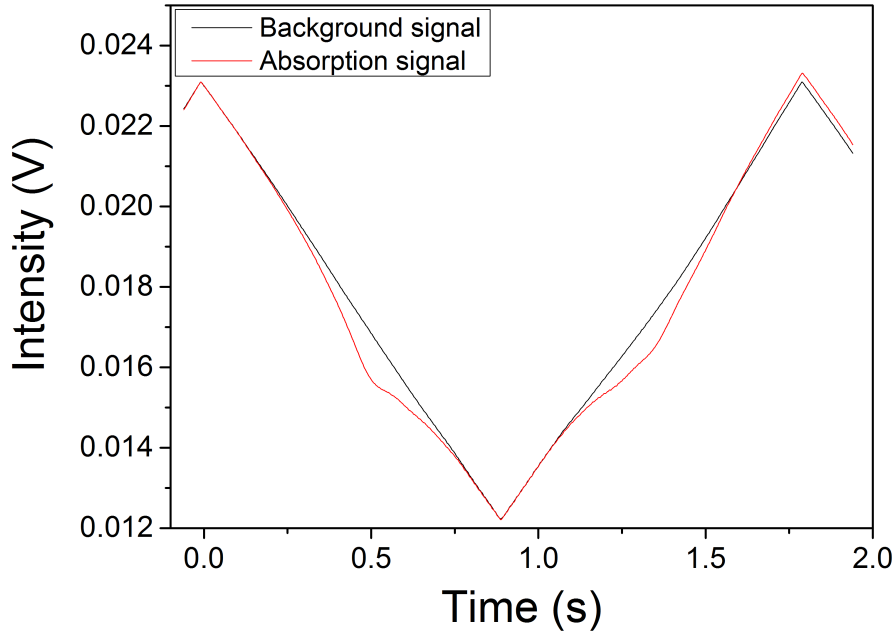


FIGURE 46 – Signal mesuré par le photodétecteur, sans ("background") et avec ("absorption") plasma.

## 2.5 Dispositif pour mesures de densité électronique et de température du plasma par OES

Un autre diagnostic employé pour sonder la décharge *in situ* et de façon non intrusive est la spectroscopie optique d'émission, ou OES (Optical Emission Spectroscopy). Elle consiste à étudier le rayonnement émis par ses états radiatifs de la décharge, qui contient des informations sur les propriétés physiques : densité d'espèces, températures électronique, rotationnelle, vibrationnelle ... qui sont essentielles pour sa caractérisation [64]. Le dispositif expérimental est présenté figure 47 et schématisé figure 48.

Pour réaliser des mesures résolues à la fois spectralement et spatialement du plasma, il est nécessaire de mettre en place un dispositif robuste, qui n'intègre pas spatialement l'image du plasma, et qui la décompose spectralement de façon plus résolue. On utilise pour cela un spectromètre possédant 3 réseaux (2400 g/mm ; 1800 g/mm et 600 g/mm) couplé à une caméra ICCD (Princeton Instruments, PiMax 4). Sur cette caméra, dotée d'un réseau de 1024 × 1024 pixels, on pourra visualiser la décomposition spectrale de l'image sur une dimension, et la distribution spatiale sur l'autre. L'image du plasma sera transmise par un système à deux miroirs paraboliques (de longueurs focales 10 et 20 cm), l'un focalisé sur l'axe du capillaire, l'autre sur la fente d'entrée du spectromètre, de largeur contrôlable.

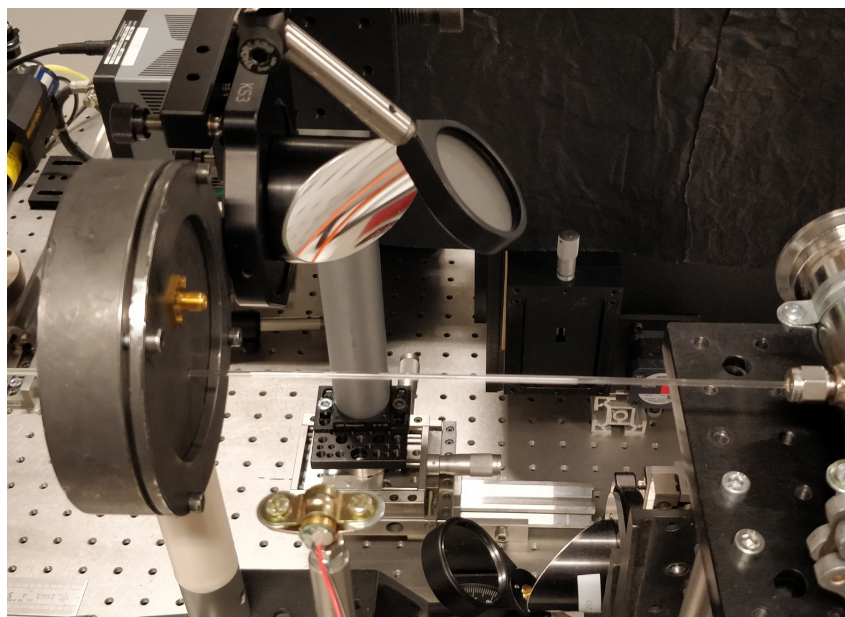
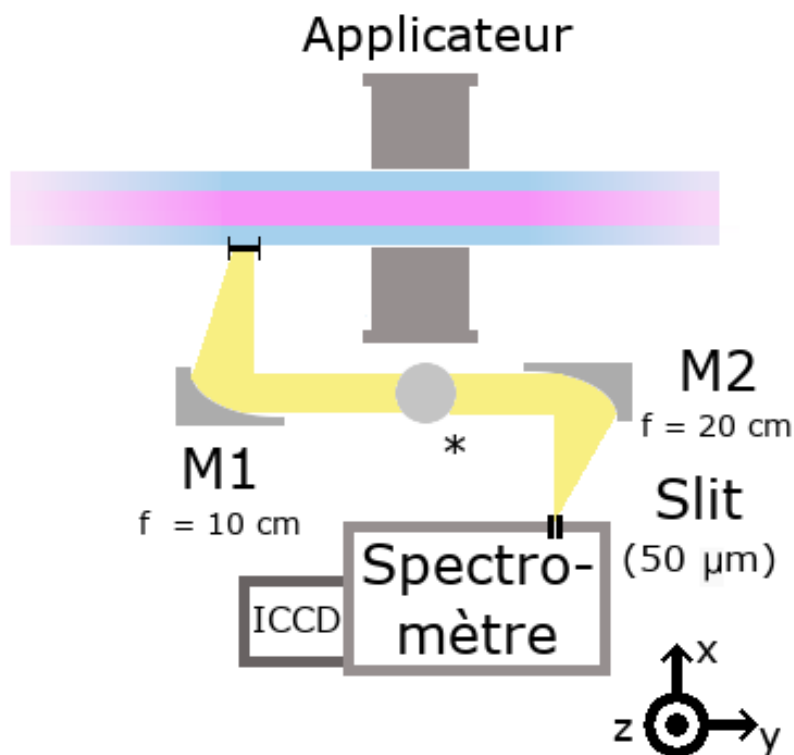


FIGURE 47 – Dispositif expérimental utilisé pour les mesures d'OES résolues.

FIGURE 48 – Représentation du dispositif expérimental utilisé pour les mesures d'OES résolues; l'image du plasma est collectée selon  $25 \mu\text{m}$  selon la direction  $y$ , et  $1 \text{ mm}$  selon la direction  $x$ . Le disque gris (\*) correspond à deux miroirs plans face à face pour transmettre le signal à la position  $z$  du spectromètre.

Avec cette configuration, l'enjeu sera de mesurer l'élargissement des raies de  $\text{H}_\beta$  contenant les informations sur les propriétés physiques du plasma, en particulier ici la densité électronique  $n_e$ , ainsi que les spectres de  $\text{OH}$  et  $\text{N}_2(\text{C})$  dont la distribution boltzmannienne nous donne  $T_{rot}$ . Selon le réseau utilisé, on pourra avoir accès à une seule raie d'émission, ou bien à une bande rovibrationnelle.

La fonction d'appareil, a été mesurée par la réflexion d'un faisceau laser He-Ne (632 nm) sur le capillaire. Un exemple de cette fonction, mesurée avec le réseau de 2400 g/mm et une fente de 50  $\mu\text{m}$  est présenté figure 49.

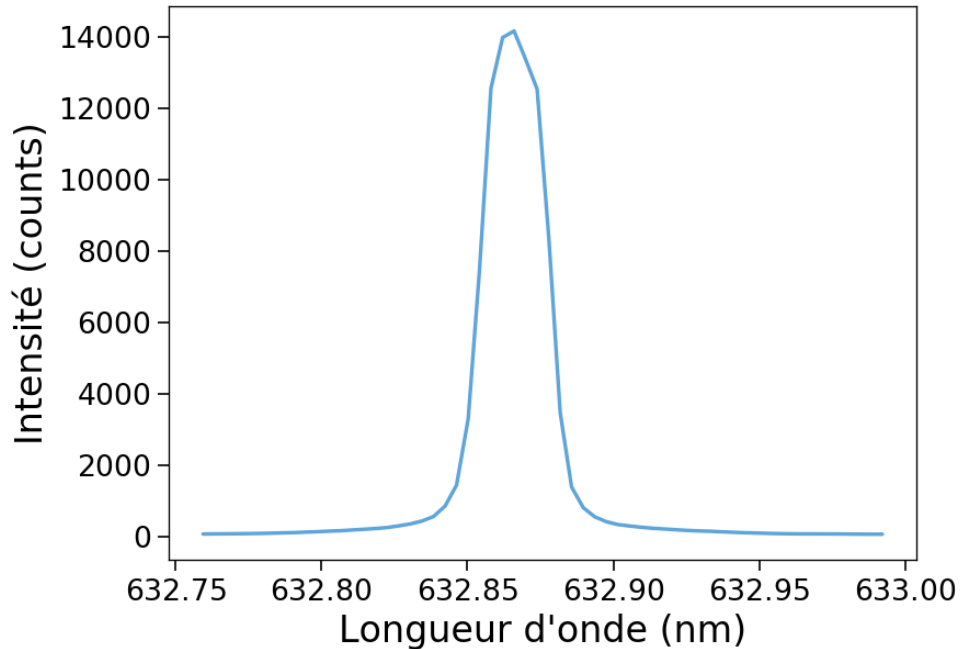


FIGURE 49 – Fonction d'appareil du spectromètre, obtenue par mesure de la réflexion d'un laser He-Ne pour le réseau de 2400 g/mm et une fente de 50  $\mu\text{m}$ .

Cette fonction d'appareil présente un profil gaussien, avec une largeur à mi-hauteur (FWHM) de 23 pm. Cet élargissement se retrouvera sur toutes les raies d'émission mesurées par le spectromètre avec ce réseau. On présente figure 50 un exemple d'image de plasma obtenue après dispersion spectrale par le spectromètre. Cette dernière est obtenue avec le réseau de 2400 g/mm centré sur 378,5 nm, correspondant au spectre de  $\text{N}_2(\text{C})$ , le signal lumineux étant collecté pendant 0,5 s, à un point situé 2 cm en amont du "gap" de l'applicateur et moyenné 10 fois ; le plasma étant généré par l'applicateur surfatron ajustable, avec une puissance micro-onde consigne de 40 W et une fréquence de 2,427 GHz, un débit de gaz de 500 ml/min, composé à 99,5 % d'argon et 0,5 % d'air, à basse pression (de l'ordre de 300 mbar en amont du plasma, 10 mbar en aval).

L'ensemble des dispositifs expérimentaux utilisés pour caractériser ces plasmas micro-ondes générés dans des capillaires étant décrits, les chapitres suivants présenteront les résultats obtenus ; en premier lieu seront exposés les résultats de la caractérisation paramétrique macroscopique, ainsi que les effets du système de refroidissement forcé externe sur les propriétés macroscopiques du plasma.

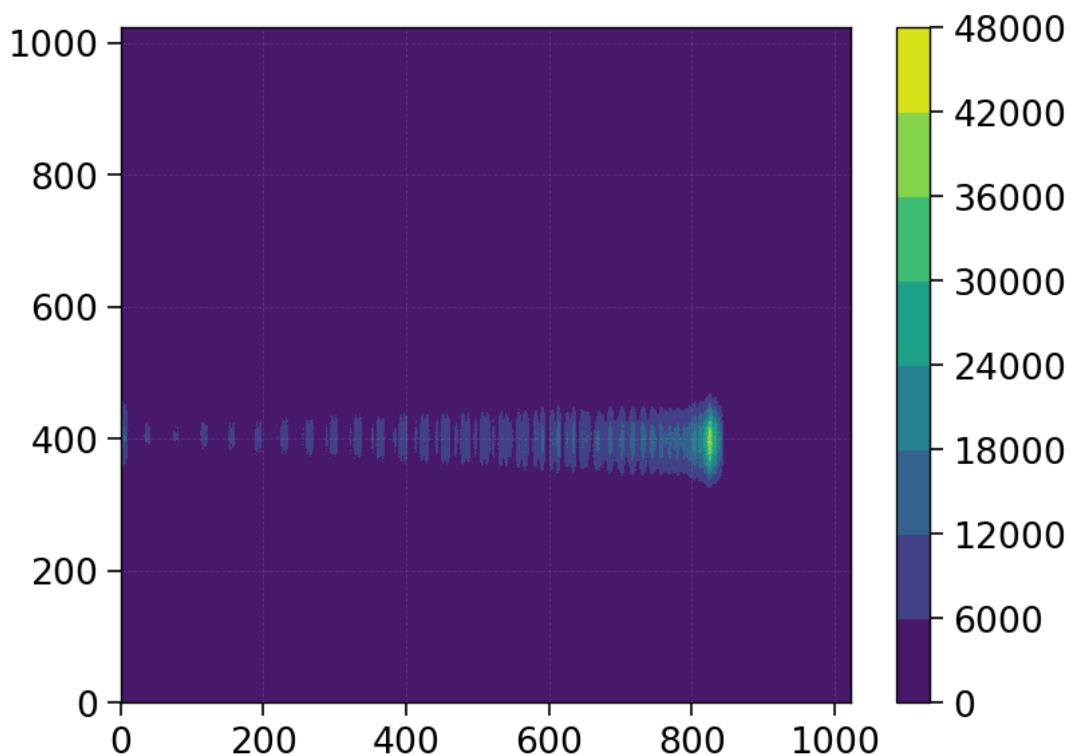


FIGURE 50 – Image de  $N_2(C)$  par réseau de 2400g/mm, centré sur 378,5 mm, d'un plasma généré par le surfatron ajustable, à basse pression, puissance consigne de 40 W, débit de gaz de 500 ml/min, 99,5 % d'argon et 0,5 % d'air, et signal collecté 2 cm en aval du "gap" de l'applicateur, intégré pendant 0,5 s. Les axes correspondent aux pixels de la caméra, décomposition spectrale en abscisse et distribution spatiale en ordonnée, et l'échelle de couleur à l'intensité collectée.

# Caractérisation macroscopique et couplage thermique de la décharge

---

Les décharges micro-onde dans les capillaires, peuvent être générées dans un spectre de conditions très larges, comme déjà mentionné dans le chapitre 1 : dans l'argon [77], l'air [96], l'hélium [98], des mélanges  $N_2/O_2$  [41],  $Ar/H_2$  [87], à basse pression, à pression atmosphérique et confiné [88] ou bien à pression atmosphérique en jet [89], pour des diamètres de capillaires de quelques millimètres [41] jusqu'à l'ordre de la centaine de micromètres [95], et nécessitant une puissance micro-onde de l'ordre du watt [77] ou allant jusqu'au kilowatt [105].

Afin de caractériser la décharge étudiée ici par rapport à ces multiples exemples de la littérature, diverses études paramétriques sont réalisées. Elles permettent de mesurer divers paramètres de la décharge : la puissance incidente, et réfléchi (mesurée par le générateur ou les puissances-mètres) et donc l'efficacité du couplage ; la longueur de la colonne de plasma générée, et donc sa densité de puissance ; la pression en amont et en aval du capillaire ; le tout, en fonction de la fréquence et la puissance des micro-ondes incidentes, du débit et de la composition du gaz, ainsi que de l'applicateur utilisé.

De plus, étant donnée la configuration particulière de ces plasmas confinés dans des capillaires, il y a un très fort gradient de température, entre le coeur du plasma, à une température de l'ordre de 1000 K, et la paroi externe du capillaire de l'ordre de 500 K d'après des exemples comparables de la littérature [95], résultat qui sera confirmé par les mesures spectroscopiques du chapitre 5. Le flux thermique à travers le capillaire peut être contrôlé par un système d'écoulement externe, décrit dans la partie 2.3, ce qui implique une importante modification des conditions aux limites, et donc potentiellement un contrôle des paramètres plasma. Les résultats de ces études seront exposés dans ce chapitre.

## 3.1 Étude des différents applicateurs et de leur couplage de puissance

En premier lieu, notre intérêt s'est porté sur l'étude des applicateurs utilisés, décrits dans la partie 2.1.1. En particulier, nous étudions le couplage micro-onde de ces applicateurs, qui permettront de conforter la réponse spectrale mesurée précédemment avec l'analyseur de réseau, et également de confronter les mesures réalisées par le générateur à celles des puissances-mètres. Il est à mentionner que pour ces expériences, aucun dispositif d'adaptation d'impédance n'est utilisé.



Premièrement, pour le cas de l'applicateur surfatron (sa variante "ajustable") une étude de la puissance incidente et réfléchie mesurées à la fois par le générateur et les puissances-mètres (cf. configuration figure 31) est représentée figure 51. Ces données sont obtenues dans un plasma généré à basse pression (avec la pompe primaire, pression en amont du capillaire de l'ordre de la centaine de millibars, pression en aval de l'ordre de la dizaine de millibars) avec un flux d'argon pur de 500 ml/min, et une fréquence micro-onde de 2,427 GHz, sans couplage thermique externe. Ces conditions expérimentales seront les conditions "standard" utilisées dans la plupart des expériences décrites dans cette section.

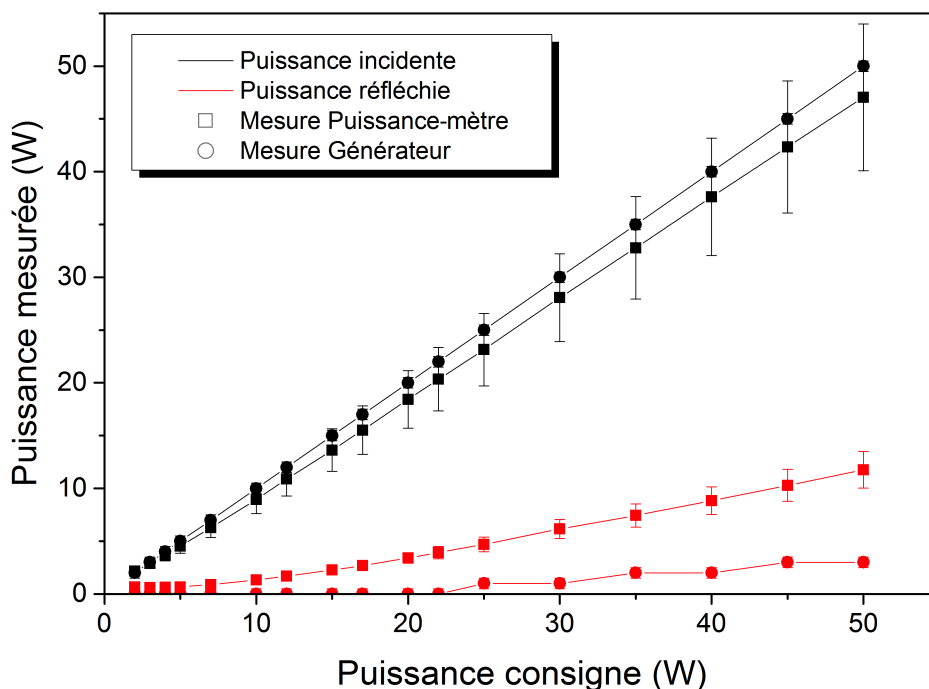


FIGURE 51 – Puissances incidentes et réfléchies en fonction de la puissance consigne, mesurées par le générateur et les puissances-mètres, pour l'applicateur surfatron. Débit d'argon de 500 ml/min, fréquence de 2,427 GHz, basse pression.

Il est à noter que, pour toutes les expériences, l'alignement du capillaire et donc son centrage à l'intérieur de l'applicateur est un paramètre important, très sensible, et complexe à contrôler : "l'optimum" de couplage micro-onde n'est pas toujours obtenu lorsque l'axe du capillaire est centré par rapport à l'applicateur, et l'exposition sur de longues durées au plasma peut modifier légèrement la courbure du capillaire, et donc son centrage dans l'applicateur. Ces effets peuvent conduire à une modification des paramètres plasma jusqu'à 10 %, notamment pour la puissance réfléchie mesurée par le puissance-mètre et la longueur de la colonne de plasma, et peuvent donc expliquer des inconsistances ou un manque de reproductibilité entre les mesures. Pour limiter ces effets au maximum, la plupart des mesures seront réalisées consécutivement avec le même applicateur, le changement d'un applicateur pour un autre étant la source la plus susceptible de provoquer un changement d'alignement du capillaire.

On constate que la mesure de la puissance incidente est relativement proche pour les deux méthodes (au plus un écart de 5 %), aux incertitudes près ; néanmoins la différence systématique, en l'occurrence une mesure inférieure donnée par le puissance-mètre, s'explique par les pertes de puissance le long du câble coaxial, son point de mesure étant en aval de ce dernier. Cet écart augmente avec la puissance consigne, la perte en transmission du câble, définie par le rapport entre la puissance micro-onde mesurée à ses deux extrémités, mesurée en dB, est une valeur de l'ordre de 0,1 dB qui ne dépend pas de la

puissance micro-onde le traversant, les pertes augmentent donc avec la puissance. En revanche, l'écart est beaucoup plus important pour la puissance réfléchi : pour 50 W de puissance consigne, le générateur indique 3 W de puissance réfléchi et le puissance-mètre 12 W. Globalement, cet écart s'amplifie pour des valeurs plus importantes de la puissance consigne, et peut s'expliquer également par les pertes le long du câble coaxial, mais aussi par la mesure interne au sein du générateur, qui peut avoir des sources de pertes supplémentaires, et donc donner lieu à une sous-estimation de la puissance réfléchi mesurée par le générateur. Cet écart pourrait également s'expliquer par une adaptation d'impédance imparfaite au niveau des puissance-mètres, cependant les résultats obtenus avec une différence très faible entre la puissance incidente mesurée par le générateur et le puissance-mètre confirme que l'impédance au niveau des puissance-mètres reste similaire au reste du circuit.

Ainsi, alors qu'une mesure au générateur peut nous donner une efficacité de couplage (rapport  $\frac{P_{\text{inp}} - P_{\text{ref}}}{P_{\text{inp}}}$ ) de plus de 95 %, proche des valeurs données traditionnellement dans la littérature [72] [74], les puissance-mètres permettent de nous donner une valeur plus correcte et moins surestimée de ce couplage, qui est de l'ordre de 70 % à 85 % ; ces résultats de mesure de puissance seront détaillés dans la partie 4.2. L'adaptation d'impédance est donc sur-estimée si l'on ne prend en compte que les mesures de puissance au générateur, ce qui est traditionnellement fait. Ces effets sont similaires pour le strip-line ; dans les deux cas on utilisera donc uniquement les mesures données par les puissance-mètres, les expressions "puissance réfléchi" et "puissance incidente" feront toujours référence (sauf mention explicite du contraire) aux mesures réalisées par les puissance-mètres.

De la même façon, on peut étudier la variation des puissances incidentes et réfléchies en fonction de la fréquence micro-onde utilisée. Ces résultats sont présentés figures 52 et 53 respectivement pour le surfatron et le strip-line, et obtenus à basse pression, pour un débit d'argon pur de 500 ml/min et une puissance consigne de 20 W.

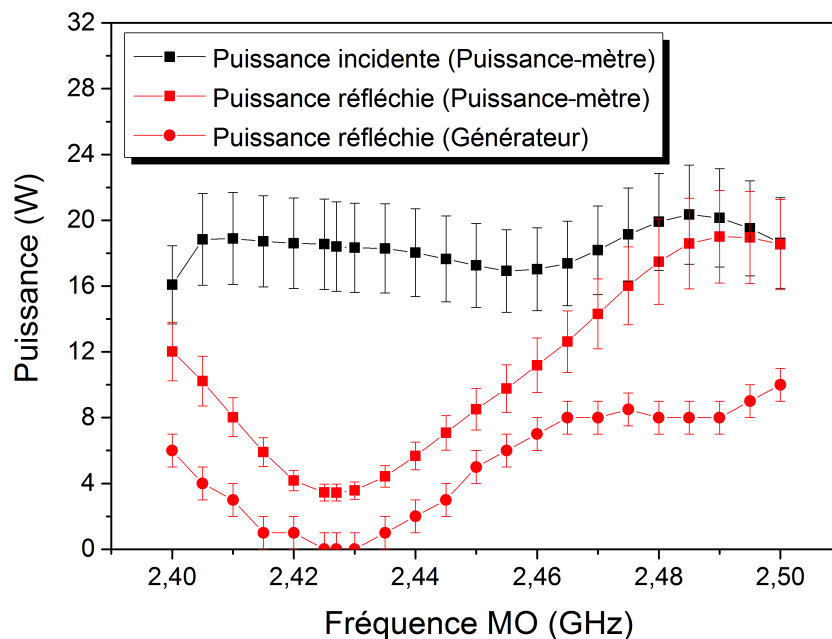


FIGURE 52 – Puissances réfléchi et incidente, mesurées par le générateur et les puissance-mètres, en fonction de la fréquence micro-onde pour le surfatron. Débit d'argon de 500 ml/min, puissance consigne 20 W, basse pression.

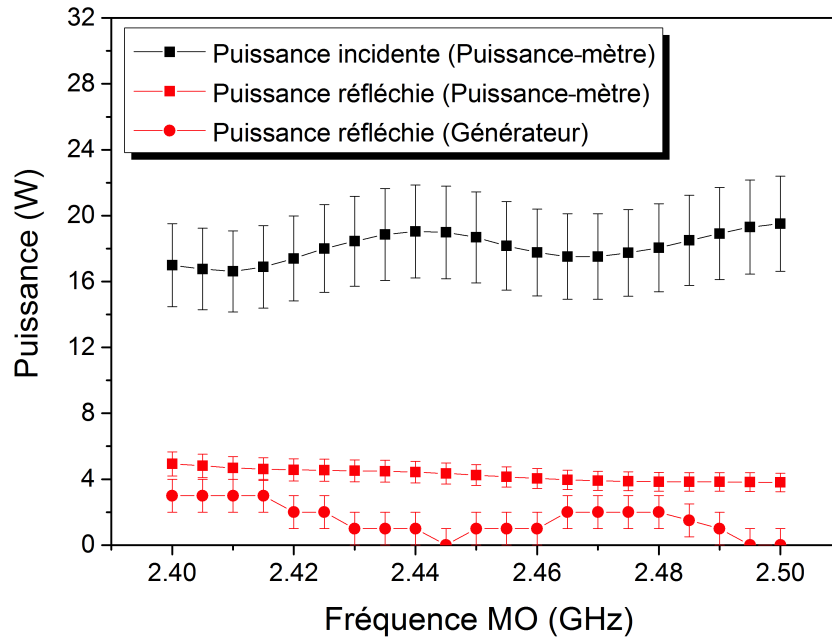


FIGURE 53 – Puissances réfléchie et incidente, mesurées par le générateur et les puissance-mètres, en fonction de la fréquence micro-onde pour le strip-line. Débit d'argon de 500 ml/min, puissance consigne 20 W, basse pression.

On constate en premier lieu que, pour le surfatron, l'écart entre la puissance réfléchie mesurée par le générateur et le puissance-mètre est très importante sur toute la gamme de fréquence, et l'est même particulièrement pour les valeurs maximales de fréquence, surestimant grandement la puissance injectée dans le plasma pour des expériences sans mesures par puissance-mètre à proximité de l'applicateur. L'amplitude de variation est beaucoup plus importante pour la puissance réfléchie que pour l'incidente ; cette puissance réfléchie présente un minimum de 4 W pour une fréquence de 2,427 GHz, et un maximum pour les plus hautes fréquences à plus de 18 W, très proche de la puissance incidente mesurée, et également de la puissance consigne de 20 W, indiquant un couplage de puissance presque nul. La puissance incidente est relativement proche de cette valeur consigne sur toute la gamme de fréquence, mais montre malgré tout une fluctuation significative, entre 16 et 20 W, avec un profil semblant décorrélé de celui de la puissance réfléchie. Cette fluctuation de la puissance incidente mesurée par le puissance-mètre s'explique par la transmission du câble, qui dépend aussi de la fréquence, impliquant donc des pertes différentes.

Pour le cas du strip-line, le profil de la puissance réfléchie est beaucoup plus "plat" : on observe une décroissance monotone le long de la gamme spectrale, partant d'un maximum de 5 W jusqu'à 3,8 W. La puissance incidente elle, tout comme le cas du surfatron, montre une variation d'amplitude de 4 W environ (de 16 à 20 W), mais un profil non monotone, et semblant décorrélé de la puissance réfléchie. Dans tous les cas, il est important de rappeler qu'ici aucun système d'adaptation d'impédance n'est utilisé.

Ces profils de puissance réfléchie en fonction de la fréquence sont comparables aux réponses spectrales des applicateurs (cf. figure 26) dans la gamme spectrale atteignable par le générateur, la réponse du strip-line est fluctuante mais relativement constante sans extrema marqués, à l'inverse du surfatron, qui présente un minimum autour de 2,427 GHz. Ces mesures nous permettent d'obtenir l'efficacité de couplage des applicateurs, telle que définie précédemment, en fonction de la puissance consigne (pour une fréquence fixée à 2,45 GHz pour le strip-line, 2,427 GHz pour le surfatron) et de la fréquence (pour 20 W de puissance

micro-onde consigne), pour ces deux applicateurs, donc de comparer leurs efficacités. Ces résultats sont représentés respectivement sur les figures 54 et 55.

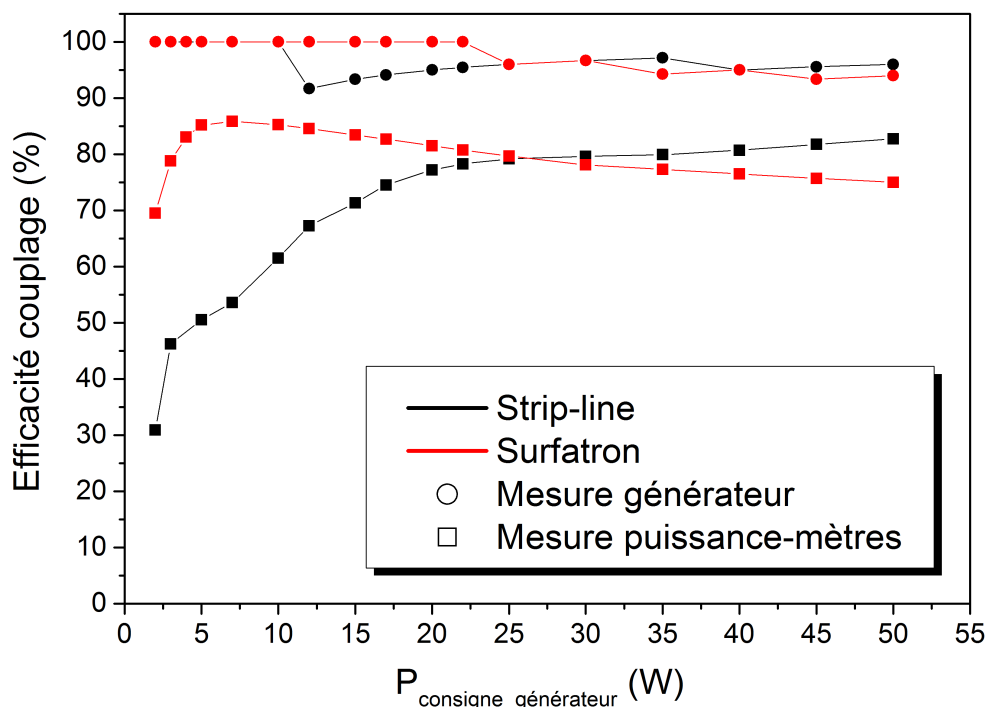


FIGURE 54 – Efficacité de couplage en fonction de la puissance micro-onde consigne, pour les 2 applicateurs. Débit d’argon de 500 ml/min, fréquence 2,45 GHz pour le strip-line, 2,427 GHz pour le surfatron, basse pression.

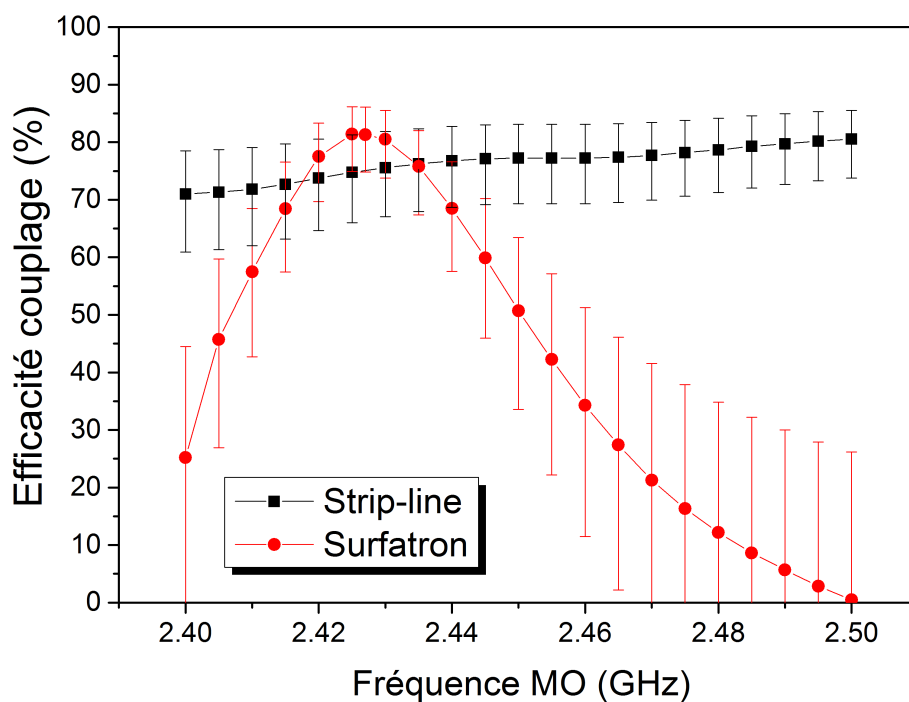


FIGURE 55 – Ratio des puissances réfléchie et incidente, en fonction de la fréquence micro-onde, pour les 2 applicateurs. Débit d’argon de 500 ml/min, puissance consigne 20 W, basse pression.

Les résultats de l'efficacité de couplage en fonction de la puissance consigne montrent un profil semblable pour les deux applicateurs lorsque les mesures sont faites au générateur, avec un couplage proche de 100 % pour les faibles puissances et toujours supérieur à 90 %, en accord avec les résultats de la littérature. Lorsque la mesure est faite par les puissance-mètres, des disparités apparaissent entre les deux applicateurs : pour le surfatron, sur toute la plage de puissance consigne étudiée, l'efficacité de couplage est au minimum de l'ordre de 70 %, avec un maximum à 85 % pour des faibles valeurs de puissance. À l'inverse, pour le strip-line on a une efficacité très faible, inférieure à 50 %, pour des puissances consignées inférieures à 10 W. L'efficacité croît de façon quasi-linéaire avec la puissance consigne jusqu'à 25 W environ, puis se stabilise autour de 80 %. L'efficacité mesurée par les puissance-mètres est comparable pour les deux applicateurs autour de 20-35 W de puissance consigne. Dans ces conditions ils pourront donc à priori être utilisés indifféremment. Les mesures réalisées au puissance-mètres présentent une moins bonne efficacité de couplage que les résultats de la littérature (qui quasi-systématiquement réalisent les mesures au générateur), mais ces mesures par les puissances-mètres à proximité de l'applicateur donnent une idée plus précise du couplage réel de l'applicateur seul.

La variation de fréquence montre également un profil en accord avec les mesures de l'analyseur de réseau présentées dans la partie 2.1.1. Pour le strip-line, l'efficacité de couplage est comprise entre 70 et 80 %, avec des fluctuations plutôt faibles et comparables aux incertitudes, et décroît globalement pour une fréquence croissante. Pour le surfatron, on observe un maximum plus important, à 82 % pour une fréquence de 2,427 GHz, et des valeurs qui diminuent très rapidement à mesure que l'on s'éloigne de ce maximum, jusqu'à mesurer une puissance réfléchie presque égale à celle incidente (cf. figure 55). Ainsi, afin d'optimiser le couplage micro-onde, on se placera toujours à 2,427 GHz pour les études mettant en jeu le surfatron, en revanche, on se placera arbitrairement à 2,450 GHz pour le strip-line (le centre de la gamme atteignable par le générateur), l'influence de la fréquence micro-onde étant beaucoup plus faible pour cet applicateur. Ce choix est également préféré par rapport à l'optimum "réel" de couplage, à 2,50 GHz, car c'est la fréquence limite atteignable par le générateur, la fiabilité des appareils étant généralement moins importante à leurs limites, pour ici un gain en couplage relativement faible.

Les optima de couplage micro-onde en fonction de la puissance et de la fréquence micro-onde ayant été établis pour les deux applicateurs étudiés, nous nous focaliserons désormais sur l'étude de différents paramètres propres à la décharge, afin d'en réaliser une étude paramétrique.

## 3.2 Caractérisation paramétrique de la décharge

### 3.2.1 Études en gaz non-réactif à basse pression

Comme montré précédemment, le couplage micro-onde du système est imparfait, signifiant qu'une part de la puissance consigne n'est pas injectée dans le plasma, car dissipée le long du câble coaxial et des éléments de couplage micro-onde, ou bien réfléchie vers le générateur. Il conviendra donc de s'intéresser à la *puissance couplée*, c'est à dire la différence entre les puissance incidente et réfléchie (mesurées par les puissances-mètres), comme paramètre variable, car plus directement lié à la réalité physique d'injection de puissance dans le plasma. Également, l'un des paramètres montrant un couplage important de la puissance micro-onde, est la longueur de la colonne de plasma, donnant le volume de milieu réactif généré.

En premier lieu, on étudiera l'évolution de ces deux paramètres, longueur de plasma et puissance couplée, en fonction de la fréquence micro-onde utilisée, et ce pour les deux applicateurs utilisés ; les résultats obtenus pour les deux applicateurs sont présentés figure 56. Ces résultats sont obtenus à basse pression, pour un débit d'argon de 500 ml/min, une puissance consigne de 20 W, sans écoulement de refroidissement externe.

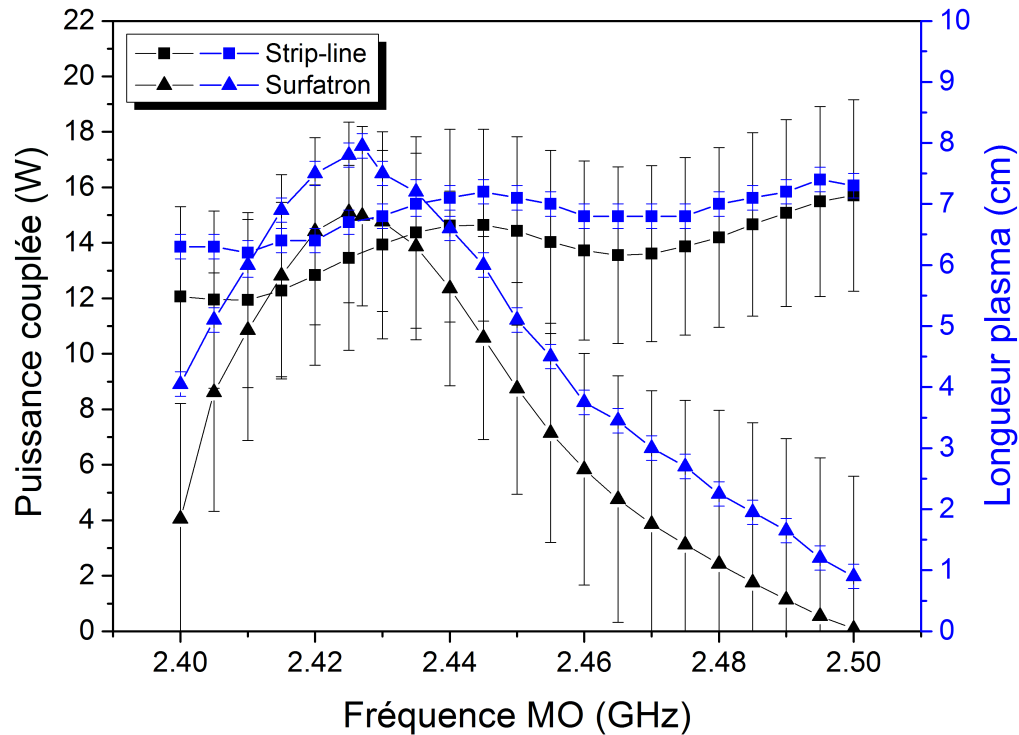


FIGURE 56 – Longueur de plasma et puissance couplée en fonction de la fréquence micro-onde consigne, pour les deux applicateurs. Débit d'argon de 500 ml/min, puissance consigne 20 W, basse pression.

Comme décrit précédemment, la présence de l'applicateur empêche l'accès optique à une partie de la colonne de plasma, celle en amont du gap pour le surfatron, et le centre du plasma pour le strip-line. Avec ce dernier, la longueur totale du plasma ne peut donc être mesurée que lorsqu'il s'étend au-delà de l'applicateur des deux côtés, on ajoutera donc la longueur de la colonne occultée par l'applicateur, 2,2 cm, aux longueurs mesurées en amont et en aval. Dans le cas du surfatron, la partie en amont du gap n'est pas accessible, et contrairement au strip-line, pour toutes les conditions expérimentales étudiées, le plasma ne s'étend jamais en amont de l'applicateur (8 cm en amont du gap), cette partie, et donc la longueur totale du plasma, est donc impossible à mesurer directement ... Une précédente étude hydrodynamique de plasmas micro-onde dans des capillaires générés par des surfatrons permet d'estimer la longueur totale d'un plasma, grâce à la mise en évidence d'un rapport "2/3;1/3" pour la longueur de plasma se situant respectivement en aval et en amont du gap du surfatron [95]. Bien que ce résultat ait été obtenu pour des conditions expérimentales différentes (diamètre interne de capillaire de 690  $\mu\text{m}$  et débit de 43 ml/min) on utilisera dans un premier temps ce rapport, en supposant donc la valeur de la longueur de plasma en amont comme égale à la moitié de celle en aval, directement mesurable. Chaque mesure de longueur sera soumise à une incertitude de 1 mm, donc l'incertitude sur la longueur totale de la colonne de plasma pour le strip-line sera 2 mm, et 1,5 mm pour le surfatron. À noter que cette incertitude sur le surfatron est probablement sous-estimée, étant donné que le rapport des longueurs amont et aval n'est pas obtenu directement, et dans des conditions différentes.

Pour les deux applicateurs, on constate des profils similaires entre la puissance couplée et la longueur de plasma. Pour le strip-line, le maximum de longueur, 7,4 cm, est obtenu pour une fréquence de 2,5 GHz ; cette valeur est très proche de celle obtenue pour la fréquence qui sera utilisée "par défaut" pour cet applicateur, à savoir 2,45 GHz, pour lequel on obtient une longueur de 7,3 cm (soit un écart avec la longueur maximale mesurée comparable aux incertitudes). L'amplitude de la variation de la longueur de plasma sur la gamme spectrale étudiée est de 1 cm, soit une variation de 15 %. Dans le cas du surfatron, en accord avec le profil de son couplage, on observe un maximum de longueur autour de la fréquence optimale de 2,427 GHz donnant un plasma de 8 cm de long, et décroissant rapidement en s'éloignant de ce maximum, jusqu'à un minimum de 1 cm pour 2,50 GHz, soit une amplitude totale de 7 cm, 87 % de variation, confirmant la sensibilité en fréquence beaucoup plus importante pour cet applicateur.

De la même façon, on peut étudier la variation de la longueur de plasma, en fonction de la puissance couplée, pour les deux applicateurs. Ces résultats sont toujours obtenus dans les conditions expérimentales précédemment décrites (débit d'argon pur a 500 ml/min, basse pression, fréquences optimales et absence de couplage thermique externe) et sont représentés figure 57.

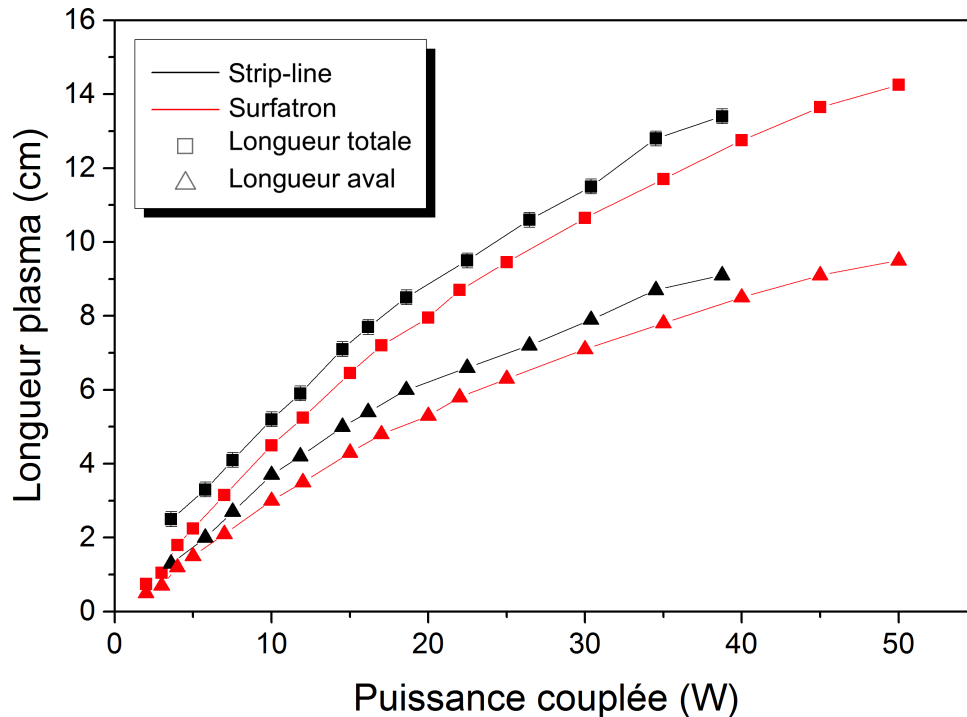


FIGURE 57 – Longueur de plasma, totale et en aval du centre de la décharge en fonction de la puissance couplée, pour les deux applicateurs. Débit d'argon de 500 ml/min, fréquence 2,45 GHz pour le strip-line, 2,427 GHz pour le surfatron, basse pression.

Comme attendu au vu des profils similaires entre puissance couplée et longueur de plasma en fonction de la fréquence, on observe ici des régimes quasi-linéaires, en particulier pour les faibles puissances, et une augmentation de la longueur légèrement moins rapide pour de plus hautes puissances. Pour expliquer cette tendance, il faut partir de l'équation de propagation de l'onde de surface le long de la direction  $z$ , où le plasma à la position  $z$  a une densité électronique  $n_e$  [106], avec  $\alpha$  ( $m^{-1}$ ) coefficient d'atténuation de l'onde. :

$$\frac{dn_e}{dz} = \frac{-2\alpha n_e}{1 - \frac{n_e}{\alpha} \frac{d\alpha}{dn_e}} \quad (3.1)$$

Pour une onde de surface,  $\alpha$  augmente quand  $n_e$  diminue (l'onde ne peut plus se propager sur le diélectrique en l'absence de plasma), d'où  $\frac{d\alpha}{dn_e} < 0$ , le dénominateur du membre de droite de l'équation 3.1 est positif. Par conséquent,  $\frac{dn_e}{dz}$  est négatif : la densité électronique est maximale au gap, et décroît jusqu'à l'extinction du plasma en bout de colonne lorsque la densité électronique atteint sa densité critique de  $n_c = 7,4 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  à 2,45 GHz (cf. partie 1.4.2). L'évolution de  $\alpha = f(n_e)$  montre une variation très faible pour les densités électroniques mises en jeu ici, voir résultats partie 5.3.1 (asymptote horizontale pour des hautes densités électroniques) à l'exception de l'extrémité de la colonne (faibles densités électroniques et asymptote verticale de  $\alpha = f(n_e)$ ) [95]. On pourra donc considérer sur la quasi-totalité de la colonne de plasma que  $\frac{d\alpha}{dn_e} \simeq 0$ , et donc  $\frac{dn_e}{dz} \simeq -2\alpha n_e$ . Finalement,  $\alpha(z)$  étant de la forme  $\frac{1}{n_e}$  [95], on a  $\frac{dn_e}{dz} \simeq cste$  : la densité électronique décroît linéairement le long de la colonne.

Les résultats présentés figure 57 montrent que la longueur de plasma croît avec la puissance qui lui est couplée. Le constat précédent, donnant une densité électronique linéairement décroissante le long de la colonne, est indépendant du paramètre de puissance couplée. Les profils de densité électronique ont donc la même pente, indépendamment de la puissance couplée, et tombent toujours à 0 à la fin de la colonne. Ainsi, une addition de puissance couplée augmente la densité électronique au niveau du gap et décale le plasma existant vers le bout de la colonne : une tranche de plasma supplémentaire est alors créée, proportionnelle à l'ajout de puissance. Une illustration de cet effet, avec des profils de densité électronique, est représentée figure 58 extraite de [107].

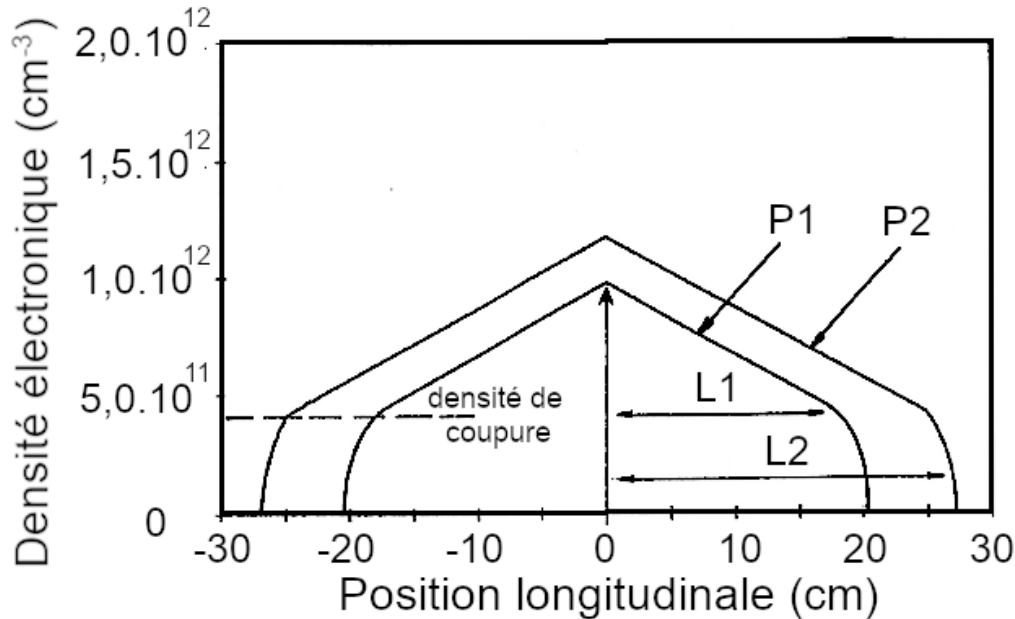


FIGURE 58 – Profil longitudinal de densité électronique calculé pour deux puissances couplées ( $P_2 > P_1$ ) donnant deux longueurs de plasmas différentes ( $L_2 > L_1$ ).

Dans la littérature on trouve comme résultat classique une linéarité entre puissance couplée et longueur de plasma pour des décharges micro-onde dans des tubes de diamètres supérieurs au millimètre [89] [105]. Dans un cas faiblement collisionnel ( $\nu_{en} \ll \omega_p$ ) on a  $\alpha$  proportionnel à la fréquence de collision électrons-neutres  $\nu_{en}$ , et donc la décroissance de  $n_e(z)$  est proportionnelle à  $\nu_{en}$ . Or,  $\nu_{en}$  reste constant le long de la colonne sous l'hypothèse de variations de pression faibles, ce qui n'est pas le cas ici (pressions de l'ordre de 100 mbar en amont du capillaire, 10 mbar en aval) en raison du faible diamètre de capillaire, induisant des pertes de charge (cf. discussion ultérieure et [95]). Ces variations de pression, de plus en plus importantes avec la puissance couplée (cf. résultats ultérieurs présentés figures 61 et 70) confirment la tendance observée ici, et de façon générale pour les plasmas dans les capillaires, à savoir un régime



linéaire aux faibles puissances, puis amorti au fur et à mesure que le différentiel de pression, et donc la fréquence de collision, croissent avec la puissance couplée. Les effets de l'augmentation de puissance sur les paramètres microscopiques de la décharge pour des conditions expérimentales comparables seront détaillés dans la partie 5.3.1.

Les résultats de la figure 57 nous montrent également qu'il suffit d'une puissance couplée de quelques watts, 2 W pour le surfatron, pour maintenir un plasma stable dans les conditions expérimentales employées. Cette valeur minimale de la puissance couplée pour laquelle un plasma peut être généré est de 4 W pour le strip-line, telle qu'indiquée par la figure, mais est en réalité de l'ordre de 2 W également car le plasma étant entièrement occulté par l'applicateur, sa longueur n'est pas mesurable directement.

Étonnamment, bien que le surfatron soit caractérisé par une efficacité de couplage plus importante, et que la fréquence utilisée pour le strip-line ne soit pas totalement optimale (cf. figure 55), on observe que le plasma généré par ce dernier est toujours systématiquement plus long que celui généré par le surfatron, de l'ordre de 1 cm. Cet écart pourrait s'expliquer par l'imprécision du rapport "2/3;1/3" utilisé pour la mesure de la longueur amont du plasma généré dans le surfatron. Cependant cette différence est également visible sur la longueur en aval (sous-entendu, en aval du centre de la décharge, soit le gap pour le surfatron et le centre de l'applicateur pour le strip-line), qui est mesurable directement, donc cet écart ne pourrait s'expliquer par une sous-approximation de ce rapport. Cet écart significatif entre les deux applicateurs semble indiquer un meilleur couplage de la puissance micro-onde en volume de plasma pour le strip-line, ou bien des pertes thermiques plus importantes au sein du surfatron.

Pour s'assurer de la validité du rapport entre les longueurs de plasma "amont" et "aval", donné à 33%/66% pour le surfatron d'après [95], ce rapport fut également mesuré pour le strip-line, en fonction de la puissance couplée, et pour 3 conditions de débit différentes et présenté figure 59.

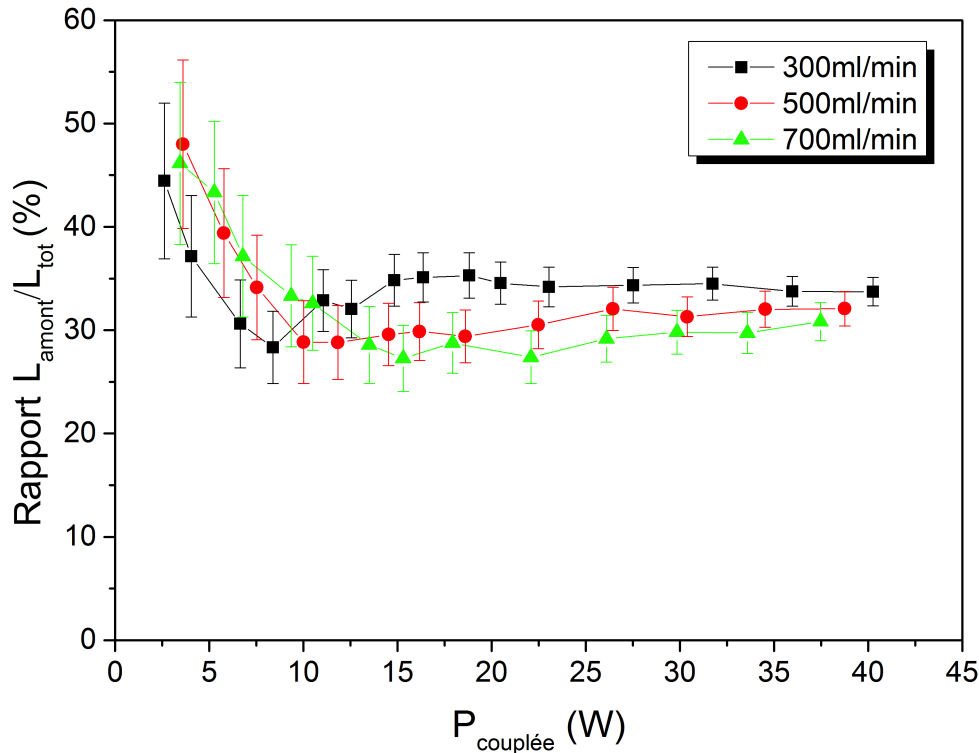


FIGURE 59 – Rapport de longueurs de plasma amont et totale en fonction de la puissance couplée, pour l'applicateur strip-line et pour 3 différents débits d'argon. Fréquence : 2,45 GHz.

On constate que pour les 3 valeurs de débit utilisées, le rapport des longueurs "amont/aval" est compris entre 40 et 50 % pour les plus faibles valeurs de puissances auxquelles le plasma peut être généré, et converge pour de plus hautes puissances vers une valeur comprise entre 30 et 35 %. Dans le cas de faibles puissances consigne on est, d'après le résultat de la figure 54, dans la situation où l'efficacité de couplage est faible. Cette convergence du rapport des longueurs se produit pour des puissances comprises entre 10 et 20 W, gamme de puissance pour laquelle on observe également que l'efficacité de couplage se stabilise vers 80 % d'après la figure 54. A noter que, pour des mesures réalisées à pression atmosphérique (plasma confiné dans le tube ou en "jet") on obtient les mêmes tendances d'un rapport qui tend vers 33 % pour des puissances couplées de l'ordre de 20 W. On a donc une concordance de ce rapport de longueurs dans le cas où le couplage est important, autour de 33 % pour le strip-line, tout comme la valeur donnée dans la littérature pour le surfatron, confortant ce résultat.

Ces études nous confirment donc la validité des mesures de la longueur de la colonne de plasma, pour les deux applicateurs, et donc ce résultat contre-intuitif d'un plasma légèrement plus long pour l'applicateur strip-line, ayant pourtant un couplage légèrement moins efficace. Cet écart, bien qu'au-delà des barres d'erreur, reste modéré, et pourrait s'expliquer par d'autres incertitudes expérimentales, telles que le centrage du capillaire dans l'applicateur, comme décrit plus haut, ou des pertes thermiques plus importantes pour le cas du surfatron.

L'évolution de la longueur du plasma et de la puissance couplée en fonction du débit d'argon pour une puissance consigne de 40 W est représentée figure 60 (les séries de puissance couplée ne présentent qu'un seul point avec son incertitude typiques dans un soucis de clarté).

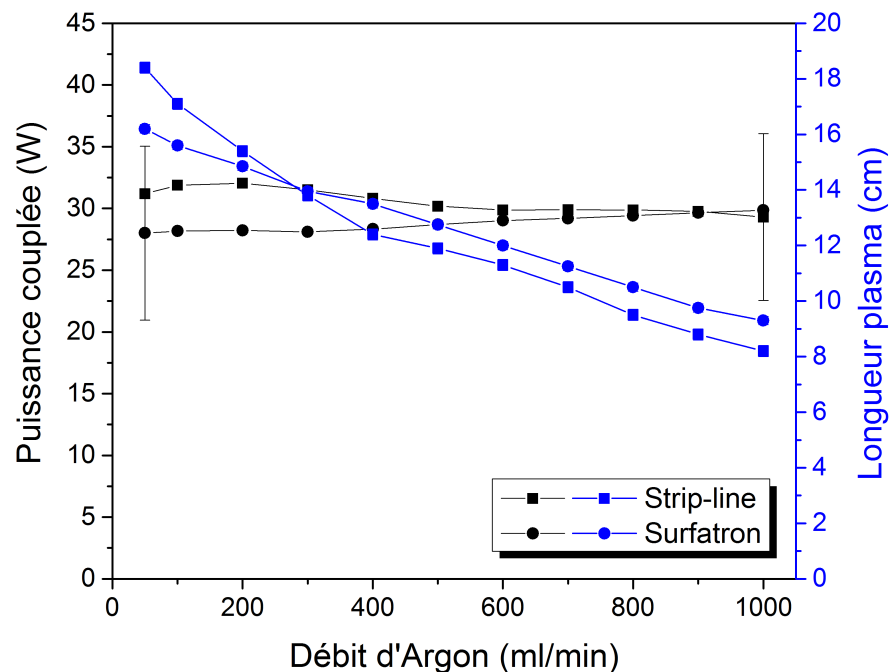


FIGURE 60 – Longueur de plasma et puissance couplée en fonction du débit d'argon, pour les deux applicateurs. Basse pression, fréquence strip-line : 2,45 GHz, surfatron : 2,427 GHz, puissance consigne 40 W. Les séries de puissance couplée ne présentent qu'une valeur typique de leur incertitude.

On constate des profils différents pour les deux applicateurs : pour les plus faibles valeurs de débit (en deçà de 200 ml/min), la colonne de plasma est légèrement plus longue dans le cas du strip-line ; pour des valeurs de débits supérieures, la tendance s'inverse en faveur du surfatron. Cet écart de longueur entre

les deux applicateurs est au plus l'ordre du centimètre, une valeur supérieure à l'incertitude de mesure de longueur et de celle provenant du rapport "longueur amont/longueur aval" du surfatron, qui n'est pas connu avec précision. Le profil de puissance couplée présente également une légère disparité entre les deux applicateurs pour des débits inférieurs à 500 ml/min avec un écart en faveur du strip-line, ce qui explique la tendance pour les longueurs de plasma. L'écart entre la puissance couplée par les deux applicateurs décroît faiblement avec le débit, les barres d'erreur sont supérieures à cet écart.

Cette configuration expérimentale nous permet également un suivi de la pression mesurée en amont et en aval du capillaire. Les précédentes études hydrodynamiques de tels plasmas ont démontré l'importance du débit de gaz, en particulier de la pression en amont du capillaire, la présence de plasma agissant comme un "bouchon" dans l'écoulement du gaz, menant à une augmentation de cette pression amont [95]. Tout comme dans cet exemple, ici la pression en aval du capillaire est toujours mesurée comme étant constante, quel que soit le paramètre varié (à l'exception du débit et de la composition du gaz), et ne sera donc pas représentée, à l'inverse de la pression en amont, dont l'évolution en fonction de la puissance couplée, pour les deux applicateurs et 3 débits d'argon différents (tous à basse pression) est présentée figure 61.

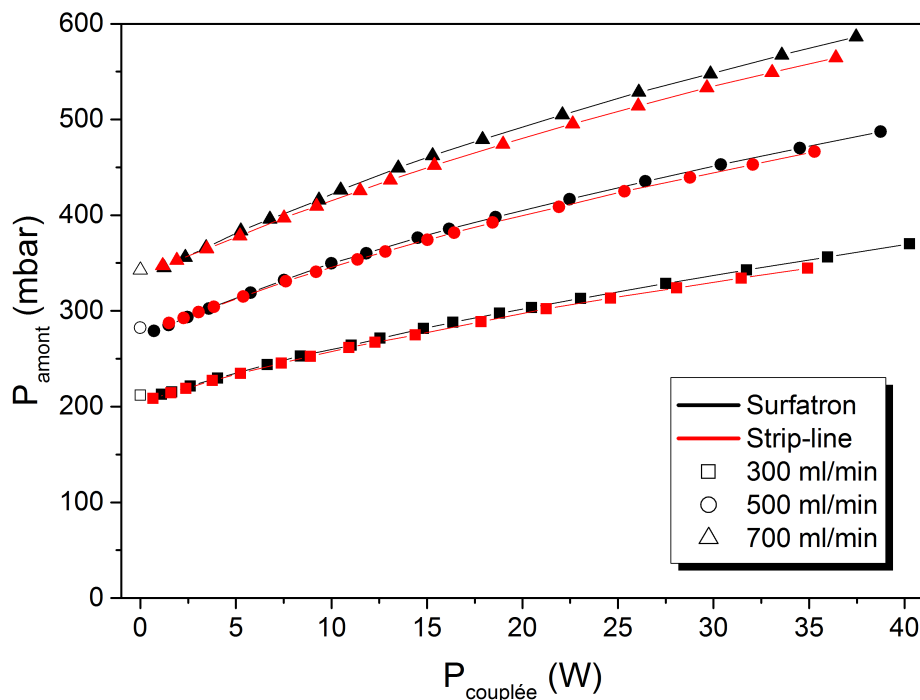


FIGURE 61 – Pression mesurée en amont du capillaire en fonction de la puissance couplée pour les deux applicateurs. Basse pression, fréquence pour le strip-line : 2,45 GHz, pour le surfatron : 2,427 GHz.

L'élévation de pression est de l'ordre de la centaine de millibars, ce gain représentant jusqu'à 50 % par rapport à la pression sans plasma pour les plus hautes puissances couplées. Le profil observé est croissant, monotone, et similaire à celui de la longueur de plasma en fonction de la puissance couplée. L'expression de ces deux paramètres, longueur de plasma et pression en amont du capillaire, l'un en fonction de l'autre, est représentée figure 62.

On constate comme attendu une dépendance linéaire en première approximation entre la pression mesurée en amont du capillaire et la longueur de la colonne de plasma. La pente de cette courbe est légèrement plus élevée et présente un léger "offset" pour le cas du strip-line, en accord avec les différences de couplage observées entre les applicateurs.

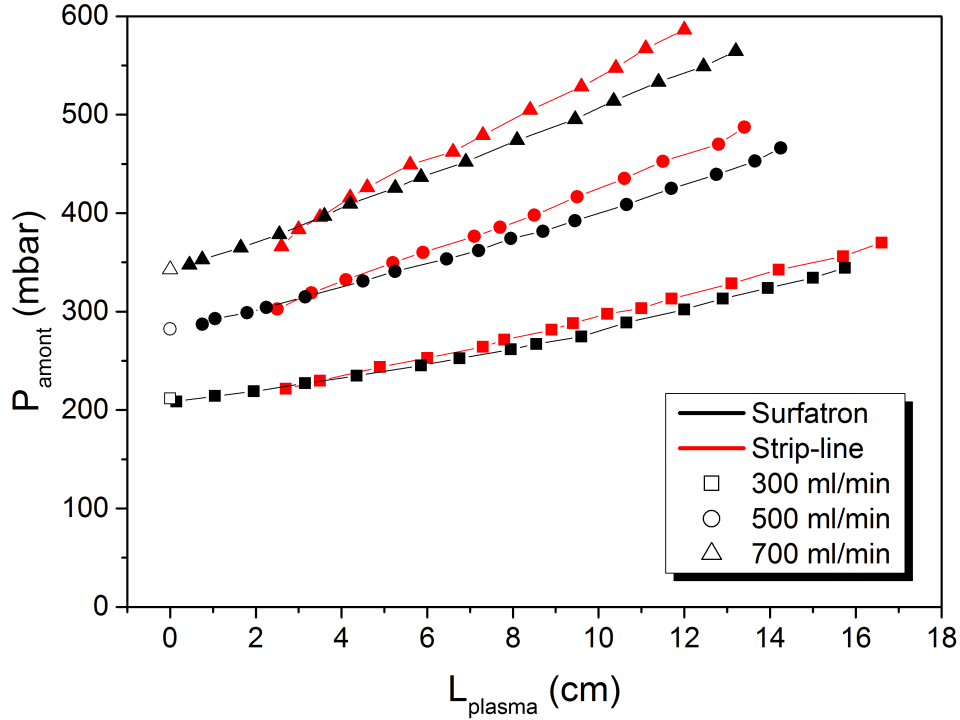


FIGURE 62 – Pression mesurée en amont du capillaire en fonction de la longueur du plasma pour les deux applicateurs. Basse pression, fréquence pour le strip-line : 2,45 GHz, pour le surfatron : 2,427 GHz.

Ces effets sur la pression peuvent s'expliquer par un changement des pertes de charge le long de l'écoulement. Leur détermination dépend du régime d'écoulement du gaz au sein du capillaire (laminaire ou turbulent), et nécessite donc de calculer le nombre de Reynolds  $Re_D$ , défini dans un écoulement établi dans un cylindre de diamètre  $D$  comme :

$$Re_D = \frac{\rho(T)v_0 D}{\mu(T)} \quad (3.2)$$

Avec :

- $v_0$  (m/s) : Vitesse de l'écoulement moyennée sur le diamètre de cylindre.
- $\mu(T)$  (Pa.s) : Viscosité dynamique du gaz de l'écoulement.

Ici pour calculer les nombres de Reynolds des écoulements de gaz dans le capillaire, on considère un débit volumique typique utilisé, à savoir 500 ml/min, soit  $8,33 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ . Ce débit volumique est pris dans les conditions standards, à savoir pour une pression de 1,013 bar et 273,15 K ; la masse volumique de l'argon  $\rho_{argon}$  vaut dans ces conditions  $\rho_{argon} = 1,6 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  [108] ce qui donne un débit massique  $\dot{m}_{argon} = 1,33 \times 10^{-5} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-1}$ . Ce débit massique est constant le long du circuit de gaz, étant donné le régime stationnaire, et peut également s'exprimer avec la vitesse d'écoulement du gaz  $v_{gaz}$  et la section du capillaire  $S$  par :

$$\dot{m}_{argon} = \rho_{argon}(T, P)v_{gaz}(T, P)S \quad (3.3)$$

Le produit  $\rho_{argon}(T, P)v_{gaz}(T, P)$  est donc constant le long de l'écoulement ; la valeur de  $Re_D$  dépend de la viscosité dynamique, qui dépend de la température elle-même non constante le long de l'écoulement, mais pouvant être encadrée entre 300 et 1000 K. Dans cet intervalle de température, on aura  $\mu_{argon}(T)$  compris entre  $2,27\text{-}5,51 \times 10^{-5}$  Pa.s, les valeurs étant croissantes avec la température et très peu dépendantes de la pression [109]. Pour notre cas d'un capillaire de 1 mm de diamètre interne, on aura ainsi un nombre de Reynolds compris entre 306 et 742, soit un régime laminaire ( $Re_D < 2300$ ). A noter que pour les valeurs maximales de débit volumique possibles ici (1000 ml/min) et pour une température de 300 K, soit la combinaison donnant le plus grand nombre de Reynolds, ce dernier correspond toujours au cas du régime laminaire ( $Re_D = 1483$ ), on sera donc pour toutes les configurations expérimentales étudiées ici dans ce régime.

Dans le régime d'écoulement laminaire, et sous l'hypothèse d'un écoulement incompressible (en première approximation), le coefficient de friction  $\Lambda$  (sans unité) est donné par le diagramme de Moody et peut s'exprimer par [110] :

$$\Lambda = \frac{64}{Re} \quad (3.4)$$

Les pertes de charges  $e_f$  (J/kg) dans une section cylindrique de longueur  $L$  et diamètre  $D$  d'un fluide s'écoulant à vitesse  $v$  peuvent alors s'exprimer en fonction de  $\Lambda$  et d'autres paramètres de l'écoulement, puis finalement on pourra définir la différence  $\Delta P$  de pression entre sections du capillaire séparées d'une distance  $L$  :

$$e_f = \Lambda \frac{L}{D} \frac{v^2}{2} \quad (3.5)$$

$$\Delta P = \rho e_f = \frac{32Lv\mu}{D^2} \quad (3.6)$$

Comme décrit précédemment, la viscosité du gaz est croissante avec la température (pour l'argon sur la plage 300-1000 K) et la vitesse augmente pour conserver le débit massique. Le gaz d'écoulement étant chauffé en présence de plasma, la valeur du coefficient de perte de charge augmente dans ce cas d'après l'équation 3.6. Cette dernière n'est cependant valide que pour un fluide incompressible, ce qui n'est pas le cas ici. Elle permet néanmoins de qualifier le phénomène, à savoir que des plus grands volumes de plasma et avec de plus hautes températures sont créés lorsque la puissance couplée est plus importante, ce qui augmente la viscosité du gaz, et sa vitesse, d'où un différentiel de pression plus important.

Finalement, on représente sur la figure 63 l'évolution de la densité de puissance volumique du plasma, correspondant à la puissance couplée en fonction du volume de plasma (en considérant la colonne comme un cylindre parfait) en fonction de la puissance couplée, pour les deux applicateurs et 3 valeurs de débit différentes. Dans un souci de clarté, chaque série n'est représentée qu'avec un seul point avec son incertitude, pour en montrer les valeurs typiques.

On constate globalement des profils similaires, avec des densités de puissance de l'ordre de  $100 \text{ W.cm}^{-3}$ , linéairement croissantes, à raison d'une augmentation moyenne de  $3 \text{ W.cm}^{-3}$  pour 1 W de puissance couplée supplémentaire. Pour les points à plus basse puissance, la tendance s'inverse pour le surfatron et les densités de puissance deviennent très importantes, mais les incertitudes également, en raison de

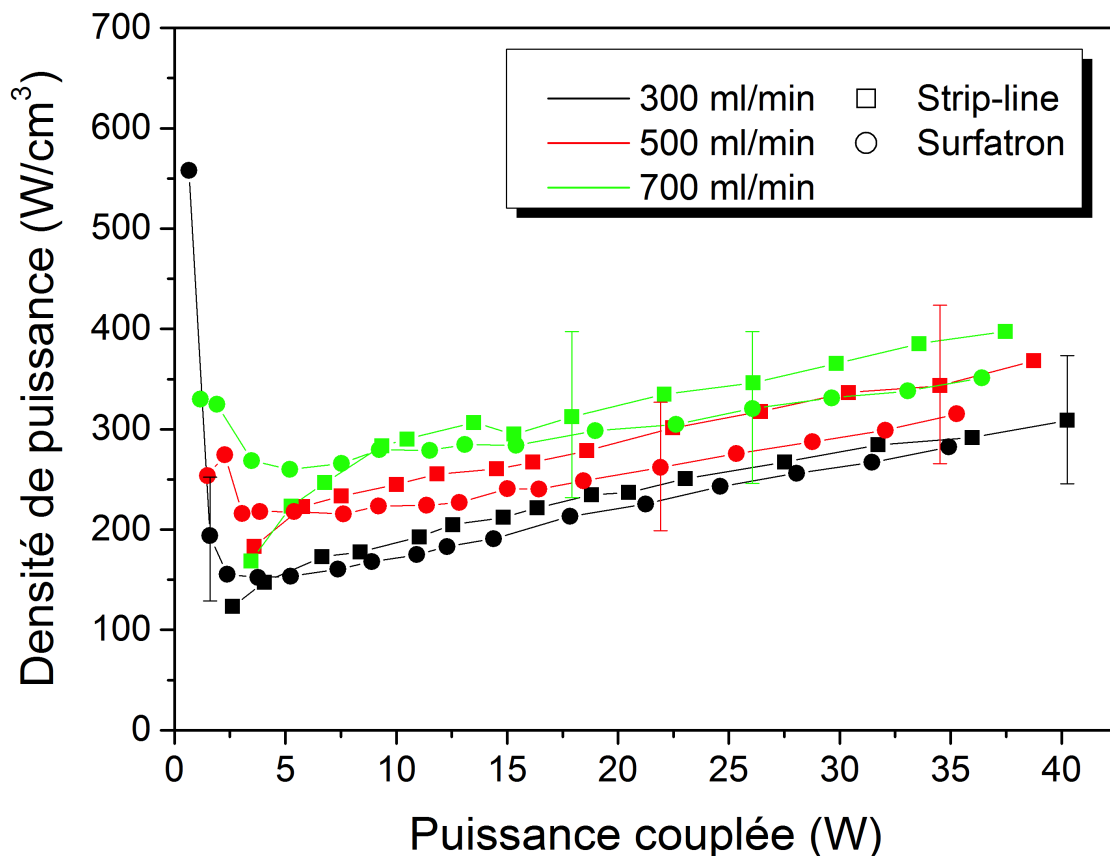


FIGURE 63 – Densité volumique de puissance en fonction de la puissance couplée, pour les deux applicateurs et différents débits. Toutes les séries ne présentent qu'une valeur typique des incertitudes.

la très faible longueur de la colonne de plasma. Les densités de puissance sont globalement plus élevées pour des débits plus importants, ce qui correspond à des densités d'espèces plus importantes.

Sous les hypothèses présentées plus haut (plasma faiblement collisionnel et variations de pression faibles) la longueur de plasma évolue linéairement avec la puissance injectée, le profil de ces densités de puissance moyenne devrait être donc "plat", ce qui n'est pas constaté ici. Comme discuté plus haut (cf. figure 57) ici le faible diamètre de capillaire induit des pertes de charge, donc une importante variation de pression le long de la colonne, et donc un régime légèrement amorti, ce qui explique ce profil de densité de puissance différent de celui attendu.

Pour établir la comparaison avec d'autres méthodes de mesure de la densité de puissance injectée au plasma traditionnellement utilisées dans la littérature, à savoir considérer que la puissance couplée est uniquement la puissance incidente du générateur, ou bien lorsqu'elle est calculée à partir de la différence entre les puissances incidente et réfléchie lues au générateur, la densité de puissance en fonction de la puissance couplée pour le cas du strip-line avec un débit de 500 ml/min, est représentée figure 64.

Malgré des tendances comparables en fonction des 3 puissances, on constate que les méthodes traditionnelles donnent une surestimation de la densité volumique de puissance, de l'ordre de 20 à 30 %, ce qui conduit donc à une sur-interprétation pour les données utilisées pour les modèles numériques. La prise en compte des corrections du bilan de puissance du plasma, discutée plus haut, donnerait des valeurs réelles encore plus faible, jusqu'à un ordre de grandeur en dessous, renforçant cet effet de surestimation.

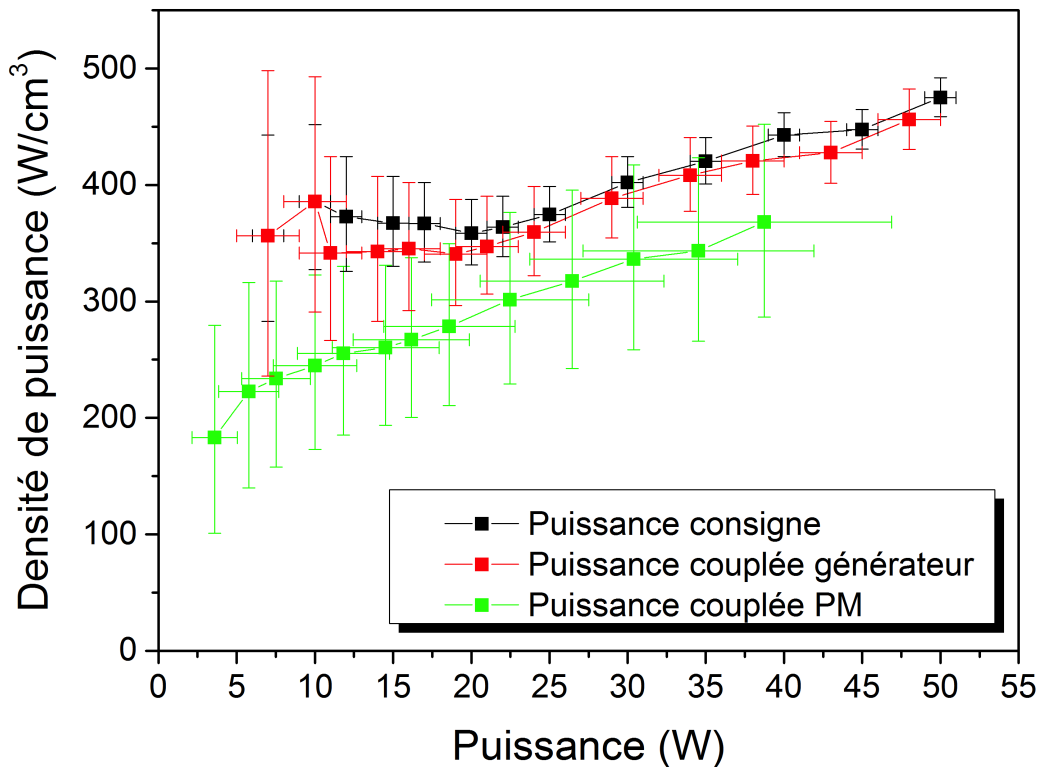


FIGURE 64 – Densité volumique de puissance couplée au plasma, pour l'applicateur strip-line et un débit d'argon de 500 ml/min, selon 3 méthodes de calculs de la puissance couplée différentes (consigne générateur, différence entre puissances incidente et réfléchiées données par le générateur, et détermination par les puissances-mètres).

Ces résultats expérimentaux peuvent être confrontés à d'autres valeurs données dans la littérature ; en particulier on s'intéressera ici à des résultats obtenus pour d'autres valeurs de diamètres internes de capillaire [95]. Les valeurs de densités de puissance volumique obtenues dans des conditions expérimentales comparables (applicateur surfatron à fréquence optimisée, débit d'argon pur de 43 ml/min, à basse pression) en fonction de la puissance consigne pour 4 différents capillaires sont représentées figure 65. Les points obtenus pour des puissances consignes identiques sont comparés, et tracés en fonction du diamètre de capillaire sur la même figure.

On constate que la tendance avec la puissance consigne est la même pour tous les diamètres de capillaires utilisés, à savoir une densité de puissance croissante avec la puissance consigne, en accord avec les résultats présentés figure 63. Le rapport "volume de plasma"/"surface interne du capillaire" croît avec le rayon interne du capillaire, on constate également que pour des rayons internes plus faibles, la densité de puissance croît. Or, la paroi interne est une source de perte d'électrons par recombinaisons  $\text{Ar}^+ + \text{paroi} \rightarrow \text{Ar}(X)$  après diffusion ambipolaire des espèces. Son coefficient de réaction est décroissant avec le rayon du cylindre du plasma [78] [111], conduisant à un plasma plus court et une densité de puissance plus importante pour un rayon plus faible. Les résultats obtenus pour notre capillaire à 1000  $\mu\text{m}$  de diamètre interne ne suivent cependant pas les tendances des points de référence, les valeurs obtenues étant proches du cas à 690  $\mu\text{m}$  (cf. figure insérée dans la figure 65). La densité de puissance obtenue est donc plus importante que ce qui pourrait s'extrapoler avec les résultats de référence, montrant un couplage plus efficace sur le système étudié ici. A noter que ces résultats de référence sont obtenus pour une mesure de puissance couplée directement obtenue au générateur, donc sur-estimée par rapport aux points à 1000  $\mu\text{m}$ , obtenus ici avec par mesure avec les puissance-mètres.

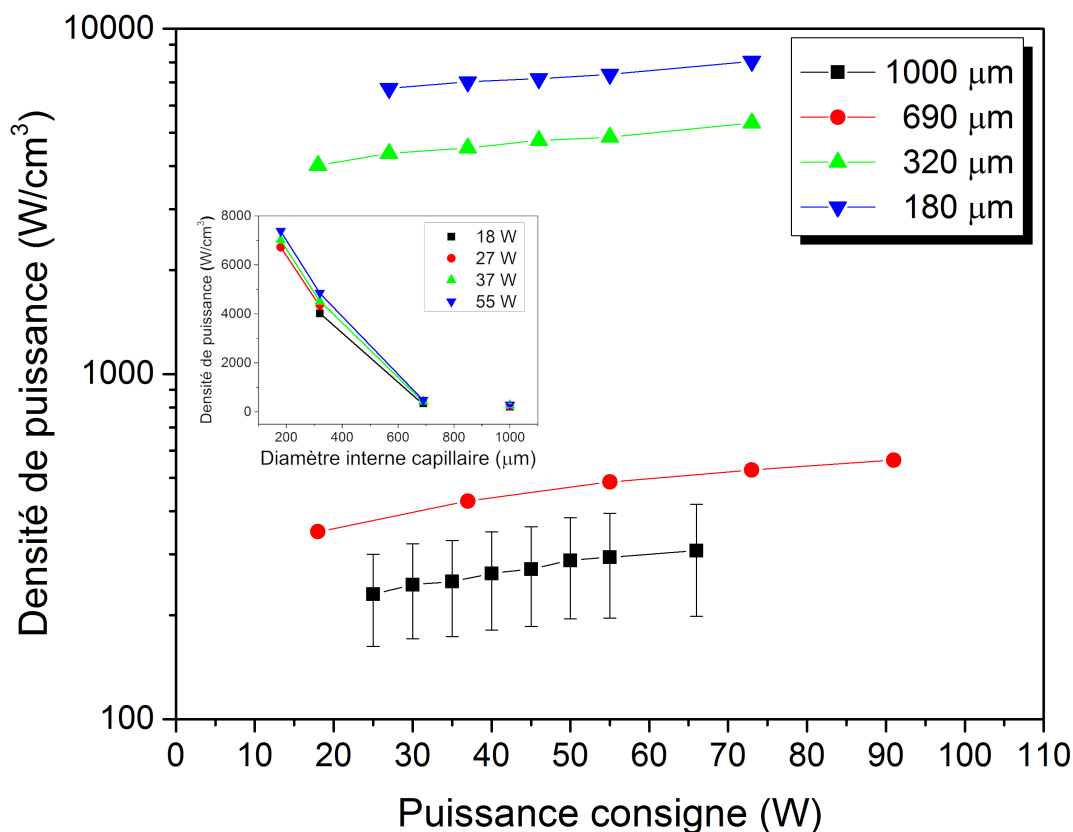


FIGURE 65 – Densité volumique de puissance couplée au plasma, pour un applicateur surfatron à fréquence optimisée, un débit d'argon de 43 ml/min, à basse pression, en fonction de la puissance consigne pour 4 différents diamètres interne/externe de capillaires (en  $\mu\text{m}$ ) : 1000/2000 ; 690/1400 ; 320/1400 et 180/1400. Les points pour les diamètres internes de 690, 320 et 180  $\mu\text{m}$  sont tirés de [95], et ceux à 1000  $\mu\text{m}$  sont obtenus avec le dispositif expérimental utilisé. Sont également représentés les points obtenus pour une même puissance consigne en fonction du diamètre de capillaire.

### 3.2.2 Études en gaz réactif

Les résultats précédents étaient présentés dans un gaz non-réactif (argon) et à basse pression, soit les conditions les plus favorables pour obtenir un plasma le plus long possible. Dans de tels cas, la puissance injectée est en effet majoritairement transférée dans les réactions d'ionisation du gaz, et non pas dans les degrés de liberté de rotation ou vibration possibles pour les gaz moléculaires, et la faible pression augmente le libre parcours moyen entre deux collisions, donc le gain d'énergie par les particules chargées transféré par l'onde de surface. Ici, on réalisera des études en milieu réactif, en introduisant dans le gaz une fraction d'air, tout en conservant le plasma confiné à l'intérieur du capillaire. Comme montré ultérieurement, cet ajout implique une contraction importante de la colonne de plasma, ainsi, les mesures seront exclusivement réalisées avec l'applicateur surfatron, qui permet un accès optique aux plasmas plus courts.

Dans un premier temps, on étudiera la longueur de plasma et la puissance couplée en fonction de la fraction d'air introduite dans le mélange gazeux. Les résultats pour une puissance consigne de 20 W et un débit de 500 ml/min sont exposés figure 66, pour des fractions d'air comprises entre 0 et 4 %, fraction maximale pour laquelle le plasma est toujours présent.



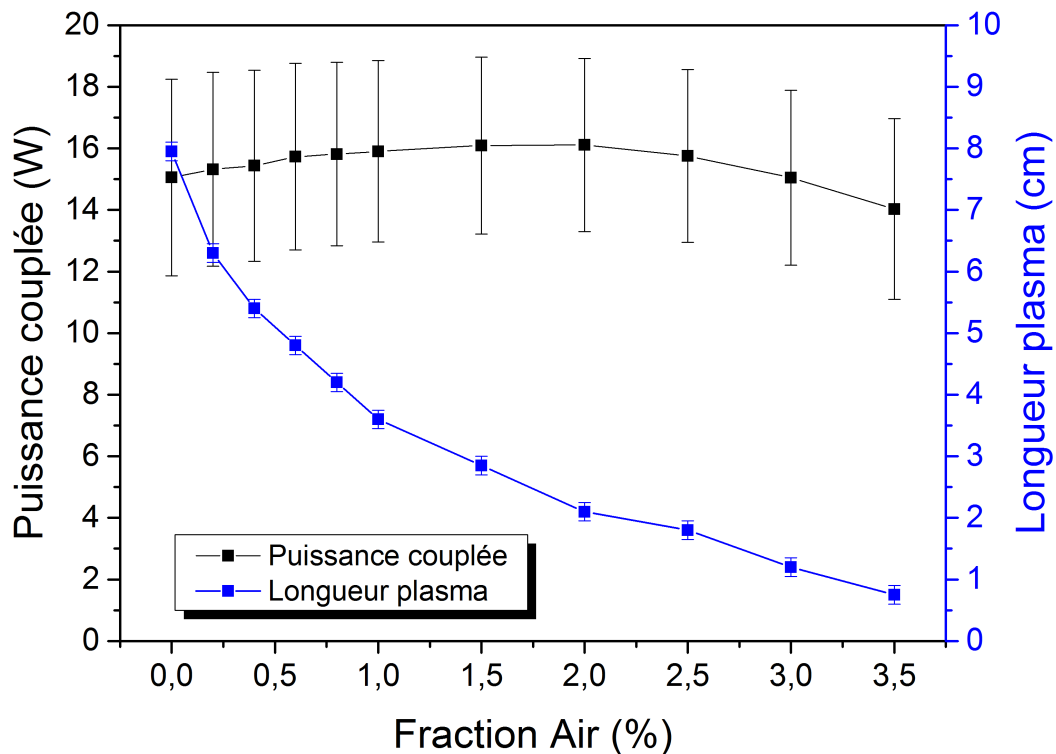


FIGURE 66 – Longueur de plasma et puissance couplée en fonction de la fraction d'air introduite dans le mélange pour une puissance consigne de 20 W et un débit de 500 ml/min.

Pour étudier de plus hautes fractions d'air, on présente les mêmes résultats cette fois pour une puissance consigne de 40 W, et un débit de 50 ml/min, pour une fraction d'air allant jusqu'à 40 %, sur la figure 67. Dans les deux cas on constate que la longueur de plasma décroît exponentiellement avec le débit d'air (colonne de plasma moitié moins longue dès 0,5 % d'air, et réduite de 66 % pour 2 % d'air), et qu'à l'inverse, la puissance couplée reste globalement constante, voire même croissante avec la fraction d'air introduite. Cela indique des effets importants du plasma sur l'excitation et la dissociation de  $N_2$  et  $O_2$ , dont l'introduction permet une amélioration du couplage micro-onde. Cette importante réduction de la colonne de plasma pour une puissance couplée stable laisse également supposer des effets sur la température du gaz et la densité électronique, qui seront détaillés dans la partie 5.3.3.

Ces profils nous permettent également de calculer la densité volumique de puissance injectée au plasma en fonction de la fraction d'air, représentée figure 68, pour 3 conditions de débits et de puissances différentes. On atteint ici des densités volumiques de puissance de l'ordre du kilowatt par  $cm^{-3}$  de plasma, pour des fractions d'air introduites supérieures au pourcent. La densité de puissance croît ici fortement avec la fraction d'air introduite, et ce pour toutes les conditions testées, en accord avec la réduction de la colonne de plasma avec la fraction d'air.

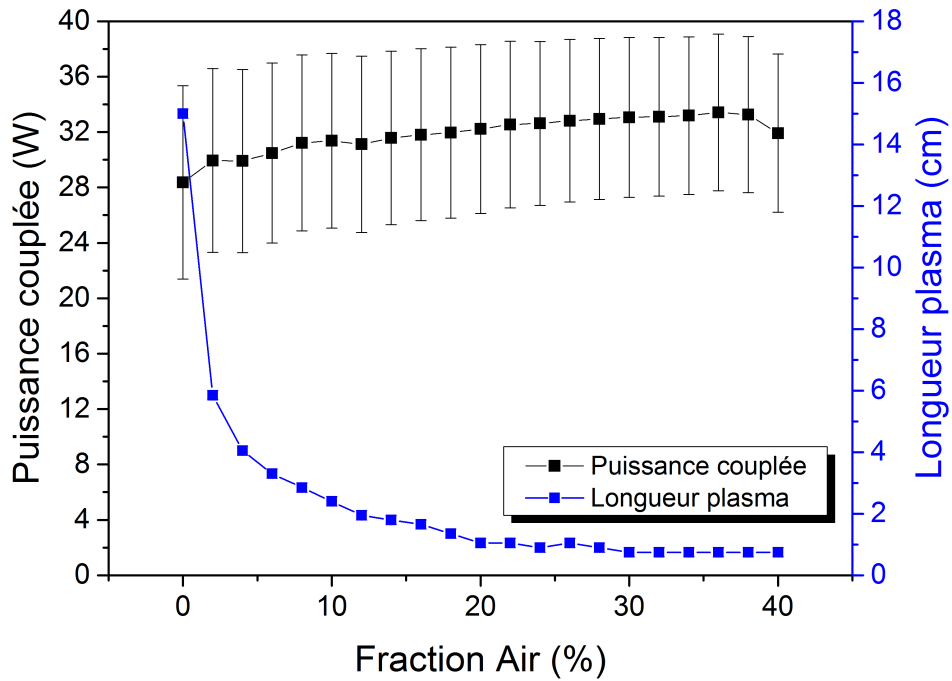


FIGURE 67 – Longueur de plasma et puissance couplée en fonction de la fraction d’air introduite dans le mélange pour une puissance consigne de 40 W et un débit de 50 ml/min.

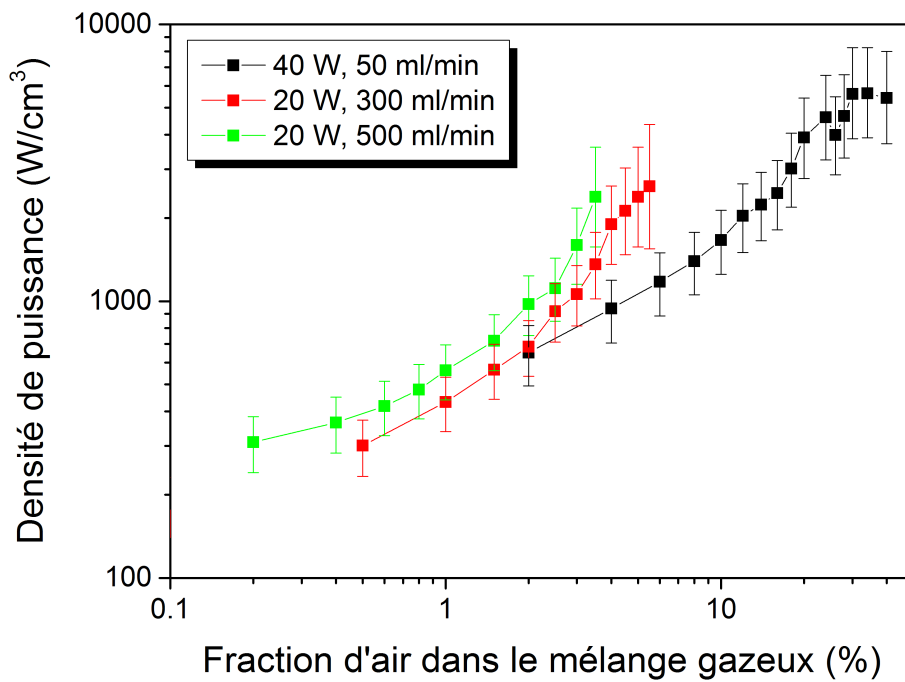


FIGURE 68 – Densité volumique de puissance couplée en fonction de la fraction d’air introduite dans le mélange.

### 3.2.3 Études à la pression atmosphérique et comparaisons avec basse pression

Enfin, on expose ici des résultats obtenus à pression atmosphérique, à la fois pour un plasma entièrement confiné dans le capillaire, et aussi pour un plasma en configuration de "jet", où l'extrémité du capillaire débouche vers l'air ambiant, et le plasma s'étend jusqu'à cette extrémité.

On représente dans un premier temps sur la figure 69 la longueur du plasma ainsi que la puissance réfléchie, en fonction de la puissance couplée, pour 3 cas de pression différentes : basse pression, pression atmosphérique et plasma jet (l'extrémité du capillaire étant située 2 cm en aval de l'applicateur). Toutes les autres conditions expérimentales sont fixées (débit d'argon pur de 500 ml/min, applicateur strip-line à 2,45 GHz, sans refroidissement externe). Dans un souci de clarté, chaque série de puissance réfléchie ne présente qu'une valeur typique d'incertitude.

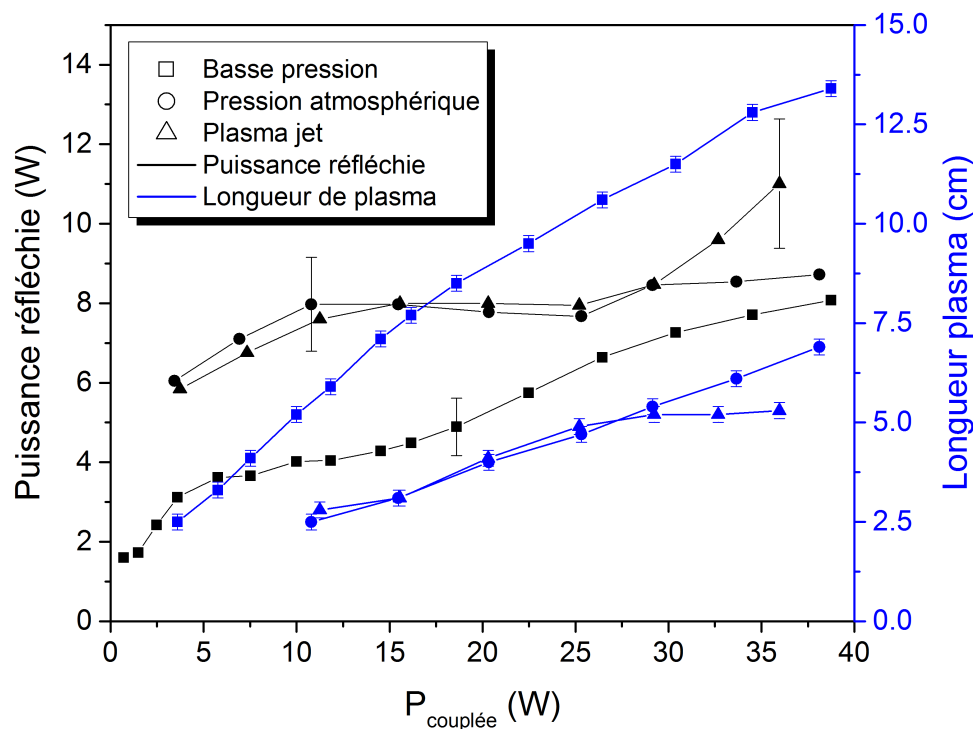


FIGURE 69 – Longueur de plasma et puissance réfléchie en fonction de la puissance couplée, à basse pression, pression atmosphérique, et en plasma jet, applicateur strip-line. Seule une valeur typique d'incertitude sur la puissance réfléchie est tracée par série.

On constate pour les deux cas de plasma confiné (basse pression et pression atmosphérique) une évolution linéaire de la longueur de la colonne de plasma ; dans le cas à basse pression, la puissance réfléchie croît de façon globalement linéaire en première approximation, mais reste toujours inférieure à celle du cas à pression atmosphérique, ayant un profil beaucoup plus plat. A contrario, en configuration de plasma jet et à partir d'une certaine puissance couplée (ici 25 W), le plasma arrive à un maximum de longueur (de l'ordre de 5 cm), et elle n'évolue plus. Le profil de puissance réfléchie pour le cas de plasma jet est très proche de celui obtenu pour le cas à pression atmosphérique jusqu'à 25 W (où la longueur de la colonne de plasma n'évolue plus) ; au delà, la puissance réfléchie augmente, avec une pente comparable à celle du cas à basse pression. Ce maximum apparent de longueur de plasma est dû à l'onde de surface qui n'a plus de support physique pour se propager au-delà du capillaire, le plasma n'est donc plus alimenté en puissance

micro-onde, et la puissance supplémentaire qui lui est envoyée est en partie réfléchiée. La propagation (de quelques millimètres) du plasma au-delà du capillaire est due au flux de gaz, ce qui est confirmé par une augmentation progressive de la longueur du "jet" en fonction du débit. De plus, à la différence du cas "pression atmosphérique" où le plasma reste confiné dans le capillaire et est composé d'argon pur, ici le mélange se fait avec l'air ambiant, ce qui conduit à un quenching rapide des états excités du plasma, comme l'attestent les résultats de la partie 3.2.2. Cependant, ces mesures ne permettent pas encore de savoir si, une fois la longueur maximale du plasma atteinte, la puissance consigne supplémentaire injectée est totalement réfléchiée, ou bien une partie est absorbée par le plasma, augmentant les valeurs de densité électronique et de température du plasma; la réponse à cette question sera donnée grâce aux études microscopiques qui seront exposées dans la partie 5.3.4.

Les études précédentes pour les cas à basse pression ont montré une importante élévation de la pression en amont du capillaire en présence de plasma; la comparaison avec les cas à pression atmosphérique et pour le plasma jet est montrée sur la figure 70. L'élévation en pression est bien moindre, étant limitée à quelques dizaines de millibars, soit une fluctuation de l'ordre du pourcent, tandis qu'à basse pression, on observe une augmentation allant au-delà de 50 %. Dans les cas dits «pression atmosphérique» et «plasma jet» les pressions mesurées (aval et amont pour «pression atmosphérique» et amont seulement pour «plasma jet») sont légèrement supérieures à la pression ambiante, à l'extérieur du capillaire. A la fois à pression atmosphérique et à basse pression, l'élévation est plus importante pour des plus hauts débits, tandis que le cas en plasma jet montre une élévation de pression plus faible, même à des puissances où la colonne de plasma est de même longueur que le cas à pression atmosphérique et confiné. Les pertes de charge sont en effet plus faibles dans le cas du jet, le gaz sortant directement dans l'air ambiant, à l'inverse du cas dit «pression atmosphérique» où le gaz parcourt une portion du capillaire en aval du plasma avant de se retrouver effectivement à pression atmosphérique.

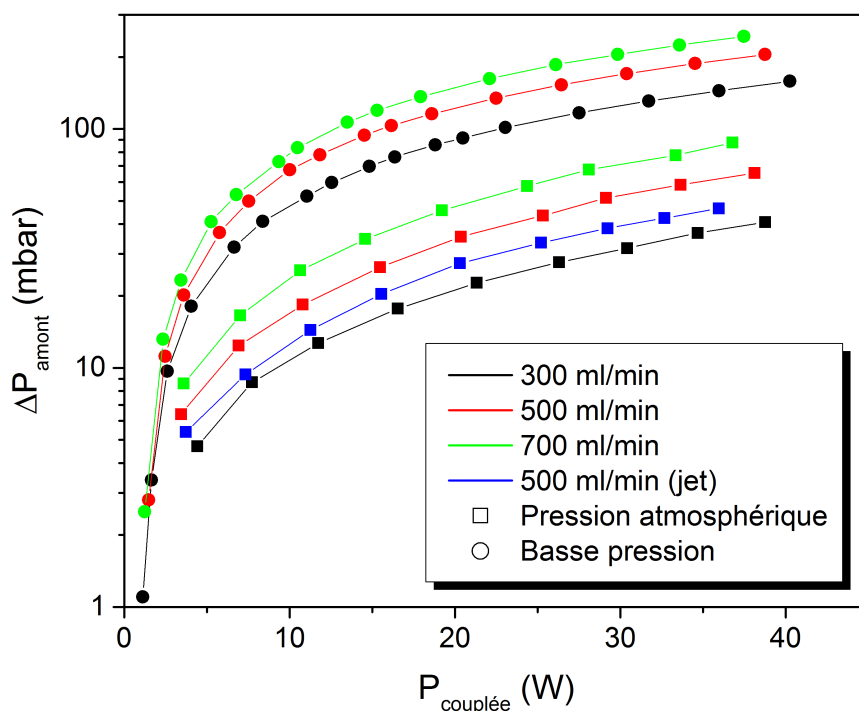


FIGURE 70 – Différentiel de pression en amont du capillaire en fonction de la puissance couplée, à basse pression, pression atmosphérique, et en plasma jet, applicateur strip-line.

Enfin, sur la figure 71 on présente la densité de puissance volumique couplée au plasma, en fonction de la puissance couplée mesurée par puissances-mètres, pour différents cas à pression atmosphérique, en plasma jet, pour plusieurs valeurs de débit et les deux applicateurs (dans un souci de clarté, seule une valeur typique d'incertitude sera tracée par série).

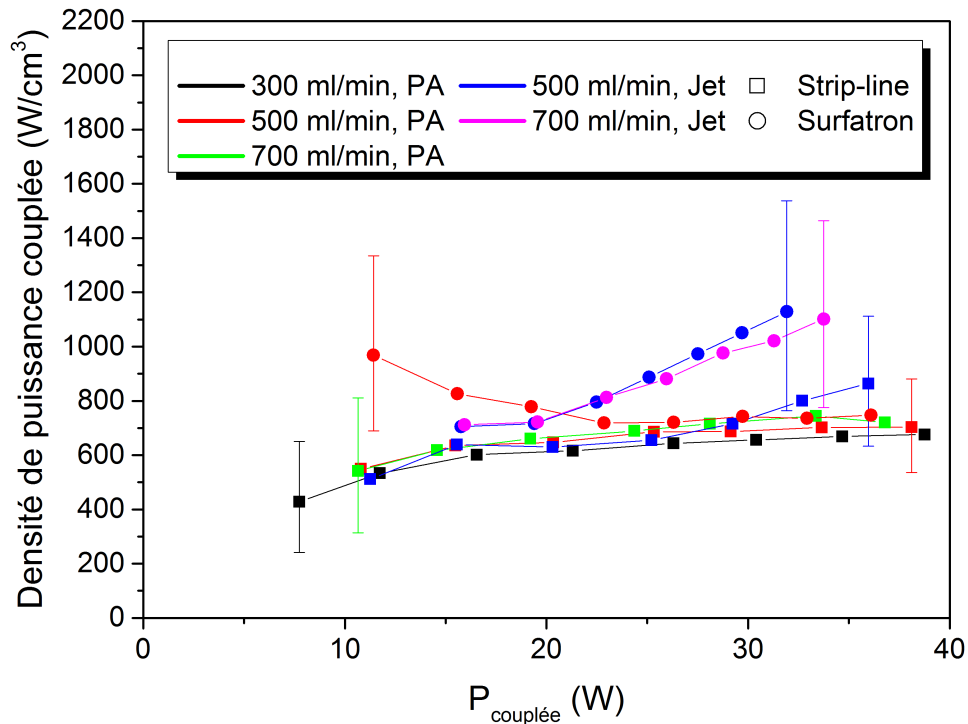


FIGURE 71 – Densité volumique de puissance couplée en fonction de la puissance couplée à pression atmosphérique et en plasma jet. Seule une valeur typique d'incertitude par série est tracée.

Contrairement aux cas à basse pression étudiés précédemment, où la densité de puissance était croissante avec la puissance couplée, ici l'évolution est plutôt faible pour tous les cas à pression atmosphérique. Les valeurs convergent vers une valeur d'environ  $700 \text{ W.cm}^{-3}$ , ce qui est supérieur aux cas à basse pression, de l'ordre de  $100\text{-}400 \text{ W.cm}^{-3}$ , mais inférieur aux cas en gaz réactif, où l'on atteint le  $\text{kW.cm}^{-3}$ . Ces effets s'expliquent par les variations de pression le long de la colonne ; d'après la figure 70 elles sont inférieures à 10 % entre l'amont et l'aval du capillaire (à pression atmosphérique) contre un facteur supérieur à 10 à basse pression. La longueur de plasma est donc linéaire avec la puissance couplée (cf. figure 69) d'où ce profil de densité de puissance plat. Pour les cas en configuration de plasma jet, les tendances sont les mêmes que pour les cas à pression atmosphérique, jusqu'à certaines valeurs de puissance, correspondant à la limite de longueur du plasma, où la densité de puissance croît alors rapidement ; malgré une augmentation de la puissance réfléchie, la densité de puissance augmente, ce qui pourrait se traduire par une augmentation de la densité et/ou température des espèces.

L'ensemble des études précédentes, qui ont permis une description macroscopique de cette décharge plasma micro-onde confinée dans un capillaire, a été réalisé en faisant varier les paramètres de puissance et fréquence micro-onde consigne, débit et composition du gaz, et pression. Ces paramètres permettent donc un contrôle de la décharge plasma, mais peuvent également être limitants, selon le type d'application souhaitée ; nous allons maintenant étudier l'influence du système de couplage thermique externe, et sa capacité à modifier ces paramètres macroscopiques de la décharge, et ce uniquement de façon externe au plasma.

### 3.3 Couplage thermique

#### 3.3.1 Convection naturelle et forcée : analyse des résistances thermiques

La configuration particulière du dispositif expérimental, à savoir une longue colonne de plasma dans un capillaire d'un diamètre de l'ordre du millimètre, tout comme son épaisseur, laisse penser que *a priori* les échanges thermiques seront particulièrement importants, étant donné les gradients de température mis en jeu. Il a donc été supposé qu'un contrôle des paramètres du plasma par une modification de la thermique du système était possible, ce qui est ici rendu possible par le système de refroidissement externe décrit dans la partie 2.1. Ce système permet un contrôle d'écoulement de gaz sur la partie externe du capillaire, et donc possiblement, une modification des paramètres du plasma, dont les effets seront décrits ci-dessous.

La thermique du système peut être décrite à l'aide d'un modèle de résistances thermiques. A l'état stationnaire, le gaz à l'intérieur du capillaire est à une température de l'ordre de 1000 K [95] (point qui sera vérifié dans la partie 5.3.1) tandis que l'air ambiant est à une température proche de 300 K. Entre ces deux points, divers échanges thermiques vont s'établir, de natures multiples. On pourra, pour étudier ces échanges thermiques, les décrire par des résistances thermiques qui seront définies par :

$$R_{th} = \frac{\Delta T}{\Phi} \quad (3.7)$$

Où :

- $R_{th}$  (K/W) : Résistance thermique associée à un transfert thermique à l'état stationnaire.
- $\Delta T$  (K) : Différence de température entre deux surfaces isothermes où s'écoule un transfert thermique stationnaire.
- $\Phi$  (W) : Flux de chaleur.

Cette résistance thermique est l'analogie avec la résistance électrique, là où la température est celle du potentiel, et le flux de chaleur celle de l'intensité. On pourra différencier les cas des échanges conducto-convectifs ( $CC$ ), radiatifs ( $R$ ) et conductifs ( $CD$ ). Les deux premiers ont lieu en phase gazeuse, soit par échange de chaleur entre une paroi et le gaz environnant pour les transferts conducto-convectifs, soit avec d'autres parois accessibles par ligne de vue directe pour les transferts radiatifs. Ils concernent les échanges entre les parois interne et externe du capillaire, avec respectivement le plasma et l'environnement extérieur (air ambiant et autres parois accessibles optiquement). Finalement, les échanges conductifs concernent les échanges à travers la silice fondue constituant le capillaire. On aura alors :

$$R^{CC} = \frac{\Delta T}{\Phi^{CC}} = \frac{1}{h^{CC}S} \quad (3.8)$$

$$R^R = \frac{\Delta T}{\Phi^R S} = \frac{\Delta T}{\epsilon_{\text{capillaire}} \sigma (T_{\text{capillaire}}^4 - T_{\text{murs}}^4) S} \quad (3.9)$$

$$R^{CD} = \frac{\Delta T}{\int_{R_{int}}^{R_{ext}} \phi^{CD}(r) S} = \frac{\Delta T}{\int_{R_{int}}^{R_{ext}} -\lambda_{\text{capillaire}}(T(r)) \frac{dT}{dr} 2\pi r dz} \simeq \frac{\ln\left(\frac{R_{ext}}{R_{int}}\right)}{2\pi \lambda_{\text{capillaire}}(T) dz} \quad (3.10)$$

Où :

- $S$  (m<sup>2</sup>) : Surface de la paroi où s'opère le transfert thermique.
- $h^{CC}$  (W/K/m<sup>2</sup>) : Coefficient de transfert thermique conducto-convectif.
- $\phi^R$  (W/m<sup>2</sup>) : Flux de chaleur radiatif surfacique.
- $\epsilon_{\text{capillaire}}$  : Émissivité de la paroi considérée, ici les surfaces internes ou externes du capillaire.
- $\sigma = 5,67 \times 10^{-8}$  (W/m<sup>2</sup>K<sup>4</sup>) : Constante de Stefan-Boltzmann.
- $T_{\text{murs}}$  (K) : Température des parois lointaines avec lesquelles le capillaire échange de la chaleur par transferts radiatifs ; pour la surface externe, on pourra considérer que les échanges se font avec les murs de la pièce, à l'équilibre thermique avec l'air ambiant.
- $\phi^{CD}$  (W/m<sup>2</sup>) : Flux de chaleur conductif surfacique.
- $\lambda$  (W/K/m) : Conductivité thermique du matériau où se produisent les échanges de chaleur, dépendante de la température. Ici cette dépendance en température a été négligée pour des raisons explicitées ultérieurement.

Étant donné la symétrie cylindrique du problème, on aura  $dS = 2\pi R dz$ , avec  $R$  rayon (interne ou externe selon le cas) du capillaire, noté  $r$  lorsque l'on se réfère à des positions à l'intérieur du capillaire, et  $dz$  élément de longueur selon son axe.

Pour le cas conducto-convectif, les échanges se font au sein d'une couche mince de gaz située à proximité de la paroi. On pourra qualifier les échanges thermiques à l'aide du coefficient  $h^{CC}$  pris au rayon  $R$  (interne ou externe) défini, d'après la géométrie cylindrique du problème par :

$$h^{CC} = Nu \frac{\lambda_{\text{gaz}}(T)}{2R} \quad (3.11)$$

Où le nombre de Nusselt  $Nu$ , est un nombre adimensionné, dont l'expression dépend de la géométrie du système, du type de convection mis en jeu (convection naturelle ou forcée ; interne ou externe à la paroi) et de propriétés thermophysiques du gaz. Plus de détails sur le nombre de Nusselt et ses expressions seront apportés dans le chapitre 4.

Pour le cas à l'intérieur du capillaire, le gaz mis en jeu est de l'argon pur (excepté dans les cas de mélange réactif avec de l'air, mais soit les fractions de gaz réactif sont très faibles, soit les plasmas générés sont très courts comme montré dans la partie 3.2.2), à une température de l'ordre de 1000 K (reprise de [95], et qui sera confirmée par les résultats de la partie 5.3.1), l'expression de  $Nu$  correspondra au cas de convection forcée interne, car le capillaire est parcouru par un flux de gaz imposé.

La détermination de l'expression de  $Nu$  dépend également du régime d'écoulement du gaz au sein du capillaire (laminaire ou turbulent) ; comme indiqué précédemment, dans toutes les conditions expérimentales l'écoulement est dans un régime laminaire. Également, le flux thermique pour un élément de longueur  $dz$  est uniforme (dépendant de la différence  $T_{gaz} - T_{murs}$ ), on aura donc, pour les régimes thermique et fluide établis dans ces conditions [112] :

$$Nu_{D_{int}} = 4,36 \quad (3.12)$$

On notera la résistance thermique associée  $R_1^{CC}$ . Avec des bornes extrêmes de températures de film (300-1000 K) on aura  $\lambda_{argon}(300 \text{ K}) = 1,77 \times 10^{-2} \text{ W/m/K}$  et  $\lambda_{argon}(1000 \text{ K}) = 4,48 \times 10^{-2} \text{ W/m/K}$  [108], et pour un capillaire de diamètre interne 1 mm, on pourra encadrer :

$$1,63 < R_1^{CC}.dz(\text{K.m/W}) < 4,12 \quad (3.13)$$

Dans le cas de la paroi externe du capillaire, le gaz mis en jeu est l'air, et la température de la surface sera comprise entre 300 et 500 K (hypothèse qui sera vérifiée ultérieurement au chapitre 4 par les mesures par caméra IR). Deux cas se présentent pour caractériser l'écoulement au voisinage de la paroi : une convection externe naturelle sur un cylindre dans le cas sans écoulement externe, et une convection externe forcée le cas échéant. Dans le premier cas, on est dans un cas de convection naturelle, donc avec un coefficient de transfert thermique associé  $h^{CC,naturelle}$  de l'ordre de  $10 \text{ K/W/m}^2$  [113] ; un calcul plus précis, en prenant la corrélation d'un cylindre horizontal (de 2 mm de diamètre) en convection externe naturelle donne effectivement  $h^{CC,naturelle} = 11-23 \text{ K/W/m}^2$  (pour une température de surface comprise entre 300 et 500 K et une température d'air ambiante de l'ordre de 20-25 °C et donc une résistance thermique associée encadrée par :

$$5,2 < R_2^{CC,naturelle}.dz(\text{K.m/W}) < 10,9 \quad (3.14)$$

Dans le cas où on applique un écoulement forcé perpendiculaire à l'axe du capillaire, on est en convection forcée externe sur un cylindre horizontal, l'expression du nombre de Nusselt diffère alors et dépend, entre autres, de la vitesse du gaz d'écoulement. On obtiendra ainsi, pour une température de gaz d'écoulement de 300 K et une température de surface du capillaire comprise entre 300 et 500 K, des valeurs de  $h$  comprises entre 100 (pour la plus faible valeur de vitesse d'écoulement du gaz mesurable) et  $300 \text{ K/W/m}^2$  (pour une vitesse de gaz d'écoulement de 15 m/s), à comparer avec les  $10-20 \text{ K/W/m}^2$  du cas en convection naturelle. On pourra donc encadrer, selon la force de l'écoulement appliqué :

$$0,56 < R_2^{CC,forcée}.dz(\text{K.m/W}) < 1,50 \quad (3.15)$$

Soit une variation maximale d'un facteur 7-9 de la valeur de  $R_2^{CC}$  entre les cas en convection naturelle et forcée.



Les transferts radiatifs peuvent avoir lieu, comme pour les transferts conducto-convectifs, à la fois à la surface interne et externe du capillaire. Dans le second cas, les échanges se font avec les surfaces externes au capillaire et les murs de la pièce, que l'on considérera à l'équilibre avec l'air ambiant, tandis que la surface externe au capillaire pourra être prise à une température de l'ordre de 300-500 K. L'émissivité du capillaire, bien que ne pouvant être prise comme une simple constante (point discuté dans le chapitre 2) pourra être prise, pour ce calcul à l'ordre 1, comme étant égale à 0,8. On aura donc, pour un capillaire de 2 mm de diamètre externe, une température de surface du capillaire comprise entre 300 et 500 K et une température des murs de la pièce de l'ordre de 20-25 °C :

$$12,9 < R_2^R . dz (\text{K.m/W}) < 33,3 \quad (3.16)$$

Le cas au niveau de la surface interne du capillaire est différent : dans le cas d'un plasma optiquement transparent le flux thermique radiatif est nul par ce que la divergence du flux radiatif vectoriel est nulle. Le flux radiatif entre les parois du capillaire est aussi nul parce que les éléments de la surface interne sont à température identique. Dans le cas contraire d'un plasma entièrement opaque le flux radiatif sera également nul. Il est à mentionner que le plasma génère une radiation optique volumique dans le domaine du visible ; cependant sa contribution en termes de puissance sera négligeable, comme montré ultérieurement dans la partie 4.5.

Enfin, pour les transferts conductifs, on aura d'après la géométrie du problème, et en supposant une conductivité thermique indépendante de la température :

$$R^{CD} = \frac{\ln\left(\frac{R_{ext}}{R_{int}}\right)}{2\pi\lambda_{(\text{capillaire})}(T)dz} \quad (3.17)$$

Soit, pour un capillaire de diamètre interne 1 mm et diamètre externe 2 mm, et des températures de paroi interne et externe du capillaire comprises entre 300 et 1000 K :

$$4,69 \times 10^{-2} < R^{CD} . dz (\text{K.m/W}) < 7,11 \times 10^{-2} \quad (3.18)$$

Dans tous les cas, cette résistance conductive sera négligeable par rapport aux autres résistances mises en jeu.

De la même façon que les résistances en électrocinétique, les résistances thermiques peuvent se placer en série ou en dérivation ; ici, les résistances caractérisant les échanges entre le coeur du plasma et la paroi interne sont en parallèle, et de la même façon celles entre la paroi externe et l'environnement lointain à l'équilibre thermique (gaz ambiant et surfaces lointaines) sont également en parallèle. On pourra donc dans ces deux cas définir des résistances équivalentes, qui seront en série avec la résistance caractérisant les échanges conductifs au sein du capillaire. Une représentation schématique de ce modèle de résistances est exposée figure 72.

Dans le premier cas, pour les échanges entre le plasma et la paroi interne, seule la résistance caractérisant les échanges conducto-conductifs  $R_1^{CC}$  a pu être calculée précisément, mais l'existence d'une résistance radiative, ainsi que d'autres effets dus au plasma, font que la résistance équivalente réelle  $R_{eq,1}$  est majorée par  $R_1^{CC}$ . On retiendra cependant l'ordre de grandeur de  $R_1^{CC} . dz$  de 1 K.m/W.

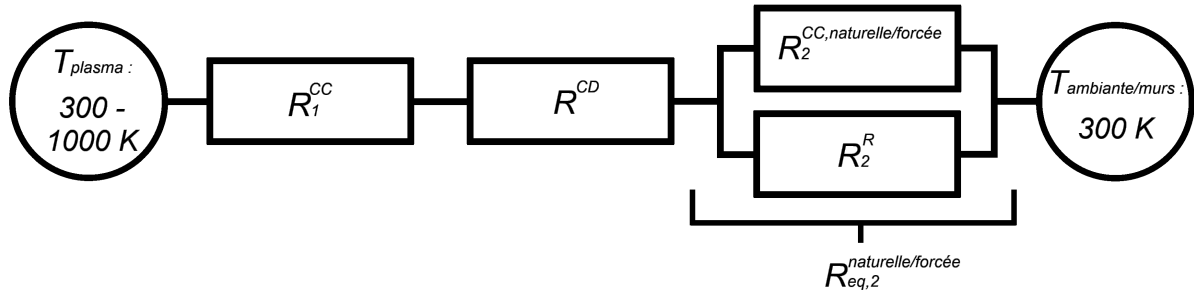


FIGURE 72 – Modèle de résistances thermiques utilisé pour caractériser les échanges thermiques. Sont représentées les résistances des échanges conducto-convectifs (CC), en convection naturelle ou forcée, et radiatifs (R), entre le plasma et la paroi interne du capillaire (indice 1) et entre sa paroi externe et l'air ambiant (indice 2) ; les échanges conductifs (CD) ont lieu entre les parois interne et externe du capillaire.

Pour les échanges au-delà de la paroi externe du capillaire, les deux résistances mises en jeu sont calculées précisément ; on aura donc, selon le cas (convection naturelle, ou forcée avec écoulement) :

$$3,71 < R_{eq,2}^{naturelle} \cdot dz(\text{K.m/W}) < 8,21 \quad (3.19)$$

$$0,54 < R_{eq,2}^{forcée} \cdot dz(\text{K.m/W}) < 1,44 \quad (3.20)$$

On a donc une variation d'un facteur 5 à 7 de la résistance équivalente caractérisant les échanges au-delà de la paroi externe du capillaire entre le cas où l'on utilise le système de couplage thermique externe et le cas de la convection naturelle. La valeur de la résistance thermique totale du système, obtenue en sommant les résistances équivalentes en série nous donnerait des encadrements tels que :

$$5,39 < R_{eq,tot}^{naturelle} \cdot dz(\text{K.m/W}) < 12,4 \quad (3.21)$$

$$2,22 < R_{eq,tot}^{forcée} \cdot dz(\text{K.m/W}) < 5,63 \quad (3.22)$$

Le système de couplage thermique externe permet donc de faire diminuer cette résistance thermique totale jusqu'à un facteur 2-3 en passant du cas de convection naturelle à celui de convection forcée. Cette importante variation laisse donc supposer un contrôle de la thermique et/ou des paramètres plasmas *via* ce couplage thermique externe ; les résultats pour les paramètres macroscopiques seront détaillés dans la partie suivante, et ceux concernant les paramètres microscopiques en partie 5.4.

### 3.3.2 Résultats du couplage thermique sur les paramètres macroscopiques

La partie précédente a décrit l'évolution de paramètres plasmas macroscopiques, tels que la puissance couplée, la longueur de la colonne de plasma, la pression en amont du capillaire, en fonction de divers paramètres, mais en l'absence du contrôle thermique. Ici on étudiera la variation de ces paramètres en présence de l'écoulement de refroidissement, en fonction de la valeur du  $h$  correspondant.

Tout d'abord, on montre les résultats obtenus pour l'évolution de la longueur de la colonne de plasma et de la puissance couplée, en fonction du coefficient  $h$ . Les résultats sont obtenus pour différentes valeurs de débit d'argon (sans ajout de fraction de gaz réactif) et de configuration de pression (basse pression, pression atmosphérique ou plasma jet), pour une puissance consigne de 40 W. Le cas du surfatron, pour une fréquence de 2,427 GHz, est représenté figure 73 ; seule une valeur typique d'incertitude par série est tracée. À noter que le premier point de chaque série correspond au cas en convection naturelle, les suivants étant en convection forcée.

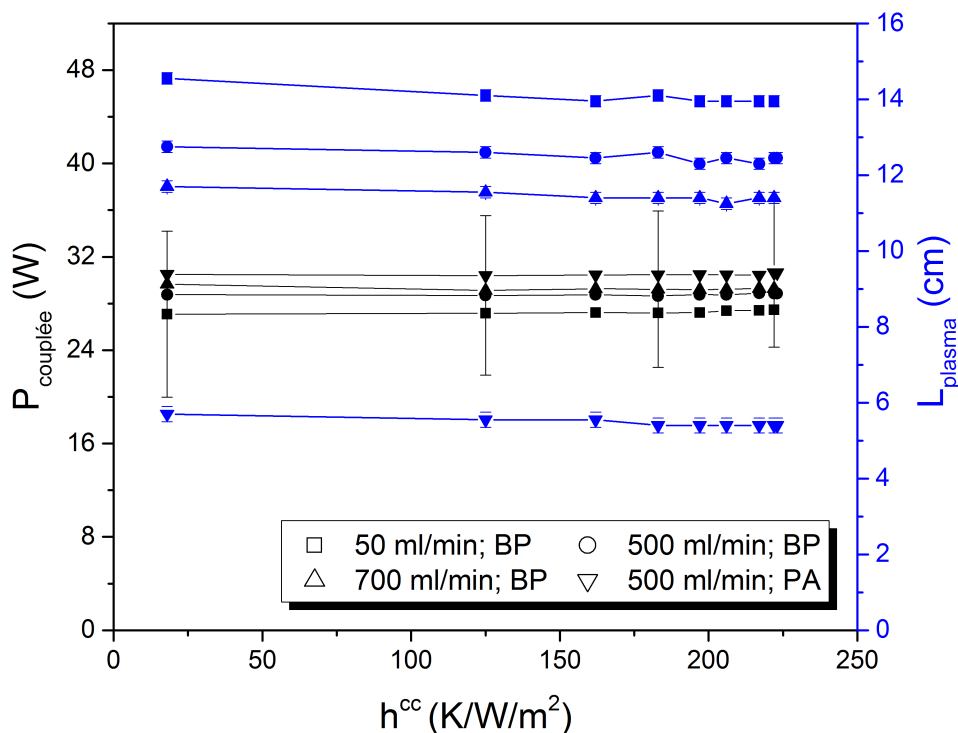


FIGURE 73 – Longueur de plasma et puissance couplée, en fonction du coefficient de transfert thermique conducto-convectif forcé à la paroi externe du capillaire, pour l'applicateur surfatron. Seule une valeur d'incertitude typique est tracée pour les séries de puissance couplée.

De la même façon, sur la figure 74 est exposé le cas pour strip-line, à une fréquence de 2,45 GHz, et toutes autres conditions expérimentales inchangées.

Dans tous les cas étudiés, on constate une très faible évolution de la puissance couplée, bien en deçà des barres d'erreur correspondantes, l'amplitude maximale de variation étant de l'ordre de 0,5 W, soit environ 2 %. À noter que cette quasi-constance de la puissance couplée n'est pas due à des effets sur les puissances incidentes et réfléchies qui se compenseraient, elles varient en effet très faiblement avec  $h$  (des fluctuations bien inférieures aux incertitudes). Pour la longueur de plasma également, les effets sont difficilement concluants : les variations maximales sont certes supérieures aux incertitudes, avec une variation maximale avec  $h$  de 0,5 cm, soit environ 4 % de la longueur totale du plasma (14 cm ici), mais ces effets sont peu consistants (parfois un gain en longueur, parfois une perte) et l'évolution avec  $h$  n'est pas toujours monotone ... Ces résultats nous laissent supposer que le couplage thermique n'a pas d'influence sur la puissance micro-onde couplée ni sur la longueur de la colonne de plasma, et donc également sur la densité de puissance couplée au plasma.

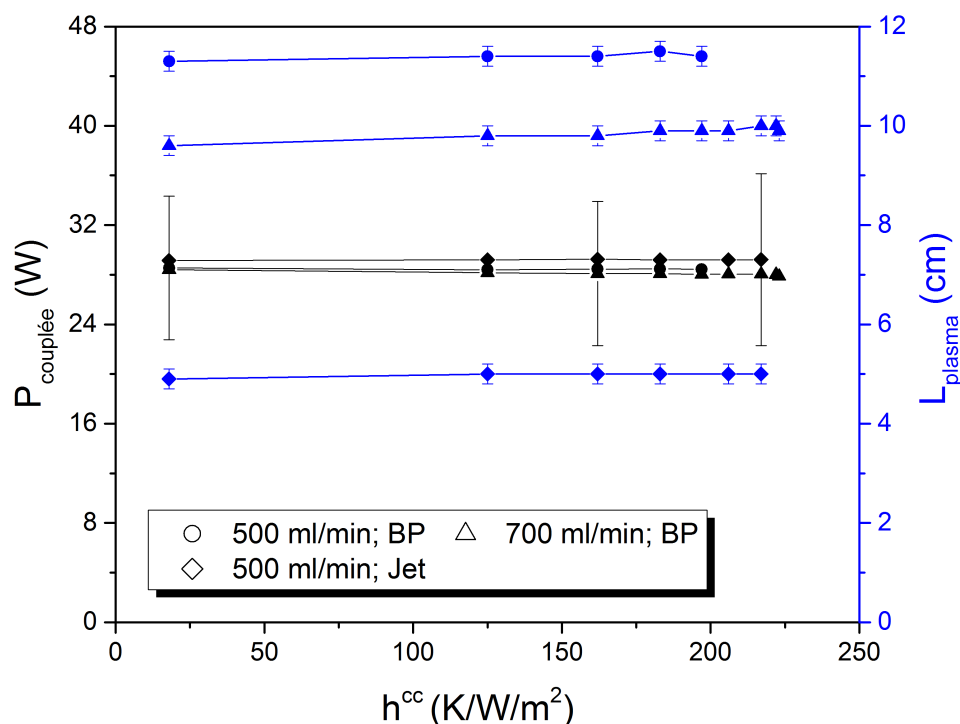


FIGURE 74 – Longueur de plasma et puissance couplée, en fonction du coefficient de transfert thermique conducto-convectif forcé à la paroi externe du capillaire, pour l'applicateur strip-line. Seule une valeur d'incertitude typique est tracée pour les séries de puissance couplée.

De la même façon que pour la partie 3.2.1, on mesure également la pression en amont du plasma, et on calcule son différentiel par rapport au cas sans plasma ; la pression en aval du plasma restant elle toujours constante pour des conditions de débit et de configuration de pression fixées. Les résultats obtenus dans les mêmes conditions que les précédentes sont présentées pour les deux applicateurs figure 75.

Contrairement aux résultats précédents, on constate ici un effet très significatif : pour les plus faibles valeurs de  $h$  mesurables avec un écoulement appliqué, on mesure une chute du différentiel de pression en amont de 20 à 30 %, puis une décroissance monotone jusqu'à 30 à 40 % inférieure au cas en convection naturelle ; seule exception remarquable ici, le cas en configuration de plasma jet, où les variations sont limitées à 15 %, mais qui suivent une tendance similaire. Il est à noter que, temporellement, ces effets sont constatables très rapidement, avec un temps de réponse de l'ordre de la seconde, et un équilibre atteint en un temps de l'ordre de la dizaine de secondes après modification de la valeur de  $h$ , à comparer au temps de 30 min attendu pour effectuer la mesure de la longueur de la colonne de plasma. On a donc un rapprochement progressif vers la situation en l'absence de plasma (correspondant à  $\Delta P = 0$ ), or, les études hydrodynamiques d'un tel plasma montrent que ce différentiel de pression en amont du capillaire n'est dû qu'au chauffage du gaz le parcourant (en l'absence de dissociation, ce qui est le cas ici en gaz rare). De plus, les études précédentes nous ont montré que la longueur de la colonne de plasma ainsi que la puissance couplée, ayant des influences sur cette valeur du différentiel de pression, restent constantes lorsque le système de couplage externe est appliqué. On pourra donc en conclure que ce système permet un contrôle de la température du plasma, donc de la densité d'espèces neutres, et ce sans en modifier d'autres paramètres macroscopiques, et de façon non intrusive. Une étude quantitative des effets du couplage thermique sur la température au sein du plasma par spectroscopie d'émission, décrite dans la partie 5.3.1 pourra confirmer ces effets.

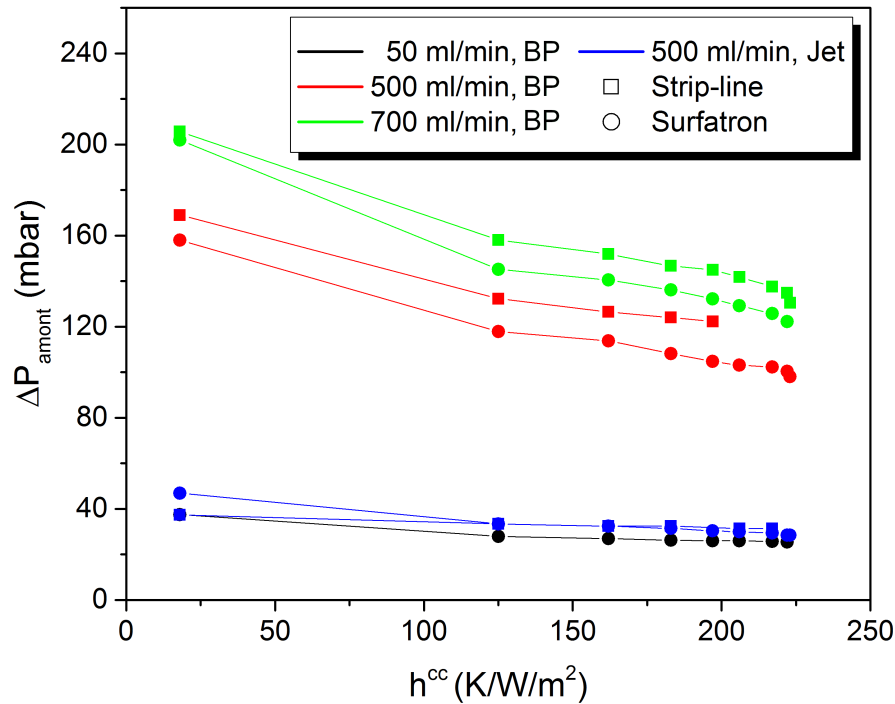


FIGURE 75 – Différentiel de pression mesuré en amont du capillaire, entre les cas avec et sans plasma, en fonction du coefficient de transfert thermique conducto-convectif forcé à la paroi externe du capillaire, pour les deux applicateurs, pour différents débits et pressions.

### 3.4 Conclusion

Ces séries d'études paramétriques de cette configuration particulière de plasma micro-onde confiné dans un capillaire nous a permis d'en étudier son domaine d'existence, de caractériser les réponses et les efficacités de couplage des applicateurs utilisés (de l'ordre de 85 % pour les fréquences optimales utilisées) et de les comparer avec des valeurs typiques, qui négligent cependant des pertes de puissance micro-onde le long du câble coaxial et des éléments de couplage micro-onde. Les mesures de puissance par les puissances-mètres ont permis de montrer que l'adaptation d'impédance du système est surestimée. Des effets macroscopiques du couplage de puissance sur l'évolution de la colonne de plasma ont pu être observés, ainsi que l'influence du débit de gaz, de sa composition, et de la pression. Des mesures de la puissance couplée au sein du plasma ont donné des valeurs comprises entre 100 et 1000  $W/cm^{-3}$  pour les cas de gaz rare à basse pression et pression atmosphérique, et jusqu'à 7000  $W/cm^{-3}$  en milieu réactif. Enfin, l'utilisation d'un système de couplage thermique externe a permis de changer la résistance thermique jusqu'à un facteur 3, changeant fortement le flux thermique à travers le capillaire. L'utilisation de ce couplage n'a pas montré d'effets significatifs sur la puissance couplée ni sur la longueur de la colonne de plasma, mais présente un effet significatif et rapide sur la pression mesurée en amont du capillaire, et donc une possibilité de contrôle de la pression et de la température au sein du plasma, le tout de façon non intrusive, et pour tous autres paramètres macroscopiques fixés. Comme nous le verrons dans la partie 5.4 il est également possible de contrôler la densité électronique et la température du gaz.

La décharge étant désormais décrite et caractérisée, nous allons nous intéresser à son bilan de puissance.

# Bilan de puissance du plasma

---

L'un des paramètres clés des dispositifs plasmas est leur efficacité énergétique. En effet, en ce qui concerne la recherche d'applications de ces sources plasmas, il est crucial de connaître et d'optimiser la consommation énergétique en particulier lorsqu'il existe d'autres procédés en compétition avec le plasma, comme pour le traitement de l'eau, des effluents gazeux, la combustion ou la stérilisation ... et même pour les champs d'application où le plasma règne seul (traitement de surface, gravure ...) ou des recherches fondamentales (connaissance des phénomènes clés et de la cinétique, répartition de l'énergie dans différents canaux aux échelles macro et microscopiques). Ainsi, pour ces applications mentionnées, l'étude du bilan de puissance d'un plasma est loin d'être dispensable. En outre, la connaissance des mécanismes physico-chimiques impliqués dans la création et l'entretien des plasmas requiert des modèles numériques, qui ont donc besoin, entre autres, de connaître la quantité d'énergie totale injectée dans le plasma [97] [114] allant jusqu'au niveau microscopique (e.g. canaux des réactions, états d'énergie interne, etc ...).

Malgré l'intérêt qu'il suscite, le bilan de puissance des plasmas est très rarement discuté. Avec l'élévation de la fréquence, vers le domaine de la radiofréquence et encore plus dans le domaine des micro-ondes, les mécanismes de couplage et de perte d'énergie se multiplient et le bilan de puissance devient un vrai objet de recherche scientifique. Particulièrement pour les plasmas micro-onde, certaines études concluent à la détermination du paramètre  $\theta$  (W), correspondant à la puissance nécessaire pour créer une paire électron-ion, donc à maintenir la décharge [66] [95] [106], pour lequel il est donc nécessaire de connaître l'énergie injectée dans le plasma. L'efficacité énergétique des décharges est très variable : pour des conditions expérimentales assez similaires on peut obtenir des paramètres plasmas bien différents. Un plasma d'argon à pression atmosphérique peut ainsi être généré dans un capillaire de 2 mm de diamètre interne, un débit de gaz de 75 ml/min, avec une puissance micro-onde de 1000 W et donnant une longueur de plasma de 10 cm [105], pour d'autres sources on peut obtenir un plasma de 10 cm de long pour un débit d'argon de 200 ml/min, dans un capillaire de 5 mm de diamètre, avec une puissance de 100 W [115] ou bien un plasma de 15 cm de long dans un capillaire de 690  $\mu\text{m}$  de diamètre avec un débit d'argon de 100 ml/min, pour une puissance de 55 W [95].

Un autre point important à relever : nombreuses études sont lacunaires sur la valeur de la puissance réellement *injectée dans le plasma*. La plupart se contentent de relever la valeur de la puissance micro-onde incidente (affichée au générateur), de rares exemples mentionnent le fait que cette puissance incidente diffère de la puissance réellement injectée dans le plasma [66], d'autres encore utilisent comme paramètre la puissance incidente soustraite de la puissance micro-onde réfléchie (lorsqu'elle est mesurée) [93], et enfin, certains font un bilan de puissance sur un substrat traité par plasma [116] [117], mais pas sur le plasma en lui-même. La détermination de la puissance micro-onde effectivement utilisée pour l'ionisation du gaz et la création d'un plasma reste donc un problème ouvert.

Ce chapitre présente diverses études expérimentales sur le couplage de la puissance dans un plasma micro-onde généré dans un tube capillaire pour améliorer la compréhension des phénomènes impliquant le transfert de puissance et ainsi déterminer un bilan de puissance complet.

## 4.1 Constitution du bilan de puissance

La configuration expérimentale utilisée ici est celle d'ores et déjà détaillée dans la partie 2.2. La source d'énergie du système est le générateur, qui transmet de l'énergie sous forme de micro-ondes ; cette énergie va se dissiper suivant différents canaux :

- En premier lieu, le passage de l'onde va chauffer les éléments de couplage micro-onde (tels que définis dans le chapitre 2, composé du coupleur bi-directionnel, des connexions et de l'applicateur), depuis leur centre vers leur paroi extérieure, il y aura donc des échanges conductifs au sein des éléments de couplage micro-onde, puis des échanges depuis la paroi externe, de nature conducto-convectifs en convection naturelle avec l'air ambiant, et de nature radiative avec les surfaces opaques environnantes, dans un angle solide de  $2\pi$  sr.
- Au sein de l'applicateur vont se produire les mêmes échanges, ce dernier étant également chauffé par la présence d'une onde stationnaire qui s'établit dans la cavité résonnante, mais l'énergie peut également se disperser sous la forme de fuites de champ micro-onde. Ces échanges sont représentés schématiquement sur la figure 76.

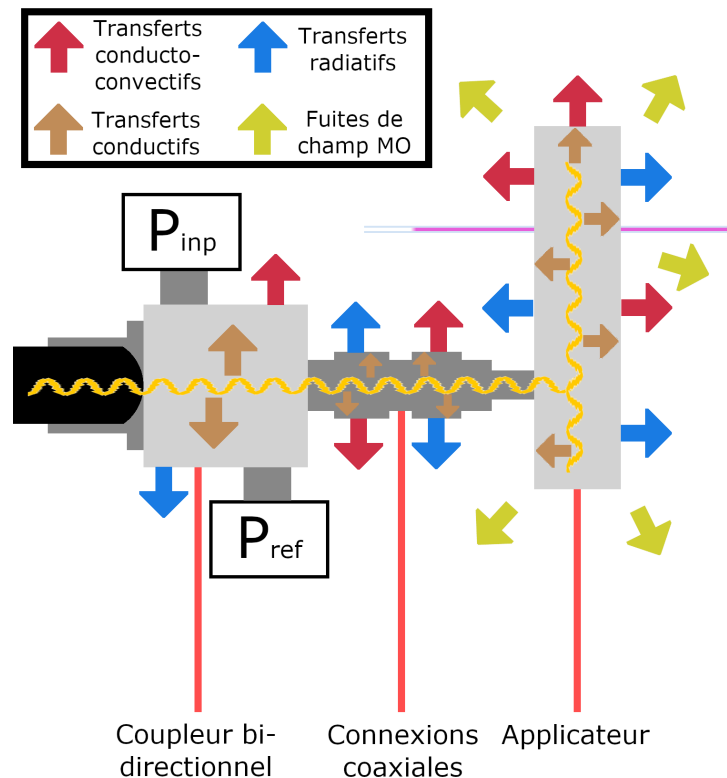


FIGURE 76 – Représentation des éléments de couplage micro-onde (coupleur bi-directionnel, connexions coaxiales et applicateur) et des échanges thermiques et de puissance qui s'y opèrent.

• Enfin, la présence de plasma au sein du capillaire, donne naissance à une série d'échanges thermiques, déjà décrits dans la partie 3.3 : des échanges conducto-conductifs se produisent entre le plasma et la paroi interne du capillaire, qui va également échanger par transferts radiatifs avec le plasma et les autres éléments de paroi environnants. A l'intérieur de la partie pleine du capillaire, vont s'établir des échanges conductifs, depuis la paroi interne vers la paroi externe, puis finalement cette dernière établit des échanges de nature conducto-convective (en convection naturelle ou forcée selon les cas) avec l'air ambiant et radiative avec les surfaces environnantes. De plus, le capillaire est parcouru par du gaz, initialement dans son état fondamental et à température ambiante, qui peut sortir chaud et/ou composé en partie d'espèces réactives à longue durée de vie, ce qui constitue également un canal de diffusion de la puissance. Enfin, le plasma peut diffuser de l'énergie sous forme de rayonnement optique traversant le capillaire.

Pour réaliser un bilan de puissance complet en régime stationnaire (atteint 30 min après modification des paramètres de contrôle ; vérifié par fluctuations très faibles des paramètres expérimentaux mesurables), il faut définir précisément les conditions aux limites (frontières fermées d'un système) où on devra mesurer la puissance s'en échappant, qui correspondra donc aux divers canaux de diffusion de la puissance micro-onde fournie par le générateur, précédemment décrits.

Un tel système peut être aisément défini en raison du caractère contraint de la décharge : elle est confinée dans un capillaire, en amont duquel est injecté du gaz (argon ou mélange argon/air) dans l'état fondamental et à température ambiante. Pour une puissance plasma modérée et un applicateur situé suffisamment loin de l'aval du capillaire, on verra que le gaz qui en sort est également dans l'état fondamental et à température ambiante. Toute l'énergie injectée dans le plasma se retrouvera donc entre les deux extrémités du capillaire. De la même façon, l'énergie micro-onde du générateur étant transportée *via* un guide d'onde coaxial jusqu'à l'applicateur, toute l'énergie perdue sur le trajet de cette onde sera convertie en chauffage des éléments de couplage micro-onde ; leur surface externe sera donc une des frontières de notre système. Enfin, une partie de la puissance micro-onde sera dissipée sous forme d'ondes se propageant dans l'air ambiant, qui sont à prendre en compte pour le bilan de puissance.

Le système étudié avec ses frontières et les différents canaux de dissipation de puissance, reprenant en partie le schéma de la configuration expérimentale pour la mesure du bilan de puissance (figure 31) est représenté figure 77.

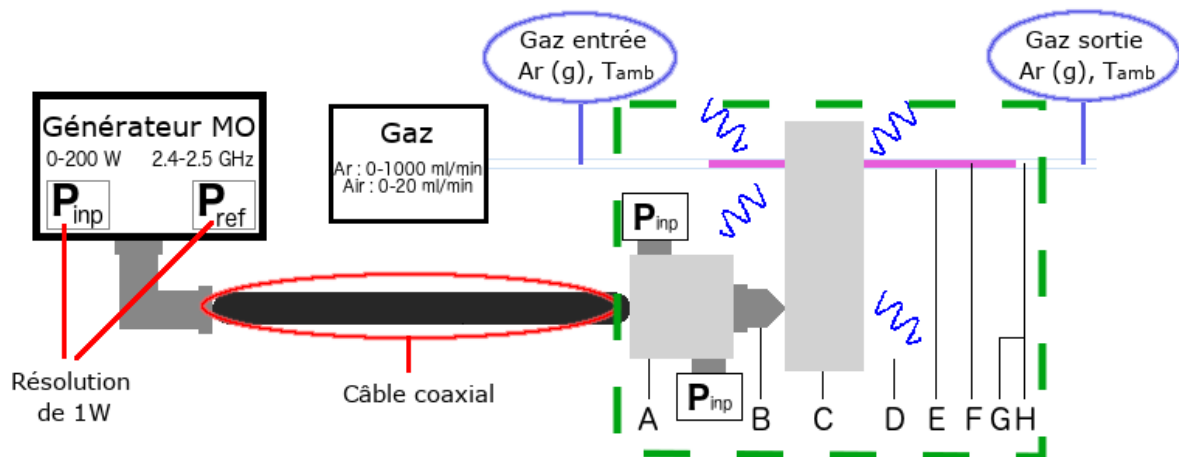


FIGURE 77 – Système étudié (encadré en vert) et représentation des canaux de diffusion de la puissance, de A à H.



Le détail de chacun de ces éléments est le suivant :

- La puissance micro-onde a pour source le générateur décrit dans le chapitre 2, avec sa puissance variable de 0 à 200 W et deux mesures internes de puissance, incidente et réfléchiée, avec une résolution de 1 W.
- A la sortie du générateur se trouve une connexion coaxiale, ou non, selon la configuration et l'applicateur mis en place. Différents modèles de câbles sont utilisés pour amener la puissance jusqu'à l'applicateur, allant de 50 cm à 1,5 m de long, avec des pertes de l'ordre de -1,1 dB, mesurées avec un analyseur de réseau pour la gamme spectrale du générateur (2,4-2,5 GHz). Cette valeur de pertes s'est avérée inchangée après un chauffage externe du câble au-delà de 50 °C, mais est sensible en fonction du serrage des connexions du câble et de sa courbure, les variations pouvant être de l'ordre de 25 %.

La dissipation de puissance le long d'un guide d'onde serait quantifiable de deux façons ; premièrement avec la méthodologie proposée sur la dissipation de chaleur mesurée sur l'ensemble des éléments de couplage micro-onde, et secondement avec la valeur des pertes de puissance données par l'analyseur de réseau. Ces méthodes seraient malheureusement assez inconsistantes ; pour la première méthode, le profil de température des connexions, mais surtout du câble coaxial est assez difficile à déterminer. La température étant inhomogène sur la longueur des ces éléments (fluctuations supérieures à 2 °C entre différents points), de nombreux points de mesure sont nécessaires. Malgré cela, la détermination de la puissance dissipée sous forme de chaleur est sujette à de grandes incertitudes, la surface du câble étant importante (diamètre et longueur importants par rapports aux autres dimensions du système) et son émissivité délicate à déterminer avec précision. Pour la seconde méthode, la valeur de pertes du câble dépend de paramètres hasardeux (inclinaison du câble, serrage de la connexion coaxiale ...) qui ne sont pas vérifiables en temps réel en conditions expérimentales, et donnant des fluctuations des pertes mesurées entre 0,5 et 1,5 dB, rendant ce second protocole de mesure peu applicable.

Pour ces raisons, et également pour une question de résolution des mesures de puissance du générateur, nous décidons de ne pas prendre en compte ces parties des éléments de couplage micro-onde et d'améliorer le bilan de puissance avec une nouvelle configuration de mesure.

- Les mesures du générateur ainsi que les pertes le long du câble coaxial étant ignorées, il est nécessaire de faire une mesure de la puissance micro-onde juste à l'issue du câble ; on utilise donc des puissances-mètres, indiqués figure 77 par  $P_{\text{inp}}$  et  $P_{\text{ref}}$ , à l'entrée de l'encadré vert.
- Pour utiliser les puissances-mètres il est nécessaire de dévier le guide d'onde coaxial, et donc d'utiliser un coupleur bi-directionnel. Étant traversé lui-même par l'onde micro-onde, il est sujet au chauffage et donc à des pertes de puissance. Il est représenté par le **A** sur la figure 77.
- Pour faire une liaison entre le coupleur bi-directionnel, connexion de sortie de type N mâle, et l'applicateur, connexion SMA femelle pour le strip-line, type N mâle pour les surfatrons, il est nécessaire d'utiliser une ou plusieurs connectiques. Étant traversées par l'onde micro-onde, elles sont également sujettes au chauffage. Elles sont représentées par le **B** sur la figure 77.
- L'applicateur en lui-même est également susceptible au chauffage, étant la cavité qui va permettre grâce à un point de fuite d'établir l'onde de surface le long du capillaire. Une partie de la puissance qu'il reçoit va donc se dissiper sous forme de chaleur. Il est représenté par le **C** sur la figure 77.

- Comme évoqué précédemment, le confinement de l'onde micro-onde et de l'onde de surface n'étant pas parfait, on peut retrouver une partie de la puissance sous forme de fuites EM, d'ondes se propageant dans l'environnement ambiant. Ces pertes par rayonnement micro-onde sont représentées par le **D** sur la figure 77.
- La décharge étant confinée dans un capillaire de faible diamètre, les interactions plasma-paroi seront importantes. Le plasma va transmettre une partie de sa puissance sous forme de chaleur que l'on pourra mesurer sur les parois extérieures du capillaire. Cette dissipation est indiquée par le **E** sur la figure 77.
- Le plasma étant radiatif et le capillaire ayant une transmittance supérieure à 90 % sur la gamme du spectre visible, et également en proche UV et IR, une partie de la puissance injectée dans le plasma est dissipée sous forme de rayonnement visible traversant le capillaire. Il est représenté par le **F** sur la figure 77.
- Enfin, au-delà de la partie radiative du plasma et de la zone où la température de la paroi externe du capillaire est mesurée, il peut subsister une partie de la puissance délivrée à la décharge sous forme de flux de gaz chauffé. Elle sera représentée par le **G** sur la figure 77.
- De la même façon, le gaz porté dans un état excité à la sortie du capillaire peut transporter de la puissance sous forme d'espèces actives à longue durée de vie produites par l'action du plasma. Elles sont représentées par le **H** sur la figure 77.

Pour clarifier les termes qui pourront être utilisés ultérieurement :

- La puissance *couplée* désignera la différence  $P_{\text{coup}} = P_{\text{inp}} - P_{\text{ref}}$ , telle que mesurée par les puissances-mètres.
- Les *pertes de chauffage*, somme des termes **A**, **B** et **C**, seront notées  $P_{\text{chauff}} = P_{\text{chauff\_coup}} + P_{\text{chauff\_conn}} + P_{\text{chauff\_app}}$ .
- La *puissance plasma* ou *puissance injectée* correspond à tous les termes de puissances qui proviennent du milieu plasma, et qui ont donc été injectés dans la décharge. On aura  $P_{\text{plasma}} = P_{\text{chauff\_cap\_paroi}} + P_{\text{radiation\_optique}} + P_{\text{chimie\_post\_decharge}} + P_{\text{chauff\_gaz\_post\_decharge}}$ .

Les protocoles de mesures ainsi que les résultats pour chacun de ces termes de dissipation de la puissance fournie par le générateur vont à présent être détaillés, avant d'établir un bilan de puissance complet de la décharge.

Pour établir un bilan de puissance complet, on étudiera donc chacun des termes détaillés précisément pour des conditions expérimentales identiques. On choisira des conditions typiques, avec néanmoins la contrainte d'une température de paroi externe du capillaire inférieure en tout point à la température maximale mesurée par la caméra IR, à savoir 270 °C. Cela implique que l'on se place à des faibles puissances micro-onde consignées, et limite la possibilité de réaliser des bilans de puissance complet pour une plage de puissances consignées large ; on choisira donc le débit d'argon comme paramètre variable pour réaliser plusieurs bilans.

Les conditions expérimentales pour toutes les mesures ultérieures seront (sauf mention explicite du contraire) :

- Puissance consigne du générateur : 15 W
- Fréquence micro-onde : 2,45 GHz
- Applicateur strip-line avec revêtement graphite
- Gaz porteur : argon (99,99 % de pureté)
- Basse pression ( $\simeq$  100 mbar en amont du capillaire ; 10 mbar en aval)
- Pas de refroidissement externe
- 3 débits de gaz différents : 300, 500 et 700 ml/min

## 4.2 Bilan au niveau des deux puissances-mètres

Le principe de mesure par les puissances-mètres a été précédemment décrit dans la partie 2.2.1. On s'intéresse en premier lieu au cas sans plasma, dont les résultats, qui constituent un premier bilan de puissance intermédiaire, sont représentés figure 78. On mesure pour les 3 débits de 300, 500 et 700 ml/min, des puissances incidentes valant respectivement 16,03, 15,86 et 16,07 W, après conversion de la mesure des puissances-mètres. Ces valeurs indiquent un décalage systématique par rapport aux 15 W de puissance consigne du générateur (un écart supérieur à 5 %) et même au-delà de la résolution de l'appareil (1 W). Il est à noter qu'ici, la différence de débit d'argon entre les 3 cas n'a *a priori* aucune influence sur le bilan de puissance, ces différents cas nous permettent d'avoir une idée de la reproductibilité des mesures ; on constate en effet que les écarts entre les 3 cas sont très faibles, de l'ordre du pourcent.

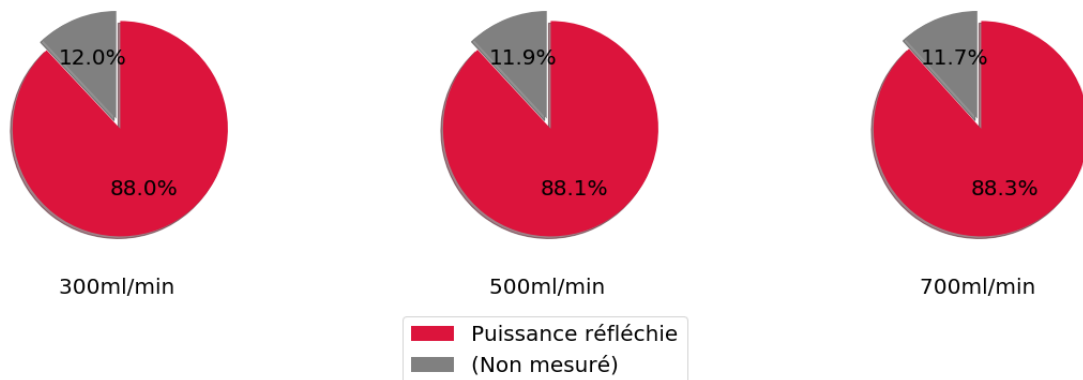


FIGURE 78 – Bilans de puissance intermédiaires, en ne considérant que la puissance incidente et réfléchie, mesurées par les puissances-mètres, pour 3 conditions de débits différents, sans plasma.

Pour ce qui est de la puissance réfléchie, elle est mesurée à respectivement 14,11 ; 13,96 et 14,19 W. Dans ces cas, la puissance réfléchie représente 88 % de la puissance incidente, l'absence du plasma ne laissant que peu de possibilités de dissipation de la puissance, qui revient donc dans sa quasi-totalité en direction du générateur.

Il est à noter qu'ici, les valeurs présentées ne prennent pas en compte les incertitudes de mesures des puissances-mètres ni l'incertitude sur l'atténuation du coupleur bi-directionnel, modifiant les mesures de puissances incidentes et réfléchies. On pourra considérer deux hypothèses extrêmes pour le calcul de ces incertitudes : l'hypothèse "haute", prenant toutes les incertitudes dans le cas où la somme des puissances mesurées dans les différents canaux de diffusion se rapproche le plus de la puissance incidente mesurée par les puissances-mètres (soit un bilan le plus proche de 100 %) et l'hypothèse "basse" donnant le cas inverse. Ici, l'atténuation des "bras" du coupleur bi-directionnel est donnée à  $\pm 0,3$  dB (soit un facteur de conversion à  $10^{\frac{0,3}{10}} = 7,15$  % près) donc pour les mesures de puissances incidente et réfléchie, l'incertitude de mesure des puissances-mètres est de 7,15 % (cf. partie 2.2.1). Dans le cas de l'hypothèse "haute", la mesure directe de la puissance réfléchie donnée par les puissances-mètres est augmentée de 7,15 % deux fois, soit un facteur  $(1,0715)^2 = 1,148$  ou 14,8 % ; la puissance incidente est elle diminuée de cette même valeur. Dans le cas de l'hypothèse "basse", on réalise les conversions inverses (augmentation de 14,8 % de la puissance incidente et diminution de 14,8 % de la puissance réfléchie).

Dans le cas de l'hypothèse "haute" on mesure une puissance incidente, inférieure à 14 W, qui serait supérieure à la puissance réfléchie, supérieure à 15 W. Cette hypothèse étant physiquement absurde, on retiendra simplement que dans ce cas extrême, on retrouve 100 % de la puissance incidente sous forme de puissance réfléchie, bien que ce cas ne soit qu'idéal et pas réel. Dans le cas de l'hypothèse "basse" on obtient des puissances incidentes d'environ 18,3 W et des puissances réfléchies proches de 12,2 W, soit une fraction de 66 % de la puissance incidente retrouvée sous forme de puissance réfléchie. Dans un souci de clarté, ces résultats des hypothèses "haute" et "basse" ne sont pas représentés sur la figure 78 ni sur les résultats intermédiaires suivants, mais seront reportés sur les bilans complets, dans la partie 4.8.

Secondement, on réalise les mêmes mesures une fois le plasma allumé dans les mêmes conditions. Les résultats du bilan de puissance intermédiaire sont résumés figure 79. Ici, la puissance incidente est mesurée à 15,11 ; 14,9 et 15,07 W, des valeurs bien plus proches de la consigne donnée au générateur, avec un écart de l'ordre du pourcent.

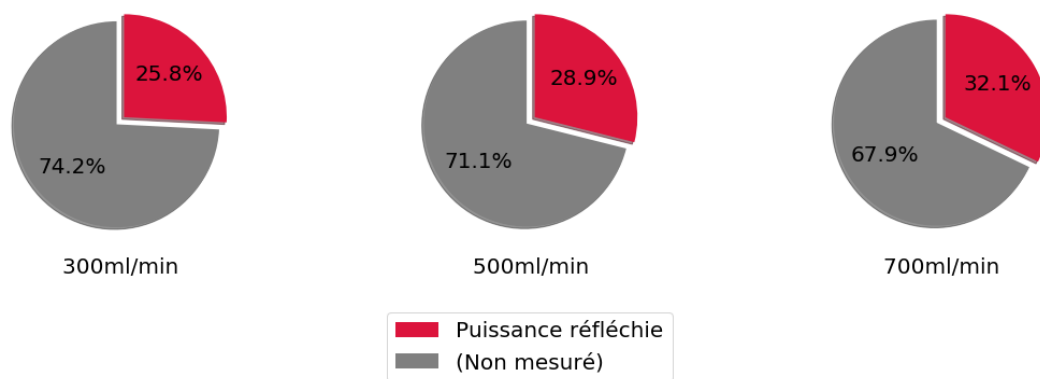


FIGURE 79 – Bilans de puissance intermédiaires, en ne considérant que la puissance incidente et réfléchie, mesurées par les puissances-mètres, pour 3 conditions de débits différents, avec plasma.

Les puissances réfléchies sont cette fois mesurées à 3,90 ; 4,30 et 4,84 W, des valeurs bien plus faibles, étant donné la présence du plasma qui absorbe une grande partie de la puissance micro-onde. Néanmoins, ces valeurs diffèrent assez fortement de celles données par le générateur, à savoir 1 W pour tous les cas, montrant que l'applicateur ne permet pas un couplage totalement optimal. Cette valeur de la puissance réfléchie correspond selon les cas à 26-32 % de la puissance incidente.

Les incertitudes sont ici également plus faibles que pour le cas sans plasma : dans le cas des hypothèses basses on mesure une puissance réfléchie de l'ordre de 20-25 % de la puissance incidente, et pour les hypothèses hautes ce rapport passe à 30-40 %. Dans tous les cas, et contrairement au cas sans plasma, la puissance réfléchie n'est pas majoritaire dans le bilan de puissance, mais représente malgré tout une fraction allant de 20 à 40 %, ce qui n'est pas du tout négligeable. Également, on voit ici une tendance se dégager pour les 3 différents débits : la puissance réfléchie contribue pour une part croissante avec le débit d'argon, en accord avec les résultats de la partie 3.2.1 où la puissance couplée décroît légèrement avec le débit.

### 4.3 Chauffage éléments de couplage micro-onde

Comme expliqué précédemment, le passage de la puissance micro-onde dans les éléments de couplage micro-onde (éléments A, B et C de la figure 77) chauffe ces derniers, ce qui constitue une dissipation de puissance qu'il faut quantifier pour notre bilan. La surface externe échange de la chaleur par deux moyens : les transferts conducto-convectifs avec l'air et les transferts radiatifs thermiques avec les parois opaques environnantes.

Une fois les constantes du problème établies (surface, géométrie, corrélation, émissivité ...), déjà explicitées dans la partie 2.2.3, la connaissance de la température externe de la surface des éléments de couplage micro-onde à l'état stationnaire est le seul paramètre expérimental à suivre et à connaître pour déterminer la puissance dissipée à la fois par transferts conducto-convectifs et radiatifs. Le mode de calcul de ces puissances nécessite d'explicitier les différentes théories utilisées.

#### 4.3.1 Transferts conducto-convectifs

Un objet entouré d'un gaz échange de la chaleur à travers sa surface externe lorsque leurs températures ne sont pas identiques. Comme il ne peut exister de discontinuité de température le long d'une direction de l'espace, entre une surface et le gaz ambiant, de températures différentes, il va s'établir une couche limite thermique dans le gaz, juste devant la surface (un film) de température intermédiaire. Les propriétés de ce film dépendent de la nature du gaz, de la géométrie du problème, des différentes températures et du type de convection (naturelle, forcée, mixte). Toutes les propriétés thermo-physiques à considérer seront prises à une valeur moyenne de cette température de film, que l'on pourra approximer par :

$$T_{\text{film}} = \frac{T_{\text{surface}} + T_{\text{ambiante}}}{2} \quad (4.1)$$

*N.B.* : Par la suite, et sauf précision contraire,  $T$  désignera toujours la température du film.

Avec :

- $T_{\text{film}}$  (K) : Température du film, couche limite de gaz entre la surface considérée et l'air à température ambiante.
- $T_{\text{surface}}$  (K) : Température de la surface considérée. Comme on l'a détaillé dans la partie 2.2.3, sa mesure par thermocouple donne des incertitudes asymétriques :  $T_{\text{surface}}^{\text{réelle}} (^{\circ}\text{C}) \in [T_{\text{surface}}^{\text{mesurée}} - 0,5; T_{\text{surface}}^{\text{mesurée}} + 1,0]$

•  $T_{\text{ambiante}}$  (K) : Température du gaz à l'équilibre, loin de l'influence de la surface (en dehors de la couche limite du thermique). Dans les conditions expérimentales pratiques, cela correspondra à la température de l'air de la pièce, mesurée également par thermocouple. L'incertitude de mesure est symétrique cette fois :  $T_{\text{ambiante}}^{\text{réelle}} (\text{°C}) \in [T_{\text{ambiante}}^{\text{mesurée}} - 0,5; T_{\text{ambiante}}^{\text{mesurée}} + 0,5]$

Dans notre cas, le gaz sera toujours l'air, à pression atmosphérique, sans écoulement d'air imposé, et dans une gamme de température comprise entre 20 et 100 °C. Les échanges avec l'air se produisent donc par convection naturelle. A l'aide de valeurs tabulées pour l'air, à pression atmosphérique, dans cette gamme de température, pour les propriétés physiques nécessaires aux calculs dépendant de la température et/ou de la pression (densité, viscosité dynamique, capacité thermique et conductivité thermique) [113] [108] on peut définir des fonctions polynomiales pour approcher ces paramètres pour toute valeur de température dans cette gamme :

$$\rho(T) = \frac{357,6}{T^{1,004}} \left( \frac{\text{kg}}{\text{m}^3} \right) \quad (4.2)$$

$$\mu(T) = 2,66 \times 10^{-19}T^4 - 1,42 \times 10^{-14}T^3 - 4,28 \times 10^{-11}T^2 - 7,09 \times 10^{-3}T + 5,93 \times 10^{-7} \left( \frac{\text{m}^2}{\text{s}} \right) \quad (4.3)$$

$$c_p(T) = 2,80 \times 10^{-10}T^4 - 1,07 \times 10^{-6}T^3 + 1,42 \times 10^{-3}T^2 - 5,62 \times 10^{-1}T + 1,07 \times 10^3 \left( \frac{\text{J}}{\text{kg}\cdot\text{K}} \right) \quad (4.4)$$

$$\lambda(T) = 2,66 \times 10^{-14}T^4 - 5,03 \times 10^{-11}T^3 + 1,01 \times 10^{-10}T^2 - 8,96 \times 10^{-5}T + 4,96 \times 10^{-3} \left( \frac{\text{W}}{\text{m}\cdot\text{K}} \right) \quad (4.5)$$

Par la suite, on pourra définir une série de nombres adimensionnés pour caractériser les échanges thermiques par la convection naturelle. On utilisera les nombres de Prandtl (Pr), de Grashof (Gr) et de Rayleigh (Ra) tels que :

$$Pr(T) = \frac{\mu(T)c_p(T)}{\lambda(T)} \quad (4.6)$$

Pour toutes les conditions de température, on aura pour l'air  $Pr(T) \simeq 0,7$ .

$$Gr(T, D) = \frac{\rho^2(T)gD^3\Delta T}{\mu(T)^2T} \quad (4.7)$$

$$Ra(T, D) = Pr(T)Gr(T, D) \quad (4.8)$$

Avec :

- $\Delta T(K) = T_{\text{surface}} - T_{\text{ambiante}}$
- $g = 9,81 \text{ m.s}^{-2}$  Accélération de la pesanteur terrestre.
- $D$  (m) : Grandeur caractéristique propre à la géométrie pouvant être, selon les cas, le diamètre d'un cylindre, la hauteur d'une face ...

Pour déterminer le flux de puissance dissipé par transferts conducto-convectifs, on a besoin de déterminer un autre nombre adimensionné : le nombre de Nusselt, Nu. Son expression dépend du type de convection, de la géométrie, des conditions aux limites (flux imposé, température uniforme) et de sa position (interne ou externe à la géométrie). Il est fonction des différents nombres adimensionnés définis ci-dessus ; on n'explicitera ici que les expressions correspondant aux configurations géométriques de notre système, dont certaines sont empiriques [113] [118].

Pour un cylindre horizontal de diamètre  $D$  en convection externe naturelle :

$$Nu(T, D) = \left( 0,6 + \frac{0,387 Ra(T, D)^{\frac{1}{6}}}{\left( 1 + 0,721 Pr(T)^{\frac{-9}{16}} \right)^{\frac{8}{27}}} \right)^2 \quad (4.9)$$

Valable pour  $Ra \in [10^{-5}; 10^{12}]$ .

Pour un plan vertical de hauteur  $H$  en convection externe naturelle :

$$Nu(T, H) = 0,68 + \frac{0,67 Ra(T, H)^{\frac{1}{6}}}{\left( 1 + 0,671 Pr(T)^{\frac{-9}{16}} \right)^{\frac{4}{9}}} \quad (4.10)$$

Valable pour  $Ra < 10^8$ .

Ici, les seuls solides à considérer dans nos bilans qui seront des plans verticaux sont les faces du coupleur bi-directionnel, ainsi que celles de l'applicateur. On obtient pour le premier cas des valeurs de Rayleigh comprises entre  $10^2$  et  $2 \times 10^3$ , et dans le second cas entre  $5 \times 10^3$  et  $10^5$ , la condition est donc toujours vérifiée.

Pour un plan horizontal de longueur caractéristique  $L_c$  chaud en dessous d'un fluide froid en convection externe naturelle :

$$Nu(T, L_c) = 0,54 Ra(T, L_c)^{\frac{1}{4}} \quad (4.11)$$

Valable pour  $Pr > 0,5$  et  $10^4 < Ra < 10^7$ .

Pour un plan horizontal de longueur caractéristique  $L_c$ , cette fois-ci chaud au-dessus d'un fluide froid en convection externe naturelle :

$$Nu(T, L_c) = 0,27Ra(T, L_c)^{\frac{1}{4}} \quad (4.12)$$

Valable pour  $Pr > 0,5$  et  $10^5 < Ra < 10^{10}$ .

Pour ces deux corrélations, la condition sur le nombre de Prantl est vérifiée, et le nombre de Rayleigh sera compris entre  $10^5$  et  $10^7$ , les conditions sont donc toujours vérifiées.

Pour un cylindre de diamètre  $D$  en convection externe forcée, écoulement perpendiculaire à l'axe du cylindre :

$$Nu_D(T, D, v_0) = 0,30 + \frac{0,62Re_D(T, v_0)^{\frac{1}{2}}Pr(T)^{\frac{1}{3}}}{\left(1 + \frac{0,543}{Pr(T)^{\frac{2}{3}}}\right)^{\frac{1}{4}}} \left(1 + 3,92 \times 10^{-4}Re_D^{\frac{5}{8}}\right)^{\frac{4}{5}} \quad (4.13)$$

Valable pour  $Pe_D > 0,2$ .

Avec  $Pe$  le nombre de Peclet défini par  $Pe_D = PrRe_D$ , et  $Re$  le nombre de Reynolds défini dans la partie 3.2.1. Pour des vitesses d'écoulement  $v_0$  comprises entre 0,1 et 10 m/s, on obtient un nombre de Reynolds compris entre 10 et 1300 (régime d'écoulement laminaire), soit un nombre de Peclet toujours compris entre 14 et 910, la condition est donc toujours vérifiée.

A l'aide du nombre de Nusselt (pour une longueur caractéristique  $L_c$ ) on pourra calculer le coefficient de transfert convectif à la paroi,  $h$  défini comme :

$$h(T, L_c) = \frac{Nu(T, L_c)\lambda(T)}{L_c} \left(\frac{W}{K.m^2}\right) \quad (4.14)$$

Et finalement, pour un élément de surface  $dS$  de température uniforme  $T_{\text{surface}}$  on pourra définir le flux de chaleur dissipée par conducto-convection  $d\Phi^{CC}$  (W) :

$$d\Phi^{CC}(T, L_c, S) = h(T, L_c)dS\Delta T = h(T, L_c)dS(T_{\text{surface}} - T_{\text{ambiante}}) \quad (4.15)$$

Pour mesurer les dissipations de puissance par transferts conducto-convectifs, on devra donc utiliser la théorie décrite ci-dessus. Dans la pratique, après détermination de la géométrie du problème et de la convection utilisée dans le bon régime de validité, les seuls paramètres expérimentaux à mesurer seront la température de la surface étudiée  $T_{\text{surface}}$ , la température ambiante  $T_{\text{ambiante}}$ , et dans le cas d'un écoulement externe forcé, la vitesse du gaz de cet écoulement  $v_0$ .



### 4.3.2 Transferts radiatifs

Les corps opaques situés dans un milieu transparent (en infrarouge) échangent également de la chaleur par rayonnement thermique. Ici, l'échange ne se fait pas de proche en proche avec les molécules environnantes à la surface étudiée, mais avec les parois qui sont visibles dans un angle solide de  $2\pi$  sr. Dans le cadre de la thèse nous avons considéré la température des murs de la pièce,  $T_{\text{murs}}$  en équilibre avec la température de l'air  $T_{\text{ambiante}}$ , confirmé par des mesures au thermocouple.

Dans le cas d'un élément de surface  $dS$  d'émissivité indépendante de la longueur d'onde,  $\epsilon(\lambda) = \text{cste}$ , de petites dimensions et situé dans une pièce à l'équilibre radiatif, on aura la valeur du flux de chaleur échangée par transferts radiatifs  $d\Phi^R$  (W) :

$$d\Phi^R(T_{\text{surface}}, T_{\text{murs}}, \epsilon, S) = \sigma \epsilon dS (T_{\text{surface}}^4 - T_{\text{murs}}^4) \quad (4.16)$$

Dans le cas plus complexe d'une émissivité non constante, comme la surface du capillaire, il est nécessaire d'intégrer spectralement la luminance  $L$  de la surface à la température  $T$  étudiée pour toute fréquence  $\nu$ . On aura :

$$L(\nu, T) = \frac{2h\nu^3}{c^2} \frac{1}{e^{\left(\frac{h\nu}{k_B T}\right)} - 1} \quad (4.17)$$

Avec :

- $c = 3,00 \times 10^8$  m/s : Célérité de la lumière.
- $h = 6,63 \times 10^{-34}$  J.s : Constante de Planck.

L'expression littérale du flux de puissance échangée par transferts radiatifs  $\Phi^R$  (W) d'une surface  $S$  est donc :

$$\Phi^R = \iint_S \int_{\nu=0}^{\infty} \int_{\theta=0}^{\frac{\pi}{2}} \int_{\phi=0}^{2\pi} \epsilon(\nu) (L_{\text{surface}}(\nu, T_{\text{surface}}) - L_{\text{murs}}(\nu, T_{\text{murs}})) dS d\nu \cos(\theta) \sin(\theta) d\theta d\phi \quad (4.18)$$

L'expression de  $\epsilon(\nu)$  dépend du matériaux étudié; en pratique ici, comme on ne considèrera que le cas du capillaire, on prendra l'émissivité présentée figure 35. En considérant l'émissivité indépendante de la direction de l'espace dans l'angle solide de  $2\pi$  sr où peut émettre (mais aussi réfléchir et absorber) la surface étudiée, et ce sur toute la surface  $S$  étudiée, avec une température homogène  $T_{\text{surface}}$  on pourra simplifier l'expression qui devient alors :

$$\Phi^R = \int_{\nu=0}^{\infty} \pi \epsilon(\nu) (L_{\text{surface}}(\nu, T_{\text{surface}}) - L_{\text{murs}}(\nu, T_{\text{murs}})) S d\nu \quad (4.19)$$

Avec ces expressions, le calcul des pertes de puissances par transfert radiatif sera possible pour toutes les conditions rencontrées avec notre dispositif.

### 4.3.3 Résultats de puissance thermique dissipée par les éléments de couplage micro-onde

On se place ici dans les mêmes conditions expérimentales que celles décrites dans la partie 4.1, avec 15 W de puissance micro-onde consigne (au générateur) et 3 débits d'argon différents.

En l'absence de plasma, l'élévation de température par rapport à la température ambiante ( $\simeq 21\text{ °C}$ ) est relativement faible : pour le coupleur et les connexions on a un  $\Delta T$  de l'ordre de 5 à 8 K, et pour l'applicateur on a  $\Delta T = 2\text{ K}$ . Ici, comme détaillé dans la partie 2.2.3, l'incertitude de mesure de ces températures est asymétrique en raison du contact imparfait. Les résultats présentant la contribution relative des différents canaux de diffusion de puissance par chauffage des éléments de couplage micro-onde (transferts conducto-convectifs et radiatifs, par le coupleur bi-directionnel, les connexions et l'applicateur) ainsi que la valeur de la puissance totale dissipée par ces canaux sont représentés figure 80 pour le cas sans plasma.

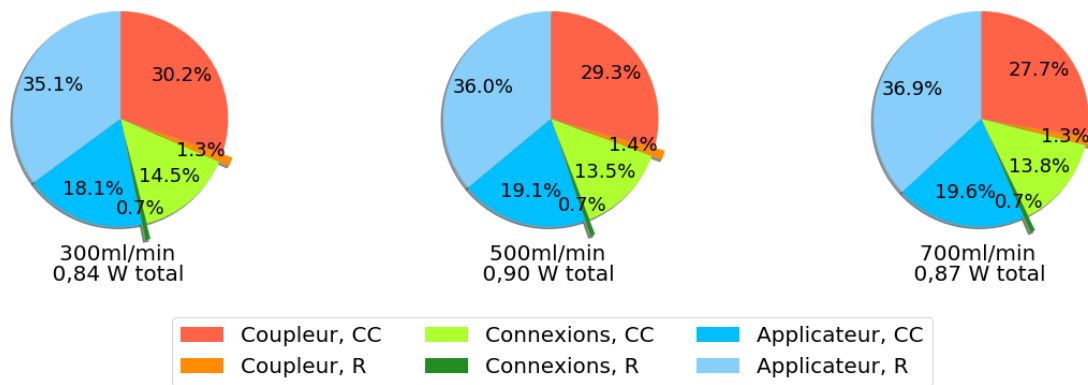


FIGURE 80 – Contribution relative des pertes par chauffage des éléments de couplage micro-onde et du type d'échange mis en jeu, dans le cas sans plasma. La dissipation totale de puissance par ces canaux est indiquée sous chaque cas.

Ces chiffres donnent une contribution totale des éléments de couplage micro-onde au bilan de puissance d'environ 0,9 W avec les résultats bruts ; l'applicateur contribuant pour environ 0,5 W, dont les deux tiers par transferts radiatifs. Les transferts radiatifs du coupleur et des connexions sont de l'ordre du milliwatt, et sont donc négligeables.

Ici, la prise en compte des incertitudes (détaillées plus haut) nous mène à des nouvelles hypothèses "hautes" et "basses" ; pour le premier cas on prend la valeur maximale pour la température de surface des éléments de couplage micro-onde (soit  $T_{\text{surface}}^{\text{mesurée}} + 1,0\text{ °C}$ ) et la valeur minimale pour la température de l'air ambiant (soit  $T_{\text{ambiante}}^{\text{mesurée}} - 0,5\text{ °C}$ ) et pour le second cas l'inverse (soit  $T_{\text{surface}}^{\text{mesurée}} - 0,5\text{ °C}$  et  $T_{\text{ambiante}}^{\text{mesurée}} + 0,5\text{ °C}$ ).

Dans les cas extrêmes on a une puissance dissipée comprise entre 0,2 et 1,6 W, on aura donc pour encadrer les 3 cas une puissance totale de  $0,9 \pm 0,7\text{ W}$ . Dans le détail, pour le cas de l'hypothèse "basse" la contribution de l'applicateur devient nulle, car son élévation de température est égale à celle de l'incertitude de mesure, et la contribution du coupleur, par conducto-convection, devient majoritaire (60 %) ; dans l'hypothèse "haute", à l'inverse la contribution de l'applicateur devient encore plus prédominante, représentant 65 % de l'ensemble, et toujours en majorité par transferts radiatifs. Ici encore, les différences entre les 3 cas de débits sont très faibles, indiquant une certaine reproductibilité des mesures.

Le plasma allumé et l'état stationnaire atteint, on constate un chauffage des éléments de couplage micro-onde globalement plus important :  $\Delta T \simeq 5$  K pour le coupleur ;  $\Delta T \simeq 6$  à 11 K pour les connexions et  $\Delta T \simeq 10$  K pour l'applicateur. Ce résultat peut-être surprenant, car en présence de plasma, l'onde réfléchiée par l'applicateur est beaucoup plus faible, car une grande partie de la puissance de l'onde incidente est transmise au plasma. Cependant, dans le cas avec plasma s'établit également une onde stationnaire au sein de la cavité micro-onde, qui se dissipe en partie en chauffage en son sein, et cette chaleur peut se transmettre au reste des éléments de couplage micro-onde par les connexions métalliques. L'ensemble des éléments de couplage micro-onde est également chauffé par la présence du plasma (chauffage du gaz environnant et par rayonnement), ce qui revient à compter une source de dissipation de chaleur plusieurs fois ; ce point sera discuté ultérieurement. Les résultats de contribution relative des différents canaux de dissipation de la puissance et la puissance totale dissipée sont présentés figure 81 pour ces cas avec plasma.

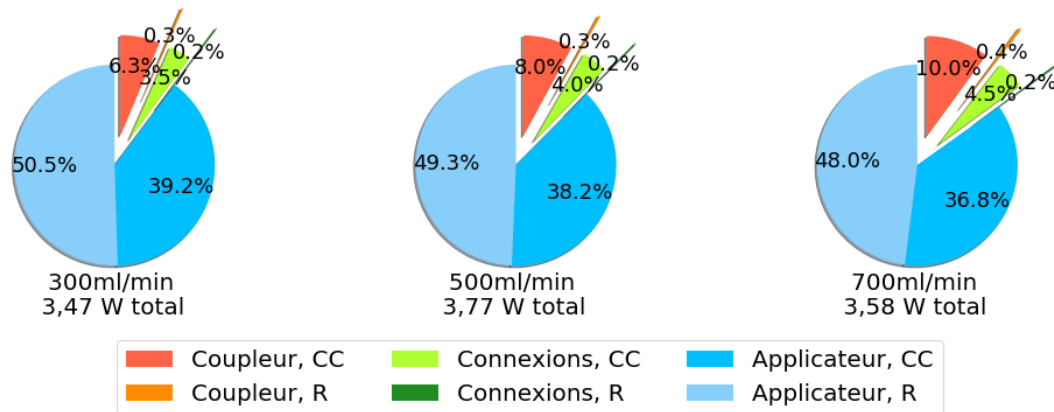


FIGURE 81 – Contribution relative des pertes par chauffage des éléments de couplage micro-onde et du type d'échange mis en jeu, dans le cas avec plasma. La dissipation totale de puissance par ces canaux est indiquée sous chaque cas.

Cette fois-ci, la contribution des échanges thermiques des éléments de couplage micro-onde est d'environ 3,6 W. En accord avec les mesures de température, on constate que la contribution de l'applicateur est bien plus importante que pour le cas sans plasma, représentant 85-90 % de toute la dissipation de puissance par chauffage des éléments de couplage micro-onde (éléments A, B et C). Ici aussi, l'applicateur dissipe en majorité par transferts radiatifs, tandis que la contribution radiative des connexions et du coupleur est négligeable. Avec la prise en compte des incertitudes, on peut encadrer la puissance dissipée  $3,6 \pm 0,8$  W. Dans ces cas extrêmes, la contribution relative des différents éléments change peu par rapport au cas des résultats bruts.

La différence entre les 3 cas de débits est relativement faible ; on constate malgré tout une légère augmentation avec le débit de la contribution du coupleur et des connexions. En termes de puissance totale dissipée par les éléments de couplage micro-onde, les écarts maximaux entre les 3 cas ne sont pas négligeables (de l'ordre de 10 %) mais il n'y a pas de tendance monotone entre le débit et la dissipation de puissance par chauffage des éléments de couplage micro-onde.

La mesure de la dissipation de puissance par chauffage des éléments de couplage micro-onde contribue donc de façon non négligeable au bilan de puissance total. En reprenant les bilans intermédiaires, avec la seule prise en compte de la puissance réfléchiée (figures 78 et 79 pour les cas sans et avec plasma respectivement) et en ajoutant cette contribution des éléments de couplage micro-onde, on obtient de nouveaux bilans

intermédiaires représentés figures 82 et 83 pour les cas sans et avec plasma respectivement. On calcule également les hypothèses "haute" et "basse" en prenant en compte les incertitudes dans les cas extrêmes, en sommant les deux contributions détaillées plus haut (incertitude sur l'atténuation du coupleur bi-directionnel et sur la mesure des températures) mais qui ne seront explicitées que dans la partie 4.8.

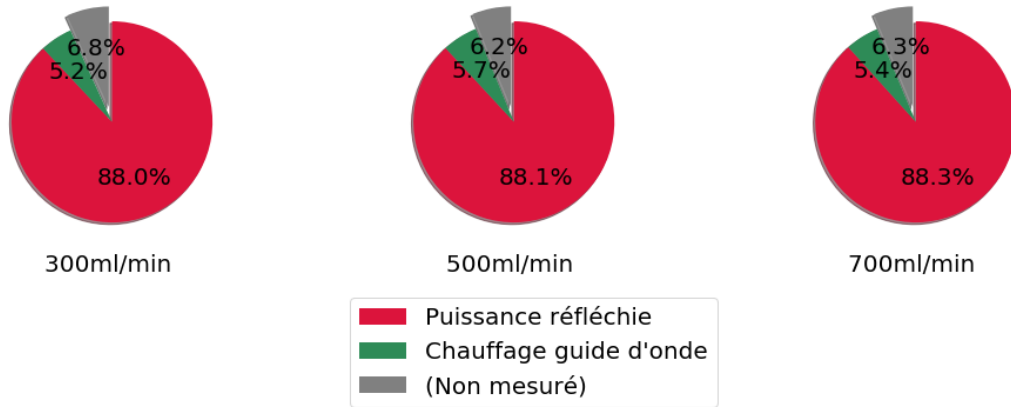


FIGURE 82 – Bilans de puissance en considérant les puissances incidente et réfléchie, ainsi que le chauffage des éléments de couplage micro-onde, pour 3 conditions de débits différentes, sans plasma.

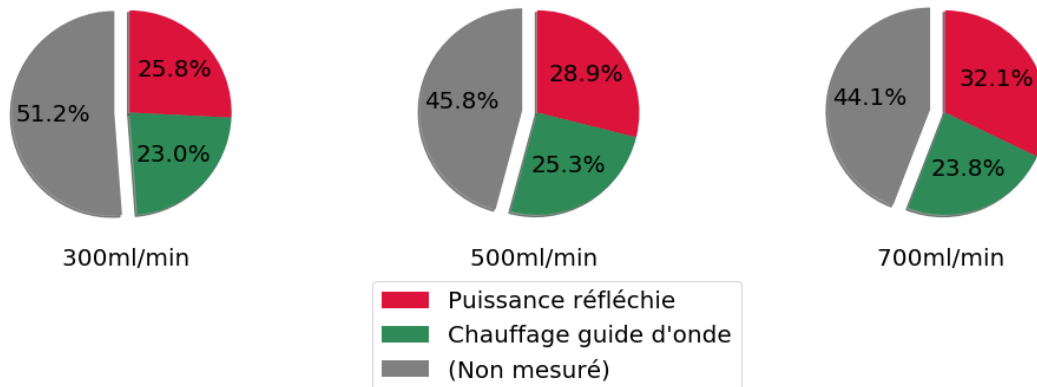


FIGURE 83 – Bilans de puissance en considérant les puissances incidente et réfléchie, ainsi que le chauffage des éléments de couplage micro-onde, pour 3 conditions de débits différentes, avec plasma.

Premièrement, dans le cas sans plasma, on constate que la contribution du chauffage des éléments de couplage micro-onde au bilan de puissance totale est de  $5,5 \% \pm 4,5 \%$ . En prenant seulement en compte les résultats bruts, on retrouve un bilan de puissance presque complet, moins de 7 % de la puissance incidente seulement n'étant pas mesurée. Dans le cas extrême, avec les incertitudes donnant le bilan le moins complet, cette proportion de puissance non-mesurée monte à un tiers de la puissance incidente. A l'autre extrême on a, pour rappel des résultats de la partie 4.2, une puissance réfléchie supérieure à la puissance incidente, donc d'ores et déjà un bilan de puissance complet, même si ce scénario n'est physiquement pas réaliste. Dans le cas de l'"hypothèse haute" on prendra la puissance incidente la plus basse d'après les barres d'erreur, la contribution du chauffage des éléments de couplage micro-onde la plus haute, et le reste de la puissance étant sous forme de puissance réfléchie, donnant donc un bilan de puissance complet.

Dans le cas avec plasma, la contribution du chauffage des éléments de couplage micro-onde est bien plus importante : elle est en moyenne de  $24 \pm 9$  %. Avec les résultats bruts, on retrouve un bilan de puissance seulement à moitié complété (47 % de la puissance est encore non mesurée), à l'inverse du cas sans plasma où le bilan s'approche des 100 % de puissance incidente, mais dans ces cas avec plasma, la puissance non mesurée peut se trouver dans de multiples autres canaux de diffusion qui apparaissent, et qui seront détaillés ultérieurement. Avec la prise en compte des incertitudes, cette proportion de puissance encore non mesurée est comprise entre 29 et 62 %, proportion que l'on s'attend à retrouver dans les autres canaux de diffusion de la puissance.

Conformément aux précédents résultats intermédiaires, on constate sur le bilan de puissance intermédiaire une part non mesurée de plus en plus faible avec le débit.

On a donc pu mettre en évidence qu'une part importante de la puissance micro-onde incidente, proche de 25 %, est dissipée avant d'atteindre le plasma et est donc, de la même façon que la puissance réfléchie, à exclure de la puissance réellement injectée et contribuant à l'ionisation du gaz et à la chimie de la décharge, un résultat jusqu'à présent ignoré lors de calculs ou de simulations numériques de tels plasmas. Cette dissipation provient en majeure partie du chauffage de l'applicateur.

## 4.4 Fuites de champ micro-onde

Même si les micro-ondes générées se propagent *via* un guide d'onde blindé (câble coaxial, blindage métallique autour du strip-line) il est toujours possible qu'elles s'échappent depuis le système dans l'environnement ambiant, ce qui constitue une perte nette de puissance. L'étude de ces pertes radiatives a déjà été réalisée, mais uniquement de façon qualitative et à proximité immédiate de l'applicateur, au vu de la sensibilité des appareils utilisés, et n'a conclu qu'à une dissipation de puissance négligeable par ces fuites de champ [119].

En utilisant la configuration expérimentale ainsi que le protocole décrit précédemment dans la partie 2.2.2 on mesure la valeur des fuites de champ micro-onde sur la surface de la géométrie virtuelle définie, à l'état stationnaire. Les mesures sont effectuées en absence de plasma (car le dispositif expérimental est épuré pour limiter les effets de réflexion des MO), avec l'applicateur strip-line, pour une puissance incidente du générateur de 20 W à 2,45 GHz, avec une puissance réfléchie mesurée par le générateur de 13 W.

Les résultats des mesures sur les faces (1) à (6) sont exposées sur les figures 84 à 89. Les faces sont toutes représentées avec la même échelle, avec un maximum atteint pour la face (6).

Plusieurs conclusions peuvent être tirées de ces mesures : tout d'abord, la géométrie du système suggérerait un axe de symétrie en  $x = 0$  (cf. figure 84), ce que les mesures montrent globalement. Le léger décalage des maxima locaux vers les valeurs de  $x$  positives peut s'expliquer par la position du câble coaxial, légèrement décalé dans cette direction, et qui peut agir comme source de réflexion des micro-ondes. Le câble en soi ne constitue qu'une source très faible de fuites de champ, les valeurs obtenues à proximité du câble mais loin de l'applicateur étant jusqu'à un ordre de grandeur inférieures.

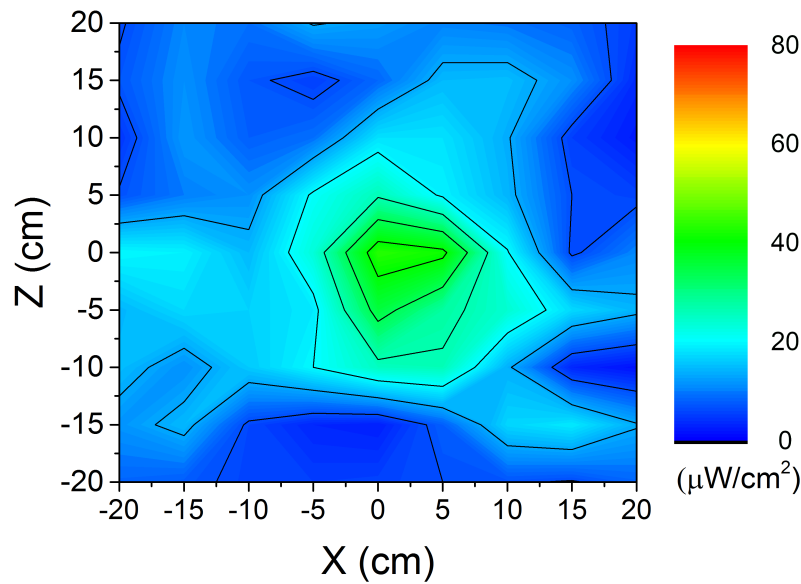


FIGURE 84 – Fuites de champ micro-onde mesurées sur la face (1) à  $y = -20$  cm, perpendiculaire à l'axe du capillaire et du câble coaxial, et traversée par ces derniers. Puissance incidente de 20 W, puissance réfléchie 13 W (mesurés au générateur), sans plasma.

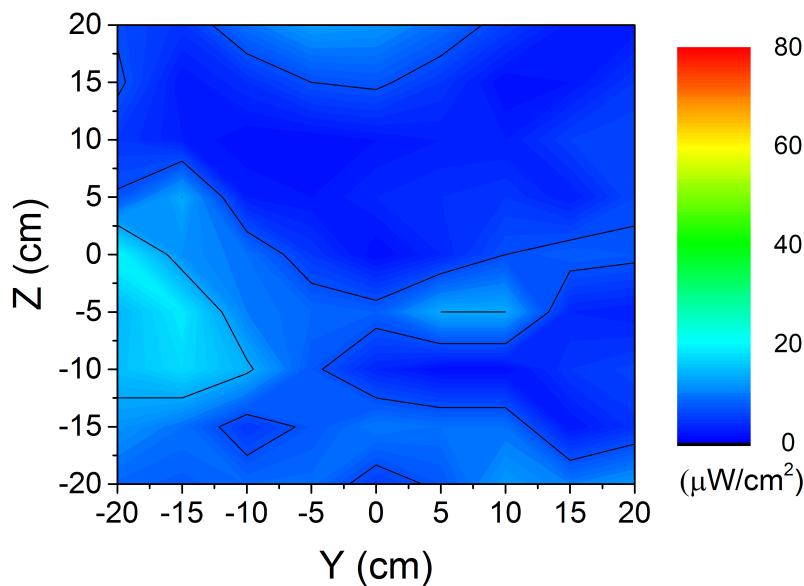


FIGURE 85 – Fuites de champ micro-onde mesurées sur la face (2) à  $x = -20$  cm, parallèle à l'axe du capillaire. Puissance incidente de 20 W, puissance réfléchie 13 W (mesurés au générateur), sans plasma.

Les mesures sur les faces (2) et (5) (cf. figures 85 et 88), parallèles à l'axe du capillaire, montrent que les fuites de champ sont très faibles, voire quasi-nulles sur ces faces. À l'inverse, les faces traversées par cet axe, (1) et (4) (cf. figure 87), montrent des valeurs de fuites de champ bien plus importantes. Ce résultat pouvait être attendu : la section de l'applicateur traversée par le capillaire, d'où peuvent s'échapper les micro-ondes, est directement en ligne de vue des faces (1) et (4) à l'inverse des faces (2) et (5).

En revanche, le profil des faces (1) et (4) est bien différent, la valeur des fuites de champ étant bien plus importante dans le premier cas. Cela peut s'expliquer par la présence du câble coaxial, qui traverse la face (1) mais pas la (4), seul élément qui rend la géométrie asymétrique.

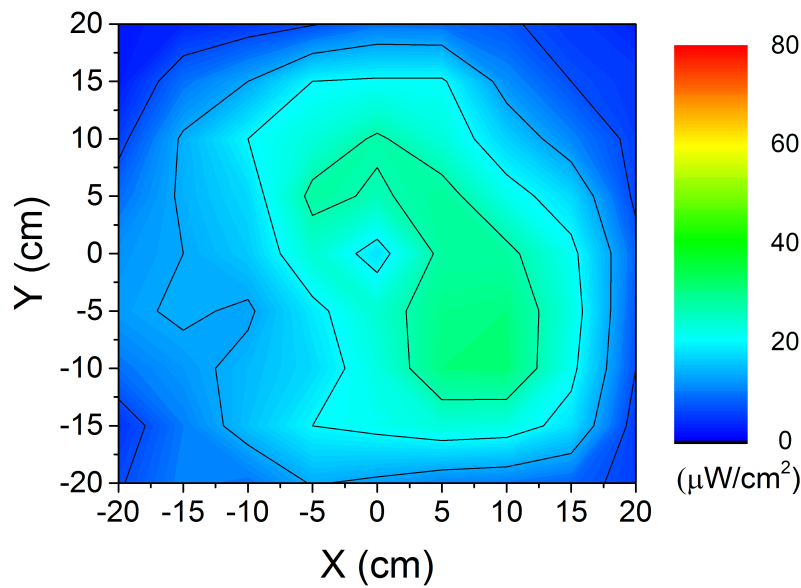


FIGURE 86 – Fuites de champ micro-onde mesurées sur la face (3) à  $z = +20$  cm, parallèle à la surface de la table optique, au-dessus de l'applicateur. Puissance incidente de 20 W, puissance réfléchie 13 W (mesurés au générateur), sans plasma.

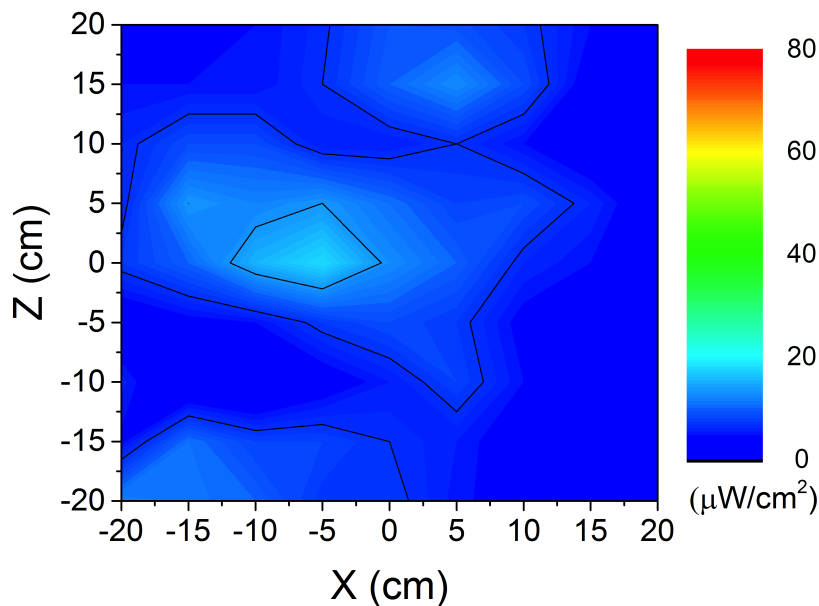


FIGURE 87 – Fuites de champ micro-onde mesurées sur la face (4) à  $y = +20$  cm, perpendiculaire à l'axe du capillaire et traversée par ce dernier, mais pas par le câble coaxial. Puissance incidente de 20 W, puissance réfléchie 13 W (mesurés au générateur), sans plasma.

Les faces (3) et (6) (cf. figures 86 et 89), respectivement au-dessus et au-dessous de l'applicateur ont les valeurs moyennes les plus importantes, et avec un profil proche d'une symétrie circulaire centrée sur  $(x,y) = (0,0)$  où se trouve le maximum de puissance mesurée, avec une décroissance en s'éloignant de ce centre. Une différence notable peut être constatée entre ces deux faces : les fuites de champ micro-onde sont plus "concentrées" autour du centre sur la face (6), avec un maximum global plus important, mais une décroissance rapide en s'éloignant du centre, tandis que sur la face (3) le maximum est plus faible, mais la décroissance en s'éloignant du centre est plus lente. Cette différence entre les deux profils peut cette fois s'expliquer par la présence de la tige métallique sur laquelle est fixé l'applicateur.

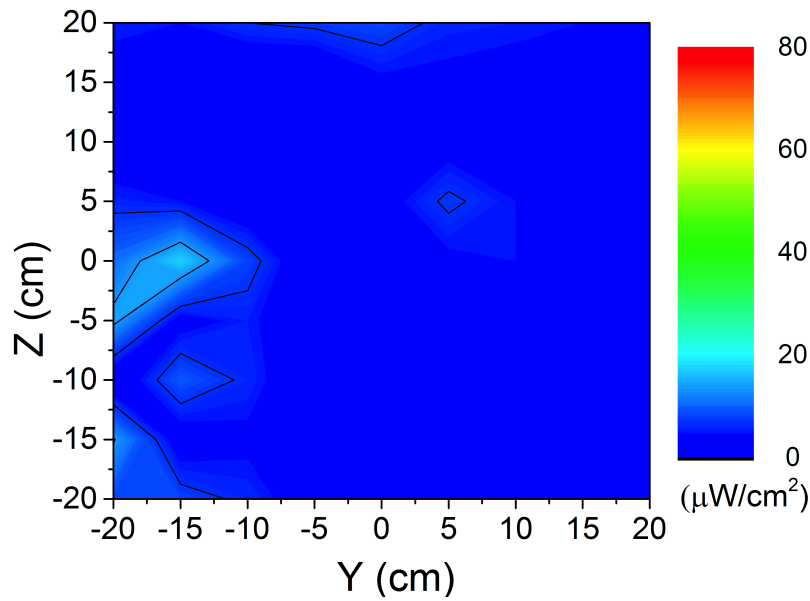


FIGURE 88 – Fuites de champ micro-onde mesurées sur la face (5) à  $x = +20$  cm, parallèle à l'axe du capillaire. Puissance incidente de 20 W, puissance réfléchie 13 W (mesurés au générateur), sans plasma.

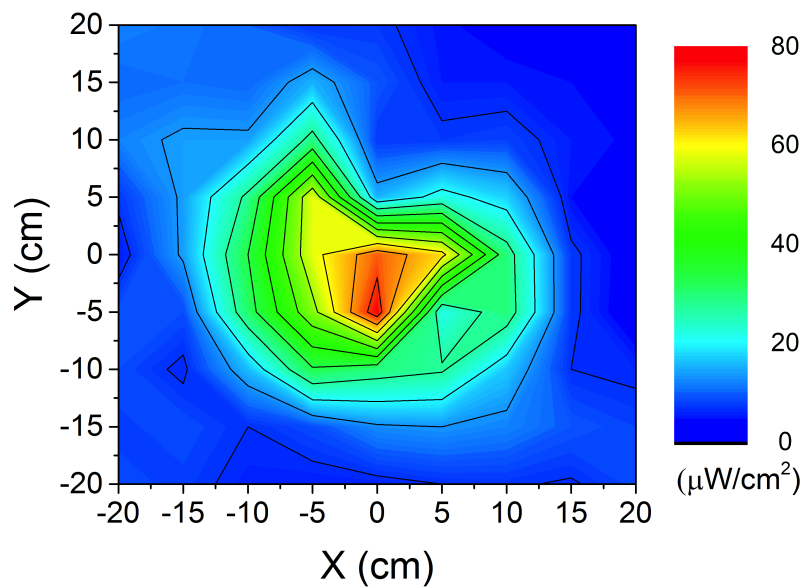


FIGURE 89 – Fuites de champ micro-onde mesurées sur la face (6) à  $z = -20$  cm, parallèle à la surface de la table optique, en dessous de l'applicateur. Puissance incidente de 20 W, puissance réfléchie 13 W (mesurés au générateur), sans plasma.

En intégrant la densité de puissance mesurée pour chacune des faces de la géométrie, on obtient les résultats détaillés dans le tableau 4.1.

Face	1	2	3	4	5	6
Flux surfacique moyen mesuré (en $\mu\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$ )	12,9	6,9	15,4	6,3	3,9	15,0

Tableau 4.1 – Mesure de la puissance moyenne de fuites de champ micro-onde par les faces de la géométrie fermée entourant l'applicateur.



La géométrie totale avec toutes les mesures de fuites de champ est dessinée figure 90.

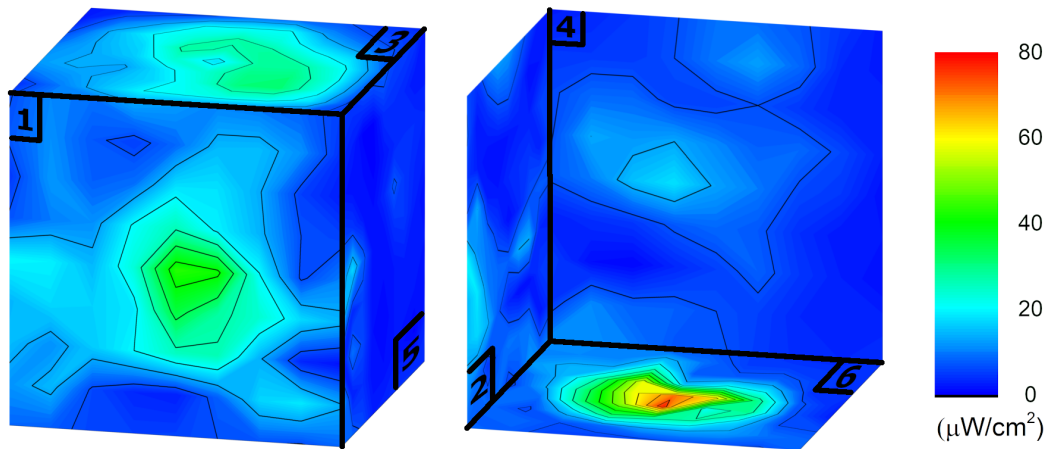


FIGURE 90 – Représentation 3D des mesures de fuites de champ sur la géométrie fermée définie. Les faces (1), (3) et (5) à gauche; les faces (2), (4) et (6) à droite. Puissance incidente de 20 W, puissance réfléchie 13 W (mesurés au générateur), sans plasma.

Le flux surfacique micro-onde moyen mesuré sur toute la géométrie est de  $10,0 \mu\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$ . Pour une surface totale de  $9600 \text{ cm}^2$ , correspondant à la surface de la géométrie définie, on obtient un total de fuites de champ micro-onde de  $95,5 \text{ mW}$ . Cela représente moins de  $0,5 \%$  de la puissance micro-onde incidente délivrée par le générateur, et peut donc être considéré comme négligeable dans le bilan de puissance.

Ce résultat est néanmoins obtenu avec une puissance incidente fixe, et en l'absence de plasma, il est donc nécessaire de tester des situations plus proches des conditions réelles de l'expérience pour conclure sur l'aspect négligeable ou non des fuites de champ.

Dans un premier temps, on se place avec une puissance micro-onde incidente de  $40 \text{ W}$ , encore une fois sans plasma. La puissance réfléchie indiquée par le générateur est de  $27 \text{ W}$ .

Seules des mesures sur la face (1) seront réalisées, qui d'après les précédents résultats sont suffisants pour conclure sur l'ordre de grandeur des fuites de champ totales. Les résultats mesurés sur cette face sont exposés figure 91.

Ces mesures montrent un profil général semblable au cas à  $20 \text{ W}$  : le maximum est proche de l'origine, et le flux surfacique de puissance micro-onde décroît en s'en éloignant. Les valeurs mesurées sont néanmoins plus importantes que dans le cas précédent en chaque point du maillage. La moyenne mesurée sur l'ensemble de la surface est de  $20,7 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ , soit environ  $1,5$  fois la valeur du cas à  $20 \text{ W}$ . Loin de pouvoir définir une loi générale entre puissance micro-onde incidente et fuites de champ, on peut néanmoins conclure que, quelle que soit la valeur de la puissance incidente, les fuites de champ seront négligeables dans les cas sans plasma pour notre système.

Enfin, on se place dans le cas où on a un plasma, et on utilise alors le même protocole de mesure avec le dispositif expérimental complet. Néanmoins, l'encombrement du système fait qu'il ne sera pas possible de faire des mesures sur toute la géométrie entourant l'applicateur. Pour pouvoir faire des mesures sur l'intégralité de la face (1), normalement traversée par le capillaire, on se place dans une configuration de "plasma jet", à pression atmosphérique. La sortie du capillaire est placée à la position  $(x,y,z) = (0, -11 \text{ cm}, 0)$ , soit à proximité de la face (1).

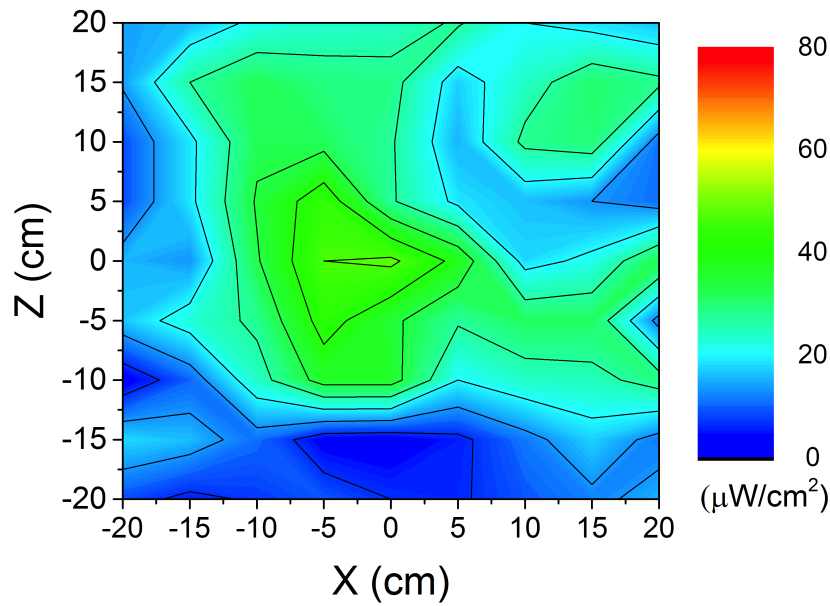


FIGURE 91 – Fuites de champ mesurées sur la face 1 avec une puissance incidente de 40 W, une puissance réfléchie de 27 W (mesurés au générateur) et sans plasma.

Le gaz porteur utilisé est l'argon, à un débit de 600 ml/min, avec 20 W de puissance micro-onde incidente (à 2,45 GHz). La puissance réfléchie mesurée par le générateur est de 7 W, et le plasma s'étend sur quelques millimètres après la sortie du capillaire, mais reste suffisamment loin de la sonde pour ne pas la perturber.

Les résultats obtenus dans ces conditions sont représentés figure 92.

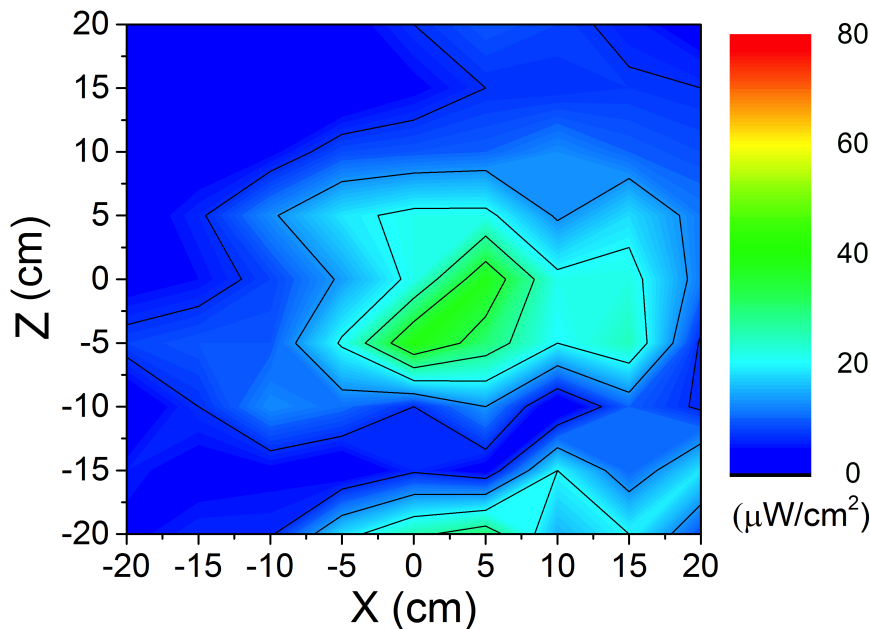


FIGURE 92 – Fuites de champ mesurées sur la face (1) avec 20 W de puissance incidente, une puissance réfléchie de 7 W (mesurés au générateur) et en présence d'un plasma jet d'argon.

Ces résultats montrent un profil similaire à celui obtenu sans plasma avec la même puissance incidente. Le maximum global est d'une valeur très proche ( $39 \mu\text{W}/\text{cm}^2$  dans ce cas,  $43 \mu\text{W}/\text{cm}^2$  dans celui sans plasma), situé proche du centre, et les valeurs sont également décroissantes en s'éloignant de ce maximum.

On observe néanmoins un maximum secondaire vers la position  $(x,z) = (5 \text{ cm}, -20 \text{ cm})$ , proche de la table optique. Cela peut-être dû à la présence du dispositif complet, avec son encombrement et les réflexions possibles.

Néanmoins, la puissance moyenne mesurée sur cette face reste similaire à celle obtenue en l'absence de plasma : dans le cas présent on mesure  $10,5 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ , ce qui est même inférieur au cas précédent. Cela semble indiquer que la présence ou non de plasma ne change pas l'ordre de grandeur des fuites de champ micro-onde mesurées.

Dans différentes configurations, y compris celles proches des conditions réelles du bilan de puissance, nous avons mesuré un total de flux de fuites de champ de l'ordre de 0,5 % qui est négligeable par rapport à la puissance micro-onde incidente. On pourra donc considérer ce canal de perte de la puissance comme négligeable dans le bilan.

## 4.5 Émission radiative optique du plasma

Le plasma conduit à la création d'états excités radiatifs, une partie de ce rayonnement (que l'on nommera rayonnement optique pour le distinguer du rayonnement thermique) va traverser le capillaire, transparent sur plusieurs parties du spectre lumineux : visible, proche infrarouge ainsi qu'une partie de l'UV. Le rayonnement dans les gammes spectrales du moyen infrarouge et de l'UV profond, où le capillaire est opaque, est absorbé par ce dernier, et donc finalement diffusé en chauffage conducto-convectif et radiatif des parois externes du capillaire, qui est également mesuré.

Ce rayonnement optique constitue donc une perte nette de puissance, mais contrairement aux canaux de diffusion précédents, elle correspond à une part de puissance qui a effectivement été injectée dans le plasma. Il est donc nécessaire de le mesurer dans le cadre de notre bilan de puissance. La valeur de cette puissance dissipée par émission radiative optique est :

$$P_{\text{Rad\_plasma}} = \iiint_{V_{\text{Plasma}}} \int_{\nu} \int_{\Omega} (e_{\Omega}(\nu)) dV d\nu d\Omega \quad (4.20)$$

- Avec luminance monochromatique  $L(\nu) = \int_l e(\nu) dl$ , où  $e(\nu)$  est le coefficient d'absorption, en  $\frac{\text{W}}{\text{m}^3 \text{sr.nm}}$

Pour obtenir la valeur de la puissance dissipée par ce rayonnement optique, on utilise le dispositif décrit dans la partie 2.2.5 qui nous permet d'obtenir un spectre de coefficient d'émission monochromatique sur le domaine du visible, qui peut être ensuite intégré en longueur d'onde, angle solide, et volume, nous donnant ainsi la puissance radiative optique du plasma en une position longitudinale. Le système de lentilles étant monté sur une translation parallèle à l'axe du capillaire, on peut mesurer cette valeur le long de la colonne de plasma. La valeur de la luminance intégrée spectralement (ou radiance) en fonction de la position longitudinale est représentée figure 93. Chaque point est obtenu pour des conditions plasmas fixées : applicateur strip-line, 20 W de puissance micro-onde consigne et fréquence de 2,45 GHz, débit d'argon de 500 ml/min, à basse pression, pour un temps d'intégration de 10 ms et une moyenne sur 50 spectres. La bande grise correspond aux positions pour lesquelles on ne voit pas l'émission plasma, à cause de la présence de l'applicateur. Une interpolation linéaire a été considérée pour déterminer la radiance du plasma dans cette zone.

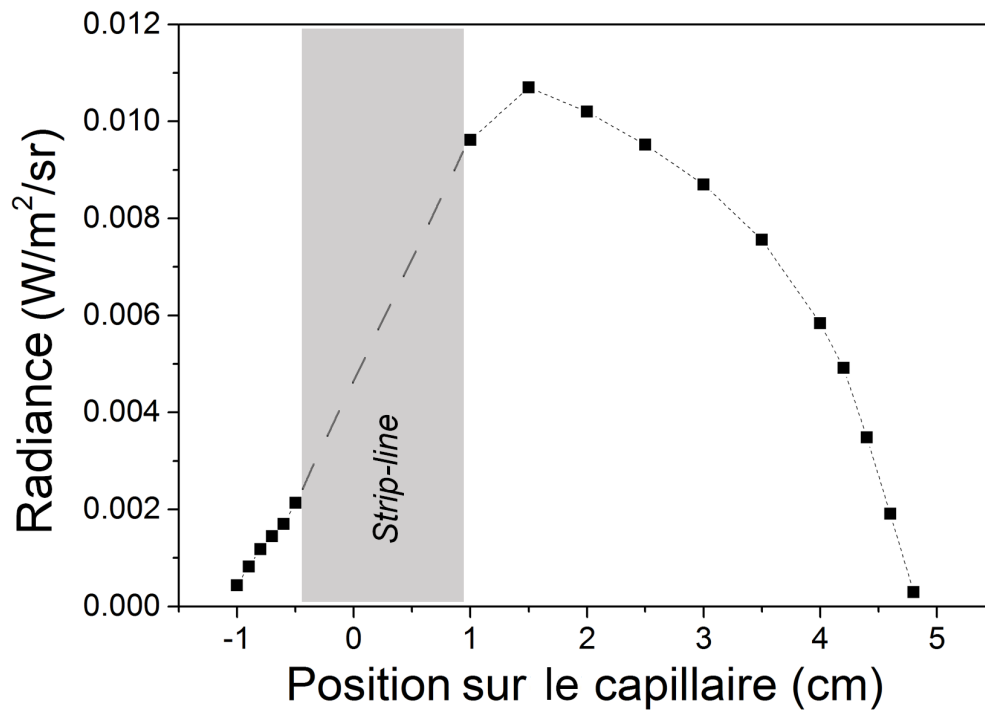


FIGURE 93 – Radiance du plasma en fonction de sa position le long de son axe. La bande grise correspond aux positions pour lesquelles on ne collecte pas tout l’angle solide, à cause de la présence de l’applicateur.

Ce résultat, intégré sur la surface émettrice équivalente du plasma et l’angle solide (en supposant l’émission isotrope) nous donne une puissance de  $15 \mu\text{W}$ . Ce résultat est 6 ordres de grandeur en dessous de la puissance micro-onde incidente, et est donc négligeable. Bien que l’on ne mesure pas ici l’émission au-delà du spectre visible, dont l’UV (qui transporte beaucoup plus d’énergie) et l’IR, cette puissance se retrouve dans le bilan global, puisque le capillaire étant opaque à ces longueurs d’onde, le rayonnement est directement absorbé par ce dernier, et sera donc transmis sous forme de chauffage de sa paroi externe. On pourra donc totalement négliger l’émission radiative optique dans notre bilan de puissance.

## 4.6 Chimie et thermique de post-décharge

Au-delà de la région plasma où l’on mesure les flux thermique et optique à travers le capillaire, il peut subsister des espèces excitées, des espèces moléculaires stables ainsi qu’une enthalpie à cause du chauffage du gaz, qui transportent donc de la puissance à travers cette frontière perpendiculaire au capillaire. Cette frontière fait partie du système défini pour lequel on réalise le bilan de puissance. Il est donc nécessaire de mesurer la puissance transportée par le gaz à la sortie du capillaire, qui peut être sous forme thermique ou chimique.

Pour la puissance transportée par les espèces chaudes, on aura :

$$P_{\text{Chauffage\_post\_décharge}} = \dot{m}_{\text{gaz}} C_{p,\text{gaz}} \Delta T_{\text{gaz}} \quad (4.21)$$

Avec :

- $\dot{m}_{gaz}$  (kg/s) : Débit massique de gaz sortant de la section aval du tube.
- $\Delta T_{gaz}$  (K) : Différence de température du gaz entre l'entrée et la sortie.
- $C_{p,gaz}$  (J/K/kg) : Capacité thermique massique du gaz.

La température du gaz est mesurée par un thermocouple fin (50  $\mu\text{m}$  de diamètre) avec passage sous vide, placé immédiatement en sortie du tube, sans perturber l'écoulement du gaz.

Les écarts de température  $\Delta T_{gaz}$  entre le gaz en amont (toujours à l'équilibre avec la température ambiante) et en aval du capillaire varient énormément en fonction des conditions expérimentales (puissance micro-onde, débit, position de l'applicateur par rapport à la sortie du tube ...) mais sont toujours compris entre 0 et 100 K. Même en prenant la barre haute de cette fourchette, la valeur de  $P_{\text{Chauffage\_post\_décharge}}$  sera au plus de 10 mW, ce qui représente 3 ordres de grandeur en dessous de la puissance incidente. On pourra donc négliger ce canal de diffusion dans notre bilan de puissance.

En ce qui concerne la chimie de post-décharge, dans le cas d'un plasma d'argon pur, les seules espèces pouvant transporter de la puissance en post-décharge sont les états métastables de l'argon. La valeur de la puissance qu'ils transportent est calculée par :

$$P_{\text{Chimie\_post\_décharge}} = \sum_i \dot{N}_i \Delta E_i S \quad (4.22)$$

Avec :

- $\dot{N}_i$  ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ) : Flux de particules de l'état excité  $i$ .
- $\Delta E_i$  (J) : Différence d'énergie entre l'état de l'espèce  $i$  et son état fondamental.
- $S$  ( $\text{cm}^2$ ) : Section de sortie du capillaire.

La valeur de  $\dot{N}_i$  est donnée par la densité d'espèces excitées  $n_i$  ( $\text{cm}^{-3}$ ), ici les états métastables de l'argon. L'étude sur la densité d'état métastable d'argon mesurée par diagnostic d'absorption laser est détaillée dans la partie 5.3.4. Ici, pour donner un ordre de grandeur de la puissance injectée dans les métastables, on utilisera le résultat obtenu à pression atmosphérique pour 40 W de puissance micro-onde, à 50  $\mu\text{m}$  de la sortie du capillaire, à savoir une densité de  $2,7 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$  pour l'état  $3s^2 3p^5 ({}^2P_{3/2}^o)4s$  à  $\Delta E_i = 11,55 \text{ eV}$ .

Une telle densité nous donne une puissance de chimie de post-décharge de l'ordre de 10 mW ; tout comme le chauffage de post-décharge, cette valeur est plusieurs ordres de grandeur inférieure à la puissance consigne, et sera donc négligeable dans le bilan de puissance.

## 4.7 Mesure de la puissance couplée au plasma à travers le capillaire

Le dernier canal de diffusion de la puissance injectée dans le plasma, et qui est l'unique à prendre en compte, les trois autres (*i.e.* le rayonnement optique à travers le capillaire, les métastables et le chauffage du gaz en sortie du capillaire) donnant des puissances négligeables, est le chauffage de la paroi du capillaire. La puissance micro-onde injectée dans le plasma est convertie par une succession de phénomènes pour finir en chaleur qui traverse le capillaire. Celui-ci étant un corps opaque dans le moyen infrarouge, il échangera de la chaleur de la même façon que les processus décrits dans la partie 4.3. Ici, la géométrie concernée est celle d'un cylindre horizontal, en convection naturelle ou forcée externe, selon que l'on utilise ou non le système de couplage thermique externe décrit dans la partie 2.3. On utilise ici le dispositif décrit dans la partie 2.2.4 ainsi que les méthodes de calibration et d'extrapolation des données décrites.

Un exemple de mesure de la température du capillaire obtenue dans les conditions décrites dans la partie 4.1 est représenté figure 94.

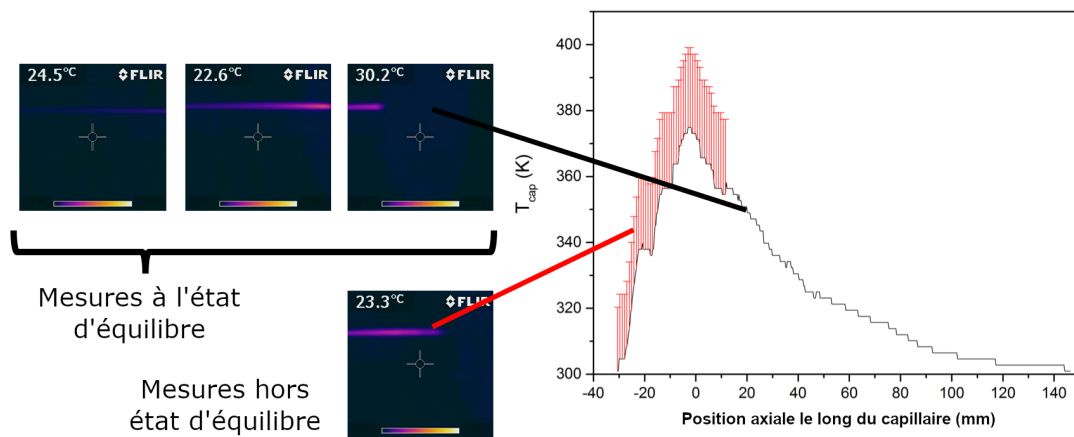


FIGURE 94 – Température mesurée à la paroi externe du capillaire le long de son axe, après correction de la caméra. Les points obtenus hors de l'état d'équilibre sont extrapolés par les barres d'erreur rouges.

Le profil de température du capillaire est toujours globalement similaire : le maximum est obtenu dans une zone proche du centre de l'applicateur, en amont de ce dernier. La température décroît sur une distance de quelques centimètres avant de retourner à la température ambiante. Du côté aval la décroissance est plus lente, et s'étend sur une dizaine de centimètres.

Il est à noter que pour la partie du capillaire cachée par l'applicateur, où les mesures sont extrapolées car non mesurées à l'état stationnaire, l'interprétation des résultats est plus complexe. On considère cet élément du capillaire comme échangeant de la chaleur par transferts conducto-convectifs et radiatifs de la même façon que les autres éléments du capillaire, mais l'environnement avec lequel les échanges se font est ici différent. Pour les échanges conducto-convectifs, le capillaire est entouré d'une faible épaisseur d'air de 0,5 mm, représentant l'espace entre la paroi externe du capillaire et son passage à travers l'applicateur. Cette épaisseur est comparable à la couche mince où s'établissent les échanges conducto-convectifs, et en l'absence d'écoulement du gaz, limite les échanges avec l'air ambiant, servant de thermostat. On pourra donc considérer qu'ici les échanges s'approchent plus du cas de la conduction que de celui de la conducto-convection naturelle ; les échanges radiatifs ne se font pas avec les murs de la pièce, mais également en grande partie avec l'intérieur de l'applicateur, plus chaud que l'air ambiant.

Ces effets expliquent pourquoi, malgré une puissance réfléchie plus faible, l'applicateur et les éléments de couplage micro-onde sont plus chauds dans le cas avec plasma par rapport au cas sans (cf. partie 4.3.3). Cependant, comme une part importante de la puissance dissipée par cette partie du capillaire est transmise à l'applicateur, dont on a déjà mesuré la dissipation de puissance par chauffage (cf. partie 4.3.3), on mesurerait ici deux fois la dissipation de chaleur de cette partie du capillaire, à la fois directement, et aussi une fois la chaleur transmise à l'applicateur. On décidera donc de prendre une hypothèse simple, considérant que l'environnement autour de l'ensemble du capillaire est toujours le même (échanges conducto-convectifs en convection naturelle, et radiatifs avec les murs de la pièce), ce qui est une surestimation du flux dissipé, dont l'influence sur le bilan de puissance sera discutée ultérieurement.

Pour ces résultats, obtenus avec 15 W de puissance incidente, on mesure entre 1,9 et 2,8 W, avec un rapport d'environ 66/33 pour les transferts conducto-convectifs/radiatifs. On constate ici une différence importante entre les différents cas de débits : les plus hautes puissances mesurées sont pour les débits les plus faibles, ce qui correspond également aux plasmas les plus longs, cf. partie 3.2.1. Les incertitudes sont prises ici en considérant une erreur de  $\pm 0,05$  sur la valeur de  $\epsilon$  donnée en paramètre de mesure à la caméra IR, soit une variation de 5 % de la température mesurée sur toute la longueur du capillaire. Cela donne des incertitudes très faibles, de l'ordre de 0,05 W pour chaque cas.

On représente la contribution de cette puissance dissipée par la paroi externe du capillaire au bilan de puissance intermédiaire (cf. figure 83) sur la figure 95 ; seul le cas avec plasma est concerné, puisqu'en l'absence de plasma le chauffage du capillaire est nul.

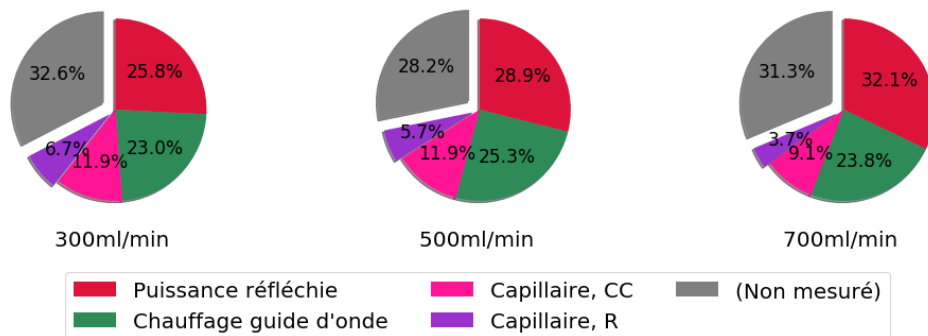


FIGURE 95 – Bilans de puissance en considérant les puissances incidente et réfléchie, ainsi que le chauffage des éléments de couplage micro-onde et le flux thermique à travers le capillaire, pour 3 conditions de débits différentes, avec plasma et 15 W de puissance consigne

Sur ces bilans de puissances (qui sont d'ores et déjà complets, tous les canaux de dissipation de la puissance identifiés ayant été quantifiés, mais qui seront commentés dans leur ensemble dans la partie 4.8) avec les cas extrêmes, on constate que la contribution du chauffage du capillaire (et donc de la puissance réellement injectée dans le plasma) représente entre 12 et 20 % de la puissance incidente. Dans les cas extrêmes avec les incertitudes, cette proportion reste du même ordre de grandeur. Les bilans intermédiaires précédents (cf. figure 83) montraient une part de la puissance non mesurée plus importante pour les cas aux plus faibles débits. Ici on constate qu'en prenant en compte le chauffage du capillaire, plus important aux faibles débits, cette part de puissance non mesurée s'équilibre entre les 3 cas, qui ne présentent que des différences modérées sur cette grandeur. On peut en déduire que modifier le débit, pour toutes autres conditions expérimentales fixées, modifie la longueur de la colonne de plasma (cf. partie 3.2.1) et donc la fraction de puissance qui lui est injectée, et de façon inversement proportionnelle, modifie la fraction de puissance dissipée au sein des éléments de couplage micro-onde.

## 4.8 Résultats de bilans de puissance complet du plasma

Les différents canaux de diffusion de la puissance étant étudiés pour diverses configurations expérimentales, il est maintenant possible de réaliser un bilan de puissance complet de nos configurations, en présentant également les cas des hypothèses "haute" et "basse". Conformément aux conclusions intermédiaires, et au caractère négligeable d'une grande partie des canaux de diffusion : fuites de champ micro-onde, rayonnement optique du plasma, chimie et chauffage de post-décharge, ces sources de diffusion ne seront pas prises en compte. Le bilan sera donc fait uniquement à partir des mesures de puissance incidente, puissance réfléchie, chauffage des éléments de couplage micro-onde (coupleur bi-directionnel, connexions et applicateur) et chauffage des parois externes du capillaire.

Ces bilans seront premièrement présentés dans le cas sans plasma, puis avec un plasma d'argon à basse pression, et enfin dans des cas à pression atmosphérique et/ou en milieu réactif (mélange argon/air).

### 4.8.1 Bilan sans plasma

Dans le cas sans plasma, le bilan se fera évidemment sans prendre en compte le chauffage du tube, ce dernier étant nul. Les résultats intermédiaires dans les conditions décrites dans la partie 4.1 ayant déjà été mentionnés, seul un bilan sera fait ici. Étant donné le caractère négligeable des canaux de diffusion décrits après, le résultat intermédiaire de la figure 82 correspond en réalité au bilan de puissance complet du cas sans plasma. Ces mêmes résultats avec les hypothèses "haute" et "basse" sont représentés sur la figure 96. Les différences entre les 3 cas sont très faibles, et ne servent qu'à vérifier la reproductibilité des mesures, le débit d'argon n'ayant pas d'impact sur les canaux de diffusion de la puissance mis en jeu ici.

Pour rappel, la puissance incidente est ici légèrement supérieure à celle donnée pour consigne (16 W contre 15 W) dont une très large partie (14 W, soit 88 %) est réfléchie. On retrouve environ 0,8 W (soit 5 %) sous forme de chauffage des éléments de couplage micro-onde, la majorité venant de l'applicateur.

Au final, on retrouve 14,9 W de puissance dissipée par les différents canaux possibles. Cette valeur est extrêmement proche de la valeur de puissance consigne, même si la mesure de puissance incidente nous indique qu'elle est en réalité supérieure à cette consigne. On retrouve dans ce cas environ 93 % de la puissance incidente mesurée. Avec la prise en compte des incertitudes, dans l'hypothèse la plus basse on mesure 66 % de la puissance incidente, et dans l'hypothèse la plus haute, 100 %.

Ce résultat permet de valider *a priori* une partie de notre protocole de mesure car moins de 7 % de la puissance "manquante", qui peuvent s'expliquer par les incertitudes de mesure, se retrouve non mesurée.

Il est à noter que dans ce cas, les incertitudes sur le bilan de puissance total sont importantes. En effet, la mesure avec l'incertitude la plus grande est celle des puissances incidentes et réfléchies, dépendant de la valeur de l'atténuation du coupleur bi-directionnel et de celle de mesure des puissances-mètres, (cf. partie 2.2.1). Cette erreur sera toujours présente sur la mesure de puissance incidente, la puissance consigne étant toujours la même dans les cas étudiés ici, mais la puissance réfléchie, et donc son incertitude, sont beaucoup plus importantes dans le cas sans plasma.

Le protocole pour réaliser le bilan de puissance donnant un résultat cohérent dans le cas sans plasma, nous nous plaçons maintenant dans le cas avec plasma.



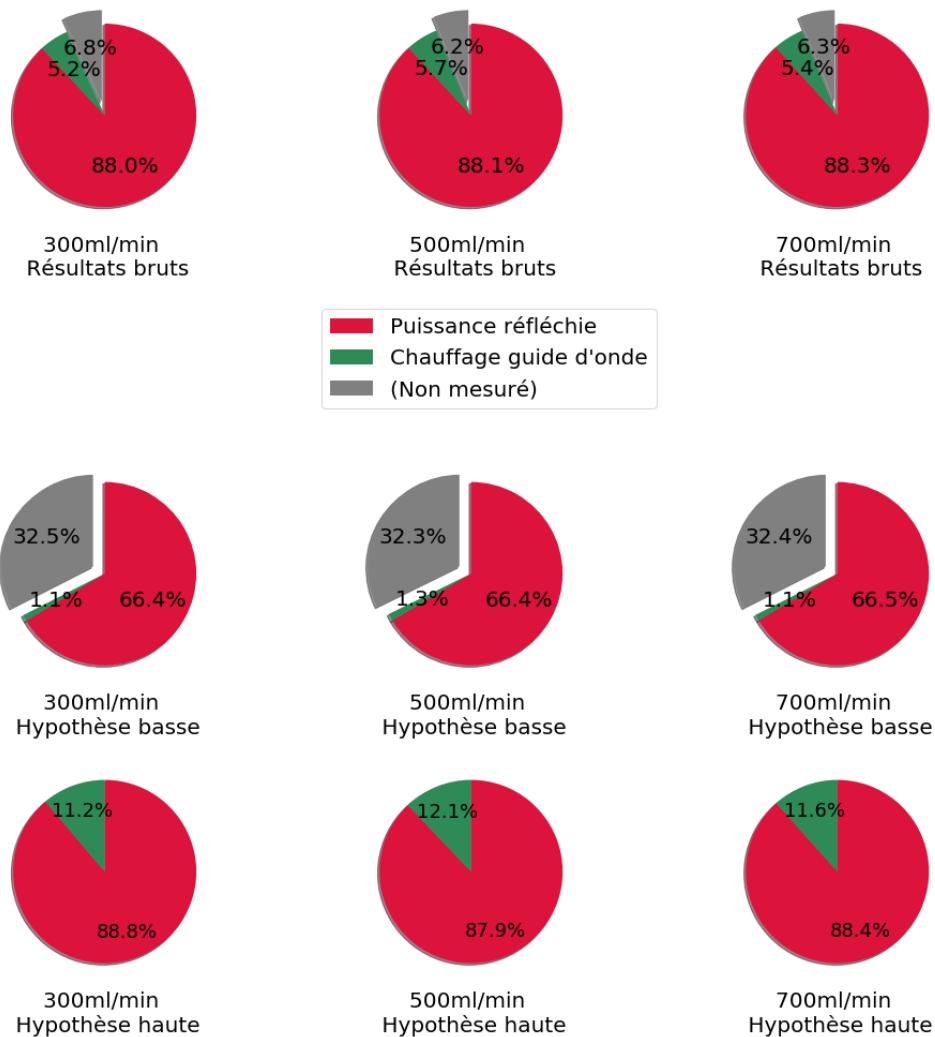


FIGURE 96 – Bilans de puissance en considérant les puissances incidente et réfléchie, ainsi que le chauffage des éléments de couplage micro-onde, pour 15 W de puissance consigne, 3 conditions de débits différents, sans plasma. Les "résultats bruts" ne prennent pas en compte les incertitudes, l'"hypothèse basse" les prend pour le cas où le bilan est le plus éloigné de 100 %, et l'"hypothèse haute" le plus proche de 100 %.

#### 4.8.2 Bilan avec plasma d'argon

On détaille ici le bilan complet dans les conditions expérimentales listées dans la partie 4.1, qui correspond aux bilans de la figure 95, sur lesquels on présente également les résultats des hypothèses "haute" et "basse" sur la figure 97.

Par rapport aux cas sans plasma, on constate une chute de la puissance réfléchie, passant de la quasi-totalité de la puissance incidente (88 %) à une fraction comprise entre 25 et 33 %. Conformément aux résultats de la partie 3.2.1, cette fraction de puissance réfléchie croît avec le débit de gaz. Avec les hypothèses extrêmes, cette fraction de puissance réfléchie peut être encadrée entre 20 et 40 %, ce qui est dans tous les cas bien supérieur à ce que donne une simple lecture au générateur. La fraction de puissance mesurée en chauffage des éléments de couplage micro-onde est relativement similaire dans les 3 cas étudiés, étant comprise entre 23 et 25 %, sans réellement de tendance significative avec le débit. Avec la prise en compte des incertitudes, cette fraction est comprise entre 15 et 35 %, restant toujours

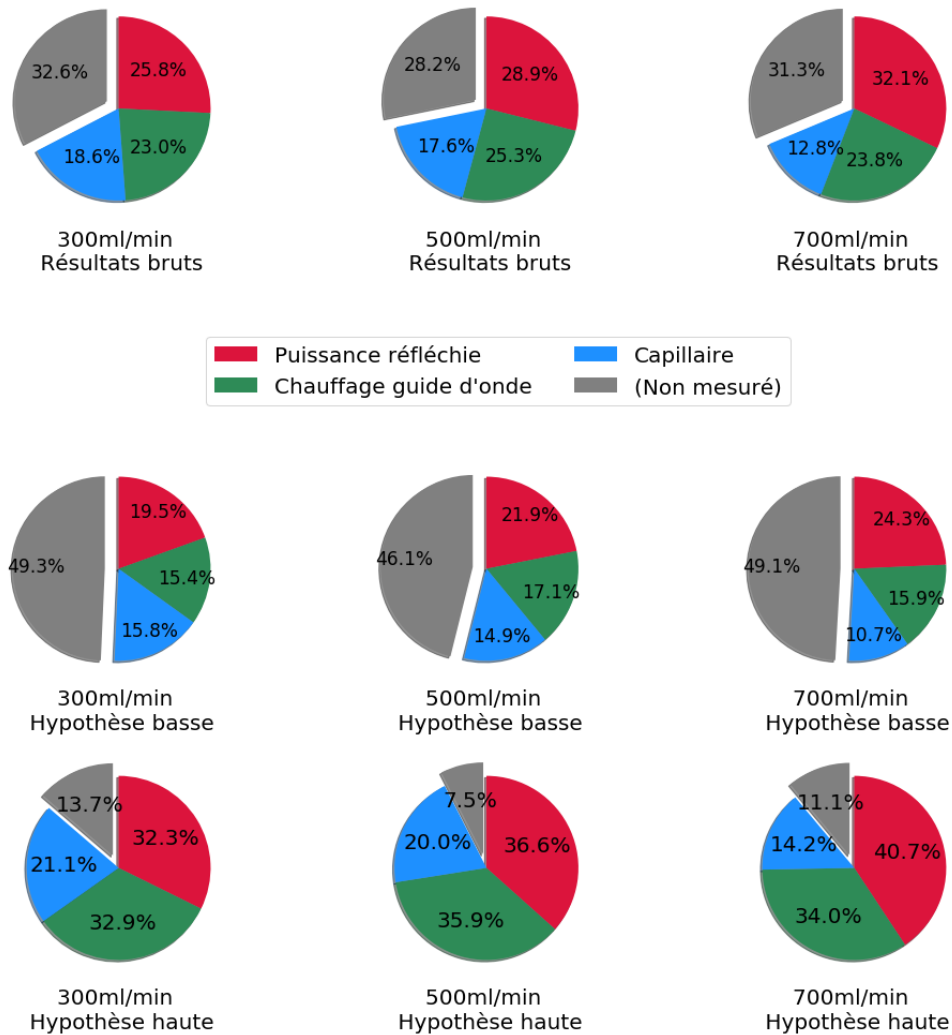


FIGURE 97 – Bilans de puissance complets, représentant la fraction de puissance de chaque canal de diffusion significatif en fonction de la puissance incidente mesurée. Résultats pris à basse pression avec de l'argon pur, pour 15 W de puissance consigne, 3 conditions de débit. Les "résultats bruts" ne prennent pas en compte les incertitudes, l'"hypothèse basse" les prend pour le cas où le bilan est le plus éloigné de 100 %, et l'"hypothèse haute" le plus proche de 100 %.

très proche de celle de la puissance réfléchie. Enfin, la fraction de puissance mesurée en chauffage du capillaire, qui correspond donc à la fraction transmise au plasma, représente entre 13 et 19 % de la puissance incidente. Cette proportion est décroissante avec le débit, condition pour laquelle on obtient une colonne de plasma plus courte (cf. partie 3.2.1). La prise en compte des incertitudes ne fait que peu varier cette fraction, comprise entre 11 et 21 %.

Finalement, la fraction de puissance non mesurée, malgré la prise en compte de tous les canaux de diffusion de la puissance identifiés, est très proche pour les 3 cas ici étudiés, étant comprise entre 28 et 33 %, sans tendance notable avec le débit. Dans l'hypothèse "basse" cette fraction passe à 50 %, et même dans l'hypothèse "haute", il reste une fraction de puissance non-mesurée comprise entre 7 et 14 %, plus proche du cas sans plasma, mais qui reste non-négligeable.

Pour confirmer ces résultats, on réalise également d'autres bilans pour d'autres puissances consignées (5 et 10 W) et les mêmes débits d'argon. Dans un souci de commodité, on n'exposera ici que les résultats bruts, sans les cas des hypothèses "haute" et "basse" des incertitudes. Ces résultats sont représentés figure 98.

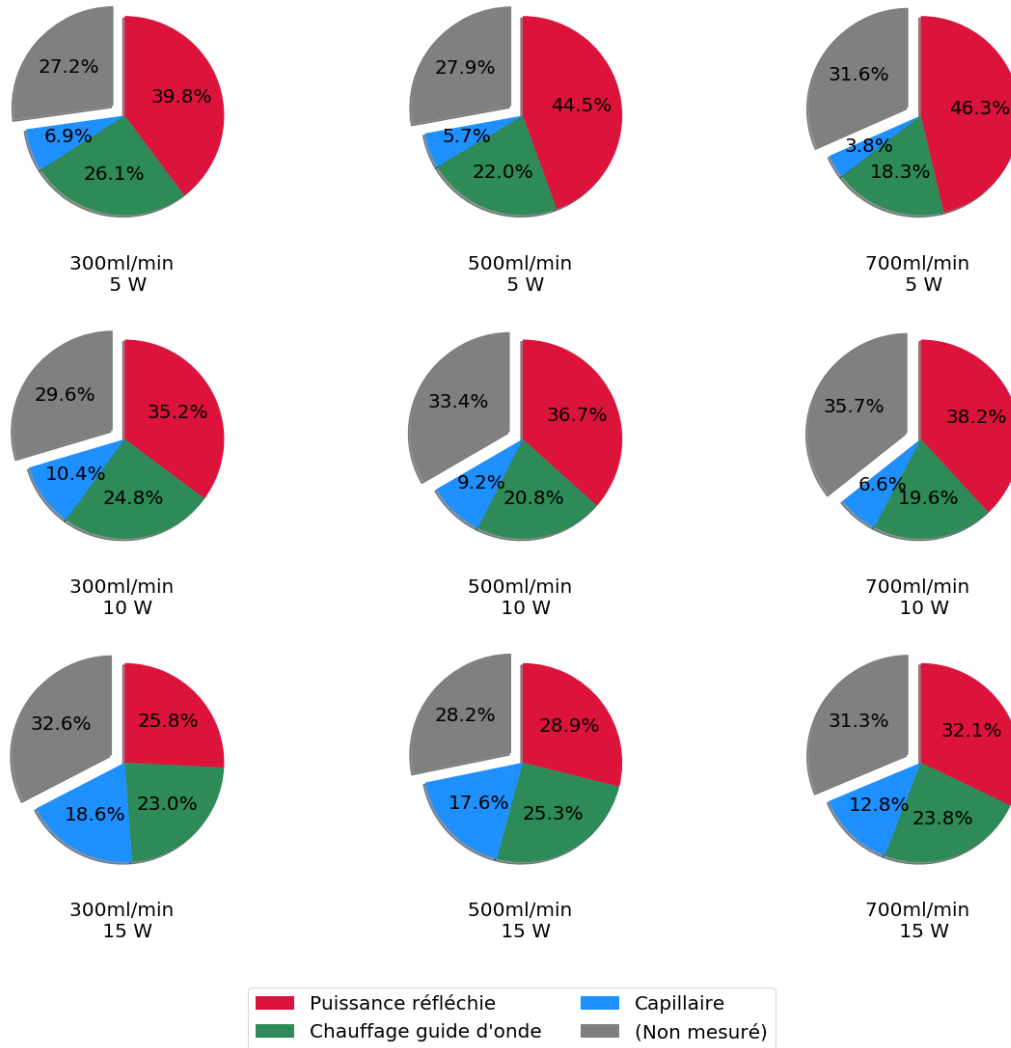


FIGURE 98 – Bilans de puissance complets, représentant la fraction de puissance de chaque canal de diffusion significatif en fonction de la puissance incidente mesurée. Résultats pris à basse pression avec de l'argon pur, pour 3 conditions de débit et de puissance, en ne considérant que les résultats bruts.

Ces nouveaux cas nous donnent de légères variations par rapport au cas à 15 W. La fraction de puissance réfléchie décroît avec la puissance, ce qui est en accord avec le couplage pauvre aux faibles puissances pour le strip-line, atteignant des valeurs proches de 50 % pour les plus faibles puissances et les plus hauts débits testés. La fraction de puissance mesurée en chauffage des éléments de couplage micro-onde ne semble pas suivre de tendance significative avec la puissance consigne, tout comme avec le débit. La fraction de puissance mesurée en chauffage du capillaire montre une tendance significative, étant croissante avec la puissance consigne (entre 4 et 7 % à 5 W contre 13 à 19 % pour 15 W consigne), ce qui correspond également à une condition donnant une colonne de plasma plus longue. Enfin, la fraction de puissance non mesurée, reste toujours importante, comprise entre 28 et 36 %, mais ne semble dépendre ni de la puissance consigne, ni du débit d'argon.

Dans tous les cas, et contrairement à la situation sans plasma, le bilan n'est pas complété, car une part importante de la puissance incidente mesurée ne se retrouve dans aucun des canaux de diffusion de la puissance, et ce, malgré la surestimation probable de la puissance dissipée par le capillaire car comptée sous deux régions (discussion dans la partie 4.7). Cela montre la difficulté à réaliser un tel bilan de puissance, et identifier clairement chaque terme de diffusion de la puissance injectée dans un tel système.

On peut néanmoins tirer des conclusions de ces bilans, en comparant les résultats obtenus par les méthodes classiques avec les enseignements tirés de ces résultats. Avec les hypothèses classiquement utilisées avec de tels plasmas, seules les mesures au générateur pour les puissances incidente et réfléchi seraient utilisées pour déterminer la puissance injectée au plasma ; dans le cas avec 15 W de puissance consigne, on aurait 14 W injectés dans le plasma (car le générateur mesure une puissance réfléchi de 1 W), soit un couplage de 93 %. Notre simple mesure des puissances incidente et réfléchi aux puissances-mètres nous montre que seuls 50 à 75 % (10 à 11 W dans l'exemple considéré) sont réellement couplés dans le système (*i.e.* plasma, applicateur, coupleur et connexions). A cette puissance, il faut également soustraire ce qui est mesuré comme chauffage des éléments de couplage micro-onde (*i.e.* applicateur, coupleur et connexions), à savoir 18 à 25 % de la puissance incidente ( 3 à 3,5 W). En soustrayant cette puissance, on se retrouverait en théorie avec la puissance réellement injectée dans le plasma, qui représente selon les cas 34 à 51 % de la puissance incidente (6,5 à 7,5 W dans l'exemple pris) qui est d'un facteur 2 ou 3 inférieure à ce qu'une lecture des mesures du générateur laisse supposer.

Néanmoins, les mesures de chauffage du capillaire, avec l'analyse d'erreurs, les calibrations et extrapolations des données brutes, montrent qu'on ne retrouve que 4 à 19 % de la puissance incidente dissipée en chauffage du tube (entre 2 et 3 W dans l'exemple pris), donc injectée effectivement dans le plasma. On est ici très loin des  $\simeq 90\%$  initiaux supposés par la méthodologie habituelle, ce qui implique une surestimation systématique de la puissance injectée dans les plasmas micro-onde d'un facteur 4 à 20. Pour synthétiser et schématiser l'évolution permise par ces mesures, on compare le cas prenant seulement en compte les mesures de puissance au générateur, et le cas avec toutes les pertes mesurées ici, en faisant la moyenne des cas à 15 W de puissance consigne, représenté figure 99. On en conclut que, même dans le cas extrême où toute la puissance non mesurée se retrouverait dans le plasma, la puissance réellement couplée au plasma serait 2 à 3 fois inférieure à ce qui est traditionnellement supposé dans la littérature.

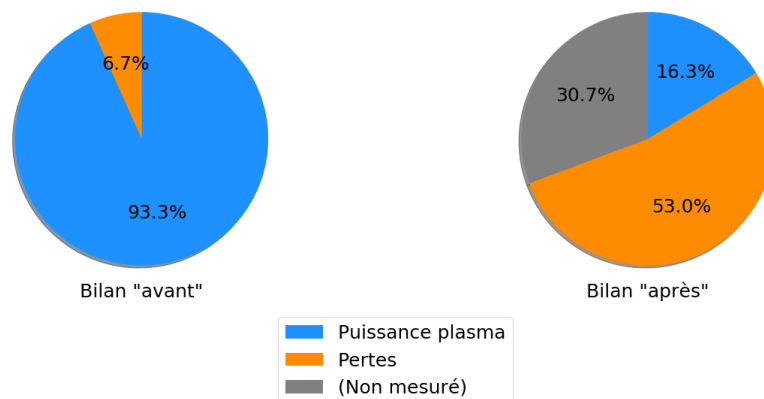


FIGURE 99 – Bilan de puissance "avant" (puissances incidente et réfléchi lues au générateur, tout le reste de puissance transmise au plasma) comparé au cas "après" (puissances mesurées au puissance-mètre, pertes de chauffage des éléments de couplage micro-onde considérées, puissance transmise au plasma mesurée en chauffage du capillaire et part de puissance encore non mesurée considérée).

### 4.8.3 Bilan en milieu réactif et à pression atmosphérique

Comme on l'a vu dans les parties 3.2.2 et 3.2.3, des conditions expérimentales différentes, notamment en termes de composition du gaz, et de pression, mènent à des profils de plasma bien différents (plus courts, plus haute densité de puissance ...). On réalise donc de la même façon des bilans de puissance complets de plasma dans de telles conditions expérimentales. Ceux pour les cas en gaz réactif sont exposés figure 100 et ceux pour les cas à pression atmosphérique (avec un cas qui combine gaz réactif et pression atmosphérique) figure 101.

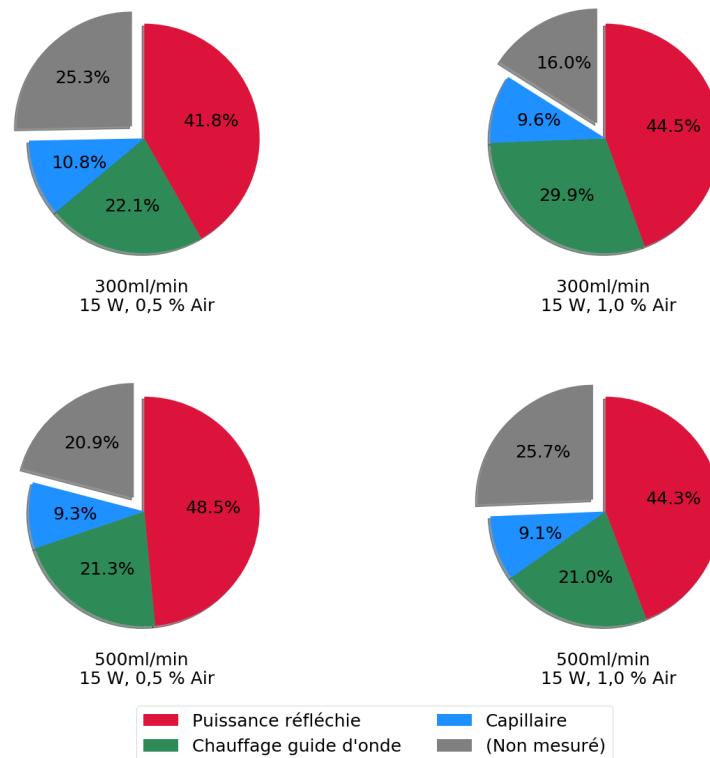


FIGURE 100 – Bilans de puissance complets, représentant la fraction de puissance de chaque canal de diffusion significatif en fonction de la puissance incidente mesurée. Résultats pris à basse pression avec un mélange argon/air, pour 2 conditions de débit et de fraction d'air dans le mélange, en ne considérant que les résultats bruts.

Pour les cas en gaz réactif, on constate une part de la puissance réfléchie plus importante, passant d'environ 27 % pour les cas similaires en argon pur, à 45 % en moyenne ici. La fraction de puissance dissipée par chauffage des éléments de couplage micro-onde est globalement similaire à celle du cas en argon pur, à l'inverse de celle dissipée en chauffage du capillaire, qui décroît d'un facteur 2 (9,7 % en moyenne ici, contre 18,1 % dans les cas similaires en argon pur). Cette diminution s'explique en partie par l'importante contraction de la colonne de plasma avec l'ajout de gaz réactif dans le mélange. Cependant, les mesures de température du capillaire par caméra IR nous montrent que le profil de température s'étend sur une longueur plus faible, en accord avec la longueur de plasma, mais également que le profil est plus "piqué", avec des températures maximales plus élevées. Ce résultat semble en accord avec ceux de la partie 3.2.2 où l'on constate que dans de tels plasma la densité de puissance est plus importante qu'en argon pur, et laisse supposer que leur température est plus élevée (point qui sera discuté dans la partie 5.3.3). Finalement, la part de puissance non mesurée reste toujours significative, même si plus faible que dans les cas en gaz rare (30 % contre 22 %). On trouve donc une fraction de puissance transmise au plasma faible,

proche de 10 % de la puissance incidente. Comme on l'a vu précédemment, l'ajout d'une faible fraction d'air dans le mélange gazeux change drastiquement le volume de plasma créé. Ici on constate que les effets sur le bilan de puissance sont notables, mais que les conclusions majeures ne changent pas : une majorité de la puissance incidente est dissipée sous forme de pertes, seule une faible partie se retrouve couplée au plasma.

Les cas à pression atmosphérique (figure 101) montrent des résultats semblables : les fractions de puissance réfléchie sont plus importantes que dans les cas à basse pression, et même encore plus importantes que celles en gaz réactif, représentant au moins 50 % de la puissance incidente ; à noter que le cas qui combine les deux ne présente pas de fraction de puissance réfléchie supérieure aux autres cas. Ici, la fraction de puissance mesurée sous forme de chauffage des éléments de couplage micro-onde est en revanche significativement inférieure aux cas en argon pur à basse pression, étant en moyenne autour de 18 % ici contre 23 % pour les résultats précédents (cf figure 97). Celle transmise au plasma, et donc mesurée sous forme de chauffage du capillaire, est encore plus faible que pour les cas en gaz réactif, représentant en moyenne 8 % de la puissance incidente mesurée ici contre 10 % en gaz réactif. À noter qu'ici aussi, la contraction de la colonne de plasma est importante, et que l'on constate un profil de température le long du capillaire plus "piqué". La tendance que l'on observait à basse pression, à savoir cette part de puissance mesurée sous forme de chauffage du capillaire qui est décroissante avec le débit, ne se retrouve pas ici, la longueur de la colonne de plasma dépendant beaucoup moins du débit à pression atmosphérique. En revanche, on retrouve la tendance d'une puissance réfléchie plus faible et un chauffage du capillaire plus faible et un chauffage du capillaire plus important lorsque l'on augmente la puissance consigne. Finalement, la part de puissance non mesurée est ici en moyenne de 20 %, légèrement plus faible que pour les cas en milieu réactif, mais reste malgré tout significative, et non négligeable.

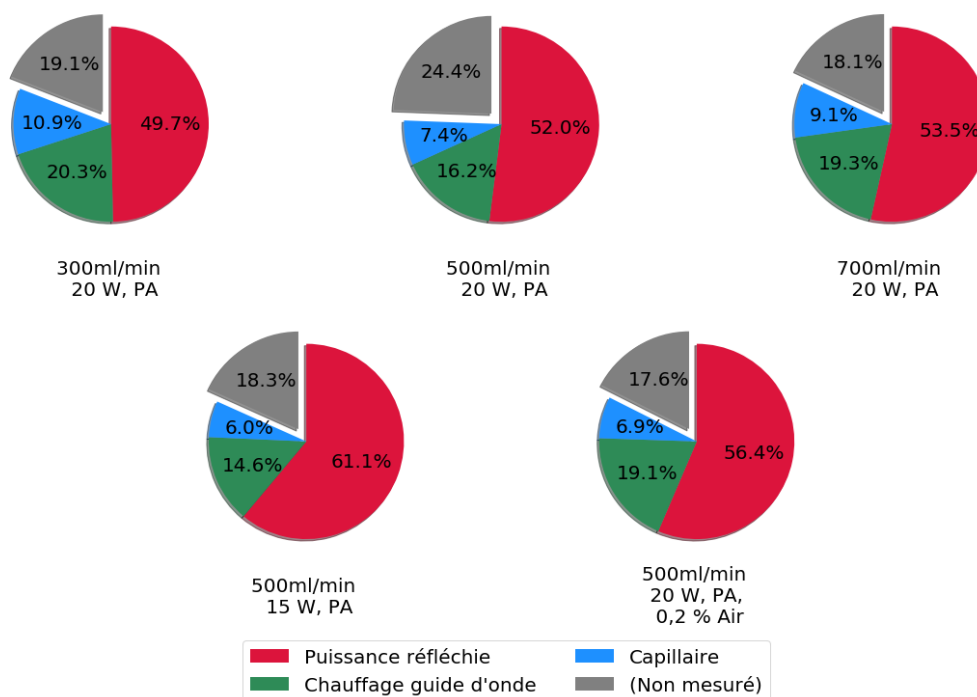


FIGURE 101 – Bilans de puissance complets, représentant la fraction de puissance de chaque canal de diffusion significatif en fonction de la puissance incidente mesurée. Résultats pris à pression atmosphérique, en argon pur et en mélange argon/air, pour différentes conditions de puissance et de débit.

L'étude de ces cas dans des conditions expérimentales différentes, en gaz réactif et/ou à pression atmosphérique, montrent de légers changements dans la répartition des canaux de diffusion de la puissance. Les conclusions globales restent cependant les mêmes : une part très importante de la puissance incidente (de 50 à 75 %) ne se transmet pas au plasma (onde réfléchie et pertes thermiques) et seule une fraction proche ou inférieure à 10 % de la puissance incidente est effectivement mesurée comme étant transmise au plasma. Une part importante (de 20 à 33 %) de la puissance reste à ce jour non mesurée dans aucun des canaux de diffusion de la puissance identifiés.

## 4.9 Conclusion

L'étude du bilan de puissance de notre plasma micro-onde confiné dans un capillaire nous a permis d'améliorer notre compréhension de la diffusion de la puissance dans de tels plasmas.

Premièrement, ont été identifiés plusieurs canaux de diffusion où la puissance qui s'y dissipe est négligeable. Parmi ces canaux, on a d'abord mesuré que la dissipation de la puissance micro-onde sous forme de fuites de champ en dehors des éléments de couplage micro-onde est très faible par rapport à la puissance incidente, assurant une importante étanchéité électromagnétique du système. Également, la puissance transférée au plasma puis ré-émise sous forme de rayonnement optique et en post-décharge sous forme d'états excités à longue durée de vie et d'espèces chaudes, a été mesurée comme étant négligeable. Cela indique que toute la puissance transmise au plasma se retrouve sous forme de chauffage du capillaire, ce qui permet de mesurer l'ensemble de la puissance plasma *via* un seul canal de diffusion. Les pertes de puissance en amont du plasma non négligeables se retrouvent donc uniquement sous forme de puissance réfléchie par adaptation d'impédance imparfaite, et par chauffage des éléments de couplage micro-onde (coupleur, connexions et applicateur) par le passage des micro-ondes.

La réalisation de bilans de puissance complets en considérant uniquement les canaux de diffusion identifiés comme non-négligeables nous montrent que, dans le cas sans plasma, on retrouve la quasi-totalité de la puissance micro-onde incidente (plus de 90 %), sous forme de puissance réfléchie (environ 90 %) et de chauffage des éléments de couplage micro-onde (environ 5 %). En présence de plasma, la répartition dans les différents canaux dépend beaucoup des conditions expérimentales. De façon globale, la puissance réfléchie devient plus faible (de 25 à 60 % de la puissance incidente), le chauffage des éléments de couplage micro-onde plus important (15 à 30 %) et la puissance transmise au plasma, mesurée donc en chauffage du capillaire, est mesurée comme étant faible (de 5 à 20 %). Cette valeur est d'autant plus faible en comparaison aux résultats classiques, qui ne considèrent que les puissances incidente et réfléchie données par le générateur, supposant une fraction de puissance transmise au plasma de l'ordre de 90 % de la puissance incidente. Bien que ces bilans de puissance se révèlent lacunaires, car une part importante de la puissance incidente (de 15 à 35 %) ne se retrouve transmise dans aucun des canaux de diffusion de la puissance identifiés, ce qui laisse une incertitude sur la portion réelle de puissance micro-onde transmise au plasma, il reste une conclusion forte : la puissance réellement couplée au plasma est, dans le meilleur des cas où toute la puissance non mesurée est transmise au plasma, inférieure d'un facteur 2 à 3 par rapport à ce qui est rapporté traditionnellement dans la littérature. Ces études ont permis une meilleure compréhension de la dissipation de la puissance dans de telles configurations, nécessaire pour les études fondamentales et numériques, ainsi que l'ensemble des applications potentielles de tels plasmas.

# Caractérisation spectroscopique et couplage thermique de la décharge

---

La caractérisation des plasmas, en vue de la compréhension de leurs mécanismes fondamentaux, nécessaire pour le développement de modèles et d'applications, requiert la connaissance de ses paramètres microscopiques, en particulier température et densités d'espèces réactives. La mesure de ces paramètres est ici impossible à réaliser à l'aide de sondes, étant donné les faibles extensions spatiales du plasma, leur emploi est extrêmement perturbatif, voire impossible. L'utilisation de diagnostics spectroscopiques, à la fois d'émission et d'absorption, est donc nécessaire afin de déterminer les paramètres microscopiques du plasma.

Une attention particulière sera portée à la résolution spatiale des mesures. Le très faible diamètre des plasmas étudiés ici implique, a priori, l'existence de forts gradients des grandeurs mesurées à cause des conditions limites à la paroi interne du capillaire. Néanmoins, dans la littérature, pour de tels micro-plasmas les diagnostics spectroscopiques sont souvent réalisés sans cette résolution spatiale, impliquant une moyenne de la grandeur mesurée sur la ligne de vue, ici le diamètre de la décharge. Le dispositif expérimental sera adapté afin de conserver cette résolution et donc de donner accès aux grandeurs locales des paramètres plasmas, renforçant donc la description et la compréhension de telles décharges.

Ici, les diagnostics spectroscopiques employés seront la spectroscopie optique d'émission (OES) ou la spectroscopie d'absorption par diodes laser (TD:LAS); la première nous donnant accès aux températures rotationnelles de différentes espèces ainsi qu'à la densité électronique du plasma, la seconde nous permettant de mesurer la densité d'un état métastable de l'argon.

Ce chapitre présentera tout d'abord les différentes méthodes spectroscopiques employées, du dispositif expérimental à la méthodologie du traitement des données, avant d'en présenter les principaux résultats obtenus et de les confronter aux résultats exposés dans les précédents chapitres. Les expériences seront réalisées dans des conditions expérimentales très variées : puissance micro-onde, composition du gaz, plasma confiné ou non, et également avec ou sans le dispositif de couplage thermique externe, dont les effets sur les paramètres macroscopiques ont été exposés dans la partie 3.3, afin de conclure sur les effets globaux de ce système.



## 5.1 Méthodologie et principes de la spectroscopie optique d'émission (OES)

### 5.1.1 Conversion des images en spectres

L'émission de la lumière du plasma est collectée par le dispositif expérimental représenté dans la partie 2.5. Les images obtenues nécessitent cependant divers traitements avant de donner des spectres exploitables pour caractériser les paramètres fondamentaux de la décharge.

Premièrement, l'image doit être soustraite du "background", un fond provenant de la lumière ambiante (straight light) ainsi que du bruit électronique de la caméra (dark current), que l'on obtient en enregistrant une image dans les mêmes conditions, notamment de temps d'intégration et de gain, mais avec le réseau centré sur 150 nm.

L'étape suivante consiste à calibrer la réponse spectrale de la caméra, *a priori* non homogène, c'est à dire que le signal capté par un pixel dépend de la longueur d'onde incidente. Pour cela, on utilise une source de rayonnement de corps gris, une lampe à filament de tungstène (dont l'émissivité vaut  $\epsilon_W = 0,37$ ) chauffé à 2205 °C, dont la loi de Planck nous donne sa luminance en fonction de la longueur d'onde. L'émission de cette lampe est alors mesurée par la caméra, avec les mêmes fenêtres spectrales qui seront utilisées pour les mesures d'émission du plasma. L'angle solide n'étant pas précisément connu, et le chemin optique étant légèrement différent que pour les mesures avec la décharge, cette calibration ne sera que relative, et donnera la fonction de correction pour la réponse de la caméra. Une image obtenue de la lampe avec le réseau de 2400 traits/mm centré sur 310 nm (correspondant à la fenêtre spectrale typique pour les mesures de OH), après soustraction du background, est présentée figure 102.

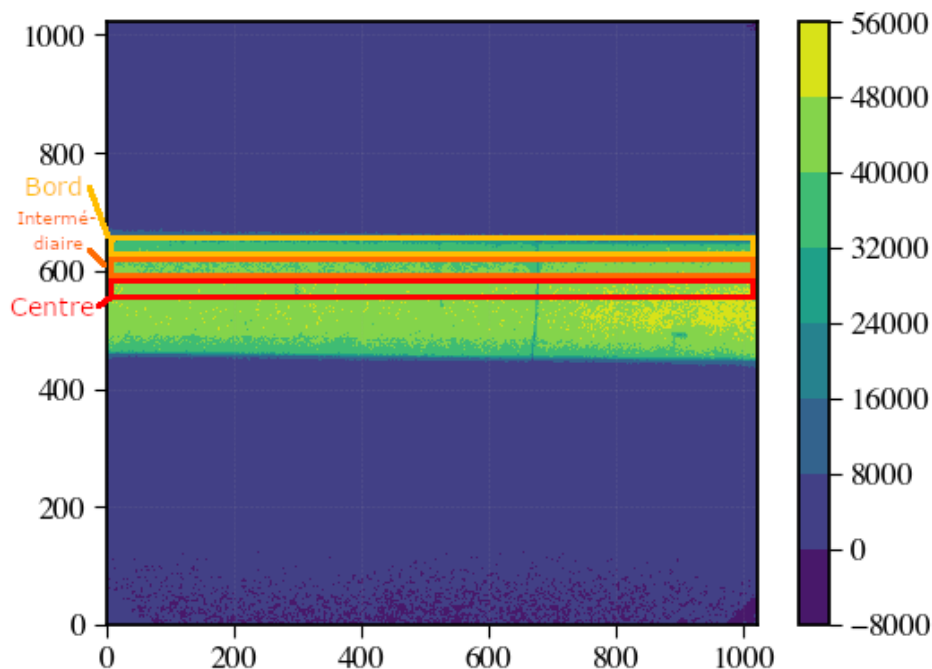


FIGURE 102 – Image de la lampe de tungstène à 2205 °C, avec le réseau de 2400 traits/mm centré sur 310 nm, après soustraction du background. Les axes correspondent aux pixels de la caméra, et l'échelle de couleur à l'intensité collectée.

On constate que le spectre de la bande du filament n'est pas parfaitement horizontal; même si géométriquement ce filament peut être incliné, la faible largeur de la fente d'entrée du spectromètre,  $50 \mu\text{m}$  soit une dizaine de pixels, ne doit pas se retrouver sous la forme d'une inclinaison significative sur toute la dimension horizontale de la caméra. Or, on observe que des bandes supposément horizontales sont en réalité inclinées, à raison d'une douzaine de pixels sur toute la largeur de la caméra (1024 pixels) comme on peut le voir sur la figure 103, zoomée sur les rangées de pixels 430 à 480. Sur la partie supérieure de la bande, on constate le même phénomène, indiquant donc qu'il existe un léger angle d'inclinaison de la caméra. On constate également sur ces images la présence de plusieurs bandes de pixels endommagés (notamment une bande horizontale vers la colonne de pixels numérotée 630), qui devront donc être exclus des données traitées. Le nombre et la position exacte des pixels à ignorer dépendra à chaque fois des fenêtres spectrales et spatiales considérées.

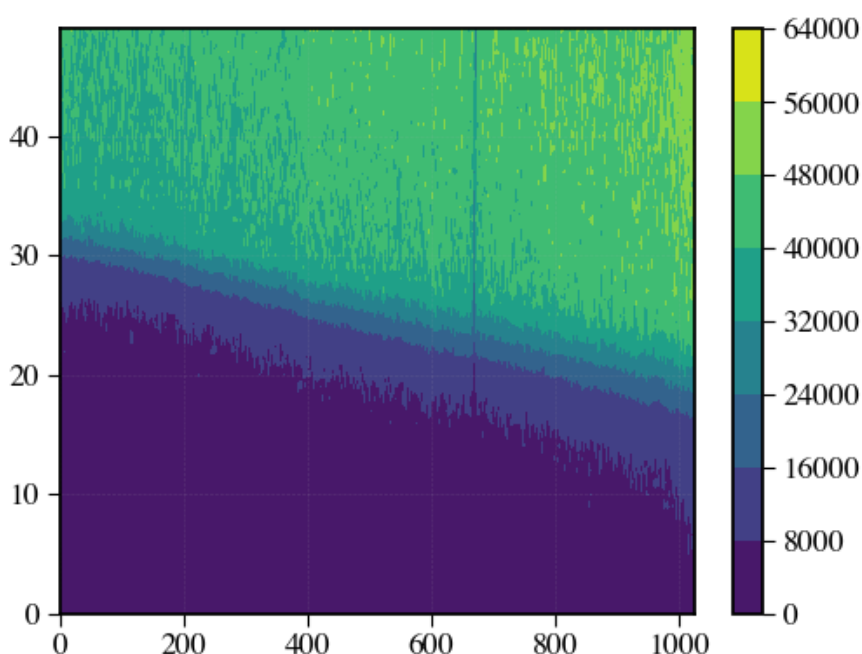


FIGURE 103 – Image de la lampe de tungstène à  $2205 \text{ }^\circ\text{C}$  centrée sur  $310 \text{ nm}$ , pour les rangées de pixels 430 à 480, pour visualiser l'inclinaison de l'image.

Une fois le rayonnement du corps gris de la lampe et le signal mesurés par la caméra (moyennés sur une bande centrale verticale de 30 pixels) normalisés, on trace le rapport entre ces deux quantités, qui donne donc la fonction de conversion spectrale de la lampe. Ce résultat sera approximé par un polynôme d'ordre 2, après exclusion des pixels défectueux; le résultat obtenu pour la fenêtre spectrale centrée sur  $310 \text{ nm}$  est représenté figure 104.

L'étape suivante consiste à sélectionner la fenêtre spatiale sur laquelle les mesures seront étudiées. Sachant qu'un pixel correspond à  $5,4 \mu\text{m}$  sur l'axe vertical, correspondant à la résolution spatiale sur l'image de la caméra, et que le diamètre interne du capillaire est de  $1000 \mu\text{m}$ , le signal du plasma est visible sur une bande verticale de 185 pixels. L'émission du plasma étant *a priori* symétrique par rapport au centre du capillaire, on se place à la position de ce centre, puis on décompose ensuite l'image en 3 bandes de même taille. La première, dite « centre » part de la ligne centrale jusqu'à 30 pixels au-dessus, soit une longueur de  $162 \mu\text{m}$  dans la direction transverse à l'axe du capillaire, telle que visible sur la figure 102; la suivante, « intermédiaire », commence après cette bande, jusqu'à 30 pixels au-dessus, et de la même façon, la dernière bande du « bord » concerne la bande de 30 pixels au-dessus des précédents. L'intensité

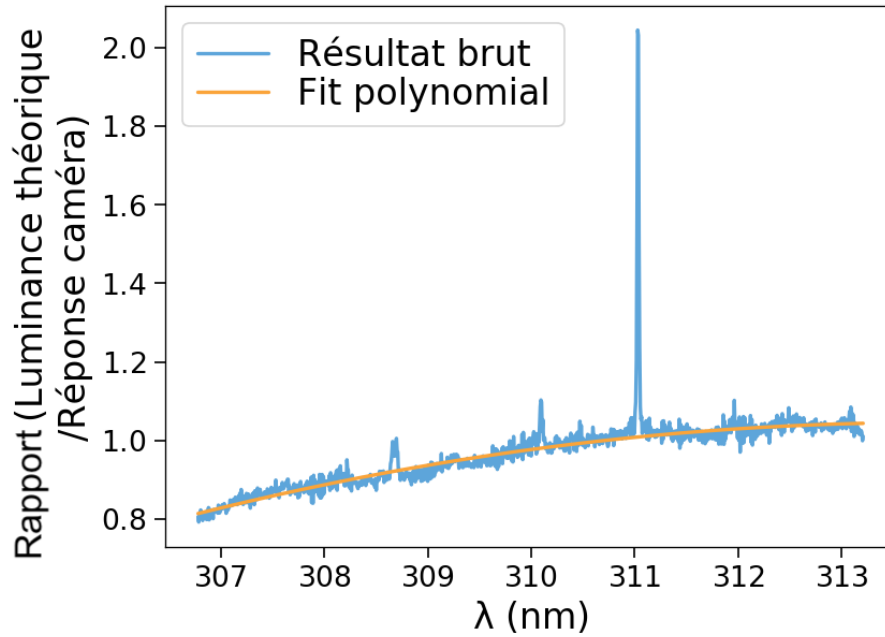


FIGURE 104 – Fonction de conversion à utiliser pour la fenêtre spectrale centrée sur 310 nm, obtenue par le rapport entre la luminance théorique d'un filament de tungstène à 2205 °C et le signal mesuré par la caméra. Les pics correspondent aux bandes de pixels défectueux.

est moyennée sur ces bandes, pour ne garder que 3 spectres moyennés, donnant une certaine résolution spatiale. Ces spectres seront finalement soustraits du fond lumineux, le "stray light", qui sera selon les cas, considéré comme constant sur la plage spectrale, ou bien un polynôme d'ordre 1.

### 5.1.2 Température du gaz par distribution de Boltzmann de OH et N<sub>2</sub>(C)

Pour déterminer la température rotationnelle du plasma, on s'intéresse aux spectres d'émission de OH (présent grâce aux traces d'eau trouvables naturellement sur la paroi interne du capillaire) et N<sub>2</sub>(C) (introduit par ajout de traces d'air dans le mélange gazeux). En effet, pour une espèce à un équilibre thermodynamique local, on peut définir une température rotationnelle  $T_{rot}$  telle que :

$$\frac{n_i}{n} = \frac{g_i e^{-\frac{E_i}{k_B T_{rot}}}}{Z(T_{rot})} \quad (5.1)$$

Avec :

- $n_i$  : Nombre de particules dans l'état rotationnel  $i$ .
- $n$  : Nombre de particules dans l'état vibrationnel.
- $g_i$  : Dégénérescence de l'état rotationnel  $i$ .
- $E_i$  (J) : Énergie de l'état rotationnel  $i$ .
- $Z(T_{rot})$  : Fonction de partition rotationnelle telle que  $Z(T_{rot}) = \sum_i g_i e^{-\frac{E_i}{k_B T_{rot}}}$ .

Avec la connaissance des propriétés spectroscopiques des états mis en jeu (longueur d'onde des transitions, coefficient d'Einstein, énergie des niveaux ...), on peut réaliser numériquement un spectre d'émission, à une température rotationnelle donnée. On utilise le code Specair [120] [121], permettant de simuler l'émission absolue d'un plasma hors équilibre pour de nombreuses espèces atomiques et moléculaires ( $N_2$ ,  $O_2$ , Ar, OH, CO, N, O ...) entre le VUV et le milieu-infrarouge. Il sera ici utilisé pour reproduire au mieux des spectres expérimentaux de OH (A-X) dans la gamme 305-313 nm ainsi que du second système positif de  $N_2$  (C-B) dans la gamme 375-382 nm, deux espèces couramment utilisées pour la détermination de températures rotationnelles de divers plasmas hors équilibre.

La simulation de ces spectres nécessite le choix de valeurs pour la température vibrationnelle, la température électronique, la pression, la température du gaz, la longueur d'onde d'émission, la fonction d'appareil et la densité de l'espèce considérée (OH ou  $N_2$ ). Ces paramètres ne permettent pas de tirer une réalité physique, notamment dû au fait que les spectres ne sont mesurés que de façon relative, et ne sont donc utilisés que comme paramètres de fits. De plus, sur certains spectres expérimentaux de OH, on constate la présence de certains pics caractéristiques de l'émission de  $N_2(C)$  lorsque celui-ci n'est pas introduit dans le milieu gazeux. On ajoute alors une quantité arbitraire de  $N_2$  dans le mélange utilisé pour le calcul, pour approcher au mieux l'émission de ces impuretés. Les autres espèces pouvant être présentes dans des plasmas argon/air (NO, N, O, NH,  $N_2^+$  ...) sont prises égales à 0, car les spectres expérimentaux ne montrent pas de pics caractéristiques de ces espèces. Une fois ces différents paramètres choisis pour approcher au mieux le spectre expérimental, plusieurs simulations sont réalisées pour différentes valeurs de température rotationnelle, puis la valeur du résidu *res* entre le spectre expérimental et celui simulé est calculée en utilisant la norme  $L_2$ , définie comme :

$$res = \sum_i^N \frac{\sqrt{(I_{exp}(\lambda_i) - I_{sim}(\lambda_i))^2}}{N} \quad (5.2)$$

où  $I_{exp}(\lambda_i)$  et  $I_{sim}(\lambda_i)$  sont respectivement les intensités normalisées du spectre expérimental et simulé à la longueur d'onde  $\lambda_i$ ; les  $\lambda_i$  sont discrétisés, et en particulier limités par la caméra (on aura donc 1024 valeurs de  $\lambda_i$ ) et le spectre numérique est ré-échantillonné pour être défini pour les mêmes valeurs de longueur d'onde.

La reproduction des spectres expérimentaux ne peut se faire de façon parfaite : certains pics du spectre de OH sont peu sensibles à la valeur de la température rotationnelle, le spectre ainsi simulé présente un écart important avec le spectre expérimental; à l'inverse, les pics très sensibles à la température rotationnelle peuvent s'approcher de façon très satisfaisante. Ainsi, on définit des barres d'erreur en température, correspondant à l'écart à prendre à partir du meilleur fit pour encadrer le spectre expérimental dans sa grande majorité. Pour les spectres de  $N_2(C)$ , cette barre d'erreur sera de 100 K, et pour les spectres de OH elle sera de 200 K. Des exemples de spectres expérimentaux de OH et  $N_2(C)$  avec l'encadrement aux barres d'erreur près sont représentés respectivement figures 105 et 106.

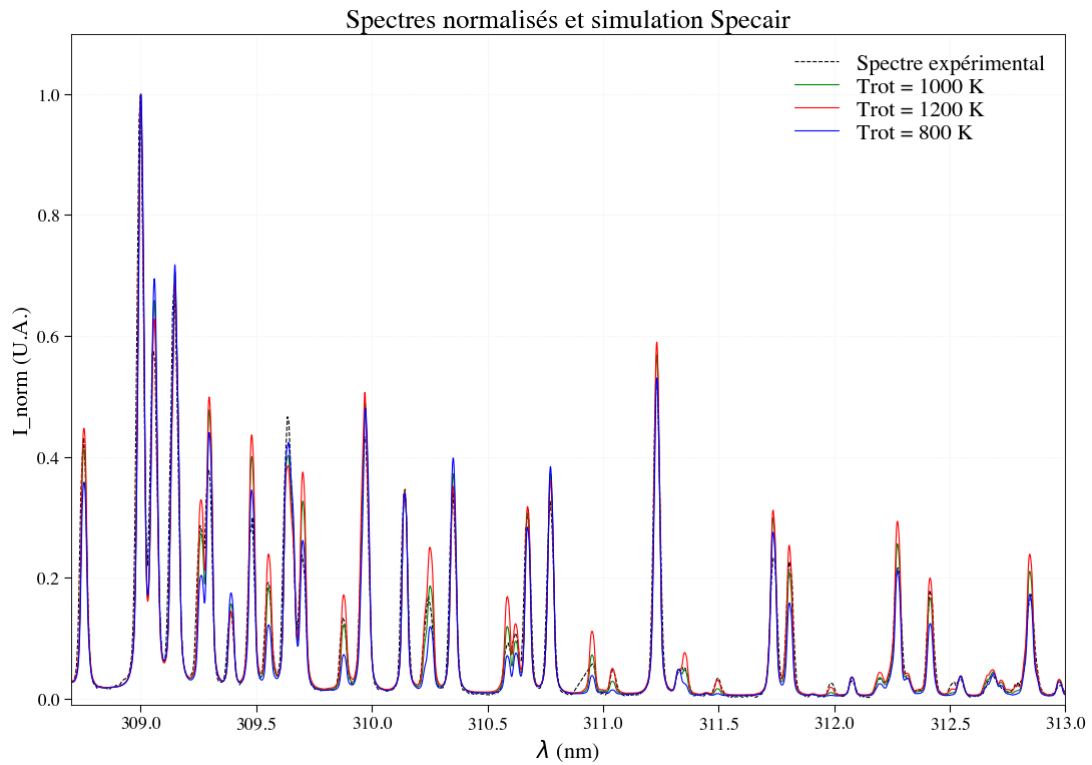


FIGURE 105 – Spectre expérimental de OH (noir, pointillés) approché par son meilleur fit (vert) pour une température  $T_{rot}$  et encadré par un spectre pris à  $T_{rot} + 200$  K (rouge) et  $T_{rot} - 200$  K (bleu).

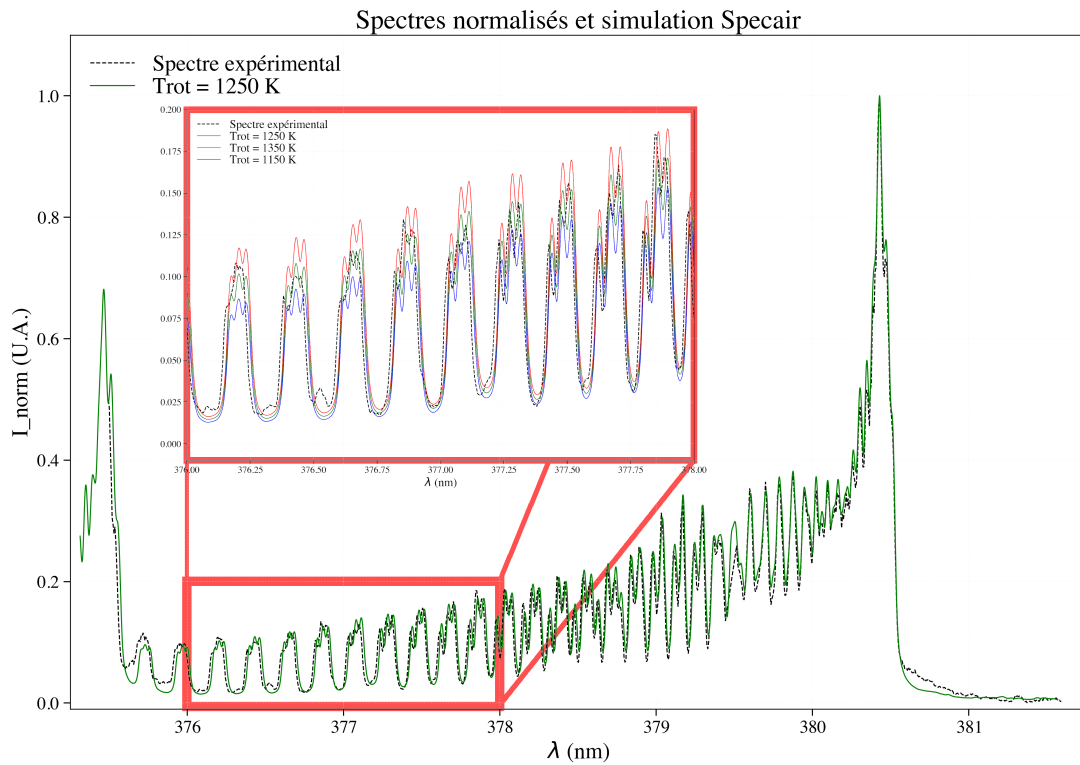


FIGURE 106 – Spectre expérimental de  $N_2(C)$  (noir, pointillés) approché par son meilleur fit (vert) pour une température  $T_{rot}$  et encadré par un spectre pris à  $T_{rot} + 100$  K (rouge) et  $T_{rot} - 100$  K (bleu).

### 5.1.3 Densité électronique par élargissement Stark de la raie $H_\beta$

L'un des paramètres clés d'une décharge plasma est sa densité d'électrons, qui peut se mesurer au sein même de la décharge, notamment par des sondes de Langmuir collectant et mesurant le courant incident sur une cible, ou bien de façon non perturbative, avec des diagnostics spectroscopiques. Étant donné les dimensions du plasma, l'utilisation d'une sonde pour une mesure au sein du plasma serait beaucoup trop perturbative, quand bien même elle serait physiquement possible. On va donc encore exploiter l'émission du plasma.

Ici, on réalise une mesure assez classique [87] [89] [93] [96] [122], à savoir celle de la raie  $H_\beta$  de l'hydrogène (série de Balmer, correspondant à la transition de  $n = 4$  vers  $n = 2$ ) à 486,13 nm, et en particulier de son élargissement Stark dont la sensibilité avec la densité électronique est très importante [123]. Une image typique de l'émission de  $H_\beta$  obtenue dans un plasma d'argon, généré par le surfatron ajustable, pour une puissance consigne de 50 W, une fréquence de 2,427 GHz, un débit de gaz de 500 ml/min, à basse pression, collectée par le réseau de 2400 traits/mm centré sur 486 nm pendant 5 secondes et à 2 cm en aval du gap, est représentée figure 107.

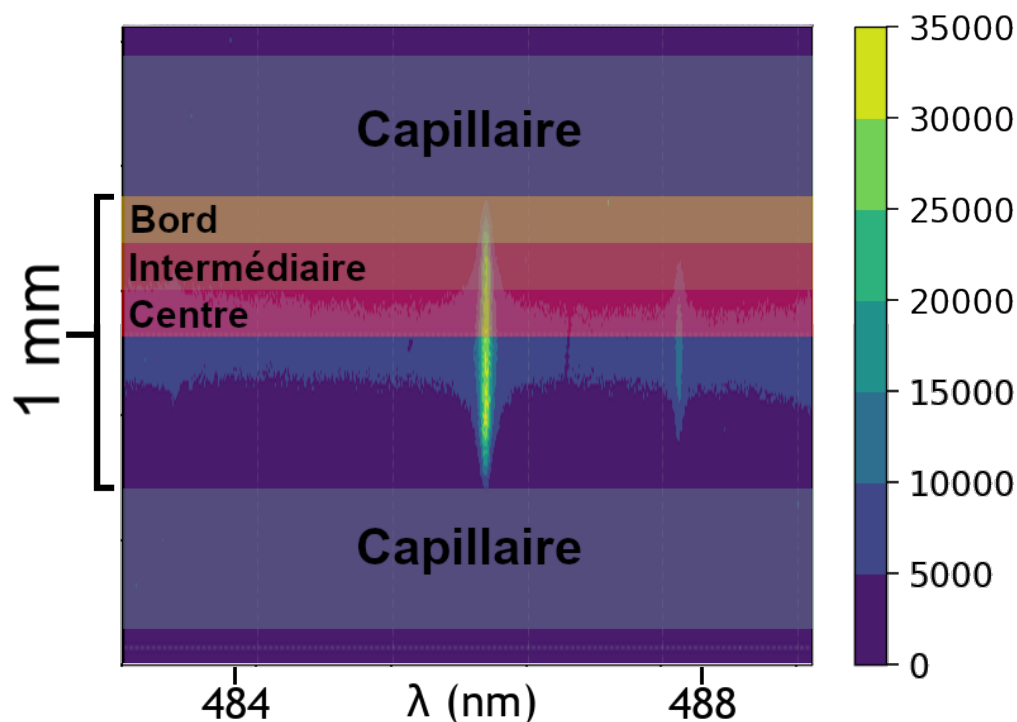


FIGURE 107 – Image de  $H_\beta$  par réseau de 2400 traits/mm, centré sur 486 nm, d'un plasma généré par le surfatron ajustable, à basse pression, puissance consigne de 50 W, fréquence MO de 2,427 GHz, débit d'argon de 500 ml/min, signal collecté 2 cm en aval du "gap" de l'applicateur, intégré pendant 5 s. Les axes correspondent aux pixels de la caméra, convertis en résolution spectrale et spatiale, et l'échelle de couleur à l'intensité collectée.

Après traitement de l'image tel que décrit dans la partie 5.1.1, on obtient les spectres de cette raie, dont un exemple est exposé figure 108. Ces raies sont caractérisées par un profil de Voigt, une convolution entre un profil Lorentzien, et un profil Gaussien, et ici possèdent une largeur à mi-hauteur (FWHM, "Full-Width at Half Maximum") de l'ordre de 60-80 pm. L'élargissement de ces différents profils est lui-même dû à différents phénomènes physiques et grandeurs caractéristiques, connus, ou que l'on cherche à déterminer.

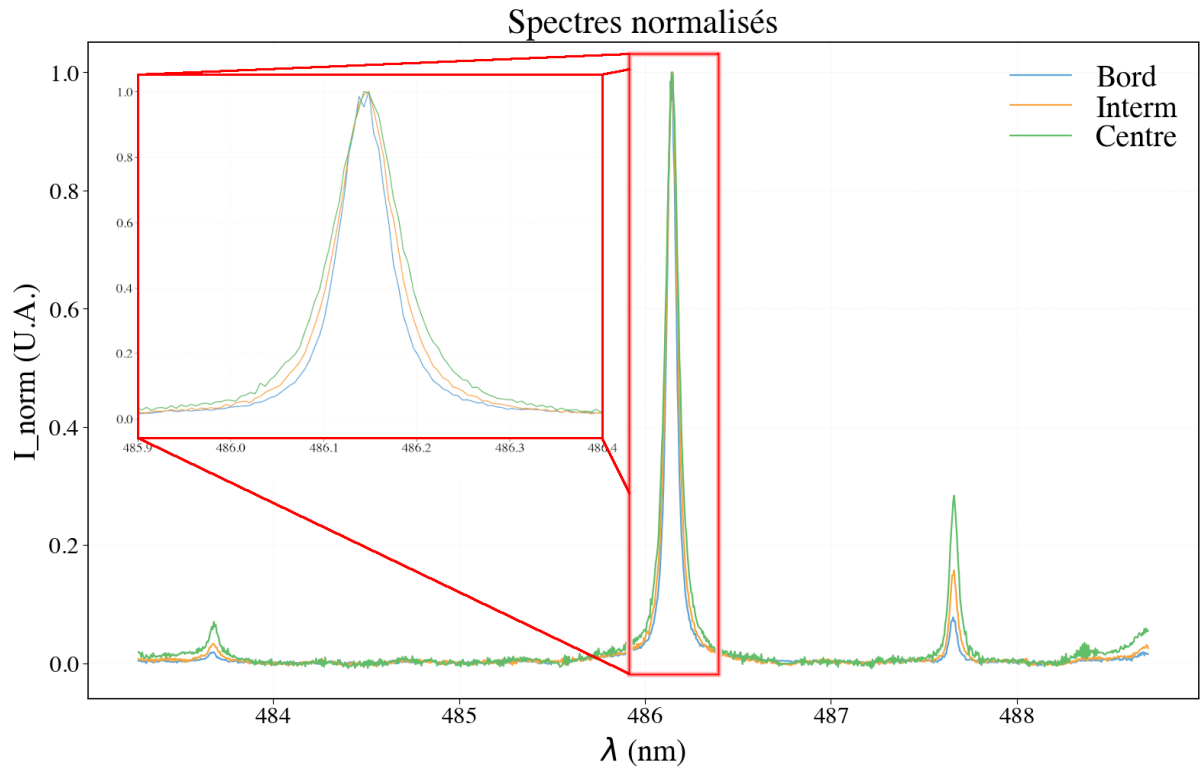


FIGURE 108 – Spectres de  $H_{\beta}$  obtenus pour 3 positions spatiales intégrés sur  $162 \mu\text{m}$  dans la direction axiale.

### Contributions Gaussiennes :

- Élargissement instrumental :

Une part de l'élargissement des raies provient du dispositif expérimental, qui dépend de la focale du système optique collectant le signal, du réseau, de la taille des pixels et de la largeur de la fente d'entrée du spectromètre, qui sera ici toujours de  $50 \mu\text{m}$ . Le profil de cet élargissement est tracé dans la partie 2.5 (figure 49) et correspond à un profil Gaussien ayant une FWHM  $w_I = 23 \text{ pm}$ .

- Élargissement Doppler :

Les particules au sein du plasma possédant une vitesse thermique, dont la distribution peut s'approximer par une maxwellienne, dans le cas présent d'un plasma à l'équilibre thermodynamique local, le déplacement relatif des particules émettrices (les atomes d'hydrogène) par rapport au récepteur (la caméra) induit un effet Doppler, responsable d'un élargissement Gaussien de la raie. La valeur de cet élargissement Doppler est donnée par :

$$w_D = 7,16 \times 10^{-7} \lambda_c \left( \frac{T_g}{M} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (5.3)$$

Avec :

- $w_D$  (nm) : FWHM de l'élargissement Doppler de la raie considérée.
- $\lambda_c$  (nm) : Position centrale de la raie considérée, ici 483,1 nm.
- $T_g$  (K) : Température du gaz.
- $M$  (u.m.a.) : Masse de l'atome émetteur, ici 1 u.m.a.

La seule inconnue ici étant la température du gaz, néanmoins bornée entre 300 K (température ambiante) et 2000 K (point de fusion de la silice [124]). La FWHM de l'élargissement Doppler variera donc ici entre 6 et 16 pm.

- Bilan :

L'élargissement Gaussien total de la raie de  $H_\beta$  mesurée,  $w_G$ , est la convolution des deux contributions Gaussiennes, Doppler et Instrumental. Sa FWHM pourra s'exprimer comme :

$$w_G = \sqrt{w_D^2(T_g) + w_I^2} \quad (5.4)$$

Cet élargissement ne dépend que de la température du gaz  $T_g$ , l'évolution de la FWHM de la contribution Gaussienne de la raie de  $H_\beta$ , présentée figure 109, montre que l'élargissement Gaussien total est dominé par l'élargissement Instrumental ; sur toute la plage des températures possibles, l'élargissement Gaussien total ne varie que de 15 %. Cet élargissement, au maximum de l'ordre de 30 pm, contribue pour moins de la moitié de l'élargissement total de la raie de  $H_\beta$ .

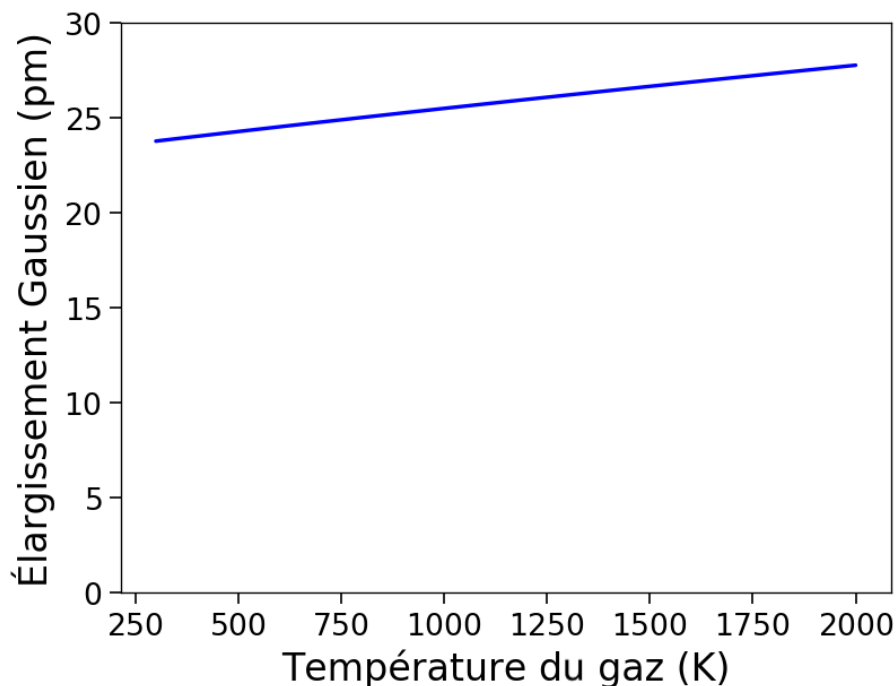


FIGURE 109 – Évolution de la FWHM de la contribution Gaussienne de la raie de  $H_\beta$  en fonction de la température du gaz.



### Contributions Lorentziennes :

- Élargissement naturel :

L'élargissement naturel provient de l'incertitude sur les niveaux d'énergie des états considérés. Il peut être exprimé comme :

$$w_n = \frac{\lambda_{ul}^2}{2\pi c} \left( \sum_{n<u} A_{un} + \sum_{n<l} A_{ln} \right) \quad (5.5)$$

Où  $\lambda_{ul}$  est la longueur d'onde de la transition mise en jeu, entre les états  $u$  (upper) et  $l$  (lower), et  $A_{ij}$  sont les coefficients d'Einstein associés à la transition  $i \rightarrow j$ , pour toutes les transitions permises. Cet élargissement est typiquement négligeable, et n'est donc pas considéré ici.

- Élargissement résonnant :

L'élargissement résonnant provient de perturbations entre les niveaux de l'atome émetteur mis en jeu, et d'autres niveaux d'atomes perturbateurs de même espèce. On a [125] :

$$w_R = 8,61 \times 10^{-28} \lambda_{ul}^2 \left[ \lambda_{ug} f_{gu} \sqrt{\frac{g_g}{g_u}} n_g + \lambda_{ul} f_{gl} \sqrt{\frac{g_g}{g_l}} n_g + \lambda_{ul} f_{lu} \sqrt{\frac{g_l}{g_u}} n_l \right] \quad (5.6)$$

Avec les  $n_i$ ,  $g_i$  et  $f_{ij}$  correspondant respectivement à la densité, la dégénérescence des états  $i$  et la force d'oscillateur entre les transitions  $i$  et  $j$ . Les indices  $i$  et  $j$  utilisés ici correspondent pour  $g$  à l'état fondamental de l'atome perturbateur, et les  $u$  et  $l$  correspondant aux états de départ et d'arrivée de la transition de l'atome émetteur. Cet élargissement sera ici également négligeable car l'hydrogène n'est ici présent qu'à l'état de traces.

- Élargissement Van der Waals :

Les raies subissent un élargissement de type Lorentzien, provenant des interactions collisionnelles entre les émetteurs et des particules voisines, principalement des atomes d'argon neutre car principal constituant du mélange gazeux dans toutes nos conditions. Cet élargissement, dit de Van der Waals, contribue pour une FWHM qui peut s'exprimer ainsi [125] :

$$w_{vdW} = 8,18 \times 10^{-26} \lambda_c^2 \left( \bar{\alpha} < \overline{R^2} > \right)^{2/5} \left( \frac{T_g}{\mu} \right)^{3/10} N \quad (5.7)$$

Où :

$$\bar{\alpha} = \frac{9}{2} a_0^3 \left( \frac{3E_H}{4E_{exc}} \right)^2 \quad (5.8)$$

$$< \overline{R^2} > = < \overline{R_u^2} > - < \overline{R_l^2} > \quad (5.9)$$

Et :

$$\langle \overline{R_j^2} \rangle = \frac{n_j^{*2}}{2} (5n_j^{*2} + 1 - 3l_j(l_j + 1)) \quad (5.10)$$

Avec :

- $\mu = \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2}$  (u.m.a) : Masse réduite entre l'atome perturbé et son perturbateur, qui sera toujours de l'argon, car majoritaire dans la composition du gaz.
- $a_0 = 5,29 \times 10^{-10}$  m : Rayon de Bohr.
- $E_{exc}$  (J) : Énergie du niveau de première excitation de l'atome perturbateur.
- $n_j^{*2} = \frac{E_H}{E_{IP} - E_j}$ , où  $E_H$  est le potentiel d'ionisation de l'hydrogène,  $E_{IP}$  celui de l'élément mis en jeu, et  $E_j$  l'énergie de l'état considéré.
- $l_j$  : Nombre quantique azimutal de l'électron mis en jeu.

En pratique, pour le cas de la raie  $H_\beta$ , on aura :

$$w_{VdW}^{H_\beta}(nm) = 5,521 \frac{P(\text{atm})}{T_g^{0,7}(\text{K})} \quad (5.11)$$

- Élargissement Stark :

Le plasma étant composé de particules chargées, les émetteurs sont soumis à un champ électrique qui localement est généré par des charges locales d'espace, qui peuvent légèrement faire varier les niveaux des états mis en jeu lors de la transition donnant naissance à la raie  $H_\beta$ . Il y a donc un déplacement de la position centrale des raies, qui donne lieu à un élargissement Stark, de type Lorentzien, qui dépendra des paramètres des porteurs de charge. En l'occurrence, pour cette raie de  $H_\beta$  l'élargissement Stark est attendu comme important, et avec une forte dépendance vis-à-vis de  $n_e$ .

Une étude numérique de ces raies d'émission [123] a conduit à une expression de la valeur de la FWHM de l'élargissement Stark de la raie de  $H_\beta$  donnée par :

$$w_S = 4,8 \left( \frac{n_e}{10^{17}} \right)^{0,68116} \quad (5.12)$$

Avec :

- $w_S$  (nm) : Élargissement Stark total de la raie considérée.
- $n_e$  ( $\text{cm}^{-3}$ ) : Densité électronique.

A noter que cette expression néglige la dépendance envers la température électronique.

- Bilan :

Pour des contributions Lorentziennes, la FWHM de la convolution de plusieurs contributions est la somme des FWHM. On aura donc la FWHM de la contribution Lorentzienne à la raie  $w_L$  :

$$w_L = w_{VDW} + w_S \quad (5.13)$$

On pourra donc, à partir de la connaissance de la température du gaz (donnée par la distribution de Boltzmann de OH et/ou  $N_2(C)$ ) déterminer la valeur de l'élargissement Gaussien de la raie (ou un encadrement de cette valeur, en fonction de l'incertitude sur la valeur de  $T_g$ ), qui nous permettra ensuite de réaliser un fit de la raie de  $H_\beta$  obtenue expérimentalement, selon la définition d'un profil de Voigt [126] :

$$V(x, x_0, y_0, A, \sigma, \gamma) = y_0 + \frac{A}{\sigma\sqrt{2\pi}} \Re\{e^{-z^2} \operatorname{erf}(-iz)\} \quad (5.14)$$

Où :

- $z$  : Complexe défini tel que  $z = \frac{(x-x_0)+i\gamma}{\sigma\sqrt{2}}$ .
- $\Re\{z\}$  : Fonction donnant la partie réelle de  $z$ .
- $\operatorname{erf}(z)$  : Fonction d'erreur définie comme :  $\operatorname{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z e^{-t^2} dt$ .
- $\sigma$  (nm) : Lié à l'élargissement Gaussien  $w_G$  par :  $w_G = 2\sigma\sqrt{2\ln(2)}$ .
- $\gamma$  (nm) : Lié à l'élargissement Lorentzien  $w_L$  par :  $w_L = 2\gamma$ .
- $A$  (nm<sup>2</sup>) : Aire totale du profil de Voigt, la fonction étant normalisée.
- $x_0$  (nm) : Longueur d'onde centrale du pic.
- $y_0$  : paramètre de fit permettant de corriger un "offset" éventuel sur les raies.

De ce fit, on obtient la valeur de l'élargissement Lorentzien, auquel on peut soustraire la contribution de Van der Waals, pour avoir la valeur de la contribution Stark, qui nous donne la densité électronique.

## 5.2 Méthodologie et principes de la spectroscopie d'absorption par diode laser (TD:LAS)

Le principe de la TD:LAS a été précédemment décrit théoriquement [127] et déjà employé pour mesurer par exemple, des états métastables de l'argon [128], de l'hélium [129] ou du soufre [130]. Cette méthode se base sur la loi de Beer-Lambert : un faisceau laser incident est envoyé à travers le milieu plasma, que l'on considérera comme homogène, contenant un état  $i$  que l'on cherche à sonder. Il existe un état  $j$  tel que la transition  $i \rightarrow j$  soit permise par absorption d'un photon et que l'état  $j$  ne soit pas saturé ; ce photon

aura alors une énergie  $E_{ij}$ , et une longueur d'onde  $\lambda_{ij} = \frac{hc}{E_{ij}}$ . Dans ces conditions, la loi de Beer-Lambert à l'état stationnaire et pour un milieu plasma supposé homogène nous donne :

$$\frac{I(\lambda)}{I_0(\lambda)} = \exp\left(-\int_0^l k(\lambda, x)dx\right) \quad (5.15)$$

- $I(\lambda)$  (U.A.) : Signal du laser transmis après le milieu plasma, auquel il faut soustraire l'émission lumineuse provenant du plasma.
- $I_0(\lambda)$  (U.A.) : Signal du laser transmis dans les mêmes conditions, mais en l'absence de plasma, auquel il faut soustraire le "background" lumineux.
- $l$  (m) : Longueur d'absorption, soit la distance parcourue par le faisceau laser dans le milieu plasma.
- $k(\lambda, x)$  ( $m^{-1}$ ) : Coefficient d'absorption.

On peut alors relier le coefficient d'absorption avec la densité de l'espèce mesurée  $N(x)$ , supposée homogène dans le milieu sondé autour de la position  $x$  le long de l'axe traversé par le faisceau :

$$k(\lambda, x) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{\pi e^2}{m_e c} f_{ij} \phi(\lambda) N(x) \quad (5.16)$$

- $f_{ij}$  : force d'oscillateur correspondant à la transition étudiée.
- $\phi(\lambda)$  : Fonction normalisée représentant la forme de la raie d'absorption. On aura donc  $\int_{-\infty}^{+\infty} \phi(\lambda)d\lambda = 1$ .
- $N(x)$  ( $m^{-3}$ ) : densité de l'état mesuré.

En pratique, on mesurera l'absorbance, définie par  $A(\lambda) = \ln\left(\frac{I_0(\lambda)}{I(\lambda)}\right) = \int_0^l k(\lambda, x)dx$ , dont l'intégration spectrale, correspondant à l'aire du pic d'absorption, est également reliée à la densité d'espèces. On peut définir, pour un milieu avec une densité d'espèces sondées  $N$  sur une longueur d'absorption  $L$  :

$$\frac{1}{L} \int_{-\infty}^{+\infty} A(\lambda)d\lambda = k_\lambda = \int_{raie} k(\lambda)d\lambda \quad (5.17)$$

Qui peut également s'exprimer sous la forme :

$$\int_{raie} k(\lambda)d\lambda = \frac{e^2 \lambda_{ij}^2}{4\epsilon_0 m_e c^2} f_{ij} \left(N_i - \frac{g_i}{g_j} N_j\right) \quad (5.18)$$

Les densités des états mis en jeu lors de la transition peuvent être reliées, si on suppose qu'elles sont dans un équilibre de Boltzmann, et l'expression peut ainsi se simplifier en considérant que la densité de l'état  $N_j$  est négligeable par rapport à celle de l'état  $N_i$  :

$$\int_{raie} k(\lambda)d\lambda = \frac{e^2 \lambda_{ij}^2}{4\epsilon_0 m_e c^2} f_{ij} N_i \left(1 - e^{-\frac{h\nu}{k_B T}}\right) = 8,85 \times 10^{-13} \lambda_{ij}^2(\text{cm}) f_{ij} N_i(\text{cm}^{-3}) \quad (5.19)$$

Dans le cas présent, on étudiera un état métastable de l'argon, à savoir l'état  $3s^2 3p^5 ({}^2P_{3/2}^o)4s$ . Ce dernier est caractérisé par une absorption à  $\lambda_{ij} = 801,698$  nm, avec une force d'oscillateur  $f_{ij} = 8,94 \times 10^{-2}$ , qui sera donc la transition utilisée ici. On aura :

$$N_i(\text{cm}^{-3}) = \frac{A}{8,85 \times 10^{-13} \lambda_{ij}^2(\text{cm}) f_{ij} L} = \frac{A}{5,09 \times 10^{-22} L} \quad (5.20)$$

En pratique, l'intégrale de la raie d'absorption permettra de nous donner une valeur relative de la densité d'argon métastable, la valeur de la longueur d'absorption  $L$  étant soumise à une incertitude importante dans un plasma à pression atmosphérique. Un exemple d'absorbance en fonction de la longueur d'onde, pour plusieurs valeurs de fraction d'air introduite dans le mélange gazeux est représenté figure 110.

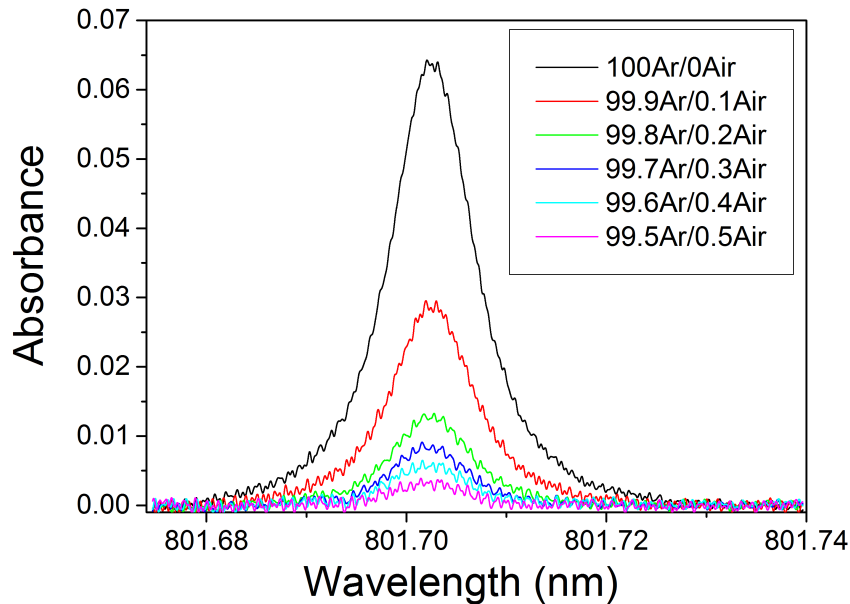


FIGURE 110 – Absorbance de TD:LAS en fonction de la longueur d'onde, pour différentes valeurs de fraction d'air présente dans le mélange gazeux.

A l'aide de l'importante résolution spatiale du dispositif (faisceau de  $50 \mu\text{m}$  au passage du jet, voir partie 2.4) on peut réaliser suffisamment de mesures dans la direction axiale (la direction  $x$  du schéma de la figure 111) pour obtenir une dépendance radiale grâce au principe de la transformée (ou inversion) d'Abel. Sous l'hypothèse d'un plasma symétrique cylindriquement, on pourra utiliser les spectres pris pour différentes positions axiales pour obtenir l'absorption définie en fonction de la position radiale. Ce procédé permet d'obtenir des valeurs absolues de la densité de métastables sans avoir la connaissance de la longueur d'absorption de la décharge, variable selon la position axiale.

Le procédé à effectuer est le suivant, avec  $R$  le rayon supposé de la décharge, obtenu par la différence entre les positions axiales extrêmes pour lesquelles des spectres sont mesurés :

$$k_\nu(r) = \frac{-1}{\pi} \int_r^R \frac{d\tau_\nu(x)}{dx} \frac{dx}{\sqrt{x^2 - r^2}} \quad (5.21)$$

Le principe de la transformée d'Abel est résumé et schématisé figure 111. L'axe  $z$  correspond à l'axe du capillaire, l'axe  $y$  est celui de la propagation du faisceau laser, et l'axe  $x$  correspond aux différentes positions axiales où les mesures d'absorption seront réalisées.

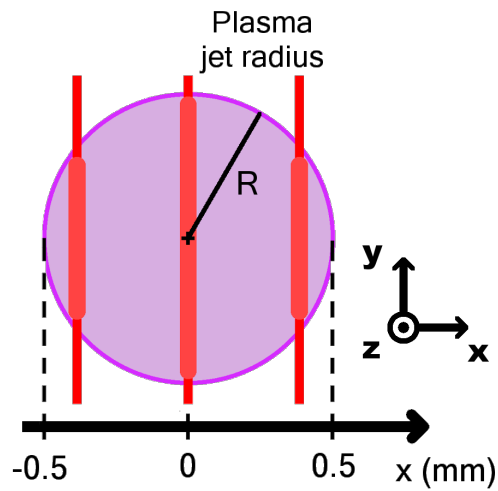


FIGURE 111 – Représentation d'une coupe du jet plasma, traversée par le laser d'absorption pour plusieurs positions axiales, pour être converti en coefficient d'absorption radial.

Une représentation de différents spectres d'absorbance en fonction de la longueur d'onde obtenus pour différentes positions axiales, utilisés pour obtenir des densités absolues de métastables par transformée d'Abel, est présentée figure 112.

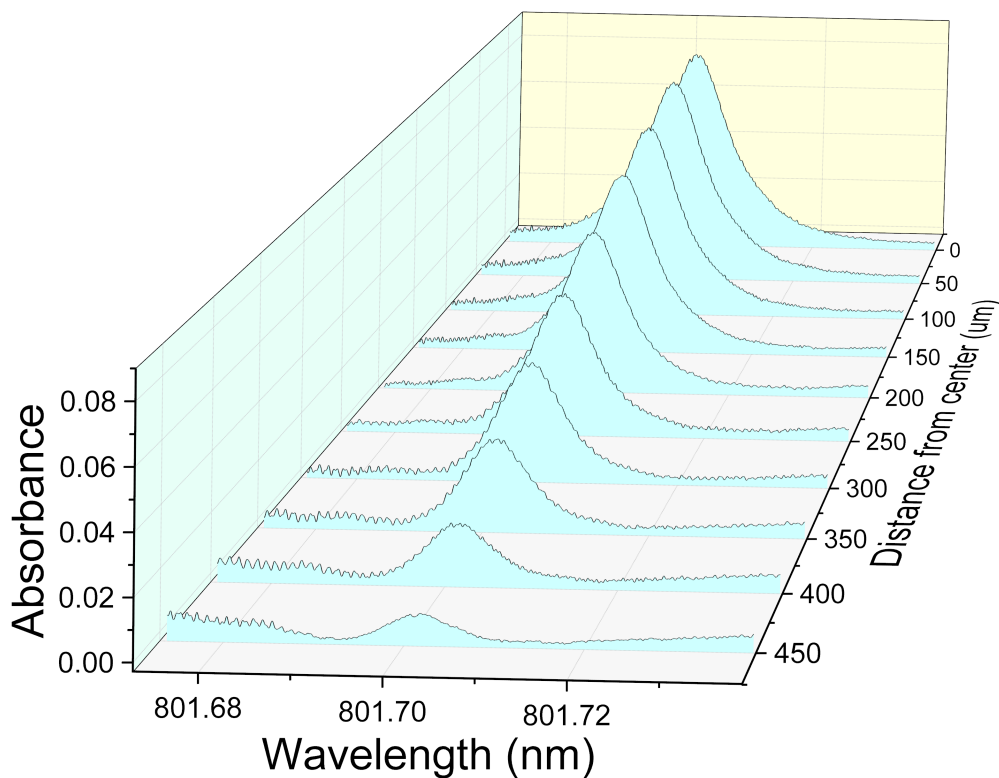


FIGURE 112 – Absorbance en fonction de la longueur d'onde mesurée pour différentes positions axiales.

## 5.3 Caractérisation de la densité électronique et de la température du plasma

### 5.3.1 Gaz rare à basse pression

Dans un premier temps, les études porteront sur un plasma à basse pression (avec présence de la pompe primaire, pression en amont du capillaire de l'ordre de la centaine de millibars, en aval de l'ordre de la dizaine de millibars) en gaz non-réactif uniquement (argon), ce qui empêche les mesures de température rotationnelle par  $N_2(C)$ . En effet, bien que présent à l'état de traces, son émission est trop faible et dominée par des raies d'argon se situant sur le même domaine spectral. Des études seront réalisées avec les applicateurs strip-line et surfatron ajustable, pour 4 études de variations paramétriques pour caractériser le plasma : variation de la puissance micro-onde consigne, variation du débit de gaz, résolution longitudinale du plasma, et finalement, influence d'un écoulement externe de gaz de refroidissement sur le capillaire.

#### Variation de la puissance micro-onde

La première étude consiste en une variation de la puissance micro-onde consigne entre 30 et 50 W. Pour cette étude, les paramètres suivants seront fixés : applicateur strip-line, fréquence micro-onde de 2,45 GHz, débit d'argon de 500 ml/min, collecte de l'émission du plasma 5 cm en aval de l'applicateur, sans convection externe forcée. Les spectres de OH sont intégrés pendant 3 s et ceux de  $H_\beta$  pendant 1 s.

Les résultats de température rotationnelle de OH sont présentés figure 113.

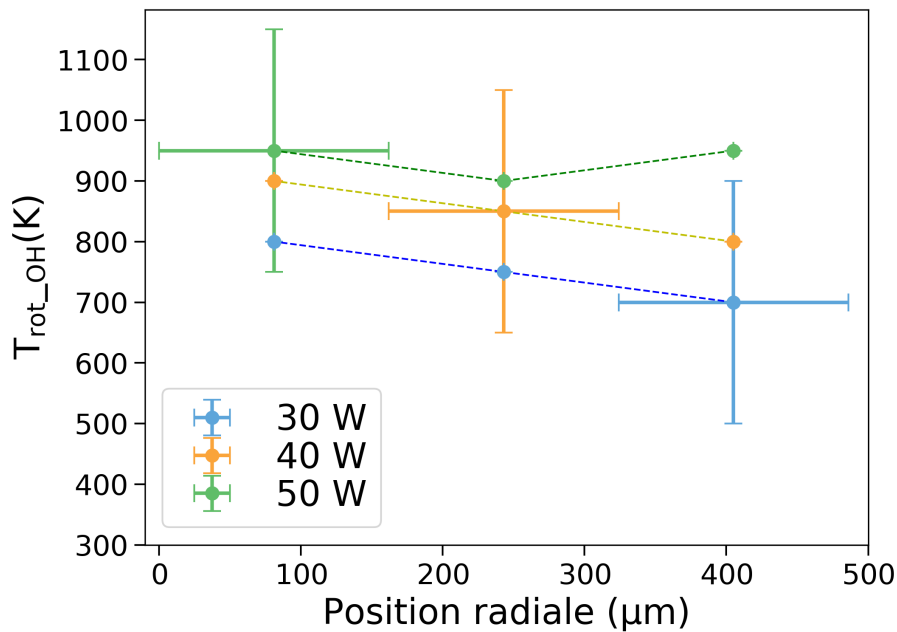


FIGURE 113 – Température rotationnelle de OH obtenue par fits Specair, en fonction de la position radiale et de la puissance MO consigne.

La tendance globale observée est celle qui pourrait être *a priori* supposée : la température croît à mesure que l'on se rapproche du centre du capillaire, et croît également avec la puissance micro-onde consigne,

comme attendu. Les températures sont comprises entre 700 et 950 K, avec un écart radial relativement faible par rapport à la valeur des incertitudes (200 K pour tous les points) : 100 K d'écart entre deux positions séparées de 500  $\mu\text{m}$ , soit une variation d'environ 10 % de la valeur brute, et jusqu'à 500 K d'écart en prenant en compte les incertitudes. Un point semble contredire la tendance des résultats (à 50 W, position au bord du capillaire) mais une fois encore, aux incertitudes près, la tendance pourrait aussi être confirmée.

Les barres d'erreur verticales sont dues au fit obtenu par le logiciel Specair, qui permet d'encadrer la grande majorité des pics du spectre avec une variation de  $\pm 200$  K par rapport à la température du meilleur fit. Néanmoins, le point à la position centrale est moyenné sur tout le rayon de la décharge, donc intègre aussi les points au bord et à la position intermédiaire, de température plus faible. Son incertitude négative est donc systématiquement surestimée, et son incertitude positive systématiquement sous-estimée. Les incertitudes horizontales proviennent de la moyenne réalisée sur les 30 pixels, ou 162  $\mu\text{m}$ , et donc indiquent la fenêtre spatiale sur laquelle est réalisée cette moyenne.

Ces remarques sur les incertitudes de  $T_{rot\_OH}$  concernent toutes les figures ultérieures de cette section. Dans un souci de clarté, seule une incertitude par série sera tracée, leur valeur étant toujours identique.

Pour cette même campagne de mesure, on représente également les résultats de densité électronique obtenus par élargissement Stark de la raie de  $H_\beta$  sur la figure 114. Les tendances observées ici sont les mêmes que pour la température rotationnelle de OH : la densité électronique croit en se rapprochant du centre du capillaire et croit avec la puissance micro-onde consigne. Les densités électroniques mesurées sont comprises entre  $3,8 \times 10^{13}$  et  $1,3 \times 10^{14}$   $\text{cm}^{-3}$ , soit une fluctuation maximale d'un facteur 3, et pour chaque valeur fixe de puissance consigne, la densité électronique mesurée entre la position au centre et au bord du capillaire varie d'un facteur 2.

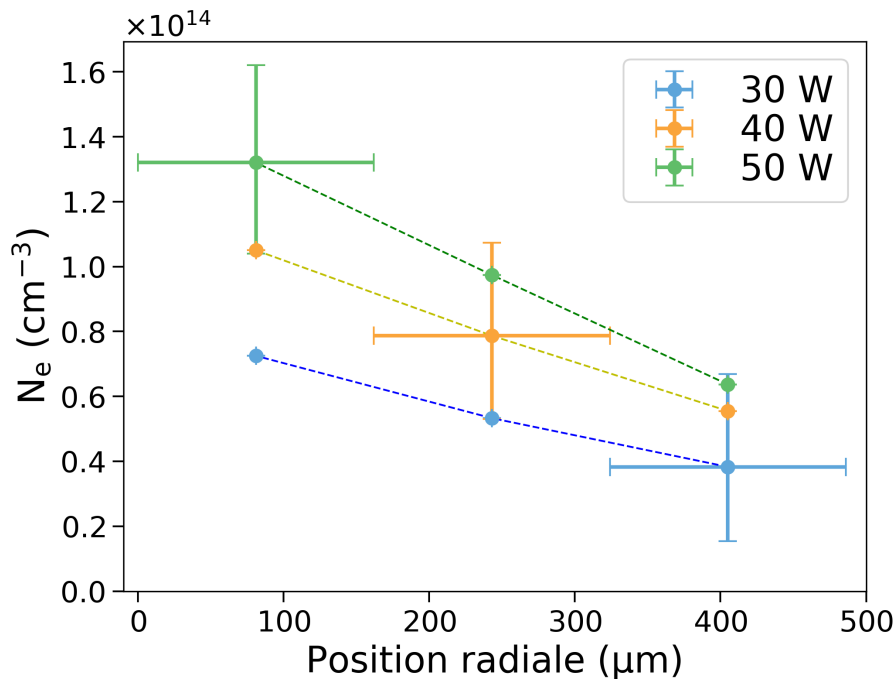


FIGURE 114 – Densité électronique obtenue par élargissement Stark de  $H_\beta$ , en fonction de la position radiale et de la puissance MO consigne.



Comme détaillé dans la partie 3.2.1, pour d'autres paramètres fixes, et pour des conditions expérimentales similaires, une augmentation de la puissance consigne conduit à un allongement de la colonne de plasma. D'après ces mesures de température, on constate que cette colonne n'est pas homogène, et que sa température et sa densité électronique augmentent avec la puissance consigne, pour un point mesuré suffisamment loin du centre de la décharge et de son extrémité. Il est à noter qu'en réalité, les gradients radiaux sont plus importants que ceux tracés ici. Une étude avec une inversion d'Abel sera nécessaire pour déterminer ultérieurement un profil radial plus correct.

Pour toutes les positions au bord, soit à proximité de la paroi interne du capillaire, la densité électronique mesurée est non-nulle. Cela donne une information indirecte sur la taille de la gaine, zone de recombinaison à proximité de la paroi, où la densité électronique est nulle. Les résultats exposés ici (ainsi que tous les résultats ultérieurs) montrent que la taille de cette gaine est inférieure à la ligne de vue pour laquelle ce point de mesure est obtenu, soit  $162 \mu\text{m}$ .

Les incertitudes horizontales sont les mêmes que pour les mesures de OH (fenêtre spatiale des mesures). Les incertitudes verticales proviennent de l'encadrement en pression et en température (donné par les incertitudes sur  $T_{rot\_OH}$ ), donnant un encadrement des contributions Doppler et Van der Waals, donc du Stark et de la densité électronique. Comme pour la température rotationnelle de OH, seule une incertitude par série sera présentée.

Il est à noter qu'ici, le choix du paramètre de contrôle s'est porté sur la puissance consigne, malgré les conclusions des chapitres précédents montrant que cette grandeur ne représente pas la puissance réellement transmise au plasma, par opposition à la puissance couplée ou la densité volumique de puissance qui en donnent une idée plus précise. Néanmoins, étant donné les incertitudes sur ces grandeurs et l'aspect incomplet des bilans de puissance en présence de plasma, le choix d'utiliser la puissance consigne offre une certaine clarté dans l'expression des résultats.

### Variation du débit de gaz

Ici le paramètre variable est le débit de gaz parcourant le capillaire, entre 300 et 700 ml/min. Les paramètres suivants sont fixés : applicateur strip-line, puissance micro-onde consigne de 40 W, fréquence micro-onde de 2,45 GHz, collecte de l'émission du plasma 5 cm en aval de l'applicateur, sans convection externe forcée. Les spectres de OH sont intégrés pendant 3 s et ceux de  $H_\beta$  pendant 1 s.

Les résultats de température rotationnelle de OH sont exposés figure 115.

La tendance globale en fonction de la position radiale est la même que pour la variation de puissance quel que soit le débit : la température rotationnelle est plus élevée au centre qu'aux bords du capillaire, avec des variations entre ces deux extrema de 100 K, ce qui est inférieur aux incertitudes. Une tendance similaire pourrait être conclue à propos de la valeur du débit de gaz : la température mesurée est plus élevée pour les plus hauts débits, mais l'écart maximal, 100 K entre les différentes valeurs de débit, est inférieur aux incertitudes. Cette tendance faible, bien que systématique, peut s'expliquer par l'augmentation de la densité de puissance couplée avec le débit de gaz (cf. partie 3.2.1).

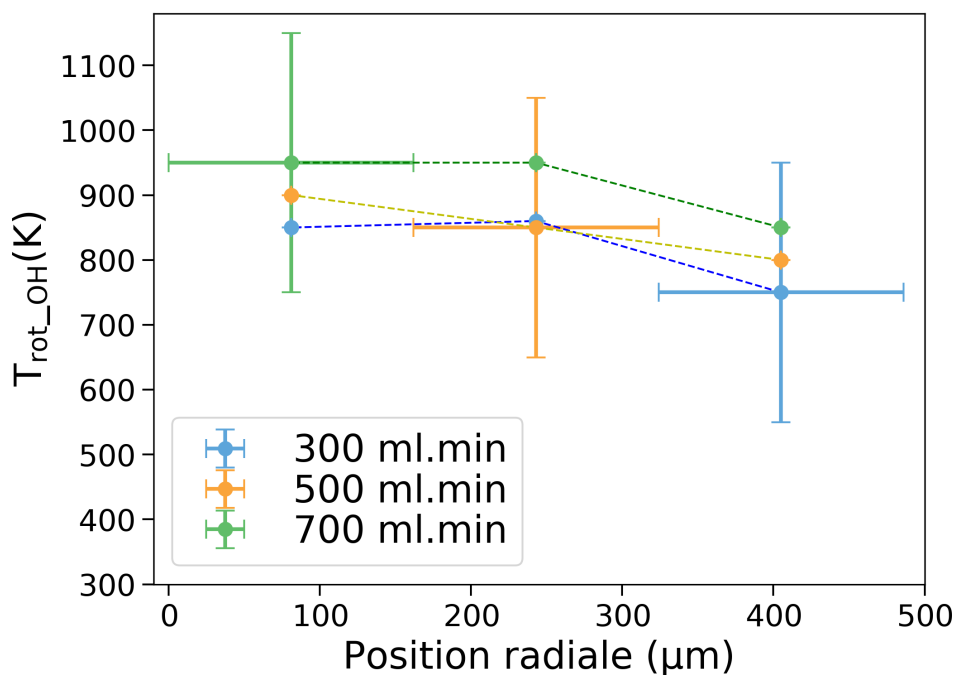


FIGURE 115 – Température rotationnelle de OH obtenue par fits Specair, en fonction de la position radiale et du débit d'argon.

Les résultats pour la densité électronique obtenus par élargissement Stark de la raie de  $H_{\beta}$  sont représentés figure 116.

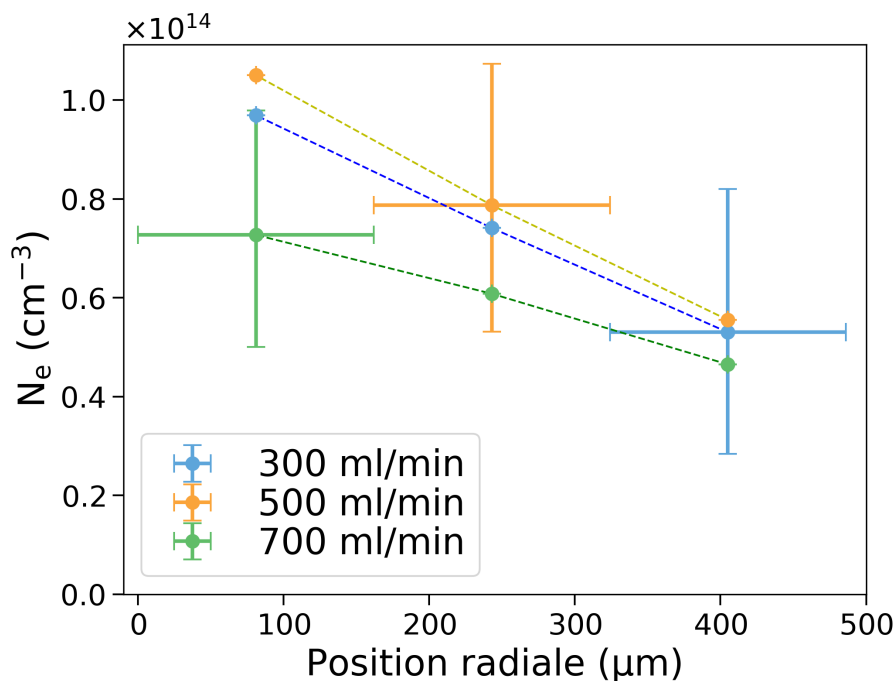


FIGURE 116 – Densité électronique obtenue par élargissement Stark de  $H_{\beta}$ , en fonction de la position radiale et du débit d'argon.

Les valeurs de densité électronique mesurées sont comprises entre  $4,7 \times 10^{13}$  et  $1,1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ . La variation de la densité électronique entre le centre et le bord est de l'ordre d'un facteur 2 pour les débits de 500 et 300 ml/min, et légèrement plus faible pour le cas à 700 ml/min. La tendance est toujours la même

pour les positions radiales, mais en fonction du débit, les résultats indiquent une autre tendance que celle constatée pour la température rotationnelle de OH : les plus hautes densités électroniques sont obtenues pour la valeur intermédiaire de débit, à savoir 500 ml/min, et les plus basses sont celles pour le plus haut débit, 700 ml/min. Ce phénomène peut s'expliquer par la conjugaison de plusieurs facteurs : les études paramétriques macroscopiques détaillées dans la partie 3.2.1 montrent que la longueur du plasma décroît de façon monotone avec le débit de gaz. Pour des débits plus importants, le point de mesure de l'émission du plasma se situe donc plus proche de la fin de la colonne, et comme il sera détaillé ultérieurement, les points plus proches de l'extrémité de la colonne possèdent une densité électronique plus faible. Un autre phénomène à prendre en compte, et qui peut expliquer le caractère non monotone de cette tendance, est l'évolution de la puissance réfléchiée en fonction du débit d'argon pour le cas du strip-line, explicitée dans la partie 3.2.1 : l'optimum de puissance couplée est alors obtenu pour une valeur de débit intermédiaire, proche de 300 ml/min. Ce résultat est cependant obtenu pour une valeur de puissance consigne différente, mais peut expliquer que le couplage micro-onde, lié à la densité électronique d'après le résultat précédent sur la variation de puissance consigne, puisse conduire à une évolution non monotone en fonction du débit.

### Résolution longitudinale

On se place dans des conditions plasma fixes, à savoir : applicateur surfatron ajustable, fréquence micro-onde de 2,427 GHz, débit de gaz de 500 ml/min, sans convection externe forcée et une puissance micro-onde consigne de 30 W ou 40 W. Le point de collecte de l'émission du plasma est situé selon le cas, à 2, 4 ou 6 cm en aval du surfatron, donc du centre de la décharge, qui est situé au "gap" de l'applicateur, directement à son extrémité. Les spectres de OH sont intégrés pendant 3 s et ceux de  $H_\beta$  pendant 5 s.

Les résultats de température rotationnelle de OH avec résolution longitudinale pour le cas à 30 W sont représentés figure 117 et figure 118 pour le cas à 40 W.

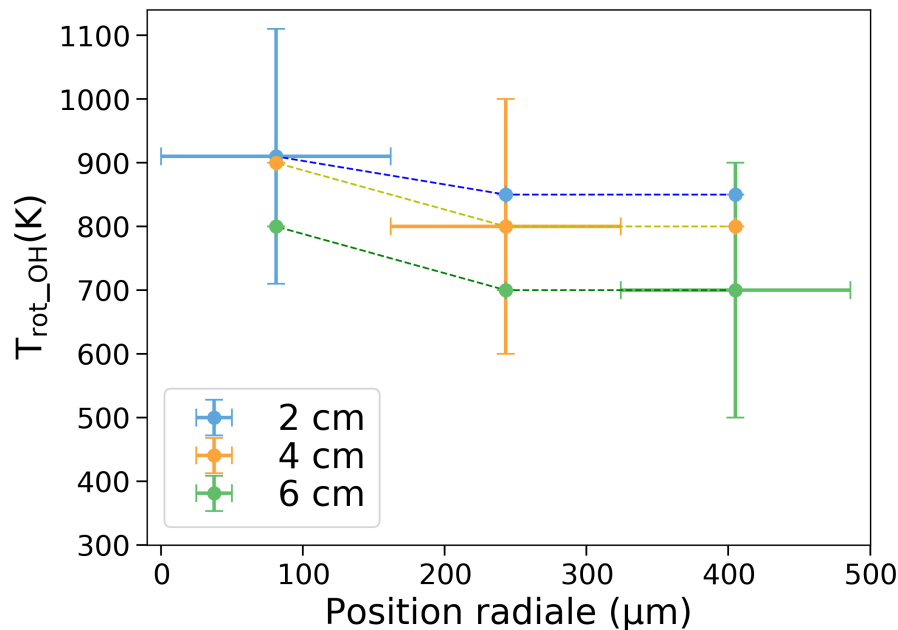


FIGURE 117 – Température rotationnelle de OH obtenue par fits Specair, en fonction des positions radiale et longitudinale (origine longitudinale prise au gap) pour une puissance consigne de 30 W.

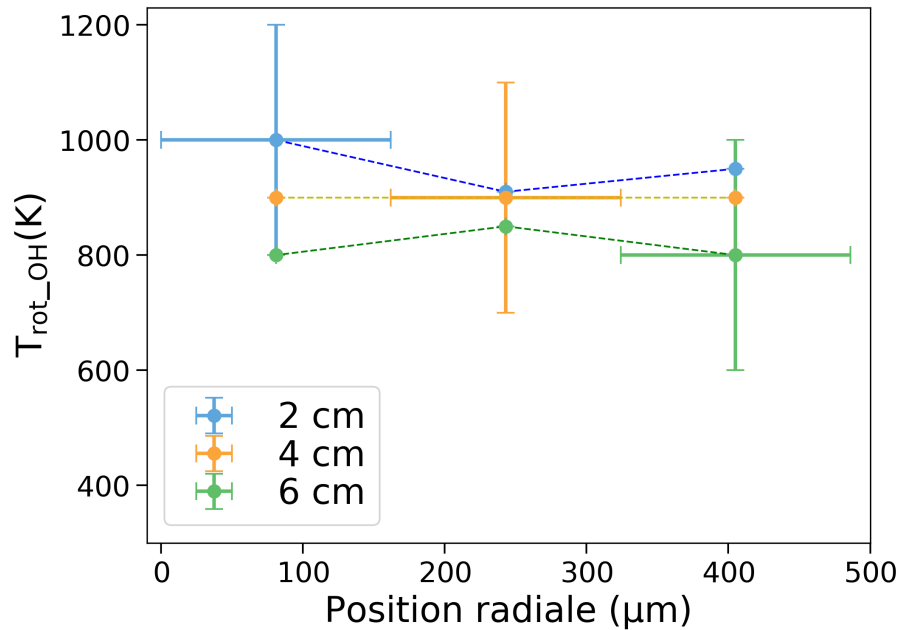


FIGURE 118 – Température rotationnelle de OH obtenue par fits Specair, en fonction des positions radiale et longitudinale (origine longitudinale prise au gap) pour une puissance consigne de 40 W.

Les températures rotationnelles sont comprises entre 700 et 900 K, avec un écart radial maximal de 100 K pour le cas à 30 W, et comprises entre 800 et 1000 K pour le cas à 40 W. Les tendances radiales sont les mêmes que celles constatées précédemment (cf. figure 113) confirmant que les profils des plasmas sont comparables pour les deux applicateurs strip-line et surfatron ajustable. A noter que le point de collecte pour le cas du strip-line au point situé 5 cm en aval de l'applicateur, est comparable ici avec le cas du surfatron ajustable au point situé 6 cm en aval, car le centre de la décharge est environ 1 cm en amont de l'extrémité aval de l'applicateur, tandis que la position longitudinale pour le surfatron est directement exprimée en distance par rapport au centre de la décharge pris au niveau du gap. Le profil longitudinal, bien qu'ayant une amplitude inférieure aux incertitudes, montre une tendance systématique : la température rotationnelle mesurée est décroissante avec la position longitudinale. La décroissance en température est plus importante entre les points à 4 et 6 cm que celle entre les points à 2 et 4 cm, en sachant que le point à 6 cm est relativement proche de l'extrémité de la colonne de plasma, montrant une inhomogénéité longitudinale de température plus importante à l'extrémité de la colonne de plasma. Ce type de profil n'est pas attendu en ce qui concerne la densité électronique (détails ci-dessous), confirmant une décorrélation entre la densité électronique et la température de gaz.

Les profils de densité électronique par élargissement Stark de la raie de  $H_\beta$  sont tracés figure 119 pour le cas à 30 W et figure 120 pour le cas à 40 W.

Dans le premier cas, les densités électroniques mesurées sont comprises entre  $3,3 \times 10^{13}$  et  $1,5 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ , et dans le second entre  $4,9 \times 10^{13}$  et  $1,8 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ . Dans tous les cas, il existe toujours un facteur 2 entre la densité électronique mesurée à la position centrale et celle mesurée au bord du capillaire. Les tendances constatées pour les résolutions radiales, longitudinales, et avec la variation de puissance, sont les mêmes qu'observées pour la température rotationnelle. Plus précisément, la densité électronique croît en se rapprochant du centre, avec la puissance micro-onde consigne, et décroît linéairement avec la position longitudinale (et ce pour toutes les positions radiales) en accord avec les profils longitudinaux théoriques, linéairement décroissants avec la position longitudinale pour une puissance couplée donnée

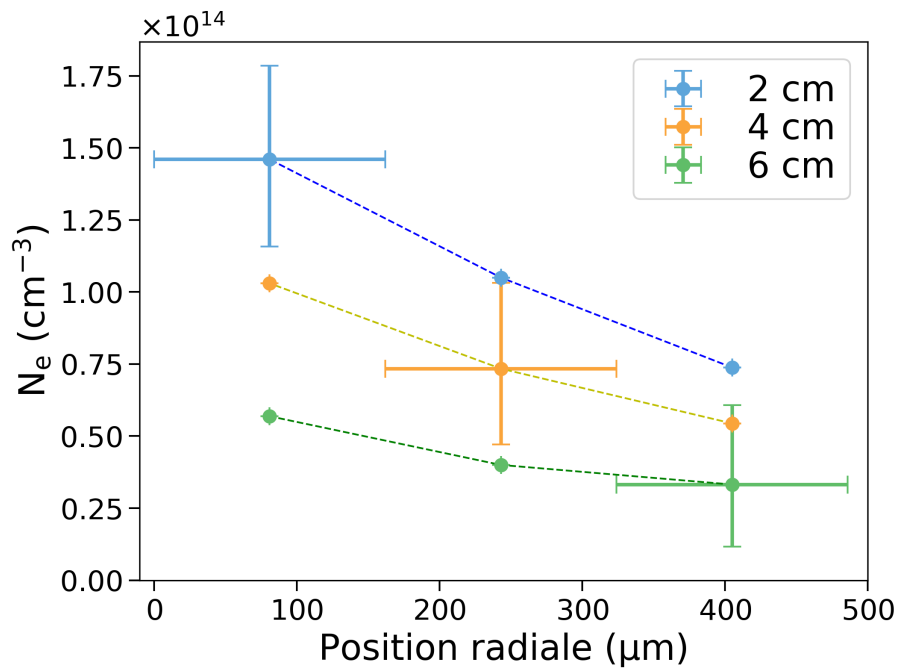


FIGURE 119 – Densité électronique obtenue par élargissement Stark de  $H_\beta$ , en fonction des positions radiale et longitudinale (origine longitudinale prise au gap) pour une puissance consigne de 30 W.

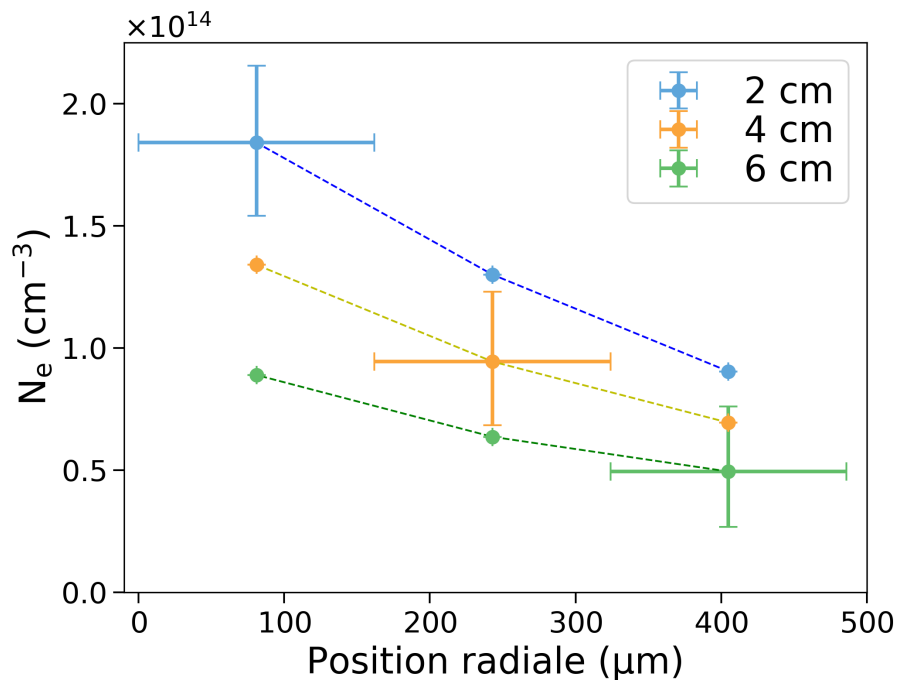


FIGURE 120 – Densité électronique obtenue par élargissement Stark de  $H_\beta$ , en fonction des positions radiale et longitudinale (origine longitudinale prise au gap) pour une puissance consigne de 40 W.

(cf. figure 58). Ces tendances sont plus marquées avec la densité électronique qu'avec les températures rotationnelles, et confirment donc la tendance d'une colonne de plasma non-homogène également pour la densité électronique selon les directions radiales et longitudinales.

### 5.3.2 Gaz rare à pression atmosphérique

Pour cette campagne de mesures, on reste toujours dans un mélange gazeux non-réactif (argon pur) mais en l'absence de pompe, donc avec un plasma à la pression atmosphérique (en réalité en légère surpression en amont du capillaire), mais toujours avec un plasma entièrement confiné dans le capillaire. Comme décrit dans la partie 3.2.3, à pression atmosphérique la colonne de plasma générée est bien plus courte que pour des conditions identiques à basse pression. On ne pourra donc ici utiliser que l'applicateur surfatron ajustable, qui permet un accès optique possible pour ces plasmas plus courts, obtenus dans des conditions expérimentales comparables à celles de la partie 5.3.1. On étudie l'évolution des paramètres plasmas en fonction de la puissance micro-onde consigne ainsi que de la position longitudinale, les autres paramètres sont fixés, à savoir : applicateur surfatron ajustable, fréquence micro-onde de 2,427 GHz, débit de gaz de 500 ml/min (à pression atmosphérique), sans convection externe forcée. La puissance micro-onde consigne est de 30, 40 et 50 W. Dans les deux premiers cas le point de collecte est uniquement à 2 cm en aval de l'applicateur, en raison de la faible longueur de la colonne de plasma, et dans le dernier cas, on prendra deux points de collecte, à 2 et 4 cm en aval du surfatron. Les spectres de OH sont intégrés pendant 3 s et ceux de  $H_{\beta}$  pendant 5 s.

Les mesures de température rotationnelle de OH représentées figure 121 établissent une comparaison entre les cas à basse pression et à pression atmosphérique pour 30 W et 40 W de puissance micro-onde consigne, les autres paramètres expérimentaux étant identiques, tandis que la figure 122 expose la résolution longitudinale pour le cas à 50 W, uniquement à pression atmosphérique.

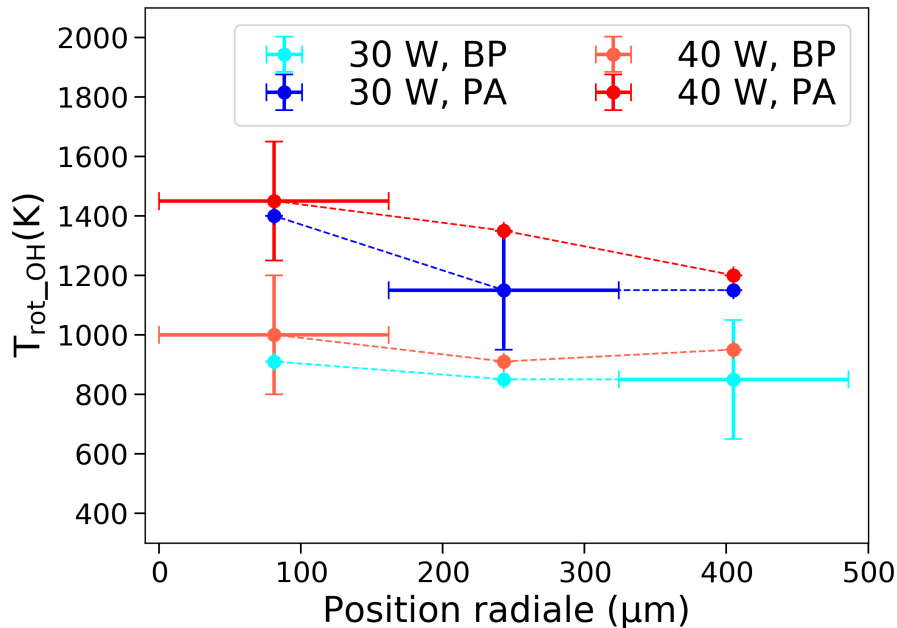


FIGURE 121 – Température rotationnelle de OH obtenue par fits Specair, en fonction de la position radiale et de la puissance MO consigne, prise 2 cm en aval de l'applicateur, pour deux pressions, basse (BP) et atmosphérique (PA).

Sur la figure 121 on constate que les températures mesurées sont globalement supérieures pour le cas à pression atmosphérique (de 250 à 500 K par rapport au cas à basse pression) et également que l'écart radial en température est plus important, passant de 100 à 250 K. L'élévation de température avec la puissance est également plus importante, passant d'un maximum de 100 K entre deux points mesurés à la même position spatiale à 200 K. Ces différents phénomènes partagent la même explication détaillée

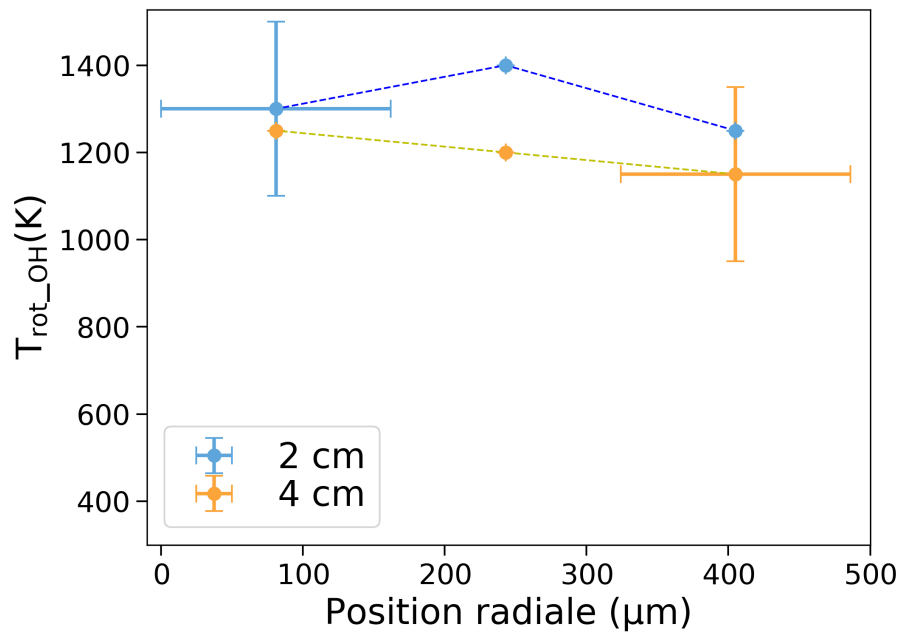


FIGURE 122 – Température rotationnelle de OH obtenue par fits Specair, en fonction de la position radiale pour deux positions longitudinales.

dans la partie 5.3.1 pour une variation du débit de gaz : à plus haute pression, la densité de particules est plus importante, ainsi un taux de collision plus important conduit à homogénéiser radialement le plasma, ce qui implique une élévation de la température rotationnelle du gaz. De la même façon, ces phénomènes peuvent s'expliquer par la densité volumique de puissance bien plus importante dans le cas à pression atmosphérique, comme détaillé dans la partie 3.2.3.

La figure 122 montre que les profils radiaux pour deux positions longitudinales obtenus à pression atmosphérique sont comparables à ceux obtenus à basse pression dans la partie 5.3.1 : la température décroît avec la position longitudinale, de façon plus marquée qu'à basse pression : un différence allant jusqu'à 200 K pour le cas à pression atmosphérique contre 100 K à basse pression entre les positions à 2 et 4 cm en aval de l'applicateur. Cela peut s'expliquer par la faible longueur de la colonne de plasma, le point à 4 cm est très proche de l'extrémité du plasma, une zone où la température du plasma décroît plus rapidement selon la direction longitudinale, comme déjà observé sur les figures 117 et 118.

De la même façon, on présente sur la figure 123 la comparaison entre les cas à basse pression et à pression atmosphérique de la densité électronique mesurée pour deux cas de puissance micro-onde consigne, et sur la figure 124 la distribution radiale de la densité électronique pour deux positions longitudinales, pour une valeur de puissance consigne fixe.

La comparaison entre les cas à basse pression et à pression atmosphérique expose une tendance qui dépend de la position radiale : aux positions centrales et intermédiaires la densité électronique mesurée est plus importante à basse pression qu'à pression atmosphérique, à l'inverse de l'extrémité du capillaire. En revanche, dans le cas à pression atmosphérique, l'écart en température radial est plus faible et la variation de la densité électronique avec la puissance micro-onde consigne est bien plus modérée (augmentation systématique de 20 % dans le cas à basse pression contre une variation maximale de 5 à 10 % pour le cas à pression atmosphérique, la puissance consigne la plus importante ne donnant pas toujours la densité électronique la plus élevée), ce qui conduit à un plasma plus homogène, à la fois sur la direction radiale,

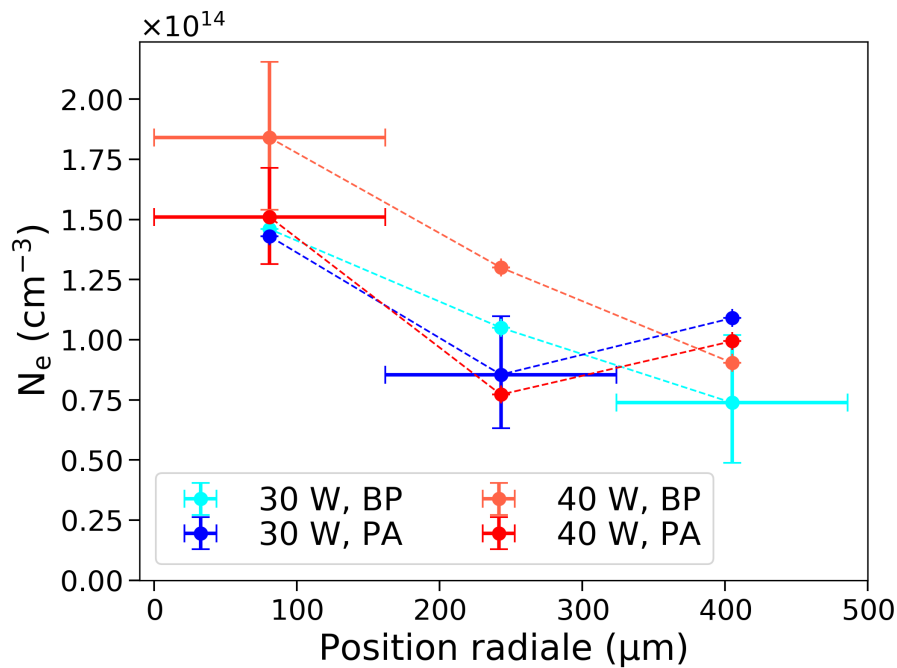


FIGURE 123 – Densité électronique obtenue par élargissement Stark de  $H_\beta$ , en fonction de la position radiale, de la puissance MO consigne, pour deux configurations de pressions, basse (BP) et atmosphérique (PA).

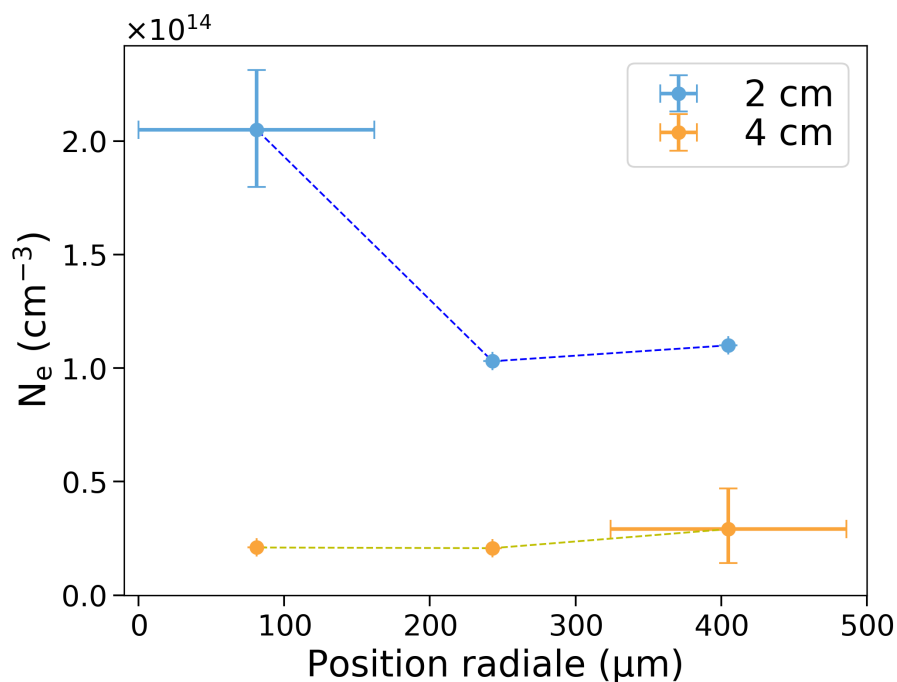


FIGURE 124 – Densité électronique obtenue par élargissement Stark de  $H_\beta$ , en fonction de la position radiale, pour deux positions longitudinales.

et en fonction de la puissance consigne. Il est à noter que, comme pour les mesures de température, ces cas à pression atmosphérique correspondent à des densités volumiques de puissance plus importantes. En revanche, ce paramètre semble ici décorrélié des effets observés sur la densité électronique.



Le profil radial pour deux positions longitudinales (figure 124) présente un aspect très différent de ce qui a été mesuré à basse pression (figures 119 et 120) : la densité électronique décroît bien plus fortement avec la position (jusqu'à un ordre de grandeur ici contre une variation de 20 à 30 % à basse pression entre les mêmes positions longitudinales) et un profil radial beaucoup plus homogène pour la position longitudinale à 4 cm (une variation d'un facteur 2 à basse pression contre 30 % au plus ici). Ces effets peuvent s'expliquer par la position longitudinale à 4 cm, qui est très proche du point d'extinction du plasma, correspondant donc à une zone de densité électronique bien plus faible.

De façon systématique, on constate sur ces résultats des densités électroniques plus faibles pour les positions intermédiaires que pour les positions au bord du capillaire, un résultat qui semble contre intuitif, étant donné les réactions de recombinaison et la présence d'une gaine au bord. Ce constat doit cependant être modéré, étant donné que l'amplitude de variation de densité électronique entre ces positions est de l'ordre de grandeur de l'incertitude sur ces valeurs.

### 5.3.3 Gaz réactif à basse pression

Ici, en plus de l'argon injecté dans le capillaire, on ajoute une faible fraction d'air dans le mélange (jusqu'à 2 %). Le gaz est ici à basse pression, car en milieu réactif la colonne de plasma est considérablement réduite, ainsi un passage à pression atmosphérique donnerait un plasma trop court pour en mesurer l'émission, voire à une absence de plasma (cf. partie 3.2.2). L'ajout de ce gaz moléculaire permet d'avoir une émission du second système positif de  $N_2$  suffisamment significative par rapport à celle de l'argon pour pouvoir réaliser des mesures de températures rotationnelles par  $N_2(C)$ . Deux campagnes de mesures différentes ont été réalisées afin d'étudier l'impact de l'injection de gaz réactif dans le plasma, chacune avec un jeu de paramètres fixes comme suit :

1°) Applicateur strip-line, débit total de gaz de 500 ml/min (mélange argon/air à 0,2 ou 0,4 % ; basse pression), 50 W de puissance micro-onde consigne à 2,45 GHz, point de collecte 5 cm en aval de l'applicateur, sans convection externe forcée. Les spectres de OH sont intégrés pendant 3 s, ceux de  $N_2(C)$  pendant 1 s et ceux de  $H_\beta$  pendant 5 s.

2°) Applicateur surfatron ajustable, débit total de gaz de 500 ml/min (mélange argon/air de 0,5 à 2,0 % ; basse pression), 40 W de puissance micro-onde consigne à 2,427 GHz, point de collecte 2 cm en aval de l'applicateur, sans convection externe forcée. Les spectres de OH sont intégrés pendant 3 s, ceux de  $N_2(C)$  pendant 0,1 à 0,5 s et ceux de  $H_\beta$  pendant 5 s.

Les figures 125 et 126 représentent les résultats de températures rotationnelles obtenues par  $N_2(C)$  et OH respectivement pour le cas avec le strip-line, soit les conditions 1°).

On constate en premier lieu, pour le cas de OH où la comparaison avec le cas en gaz non-réactif est possible, que la température mesurée croît significativement dès lors qu'une fraction d'air est introduite dans le mélange. Cet effet est en accord avec les résultats de la partie 3.2.2, montrant une densité de puissance plus importante avec l'ajout de gaz réactif.

La comparaison entre ces deux méthodes de mesures de température monte une valeur systématiquement plus élevée par  $N_2(C)$  que par OH, avec un écart allant de 150 à 350 K (globalement supérieur aux barres d'erreur des deux méthodes). Cependant, les tendances sont très comparables pour les deux méthodes qui peuvent donc servir autant l'une que l'autre pour tirer des interprétations ci-après. La présence de gaz

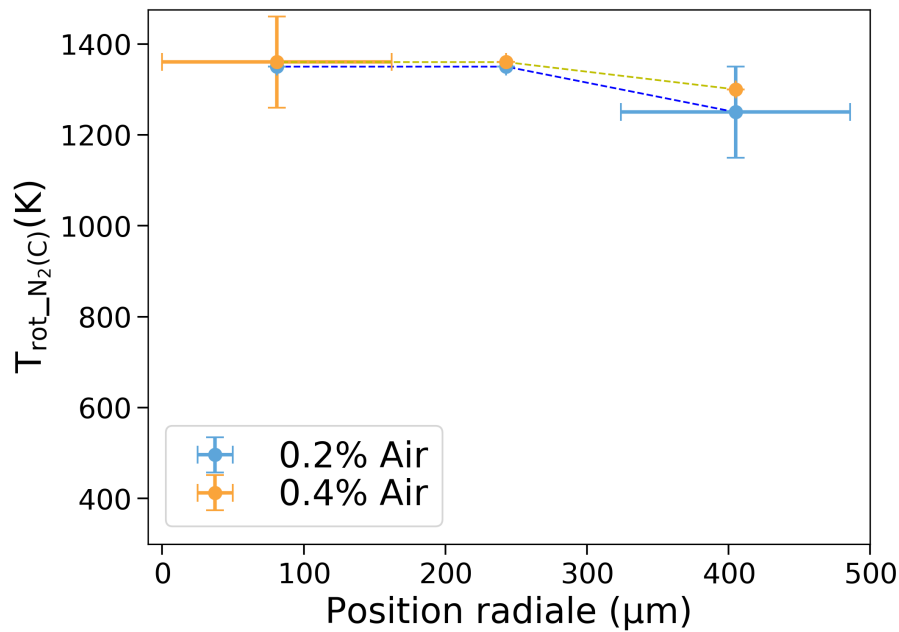


FIGURE 125 – Température rotationnelle de N<sub>2</sub>(C) obtenue par fits Specair, en fonction de la position radiale, pour deux fractions d'air injectées, pour le strip-line.

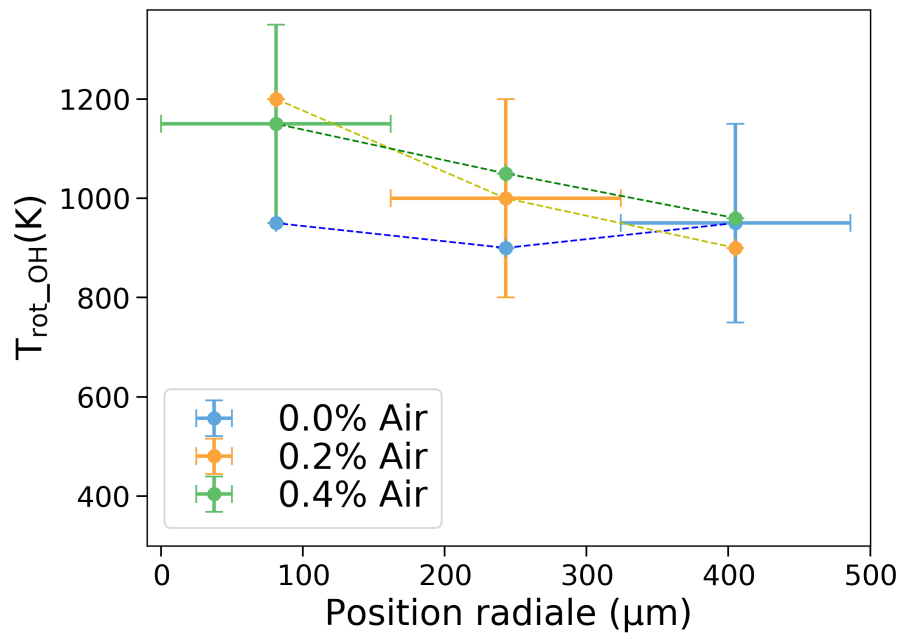


FIGURE 126 – Température rotationnelle de OH obtenue par fits Specair, en fonction de la position radiale et de la fraction d'air injectée, pour le strip-line.

réactif conduit à une température rotationnelle globalement plus élevée qu'en gaz rare. En particulier, au centre de la décharge, cette élévation atteint jusqu'à 250 K, là où au bord elle est limitée à 50 K : l'inhomogénéité de température radiale du plasma est donc plus forte en milieu réactif. L'évolution de la température en fonction de la quantité d'air introduite est en revanche quasi-inexistante entre les deux cas à 0,2 % et 0,4 % d'air, donnant une différence d'au plus 50 K pour les deux méthodes, ce qui est inférieur aux barres d'erreur.

Pour le cas avec l'applicateur surfatron, correspondant aux conditions 2°), les résultats de températures rotationnelles par  $N_2(C)$  et OH sont représentés respectivement sur les figures 127 et 128. Ici, les conditions expérimentales permettent d'étudier l'impact d'un ajout d'air plus conséquent dans le milieu gazeux car les plasmas encore plus courts à forte fraction d'air sont accessibles optiquement avec l'applicateur surfatron.

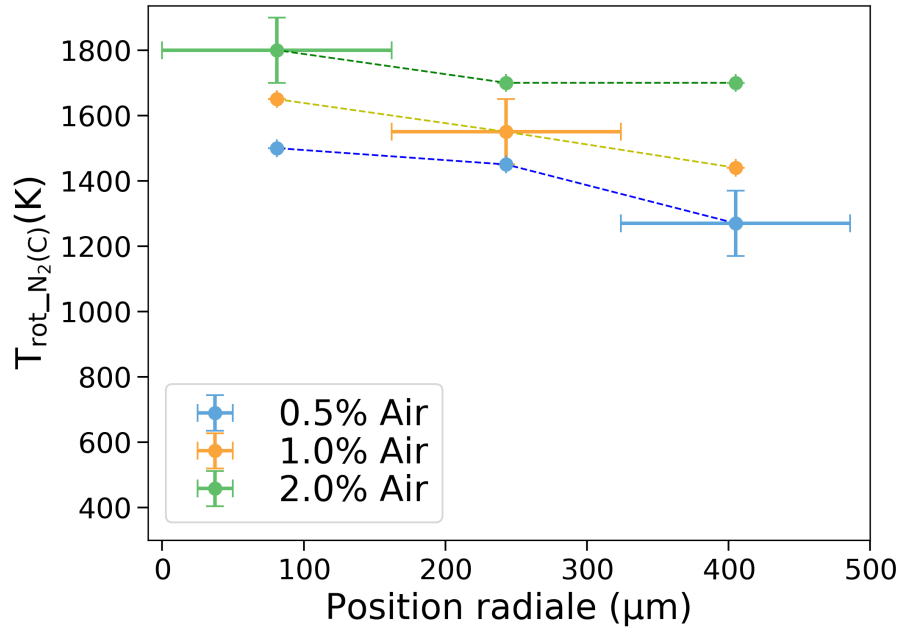


FIGURE 127 – Température rotationnelle de  $N_2(C)$  obtenue par fits Specair, en fonction de la position radiale et de la fraction d'air injectée, pour le surfatron ajustable.

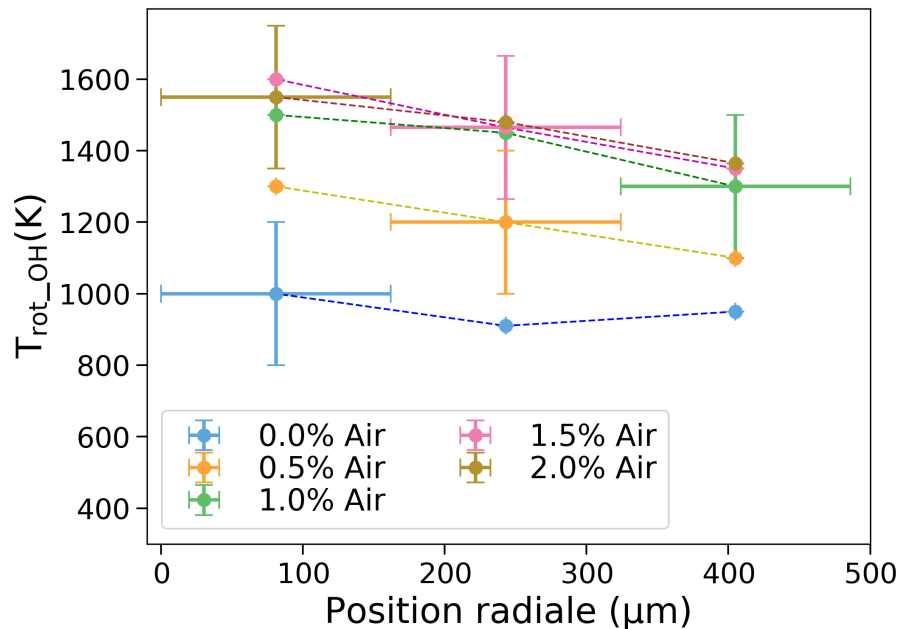


FIGURE 128 – Température rotationnelle de OH obtenue par fits Specair, en fonction de la position radiale et de la fraction d'air injectée, pour le surfatron ajustable.

De la même façon qu'avec le strip-line, on constate que les deux mesures de température ne donnent pas les mêmes résultats absolus, la méthode par  $N_2(C)$  donnant systématiquement une température rotationnelle supérieure de 100 à 350 K à celle obtenue par OH, mais les tendances sont globalement semblables. Ici également, le plasma présente une température plus élevée en milieu réactif, particulièrement au centre de la décharge, où la différence avec le cas en argon pur va jusqu'à 600 K. Les deux méthodes ne concordent néanmoins pas en ce qui concerne l'évolution de la température avec la fraction d'air introduite. En effet, avec  $N_2(C)$  on constate une augmentation graduelle de la température, tandis que par OH l'évolution est brusque pour les premières valeurs d'air présent, puis la température semble tendre vers une valeur limite pour une fraction d'air plus importante, son augmentation ne conduisant qu'à une très faible variation de la température.

Ces écarts systématiques entre les températures rotationnelles mesurées par OH et par  $N_2(C)$  peuvent s'expliquer par un manque de mise à l'équilibre entre les rotations et la translation en raison d'un nombre de collisions trop faible pour atteindre cet équilibre. En particulier ici, pour le cas d'un plasma majoritairement composé d'argon à basse pression, l'équilibre translation-rotation n'est pas pleinement satisfait pour  $N_2(C)$ , limitant la détermination de la température du gaz par sa température rotationnelle, qui est donc supérieure à ce qui est attendu. En particulier pour  $N_2(C)$ , dans de tels plasmas d'argon il est principalement peuplé depuis l'état fondamental  $N_2(X)$  par deux mécanismes : collision électronique, ou excitation par collision avec des états métastables d'argon (dont la densité créée en configuration de plasma jet sera détaillée ultérieurement). Ce second mécanisme n'est pas négligeable dans nos conditions expérimentales, et peut conduire à peupler l'état  $N_2(C)$  avec une distribution de population qui n'est pas à l'équilibre avec celle de  $N_2(X)$  d'où une surestimation de la température du gaz [131]. Cet écart de température entre les deux méthodes sera d'autant plus important que la fraction d'air introduite dans le mélange est faible, car dans ces conditions, la densité d'argon métastable présente est plus faible, comme on le verra ultérieurement. Cela explique la différence d'évolution de température avec la fraction d'air par les deux méthodes, la mesure par  $N_2(C)$  nous donnant une valeur d'autant plus fiable que la fraction d'air est importante.

De la même façon, la détermination de la température du gaz par la température rotationnelle de OH(A) peut-être une approximation légèrement surestimée : les états avec des faibles niveaux rotationnels ont un temps de relaxation très court, et peuvent donc être considérés à l'équilibre avec  $T_{gaz}$ , à l'inverse des états de haut niveau rotationnel. La distribution Boltzmannienne de OH(A) devrait donc s'approcher par deux températures, la seconde correspondant à ces états rotationnels plus élevés [131].

Dans les cas présentés, la densité d'argon métastable n'est pas mesurée (cette mesure n'est possible qu'en configuration de plasma jet, le capillaire déviant le faisceau laser d'absorption). Il n'est donc pas possible de déterminer l'écart par rapport à l'équilibre. Cependant, l'écart étant globalement constant entre les deux mesures on pourra estimer que nos mesures permettent un encadrement correct de la température du gaz à environ  $\pm 200$  K.

Les résultats de densité électronique obtenus pour les conditions 1°) et 2°) sont tracés respectivement sur les figures 129 et 130. La tendance systématique observée ici est une diminution globale de la densité électronique avec la fraction d'air ajoutée au mélange gazeux. Cette diminution est plus marquée au centre qu'aux bords du capillaire : dans le premier cas on mesure une décroissance de la densité électronique de 60 % au centre contre 40 % au bord et pour le second cas, une diminution de 40 % au centre et une variation non significative au bord. Dans les deux cas, l'ajout de gaz réactif conduit à une homogénéisation du profil radial de la densité électronique. On constate néanmoins une différence entre les deux cas : dans

le premier les effets sont plus marqués malgré une fraction d'air plus faible, ce qui est dû au point de collecte, plus proche de l'extrémité de la colonne de plasma dans ce cas, comme en témoigne la densité électronique plus faible mesurée dans ces conditions expérimentales. La diminution de la densité électronique avec l'ajout de gaz réactif s'explique par l'apparition de nouveaux canaux de dissipation de l'énergie micro-onde incidente (en vibration, rotation, excitation et dissociation de  $N_2$  et  $O_2$  notamment) et donc des réactions d'ionisation de l'argon neutre par collisions électroniques moins prépondérantes.

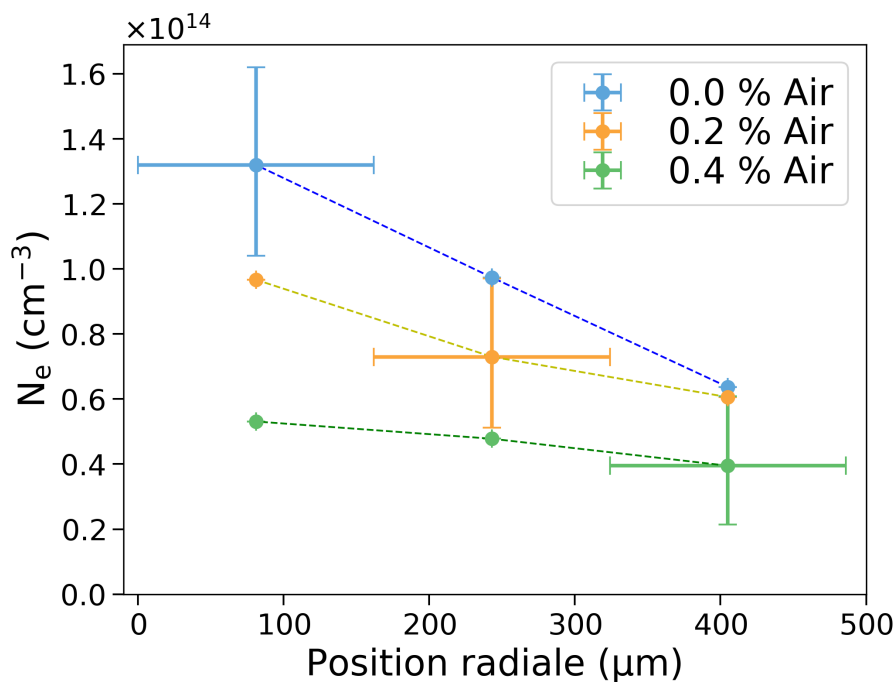


FIGURE 129 – Densité électronique obtenue par élargissement Stark de  $H_\beta$ , en fonction de la position radiale et de la fraction d'air injectée, pour le strip-line.

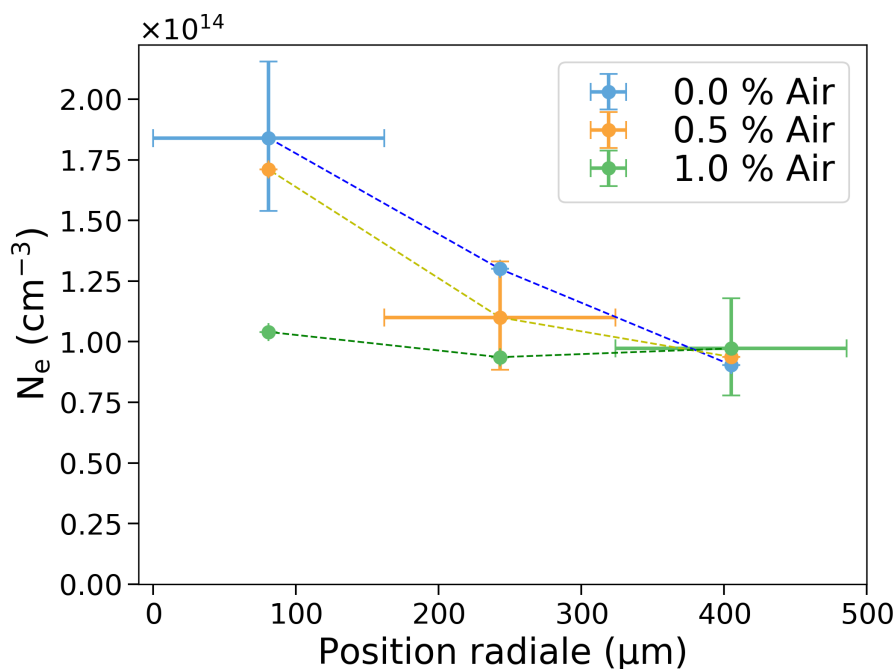


FIGURE 130 – Densité électronique obtenue par élargissement Stark de  $H_\beta$ , en fonction de la position radiale et de la fraction d'air injectée, pour le surfatron.

### 5.3.4 Plasma jet

Enfin ici, le plasma est en configuration de "jet", décrite dans la partie 2.1. Le capillaire est parcouru par de l'argon pur à pression atmosphérique, alors que son extrémité est ouverte vers l'air environnant, à proximité du point de collecte de l'émission du plasma, qui sera donc un "jet" de plasma à pression atmosphérique qui n'est plus confiné dans le capillaire. On se place dans les conditions expérimentales fixes suivantes : applicateur surfatron ajustable, fréquence micro-onde de 2,427 GHz, débit de gaz de 500 ml/min (à pression atmosphérique), sans convection externe forcée, point de collecte à 2 cm en aval de l'applicateur, et extrémité du capillaire située à 1,8 cm en aval de l'applicateur, laissant donc une distance de 2 mm entre l'extrémité du capillaire et le point de collecte de l'émission du plasma. Bien que le gaz injecté dans le capillaire soit uniquement de l'argon, son mélange avec l'air ambiant à la sortie du capillaire donne une émission du second système positif de  $N_2$  suffisante pour pouvoir mesurer la température rotationnelle par  $N_2(C)$ . On fait ici varier la puissance micro-onde consigne, à 30, 40 et 50 W. Les spectres de OH sont intégrés pendant 1 à 3 s, ceux de  $N_2(C)$  pendant 3 à 10 s et ceux de  $H_\beta$  pendant 10 s.

Dans un premier temps, on expose les résultats de température rotationnelle obtenus par  $N_2(C)$  et OH sur les figures 131 et 132.

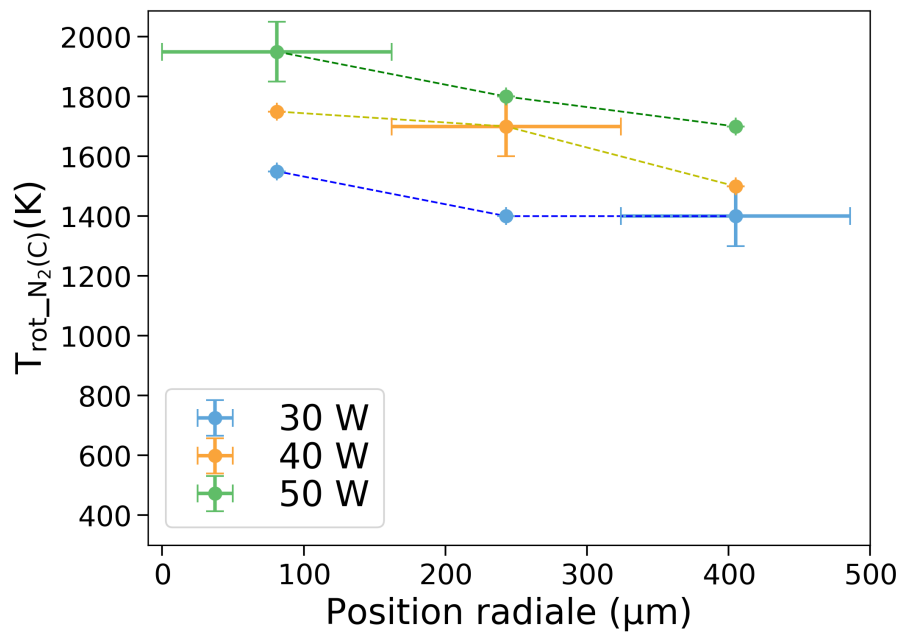


FIGURE 131 – Température rotationnelle de  $N_2(C)$  obtenue par fits Specair, en fonction de la position radiale et de la puissance micro-onde consigne.

Les différences constatées entre les deux méthodes sont les mêmes que celles décrites dans la partie 5.3.3 : la température rotationnelle obtenue par  $N_2(C)$  est toujours systématiquement supérieure à celle obtenue par OH, avec un écart de 50 à 250 K, mais les tendances observables sont les mêmes pour les deux méthodes. Les tendances observées en fonction de la position radiale et de la puissance micro-onde injectée sont globalement les mêmes que pour la variation de puissance de la partie 5.3.1. Plus précisément, la température rotationnelle croît avec la puissance et en s'approchant du centre de la décharge, avec un écart radial maximal plus important ici (de 100 à 250 K contre un maximum de 100 K à basse pression) même si relativement, l'écart entre le centre et le bord du capillaire est toujours de l'ordre de 10-15 %. A noter qu'ici, la colonne de plasma n'évolue que très peu avec la puissance micro-onde consigne, mais que

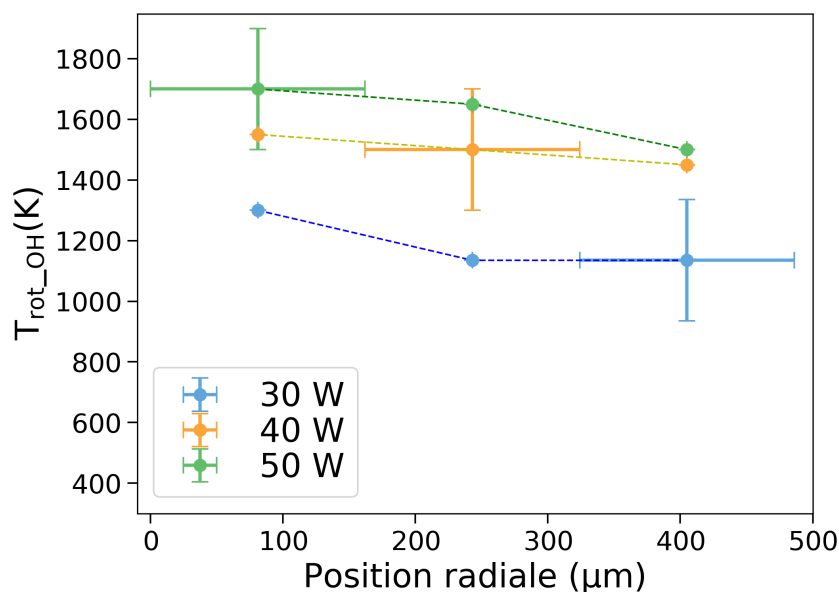


FIGURE 132 – Température rotationnelle de OH obtenue par fits Specair, en fonction de la position radiale et de la puissance micro-onde consigne.

la puissance couplée augmente (cf. partie 3.2.3), cette puissance supplémentaire injectée contribue donc à ce chauffage plus important du gaz.

Les différents résultats obtenus pour toute cette campagne de mesure par OES nous permettent d'établir des comparaisons entre différents cas de pression, basse pression (BP), pression atmosphérique (PA) et plasma "jet" pour d'autres conditions expérimentales fixées (surfatron ajustable à 2,427 GHz, débit d'argon pur à 500 ml/min, point de collecte à 2 cm en aval de l'applicateur, sans couplage thermique externe). On représente sur la figure 133 les températures rotationnelles obtenues par OH pour ces conditions, et pour une puissance consigne de 30 W, tandis que sur la figure 134 on présente la même comparaison pour une puissance de 40 W.

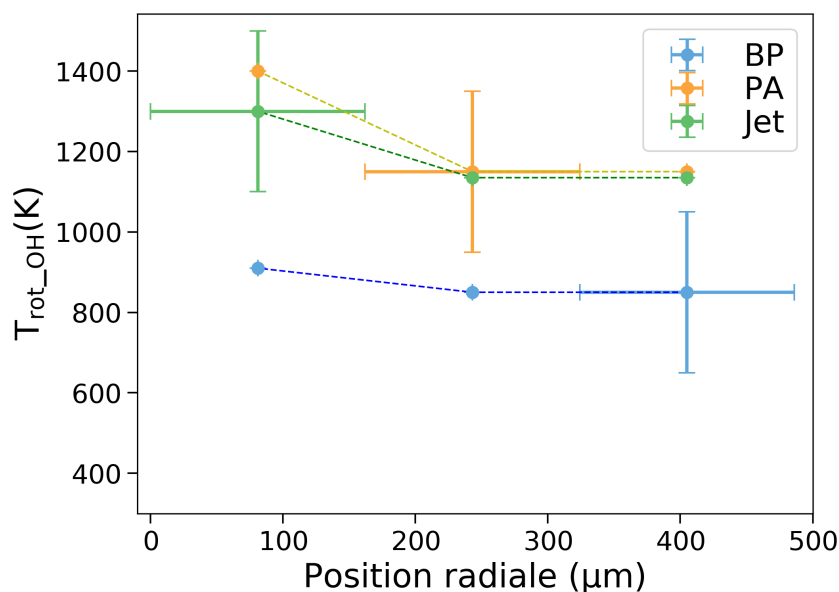


FIGURE 133 – Température rotationnelle de OH obtenue par fits Specair, en fonction de la position radiale, pour 30 W de puissance consigne et deux configurations de pression, basse (BP) et atmosphérique (PA).

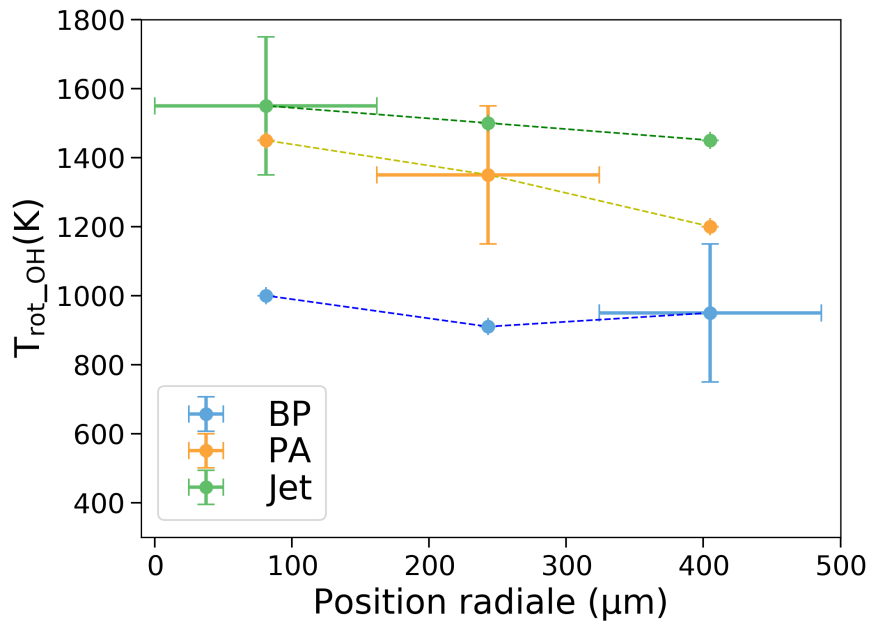


FIGURE 134 – Température rotationnelle de OH obtenue par fits Specair, en fonction de la position radiale, pour 40 W de puissance consigne et deux configurations de pression, basse (BP) et atmosphérique (PA).

Les températures obtenues à basse pression sont bien plus faibles que pour les deux autres cas, qui donnent des résultats assez comparables. L'écart entre les cas PA et jet, bien que plus faible, montre des températures légèrement plus élevées dans le cas jet. Ces effets s'expliquent par la densité de puissance, progressivement croissante en passant du cas basse pression, au cas pression atmosphérique, et au cas jet.

Les résultats pour la densité électronique mesurés dans le jet pour une variation de puissance sont exposés figure 135.

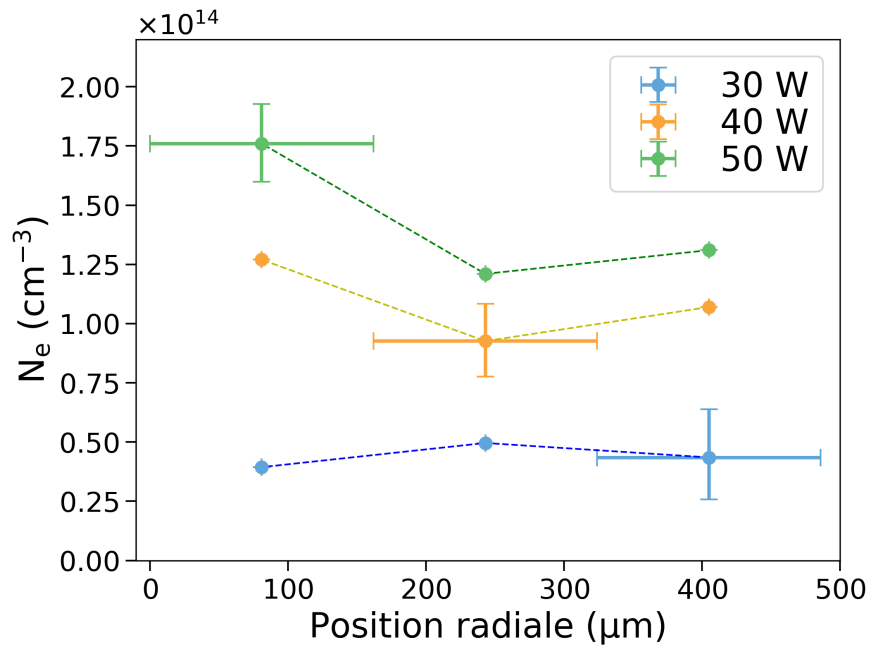


FIGURE 135 – Densité électronique obtenue par élargissement Stark de  $H_\beta$ , en fonction de la position radiale et de la puissance micro-onde consigne en configuration de plasma jet.



Contrairement aux cas à basse pression, où pour toute valeur de puissance la densité électronique était monotonement croissante en s'approchant du centre de la décharge, ici les résultats présentent des extrema locaux au niveau de la position spatiale intermédiaire, de la même façon que pour les cas à pression atmosphérique. La configuration particulière de ce plasma jet, sans paroi où les électrons peuvent se recombiner et avec une diffusion peu collisionnelle plus importante, peut laisser supposer une décroissance de la densité électronique radiale plus faible, ce qui est effectivement constaté (50 % d'écart entre le centre et le bord dans presque tous les cas, 10 à 25 % ici). L'existence de cet extremum local n'est cependant pas triviale ; il est totalement absent à basse pression, mais se constate également à pression atmosphérique, mais comme discuté précédemment, son amplitude est comparable aux incertitudes. Les valeurs mesurées au bord de la décharge sont de plus à prendre avec prudence, l'émission du plasma étant très faible et le temps d'intégration très important (10 secondes) ce qui conduit à un rapport signal/bruit relativement important, et donc une possible surestimation de la densité électronique à cette position. Le cas à 30 W montre des densités électroniques presque constantes sur le rayon de la décharge, et du même ordre de grandeur que celles mesurées à pression atmosphérique avec plasma confiné, pour une position longitudinale proche de l'extinction du plasma (cf. figure 124, indiquant qu'à cette puissance on se situe dans un régime proche de l'extinction).

De la même façon que pour la température rotationnelle, on compare les mesures de densités électroniques pour des conditions expérimentales comparables dans les cas de basse pression, pression atmosphérique confinée, et plasma jet, qui sont représentées figure 136 pour les cas à 30 W de puissance consigne et 137 pour les cas à 40 W.

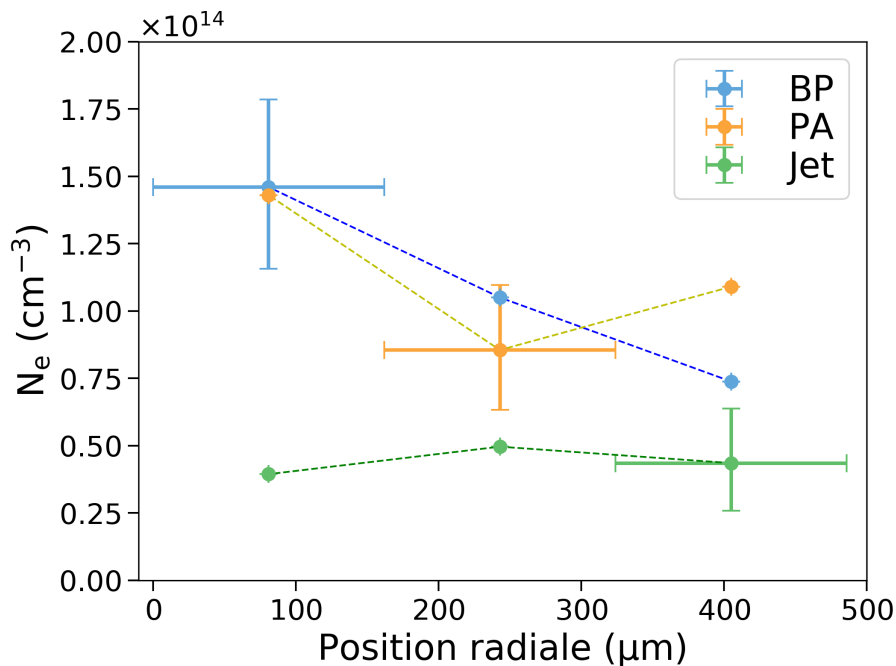


FIGURE 136 – Densité électronique obtenue par élargissement Stark de  $H_{\beta}$ , en fonction de la position radiale et de la configuration de pression, pour 30 W de puissance consigne.

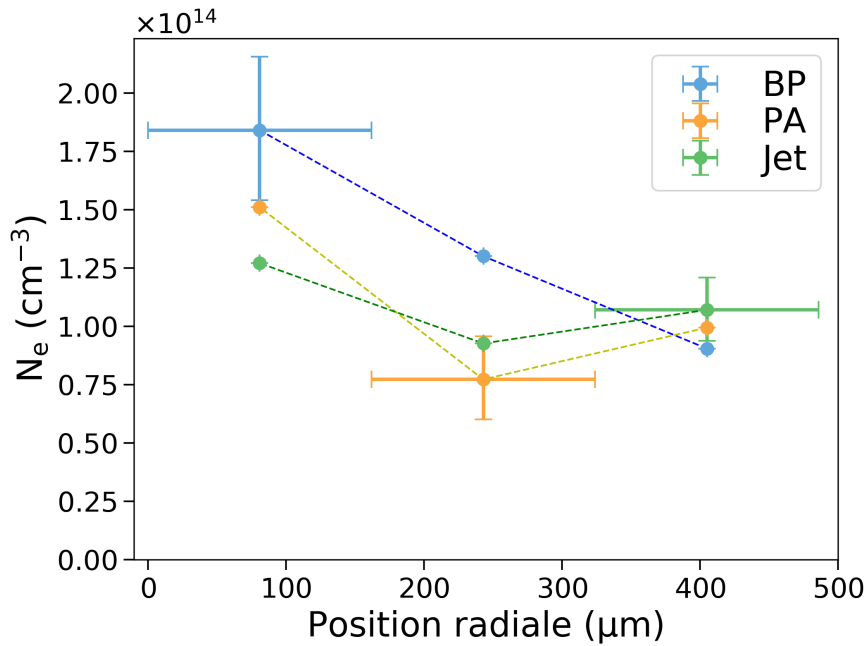


FIGURE 137 – Densité électronique obtenue par élargissement Stark de  $H_\beta$ , en fonction de la position radiale et de la configuration de pression, pour 40 W de puissance consigne.

On constate qu'ici, la tendance montre plutôt une densité électronique plus élevée pour le cas BP, en particulier aux positions intermédiaires et centrales. Les cas PA et jet sont relativement proches, comme attendu, à l'exception du cas à 30 W où le plasma est proche de l'extinction ; les résultats obtenus pour le mélange gazeux réactif montrent une baisse assez nette de la densité électronique pour de faibles fractions d'air, baisse que l'on ne constate pas entre les cas PA et jet à 40 W, laissant supposer que dans le jet, le mélange gazeux ne contient qu'une très faible quantité d'air.

### 5.3.5 Mesures d'argon métastable par TD:LAS

Le dispositif TD:LAS décrit dans la partie 2.4 nous permet d'obtenir, dans des configurations de plasma jet comparables à celles de la partie précédente, des valeurs de densité d'argon métastable (état  $3s^2 3p^5(^2P_{3/2}^o)4s$  à 11,55 eV, avec une absorption à  $\lambda_{ij} = 801,698 \text{ nm}$  vers l'état  $3s^2 3p^5(^2P_{3/2}^o)4p$  à 13,09 eV). Les campagnes de mesures concernées, pouvant être mises en parallèle avec les précédentes, concernent des études paramétriques de variation de puissance, de débit, de la position de l'applicateur, de la fraction d'air introduite dans le mélange, ainsi que des résolutions longitudinale et axiale, la dernière permettant d'obtenir des densités absolues d'argon métastable par transformée d'Abel. Pour toutes ces mesures, et sauf mention explicite du contraire, différents paramètres sont fixés : l'applicateur utilisé est le strip-line, la fréquence micro-onde 2,45 GHz et sa puissance consigne 40 W, le débit de gaz 1000 ml/min (à pression atmosphérique), la distance entre la sortie de l'applicateur et l'extrémité du capillaire est de 7 mm, et le faisceau laser traverse le jet  $50 \mu\text{m}$  en dessous de l'extrémité du capillaire.

Afin d'obtenir ultérieurement des valeurs absolues de densités d'argon métastable, on réalise premièrement des mesures avec résolution radiale, puis les résultats sont traités par transformée d'Abel (cf. partie 5.2). Le résultat obtenu à partir du profil axial (cf. figure 112) représenté figure 138, montre un maximum de métastables au centre de la décharge, d'une valeur de  $5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ , une largeur à mi-hauteur d'environ 0,4 mm, ainsi qu'une densité moyenne de métastable intégrée sur tout le rayon de  $2,12 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ .

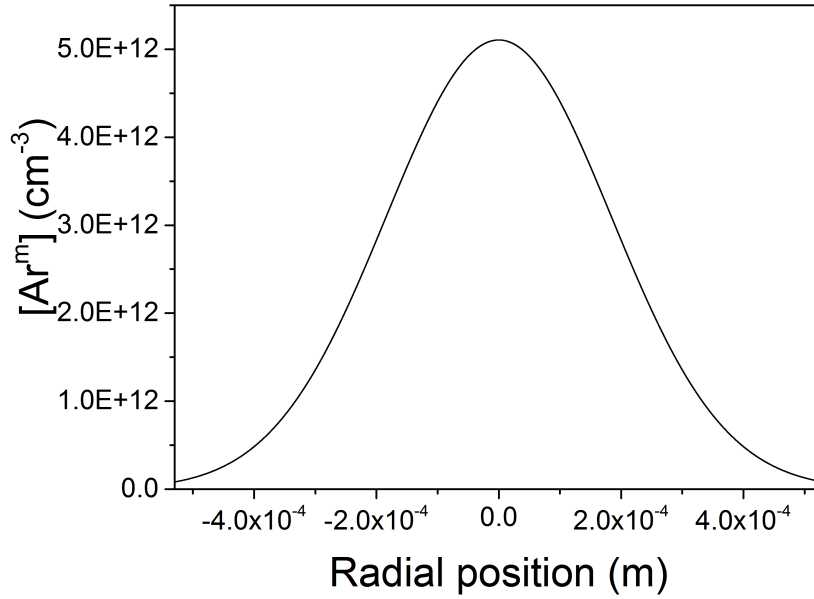


FIGURE 138 – Densité d’argon métastable absolue obtenue par TD:LAS, en fonction de la position radiale.

Les valeurs absolues de densité d’argon métastable mesurées sont 1 à 2 ordres de grandeur inférieures à la densité électronique dans des conditions similaires. Cela indique que les états métastables sont détruits par de nombreux phénomènes. Les réactions de pooling,  $Ar^* + Ar^* \rightarrow Ar(X) + Ar^+ + e^-$  (où  $Ar(X)$  et  $Ar^*$  désignent respectivement l’état fondamental et métastable de l’argon), dépeuplent deux métastables et créent un électron, renforçant cet écart entre les deux espèces. Le taux de cette réaction est donné à  $6,4 \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  [132]. Avec la densité de métastables moyenne intégrée sur le diamètre du jet déterminée précédemment, on obtient un temps caractéristique de réaction de  $7,4 \times 10^{-4} \text{ s}$ . Les états métastables peuvent également être quenchés par de l’argon dans son état fondamental,  $Ar^* + Ar(X) \rightarrow 2 Ar(X)$ , avec un taux de réaction de  $2,3 \times 10^{-15} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  [133]. En considérant que le gaz de décharge est composé majoritairement d’argon à l’état fondamental à une température égale à la température rotationnelle de OH intégrée sur tout le diamètre de la décharge, mesurée dans ces mêmes conditions (1550 K), on obtient un temps caractéristique de  $9,1 \times 10^{-5} \text{ s}$ , bien plus rapide que les réactions de pooling. Peuvent également être mises en jeu des réactions à trois corps  $Ar^* + 2 Ar(X) \rightarrow 3 Ar(X)$ , avec un taux de réaction de  $1,4 \times 10^{-32} \text{ cm}^6 \cdot \text{s}^{-1}$  [134] donnant un temps caractéristique de  $3,2 \times 10^{-4} \text{ s}$ . Cette réaction est moins probable que celles de quenching avec  $Ar(X)$ , qui sont donc le principal canal de dépeuplement des métastables d’argon par des particules neutres en gaz non-réactif.

Également peuvent être mises en jeu des réactions dépeuplant les métastables par des collisions électroniques. Les métastables peuvent en effet échanger de l’énergie avec les électrons pour passer dans des états d’énergies proches et supérieures  $Ar^* + e^- \rightarrow Ar^{**} + e^-$  (où  $Ar^{**}$  désigne les états d’argon d’énergies proches et supérieures), retourner dans l’état fondamental  $Ar^* + e^- \rightarrow Ar(X) + e^-$ , ou encore s’ioniser  $Ar^* + e^- \rightarrow Ar^+ + 2 e^-$ . Le taux caractéristique de ces réactions dépend de la température électronique; n’étant pas mesurée ici, elle sera estimée à 1 eV. Le taux de réaction total des premières réactions (passage dans des états d’énergie supérieure et retour à état fondamental) est de l’ordre de  $10^{-7} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  [135]. Ces réactions donnent un temps caractéristique de  $1 \times 10^{-7} \text{ s}$ , soit un dépeuplement beaucoup plus rapide que pour les collisions entre métastables ou avec les neutres. Cependant, les produits de ces réactions sont majoritairement d’autres états métastables qui peuvent repeupler l’état  $1s_5$ , les réactions inverses ayant des taux caractéristiques très proches voire supérieures (taux de  $5 \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  pour passer de l’état  $1s_5$  à  $1s_3$  contre  $3 \times 10^{-8} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  pour la réaction inverse).

La valeur de largeur à mi-hauteur de 0,4 mm de la figure 138 nous donne le rayon de la décharge (légèrement inférieur au rayon interne du capillaire) qui sera utilisé pour obtenir les densités absolues à partir des mesures ultérieures. Ce paramètre est en effet nécessaire, mais n'étant pas directement mesuré pour les campagnes présentées plus bas, car toutes les mesures ont été réalisées pour une même position axiale (passant par le centre de la décharge). On prendra cette valeur à  $\pm 10\%$  près, le rayon pouvant varier avec les paramètres de la décharge.

Dans un second temps, on étudie la variation de la puissance micro-onde consigne (entre 25 et 55 W), les autres paramètres de la décharge étant fixés, comme défini plus haut. Les résultats de densité absolues d'argon métastable obtenus sont tracés figure 139. Ces résultats présentent une évolution quasi-linéaire de la production de métastables avec la puissance consigne, une tendance comparable avec celle de la densité électronique en configuration de plasma jet (cf. figure 135). Le point à 25 W, hors de la tendance linéaire observée pour les autres valeurs, correspond à un plasma relativement court, s'étendant à peine au-delà de la sortie du capillaire, ce qui peut expliquer cette faible densité mesurée. L'amplitude maximale mesurée entre les cas à 25 et 55 W représente un facteur 3.

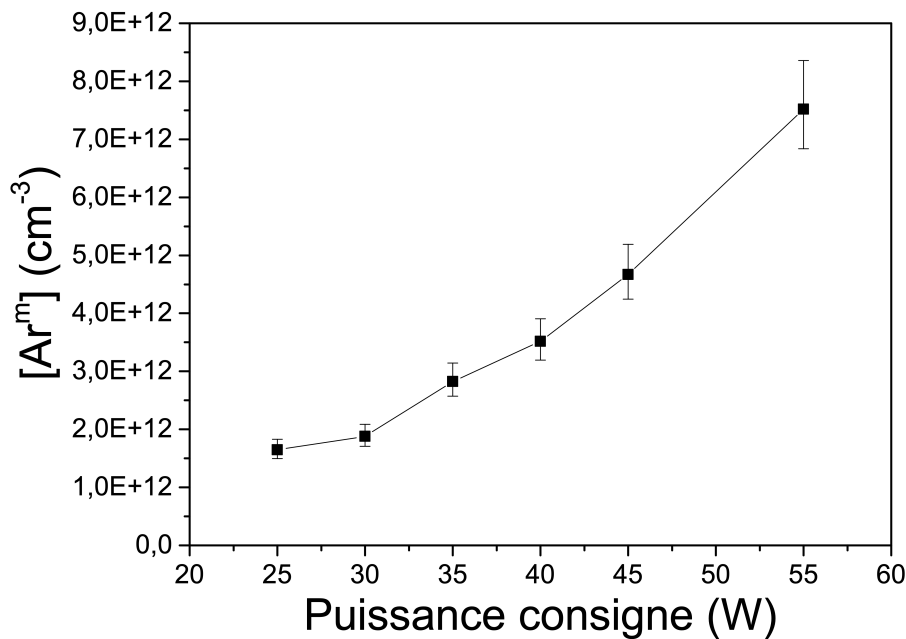


FIGURE 139 – Densité d'argon métastable obtenue par TD:LAS, en fonction de la puissance micro-onde consigne.

Pour la campagne suivante, la puissance micro-onde consigne est fixée à 40 W, et une faible fraction d'air (jusqu'à 0,5 %, limite de détection du signal) est ajoutée au mélange gazeux. Les résultats, représentés figure 140, exposent une décroissance très brusque de la densité de métastables d'argon avec la fraction d'air ajouté : dès 0,1 % d'air, la densité de métastables chute d'un facteur 2, puis progressivement jusqu'à un facteur 20 par rapport au cas en argon pur pour 0,5 % d'air. Cette tendance globale de décroissance très brusque de la densité d'argon métastable avec la fraction d'air est plus marquée que celle observée pour la densité électronique dans la partie 5.3.1, mais les conditions expérimentales sont ici bien différentes (jet à pression atmosphérique contre plasma basse pression confiné pour les résultats précédents).

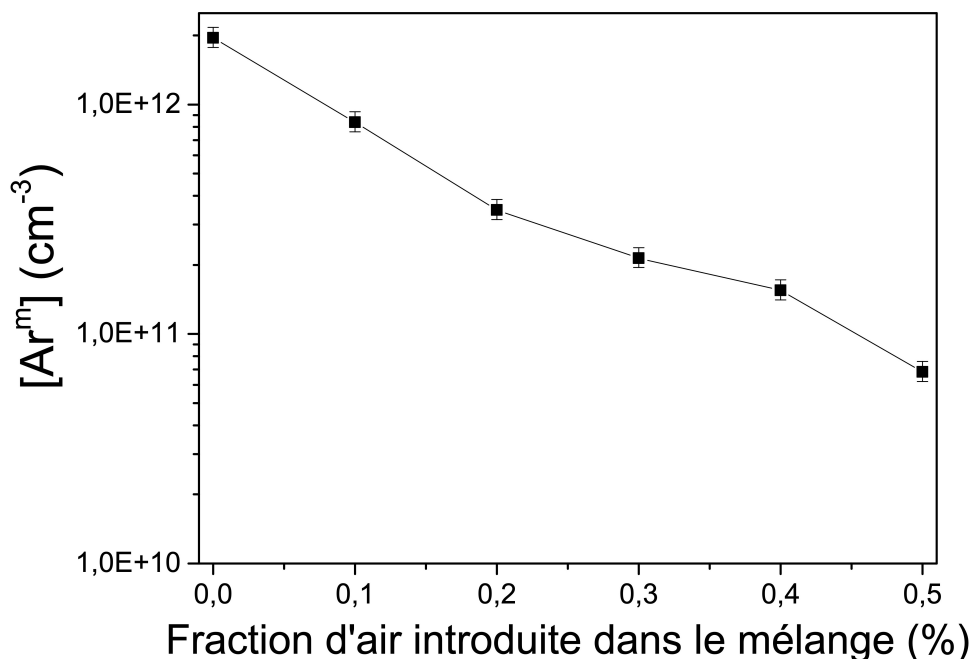


FIGURE 140 – Densité d'argon métastable obtenue par TD:LAS, en fonction de la fraction d'air introduite dans le mélange.

Ce résultat indique une très forte réactivité en volume de l'argon métastable avec le dioxygène et le diazote (excitation et dissociation). Les états métastables peuvent en effet être dépeuplés par des processus de quenching avec les espèces moléculaires présentes dans leur état fondamental. On a en effet pour l'oxygène  $\text{Ar}^* + \text{O}_2(\text{X}) \rightarrow \text{Ar}(\text{X}) + \text{O}({}^3\text{P}) + \text{O}({}^1\text{D})$  ou  $\rightarrow \text{Ar}(\text{X}) + \text{O}({}^3\text{P}) + \text{O}({}^3\text{P})$  avec une somme de ces deux taux de réaction qui vaut  $2,1 \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  [111]. En prenant une fraction d'air injectée dans le mélange gazeux de 0,5% (soit une fraction d' $\text{O}_2$  dans le gaz de 0,1%), et une température estimée à 1800 K, on a un temps caractéristique de  $1,2 \times 10^{-6} \text{ s}$ , soit un dépeuplement plus rapide que par les processus de collisions avec des particules lourdes en milieu non-réactif. À noter que la température rotationnelle n'est pas directement mesurée dans ces conditions ; en gaz non-réactif elle est de 1550 K, et avec une fraction d'air injectée de 0,5% la température rotationnelle croît d'environ 200 K à basse pression, d'où cette estimation de 1800 K.

De la même façon, pour l'azote on a  $\text{Ar}^* + \text{N}_2(\text{X}) \rightarrow \text{Ar}(\text{X}) + 2 \text{N}({}^4\text{S})$  et  $\text{Ar}^* + \text{N}_2(\text{X}) \rightarrow \text{Ar}(\text{X}) + \text{N}_2(\text{C})$ , avec un taux de réaction total de  $6,6 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  [136]. Cela donne finalement un temps caractéristique (avec une fraction de 0,4% de  $\text{N}_2$  dans le gaz) de  $9,3 \times 10^{-7} \text{ s}$ , très proche de celui obtenu pour les réactions avec l'oxygène. Ces temps caractéristiques pour ces réactions de quenching confirment l'importante réactivité (génération de radicaux atomiques :  $\text{O}({}^3\text{P})$ ,  $\text{O}({}^1\text{D})$ ,  $\text{N}({}^4\text{S})$ ) et donc le dépeuplement des états métastables de l'argon en gaz moléculaire et sont en accord avec leur décroissance très rapide avec la fraction d'air introduite.

Partant une fois encore des conditions expérimentales définies plus haut, on fait cette fois varier le débit de gaz (argon pur). Les résultats tracés sur la figure 141 montrent une dépendance très modérée de la densité de métastables produits avec le débit d'argon : pour toutes les valeurs de débit on a des densités de métastables dans la gamme  $1,1-1,7 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ , avec des incertitudes de l'ordre de  $1-2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ . De la même façon qu'avec la densité électronique (partie 5.3.1) la tendance avec le débit n'est pas monotone, les plus hautes valeurs étant atteintes pour des débits intermédiaires, ce qui ne correspond pas aux "jets" plasmas les plus longs obtenus.

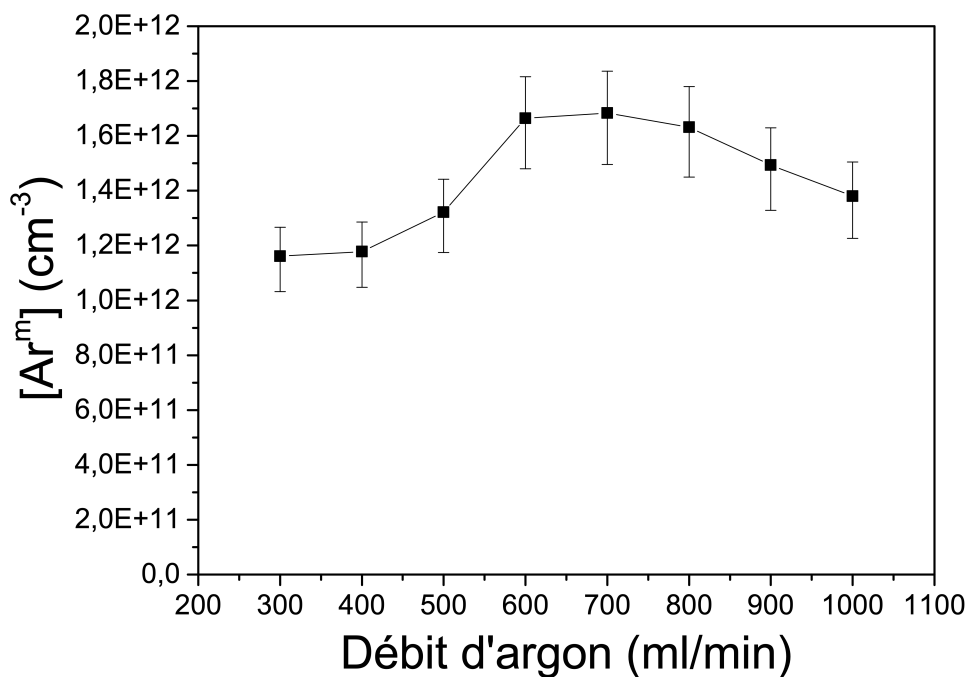


FIGURE 141 – Densité d'argon métastable obtenue par TD:LAS, en fonction du débit d'argon.

Pour enrichir ces résultats, une mesure de la résolution longitudinale du jet est également réalisée. Les résultats sont présentés figure 142; le point à 0 mm correspond à la position de mesure longitudinale habituelle (en réalité 50  $\mu m$  en dessous de la sortie du capillaire) et les points successifs sont obtenus en translatant verticalement l'applicateur et le capillaire vers le haut, les autres paramètres étant fixés.

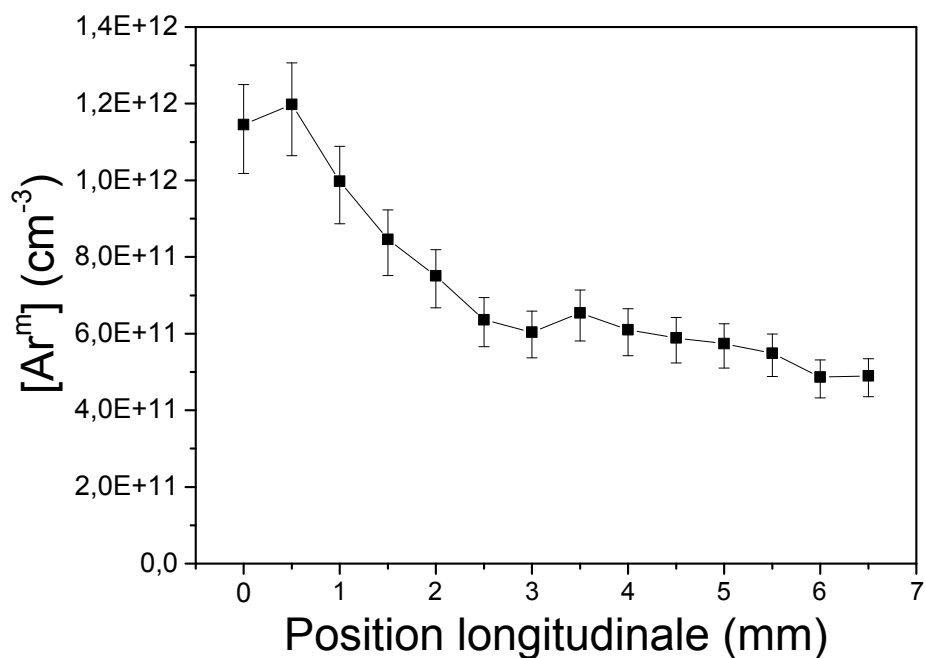


FIGURE 142 – Densité d'argon métastable obtenue par TD:LAS, en fonction de la position longitudinale.

On constate sur ces résultats que sur les distances les plus proches de la sortie du capillaire (en dessous de 1 mm) la densité de métastables mesurée est globalement constante, aux incertitudes près. Pour les positions longitudinales supérieures, une décroissance constante (jusqu'à environ 3 mm) s'amorce; son origine peut être due au mélange argon/air ambiant qui se fait progressivement à ces positions, les résultats de la figure 140 montrant que dans de tels mélanges, les états métastables d'argon sont beaucoup moins présents, car ils réagissent avec les espèces moléculaires. Au-delà, et jusqu'aux dernières positions mesurées (7 mm, au-delà de la partie radiative visible du plasma) on atteint un "plateau" (légèrement décroissant) de densité de métastables autour de  $6,0 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ .

Comme il a été vu dans la partie 3.2.3, dans cette configuration de "plasma jet", la longueur de la colonne de plasma atteint un maximum à partir d'une certaine valeur de puissance couplée, l'onde de surface ne se propageant pas au-delà du capillaire. Le jet ne s'étend que très peu au-delà de la sortie de capillaire, même en augmentant la puissance micro-onde consigne ou en approchant l'applicateur de l'extrémité ouverte du capillaire. Pour étudier l'impact de cette position relative de l'applicateur par rapport au capillaire, on se place dans les conditions standards décrites ci-dessus, en faisant varier la distance qui sera prise entre les extrémités aval de l'applicateur et du capillaire. Les résultats représentés figure 143 montrent un accord avec ce qui s'observe macroscopiquement. Plus précisément : en éloignant progressivement l'applicateur de l'extrémité du capillaire, l'apparence, et en particulier la longueur, du jet ne change pas; cela se traduit par une densité de métastables relativement constante (comprise entre  $2,25 \times 10^{12}$  et  $2,75 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ ) mais légèrement décroissante avec l'écart entre l'applicateur et la sortie du capillaire. A partir d'un certain écart (ici 1,6 cm) le jet s'étend de moins en moins au-delà du capillaire, ce qui se confirme par une décroissance bien plus rapide de la densité de métastables (diminution d'un facteur 2 sur 2 mm), une allure de décroissance proche de ce que l'on peut remarquer sur la figure 142 entre 1 et 3 mm, c'est à dire au delà de quelques millimètres en aval de la sortie du capillaire.

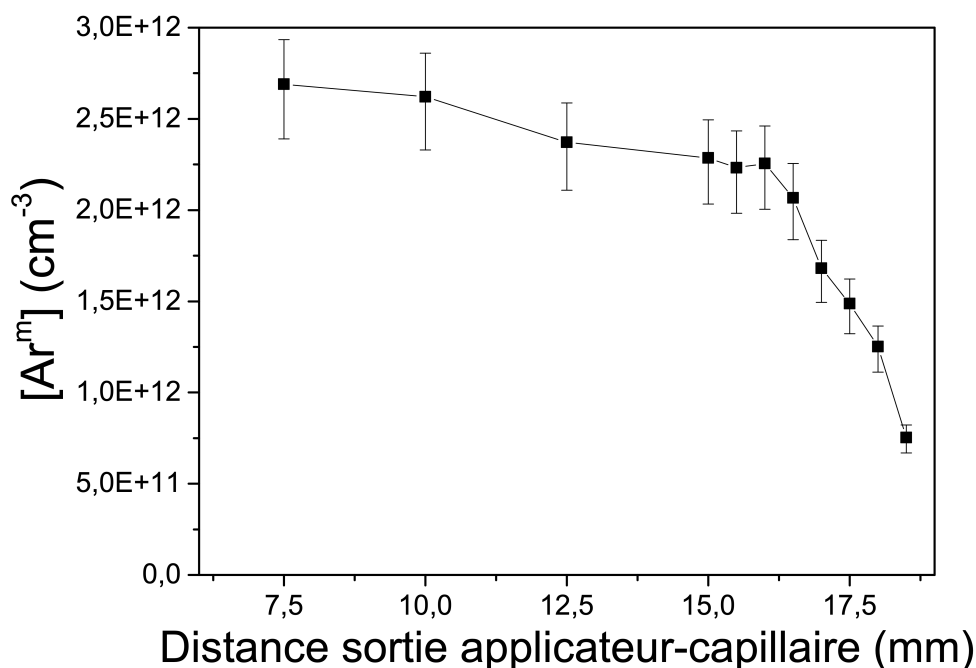


FIGURE 143 – Densité d'argon métastable obtenue par TD:LAS, en fonction de la distance entre les extrémités de l'applicateur et du capillaire.

## 5.4 Résultats du couplage thermique sur la densité électronique et la température du plasma

Pour cette campagne de mesure, on utilise le dispositif de couplage thermique externe décrit dans la partie 2.3 pour appliquer un écoulement d'air contrôlé sur la surface externe du capillaire. Les paramètres expérimentaux fixés sont les suivants : applicateur surfatron ajustable, fréquence micro-onde de 2,427 GHz, débit de gaz de 500 ml/min, basse pression, point de collecte de l'émission du plasma situé 2 cm en aval du surfatron, puissance micro-onde consigne de 40 W ou 50 W. Les spectres de OH sont intégrés pendant 10 s et ceux de  $H_\beta$  pendant 10 s.

Les variations d'écoulement externes sont mesurés expérimentalement par la pression du gaz en sortie du circuit d'écoulement, dans le cas présent à 0,2 ; 0,4 et 1,5 bar(g). Sur les figures, ils seront exprimés par leur correspondance en valeur de coefficient de transfert thermique  $h_{cap}^{CC}$  (W/m<sup>2</sup>/K) correspondant aux transferts conducto-convectifs à la surface externe du capillaire, tel que décrit dans la partie 3.3. En l'absence d'écoulement externe, on sera en convection naturelle, et la valeur du coefficient de transfert thermique sera prise à 18 W/m<sup>2</sup>/K.

Les mesures de température rotationnelle de OH obtenues en fonction du coefficient de transfert thermique pour le cas à 40 W sont exposés figure 144 et figure 145 pour le cas à 50 W.

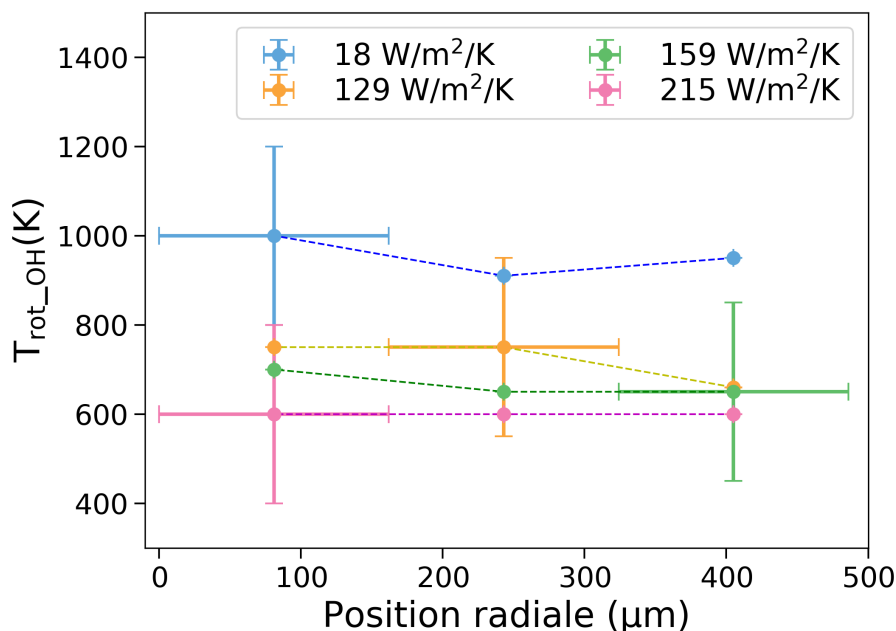


FIGURE 144 – Température rotationnelle de OH obtenue par fits Specair, en fonction de la position radiale pour différentes valeurs du coefficient de transfert thermique imposé, puissance consigne de 40 W.

Les températures rotationnelles sont comprises entre 600 et 1000 K, avec un écart radial maximal de 100 K pour le cas à 40 W, et comprises entre 600 et 750 K avec également un écart radial maximal de 100 K pour le cas à 50 W, qui ne présente pas de cas sans refroidissement. On constate que l'application de l'écoulement externe induit une baisse notable et continue de la température, jusqu'à 400 K, mais que les effets sont conséquents dès les plus faibles écoulements externes appliqués (jusqu'à 300 K de refroidissement). Une amplification de cet écoulement n'a que des effets plus limités (refroidissement maximal de 150 K entre les plus faibles et les plus fortes valeurs de  $h$  en conditions de convection externe).



forcée). Les températures mesurées au bord du capillaire s'approchent plus rapidement de leur minimum, tandis que celles au centre décroissent plus progressivement en fonction de la valeur de  $h$ , indiquant que la diffusion de la chaleur s'intensifie de la paroi vers le centre du plasma avec un écoulement externe plus important, ce qui conduit à une homogénéisation radiale de la température au sein du plasma. Les différences constatées entre les cas à 40 et 50 W montrent que l'homogénéisation radiale est plus facilement réalisable à plus faible puissance. La présence d'un écoulement de gaz externe permet donc de contrôler la température du plasma, pouvant la faire décroître de plusieurs centaines de Kelvins, mais aussi de l'homogénéiser radialement, et ce de façon non-intrusive.

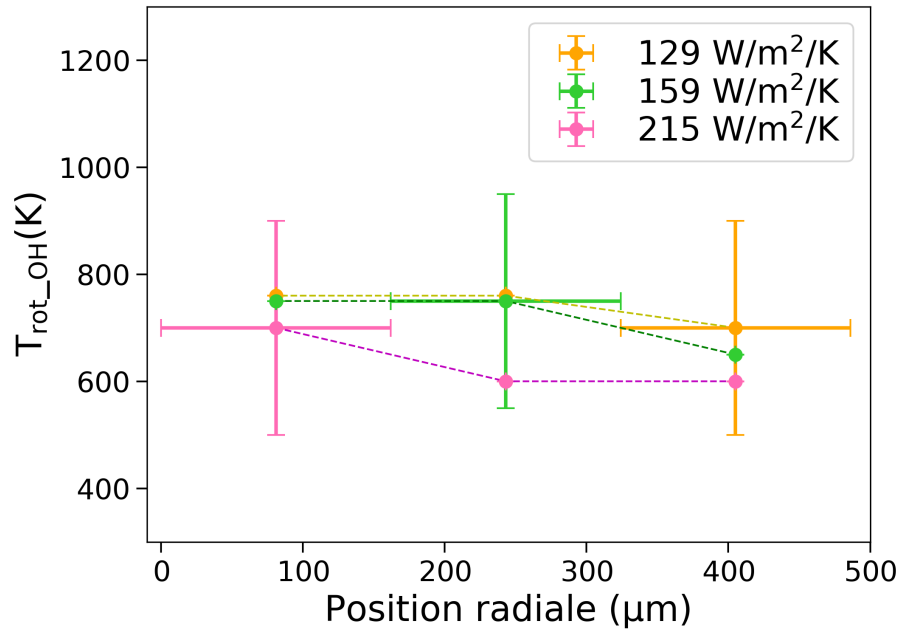


FIGURE 145 – Température rotationnelle de OH obtenue par fits Specair, en fonction de la position radiale pour différentes valeurs du coefficient de transfert thermique imposé, puissance consigne de 50 W.

Les profils de densité électronique par élargissement Stark de la raie de  $H_\beta$  sont représentés figure 146 pour le cas à 40 W et figure 147 pour le cas à 50 W.

On obtient des densités électroniques comprises entre  $6,1 \times 10^{13}$  et  $1,8 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  dans le premier cas, et entre  $7,1 \times 10^{13}$  et  $1,2 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  dans le second. Contrairement à toutes les mesures précédentes qui présentaient un rapport très proche de 2 entre les densités électroniques mesurées au centre et au bord du capillaire, ici on constate que ce rapport passe à des valeurs proches de 1,6 pour tous les cas avec un refroidissement externe appliqué. Les effets constatés sur la densité électronique sont semblables à ceux observés pour la température rotationnelle. Plus précisément : on constate une décroissance brusque pour les premières valeurs de  $h$  (diminution de 30 à 40 % de la densité électronique entre le cas en convection naturelle et celui en convection forcée avec le plus faible  $h$ ) puis une décroissance plus modérée pour les plus hautes valeurs de  $h$  (diminution de l'ordre de 10 % de la densité électronique entre les valeurs minimales et maximales de  $h$ , dans les cas avec convection forcée). On observe aussi une décroissance plus rapide avec  $h$  pour les positions au bord qu'au centre du capillaire. On a donc également un contrôle possible de la densité électronique, pouvant décroître d'un facteur proche de 2, et s'homogénéiser radialement, et ces effets peuvent être obtenus pour des écoulements de gaz relativement faibles. Cette décroissance de la densité électronique peut s'expliquer par l'effet sur la température rotationnelle décrit plus haut, ainsi que l'effet sur la pression donc sur la densité de neutres, décrit dans la partie 3.3. Les résultats précédents montrent en effet que dans les cas où la densité de neutres est plus importante (débit de

gaz plus important, ou pression atmosphérique), la densité électronique est plus faible. La mise en place d'un couplage thermique externe permet donc de contrôler de façon non intrusive un certain nombre de paramètres plasma de façon significative.

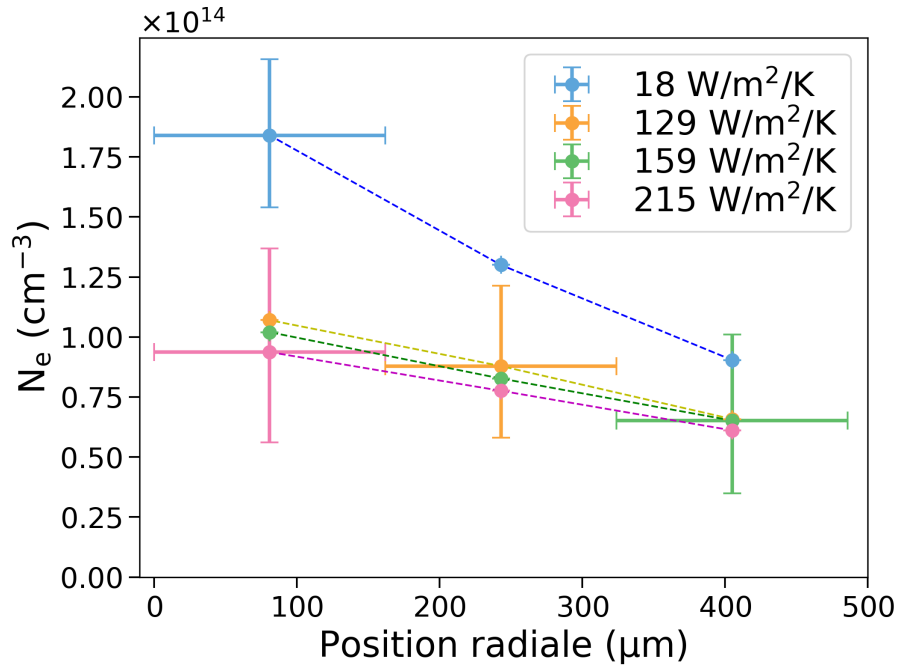


FIGURE 146 – Densité électronique obtenue par élargissement Stark de  $H_\beta$ , en fonction de la position radiale pour différentes valeurs du coefficient de transfert thermique imposé, puissance consigne de 40 W.

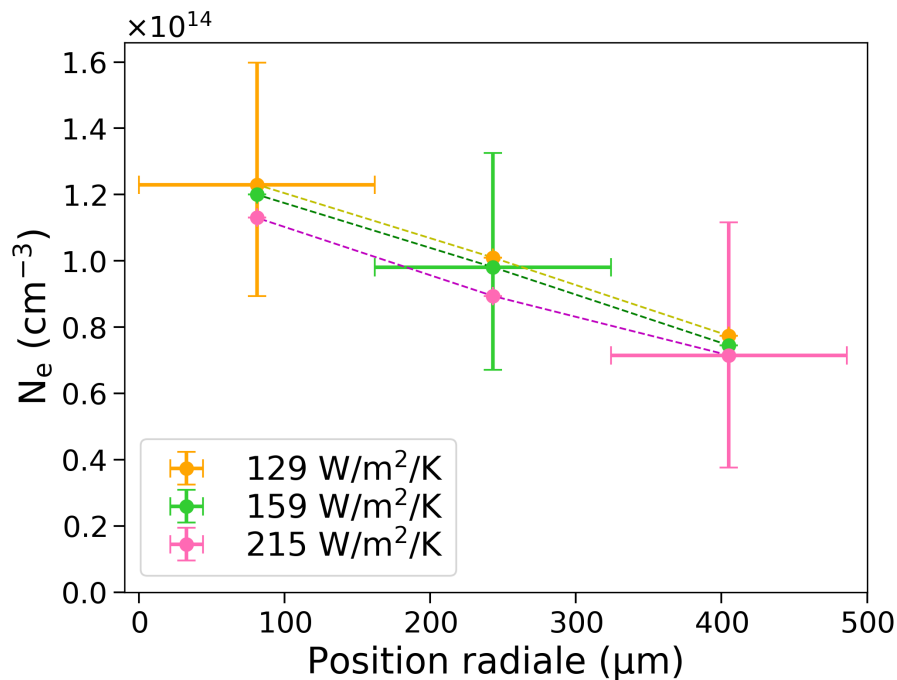


FIGURE 147 – Densité électronique obtenue par élargissement Stark de  $H_\beta$ , en fonction de la position radiale pour différentes valeurs du coefficient de transfert thermique imposé, puissance consigne de 50 W.

## 5.5 Discussions/conclusions

Les différentes études et caractérisations paramétriques du plasma réalisées par plusieurs diagnostics optiques ont permis la mise en évidence de certaines propriétés fondamentales de cette décharge particulière. En premier lieu, l'aspect non-homogène de la décharge (densité électronique et température rotationnelle), que ce soit selon les directions radiales et longitudinales, a été mis en évidence, ces grandeurs étant plus élevées pour les positions centrales radialement et plus proches de l'applicateur ; l'écart typique de ces grandeurs entre le bord et le centre du capillaire, mesuré dans le coeur d'une colonne de plasma d'argon à basse pression, sans refroidissement externe et pour une puissance consigne de l'ordre de la dizaine de watts est de 100 K (soit un écart de 10 % entre le centre et le bord du capillaire) pour la température rotationnelle, et de  $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$  (soit un écart de 50 %) pour la densité électronique. Lorsqu'un refroidissement externe forcé est appliqué sur le capillaire, la température et la densité électronique peuvent être contrôlés, avec par exemple une diminution de la température rotationnelle allant jusqu'à 400 K (soit un écart de 40 %), et également une diminution de la densité électronique jusqu'à 40 %, par rapport au même cas sans couplage thermique ; ces paramètres présentent également un profil radial plus homogène avec un écoulement externe appliqué. Les cas à plus haute pression montrent une thermalisation progressive du plasma, donc une augmentation de la température rotationnelle, et une densité électronique plus homogène radialement, ainsi que moins sensible avec la puissance micro-onde consigne. L'ajout d'une faible fraction de gaz réactif ( $< 2,0 \%$ ) dans le mélange conduit à des températures rotationnelles plus élevées (gain de température jusqu'à 600 K) ainsi qu'une variation de température radiale plus importante (jusqu'à 300 K/25 %) et à l'inverse une diminution de la densité électronique (jusqu'à 40 %) ainsi qu'à un gradient radial moins important. Enfin, en configuration de "plasma jet", les températures rotationnelles sont plus élevées que les cas à pression atmosphérique ou basse pression avec gaz réactif, en raison de la plus grande probabilité de collision des électrons avec des lourds, de nature plus diverse, alors que la densité électronique présente un profil radial plus plat car non contrainte par des recombinaisons à la paroi. La densité d'argon métastable, de l'ordre de  $2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$  moyennée le long du jet à la sortie du capillaire, montre une évolution en fonction de la puissance micro-onde consigne et de la fraction d'air dans le mélange similaire à la densité électronique, avec une très brusque décroissance avec la fraction d'air introduite. Cela montre le rôle prépondérant de cette espèce dans la chimie de la décharge en milieu réactif.

Ces diverses études nous ont permis de mieux identifier les propriétés fondamentales de cette décharge plasma micro-onde dans un capillaire, ainsi que les différents moyens de contrôle possible des profils de température et de densité électronique, ce qui ouvre un champ d'action pour de multiples applications de cette décharge. Ces résultats pourront être confrontés dans le futur à des études numériques.

# Conclusion générale

---

Les études expérimentales réalisées sur cette configuration particulière de plasma micro-onde généré dans des capillaires décrites tout au long de ce manuscrit ont permis d'apporter un certain nombre de réponses et d'avancer dans la compréhension fondamentale de ce type de décharge.

Premièrement, la caractérisation des coupleurs micro-onde utilisés ainsi que le régime d'existence de la décharge en fonction de différents paramètres macroscopiques (puissance et fréquence micro-onde, débit et composition de gaz ...) ont pu être établis. Selon les paramètres expérimentaux, cette configuration permet de réaliser, pour des puissances micro-onde consignées de plusieurs dizaines de watts, des plasmas d'argon à basse pression de plus de 10 cm de longueur dans des capillaires de 1 mm de diamètre interne, et de quelques centimètres pour des conditions de pression atmosphérique et/ou avec une faible fraction de gaz réactif (air). Ces plasmas sont caractérisés par d'importantes valeurs de densité de puissance, comprises entre 100 et 1000 W/cm<sup>-3</sup> pour les plasmas d'argon à basse pression, et au-delà pour les autres conditions.

Une étude poussée du bilan de puissance du plasma, encore inédite à ce jour pour de tels plasmas micro-onde, a pu mettre en évidence des aspects négligés. Bien que certaines sources de dissipation de la puissance micro-onde initiale s'avèrent négligeables (fuites de champ, rayonnement optique, chimie et chaleur de post-décharge ...) d'autres ne le sont pas, à savoir la puissance réfléchie, souvent sous-estimée, et la dissipation sous forme de chaleur dans les éléments de couplage micro-onde. La puissance mesurée comme transférée au plasma est de seulement 4 à 19 % de la puissance micro-onde incidente et dans le meilleur des cas, en considérant la puissance non-mesurée comme étant couplée au plasma, ce rapport est compris entre 24 et 51 % de la puissance incidente. L'élaboration de ce bilan de puissance a donc permis de mettre en évidence la surestimation d'un facteur au moins 2 à 3 de la puissance micro-onde transmise au plasma, par rapport aux hypothèses traditionnellement utilisées.

Des études par diagnostics spectroscopiques de cette décharge ont permis d'accéder aux mesures de paramètres microscopiques de la décharge, avec une résolution radiale, rarement rapportée dans des configurations avec d'aussi petits diamètres. Les diagnostics d'émission ont révélé une température rotationnelle typique (en argon, à basse pression, pour des puissances micro-onde consignées de plusieurs dizaines de watts) au centre du plasma de l'ordre de 800 à 1000 K, et un écart entre les températures au centre et au bord du capillaire supérieur à 100 K, confirmant l'important gradient radial de température. De la même façon, on mesure des densités électroniques typiques de l'ordre de  $1 \times 10^{14}$  cm<sup>-3</sup> au centre du plasma, au moins d'un facteur 2 supérieures à celles mesurées au bord du capillaire. A pression atmosphérique ou dans un milieu réactif (avec de faibles fractions d'air) la température rotationnelle mesurée est plus élevée, et le gradient radial est également plus fort, à l'inverse de la densité électronique qui décroît fortement, et présente un profil radial plus constant. Les mesures par spectroscopie d'absorption laser ont permis

de mesurer une importante densité d'argon métastable, de l'ordre de  $3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$  dans le jet de plasma à la sortie du capillaire, à pression atmosphérique, et qui décroît très fortement avec la fraction de gaz réactif introduite dans le mélange, confirmant leur rôle important dans la chimie de la décharge et les pertes importantes sur les niveaux ro-vibrationnels, dès que ces voies sont disponibles.

Enfin, une étude novatrice sur le couplage thermique d'un tel plasma par application d'un écoulement d'air sur la paroi externe du capillaire, donc sans contact direct avec le plasma, a été réalisée. Elle a montré que certains paramètres macroscopique de la décharge, dont le volume de plasma créé ainsi que l'efficacité du couplage, furent inchangés par l'utilisation de ce système de couplage thermique, tandis qu'on constate des effets importants sur la surpression mesurée en amont du capillaire (diminution de 20 %, typiquement de 160 à 120 mbar), sur la température rotationnelle (diminution d'au moins 40 %, typiquement de 1000 à 600 K) ainsi que sur la densité électronique du plasma (diminution d'au moins 40 %, typiquement de  $1,8$  à  $1,0 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ ), ces deux derniers paramètres présentant également un profil radial plus homogène. On donc montré qu'il est possible de contrôler de façon non-intrusive toute une série de paramètres de la décharge grâce à ce couplage thermique externe.

A ce jour cependant, certaines questions restent ouvertes, et nécessiteront de futures investigations pour améliorer la compréhension des phénomènes fondamentaux trouvant naissance dans de tels plasmas. Une part de puissance reste non-mesurée lors de l'établissement du bilan de puissance ce qui nécessite donc des investigations expérimentales plus poussées pour conclure sur la fraction de puissance micro-onde exactement transmise au plasma. Les mesures de spectroscopie d'émission ont permis une résolution radiale, mais qui reste cependant limitée : une transformée d'Abel inverse permettrait d'obtenir le profil radial réel des paramètres microscopiques de la décharge. Également sera nécessaire la caractérisation par spectroscopie laser des radicaux (N, O, NO ...) produits dans des décharges avec une fraction de gaz réactif, indispensable pour la compréhension de la cinétique réactionnelle de la décharge, et son ajustement pour d'éventuelles utilisations pour diverses applications.

# Bibliographie

---

- [1] Irving LANGMUIR. « Oscillations in ionized gases ». In : *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* 14.8 (1928), p. 627.
- [2] MP BACHYNSKI. « Plasma physics-an elementary review ». In : *Proceedings of the IRE* 49.12 (1961), p. 1751–1766.
- [3] EW BANIOS. « Plasma Considerations in Space Communications ». In : *IEEE Transactions on Aerospace and Electronic Systems* 6 (1966), p. 333–339.
- [4] Claire TENDERO et al. « Atmospheric pressure plasmas : A review ». In : *Spectrochimica Acta Part B : Atomic Spectroscopy* 61.1 (2006), p. 2–30.
- [5] E Howard HOLT, Richard Edmund HASKELL et Cap HASKELL. *Foundations of plasma dynamics*. Macmillan, 1965.
- [6] Shalom ELIEZER et Yaffa ELIEZER. *The fourth state of matter : an introduction to plasma science*. CRC Press, 2001.
- [7] URL : [https://commons.wikimedia.org/wiki/Crookes\\_tube](https://commons.wikimedia.org/wiki/Crookes_tube).
- [8] H OECHSNER. « Electron yields from clean polycrystalline metal surfaces by noble-gas-ion bombardment at energies around 1 keV ». In : *Physical Review B* 17.3 (1978), p. 1052.
- [9] Michael A LUTZ. « The Glow to Arc Transition-A Critical Review ». In : *IEEE Transactions on Plasma Science* 1.2 (1974), p. 1–10.
- [10] Friedrich PASCHEN. « Ueber die zum Funkenübergang in Luft, Wasserstoff und Kohlensäure bei verschiedenen Drucken erforderliche Potentialdifferenz ». In : *Annalen der Physik* 273.5 (1889), p. 69–96.
- [11] A. FRIDMAN. *Plasma Chemistry*. Cambridge University Press, 2012. ISBN : 9781107684935. URL : <https://books.google.fr/books?id=L289LgEACAAJ>.
- [12] URL : <https://www.plasma-universe.com/electric-glow-discharge/>.
- [13] FM PENNING et JHA MOUBIS. « Cathode sputtering in a magnetic field ». In : *Proc. Kon. Ned. Akad. Wetensch.* T. 43. 1940, p. 41–56.
- [14] JA THORNTON. « Magnetron sputtering : basic physics and application to cylindrical magnetrons ». In : *J. Vac. Sci. Technol. ;(United States)* 15.2 (1978).
- [15] WD SPROUL, DJ CHRISTIE et DC CARTER. « Control of reactive sputtering processes ». In : *Thin Solid Films* 491.1-2 (2005), p. 1–17.
- [16] Catherine ROND et al. « Chemical analysis of H<sub>2</sub>-B<sub>2</sub>H<sub>6</sub> and H<sub>2</sub>-CH<sub>4</sub>-B<sub>2</sub>H<sub>6</sub> microwave CVD plasmas used for diamond deposition ». In : *Plasma Sources Science and Technology* 25.2 (fév. 2016), p. 025016. DOI : 10.1088/0963-0252/25/2/025016.
- [17] M GRUJICIC, G CAO et Bonnie GERSTEN. « Optimization of the chemical vapor deposition process for carbon nanotubes fabrication ». In : *Applied Surface Science* 199.1-4 (2002), p. 90–106.
- [18] J. T. GUDMUNDSSON et al. « High power impulse magnetron sputtering discharge ». In : *Journal of Vacuum Science & Technology A* 30.3 (2012), p. 030801. DOI : 10.1116/.
- [19] W SIEMENS. « Ozonisorator Poggendorffs ». In : *Ann Phys Chem* 102 (1857), p. 66.
- [20] Ulrich KOGELSCHATZ. « Dielectric-barrier discharges : their history, discharge physics, and industrial applications ». In : *Plasma chemistry and plasma processing* 23.1 (2003), p. 1–46.

- [21] K BUSS. « Die elektrodenlose Entladung nach Messung mit dem Kathodenzillographen ». In : *Electrical Engineering (Archiv für Elektrotechnik)* 26.4 (1932), p. 261–265.
- [22] Françoise MASSINES et al. « Experimental and theoretical study of a glow discharge at atmospheric pressure controlled by dielectric barrier ». In : *Journal of Applied Physics* 83.6 (1998), p. 2950–2957.
- [23] Ulrich KOGELSCHATZ, Baldur ELIASSON et Walter EGLI. « From ozone generators to flat television screens : history and future potential of dielectric-barrier discharges ». In : *Pure and Applied Chemistry* 71.10 (1999), p. 1819–1828.
- [24] Baldur ELIASSON et Ulrich KOGELSCHATZ. « Modeling and applications of silent discharge plasmas ». In : *IEEE transactions on plasma science* 19.2 (1991), p. 309–323.
- [25] B ELIASSON, M HIRTH et U KOGELSCHATZ. « Ozone synthesis from oxygen in dielectric barrier discharges ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 20.11 (nov. 1987), p. 1421–1437. DOI : 10.1088/0022-3727/20/11/010.
- [26] VI GRINEVICH et al. « Application of dielectric barrier discharge for waste water purification ». In : *Plasma Chemistry and Plasma Processing* 31.4 (2011), p. 573–583.
- [27] John FOSTER et al. « Perspectives on the interaction of plasmas with liquid water for water purification ». In : *IEEE Transactions on Plasma Science* 40.5 (2012), p. 1311–1323.
- [28] Baldur ELIASSON et Ulrich KOGELSCHATZ. « UV excimer radiation from dielectric-barrier discharges ». In : *Applied Physics B* 46.4 (1988), p. 299–303.
- [29] GA VOLKOVA et al. « Vacuum-ultraviolet lamps with a barrier discharge in inert gases ». In : *Journal of Applied Spectroscopy* 41.4 (1984), p. 1194–1197.
- [30] Shridhar S. JOSHI. « The decomposition of nitrous oxide in the silent electric discharge ». In : *Trans. Faraday Soc.* 23 (1927), p. 227–238.
- [31] N MOREAU et al. « Propane dissociation in a non-thermal high-pressure nitrogen plasma ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 43.28 (2010), p. 285201.
- [32] Z CHEN et VK MATHUR. « Nonthermal plasma for gaseous pollution control ». In : *Industrial & engineering chemistry research* 41.9 (2002), p. 2082–2089.
- [33] Hans R SNYDER et Graydon K ANDERSON. « Effect of air and oxygen content on the dielectric barrier discharge decomposition of chlorobenzene ». In : *IEEE transactions on plasma science* 26.6 (1998), p. 1695–1699.
- [34] Frédéric THÉVENET et al. « Plasma–catalyst coupling for volatile organic compound removal and indoor air treatment : a review ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 47.22 (2014), p. 224011.
- [35] Guillaume PILLA et al. « Stabilization of a turbulent premixed flame using a nanosecond repetitively pulsed plasma ». In : *IEEE Transactions on Plasma Science* 34.6 (2006), p. 2471–2477.
- [36] Kadek W HEMAWAN et al. « Compact microwave re-entrant cavity applicator for plasma-assisted combustion ». In : *Review of Scientific Instruments* 80.5 (2009), p. 053507.
- [37] Guillaume VIGNAT et al. « Improvement of lean blow out performance of spray and premixed swirled flames using nanosecond repetitively pulsed discharges ». In : *Proceedings of the Combustion Institute* (2020).
- [38] Mounir LAROUCI. « Low Temperature Plasma-Based Sterilization : Overview and State-of-the-Art ». In : *Plasma Processes and Polymers* 2.5 (2005), p. 391–400.
- [39] Marc VANDAMME et al. « ROS implication in a new antitumor strategy based on non-thermal plasma ». In : *International journal of cancer* 130.9 (2012), p. 2185–2194.
- [40] Joseph-Marie PLEWA et al. « Low-temperature plasma-induced antiproliferative effects on multicellular tumor spheroids ». In : *New Journal of Physics* 16.4 (2014), p. 043027.

- [41] N. PHILIP et al. « The respective roles of UV photons and oxygen atoms in plasma sterilization at reduced gas pressure : the case of N/sub 2/-O/sub 2/ mixtures ». In : *IEEE Transactions on Plasma Science* 30.4 (2002), p. 1429–1436.
- [42] Natalia Yu BABAIEVA et Mark J KUSHNER. « Control of ion activation energy delivered to tissue and sensitive materials in atmospheric pressure plasmas using thin porous dielectric sheets ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 46.12 (fév. 2013), p. 125201.
- [43] Eva STOFFELS, Yukinori SAKIYAMA et David B GRAVES. « Cold atmospheric plasma : charged species and their interactions with cells and tissues ». In : *IEEE Transactions on Plasma Science* 36.4 (2008), p. 1441–1457.
- [44] N.N. MISRA et al. « Atmospheric pressure cold plasma (ACP) treatment of wheat flour ». In : *Food Hydrocolloids* 44 (2015), p. 115–121. ISSN : 0268-005X.
- [45] Hermien VAN BOKHORST-VAN DE VEEN et al. « Inactivation of chemical and heat-resistant spores of Bacillus and Geobacillus by nitrogen cold atmospheric plasma evokes distinct changes in morphology and integrity of spores ». In : *Food microbiology* 45 (2015), p. 26–33.
- [46] Tobias G KLÄMPFL et al. « Cold atmospheric air plasma sterilization against spores and other microorganisms of clinical interest ». In : *Appl. Environ. Microbiol.* 78.15 (2012), p. 5077–5082.
- [47] Young-Ki JO et al. « A Non-thermal Plasma Seed Treatment Method for Management of a Seed-borne Fungal Pathogen on Rice Seed ». In : *Crop Science* 54.2 (2014), p. 796–803.
- [48] Suresh G. JOSHI et al. « Nonthermal Dielectric-Barrier Discharge Plasma-Induced Inactivation Involves Oxidative DNA Damage and Membrane Lipid Peroxidation in Escherichia coli ». In : *Antimicrobial Agents and Chemotherapy* 55.3 (2011), p. 1053–1062.
- [49] Rohit THIRUMDAS et al. « Plasma activated water (PAW) : chemistry, physico-chemical properties, applications in food and agriculture ». In : *Trends in food science & technology* 77 (2018), p. 21–31.
- [50] K TAKAKI et al. « Improvements in plant growth rate using underwater discharge ». In : *Journal of Physics : Conference Series*. T. 418. 1. IOP Publishing. 2013, p. 012140.
- [51] James Gary EDEN et al. « Microplasma light tiles : Thin sheet lamps for general illumination ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 44.22 (2011), p. 224011.
- [52] Karl H SCHOENBACH et Kurt BECKER. « 20 years of microplasma research : a status report ». In : *The European Physical Journal D* 70.2 (2016), p. 29.
- [53] Karl H SCHOENBACH et al. « High-pressure hollow cathode discharges ». In : *Plasma Sources Science and Technology* 6.4 (1997), p. 468–477.
- [54] JS SOUSA, G BAUVILLE et V PUECH. « Arrays of microplasmas for the controlled production of tunable high fluxes of reactive oxygen species at atmospheric pressure ». In : *Plasma Sources Science Technology* 22.3 (2013).
- [55] KH BECKER, KH SCHOENBACH et JG EDEN. « Microplasmas and applications ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 39.3 (2006).
- [56] Karl H SCHOENBACH et al. « Microhollow cathode discharges ». In : *Applied Physics Letters* 68.1 (1996), p. 13–15.
- [57] Rüdiger FOEST et al. « On the Vacuum Ultraviolet Radiation of a Miniaturized Non-thermal Atmospheric Pressure Plasma Jet ». In : *Plasma Processes and Polymers* 4.S1 (2007), S460–S464.
- [58] Gabriel HORVATH et al. « Characterization of a Low-Cost Kilohertz-Driven Plasma Pen Operated in Ar Gas ». In : *IEEE Transactions on Plasma Science* 3.41 (2013), p. 613–619.
- [59] Kurt H BECKER et al. « Robert barker memorial session : leadership in plasma science and applications ». In : *IEEE Transactions on Plasma Science* 43.4 (2015), p. 914–936.
- [60] David Z PAI et al. « Nanosecond repetitively pulsed discharges in air at atmospheric pressure—the glow regime ». In : *Plasma Sources Science and Technology* 18.4 (2009), p. 045030.



- [61] Nicolas MINESI et al. « Fully ionized nanosecond discharges in air : the thermal spark ». In : *Plasma Sources Science and Technology* (2020).
- [62] Gabi D STANCU et al. « Time-Resolved CRDS Measurements of the N<sub>2</sub> (A<sup>3</sup>Σ<sup>+</sup> u+) Density Produced by Nanosecond Discharges in Atmospheric Pressure Nitrogen and Air ». In : *The Journal of Physical Chemistry A* 114.1 (2010), p. 201–208.
- [63] DL RUSTERHOLTZ et al. « Ultrafast heating and oxygen dissociation in atmospheric pressure air by nanosecond repetitively pulsed discharges ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 46.46 (2013), p. 464010.
- [64] GD STANCU et al. « Atmospheric pressure plasma diagnostics by OES, CRDS and TALIF ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 43.12 (2010), p. 124002.
- [65] M MOISAN. « Description and properties of an RF plasma used for the study of parametric interaction of a strong EM field with plasma ». In : *Plasma physics* 16.1 (1974), p. 1.
- [66] H SUGAI, I GHANASHEV et M NAGATSU. « High-density flat plasma production based on surface waves ». In : *Plasma Sources Science Technology* 7 (1998), p. 192–205.
- [67] SL HALVERSON et Albert J HATCH. « Frequency-Shifting Method of Exciting a Plasma in a Resonant Cavity ». In : *Applied Physics Letters* 14 (1969), p. 79–81.
- [68] RM FREDERICKS et J ASMUSSEN JR. « Retuning and hysteresis effects of a rf plasma in a variable size microwave cavity ». In : *Journal of Applied Physics* 42.9 (1971), p. 3647–3649.
- [69] FC FEHSENFELD, Kenneth M EVENSON et Herbert P BROIDA. « Microwave discharge cavities operating at 2450 MHz ». In : *Review of scientific Instruments* 36.3 (1965), p. 294–298.
- [70] AW TRIVELPIECE et RW GOULD. « Space charge waves in cylindrical plasma columns ». In : *Journal of Applied Physics* 30.11 (1959), p. 1784–1793.
- [71] Michel MOISAN, Claude BEAUDRY et Philippe LEPRINCE. « A small microwave plasma source for long column production without magnetic field ». In : *IEEE Transactions on Plasma Science* 3.2 (1975), p. 55–59.
- [72] CIM BEENAKKER. « A cavity for microwave-induced plasmas operated in helium and argon at atmospheric pressure ». In : *Spectrochimica Acta* 31 (1976), p. 483–486.
- [73] M MOISAN, Z ZAKRZEWSKI et R PANTEL. « The theory and characteristics of an efficient surface wave launcher (surfatron) producing long plasma columns ». In : *Journal of physics D : Applied physics* 12.2 (1979), p. 219.
- [74] M MOISAN et al. « Production and applications of microwave surface wave plasma at atmospheric pressure ». In : *Journal of Microwave Power* 14.1 (1979), p. 57–61.
- [75] CIM BEENAKER. « Evaluation of a microwave-induced plasma in helium at atmospheric pressure as an element-selective detector for gas chromatography ». In : *Spectrochimica Acta Part B : Atomic Spectroscopy* 32.3-4 (1977), p. 173–187.
- [76] M MOISAN et al. « Properties and applications of surface wave produced plasmas ». In : *Revue Phys. Appl* 17.1982 (1982), p. 707–727.
- [77] Kimberly A FORBES et al. « Comparison of microwave-induced plasma sources ». In : *Journal of Analytical Atomic Spectrometry* 6.1 (1991), p. 57–71.
- [78] M JIMENEZ-DIAZ et al. « A two-dimensional Plasimo multiphysics model for the plasma–electromagnetic interaction in surface wave discharges : the surfatron source ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 45.33 (2012), p. 335204.
- [79] Benoit DEBORD et al. « Generation and confinement of microwave gas-plasma in photonic dielectric microstructure ». In : *Optics express* 21.21 (2013), p. 25509–25516.
- [80] Ramon M BARNES et Edward E RESZKE. « Design concepts for strip-line microwave spectrochemical sources ». In : *Analytical chemistry* 62.23 (1990), p. 2650–2654.

- [81] J POLLAK, M MOISAN et Z ZAKRZEWSKI. « Long and uniform plasma columns generated by linear field-applicators based on stripline technology ». In : *Plasma Sources Science Technology* 16 (2007), p. 310–323.
- [82] Attila M BILGIÇ et al. « A low-power 2.45 GHz microwave induced helium plasma source at atmospheric pressure based on microstrip technology Presented at the Winter Conference on Plasma Spectrochemistry, Fort Lauderdale, FL, USA, January 10–15, 2000. » In : *Journal of Analytical Atomic Spectrometry* 15.6 (2000), p. 579–580.
- [83] J GREGÓRIO et al. « Microwave microplasma sources based on microstrip-like transmission lines. » In : *European Physical Journal D—Atoms, Molecules, Clusters & Optical Physics* 60.3 (2010).
- [84] AM BILGIC et al. « A new low-power microwave plasma source using microstrip technology for atomic emission spectrometry ». In : *Plasma Sources Science Technology* 9 (2000), p. 1–4.
- [85] Felipe IZA et Jeffrey A HOPWOOD. « Low-power microwave plasma source based on a microstrip split-ring resonator ». In : *IEEE transactions on plasma science* 31.4 (2003), p. 782–787.
- [86] Felipe IZA et J HOPWOOD. « Split-ring resonator microplasma : microwave model, plasma impedance and power efficiency ». In : *Plasma Sources Science and Technology* 14.2 (2005), p. 397.
- [87] JM PALOMARES et al. « Atmospheric microwave-induced plasmas in Ar/H<sub>2</sub> mixtures studied with a combination of passive and active spectroscopic methods ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 43.39 (2010), p. 395202.
- [88] Wei WU, Che A FUH et Chuji WANG. « Plasma-enhanced ignition and flame stabilization in microwave plasma-assisted combustion of premixed methane/oxygen/argon mixtures ». In : *IEEE Transactions on Plasma Science* 43.12 (2015), p. 3986–3994.
- [89] MA RIDENTI, JA SOUZA-CORRÊA et J AMORIM. « Experimental study of unconfined surface wave discharges at atmospheric pressure by optical emission spectroscopy ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 47.4 (2013), p. 045204.
- [90] J AMORIM, MA RIDENTI et V GUERRA. « Experimental and theoretical study of atmospheric-pressure argon microplasma jets ». In : *Plasma Physics and Controlled Fusion* 57.7 (2015), p. 074001.
- [91] B NIERMANN et al. « Argon metastable dynamics in a filamentary jet micro-discharge at atmospheric pressure ». In : *Plasma Sources Science and Technology* 21.3 (2012), p. 034002.
- [92] Alan R HOSKINSON et al. « Argon metastable production in argon-helium microplasmas ». In : *Journal of Applied Physics* 119.23 (2016), p. 233301.
- [93] Antoine DUROCHER-JEAN, Nicolas DELNOUR et Luc STAFFORD. « Influence of N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, and H<sub>2</sub> admixtures on the electron power balance and neutral gas heating in microwave Ar plasmas at atmospheric pressure ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 52.47 (sept. 2019), p. 475201.
- [94] C YUBERO et al. « Using the van der Waals broadening of the spectral atomic lines to measure the gas temperature of an argon microwave plasma at atmospheric pressure ». In : *Spectrochimica Acta Part B : Atomic Spectroscopy* 62.2 (2007), p. 169–176.
- [95] S DAP et al. « Hydrodynamic and thermal effects of continuous microwave-sustained plasma in capillary tubes ». In : *Plasma Sources Science and Technology* 24.6 (2015), p. 309–327.
- [96] GD STANCU et al. « Microwave air plasmas in capillaries at low pressure II. Experimental investigation ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 49.43 (2016), p. 435202.
- [97] P COCHE, V GUERRA et LL ALVES. « Microwave air plasmas in capillaries at low pressure I. Self-consistent modeling ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 49.23 (2016), p. 235207.
- [98] M SANTOS et al. « Microwave capillary plasmas in helium at atmospheric pressure ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 47.26 (2014), p. 265201.
- [99] CR ROGER, SH YEN et KG RAMANATHAN. « Temperature variation of total hemispherical emissivity of stainless steel AISI 304 ». In : *JOSA* 69.10 (1979), p. 1384–1390.

- [100] AJ BALDWIN et JER LOVELL-SMITH. « The emissivity of stainless steel in dairy plant thermal design ». In : *Journal of food engineering* 17.4 (1992), p. 281–289.
- [101] V EFIMOVA et al. « Influence of the anode material on the characteristics of an analytical glow discharge cell ». In : *Spectrochimica Acta Part B : Atomic Spectroscopy* 65.4 (2010), p. 311–315.
- [102] G FERRARINI et al. « Thermal diffusivity measurement of ring specimens by infrared thermography ». In : *Thermosense : Thermal Infrared Applications XXXIX*. T. 10214. International Society for Optics et Photonics. 2017, 102140Z.
- [103] Alessandro MATORILLI et Joern HELBERT. « Characterization, testing, calibration, and validation of the Berlin emissivity database ». In : *Journal of Applied Remote Sensing* 8.1 (2014), p. 084985.
- [104] Karly M PITMAN, Michael J WOLFF et Geoffrey C CLAYTON. « Application of modern radiative transfer tools to model laboratory quartz emissivity ». In : *Journal of Geophysical Research : Planets* 110.E8 (2005).
- [105] Kadek W HEMAWAN et al. « Generation of Microwave Capillary Argon Plasmas at Atmospheric Pressure ». In : *IEEE Transactions on Plasma Science* 44.11 (2016), p. 2603–2607.
- [106] M CHAKER et al. « Characteristics and energy balance of a plasma column sustained by a surface wave ». In : *Journal de Physique Lettres* 43.3 (1982), p. 71–75.
- [107] Eric BLUEM. « Caractérisation d'une décharge microonde de grand diamètre ». Thèse de doct. Paris 11, 1995.
- [108] URL : [www.nist.gov](http://www.nist.gov).
- [109] AS KALELKAR et J KESTIN. « Viscosity of He–Ar and He–Kr binary gaseous mixtures in the temperature range 25–720 C ». In : *The Journal of Chemical Physics* 52.8 (1970), p. 4248–4261.
- [110] Krzysztof DUTKOWSKI. « Experimental investigations of Poiseuille number laminar flow of water and air in minichannels ». In : *International Journal of Heat and Mass Transfer* 51.25-26 (2008), p. 5983–5990.
- [111] Kinga KUTASI, Vasco GUERRA et Paulo SÁ. « Theoretical insight into Ar–O<sub>2</sub> surface-wave microwave discharges ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 43.17 (2010), p. 175201.
- [112] Theodore L BERGMAN et al. *Fundamentals of heat and mass transfer*. John Wiley & Sons, 2011.
- [113] Jean TAINE, Franck ENGUEHARD et Estelle IACONA. *Transferts thermiques-5e édition : Introduction aux transferts d'énergie*. Dunod, 2014.
- [114] W FAIDER et al. « Role of quenching of metastable states in acetaldehyde decomposition by a non-equilibrium nitrogen plasma at sub-atmospheric pressure ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 46.10 (2013), p. 105202.
- [115] J HUBERT, M MOISAN et A RICARD. « A new microwave plasma at atmospheric pressure ». In : *Spectrochimica Acta* 34 (1979), p. 1–10.
- [116] A KAIS et al. « Heating power at the substrate, electron temperature, and electron density in 2.45 GHz low-pressure microwave plasma ». In : *Physics of Plasmas* 25.1 (2018), p. 013504.
- [117] R PIEJAK et al. « Surface temperature and thermal balance of probes immersed in high density plasma ». In : *Plasma Sources Science and Technology* 7.4 (nov. 1998), p. 590–598. DOI : 10.1088/0963-0252/7/4/016. URL : <https://doi.org/10.1088/0963-0252/7/4/016>.
- [118] Stuart W CHURCHILL et Humbert HS CHU. « Correlating equations for laminar and turbulent free convection from a vertical plate ». In : *International journal of heat and mass transfer* 18.11 (1975), p. 1323–1329.
- [119] Jiaqi TANG. « MIP Plasma Decapsulation of Copper-wired Semiconductor Devices for Failure Analysis ». In : (2014).
- [120] Christophe O LAUX et al. « Optical diagnostics of atmospheric pressure air plasmas ». In : *Plasma Sources Science and Technology* 12.2 (2003), p. 125.
- [121] URL : [www.spectralfit.com](http://www.spectralfit.com).

- [122] Sven HOFMANN et al. « Power dissipation, gas temperatures and electron densities of cold atmospheric pressure helium and argon RF plasma jets ». In : *Plasma Sources Science and Technology* 20.6 (2011), p. 065010.
- [123] MA GIGOSOS, MA GONZALEZ et V CARDENOSO. « Computer simulated Balmer-alpha,-beta and-gamma Stark line profiles for non-equilibrium plasmas diagnostics ». In : *Spectrochimica Acta Part B : Atomic Spectroscopy* 58.8 (2003), p. 1489–1504.
- [124] J BUDE et al. « The effect of lattice temperature on surface damage in fused silica optics ». In : *Laser-Induced Damage in Optical Materials : 2007*. T. 6720. International Society for Optics et Photonics. 2007, p. 672009.
- [125] Nikola KONJEVIĆ. « Plasma broadening and shifting of non-hydrogenic spectral lines : present status and applications ». In : *Physics reports* 316.6 (1999), p. 339–401.
- [126] URL : <https://scipython.com/book/chapter-8-scipy/examples/the-voigt-profile/>.
- [127] Stephan REUTER et al. « Review on VUV to MIR absorption spectroscopy of atmospheric pressure plasma jets ». In : *Plasma Sources Science and Technology* 24.5 (2015), p. 054001.
- [128] K GAZELI et al. « Effect of the gas flow rate on the spatiotemporal distribution of Ar (1s5) absolute densities in a ns pulsed plasma jet impinging on a glass surface ». In : *Plasma Sources Science and Technology* 27.6 (2018), p. 065003.
- [129] Claire DOUAT et al. « Space-time resolved density of helium metastable atoms in a nanosecond pulsed plasma jet : influence of high voltage and pulse frequency ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 49.28 (2016), p. 285204.
- [130] J FRANZKE, DG STANCU et K NIEMAX. « Measurements of sulfur compounds in CO2 by diode laser atomic absorption spectrometry ». In : *Spectrochimica Acta Part B : Atomic Spectroscopy* 58.7 (2003), p. 1359–1366.
- [131] PJ BRUGGEMAN et al. « Gas temperature determination from rotational lines in non-equilibrium plasmas : a review ». In : *Plasma Sources Science and Technology* 23.2 (2014), p. 023001.
- [132] CM FERREIRA, J LOUREIRO et A RICARD. « Populations in the metastable and the resonance levels of argon and stepwise ionization effects in a low-pressure argon positive column ». In : *Journal of applied physics* 57.1 (1985), p. 82–90.
- [133] A BOGAERTS et R GIJBELS. « Modeling of metastable argon atoms in a direct-current glow discharge ». In : *Physical Review A* 52.5 (1995), p. 3743.
- [134] Sergey G BELOSTOTSKIY et al. « Time-and space-resolved measurements of Ar (1s5) metastable density in a microplasma using diode laser absorption spectroscopy ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 44.14 (2011), p. 145202.
- [135] VM DONNELLY. « Plasma electron temperatures and electron energy distributions measured by trace rare gases optical emission spectroscopy ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 37.19 (2004), R217.
- [136] Francisco J GORDILLO-VÁZQUEZ. « Air plasma kinetics under the influence of sprites ». In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 41.23 (2008), p. 234016.

**Titre :** Caractérisation spectroscopique et couplage thermique de plasmas micro-onde dans des capillaires

**Mots clés :** Plasma micro-onde, Spectroscopie d'absorption, Couplage thermique, Spectroscopie d'émission, Bilan de puissance, Plasma en capillaires

**Résumé :** Cette thèse porte sur des études expérimentales de plasmas micro-onde générés dans des capillaires (diamètre  $\leq 1$  mm), caractérisées par une forte densité de puissance et une importante réactivité chimique. La réalisation d'un bilan de puissance complet de ces décharges a mis en évidence des sous-estimations importantes de pertes. Là où les hypothèses traditionnelles supposent un transfert de puissance micro-onde au plasma supérieur à 90%, nos mesures montrent qu'on ne retrouve que 4 à 20% de la puissance transmise au plasma, soit une surestimation systématique du couplage d'un facteur d'au moins 2 à 3. Des mesures locales de densités d'espèces et de température de gaz par diagnostics spectroscopiques (OES et TD :LAS) ont montré d'importantes inhomogénéités radiales et longitudi-

nales, typiquement des températures rotationnelles au centre de l'ordre de 1000 K, 10% de moins au bord, et densité électronique de  $10^{14} \text{ cm}^{-3}$  au centre, et 50% de moins à la paroi du capillaire. La densité d'argon métastable mesurée en sortie de capillaire est de l'ordre de  $3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$  et décroît très fortement avec l'ajout d'une fraction de gaz réactif. Un ajustement non-intrusif du transfert thermique à travers le capillaire par un contrôle non-intrusif a conduit à un large contrôle de paramètres clés du plasma : variation de la température rotationnelle du gaz et la densité électronique d'au moins 40% (typiquement de 600 à 1000 K et de  $1,0$  à  $1,8 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ ), et avec de plus faibles gradients radiaux, permettant d'accorder les paramètres de décharges de manière plus étendue et ouvrant la voie vers de nouvelles applications potentielles.

**Title :** Spectroscopic characterization and thermal coupling in microwave capillary discharges

**Keywords :** Microwave plasma, Absorption spectroscopy, Thermal coupling, Emission spectroscopy, Power balance, Capillary discharges

**Abstract :** This thesis focuses on experimental studies of microwave plasmas generated in capillaries (diameter  $\leq 1$  mm), which exhibit high power density and important chemical reactivity. A complete and accurate power balance of these plasmas was carried out and has revealed significant underestimations of power losses. The conventional assumptions consider a value  $> 90\%$  for the injected microwave power transferred to the plasma. However, our measurements show that only 4 to 20% of the power is transmitted to the plasma, i.e., a systematic overestimation of the power coupling by a factor of at least 2 to 3. Local measurements of species densities and gas temperatures by spectroscopic diagnostics (OES and TD :LAS) have shown significant longitudinal and radial inhomogeneities, typically rotational temperatures at the discharge center in the 1000 K range, with a 10%

decrease at the capillary wall, and electron density of  $10^{14} \text{ cm}^{-3}$  at the discharge center, with a 50% decrease at the capillary wall. The argon metastable density measured at the capillary exit is found around  $3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$  with a value strongly decreasing by the addition of a fraction of reactive gas. The particular configuration of these discharges offered the possibility of a non-intrusive heat flux control. A non-intrusive tuning of the heat transfer through the capillary induced strong effects on key plasma parameters, namely changes of the rotational temperature and electron density by at least 40% (typically from 600 to 1000 K and from  $1.0$  to  $1.8 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ ), and showed smaller radial gradients, allowing for a wider adjustment of the discharge parameters and opening the way for new potential applications.

