



Université  
de Toulouse

# THÈSE

En vue de l'obtention du

## DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par : *l'Université Toulouse 3 Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier)*

---

---

Présentée et soutenue publiquement le *12/12/2013* par :  
**MOHAMED CHÉRIF BOUZIDI**

**Étude d'une Décharge à Barrière Diélectrique (DBD)  
homogène dans l'azote à pression atmosphérique :  
Effet mémoire et Optimisation du transfert de Puissance**

---

---

### JURY

Dunpin HONG	PR, Université d'Orléans	Rapporteur
Nicolas SOULEM	MCF HDR, Université de Pau et des Pays de l'Adour	Rapporteur
Stéphane PASQUIERS	DR CNRS, Université Paris-Sud	Examineur
Nicolas GHERARDI	CR CNRS, Université de Toulouse	Examineur
Jean-Pascal CAMBRONNE	PR, Université de Toulouse	Examineur
Nicolas NAUDE	MCF, Université de Toulouse	Directeur
Hubert PIQUET	PR, INP Toulouse	Invité

---

École doctorale et spécialité :

*GEET : Génie Electrique*

Unité de Recherche :

*LAPLACE UMR 5213*

Directeur de Thèse :

*Nicolas Naudé, Maître de Conférences à l'Université de Toulouse*



# Remerciements

*Je tiens à adresser en premier lieu mes remerciements à mon directeur de thèse Nicolas NAUDÉ. Il n'a pas simplement accepté de diriger ma thèse; il m'a transmis la passion de la recherche et n'a eu de cesse de m'encourager et de me soutenir durant ces trois années. J'ai pu apprécier non seulement ses compétences mais aussi ses qualités humaines. J'en profite pour lui exprimer ici ma plus profonde gratitude.*

*Je remercie très sincèrement Nicolas GHERARDI pour sa grande disponibilité, ses conseils et ses précieuses remarques ainsi que ces qualités humaines, Merci sincèrement.*

*C'est également un très grand honneur d'avoir comme rapporteurs, monsieur, Dunpin HONG et monsieur Nicolas SOULEM. Je tiens donc à les remercier pour avoir pris le temps de lire mon manuscrit afin d'établir un rapport détaillé.*

*Je tiens à remercier monsieur Stéphane PASQUIERS et monsieur Jean-Pascal CAMBRONNE d'avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse.*

*Je remercie Hubert PIQUET pour avoir participé à ce jury, mais aussi pour les nombreuses discussions enrichissantes durant ces trois années de thèse, ainsi que pour ses qualités humaines.*

*Un grand merci à Xavier BONNIN pour notre collaboration qui s'est très bien passé. Bon courage pour la suite.*

*Mes remerciements vont bien entendu à l'équipe MPP pour les conseils et l'intérêt porté à ce travail, mais surtout pour les nombreuses discussions "extra-professionnelles" et de la bonne ambiance. Je ne pourrai pas voter pour Le CGC 2014, dommage :p.*

*Je tiens également à remercier tous mes camarades du laboratoire, à l'UPS comme à L'N7 pour leur soutien, leur disponibilité et leur sympathie. Sans oublier mes amis en dehors du laboratoire qui m'ont soutenu pour ce travail.*

*Je voudrais ajouter mes remerciements à toute ma famille qui pense toujours à moi, mes frères mes sœurs, mes oncles, ... sans oublié ma belle famille, c'est en grande partie grâce à eux si je suis arrivé jusque là, merci infiniment.*

*Enfin, Je remercie du fond du cœur mon épouse Sara pour sa patience et son soutien durant cette aventure. Merci pour l'attention qu'elle me porte, c'est grâce à elle que j'ai pu aller au bout. Encore merci pour tout.*



**TABLE DES MATIERES**

<b>INTRODUCTION GENERALE .....</b>	<b>3</b>
<b>Chapitre I : Généralités.....</b>	<b>7</b>
<b>I. Qu'est-ce qu'un plasma froid ? .....</b>	<b>7</b>
<b>II. Traitement de surface réalisés par plasmas froids .....</b>	<b>9</b>
<b>III. Comment éviter la transition à l'arc à la pression atmosphérique ?.....</b>	<b>10</b>
III-1. Diminution du produit $p.d$ .....	10
III-2. Utilisation de l'effet couronne.....	11
III-3. Insertion d'une barrière diélectrique .....	11
III-4. Cas des décharges nanosecondes répétitives pulsées.....	12
<b>Chapitre II : Dispositif expérimental .....</b>	<b>15</b>
<b>I. Description du dispositif expérimental.....</b>	<b>15</b>
I-1. Enceinte et cellule de décharge .....	16
I-2. Système de pompage et d'injection de gaz .....	17
I-3. Système d'excitation électrique.....	19
<b>II. Outils de caractérisation .....</b>	<b>20</b>
II-1. Caractérisation électrique .....	20
II-2. Caractérisation Optique.....	28
II-3. Mesure de température .....	33
<b>Chapitre III : Décharges à barrières diélectriques dans l'azote à la pression atmosphérique .....</b>	<b>35</b>
<b>I. Décharge filamentaire .....</b>	<b>35</b>
I-1. Principe de fonctionnement d'une DBD.....	35
I-2. Mécanisme de claquage de type streamer .....	36
I-3. Caractéristiques électriques et optiques d'une décharge à barrière diélectrique filamentaire .....	38
<b>II. Décharge de Townsend à la pression atmosphérique.....</b>	<b>39</b>
<b>III. Caractéristiques de la décharge de Townsend.....</b>	<b>41</b>
<b>IV. Mécanismes à l'origine de l'obtention d'une décharge homogène dans l'azote .....</b>	<b>44</b>
IV-1. Rappels sur le mécanisme de claquage de type Townsend.....	44
IV-2. Obtention d'un claquage de type Townsend à pression atmosphérique .....	46

<b>Chapitre IV : Etude de l'Effet mémoire dans une DTPA.....</b>	<b>51</b>
<b>I. Comportement global de la décharge en présence de faibles quantités de O<sub>2</sub></b>	<b>51</b>
.....	
I-1. Etude électrique.....	51
I-2. Etude spectroscopique .....	55
<b>II. Effet de l'ajout de NO sur le comportement global de la décharge .....</b>	<b>59</b>
<b>III. Evolution en fonction de la position dans la décharge .....</b>	<b>61</b>
III-1. Cas de l'ajout de NO .....	63
III-2. Cas de l'ajout de O <sub>2</sub> .....	71
<b>IV. Discussion .....</b>	<b>73</b>
<b>V. Synthèse .....</b>	<b>76</b>
<b>Chapitre V : Optimisation du transfert de la puissance dans une DTPA .....</b>	<b>79</b>
<b>I. Problématique : Limitation de la puissance dans une DTPA .....</b>	<b>80</b>
<b>II. Influence des matériaux diélectriques .....</b>	<b>83</b>
II-1. Caractéristiques des matériaux diélectriques utilisés .....	84
II-2. Cas particulier des matériaux à forte permittivité .....	85
II-3. Influence de la valeur de la capacité équivalente des diélectriques solide .....	88
II-4. Discussion.....	94
<b>III. Optimisation de l'alimentation.....</b>	<b>96</b>
III-1. Topologie et fonctionnement de l'alimentation en courant .....	97
III-2. Comparaison alimentation en courant vs alimentation en tension .....	100
III-3. Discussion .....	105
<b>IV. Synthèse .....</b>	<b>110</b>
<b>CONCLUSION GENERALE.....</b>	<b>111</b>
<b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....</b>	<b>115</b>

## **INTRODUCTION GENERALE**

Les procédés de traitement de surface basés sur les plasmas froids sont couramment utilisés dans l'industrie pour le dépôt de couches minces. Ces procédés basses pressions nécessitent l'emploi d'un réacteur étanche et d'un groupe de pompage, limitant les dimensions des surfaces pouvant être traitées et empêchant les traitements en lignes.

Une alternative consiste à utiliser des plasmas froids établis à la pression atmosphérique. A cette pression, appliquer une différence de potentiel entre deux électrodes métalliques pour établir une décharge électrique peut conduire au régime d'arc, qui est localisé et entraîne une très forte élévation de température bien souvent synonyme de destruction du matériau à traiter. Pour éviter ce passage à l'arc, une solution consiste à placer un diélectrique solide dans le passage du courant entre les électrodes métalliques. Les décharges ainsi générées sont appelées « Décharges contrôlées par Barrière Diélectrique » (DBD). En régime normal de fonctionnement (et pour des distances inter-électrodes millimétriques), une DBD est composée d'une multitude de micro-décharges s'établissant perpendiculairement aux électrodes. Ces micro-décharges, dues à un claquage de type streamer, ont une durée de vie inférieure à la centaine de nano-secondes et un diamètre de l'ordre de 100  $\mu\text{m}$ . Le caractère filamentaire de ces décharges les rend peu efficaces pour traiter des surfaces de manière homogène. En effet, chaque micro-décharge se développant de manière autonome et aléatoire, il est très difficile d'en contrôler l'énergie propre et la localisation.

Néanmoins, depuis le début des années 90, des travaux réalisés quasiment simultanément au Japon, en France et aux Etats-Unis ont permis d'obtenir, dans le cas des DBD à pression atmosphérique, des décharges homogènes similaires à celles obtenues à basse pression. Ces DBD homogènes, qui ont par la suite été utilisées avec succès pour la réalisation de dépôts de couches minces, présentent un intérêt évident pour le développement de procédé de traitement de surface à pression atmosphérique. Cependant, le principal frein au développement industriel de ce type de procédé est la vitesse de dépôt qui est actuellement trop faible.

Ainsi, cette étude a deux objectifs. Le premier est l'amélioration de la compréhension des mécanismes permettant d'obtenir la décharge homogène en gaz vecteur azote,

appelée décharge de Townsend à la pression atmosphérique (DTPA). Le second concerne l'optimisation du transfert de puissance dans ce type de décharge tout en restant en régime homogène.

L'ensemble du travail est présenté en cinq chapitres. Le premier chapitre permet de définir le contexte global de ce travail. Après avoir décrit ce qu'est un plasma froid, nous décrivons les différents traitements de surfaces réalisables avec ce type de plasma. Enfin, nous terminons ce chapitre par la présentation des différentes solutions permettant d'éviter la transition à l'arc dans le cas d'une décharge électrique réalisée à pression atmosphérique.

Au second chapitre, nous décrivons le dispositif expérimental ainsi que les outils de caractérisation électrique et optique de la décharge.

L'objet du troisième chapitre est de présenter le fonctionnement des décharges à barrières diélectriques obtenues dans l'azote. Pour cela, nous commençons par décrire le régime de décharge filamentaire qui correspond au fonctionnement « normal » d'une décharge à barrière diélectrique. Nous nous intéressons ensuite à la décharge de Townsend qui peut être obtenue dans certaines conditions et qui a la particularité d'être homogène radialement. Après avoir décrit les caractéristiques électriques et optiques de cette décharge, nous nous focalisons sur les mécanismes à l'origine de ce régime de décharge.

Le quatrième chapitre est consacré à l'étude de l'effet mémoire d'une décharge à la suivante, effet mémoire nécessaire à l'établissement d'une décharge de Townsend. Pour cela, nous étudions l'influence de l'ajout de faibles quantités de dioxygène et de monoxyde d'azote dans l'azote. Cette étude est réalisée en couplant des mesures électriques avec de l'imagerie spectroscopique. La particularité est que les deux types de mesure sont résolus spatialement et temporellement. Pour cela, l'électrode de masse a été fractionnée en diminuant au maximum la distance entre deux zones consécutives afin que cela ne perturbe pas la décharge et un système d'acquisition permettant de mesurer simultanément huit courants a été mis en place.



Enfin, dans le dernier chapitre, nous nous focalisons sur l'optimisation du transfert de puissance dans une décharge de Townsend à pression atmosphérique. Nous présentons d'abord l'influence des matériaux diélectriques utilisés sur le comportement de la décharge, son domaine de fonctionnement et la puissance maximale en régime homogène. Puis, nous utilisons une alimentation en courant développée au LAPLACE qui permet d'accroître de manière importante la puissance transférée à la décharge tout en maximisant l'effet mémoire d'une décharge à la suivante.



---

## Chapitre I : GENERALITES

L'objectif de ce travail est l'étude d'une Décharge à Barrière Diélectrique (DBD) homogène à pression atmosphérique dans l'optique du développement d'un procédé de traitement de surface.

Ce chapitre a pour but de définir le contexte global de cette étude : après avoir défini ce qu'est un plasma froid, nous décrirons les différentes applications de traitements de surfaces pour lesquelles un plasma froid peut être utilisé, et nous continuerons avec la description des spécificités engendrées par l'utilisation de la pression atmosphérique.

### I. QU'EST-CE QU'UN PLASMA FROID ?

Les plasmas constituent le quatrième état de la matière, faisant suite, dans l'échelle des températures, aux trois états classiques : solide, liquide et gaz. En théorie, un plasma est un gaz totalement ionisé dans lequel on a macroscopiquement la neutralité électrique. En réalité et par abus de langage, on désigne par le terme plasma tous les gaz ionisés quel que soit leur degré d'ionisation  $\alpha$  (Eq I-1). Celui-ci varie dans des proportions très importantes suivant la nature du plasma considéré : de  $10^{-8}$  pour des plasmas de décharge à faible intensité à 1 pour les plasmas, complètement ionisés, de fusion (plasma thermonucléaire, étoiles, etc.). Un plasma étant un milieu énergétique il peut contenir les diverses espèces suivantes : électrons, ions positifs et négatifs, photons, atomes, neutres (atomes ou molécules) excités ainsi que des fragments de molécules dissociées appelées radicaux [1].

$$\alpha = \frac{n_e}{n_e + n_0} \quad \text{Eq I-1}$$

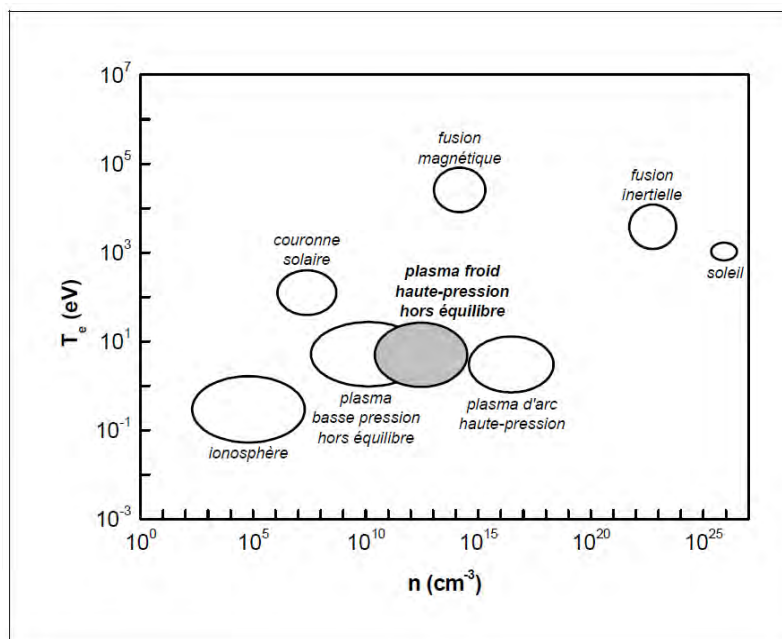
*Avec :  $n_e$  : nombre d'électrons libres par unité de volume,  $n_0$  : nombre de neutres par unité de volume.*

Sur Terre, on ne rencontre pas de plasma à l'état naturel si ce n'est dans la foudre et les aurores boréales. En effet, à température ambiante et à l'équilibre, les gaz ne sont pratiquement pas ionisés. Un premier moyen de créer un plasma consiste à élever la

température du gaz. Cela conduit à un milieu à l'équilibre thermodynamique, c'est à dire dans lequel toutes les particules (électrons, ions, neutres) ont la même température. Il est également possible de créer un plasma par application d'un champ électrique au milieu. On parlera alors de plasma créé par décharge électrique. Le champ électrique a pour effet d'accélérer les électrons libres à des énergies suffisantes pour qu'ils puissent, par collision, ioniser les molécules. On a alors un phénomène d'avalanche électronique qui peut, si le champ est suffisamment élevé, conduire à la formation d'un plasma et à la création d'un canal conducteur entre les électrodes. Suivant la puissance dissipée, le plasma peut être :

- proche de l'équilibre thermodynamique : ce qui se traduit par une température électronique  $T_e$  proche de la température du gaz  $T_g$ .
- ou hors équilibre thermodynamique : dans ce cas, la température électronique  $T_e$  est très grande comparée à la température du gaz  $T_g$ . On parle alors de plasma froid. Dans ces conditions, le plasma est faiblement ionisé. Le degré d'ionisation (Eq I-1) reste inférieur à  $10^{-4}$ . C'est ce type de plasma qui fait l'objet de cette thèse.

La Figure I-1 présente les différents types de plasma en fonction de leurs températures électroniques et densités respectives. Par la suite, nous nous focaliserons sur les plasmas froids hors équilibre à pression atmosphérique.



**Figure I-1 : Température électronique des principaux types de plasma en fonction de leurs densités électroniques**

## II. TRAITEMENT DE SURFACE REALISES PAR PLASMAS FROIDS

Un traitement de surface a pour objectif de conférer de nouvelles propriétés de surface au matériau, tout en conservant les propriétés volumiques du matériau de base. Les plasmas froids présentent un fort potentiel pour cette application. En effet, si les espèces énergétiques qui sont créées dans le plasma (photons, ions, molécules ou atomes excités) ont assez d'énergie pour casser des liaisons à la surface, elles n'en n'ont pas suffisamment pour pénétrer dans le matériau au-delà de quelques dizaines de nm. De plus contrairement aux procédés chimiques en voie humide, l'impact environnemental des procédés utilisant des plasmas froids est minime.

Les applications des procédés plasma sur les matériaux ont été principalement poussées et améliorées par l'industrie de la microélectronique depuis la fin des années 1960, principalement au niveau du **dépôt** de couches minces de matériaux [2] et du **décapage/gravure** par plasma de semi-conducteurs et métaux, appelée **ablation légère** pour les polymères tels que des résines photosensibles [3][4]. Contrairement au dépôt ou à la gravure, où un matériau est ajouté ou enlevé de la surface, un troisième type de procédé plasma de traitement de surface – la **modification** ou l'**activation** de surface – ne fait ni l'un ni l'autre de façon significative. En fait, seules la composition et la structure de quelques couches moléculaires de la surface sont modifiées par le plasma. Quelques exemples de propriétés recherchées dans ce dernier cas sont une augmentation de la mouillabilité, une amélioration de l'adhésion, ou une meilleure biocompatibilité. Pour ces applications, la densité des groupements chimiques (en particulier polaires) sur la propriété voulue est évidemment importante. Par contre, l'identité exacte des groupements polaires greffés en surface n'est pas toujours essentielle. Néanmoins, quand un groupement spécifique (COOH, NH<sub>2</sub>, etc.) est visé, on ne parle plus de simple modification, mais de **fonctionnalisation** de surface [5][6].

Aujourd'hui l'ensemble de ces procédés se sont imposés dans de nombreux domaines industriels (micro-électronique, agro-alimentaire, aérospatial, ...). Après avoir été principalement cantonnés aux procédés à basse-pression nécessitant l'emploi d'un système de pompage souvent coûteux et peu adapté à la réalisation d'un traitement en ligne, les procédés de traitements de surfaces par plasmas froids à pression atmosphérique sont en plein essor. Le principal avantage est de pouvoir les insérer

directement dans une chaîne de production et donc de traiter des grandes surfaces. C'est ce type de plasma qui est l'objet de cette étude.

### III. COMMENT EVITER LA TRANSITION A L'ARC A LA PRESSION ATMOSPHERIQUE ?

Le principal inconvénient des plasmas à pression atmosphérique pour les traitements de surface précités résulte du fait que le libre parcours moyen est beaucoup plus faible qu'à basse pression. Ainsi, lors de l'application d'une différence de potentiel entre deux électrodes métalliques, on obtient un plasma très localisé qui tend rapidement vers l'équilibre thermodynamique. On est alors en présence d'un arc électrique dont la température peut dépasser 20000 K [7] ce qui peut entraîner la destruction du matériau à traiter.

Il existe néanmoins des solutions pour éviter la transition à l'arc et maintenir la température de la décharge électrique proche de la température ambiante. Nous décrirons ici les principales solutions en se focalisant par la suite sur les Décharges à Barrières Diélectriques (DBD).

#### III-1. Diminution du produit $p.d$

Le mécanisme de rupture d'un gaz ne dépend pas uniquement de la pression de travail mais plutôt de la valeur du produit pression  $\times$  distance inter-électrodes ( $p.d$ ). Pour des valeurs du produit  $p.d$  inférieures à quelques dizaines de Torr.cm, généralement le claquage est de type Townsend ce qui peut conduire à une décharge homogène de grand rayon [1], alors que pour des valeurs du produit  $p.d$  plus élevées, le claquage observé est normalement de type streamer ce qui conduit à une décharge de faible rayon très énergétique et non homogène [1].

Ainsi, à pression atmosphérique, diminuer la distance inter-électrodes peut permettre d'éviter la transition à l'arc. C'est la technique utilisée dans le cas des MicroHollow Cathode Discharges (MHCD) [8] dont le diamètre est typiquement de l'ordre de la centaine de  $\mu\text{m}$ , ce qui conduit à un produit  $p.d$  similaire à ceux obtenus à basse pression et donc à un claquage de type Townsend comme classiquement observé à basse pression. Cependant, compte tenu des dimensions géométriques de ce type de décharge, son utilisation pour un traitement de surface homogène nécessite de multiplier de manière très importante le nombre de cellules afin d'obtenir une surface conséquente.

---

Ce type de décharge n'est donc pas très adapté au traitement de grandes surfaces. Par contre, les MHCD sont parfaitement adaptées au « patterning » et aux traitements sur de petites échelles [9].

### III-2. Utilisation de l'effet couronne

L'utilisation d'une électrode ayant un rayon de courbure faible devant la distance inter-électrodes permet d'obtenir une répartition non homogène du champ électrique appliqué sur le gaz. Ainsi, dépendamment de l'amplitude de la tension appliquée, du rayon de courbure, et de la distance entre les électrodes, il est possible dans cette configuration de localiser la décharge près de l'électrode de faible rayon de courbure, dans la zone où le champ électrique est supérieur au champ de rupture du gaz. Ceci permet d'éviter la formation d'un canal conducteur entre les deux électrodes et par conséquent la transition à l'arc. C'est le principe des décharges couronnes qui peuvent par exemple fonctionner en configuration pointe-plan ou fil-cylindre [10][11][12].

### III-3. Insertion d'une barrière diélectrique

La solution la plus robuste et la plus utilisée pour éviter la transition à l'arc à pression atmosphérique consiste à insérer au moins un diélectrique solide entre les deux électrodes[13][14][15]. On parle alors de Décharge à Barrière Diélectrique (DBD) dont les premiers travaux remontent à 1857 pour la synthèse d'ozone par Siemens [16]. Le principe de fonctionnement de ce type de décharge, explicité en détails dans le chapitre III, est brièvement décrit ici : suite à l'application d'une tension suffisante sur les électrodes, une décharge électrique s'amorce, ce qui induit une accumulation de charges sur la surface du diélectrique, et donc l'apparition d'une tension à ses bornes. L'augmentation de cette tension au fur et à mesure du développement de la décharge entraîne une chute de la tension appliquée sur le gaz, ce qui conduit à l'extinction de la décharge avant le passage à l'arc.

La Figure I-2 représente les configurations typiques de DBD. La configuration plan-plan (a) de la Figure I-2 présente l'avantage d'éviter tout contact entre le plasma et les électrodes, condition parfois utile lors de l'utilisation d'un plasma corrosif par exemple. C'est cette configuration qui fait l'objet de cette étude et qui est souvent utilisée pour les dépôts de couches minces. La configuration (b) permet l'obtention simultanée de deux décharges de part et d'autre du diélectrique qui peut même être le matériau à traiter.

Enfin la configuration cylindrique (c) est particulièrement adapté aux traitements des gaz ou à la génération d'UV [14].

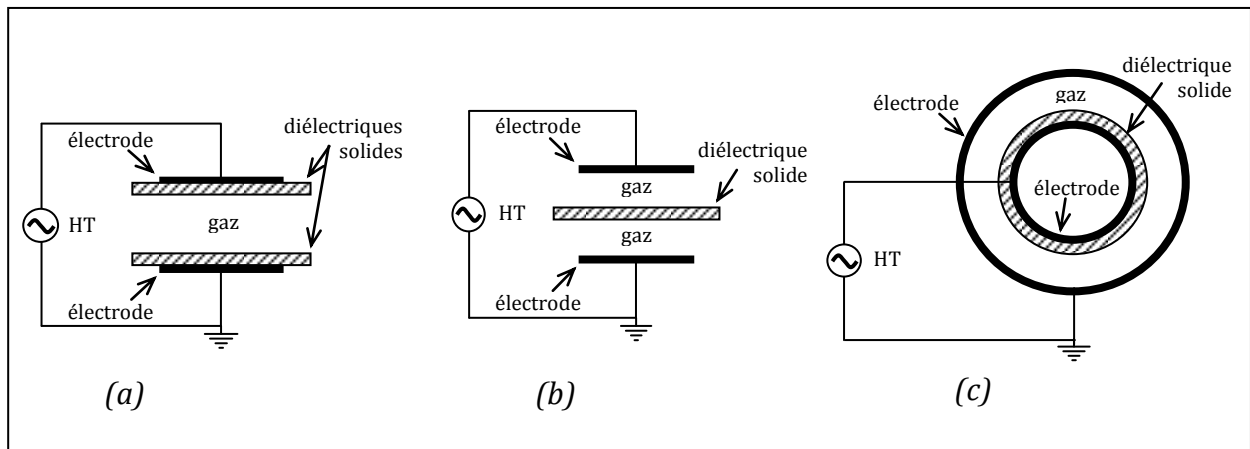


Figure I-2 : Différentes configurations de décharges à barrières diélectriques (DBD)

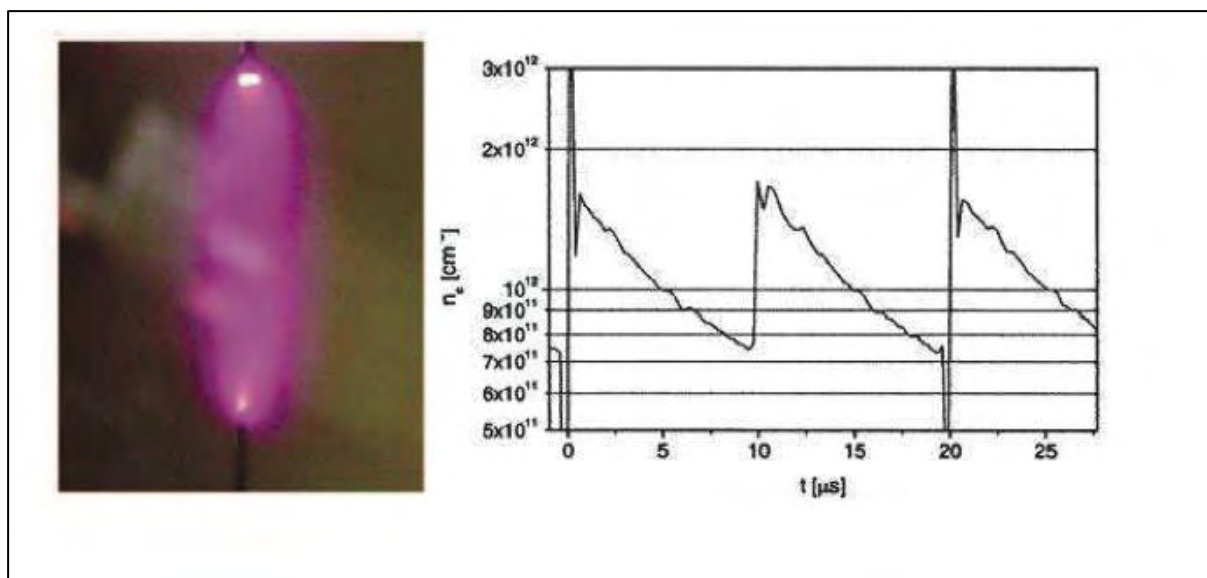
Etant donné que la couche de diélectrique empêche un courant continu de circuler dans le circuit, les DBD sont excitées par une tension alternative ayant généralement une fréquence de quelques kHz et une amplitude pouvant aller de quelques centaines de volts à quelques dizaines de kV en fonction du gaz et de la distance inter-diélectriques. Compte tenu du fait que le produit pression x distance est élevé, le mécanisme de claquage généralement observé est de type streamer ce qui conduit à un régime de décharge filamentaire (cf Chapitre III). Ainsi, les DBD sont normalement constituées de micro-décharges de petites dimensions (quelques centaines de micromètres de diamètre) réparties sur toute la surface des électrodes. Nous verrons par la suite qu'il est néanmoins possible dans certaines conditions d'obtenir des décharges homogènes similaires à celles réalisées à basse-pression. C'est ce type de décharge qui fait l'objet de cette étude.

#### III-4. Cas des décharges nanosecondes répétitives pulsées

Ce type de décharge, mis en œuvre au début des années 2000 [17] consiste à utiliser une alimentation pulsée, dont la durée d'impulsion est suffisamment courte (typiquement une dizaine de nanosecondes) pour que le champ électrique appliqué aux électrodes soit stoppé avant le passage à l'arc. La combinaison de ce pulse de tension ultra-rapide et d'une cadence de répétition suffisamment élevée (jusqu'à la centaine de kHz) permet de plus l'accumulation d'espèces actives dans le gaz entre chaque décharge. Un exemple de



cette décharge, générée entre deux pointes métalliques dans l'air préchauffé à 2000 K, est illustré sur la Figure I-3. On peut également observer la variation temporelle de la densité électronique pendant trois cycles de cette décharge. La densité varie de  $7 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$  à  $1,7 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ , avec une valeur moyenne autour de  $10^{12} \text{ cm}^{-3}$ .



**Figure I-3 : Photographie d'une décharge nanoseconde répétitive pulsée dans l'air à 2000 K, pression atmosphérique (gauche) et évolution temporelle de la densité électronique mesurée (droite). Gap gazeux : 1 cm, Amplitude de la tension : 6 kV, Fréquence de répétition : 100 kHz [17]**



## Chapitre II : **DISPOSITIF EXPERIMENTAL**

Dans ce chapitre, nous présentons le dispositif expérimental utilisé durant cette thèse ainsi que les différents outils de caractérisation de la décharge utilisés.

### I. **DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL**

La Figure II-1 présente une photographie globale du dispositif expérimental.

Il est constitué de trois parties principales :

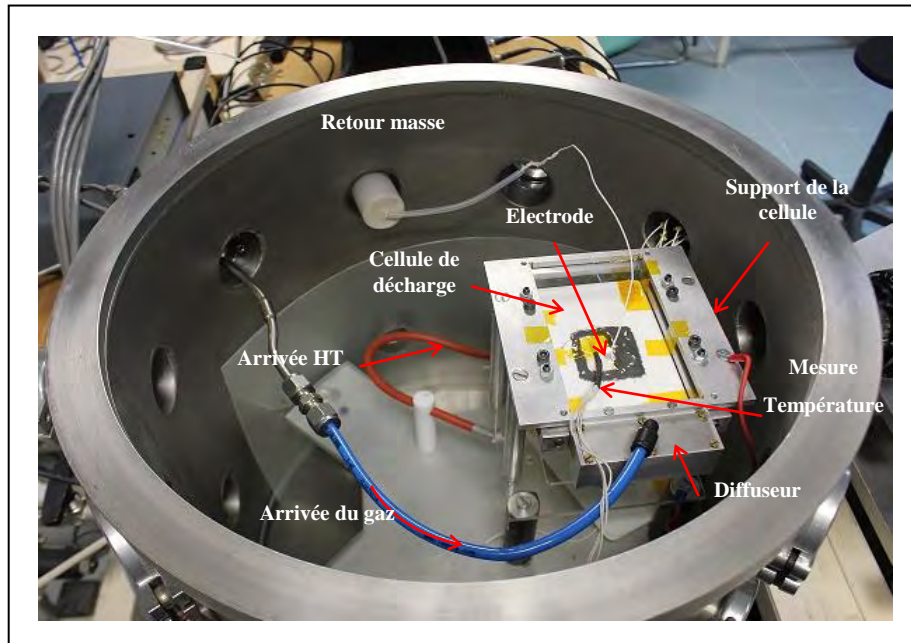
- L'enceinte et la cellule de décharge,
- le système de pompage et d'injection de gaz,
- le système d'excitation électrique.



*Figure II-1 : Photographie globale du dispositif expérimental*

### I-1. Enceinte et cellule de décharge

La Figure II-2 montre le réacteur utilisé lors des essais : c'est une enceinte cylindrique en acier inoxydable de 350 mm hauteur et 330 mm de diamètre, avec un volume total de 32 litres.



*Figure II-2: Photographie de l'intérieur de l'enceinte montrant la cellule de décharge*

L'enceinte comporte plusieurs passages étanches permettant d'assurer les connexions avec le système de pompage et d'injection de gaz, l'alimentation électrique ainsi que pour les outils de diagnostics.

L'accès à l'intérieur de l'enceinte se fait par une ouverture complète du couvercle supérieur. La cellule de décharge, présente à l'intérieur de l'enceinte, est constituée de deux plaques diélectriques de forme rectangulaire placées en vis-à-vis et métallisées en face arrière par un dépôt de peinture sérigraphique à base d'un mélange Argent – Palladium (Figure II-3). Afin d'assurer une parfaite adhésion de la couche conductrice, l'ensemble alumine-peinture est recuit à 900°C pendant dix minutes. Les diélectriques utilisés sont des aluminés de type AD-96 ( $\text{Al}_2\text{O}_3$  à 96%), dont les dimensions suivantes sont les suivantes : 115 mm en longueur et 70 mm de largeur avec une épaisseur de 635  $\mu\text{m}$ . Les électrodes ont une surface de 9  $\text{cm}^2$  avec une forme carrée de 3 cm par 3 cm.

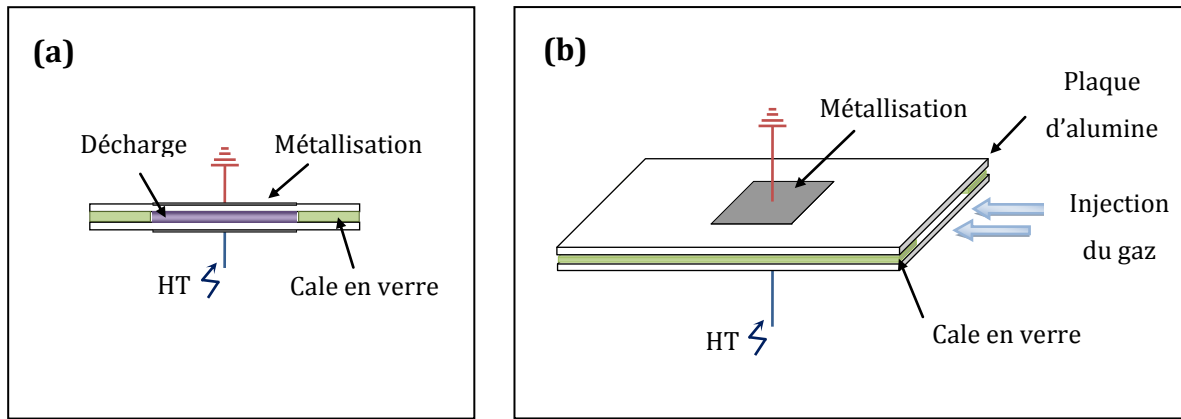


Figure II-3 : Schémas de la cellule de décharge : (a) Vue de coupe. (b) vue en 3D.

L'électrode inférieure est connectée à la haute-tension alors que l'électrode supérieure est connectée à la masse par l'intermédiaire d'une résistance de  $200 \Omega$ . Les connexions électriques sont réalisées par soudure à froid (résine époxy conductrice EPO-TEK 4110G). La distance inter-diélectriques (gap gazeux) est fixée à 1 mm à l'aide de cales en verre de part et d'autre de la zone de décharge. Ces cales permettent également de guider le flux de gaz entre les deux diélectriques afin de renouveler le gaz dans la zone de décharge.

L'ensemble est fixé sur un support métallique qui permet de maintenir la cellule de décharge horizontalement en face d'un hublot en quartz pour permettre la réalisation des diagnostics optiques (Figure II-2).

## I-2. Système de pompage et d'injection de gaz

Dans le cas d'une application industrielle, le système de décharge peut être utilisé en réacteur ouvert. Cependant, cela nécessite une conception particulière de la cellule de décharge, en particulier en ce qui concerne les injections de gaz, ceci afin d'assurer un bon contrôle de l'atmosphère gazeuse dans la zone de décharge. Ces techniques, maîtrisées par les équipementiers sont difficilement transposables à un laboratoire de recherche. Ainsi, le contrôle de l'atmosphère gazeuse est assuré via l'utilisation d'une enceinte fermée, permettant un dégazage de la zone de travail avant introduction des gaz souhaités. Ce dégazage est effectué au moyen d'une pompe primaire à palette Leybold TRIVAC couplée à une pompe turbo-moléculaire Leybold TURBOVAC. Le vide obtenu est inférieur à  $10^{-3}$  mbar en quelques minutes.

Deux jauges de pression permettent de couvrir le domaine des pressions comprises entre  $10^{-3}$  et 1000 mbar : une jauge Balzers APR 010 fonctionnant entre 1 et 1500 mbar et une jauge Leybold TR 211 pour les pressions allant de  $10^{-3}$  à 1 mbar.

La Figure II-4 présente un schéma global du système de pompage et de distribution des gaz.

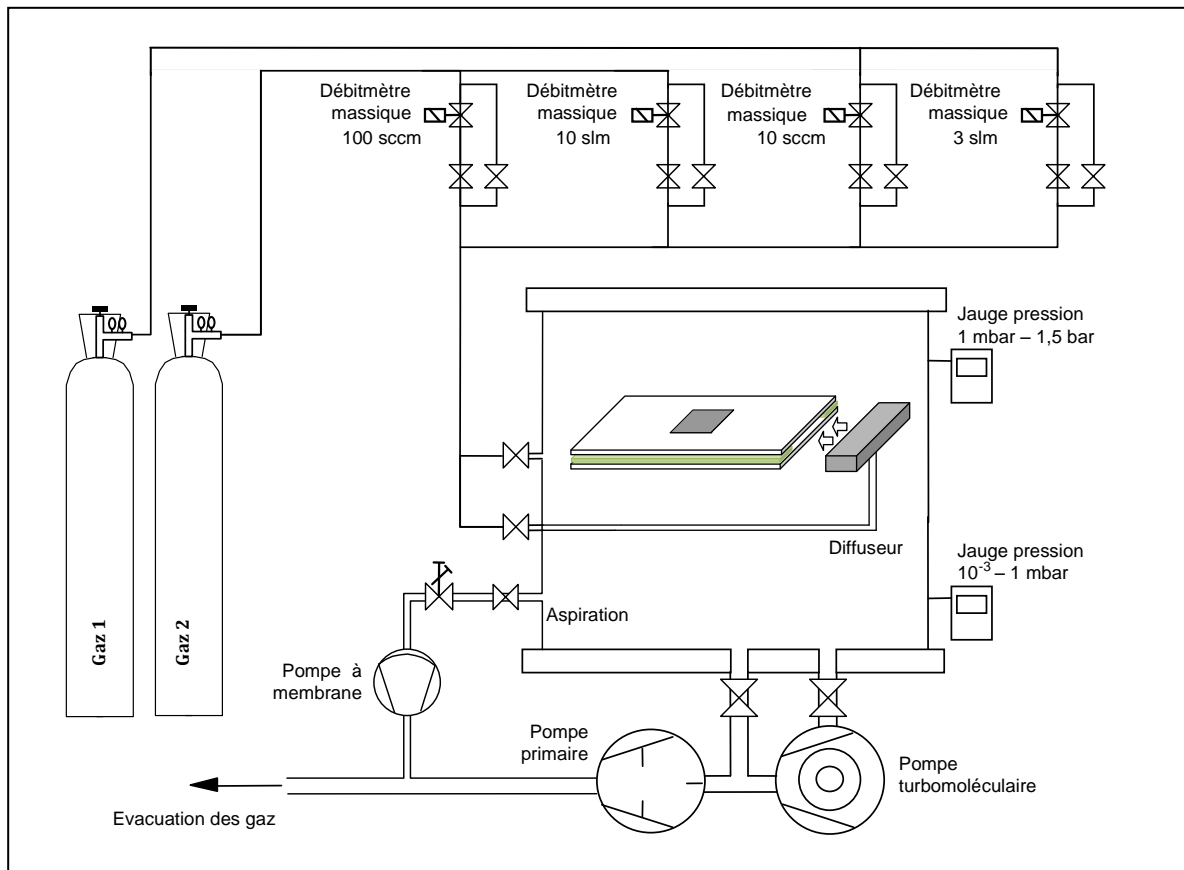


Figure II-4 : Schéma global du système de pompage et d'alimentation en gaz

Le dispositif d'introduction des gaz est constitué de deux lignes de gaz sur lesquelles se trouvent deux débitmètres massiques par ligne. Ceci permet de réaliser des mélanges de gaz dans des proportions allant de quelques ppm à plusieurs %. Les différents gaz utilisés lors de cette étude proviennent de la société Air Liquide, il s'agit de :

- N<sub>2</sub> Alphagaz 1 (H<sub>2</sub>O < 3 ppm, O<sub>2</sub> < 2 ppm),
- N<sub>2</sub> Alphagaz 2 (H<sub>2</sub>O < 0.5 ppm, O<sub>2</sub> < 0.1 ppm),
- Air Alphagaz 1 (H<sub>2</sub>O < 3 ppm, CO<sub>2</sub> < 1 ppm),
- N<sub>2</sub>O N48 (H<sub>2</sub>O < 3 ppm, O<sub>2</sub> < 2 ppm, CO<sub>2</sub> < 2 ppm, N<sub>2</sub> < 10 ppm),
- Mélange NO/N<sub>2</sub> (900ppm de NO, ref OTO-ST29).

Le débit total de gaz injecté pour renouveler le gaz dans la zone de décharge est typiquement de l'ordre du  $\text{l.min}^{-1}$ . Le gaz est injecté entre les électrodes via un diffuseur de gaz permettant d'homogénéiser l'injection du gaz sur la largeur des électrodes. Pendant la décharge, la pression dans l'enceinte est maintenue constante (à une valeur de 1 bar) à l'aide d'un système de régulation de pression utilisant une électrovanne reliée à une pompe à membrane ( $30 \text{ l.min}^{-1}$ ).

### I-3. Système d'excitation électrique

Le système d'alimentation électrique est présenté sur la Figure II-5.

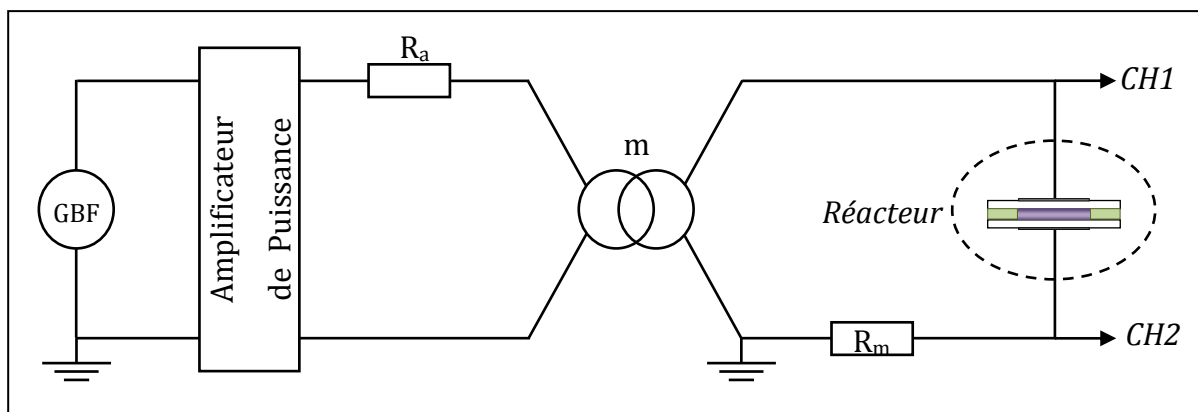


Figure II-5 : Système d'excitation électrique de la décharge

Un générateur de fonction Agilent 33210 A permet de fournir le signal de référence qui est envoyé directement à l'entrée d'un amplificateur de puissance linéaire Crest Audio modèle CA 18 prévu pour fonctionner dans la bande passante de 20 Hz à 20 kHz et dont la fréquence de coupure à -3 dB est de 150 kHz. L'amplificateur audio possède deux canaux, dont la puissance en mode bridgé peut atteindre 4,8 kVA. Une résistance de protection de  $4 \Omega$  se trouve en série avec le primaire du transformateur élévateur de tension de la société Montoux ( $S= 600 \text{ VA}$ ,  $60 \text{ V}/9 \text{ kV}$ ). Ce transformateur est conçu pour être utilisé dans la gamme de fréquence de 1 à 20 kHz. Au secondaire du transformateur, la cellule de décharge est connectée en série avec une résistance shunt qui permet la mesure du courant.

## II. OUTILS DE CARACTERISATION

Dans cette partie, nous présentons les différents outils de caractérisation électriques et optiques de la décharge utilisés pour cette étude.

### II-1. Caractérisation électrique

L'étude des mesures électriques peut donner des renseignements précieux sur le fonctionnement d'une décharge électrique, à condition de pouvoir déterminer la tension réellement appliquée sur le gaz et le courant de décharge. Dans le cas d'une DBD, ces grandeurs ne sont pas directement mesurables et doivent être déterminées à partir d'un schéma électrique équivalent de la cellule de décharge.

Dans un premier temps, nous présenterons les mesures électriques réalisées. Puis nous décrirons le circuit électrique équivalent à la cellule de décharge et les relations liant les grandeurs électriques de la décharge aux mesures réalisées. Enfin dans une dernière partie, nous présenterons le dispositif développé afin de mesurer le courant local dans la décharge.

#### II-1-1. Mesures électriques

Par contrainte physique de mesure, seules deux grandeurs peuvent être mesurées directement, le courant transmis à la cellule de décharge et la tension à ses bornes. Le courant est déduit de la mesure de la tension aux bornes de la résistance  $R_m$  de 200  $\Omega$  placée en série avec la cellule (Figure II-5). Tandis que la tension appliquée sur les électrodes est mesurée à l'aide d'une sonde haute-tension Tektronix P6015 dont la bande passante est de 75 MHz. La

Figure II-6 montre un exemple de mesure du courant et de la tension appliquée dans une décharge à barrière diélectrique filamentaire.

Par l'intermédiaire des câbles coaxiaux, ces deux signaux sont transmis à un oscilloscope numérique de marque LeCroy modèle WaveSurfer HRO 66Zi dont la bande passante est de 600 MHz avec une résolution verticale de 12 bits. Ce dernier est relié via une liaison Ethernet à un micro ordinateur afin d'effectuer des acquisitions et des traitements en quasi temps réel à l'aide d'un programme sous le logiciel Labview développé au sein de l'équipe.



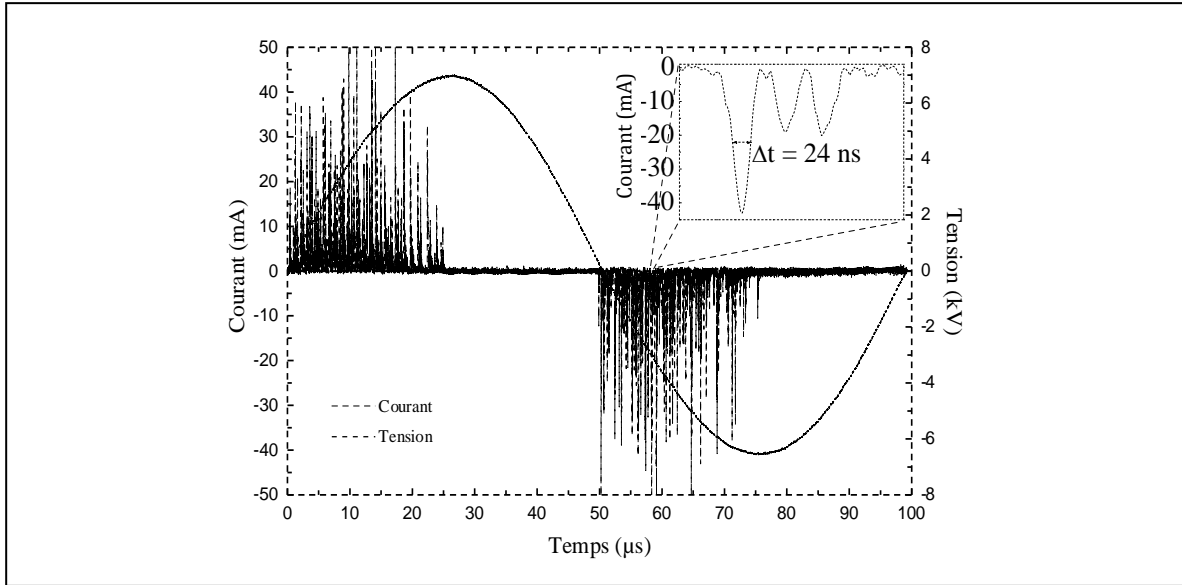


Figure II-6 : Oscillogramme d'une décharge filamentaire ( $V=13kV_{CC}$ ,  $f=10$  kHz) [18]

### II-1-2. Circuit électrique équivalent de la cellule de décharge

La Figure II-7 présente le circuit électrique équivalent de la cellule de décharge.

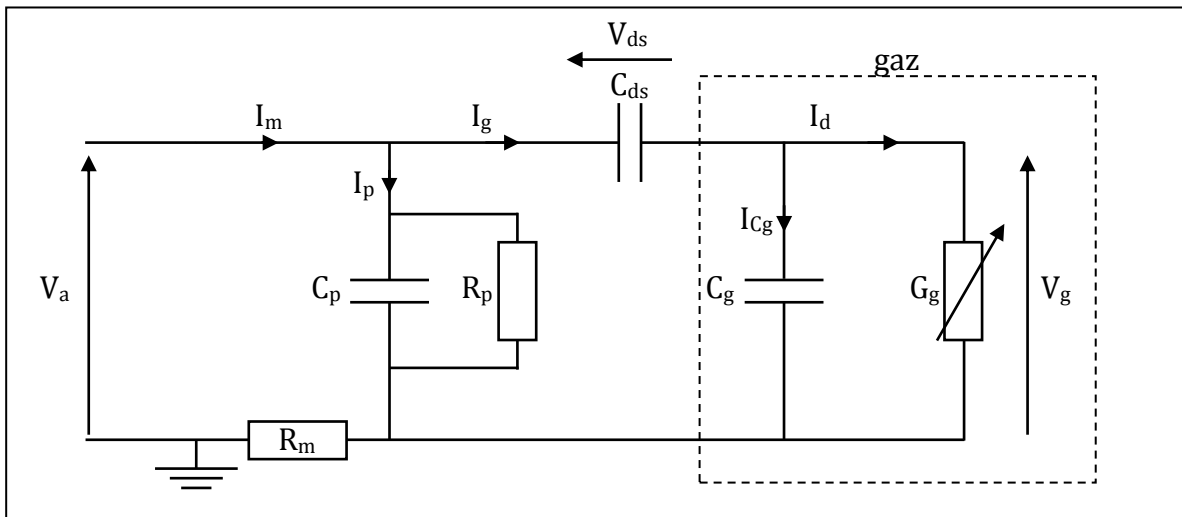


Figure II-7 : Schéma électrique équivalent de la cellule décharge

L'espace gazeux est représenté par les éléments  $C_g$  et  $G_g$  en parallèle. Le gaz non claqué est modélisé par la capacité du gaz notée  $C_g$ , tandis que la variation de conductivité du

gaz lors de l'amorçage de la décharge est prise en compte au moyen de la conductance  $G_g$  en parallèle avec la capacité  $C_g$ . Ainsi comme le montre la Figure II-7, le courant,  $I_g$ , correspondant au courant gaz peut également être décomposé en 2 parties :  $I_{Cg}$ , le courant lié à la capacité  $C_g$  et,  $I_d$ , le courant de décharge.

Sur la Figure II-7, le courant nommé  $I_m$  représente le courant mesuré fourni par le transformateur : ce courant est la somme du courant circulant dans le gaz,  $I_g$ , et d'un courant,  $I_p$ , provenant des éléments parasites du circuit d'alimentation haute-tension ainsi que de la cellule de décharge. Ces éléments parasites proviennent des courants de fuites, des connexions, des défauts d'isollements... Ils sont représentés au moyen du circuit  $R_p$ - $C_p$  parallèle dont les valeurs sont déterminées à partir d'une mesure du courant,  $I_m$ , et de la tension appliquée,  $V_a$ , décharge éteinte (Figure II-8). Le courant  $I_m$  est en avance de pratiquement  $90^\circ$  sur la tension  $V_a$ , mettant ainsi en évidence le comportement capacitif de la cellule de décharge.

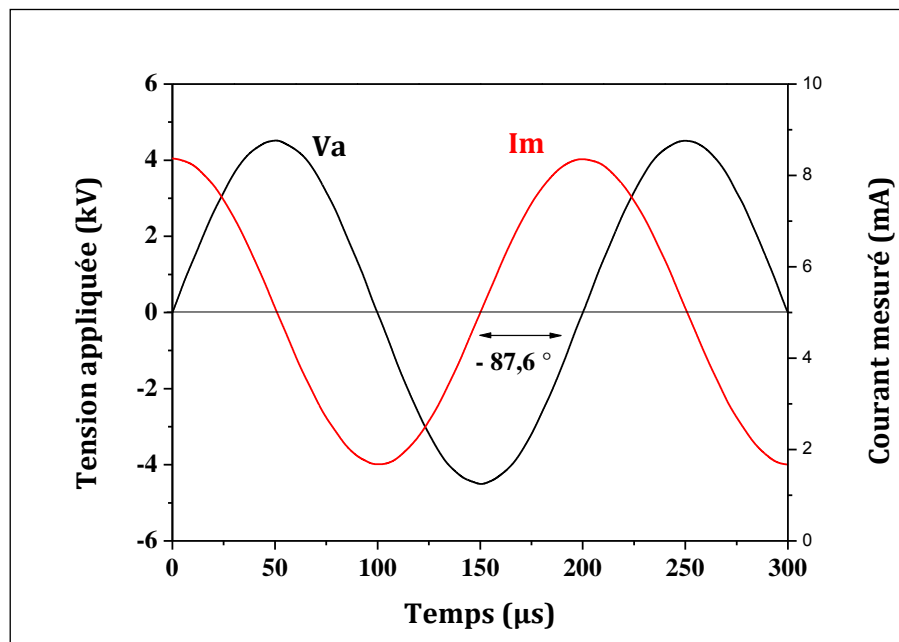


Figure II-8 : Oscillogramme de la tension appliquée et du courant mesuré lorsque la décharge est éteinte ( $f=6\text{ kHz}$ ,  $V=9\text{ kV}_{cc}$ )

Ce comportement très capacitif est dû au fait que lorsque la décharge est éteinte, le milieu gazeux est purement capacitif ( $G_g = 0$ ), de capacité  $C_g$  (Eq II-1). Les diélectriques solides modélisés par  $C_{ds}$  correspondent à l'association série des deux capacités  $C_{ds1}$  et  $C_{ds2}$  qui représentent respectivement les capacités équivalentes des diélectriques recouvrant les électrodes reliées à la masse et à la haute-tension. Leurs valeurs

dépendent de la section considérée. Lorsque la décharge est éteinte, il faut considérer la section des électrodes (9 cm<sup>2</sup>) alors que lorsque la décharge est amorcée, il faut considérer celle de la décharge.

Les valeurs de  $C_{ds1}$  et  $C_{ds2}$  qui sont identiques ont été déterminées expérimentalement à l'aide d'un analyseur d'impédance HP 4284A après avoir métallisé les diélectriques sur les deux faces :  $C_{ds1} = C_{ds2} = 124,95$  pF. Dans nos conditions, la décharge étant homogène radialement et de section égale à celle des électrodes, par la suite nous considérerons toujours la section des électrodes (Eq II-2).

Ainsi, lorsque la décharge est éteinte la cellule peut être représentée par un circuit RC parallèle, dont la résistance est égale à la résistance parasite  $R_p$  et la capacité correspond à la capacité  $C_{eq}$  (Eq II-3).

$$C_g = \frac{\epsilon_0 \cdot S}{e} = 7,96 \text{ pF} \quad \text{Eq II-1}$$

avec :  $\epsilon_0$  permittivité du vide ( $8.854.10^{-12} \text{ F.m}^{-1}$ ) ;  $S$  : surface des électrodes ;  $d$  : distance inter-diélectriques.

$$C_{ds} = \frac{C_{ds1} \cdot C_{ds2}}{C_{ds1} + C_{ds2}} = 62,48 \text{ pF} \quad \text{Eq II-2}$$

avec :  $C_{ds1}$  et  $C_{ds2}$  : capacités diélectriques solides correspondant aux deux diélectriques recouvrant chacune des électrodes ( $C_{ds1} = C_{ds2} = 124,95$  pF)

$$C_{eq} = C_p + \frac{C_{ds} \cdot C_g}{C_{ds} + C_g} \quad \text{Eq II-3}$$

Le module et l'argument de l'impédance équivalente à la cellule de décharge  $Z_{eq}$  (Eq II-4) sont déduits des relevés expérimentaux du courant  $I_m$  et de la tension  $V_a$  (Figure II-8). L'équation Eq II-4 permet alors de déterminer la valeur de la résistance parasite,  $R_p$ , et de la capacité,  $C_{eq}$ . Connaissant les valeurs de  $C_{ds}$  et  $C_g$ , la valeur de la capacité parasite  $C_p$  peut être calculée à partir de l'équation Eq II-3. Typiquement, la capacité  $C_p$  est environ égale à 2,5 pF alors que la résistance  $R_p$  est supérieure à 100 M $\Omega$ .

L'équation Eq II-5 permet de calculer le courant circulant dans le gaz,  $I_g$ , à partir du courant mesuré,  $I_m$ , et du calcul du courant parasite,  $I_p$ . Par la suite, seul ce courant sera considéré.

$$|Z_{eq}| = \frac{R_p}{\sqrt{1 + \omega^2 R_p^2 C_{eq}^2}} \quad \text{et} \quad \text{Arg}(Z_{eq}) = -\tan^{-1}(\omega R_p C_{eq}) \quad \text{Eq II-4}$$

$$I_g(t) = I_m(t) - I_p(t) \quad \text{Eq II-5}$$

$$\text{avec} \quad I_p(t) = \frac{V_a(t) - R_m I_m(t)}{R_p} + C_p \frac{d(V_a(t) - R_m I_m(t))}{dt}$$

### II-1-3. Mise en équation

Sur la base du schéma électrique équivalent de la cellule de décharge (Figure II-7), il est possible de calculer la tension réellement appliquée sur le gaz et le courant de décharge. Comme nous l'avons vu précédemment, le courant gaz,  $I_g$ , peut être séparé en deux composantes distinctes : d'une part, le courant dû à l'effet capacitif du gaz,  $I_{Cg}$ , et d'autre part, le courant de décharge,  $I_d$ , dû à la décharge. Lors de l'amorçage de la décharge, le gaz passe d'un état capacitif à un état résistif. Ce changement d'état est représenté par la conductance variable  $G_g$  qui caractérise l'état d'ionisation du gaz.

La tension appliquée sur le gaz,  $V_g$ , est déduite de la tension appliquée,  $V_a$ , et de la capacité équivalente des diélectriques solides,  $C_{ds}$ , (Eq II-6). La tension d'alimentation étant sinusoïdale, la constante  $V_{ds}(t_0)$  est définie de manière à ce que la valeur moyenne de  $V_{ds}(t)$  soit nulle. Connaissant  $V_g$ , il est ainsi possible de séparer le courant de décharge,  $I_d$ , du courant capacitif,  $I_{Cg}$  (Eq II-7).

$$V_g(t) = V_a(t) - V_{ds}(t) - R_m I_m(t) \quad \text{Eq II-6}$$

$$\text{Avec} \quad V_{ds} = \frac{1}{C_{ds}} \int_{t_0}^{t_0+t} I_g dt + V_{ds}(t_0)$$

$$I_d(t) = I_g(t) - I_{cg}(t) \quad \text{Eq II-7}$$

$$\text{avec } I_{cg}(t) = C_g \frac{dV_g(t)}{dt}$$

En se basant sur les grandeurs électriques liées au gaz ( $V_g$  et  $I_d$ ) nous pouvons aussi déterminer la puissance surfacique moyenne transmise à la décharge (Eq II-8).

$$P = \frac{f}{S} \int_0^T V_g \cdot I_d \cdot dt \quad (W.cm^{-2}) \quad \text{Eq II-8}$$

Avec :  $f$  : fréquence de la tension appliquée  $V_a$ ;  $S$  : surface de la zone de décharge ( $9cm^2$ )

#### II-1-4. Mesure du courant local

A partir des mesures du courant et de la tension appliquée, il est possible comme nous venons de le montrer de calculer la tension réellement appliquée sur le gaz et le courant de décharge. Ceci permet d'obtenir des grandeurs moyennes qui n'ont de sens que si la décharge est homogène sur toute la surface des électrodes et présente donc les mêmes caractéristiques électriques en tout point. Nous verrons par la suite que la décharge peut présenter des caractéristiques très différentes en fonction du temps de résidence du gaz et donc de la position dans le sens du flux de gaz. En effet, il est assez évident qu'en présence d'un flux de gaz les densités des différentes espèces ne seront pas les mêmes en entrée de décharge et en sortie (accumulation, consommation, ...). Ainsi, on peut penser que le courant de décharge local et la tension gaz peuvent dans certaines conditions ne pas être les mêmes en tous points.

Même si pour la majeure partie des études présentées dans ce manuscrit seul le courant global a été considéré, afin d'avoir accès à des mesures du courant local en fonction de la position (chapitre 4), nous avons fractionné l'électrode de masse dans le sens du flux de gaz en 8 zones identiques (Figure II-9) dont les dimensions sont indiquées sur la Figure II-10. Cette électrode a été réalisée avec Vincent Bley en utilisant la plateforme 3DPHI (<http://www.3dphi.fr/>), par sérigraphie après avoir réalisé un masque par découpe laser. Comme on peut le voir sur la Figure II-10, cela a permis de réaliser des zones de

3,4 mm espacées d'environ 350-400  $\mu\text{m}$ . L'écartement entre les électrodes a été choisi le plus petit possible afin de limiter au maximum la perturbation de la décharge. Notons que l'électrode haute tension en vis à vis est toujours de forme carrée de 3 x 3  $\text{cm}^2$ .

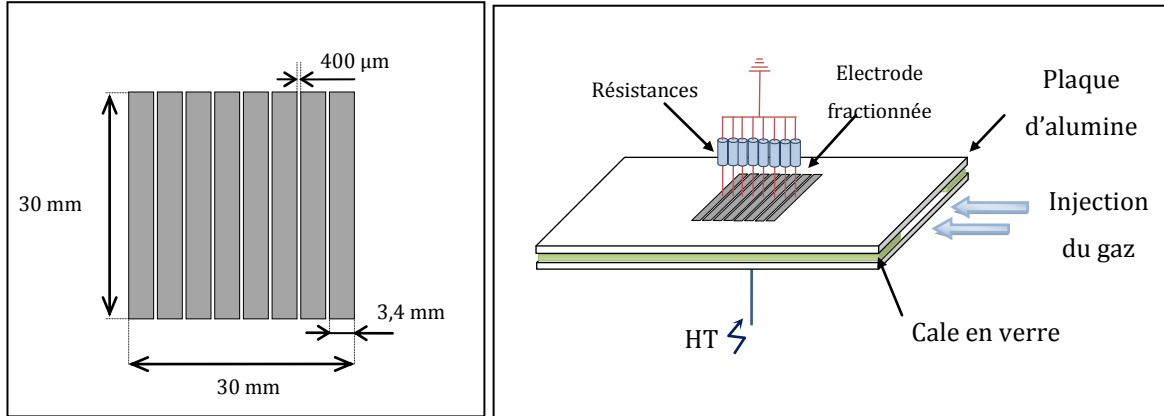


Figure II-9 : Schéma de cellule de décharge avec l'illustration de l'électrode fractionnée

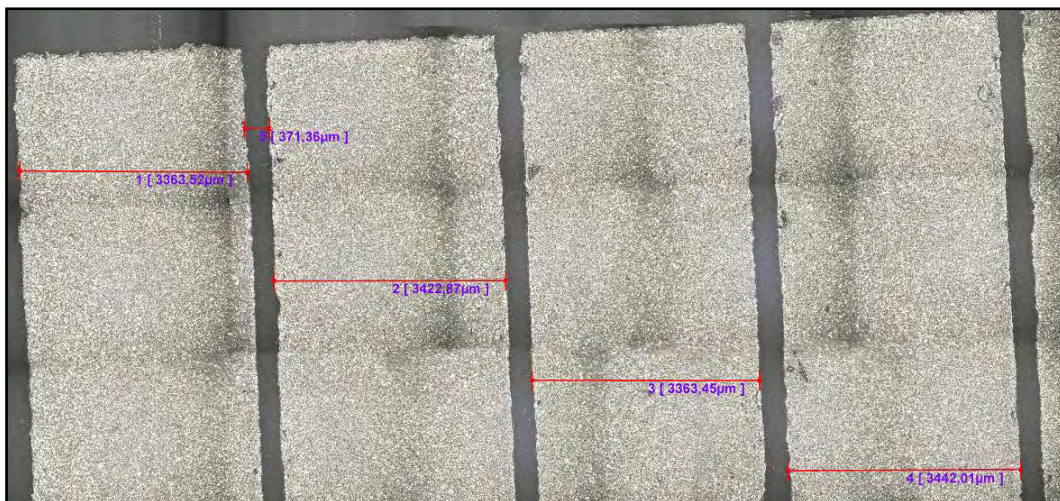


Figure II-10 : Photographie au microscope électronique de l'électrode fractionnée

Le système d'acquisition simultanée des courants au niveau de chacune des zones a été mis au point dans le cadre du projet de Master 2 de Loïc Puechagut. La Figure II-11 illustre un schéma global de ce système. Un câble constitué de 8 conducteurs transmet le signal en sortie de l'enceinte jusqu'à des résistances shunts de 1,6  $\text{k}\Omega$  connectées en série avec chaque zone de l'électrode de masse pour obtenir une résistance équivalente de 200  $\Omega$  (qui correspond à la résistance shunt utilisée sans fractionnement de l'électrode de masse).

Lorsque l'électrode fractionnée est utilisée, la somme des courants circulant dans la cellule de décharge ( $I_m$ ) est mesurée à l'aide d'un tore magnétique dont le rapport de mesure est de 1V/1A. La tension appliquée est mesurée avec une sonde haute tension comme présenté précédemment (II-1-1). Les tensions aux bornes de chacune des résistances shunt sont envoyées sur les entrées d'un DAQ (Data Acquisition) National Instruments USB série X 6356 possédant 8 entrées analogiques simultanées avec une fréquence d'échantillonnage de 1,25 Mech/voie/s et une résolution de 16 bits. Ceci permet de mesurer en temps réel les courants dans chacune des huit zones et de les sauvegarder à l'aide d'une application réalisée sous Labview.

Le principal inconvénient de l'utilisation d'un DAQ de ce type vient de la fréquence d'échantillonnage bien plus faible que celle d'un oscilloscope. En effet pour un signal dont la fréquence est de 1 kHz, le nombre de points de mesure par période est limité à 1250, ce qui limite ce type d'équipement à des signaux à relativement basse fréquence. Pour compenser cet inconvénient, il est également possible de mesurer directement la tension aux bornes de chacune des résistances shunt à l'aide d'un deuxième oscilloscope numérique par le biais de connecteurs BNC (Figure II-11).

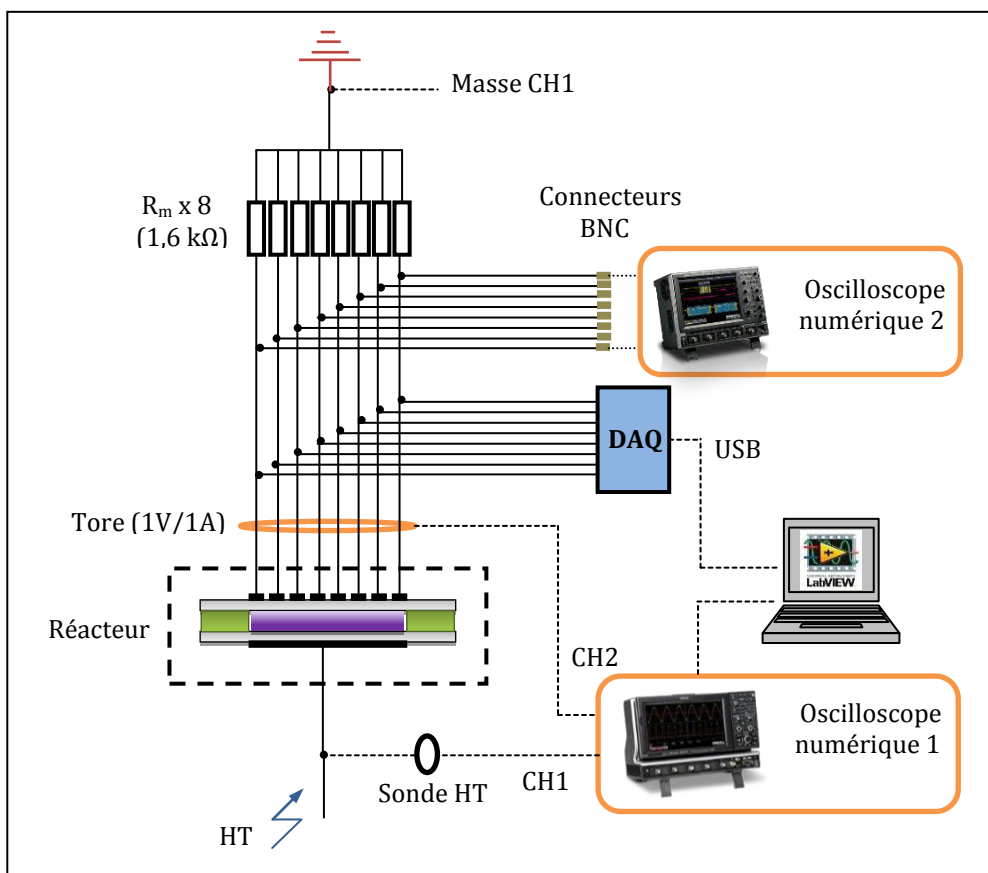


Figure II-11 : Schéma globale du système d'acquisition des 8 courants simultanés

La première étape a consisté à vérifier que le fractionnement de l'électrode de masse n'a pas d'influence sur le comportement de la décharge. Une simulation du potentiel électrique réalisée sous COMSOL a montré que vu du gaz il n'y a quasiment pas de modification des lignes de potentiel. En effet, l'écartement entre les différentes zones est suffisamment faible et le diélectrique suffisamment épais pour homogénéiser les lignes de potentiel. Ceci a également été validé expérimentalement par une comparaison des mesures électriques avec et sans fractionnement de l'électrode de masse (Figure II-12).

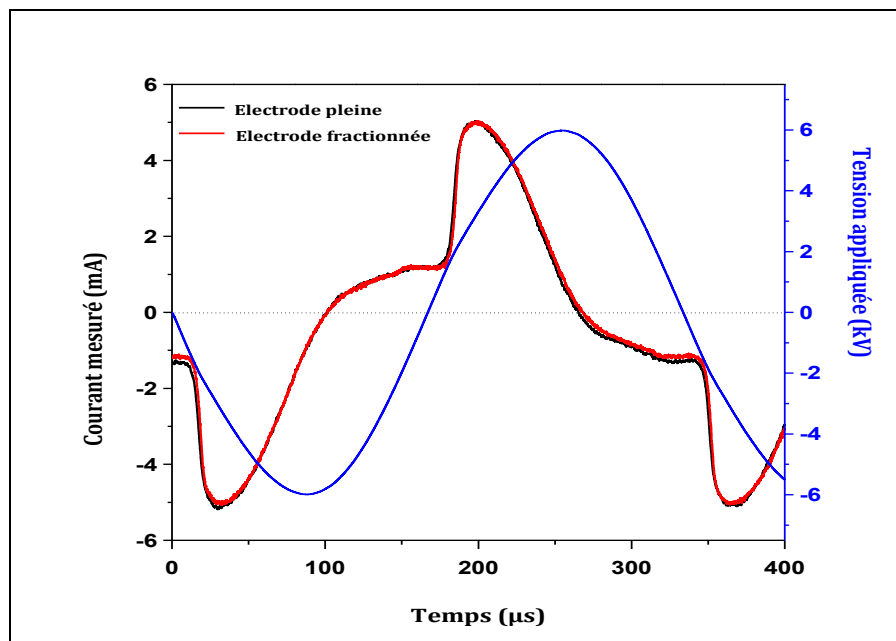


Figure II-12 : Comparaison des résultats de mesure du courant et de la tension appliquée pour différentes configurations d'électrodes ( $f=3\text{kHz}$  -  $V=12\text{ kV}_{cc}$ )

## II-2. Caractérisation Optique

Dans cette partie, nous présentons les différents outils utilisés pour la caractérisation optique de la décharge à savoir la spectroscopie d'émission optique et l'imagerie rapide.

### II-2-1. Spectroscopie d'émission optique

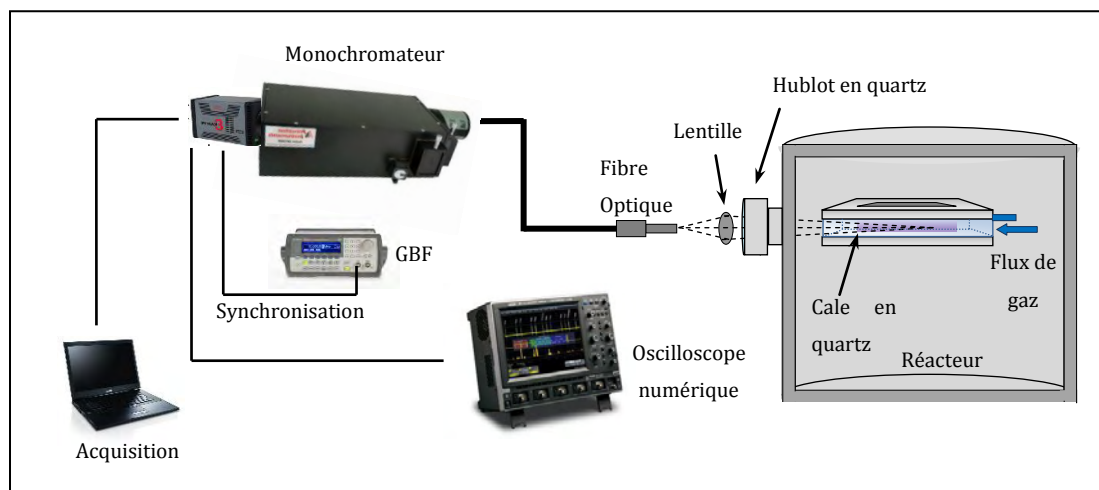
La spectroscopie d'émission optique constitue un moyen de diagnostic des plasmas. En effet, ces derniers émettent des rayonnements caractéristiques des atomes, ions, radicaux ou métastables présents [19].



Le rayonnement émis par la décharge est observé à travers un hublot en quartz placé en face de la décharge. Afin d'analyser localement la lumière émise par la décharge, nous avons utilisé une lentille convergente placée juste devant le hublot. Les raies d'émission du spectre permettent l'identification des éléments et la détermination d'un certain nombre de grandeurs caractéristiques de la décharge comme :

- la nature et la densité de certaines espèces (atomes, molécules, radicaux ou métastables), neutres ou ionisés, dans leur état excité.
- la température de ces espèces et/ou leurs énergies (température vibrationnelle,  $T_{\text{vib}}$ , température rotationnelle,  $T_{\text{rot}}$ ).

Nous montrons dans la Figure II-13 un schéma du montage utilisé pour les mesures spectroscopiques. La fibre optique permet de collecter l'émission lumineuse de la décharge jusqu'à la fente d'un monochromateur dans lequel la lumière est dispersée par un réseau de diffraction avant d'être détectée par une caméra CCD.



**Figure II-13 : Schéma du montage utilisé pour les mesures de spectroscopie optique**

Notons que lors de nos expériences, nous avons utilisé deux systèmes permettant ainsi de faire deux types de mesures. Le premier système utilise un monochromateur Princeton Instruments Acton SP2500A de longueur focale 500 mm avec trois réseaux de diffraction différents (300, 500 et 1200 traits. $\text{mm}^{-1}$ ) associé à un détecteur CCD Pixis 100. Le second système utilise le même type de monochromateur mais avec des réseaux de diffraction différents (300, 1200 et 2400 traits. $\text{mm}^{-1}$ ) et un détecteur CCD intensifié PI-MAX 3. La principale différence entre les deux systèmes vient du fait que le système

utilisant le détecteur CCD intensifié permet d'avoir des mesures synchronisées avec le signal d'alimentation et donc de faire des mesures résolues temporellement.

La Figure II-14 présente un exemple d'un spectre total mesuré dans le cas d'une décharge à barrière diélectrique dans l'azote pour des longueurs d'ondes comprises entre 200 et 900nm en utilisant le monochromateur associé au détecteur CCD PI-MAX 3 et le réseau 300 traits.mm<sup>-1</sup>. La Figure II-15 présente un exemple de spectre mieux résolu réalisé en utilisant le réseau 2400 traits.mm<sup>-1</sup>, qui permet de visualiser la structure des raies rotationnelles du second système positif de l'azote.

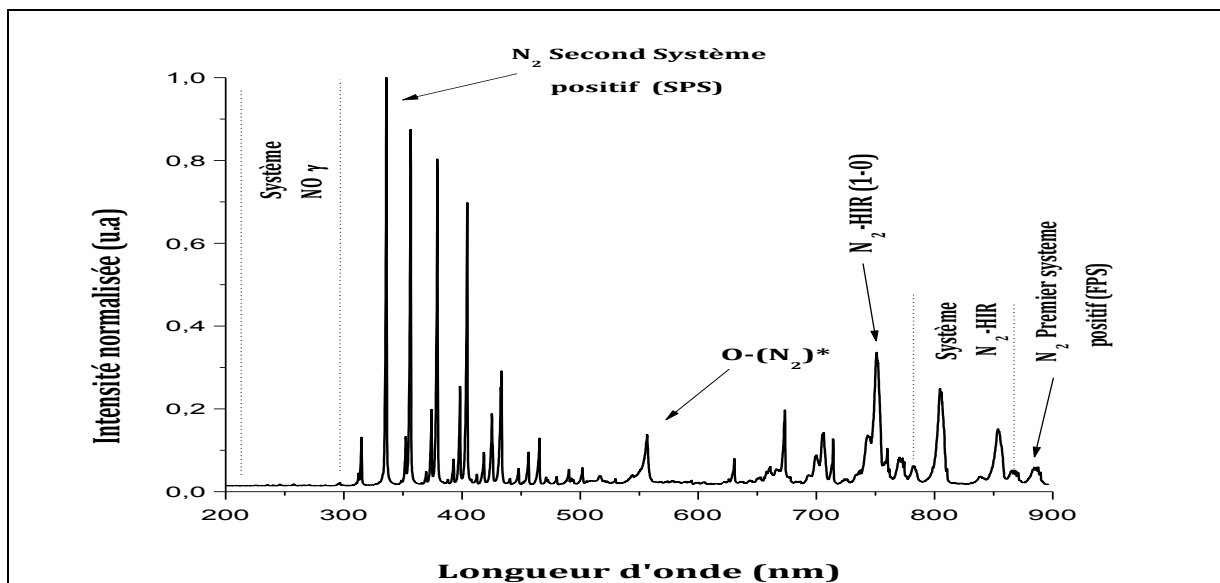


Figure II-14 : Exemple d'un spectre total mesuré dans le cas d'une DBD dans l'azote entre 200 et 900 nm

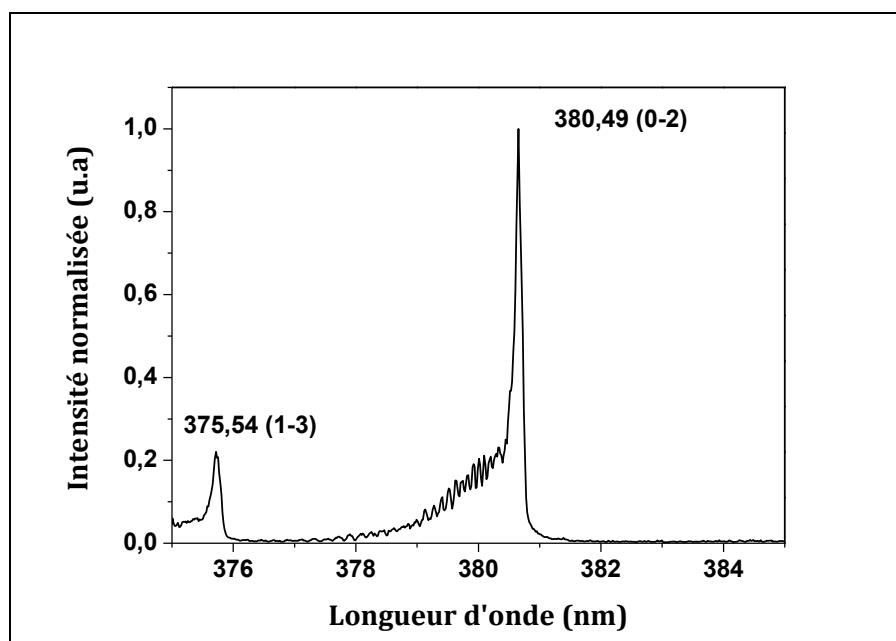


Figure II-15 : Exemple de spectre mesuré dans le cas d'une DBD entre 375 et 385 nm

Les mesures effectuées sont traitées et enregistrées sur l'ordinateur sous le logiciel WinSpec. Dans le cas de l'utilisation de la caméra intensifiée, deux modes de mesures peuvent être utilisés :

- Mode répétitif : permet de faire l'acquisition toujours au même instant du cycle de la tension appliquée (délai constant par rapport au signal de référence (trigger)) et d'accumuler plusieurs acquisitions au même instant (moyennage).
- Mode Séquentiel : permet d'effectuer un balayage temporel par rapport au signal de référence (trigger) et ainsi d'obtenir plusieurs spectres en fonction du temps, tout en cumulant plusieurs acquisitions pour la même position temporelle si nécessaire.

La Figure II-16 montre le schéma du fonctionnement de la caméra dans les deux modes de fonctionnement.

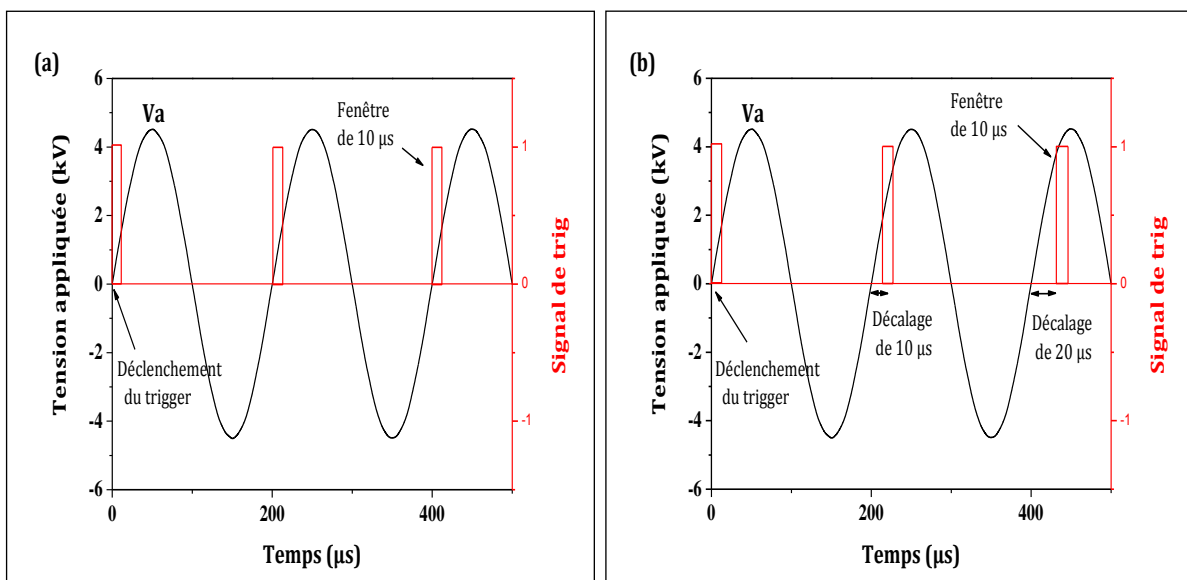


Figure II-16 : Schéma du fonctionnement de la caméra : (a) en mode répétitif, (b) en mode séquentiel.

### II-2-2. Imagerie rapide

Pour les mesures d'imagerie rapide, nous utilisons la caméra CCD intensifiée PI-MAX 3 de chez Princeton Instruments [20] qui peut, comme nous venons de le montrer, être également utilisée comme détecteur pour la spectroscopie d'émission optique. Cette caméra permet de faire de l'imagerie résolue en temps. Pour cela, elle est synchronisée avec le signal de synchronisation TTL du GBF utilisé par l'alimentation électrique. La matrice CCD se compose de 1024 x 256 pixels.

La collection de la lumière de la décharge se fait à l'aide d'un objectif photographique connecté directement sur la caméra. Durant cette thèse, nous avons utilisé deux objectifs ayant des caractéristiques différentes :

- objectif NIKKOR 50mm f/1.2 pour le visible ( $380 \text{ nm} < \lambda < 700 \text{ nm}$ ),
- objectif UV 100mm f/2.8 type CERCO pour l'ultra violet et le visible ( $220 \text{ nm} < \lambda < 900 \text{ nm}$  avec une plage optimisée entre 250 et 410 nm).

La Figure II-17 représente le dispositif expérimental utilisé pour l'imagerie rapide.

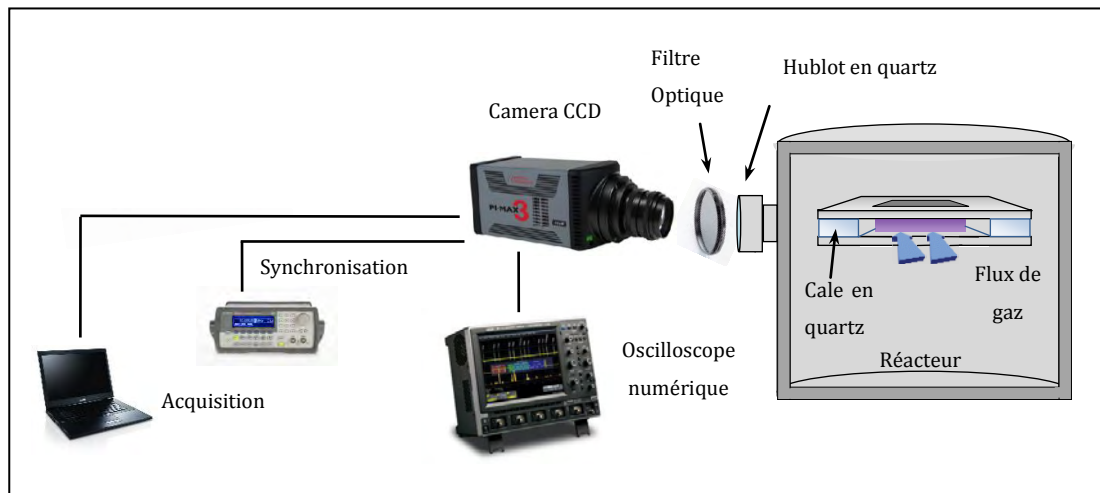


Figure II-17 : Dispositif expérimental utilisé pour l'imagerie rapide

Comme c'est le cas dans la spectroscopie d'émission optique, la caméra peut être utilisée dans les deux modes répétitif et séquentiel. Le mode séquentiel permet, par exemple, de réaliser facilement une mesure montrant la cinétique de développement de la décharge sur une période complète du signal d'excitation.

La Figure II-18 montre un exemple d'une photographie rapide de la décharge prise au maximum du courant.

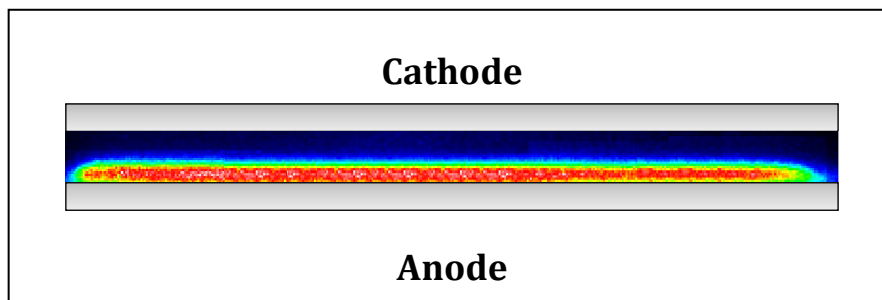


Figure II-18 : Photographie rapide d'une DBD homogène dans l'azote prise au maximum du courant avec un temps de pause de  $1\mu\text{s}$  ( $V=15\text{kV}_{cc}$ ,  $f=2\text{kHz}$ )

Lorsque l'on effectue ces mesures d'imagerie rapide, la lumière collectée est composée de différentes longueurs d'ondes caractéristiques des émissions de la décharge. Afin de suivre l'évolution spatio-temporelle d'une émission particulière, nous avons utilisé des filtres interférentiels positionnés devant l'objectif photographique.

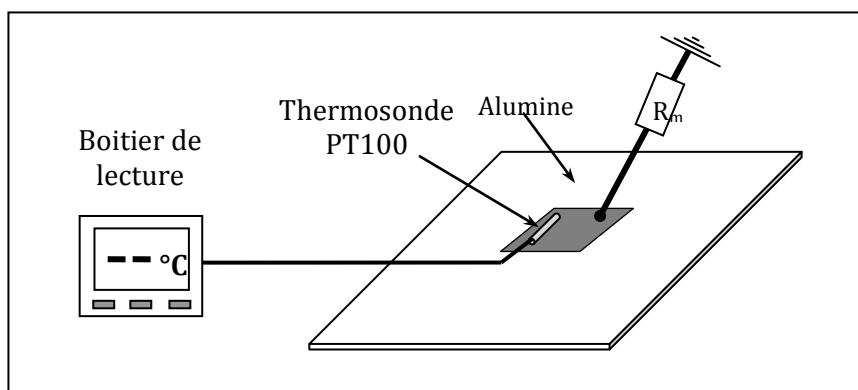
Le Tableau II-1 suivant recense les différents filtres utilisés avec leurs caractéristiques.

Type de filtre	Centré à	Largeur de la bande	Mesure du système
<b>239 FS</b>	239 nm	$\pm 5$ nm	NO( $\gamma$ )
<b>337 FS</b>	337 nm	$\pm 5$ nm	N <sub>2</sub> SPS
<b>550</b>	550 nm	$\pm 25$ nm	O (1S)N <sub>2</sub>
<b>850 FS</b>	850 nm	$\pm 10$ nm	N <sub>2</sub> HIR

*Tableau II-1 : Récapitulatif des différents filtres utilisés pour la caractérisation optique de la décharge.*

### II-3. Mesure de température

Un dispositif permettant de mesurer la température des diélectriques a également été utilisé. Il utilise une thermosonde à résistance de platine PT100 collée en face arrière de l'électrode de masse (Figure II-19) connectée à un boîtier de lecture Eurotherm 2108i. Cette mesure de température a été utilisée pour surveiller l'élévation de température des diélectriques et également pour pouvoir se placer à l'équilibre thermique pour certaines études.



*Figure II-19 : Schéma de principe de la mesure de la température du diélectrique recouvrant l'électrode reliée à la masse.*



## Chapitre III : **DECHARGES A BARRIERES DIELECTRIQUES DANS L'AZOTE A LA PRESSION ATMOSPHERIQUE**

Ce chapitre vise à présenter l'état de l'art concernant les Décharges à Barrière Diélectriques (DBD) obtenues dans l'azote pur à pression atmosphérique. Pour cela, nous commencerons par décrire le régime de décharge filamentaire qui correspond au fonctionnement normal d'une DBD à pression atmosphérique avant de nous focaliser sur la décharge de Townsend qui peut être obtenue dans certaines conditions et qui a la particularité d'être homogène radialement. C'est ce régime de décharge qui fait l'objet de ces travaux de thèse.

### **I. DECHARGE FILAMENTAIRE**

Comme nous avons mentionné au chapitre I, une DBD est une source de plasma froid hors équilibre caractérisée par la présence d'au moins un diélectrique solide entre les deux électrodes. L'insertion d'une barrière diélectrique permet de limiter l'énergie dans la décharge et ainsi d'éviter la transition à l'arc. En contrepartie, la présence d'un diélectrique impose l'utilisation d'une excitation alternative.

Dans une première partie nous présenterons le principe de fonctionnement d'une DBD avant de rappeler brièvement le principe physique du claquage de type streamer à l'origine d'une décharge filamentaire. Enfin, dans une dernière partie, nous présenterons les caractéristiques typiques d'une décharge filamentaire.

#### **I-1. Principe de fonctionnement d'une DBD**

Lorsque la tension appliquée sur le gap gazeux devient égale à la tension d'amorçage (définie par la courbe de Paschen), on observe la formation d'un canal conducteur (Figure III-1-a) [14][21]. Compte tenu du faible libre parcours moyen à pression atmosphérique, ce canal de décharge présente un rayon typiquement de l'ordre de la centaine de  $\mu\text{m}$ , on parle alors de micro-décharge. Celle-ci est représentée électriquement sur la Figure III-1- d. Le diélectrique en vis-à-vis de la micro-décharge se comporte alors comme l'isolant d'un condensateur,  $C_{ds}$ , dont les armatures sont d'un côté la décharge et de l'autre l'électrode. Le passage du courant induit une accumulation

de charge sur la surface du diélectrique solide en vis-à-vis du canal de décharge qui conduit à une augmentation de la tension  $V_{ds}$ . Si l'augmentation de cette tension au fur et à mesure du développement de la décharge est plus rapide que l'augmentation de la tension appliquée  $V_a$  à l'endroit où s'est initiée la micro-décharge, elle entraîne une chute de la tension appliquée sur le gaz  $V_g$ , ce qui conduit à l'extinction de la décharge. Ainsi, la micro-décharge est bloquée bien avant d'avoir atteint un degré d'ionisation suffisant pour transiter en régime d'arc. Si la tension appliquée sur les électrodes continue d'augmenter, des micro-décharges s'initient à de nouvelles positions car la présence de charges résiduelles en surface du diélectrique diminue le champ électrique vu par le gaz aux positions où les micro-décharges se sont déjà développées (Figure III-1-b). A l'inversion de polarité (Figure III-1-c), les charges précédemment déposées sur le diélectrique permettent un claquage du gaz sous un champ électrique plus faible que lors de la première alternance.

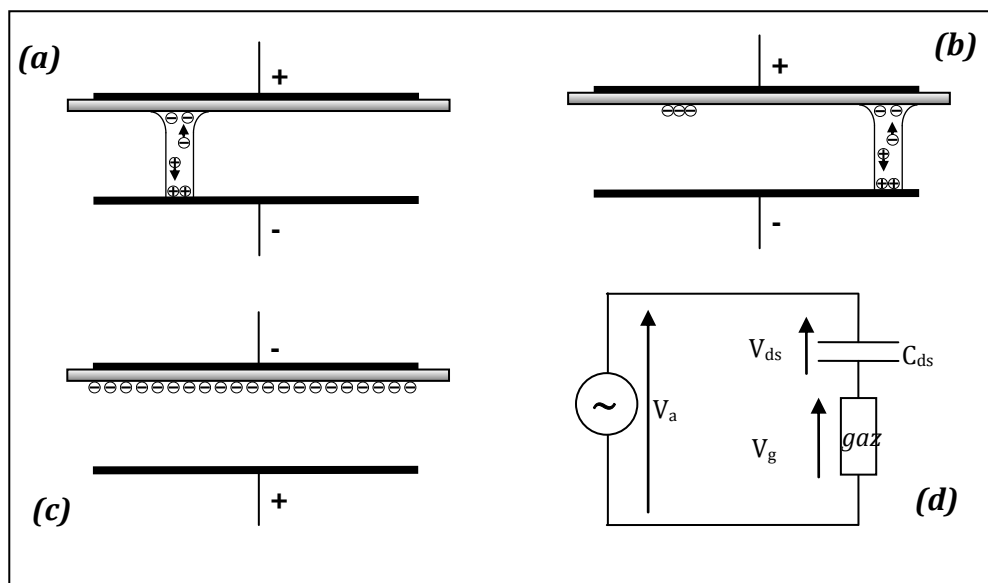


Figure III-1 : Principe de fonctionnement d'une DBD

## I-2. Mécanisme de claquage de type streamer

Lorsque le produit pression x distance ( $p.d$ ) devient suffisamment grand pour permettre au champ engendré par la charge d'espace d'une seule avalanche de devenir du même ordre de grandeur que le champ appliquée, le mécanisme de claquage est de type streamer [13]. Dans l'azote, ce mécanisme est typiquement observé pour des produits  $p.d$  de l'ordre de quelques dizaines de Torr.cm. Ainsi, à pression atmosphérique à moins



d'avoir une distance inter-électrodes de l'ordre de la centaine de  $\mu\text{m}$ , c'est le mécanisme de claquage normalement observé.

Suite à la présence d'un électron germe et d'un fort champ réduit,  $E/n$  (avec  $E$  qui est le champ électrique et  $n$  la densité de neutres), une avalanche électronique s'initie et se dirige vers l'anode. La différence de mobilité entre les électrons et les ions entraîne la formation d'un front d'électrons se propageant vers l'anode suivi d'une « traîne » d'ions quasiment immobiles (Figure III-2-a). Cette localisation d'espèces engendre un champ de charge d'espace. Lorsque le champ de charge d'espace devient du même ordre de grandeur que le champ géométrique, la distorsion induit une augmentation du champ électrique local en tête et en queue de l'avalanche qui se propage alors d'autant plus rapidement vers la cathode (Figure III-2-b). Par ailleurs, des électrons secondaires sont créés par photo-ionisation dans le gaz ou par photo-émission sur la cathode. Les avalanches issues de ces électrons secondaires et créées entre l'avalanche primaire et la cathode sont à leur tour drainées vers la zone de charge d'espace positive et laissent également une charge d'espace positive derrière elles. Ainsi, le canal se propage vers la cathode. Les électrons secondaires contribuent aussi à l'amplification du champ de charge d'espace tout en excitant les atomes du gaz, qui à leur tour vont émettre des photons. Entre la tête et la queue de l'avalanche primaire, une zone à champ faible s'établit où un plasma nourri par les avalanches secondaires se crée. Dans le cas d'une DBD, une fois le canal de décharge formé (Figure III-2-c), comme nous l'avons vu précédemment, l'accumulation de charges sur le diélectrique va entraîner une extinction de la décharge bien avant la transition en régime d'arc.

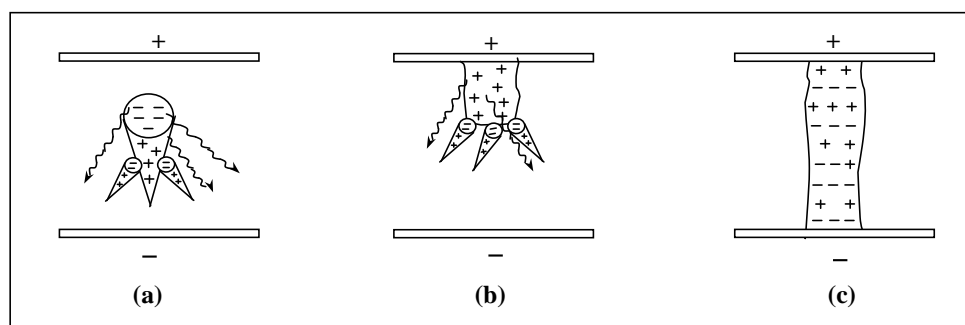
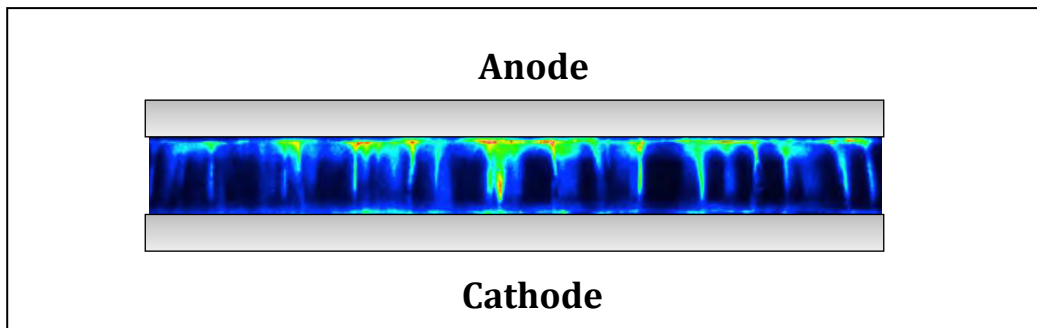


Figure III-2 : Développement d'un canal de décharge filamenteire [22][23]:

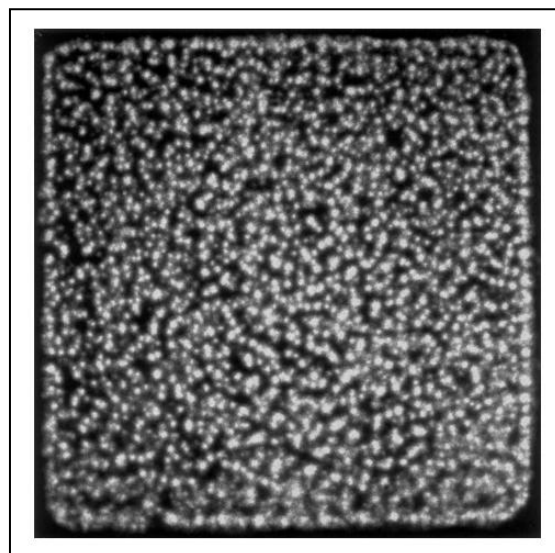
- (a) Transition avalanche - streamer,
- (b) Propagation du streamer vers la cathode,
- (c) Formation d'un canal

### I-3. Caractéristiques électriques et optiques d'une décharge à barrière diélectrique filamentaire

Dans le cas d'une DBD réalisée dans une configuration plan-plan, le principe de fonctionnement précédemment décrit se traduit par une multitude de micro-décharges se répartissant aléatoirement sur la surface des électrodes [24][14]. Ce comportement peut être mis en évidence par des photographies rapides avec des temps de pose très courts. Les Figure III-3 et Figure III-4 présentent des exemples de photographies d'une décharge filamentaire vue de côté et vue de dessus en utilisant un ensemble (diélectrique + électrode) transparent.



*Figure III-3 : Photographie rapide d'une décharge filamentaire avec un temps de pause de 120  $\mu$ s*



*Figure III-4 : Photographie d'une décharge filamentaire vue de dessus avec un ensemble (diélectrique + électrode) transparent [13]*

D'un point de vue électrique, ce comportement se traduit par un courant qui présente une multitude d'impulsions de courant (Figure III-5). En effet, chaque micro-décharge induit une impulsion de courant d'une durée moyenne de quelques dizaines de nanosecondes visibles sur la mesure du courant.

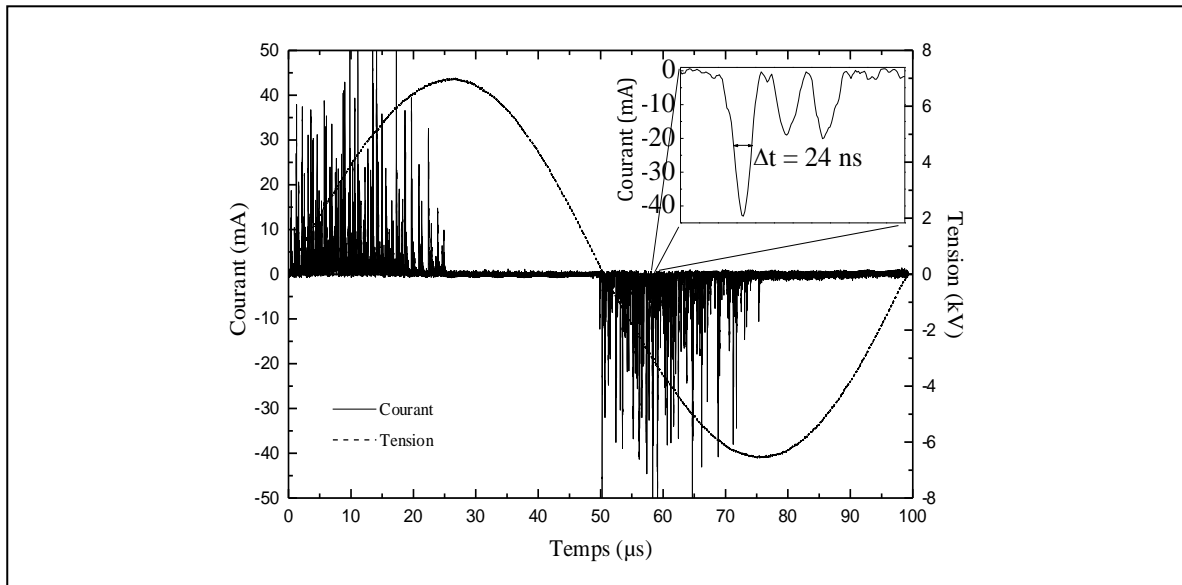


Figure III-5 : Oscillogramme d'une décharge filamentaire dans l'azote ( $f=10$  kHz) [18]

Le tableau suivant récapitule les principales caractéristiques des micro-décharges observées généralement dans le cas d'une DBD à pression atmosphérique [21].

Durée ( $ns$ )	1 - 10
Vitesse de propagation ( $cm.s^{-1}$ )	$10^8$
Rayon d'un filament ( $mm$ )	0.1
Densité de courant ( $A.cm^{-2}$ )	100 - 1000
Densité électronique ( $cm^{-3}$ )	$10^{14}$ - $10^{15}$
Energie électronique moyenne ( $eV$ )	1-10

Tableau III-1 : Ordres de grandeurs des caractéristiques d'un canal de décharge filamentaire

## II. DECHARGE DE TOWNSEND A LA PRESSION ATMOSPHERIQUE

Dans le cas d'un procédé de traitement de surface par plasma froid, le fait d'utiliser une DBD à pression atmosphérique permet de s'affranchir des systèmes de pompage et de

réaliser des traitements de surfaces en ligne directement sur une ligne de production. Cependant, un des principaux inconvénients vient du fait qu'à pression atmosphérique, le régime normal de fonctionnement est, comme nous venons de le voir, filamentaire. Cela se traduit par une dissipation de la puissance fortement non homogène (dans l'espace et le temps) comme nous l'avons vu sur les Figure III-3, Figure III-4 et Figure III-5. Néanmoins, ce type de décharge peut convenir pour réaliser certains traitements de surfaces. On peut citer par exemple le procédé Corona [21][25] utilisé pour modifier l'énergie de surface de films polymères. Cependant, la réalisation d'un dépôt de couches minces nécessite un meilleur contrôle de l'injection et de la répartition de l'énergie.

Ceci peut être obtenu en utilisant une décharge homogène. En effet, Okazaki *et al.* montrèrent à la fin des années 80 qu'il est possible d'obtenir une décharge homogène à pression atmosphérique dans l'hélium en utilisant une DBD [26][27]. Des travaux similaires furent ensuite réalisés par Massines *et al.* à partir du début des années 90 [28][29]. Les Figure III-6 et Figure III-7 présentent respectivement un oscillogramme courant - tension et une photographie rapide de l'espace inter-électrodes d'une décharge homogène obtenue dans l'azote à pression atmosphérique. Comme on peut le constater, le comportement obtenu est radicalement différent de celui observé dans le cas d'une décharge filamentaire. En effet, le courant ne présente qu'un seul pic par alternance de la tension et la lumière est homogène radialement sur la totalité de la section de la décharge (ici environ 9 cm<sup>2</sup>).

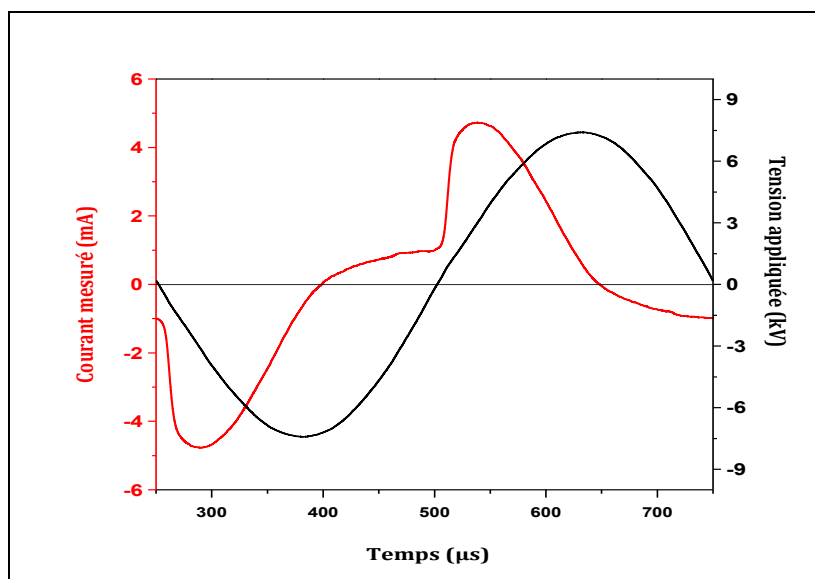
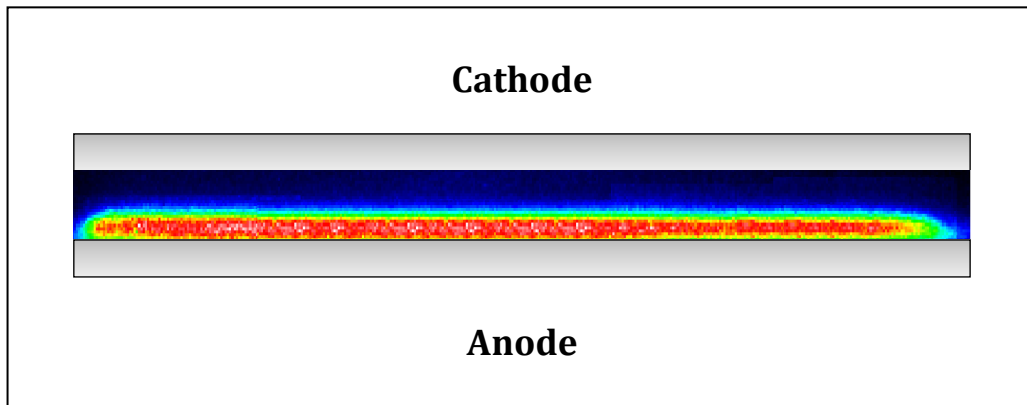


Figure III-6 : Oscillogramme d'une décharge homogène dans l'azote ( $V=15 \text{ kV}_{cc}$ ,  $f=2 \text{ kHz}$ )



*Figure III-7 : Photographie rapide d'une décharge homogène dans l'azote à pression atmosphérique prise au maximum du courant avec un temps de pose de  $1\mu\text{s}$  ( $V=15\text{ kV}_{cc}$ ,  $f=2\text{ kHz}$ )*

Après avoir décrit le comportement de ce type de décharge à partir des mesures électriques, optiques et de résultats de simulation numérique, nous nous intéresserons aux mécanismes à l'origine de l'obtention de cette décharge homogène à savoir le claquage de type Townsend et l'effet mémoire d'une décharge à la suivante.

### III. CARACTERISTIQUES DE LA DECHARGE DE TOWNSEND

Compte tenu de l'homogénéité radiale de la décharge (Figure III-7), la cellule de décharge peut être représentée à l'aide du schéma électrique équivalent de la Figure II-7 qui permet de calculer les grandeurs électriques « internes » de la décharge comme présenté dans le chapitre précédent.

Les résultats pour une période, présentés sur la Figure III-8, montrent l'évolution temporelle du courant dans le gaz,  $I_g$ , du courant de décharge,  $I_d$ , de la tension appliquée sur les électrodes,  $V_a$ , et de la tension appliquée sur le gaz,  $V_g$ . Cette décharge homogène est caractérisée par la présence d'un seul pic de courant de faible amplitude (quelques  $\text{mA}\cdot\text{cm}^{-2}$ ) et de longue durée (quelques dizaines de  $\mu\text{s}$ ) par alternance. Le calcul du courant de décharge  $I_d$  permet d'illustrer les intervalles de temps durant lesquels la décharge est amorcée. La différence entre les courants  $I_g$  et  $I_d$  correspond au comportement capacitif du dispositif principalement dominé par la capacité du gaz. Lorsque la tension appliquée sur le gaz atteint la tension d'amorçage de la décharge, on observe une augmentation importante du courant de décharge jusqu'à ce que la tension

gaz atteint un plateau et reste quasiment constante. Ce comportement illustré sur la Figure III-9 correspond à une croissance exponentielle du courant en fonction de la tension appliquée sur le gaz. Notons que compte tenu du fait que le courant augmente exponentiellement, la tension d'amorçage est délicate à définir avec précision.

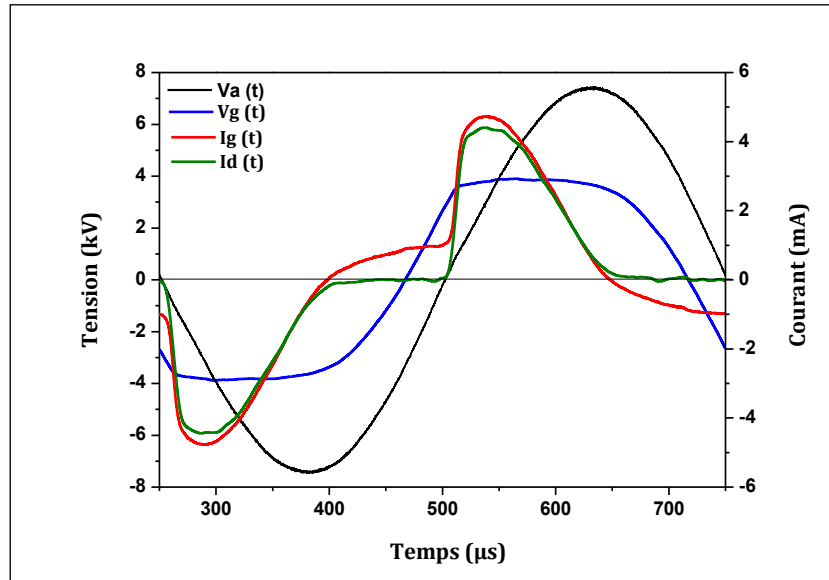


Figure III-8 : Evolution temporelle du courant circulant dans le gaz,  $I_g$ , de la tension appliquée sur les électrodes,  $V_a$ , et de la tension sur le gaz,  $V_g$ , ( $V=15 \text{ kV}_{cc}$ ,  $f=2 \text{ kHz}$ )

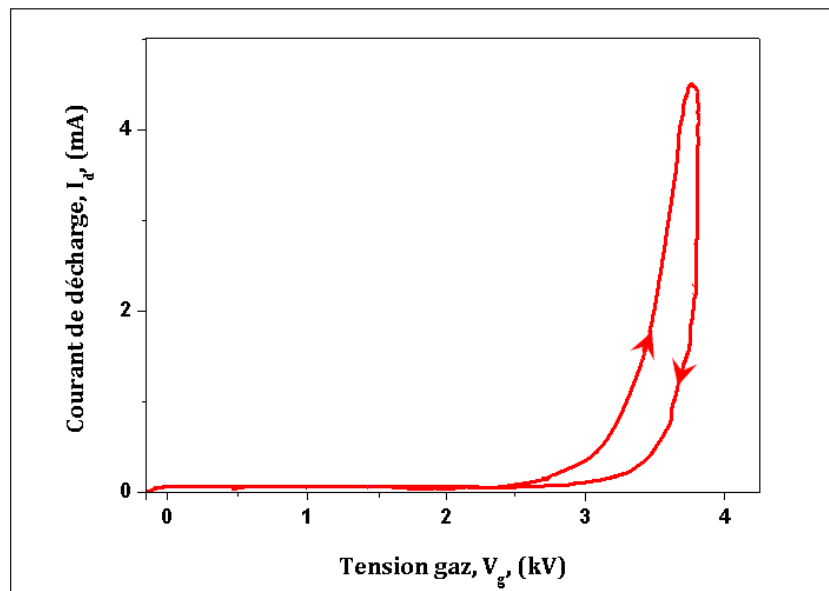


Figure III-9 : Caractéristique  $I_d=f(V_g)$  d'une décharge de Townsend dans l'azote ( $V=15 \text{ kV}_{cc}$ ,  $f=2 \text{ kHz}$ )

D'un point de vue régime de décharge, le comportement électrique de cette décharge correspond à celui d'une décharge de Townsend, positionnée sur le plateau de la caractéristique tension courant typique d'une décharge à basse pression (Figure III-10).

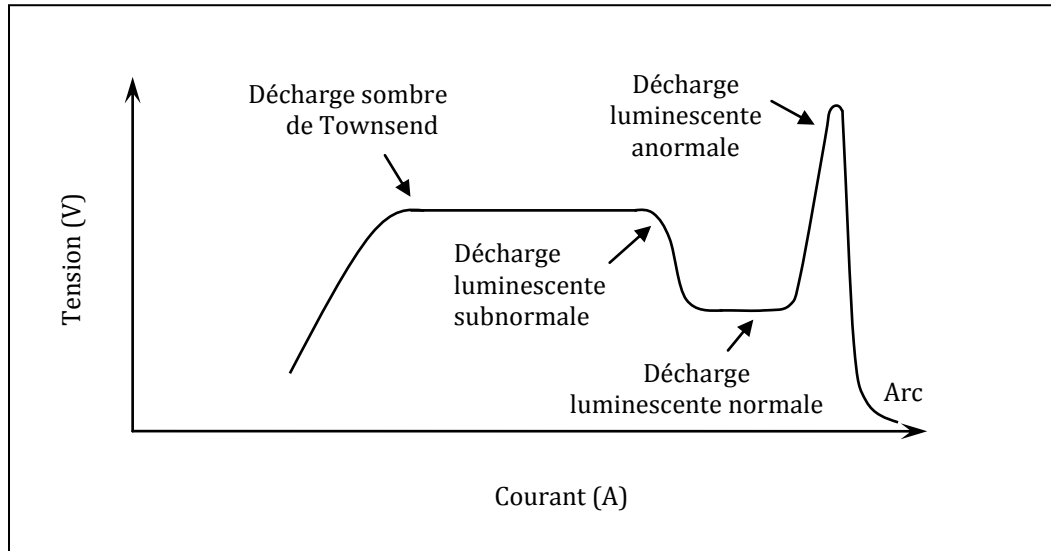
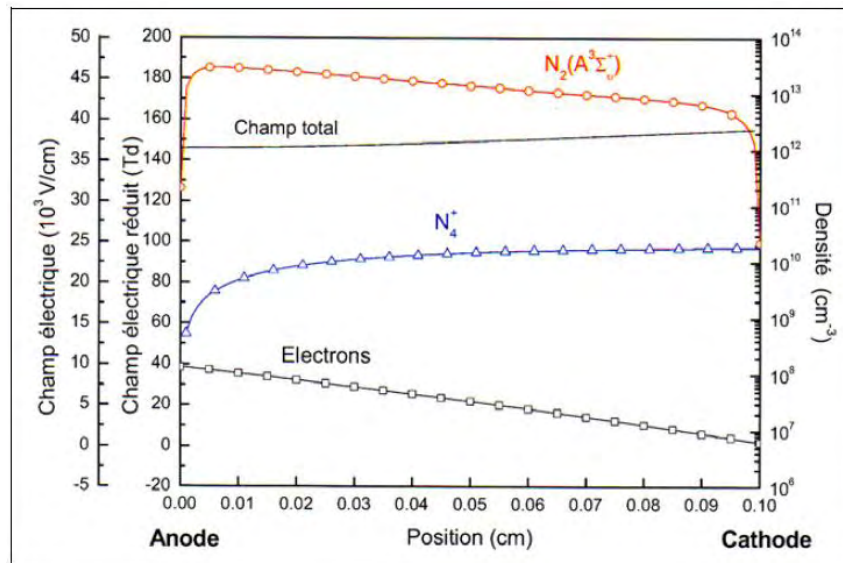


Figure III-10 : Caractéristique courant-tension typique d'une décharge électrique

Dans le cas d'une décharge de Townsend, compte tenu de la faible densité de courant, la charge d'espace dans le gaz ne modifie quasiment pas le champ géométrique ce qui conduit à une répartition quasi uniforme du champ électrique dans l'espace inter-électrodes. Ceci est cohérent avec les photographies rapides de la décharge qui montrent une décharge beaucoup plus lumineuse du côté de l'anode (Figure III-7). En effet, si le champ électrique est constant, la multiplication électronique va entraîner une augmentation exponentielle des électrons de la cathode à l'anode et par conséquent de la lumière.

Ce comportement est confirmé par un modèle fluide développé par Pierre Ségur au LAPLACE [30][31] qui résout l'équation de continuité et de conservation de la quantité de mouvement couplé à l'équation de Poisson et. La Figure III-11 présente la variation spatiale du champ électrique dans l'espace inter-électrodes, ainsi que les densités d'électrons, d'ions  $N_4^+$  et de métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  qui sont les espèces majoritaires dans la décharge. Ces distributions sont présentées au maximum du courant. Comme nous pouvons le voir, le champ électrique varie peu (de 36 à 38  $kV.cm^{-1}$ ) sur l'ensemble de l'espace inter-diélectriques. La densité d'électrons varie donc exponentiellement de quelques  $10^6 cm^{-3}$  à  $10^8 cm^{-3}$ , et est maximale à l'anode.



**Figure III-11 : Résultats de modélisation numérique en 1D d'une décharge homogène dans l'azote : densité d'électrons, d'ions  $N_4^+$ , de métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  et champ électrique en fonction de la position inter-électrodes au maximum du courant de décharge [30]**

La décharge homogène obtenue dans l'azote à pression atmosphérique est par conséquent une décharge de Townsend. Ainsi bien que l'on parle généralement de décharge sombre de Townsend, à pression atmosphérique celle-ci est lumineuse.

#### IV. MECANISMES A L'ORIGINE DE L'OBTENTION D'UNE DECHARGE HOMOGENE DANS L'AZOTE

Comme nous venons de le voir, dans l'azote à pression atmosphérique et dans notre configuration, la décharge homogène obtenue est une décharge de Townsend. Elle est initiée par un claquage de type Townsend contrairement au claquage de type streamer qui conduit, généralement, à une décharge filamentaire.

Ainsi, après avoir rappelé brièvement le mécanisme de claquage de type Townsend, nous nous focaliserons sur les mécanismes permettant d'obtenir ce claquage à pression atmosphérique.

##### IV-1. Rappels sur le mécanisme de claquage de type Townsend

On considère un système composé de deux électrodes placées dans une enceinte à basse pression. Les deux électrodes sont connectées à un générateur de tension continue. Lorsque l'on augmente la tension, on observe une augmentation du courant (Figure III-12) jusqu'à saturer à une valeur égale à  $I_0$  lorsque tous les électrons créés par la source



extérieure dérivent jusqu'à l'anode. Puis sous l'effet du champ électrique, les électrons forment des avalanches de plus en plus importantes, ce qui conduit à une augmentation exponentielle du courant. Les ions créés par les avalanches électroniques vont induire une émission d'électrons secondaires à la cathode par bombardement ionique. Dans ce cas, le courant peut s'écrire selon l'équation III.1. Lorsque le nombre d'électrons secondaire devient égal au nombre d'électrons créés par la source extérieure ( $\gamma \cdot [\exp(\alpha \cdot d) - 1] = 1$ ), la décharge est auto-entretenu. Cela se traduit par une croissance quasi-verticale du courant pour une valeur de tension quasi-constante : c'est ce régime qui correspond à la décharge de Townsend.

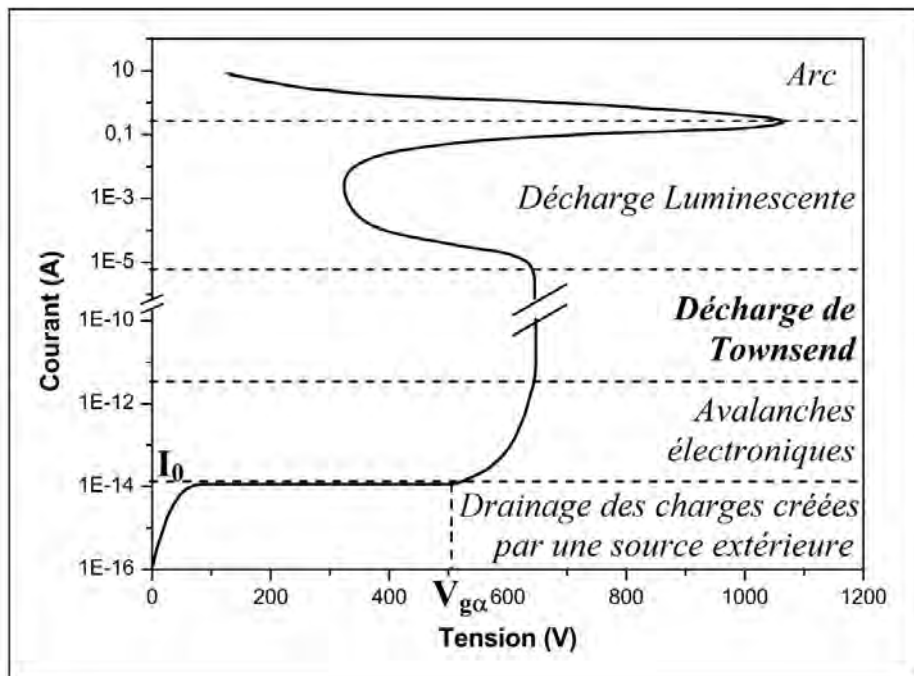


Figure III-12 : Caractéristique courant-tension typique d'une décharge dans un gaz : exemple du Néon ( $d=50$  cm et  $p=1$  torr) [32]

$$i(t) = i_0 \frac{\exp(\alpha \cdot d)}{1 - \gamma \cdot [\exp(\alpha \cdot d) - 1]} \quad \text{Eq III-1}$$

avec :  $\alpha$  : premier coefficient d'ionisation de Townsend (ionisation dans le gaz) ;  $\gamma$  : deuxième coefficient d'ionisation de Townsend (coefficient d'émission secondaire) ;  $i_0$  : courant initial à la cathode

## IV-2. Obtention d'un claquage de type Townsend à pression atmosphérique

D'après la littérature, le claquage de type Townsend est obtenu généralement à des faibles valeurs du produit  $p.d$  (inférieur à quelques dizaines de Torr.cm) [13]. Cependant, comme nous venons de le voir, il est également possible d'obtenir ce mécanisme à pression atmosphérique dans une décharge à barrière diélectrique pour une distance inter-diélectriques de l'ordre du mm (ce qui correspond à un produit  $p.d$  de 76 Torr.cm). Pour comprendre comment est-ce qu'il est possible d'obtenir ce mécanisme, il est intéressant d'observer ce qu'il se passe lors des toutes premières décharges, c'est à dire lorsque la décharge s'amorce à partir d'un gaz au repos (Figure III-13), et dans des conditions pour lesquelles la décharge à l'état stationnaire est une décharge de Townsend à la pression atmosphérique.

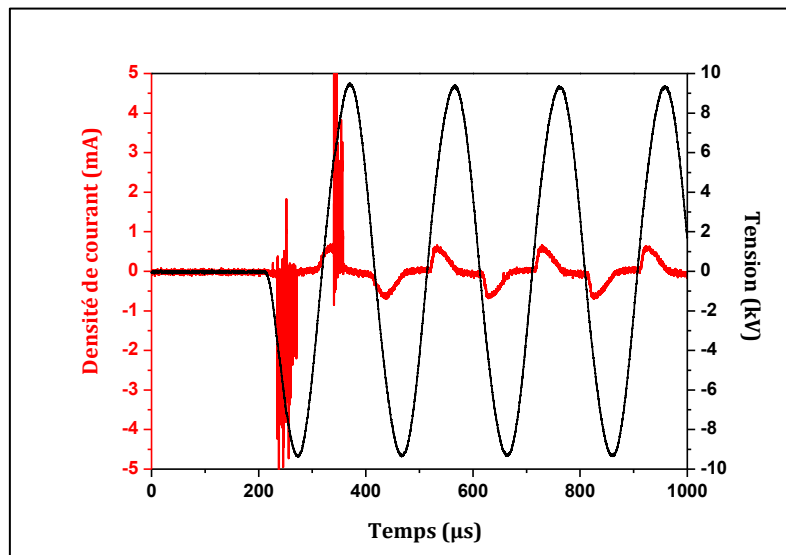


Figure III-13 : Premières décharges dans le cas d'une DTPA dans l'azote ( $gap=1mm$ )

Comme on peut le voir sur la Figure III-13, lors de la première décharge le courant mesuré correspond à celui d'une décharge filamentaire. Lors de la deuxième décharge, au moment de l'amorçage on observe un courant qui croît plus lentement et de valeur plus faible avant de retrouver un courant typique de décharge filamentaire. Ensuite, lors de la troisième décharge le courant mesuré correspond à celui d'une décharge homogène. Par la suite, la décharge reste homogène. Cette mesure illustre le fait qu'un effet mémoire d'une décharge à la suivante est nécessaire pour permettre l'obtention d'une décharge de Townsend dans ces conditions. En effet, compte tenu du temps entre deux décharges relativement faible (quelques dizaines de  $\mu s$ ), le gaz ne revient pas

totalemment au repos avant un nouveau claquage. Ceci peut être mis en évidence par des mesures de spectroscopie d'émission optique. Ainsi, on observe par exemple des émissions liées au système N<sub>2</sub>-HIR (Hermann Infrarouge) même lorsque la décharge est éteinte. La Figure III-14-a présente le spectre d'émission optique du système N<sub>2</sub>-HIR mesuré au maximum du courant de décharge alors que la Figure III-14-b présente l'évolution de l'émission du N<sub>2</sub>-HIR à 751 nm en fonction du temps comparée à la valeur absolue du courant de décharge. Il est intéressant de noter que lors de l'amorçage de la décharge, l'émission du N<sub>2</sub>-HIR, bien que faible, n'est pas nulle. Or la présence du système HIR est le signe de la présence de métastables, l'état radiatif supérieur étant principalement créé par collision de deux états métastables N<sub>2</sub>(A<sup>3</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup>) lorsque la décharge est éteinte suivant la réaction (Eq III-2) [33] :



où N<sub>2</sub>(C''<sup>5</sup>Π<sub>u</sub>) est un état radiatif qui émet le système Herman Infra Rouge (HIR)

Ces états métastables, qui ont une longue durée de vie (typiquement quelques dizaines de μs à la pression atmosphérique [34]), peuvent donc être impliqués dans l'effet mémoire d'une décharge à la suivante.

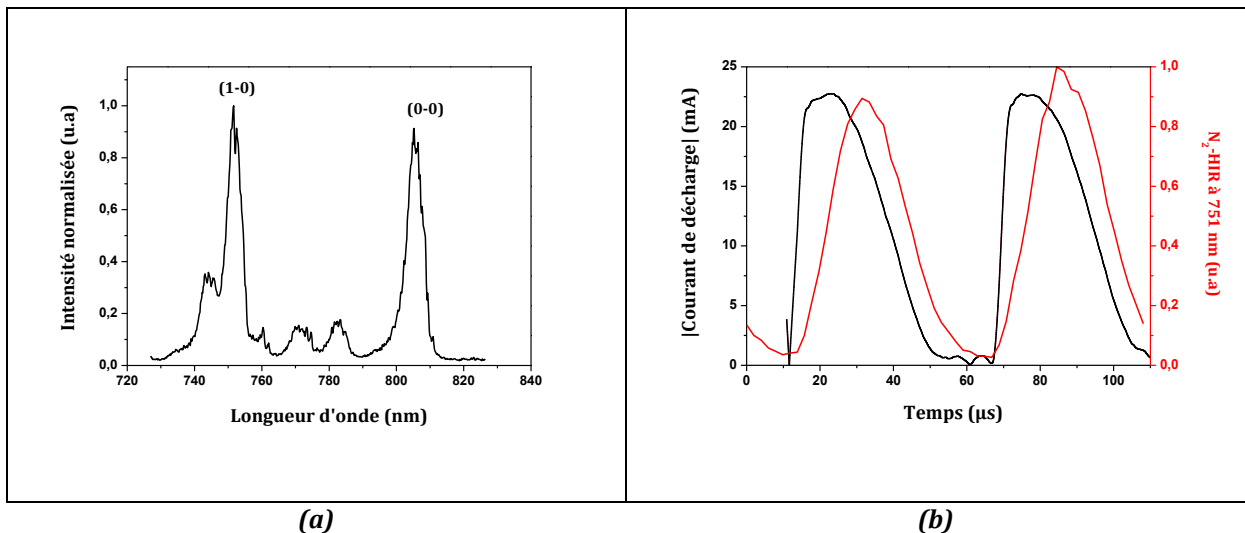
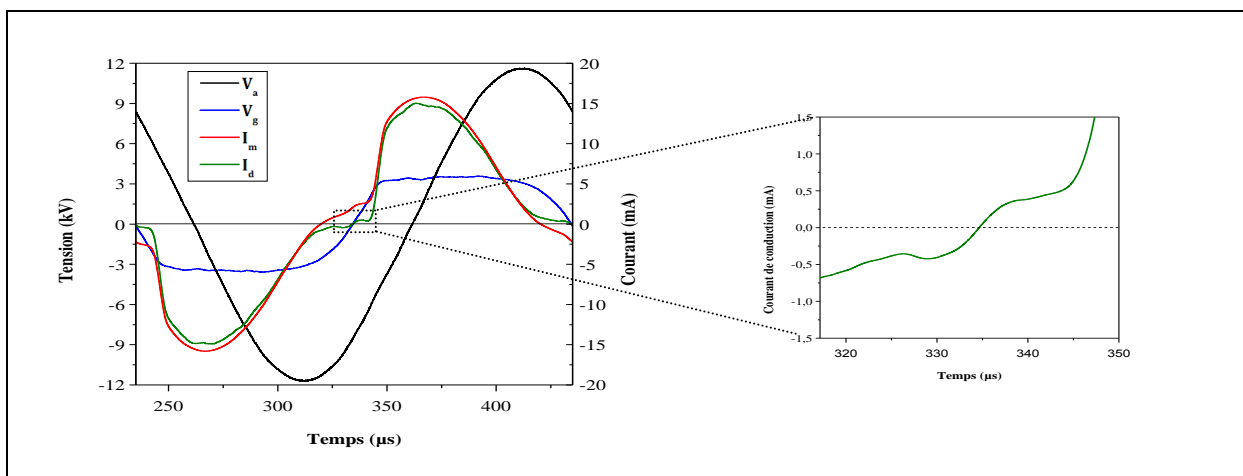


Figure III-14 : Illustration du système N<sub>2</sub>-HIR

(a) au maximum du courant de décharge (I=22mA - f=5kHz)

(b) en fonction du temps comparé au courant de décharge à 751 nm (I=22mA - f=5kHz)

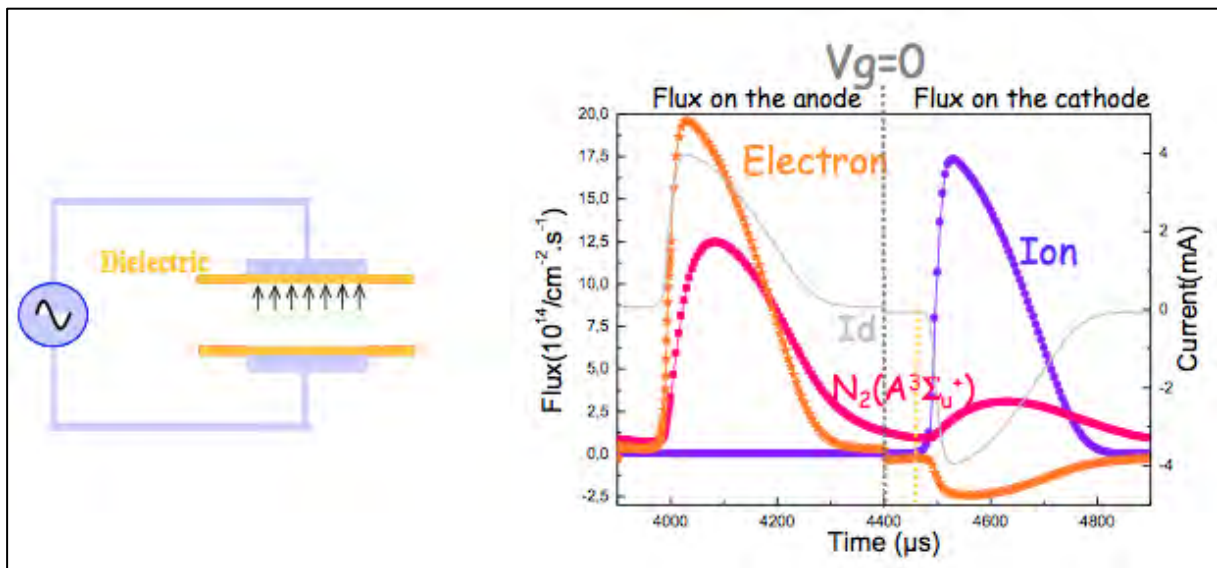
Cet effet mémoire, clairement visible par spectroscopie d'émission optique, l'est également sur le courant de décharge, La Figure III-15 présente ainsi l'évolution du courant de décharge calculé à partir des mesures électriques et du schéma de la Figure II-7. Il est intéressant de noter que lorsque la décharge est éteinte (période pendant laquelle la tension appliquée sur le gaz est bien inférieure à la tension d'amorçage) le courant de décharge est non nul. En effet, on observe une composante quasi continue sur le courant de décharge qui dépend du signe de la tension gaz. Il existe donc clairement un mécanisme à l'origine de la création d'électrons sous faible champ électrique.



**Figure III-15 : Variation du courant de décharge et de la tension de gaz en fonction du temps (illustration de l'effet mémoire)( $V=24\text{ kVcc-f}=5\text{kHz}$ )**

L'hypothèse émise par Massines *et al.* est que ces électrons sont créés par émission secondaire à la cathode par bombardement des métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ , ce qui permettrait d'ensemencer le gaz en électrons germes et ainsi d'obtenir un claquage de type Townsend à la pression atmosphérique [31][35]. Comme le champ électrique est quasiment constant dans l'espace inter-diélectriques dans le cas d'une décharge de Townsend, les  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  sont majoritairement créés près de l'anode. Ces métastables n'étant pas chargés électriquement, leur déplacement est contrôlé par la diffusion qui est faible à pression atmosphérique. Par conséquent, les métastables créés près de l'anode vont se retrouver près de la nouvelle cathode au changement d'alternance. Ainsi, comme le montre la Figure III-16, le flux de  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  à la cathode est important lorsque la décharge s'amorce (au début de l'augmentation du courant,  $t=4450\mu\text{s}$ ).

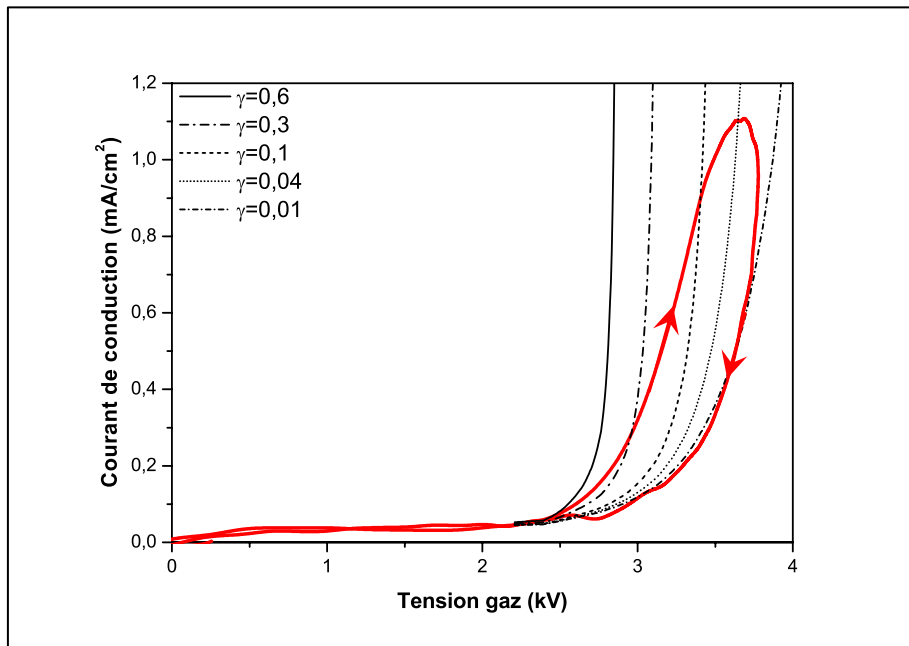
Un point important concernant cette hypothèse est que l'émission secondaire par les métastables est favorisée du fait de la charge stockée par le diélectrique. En effet, le coefficient d'émission secondaire d'une surface diélectrique non chargée est généralement très faible. Par contre, le diélectrique qui est sur la cathode est chargé négativement au moment de l'amorçage: il a en effet reçu un flux important d'électrons lors de l'alternance précédente (quand il était anode). Or ces électrons sont piégés majoritairement sur des défauts de la bande interdite, et ils doivent donc être beaucoup plus faciles à extraire que les électrons intrinsèques du matériau.



**Figure III-16 : Densité de courant de décharge et flux d'ions, d'électrons et de métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  sur la surface d'un des deux diélectriques qui est sur l'anode en début de cycle puis sur la cathode [31]**

Cette variation de l'émission secondaire est visible sur la caractéristique courant de décharge en fonction de la tension gaz (Figure III-17). En effet, on observe une hystérésis sur cette caractéristique. Ce phénomène peut s'expliquer à partir de l'équation caractéristique d'une décharge de Townsend (Eq III.1). Pour pouvoir décrire cette caractéristique, le coefficient  $\gamma$  doit être fort (typiquement 0,3) lors de l'amorçage et décroître jusqu'à 0,04 pour atteindre la valeur maximale du courant qui intervient au changement de signe de la tension  $V_{ds}$  (Figure III-17), c'est-à-dire au moment à partir duquel le diélectrique du côté de la cathode n'est plus chargé négativement. A partir du maximum de courant, la décroissance du courant peut être représentée en utilisant un coefficient  $\gamma$  décroissant de manière continu et jusqu'à des valeurs proches de 0,01

compatible avec la valeur intrinsèque du matériau non chargé. Il est intéressant de noter que dans le modèle développé par C. Kamphan [30][31], il a également été nécessaire d'introduire un coefficient  $\gamma$  fonction de la charge du diélectrique et variant de 0,5 à 0,01, afin de pouvoir reproduire au plus près le fonctionnement de la décharge observé expérimentalement.



*Figure III-17 : Mise en évidence de la variation du coefficient d'émission secondaire [36]*

Cet effet mémoire d'une décharge à la suivante est un point clé de la compréhension de la physique de cette décharge, et qui fait l'objet du chapitre suivant.

## Chapitre IV : ETUDE DE L'EFFET MEMOIRE DANS UNE DTPA

On vient de le voir, l'obtention d'une décharge de Townsend à la pression atmosphérique est assujettie à l'existence d'un effet mémoire d'une décharge à la suivante. De plus, dans l'azote pur, les molécules métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  semblent jouer un rôle dans cet effet mémoire [37][38][39]. Ainsi, la concentration de gaz réactif qui peut être rajoutée à l'azote tout en conservant une décharge de Townsend dépend en général de la capacité de ce gaz à désactiver ces métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  (par quenching collisionnel). Par exemple, à peine 500 ppm d'oxygène [40][41] rajoutés dans l'azote suffisent à faire transiter la décharge vers le régime filamentaire alors que près de 80% de gaz nobles (hélium, argon, néon) peuvent être ajoutés sans affecter la stabilité de la décharge [39].

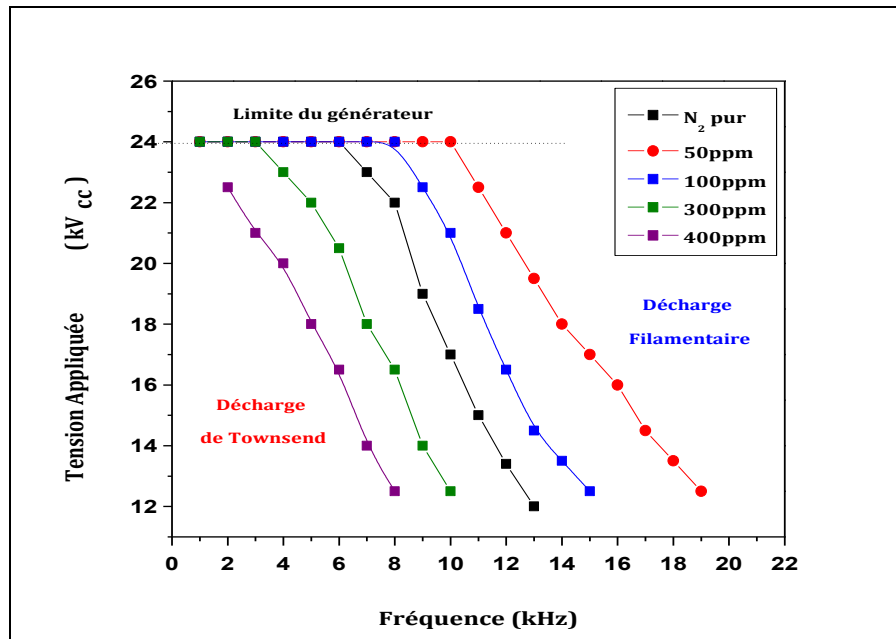
Pourtant, des études menées au sein du groupe ont montré que plus de 1000 ppm de  $N_2O$  pouvaient être ajoutés à l'azote sans déstabiliser la décharge [42] alors que le quenching des métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  par  $N_2O$  est au moins aussi efficace que par  $O_2$  [43]. De plus, l'ajout de très faibles quantités de gaz réactifs (quelques dizaines de ppm) a parfois pour effet d'augmenter la stabilité de la décharge [42].

Dans ce contexte, l'objectif de ce chapitre est d'étudier finement l'impact de l'ajout de faibles quantités de gaz oxydants sur la décharge, et plus spécialement sur l'effet mémoire.

### I. COMPORTEMENT GLOBAL DE LA DECHARGE EN PRESENCE DE FAIBLES QUANTITES DE $O_2$

#### I-1. Etude électrique

Les plages de fréquence et de tension pour lesquelles la décharge est homogène définissent un domaine de fonctionnement. La Figure IV-1 montre les différents domaines de fonctionnement d'une DTPA obtenue dans un mélange  $N_2/O_2$  en fonction du taux de  $O_2$  injecté dans l'azote pur. Pour une fréquence et un taux de  $O_2$  donnés, la courbe représente la tension maximale qui peut être appliquée sur la cellule de décharge tout en maintenant une décharge homogène. Notons ici que la tension maximale d'alimentation vaut 24 kV<sub>CC</sub>.

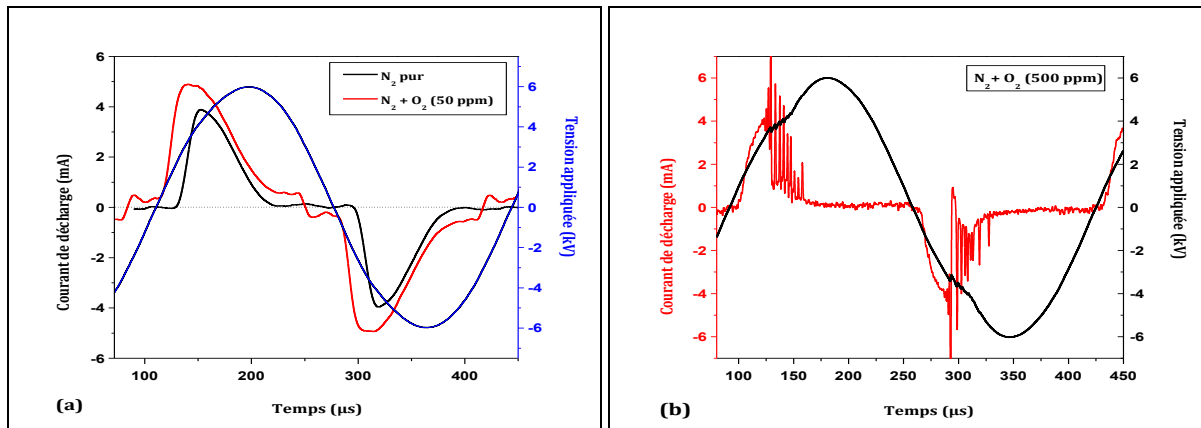


**Figure IV-1 : Domaines de fonctionnement de la décharge de Townsend à la pression atmosphérique obtenus dans le cas d'un mélange  $N_2/O_2$  en fonction du taux de  $O_2$  injecté dans l'azote ( $N_2=2l/mn$ , gap 1mm)**

Comme discuté en introduction de ce chapitre, nous observons sur la Figure IV-1 que comparativement au domaine dans l'azote pur, l'ajout de faibles quantités de  $O_2$  a d'abord pour effet d'augmenter le domaine de fonctionnement en tension et en fréquence, notamment avec 50 ppm de  $O_2$ . Le domaine se réduit à nouveau pour des taux d' $O_2$  supérieurs à 50 ppm mais ne redevient égal à celui de l'azote pur qu'aux alentours de 200 ppm de  $O_2$  injectés dans la décharge. Pour des taux supérieurs à 200 ppm, le domaine se réduit encore, et la décharge devient donc moins stable qu'elle ne l'est dans l'azote pur, et devient minimal dans nos conditions pour 400 ppm de  $O_2$ . Au-delà, la décharge devient filamentaire.

Nous avons illustré dans le chapitre précédent que l'effet mémoire des métastables se traduit, d'un point de vue électrique, par un saut de courant au changement d'alternance entre deux décharges. Donc, afin de vérifier si les changements dans la stabilité de la décharge observés ici étaient liés ou non à une évolution de l'effet mémoire d'une décharge à la suivante, nous nous sommes intéressés à la signature électrique de la décharge en présence de l'oxygène. La Figure IV-2 montre ainsi une comparaison électrique entre les courants de décharge générés dans le cas de l'azote pur et dans des mélanges  $N_2/O_2$  (50 et 500 ppm), toute condition étant conservée égale par ailleurs.

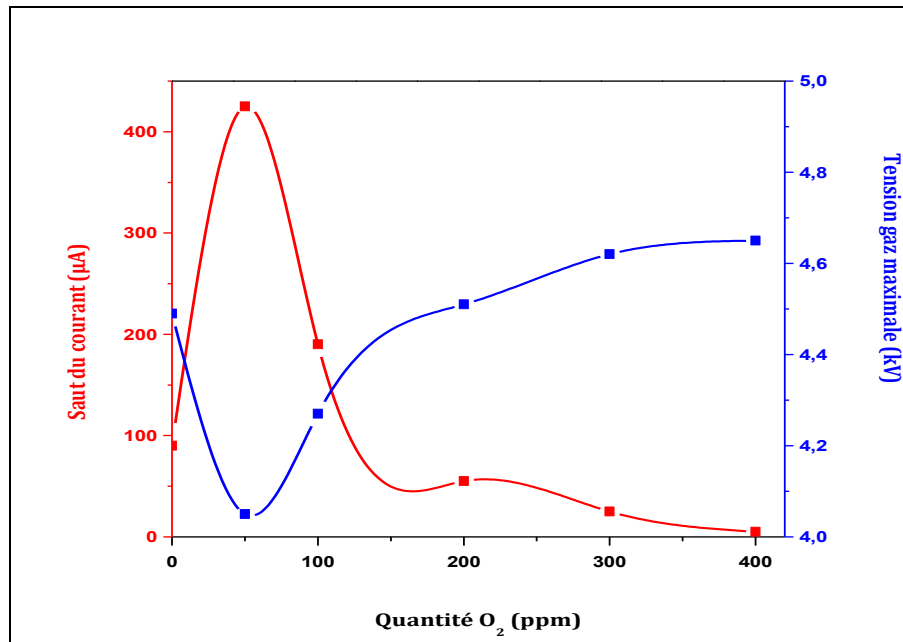




**Figure IV-2 : Comparaison des courants de décharge pour des mêmes conditions d'excitations ( $V=12\text{ kV}_{cc}$ ,  $f=3\text{kHz}$ ) dans le cas de (a)  $N_2$  pur et  $N_2 + 50\text{ ppm}$  de  $O_2$ , (b)  $N_2 + 500\text{ ppm}$  de  $O_2$**

Comme on peut clairement le remarquer, l'ajout de 50ppm d'oxygène va de paire avec une augmentation du pic de courant inverse (Figure IV-2-a), ce qui est donc la signature d'une plus forte densité électronique lors de l'inversion de polarité anode-cathode. Cette augmentation du pic de courant inverse, et donc de l'effet mémoire entre deux décharges, conduit à une décharge qui s'amorce sous un champ plus faible, donc plus tôt dans le cycle, et qui conduit à un courant plus élevé, donc à une décharge plus puissante et plus stable. Au contraire, pour 500 ppm de  $O_2$  dans l'azote pur, la décharge est partiellement filamentaire, et le pic de courant inverse semble très faible, voir nul.

Cette évolution de l'amplitude du pic de courant inverse (ou saut de courant entre deux décharges) est représentée quantitativement en fonction du taux de  $O_2$  injecté sur la Figure IV-3. Nous avons également rajouté sur cette figure la valeur maximale de la tension gaz pour chaque mélange.



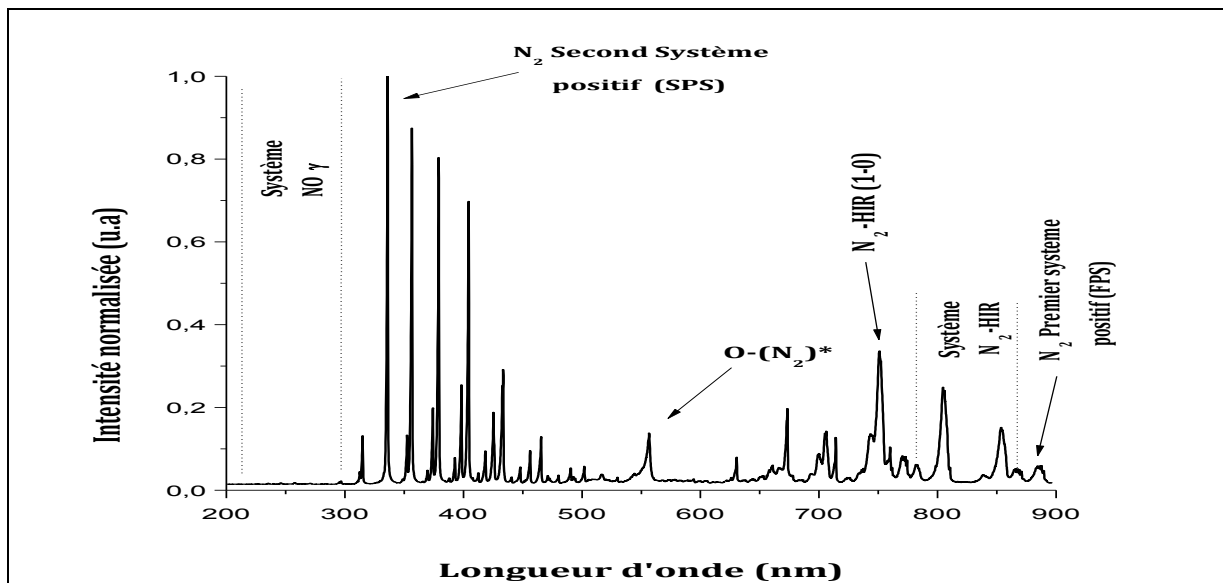
**Figure IV-3 : Evolution du saut de courant (ou pic de courant inverse) entre deux décharges et du maximum de la tension gaz en fonction de la quantité de O<sub>2</sub> injectée dans la décharge ( $V=12$  kV<sub>co</sub>,  $f=3$ kHz)**

Cette figure permet de confirmer qu'à partir de 50 ppm d'oxygène ajoutés et ce jusqu'à 200 ppm (condition pour laquelle le domaine de fonctionnement redevient similaire à celui obtenu dans l'azote pur), la décharge se développe sous une tension gaz plus faible que dans l'azote pur. De même, le saut de courant (responsable de l'effet mémoire), présente un maximum à 50ppm, où il atteint 850 µA dans nos conditions. A plus fort taux d'oxygène, le saut devient de plus en plus faible jusqu'à devenir difficilement mesurable au-delà de 400 ppm.

Comme déjà discuté précédemment, les métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  se désactivent par collision avec O<sub>2</sub> (et ses produits de dissociation). Ainsi, si ce quenching permet de comprendre pourquoi la stabilité de la décharge diminue lorsqu'on ajoute plus de 200 ppm de O<sub>2</sub>, cela ne permet pas d'expliquer l'augmentation du pic de courant inverse et de la stabilité de la décharge pour de plus faibles ajouts de O<sub>2</sub>. Aussi, nous avons entrepris une étude de la décharge par spectroscopie d'émission optique dans les mélanges N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> afin d'avoir un aperçu des transferts énergétiques en phase gaz.

## I-2. Etude spectroscopique

Comme montré dans le chapitre 3, un spectre typique de la décharge dans ces mélanges est représenté sur la Figure IV-4. Outre le second système positif de l'azote, la décharge émet le système  $\text{NO}\gamma$ , la bande  $\text{O}(^1\text{S})\text{N}_2$  (notée  $\text{O}-(\text{N}_2)^*$  sur la figure), le système Herman Infra Rouge de l'azote (HIR), et dans une moindre mesure le premier système positif de l'azote.



**Figure IV-4 : Spectre global d'une DTPA dans l'azote avec la mise en évidence des principaux systèmes présents**

Le suivi des évolutions temporelles de ces émissions permet de distinguer les émissions dues à une excitation électronique (dominantes pendant la décharge) de celles dues à une excitation impliquant les espèces métastables, et en particulier les métastables  $\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+)$  (dominantes entre deux décharges).

La Figure IV-5 illustre ce point dans le cas d'une décharge dans l'azote pur. Elle représente l'évolution temporelle des systèmes  $\text{N}_2$  second positif (bande (0,0) à 337 nm),  $\text{N}_2$ -HIR (bande (1,0) à 751 nm) et  $\text{NO}\gamma$  (bande (0,2) à 249 nm) dans le cas d'un courant carré généré par une alimentation en tension triangle. Les différentes émissions sont normalisées par rapport à leur maximum. Comme on peut le voir, le système  $\text{N}_2$  second positif (SPS) suit parfaitement l'allure du courant de décharge : cela montre que

ce système est principalement créé par impact électronique. Lorsque la décharge est allumée ( $465\mu s < t < 730\mu s$ ), les émissions liées au  $N_2$ -HIR et  $NO\gamma$  augmentent quant à elles moins rapidement que le courant. De même, après l'extinction de la décharge ( $t = 730\mu s$ ), ces deux émissions décroissent moins rapidement que le courant.

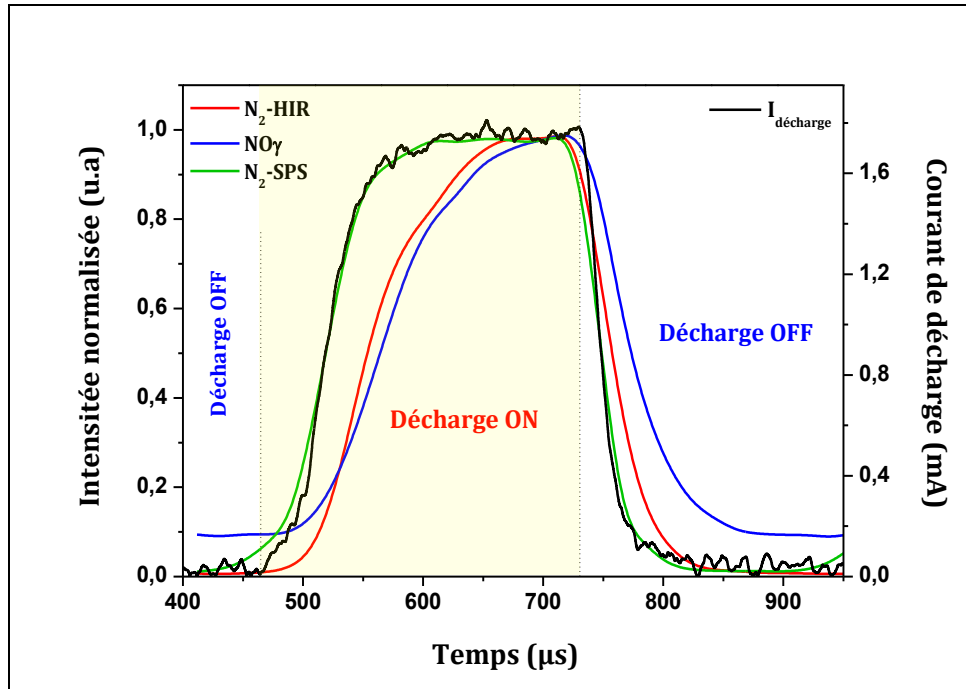
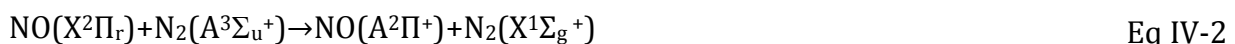


Figure IV-5 : Evolution temporelle du courant de décharge généré par une alimentation en tension triangulaire ( $V=15kV_{cc}$ ,  $f=1kHz$ ) et des émissions  $N_2$ -SPS,  $N_2$ -HIR,  $NO\gamma$

Ceci peut s'expliquer par le fait que les métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  participent à la création des états radiatifs responsables de ces émissions selon les deux réactions suivantes :



où  $N_2(C''^5\Pi_u)$  est l'état radiatif qui émet le système Herman Infra Rouge ( $N_2$ -HIR). [33]



où  $NO(A^2\Pi^+)$  est l'état radiatif qui émet le système  $NO\gamma$  [44]

Par ailleurs, le taux de décroissance des deux émissions entre deux décharges diffère clairement. La Figure IV-6 illustre le fait que ces décroissances sont de forme exponentielle, dont le taux vaut  $41 \mu s$  et  $79 \mu s$  dans le cas respectivement de  $N_2$ -HIR et

$\text{NO}\gamma$ . Or une excitation des états radiatifs par les deux équations ci-dessus implique que l'évolution du système  $\text{N}_2\text{-HIR}$  dépende du carré de la densité de métastables  $\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+)$  (ou autrement dit que la densité de métastables varie comme la racine carrée de l'évolution du système  $\text{N}_2\text{-HIR}$ ) et que celle du système  $\text{NO}\gamma$  dépende du produit de la densité de métastables  $\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+)$  par la densité de  $\text{NO}$ .

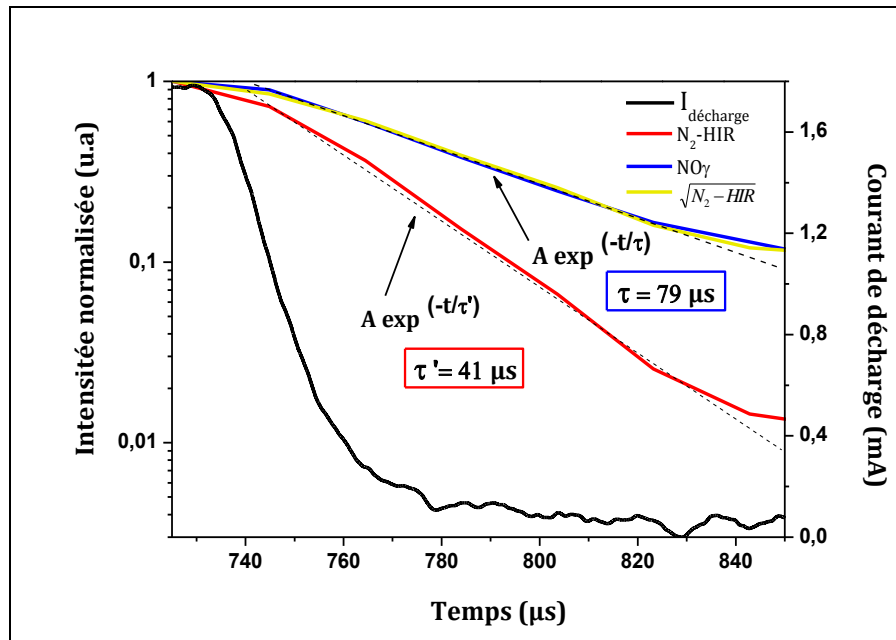


Figure IV-6 : Evolution temporelle du courant de décharge généré par une alimentation en tension triangulaire ( $V=15\text{kV}_{\text{cc}}$ ,  $f=1\text{kHz}$ ) et des émissions  $\text{N}_2\text{-SPS}$ ,  $\text{N}_2\text{-HIR}$ ,  $\sqrt{\text{N}_2 - \text{HIR}}$  et  $\text{NO}\gamma$  avec la mise en évidence des taux de décroissance lorsque la décharge est éteinte

Si on suppose que la densité de  $\text{NO}$  dans son état fondamental n'évolue pas de manière flagrante à l'échelle du temps entre deux décharges, l'évolution du système  $\text{NO}\gamma$  doit même dépendre directement de la densité de métastables. Ainsi, si les deux réactions ci-dessus dominant effectivement le peuplement des états radiatifs des deux émissions entre deux décharges, alors les évolutions du système  $\text{NO}\gamma$  et de la racine carrée du système  $\text{N}_2\text{-HIR}$  doivent être identiques, et gouvernées par l'évolution de la densité de métastables  $\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+)$ .

Comme le montre la Figure IV-6 ce raisonnement, couplé aux taux de décroissance des deux émissions, permet d'une part de confirmer qu'effectivement les deux équations ci-dessus dominant l'excitation des systèmes  $\text{N}_2\text{-HIR}$  et  $\text{NO}\gamma$  entre deux décharges et d'autre part permet d'évaluer la durée de vie des métastables  $\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+)$  à  $79\ \mu\text{s}$  dans les

conditions expérimentales présentes, ce qui est en bon accord avec les valeurs trouvées dans la littérature pour des conditions similaires [34].

Ainsi, les deux émissions  $N_2$ -HIR et  $NO\gamma$  entre deux décharges sont clairement reliées à la présence de métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ . Afin de découvrir si l'augmentation du pic de courant inverse observée pour l'ajout de faibles quantités de  $O_2$  (Figure IV-3) est liée à l'évolution des métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ , nous avons tracé l'évolution de l'intensité des systèmes  $N_2$ -HIR et  $NO\gamma$  en fonction du taux de  $O_2$  dans la décharge (Figure IV-7), et ce jusqu'à 1000 ppm de  $O_2$  (la décharge devenant filamentaire au-delà de 400 ppm)

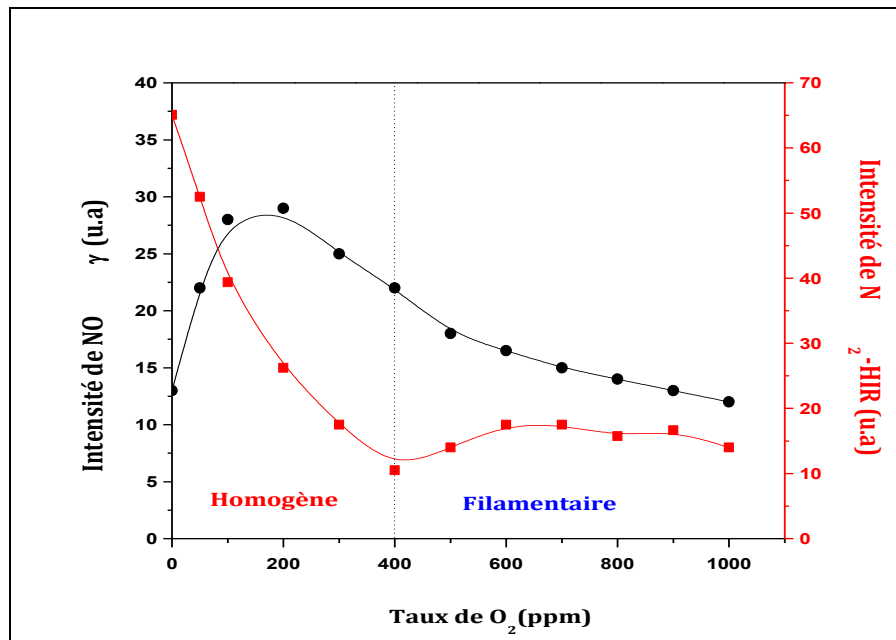


Figure IV-7 : Evolution de l'intensité du pic  $N_2$ -HIR (1,0) et  $NO\gamma$  (0-2) en fonction du taux d'oxygène injectée avec l'azote dans la décharge ( $V=12kV_{cc}$ ,  $f=3kHz$ )

Comme on peut le voir, l'émission du système HIR décroît continuellement avec l'augmentation de la quantité d'oxygène injectée. Ainsi, ce résultat est en accord avec un quenching des métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  par  $O_2$  et ses produits de dissociation. La légère augmentation de l'émission du système  $N_2$ -HIR observée après 400 ppm est probablement due au fait que la décharge transite en décharge filamentaire qui est plus énergétique que la décharge de Townsend.

Le système  $NO\gamma$ , quant à lui, augmente à très faible taux d'oxygène -jusqu'à 200ppm- probablement du fait que la création de  $NO$  (via des réactions entre l'azote et l'oxygène

ajouté) compense la disparition des métastables d'azote  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ . Au-delà de 200ppm, la disparition des métastables (combinée ou non à une baisse de la production de NO dans l'état fondamental) domine l'évolution du système  $NO\gamma$  qui finit donc par diminuer. Ces deux émissions ne sont plus du tout observées au-delà de quelques milliers de ppm de  $O_2$ .

Le fait que l'augmentation de stabilité de la décharge concorde partiellement avec une augmentation de l'émission de  $NO\gamma$  (et donc de production de NO) nous a amené à nous poser la question du rôle exact joué par la molécule NO, ou par l'émission  $NO\gamma$ .

Pour cela, de la même manière que nous venons de le faire avec  $O_2$ , nous avons étudié l'influence de l'ajout de NO dans  $N_2$  sur le comportement de la décharge.

## II. EFFET DE L'AJOUT DE NO SUR LE COMPORTEMENT GLOBAL DE LA DECHARGE

Lorsqu'on injecte 30 ppm de monoxyde d'azote, nous observons un comportement similaire au comportement observé pour 50 ppm de  $O_2$  dans l'azote (Figure IV-2-a), c'est-à-dire un fort saut de courant entre deux décharges et une décharge qui s'amorce pour une tension plus faible.

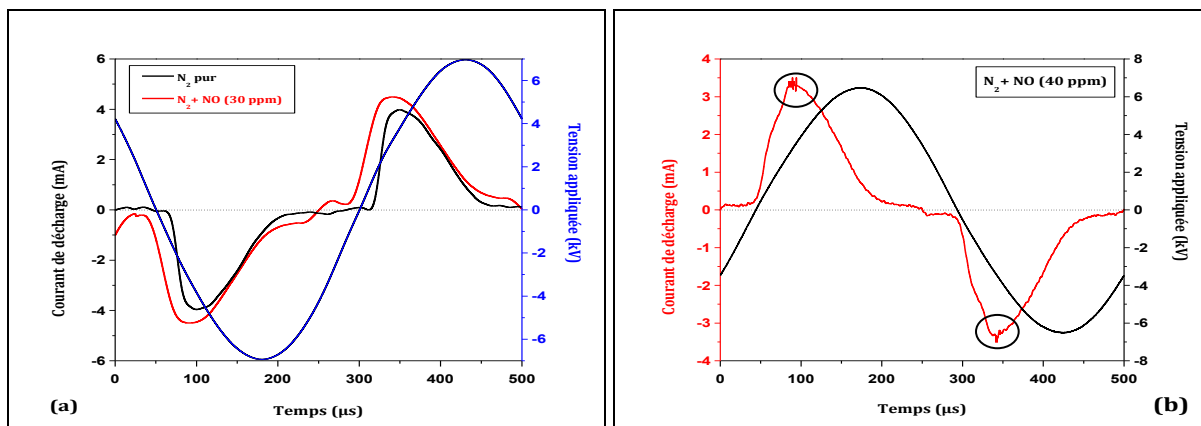
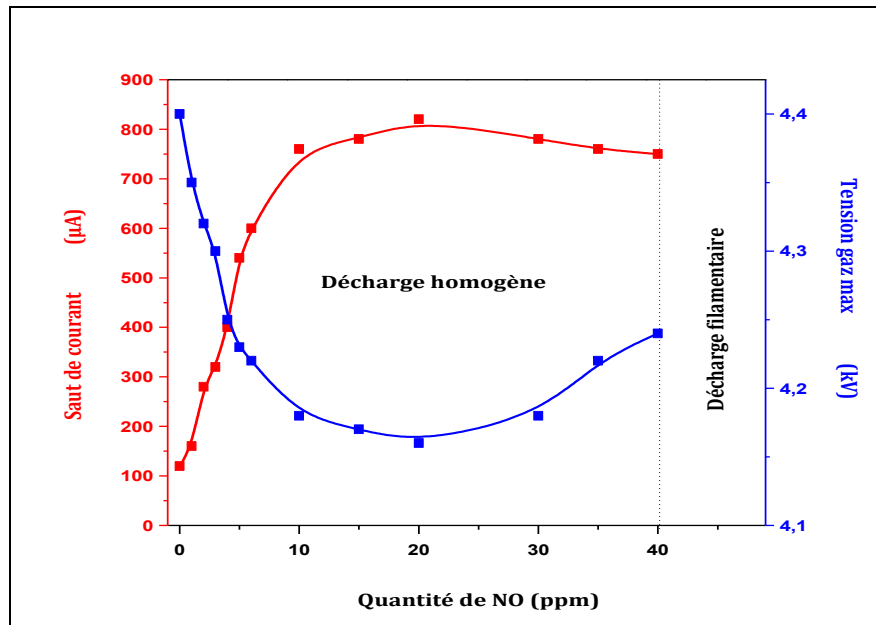


Figure IV-8 : Evolution temporelle du courant ( $V=13\text{ kV}_{cc}$ ,  $f=2\text{ kHz}$ ) dans le cas de :  
(a)  $N_2$  pur et  $N_2 + NO$  (30ppm), (b)  $N_2 + NO$  (40ppm)

Cependant, une différence notable par rapport à ce qui est observé avec  $O_2$  est que dès l'ajout de 40ppm de NO, la décharge commence à se déstabiliser et tend vers un régime de décharge filamentaire, et ce malgré le fait que le saut de courant entre deux décharges reste clairement visible (Figure IV-8-b). Comme dans le cas de  $O_2$ , nous avons

représenté quantitativement cette variation en traçant l'évolution du saut du courant entre deux décharges et du maximum de la tension gaz, en fonction du taux de NO dans N<sub>2</sub>, pour une fréquence d'excitation et une amplitude de la tension d'alimentation constantes (Figure IV-9).



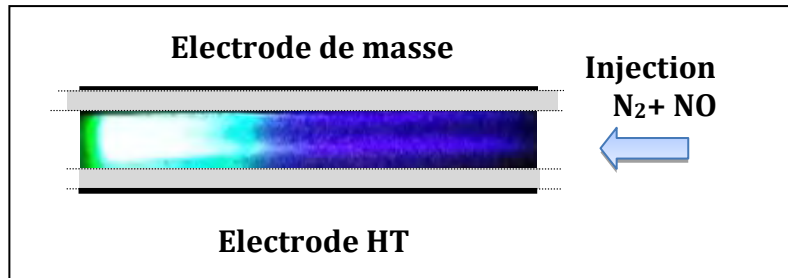
**Figure IV-9 : Evolution du saut de courant entre deux décharges et du maximum de la tension gaz en fonction de la quantité de NO injectée dans la décharge ( $V=12\text{ kV}_{cc}$ ,  $f=3\text{kHz}$ )**

Avec l'injection de monoxyde d'azote, le saut du courant augmente considérablement jusqu'à une saturation autour de  $800\mu\text{A}$  à partir de  $20\text{ppm}$ . A la différence de ce qui est observé dans le cas de O<sub>2</sub>, la transition vers le régime filamentaire apparaît alors que l'amplitude de ce saut de courant est pratiquement égale à sa valeur maximale. Par ailleurs, comme pour O<sub>2</sub>, le maximum de la tension gaz suit une évolution inverse du saut de courant : en partant du N<sub>2</sub> pur, elle diminue progressivement avec l'augmentation du taux de NO injecté, ce qui signifie que la décharge s'amorce pour une tension plus faible au fur et à mesure que le taux de NO augmente dans le gaz. Ce comportement s'inverse au-delà de  $20\text{ ppm}$  de NO dans N<sub>2</sub> mais la décharge transite vers la décharge filamentaire avant que le maximum de tension gaz ne soit redevenu égal (ou supérieur) à celui mesuré dans le cas de l'azote pur.

L'adjonction de NO dans la décharge a fait apparaître de manière flagrante le fait que la décharge présente des caractéristiques différentes en fonction du temps de résidence du



gaz et donc en fonction de la position le long du flux de gaz. En effet, dans le cas de NO, cette évolution apparaît très clairement à travers d'une simple observation visuelle de la décharge perpendiculairement au flux de gaz (Figure IV-10) : en entrée de décharge la décharge est assez peu lumineuse et de couleur violette alors qu'en sortie elle est plus lumineuse et de couleur verte. Spécifions bien ici que la décharge est de type Townsend sur toute la zone des électrodes : aucun filament n'est détecté électriquement.



*Figure IV-10 : Photographie visuelle de la décharge dans le cas d'un mélange gazeux N<sub>2</sub>/NO (30ppm) (V=12kV<sub>cc</sub>, f=2kHz)*

Cette évolution lumineuse le long du flux de gaz illustre les limites du raisonnement tenu jusqu'ici et qui consiste à ne regarder que le comportement global de la décharge sur toute la zone des électrodes. En effet, on peut supposer que cette évolution visuelle s'accompagne d'une évolution électrique. C'est la raison pour laquelle nous avons mis en place l'électrode fractionnée présentée dans le chapitre II-1-4, qui permet de mesurer des caractéristiques électriques plus locales, et en fonction de la position dans la décharge.

### III. EVOLUTION EN FONCTION DE LA POSITION DANS LA DECHARGE

La Figure IV-11 illustre un schéma de l'électrode fractionnée avec une photographie visuelle dans le cas d'un mélange N<sub>2</sub>/NO.

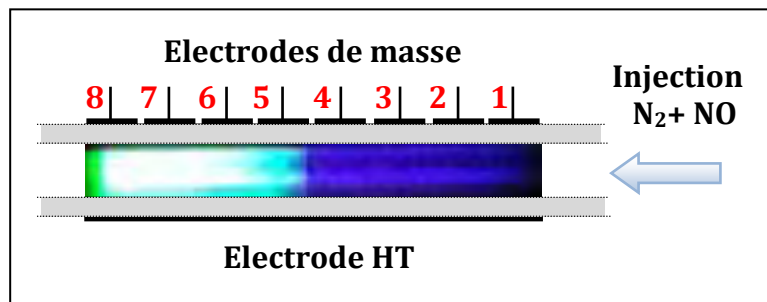


Figure IV-11: schéma de l'électrode fractionnée avec une photographie visuelle de la décharge dans le cas d'un mélange gazeux  $N_2/NO(30ppm)$  ( $V=12kV_{cc}$ ,  $f=2kHz$ )

Nous allons présenter par la suite les résultats des essais effectués avec cette cellule de décharge dans le cas de l'azote pur (cas de référence) et dans les mélanges  $N_2/O_2$  et  $N_2/NO$ . La Figure IV-12 montre l'évolution du courant local mesuré en fonction de la position dans le cas de l'azote pur.

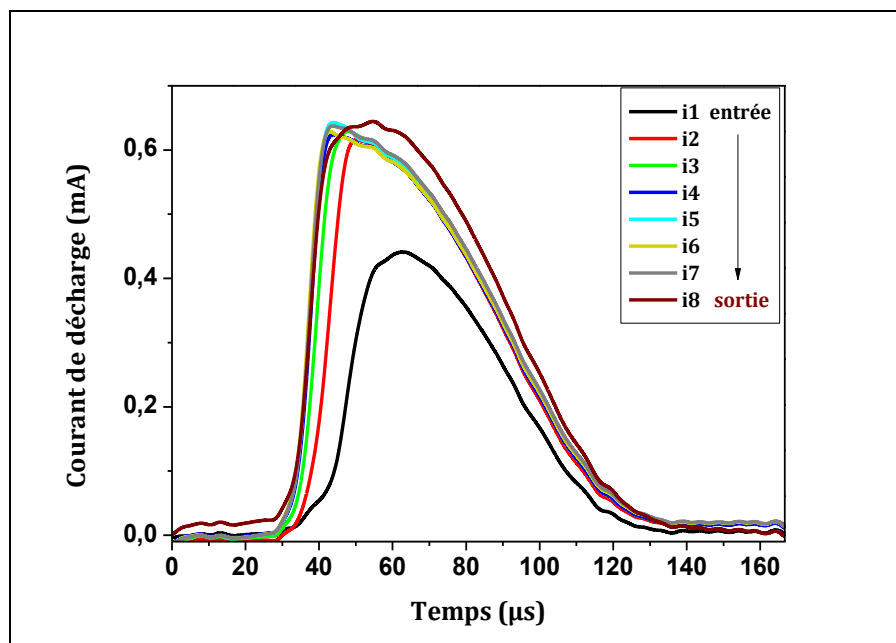


Figure IV-12 : Evolution du courant de décharge local en fonction du temps pour différentes positions dans le cas de l'azote pur ( $V=12kV_{cc}$ ,  $f=3kHz$ )

Comme on peut le voir sur la Figure IV-12, même dans le cas de l'azote pur, le courant n'est pas constant sur toute la zone de décharge : il évolue de façon croissante de l'entrée vers la sortie de la décharge. C'est-à-dire avec le temps de résidence du gaz dans la décharge qui est égal à la position divisée par la vitesse moyenne du flux de gaz. De

plus, temporellement, la décharge s'amorce d'abord en sortie puis elle s'étale jusqu'à l'entrée de la décharge.

Nous avons vu que dans le cas de l'injection d'un gaz réactif, la décharge est globalement plus stable avec 50 ppm de  $O_2$  (Figure IV-3) ou 30 ppm de NO (Figure IV-9). Nous avons choisi de montrer pour ces deux cas les résultats des essais effectués avec la nouvelle cellule dont l'électrode de masse est fractionnée.

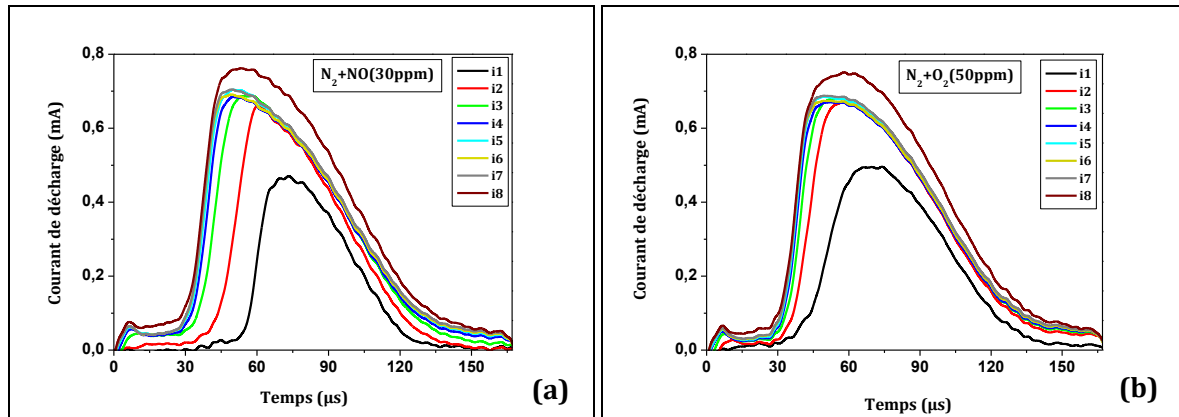


Figure IV-13 : Evolution du courant de décharge local en fonction de la position ( $V=12kV_{cc}$ ,  $f=3kHz$ ) : (a) Dans un mélange  $N_2/NO$ ; (b) Dans un mélange  $N_2/O_2$

Comme c'est le cas avec l'azote pur, la décharge s'amorce dans les deux cas d'abord en sortie puis elle s'étale jusqu'à l'entrée. Elle présente aussi une meilleure stabilité en sortie comme le montre l'amplitude du saut de courant qui augmente progressivement en fonction du temps de résidence, et ce dans les deux cas (Figure IV-13).

Dans la suite, nous allons corréler l'évolution des pics de courant inverse en fonction de la position avec les émissions optiques, également mesurées en fonction de la position, et ce pour différents taux de monoxyde d'azote et d'oxygène injectés dans la décharge. A des fins de clarté, nous allons discuter successivement le cas du monoxyde d'azote et de l'oxygène, avant de conclure par une discussion des mécanismes possibles pouvant expliquer les résultats observés.

### III-1. Cas de l'ajout de NO

La Figure IV-14 représente le saut de courant mesuré sur chaque zone de décharge (de l'entrée à la sortie) pour différents taux de NO injectés dans la décharge, compris entre 0 et 45 ppm. Comme on peut le voir, quelque soit le pourcentage de NO, le pic de courant

inverse augmente en fonction de la position dans la décharge, donc en fonction du temps de résidence. Ceci signifie que la source d'électrons entre deux décharges, et par conséquent l'effet mémoire d'une décharge à la suivante, sont plus importants en sortie de décharge qu'en entrée. Ceci peut être attribué à une concentration plus importante de métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  en sortie de décharge.

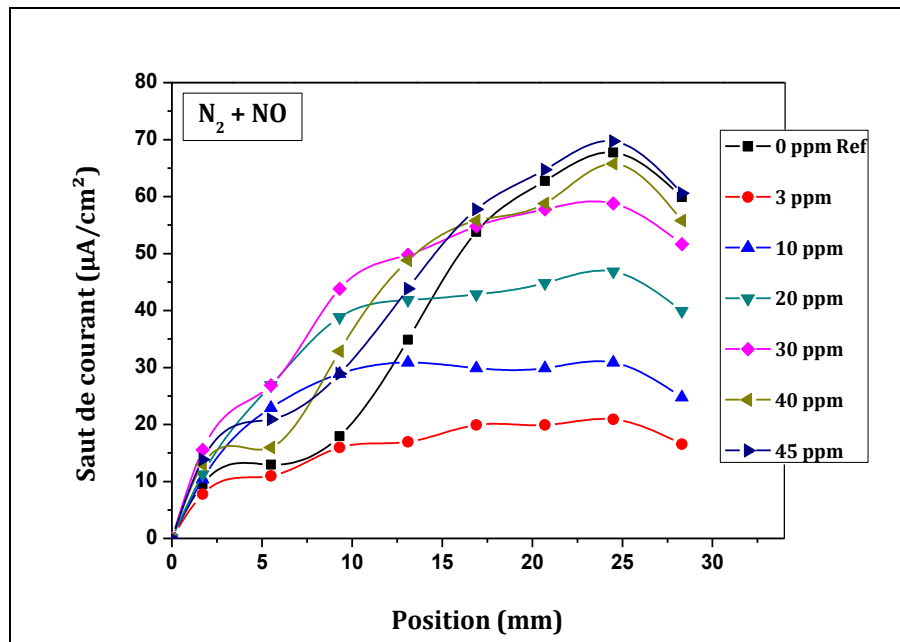
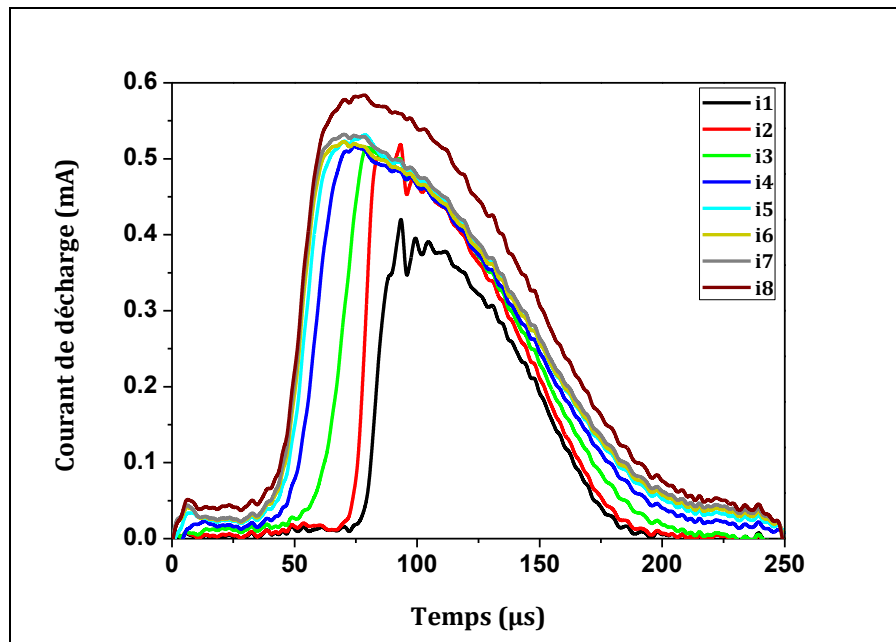


Figure IV-14 : Evolution du saut de courant local en fonction de la zone de décharge pour les différents taux de NO injecté.

Par ailleurs, le saut de courant en présence de NO est toujours supérieur au saut de courant dans le cas de l'azote pur. On observe une augmentation allant jusqu'à un facteur 2 en entrée (4mm) et à un facteur 3,5 au maximum en sortie (25-30mm). Ceci est la signature d'une augmentation de la production d'électrons entre deux décharges en lien avec l'ajout de la molécule de NO. Néanmoins, il est intéressant de noter qu'au-delà de 20 ppm de NO, l'amplitude du saut de courant en entrée de décharge (0-10mm) diminue pour redevenir voisine de celle mesurée en azote pur, alors qu'elle continue à augmenter en sortie (17-30mm). Ceci conduit à une modification de l'allure des courbes à 40 et 45 ppm (Figure IV-14). Cette diminution en entrée de décharge reflète une diminution de l'effet mémoire d'une décharge à la suivante, qui peut même devenir insuffisant pour maintenir l'obtention d'une décharge de Townsend. Ainsi, comme on peut le voir sur la Figure IV-15, pour un taux de 45 ppm de NO, le courant de décharge présente un comportement filamentaire en entrée (0-10mm) alors qu'il est parfaitement

stable à partir de la zone 3, avec qui plus est un effet mémoire particulièrement prononcé en sortie de décharge (14-30mm). Notons que lors du calcul du courant de décharge, une moyenne glissante est effectuée sur les signaux afin de limiter le bruit. Dans le cas d'une décharge homogène cela n'entraîne pas de déformation du courant. Ce n'est pas le cas pour une décharge filamentaire, et c'est la raison pour laquelle la déstabilisation de la décharge apparaît par des oscillations sur le courant. La visualisation du courant mesuré ne laisse aucun doute quant au fait qu'il s'agit bien d'une transition en régime filamentaire.

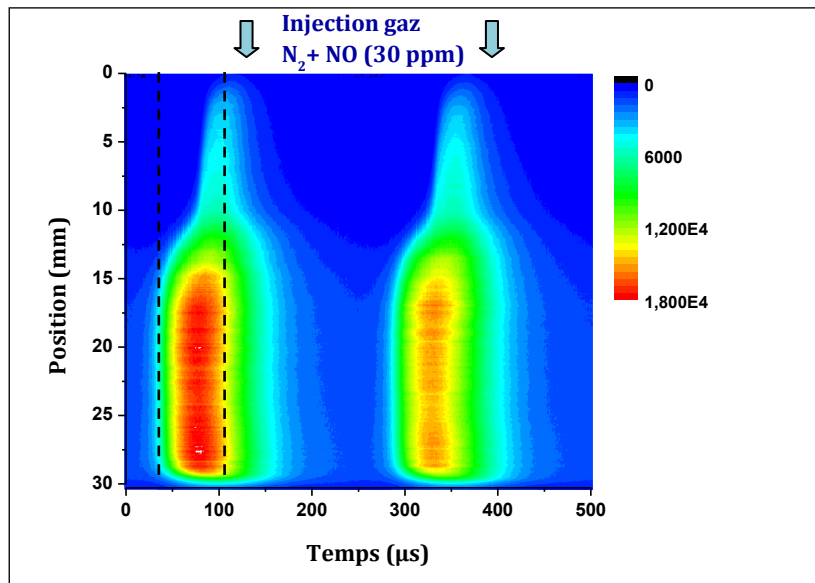


**Figure IV-15 : Evolution du courant de décharge local au moment de la déstabilisation de la décharge en fonction de la position dans un mélange  $N_2/NO(45ppm)$  ( $V=13kVcc$ ,  $f=2kHz$ )**

Ces observations permettent d'expliquer pourquoi lorsqu'on s'intéresse uniquement aux mesures intégrées du courant de décharge, on peut observer une décharge qui transite en régime filamentaire alors que l'amplitude du saut de courant est toujours proche de sa valeur maximale (Figure IV-9).

Afin de tenter de corréliser ces variations dans les mesures électriques aux transferts d'énergie ayant cours en phase gaz, nous avons analysé l'évolution spatiotemporelle du développement de la décharge par imagerie rapide. La Figure IV-16 présente, dans le cas d'un mélange  $N_2 + 30$  ppm de  $NO$ , l'intensité lumineuse globale émise par la décharge à

une position donnée par rapport à l'entrée de la décharge (lumière intégrée sur tout le gap gazeux), en fonction du temps sur une période de la tension appliquée.



**Figure IV-16 : Analyse de l'intensité lumineuse émise par la décharge dans un mélange  $N_2/NO(30\text{ ppm})$  ( $V=13\text{ kV}_{cc}$   $f=2\text{ kHz}$ )**

Comme on pouvait s'y attendre suite à l'analyse des courants de décharge (Figure IV-13-a), la lumière n'est pas synchrone sur toute la zone des électrodes. A  $t=30\mu\text{s}$ , la décharge s'amorce d'abord en sortie de la zone de décharge, puis elle s'étale progressivement vers l'entrée pour couvrir toute la zone de décharge à  $t=100\mu\text{s}$ , mais avec une décharge toujours plus intense en sortie. De même, la décharge s'éteint plus tôt en entrée qu'en sortie. Ainsi la décharge est approximativement allumée 3 fois moins longtemps en entrée qu'en sortie. On peut même remarquer qu'en sortie de décharge de la lumière est toujours présente entre deux décharges ( $175\mu\text{s} < t < 275\mu\text{s}$ ).

Nous avons vu précédemment que le spectre d'émission optique de la décharge était composé de plusieurs émissions, dont certaines reliées à la présence de métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ , à savoir le système  $N_2\text{-HIR}$ , le système  $NO\gamma$ , et la bande  $O(^1S)N_2$ . L'utilisation combinée de l'imagerie rapide (comme utilisée à l'instant) et d'un filtre optique adapté (voir chapitre II-2-2) permet de suivre l'évolution spatiotemporelle de ces différentes émissions. Ainsi, la Figure IV-17 illustre l'évolution de l'émission  $N_2\text{-HIR}$  (toujours intégrée suivant le gap gazeux) en fonction de la position dans la décharge et du temps, sur une période de la tension appliquée, et dans les mêmes conditions expérimentales

que pour la Figure IV-16. De même la Figure IV-18 représente l'évolution spatiotemporelle de l'émission  $\text{NO}\gamma$ , et la Figure IV-19 celle de la bande  $\text{O}(^1\text{S})\text{N}_2$ .

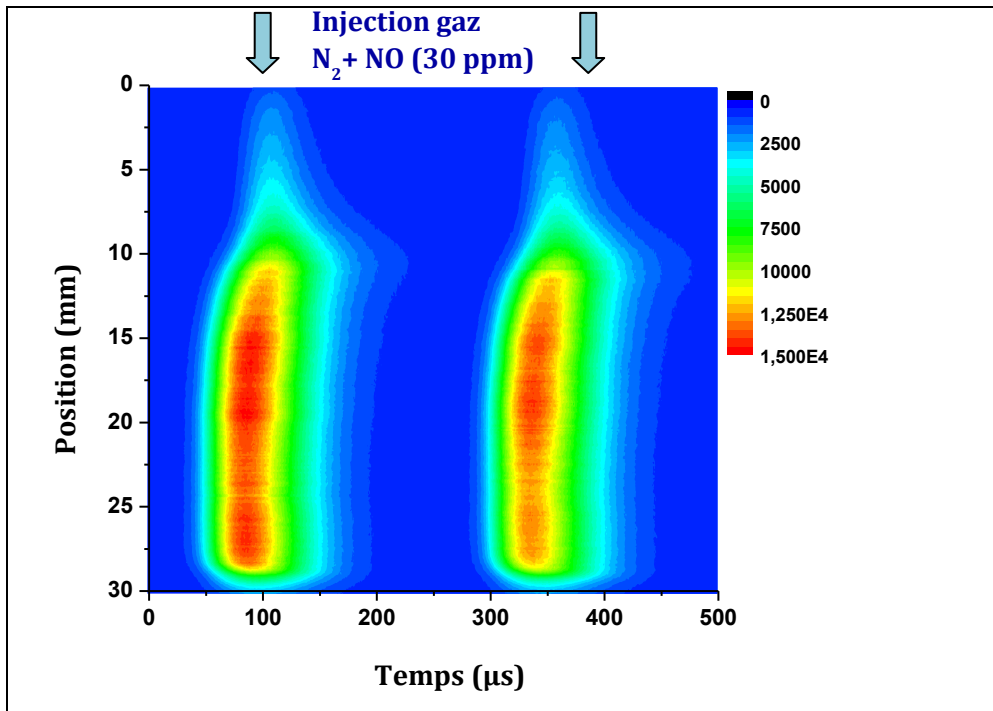


Figure IV-17 : Analyse de l'intensité de l'émission  $\text{N}_2$ -HIR dans un mélange  $\text{N}_2/\text{NO}$ (30 ppm)  
( $V=13\text{kV}_{cc}$   $f=2\text{kHz}$ )

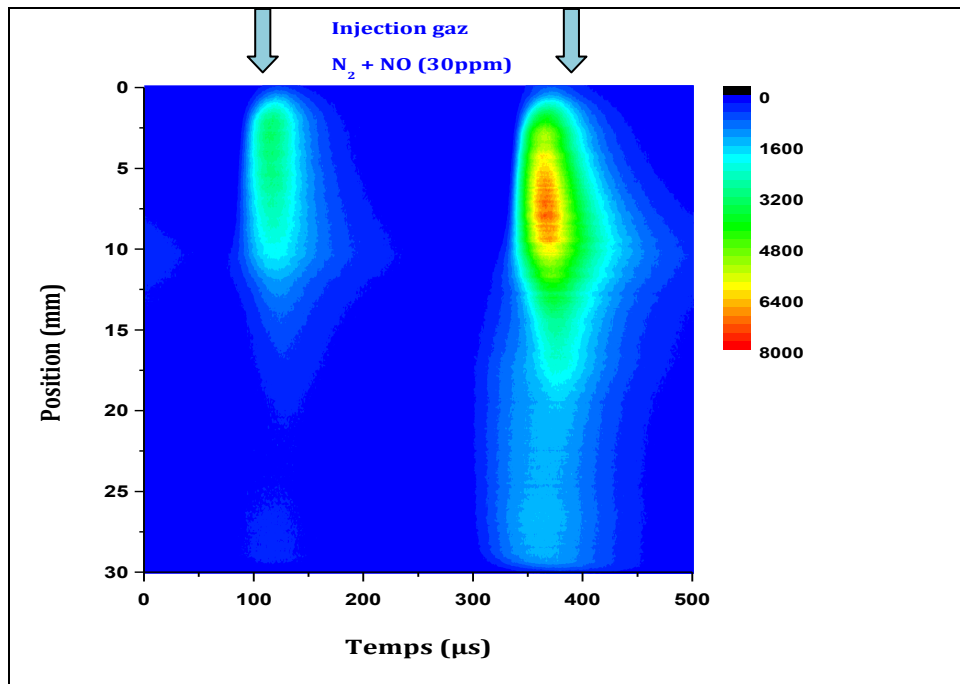


Figure IV-18 : Analyse de l'intensité de l'émission  $\text{NO}\gamma$  dans un mélange  $\text{N}_2/\text{NO}$ (30 ppm)  
( $V=12\text{kV}_{cc}$   $f=3\text{kHz}$ )

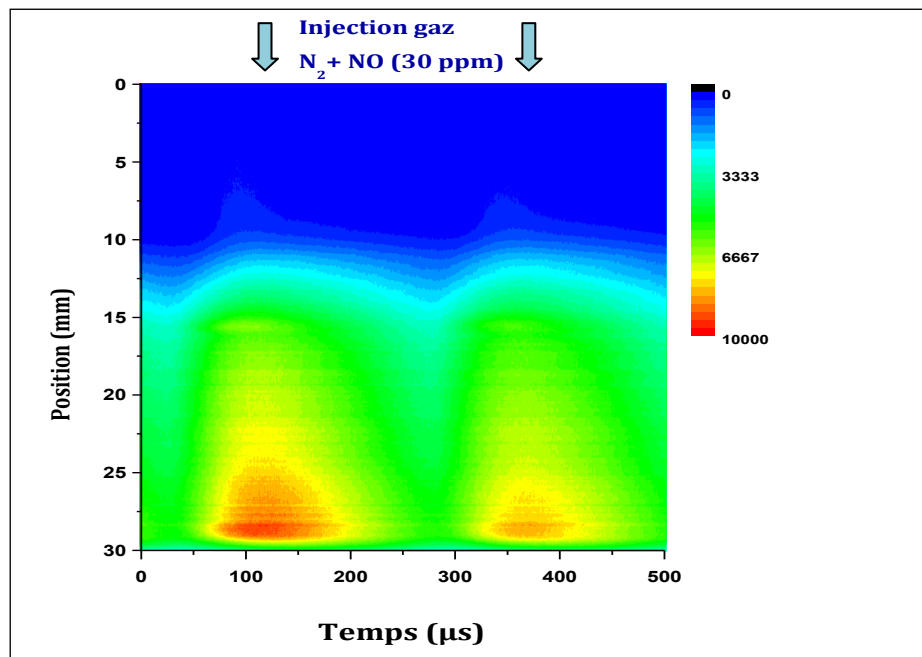


Figure IV-19 : Analyse de l'intensité de l'émission liée à  $O(^1S)N_2$  dans un mélange  $N_2/NO(30ppm)$  ( $V=12kV_{cc}$   $f=3kHz$ )

Ces trois émissions présentent des évolutions spatiotemporelles clairement différentes :

- Tout d'abord dans leur répartition spatiale : l'émission liée à  $NO\gamma$  est ainsi maximale en entrée de décharge, celle de  $N_2$ -HIR augmente avec la position dans la décharge pour atteindre un plateau au bout d'environ 1 cm, et celle due à la bande  $O(^1S)N_2$  n'est même pas présente en entrée, commence à apparaître au bout de 1 cm, et est maximale en toute fin de la zone de décharge.
- Egalement dans leur répartition temporelle : la modulation d'intensité le long du cycle de la tension appliquée est clairement plus faible dans le cas de la bande  $O(^1S)N_2$  (facteur 3 entre le maximum d'intensité et le minimum d'intensité en sortie de décharge) que dans le cas de  $NO\gamma$  (facteur 26 à la position 8cm) et du  $N_2$ -HIR (facteur 29 à la position 20cm). Ces différences sont à relier à la durée de vie des espèces à l'origine de la création de l'état radiatif (collision de 2 métastables dans le cas de  $N_2$ -HIR, excitation via un métastable ou excitation électronique dans le cas de  $NO\gamma$ , et excitation via un métastable dans le cas  $O(^1S)N_2$ ).



L'objectif étant de comprendre l'origine de l'effet mémoire, nous nous sommes plus particulièrement intéressés à l'émission de la décharge juste avant son amorçage. Pour se faire, nous avons mesurer à partir des trois figures précédentes le minimum des émissions de N<sub>2</sub>-HIR, de NO<sub>γ</sub> et de O(<sup>1</sup>S)N<sub>2</sub> en fonction de la position. Ces trois mesures permettent respectivement de remonter à l'évolution relative le long du flux de gaz des métastables N<sub>2</sub>(A<sup>3</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup>), de la molécule NO dans son état fondamental, et de l'oxygène atomique dans son état fondamental.

En effet, comme discuté auparavant, entre deux décharges, et donc en l'absence d'excitation électronique, l'émission du N<sub>2</sub>-HIR est due à la collision de deux métastables N<sub>2</sub>(A<sup>3</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup>) (Eq IV-1). Ainsi, la racine carrée de cette émission reflète les variations de la densité de métastables :

$$[N_2(A^3\Sigma_u^+)] \propto \sqrt{I_{HIR}} \quad \text{Eq IV-3}$$

Par ailleurs, toujours entre deux décharges, la création de l'état radiatif NO(A), responsable de l'émission du système NO<sub>γ</sub>, est due à la collision entre un métastable N<sub>2</sub>(A<sup>3</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup>) et la molécule NO(X) dans son état fondamental (Eq IV-2). Ainsi, connaissant l'évolution relative de N<sub>2</sub>(A<sup>3</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup>) telle que précédemment déterminée, on peut alors calculée l'évolution de la molécule NO dans son état fondamental :

$$[NO(X)] \propto \frac{I_{NO\gamma}}{[N_2(A^3\Sigma_u^+)]} \quad \text{Eq IV-4}$$

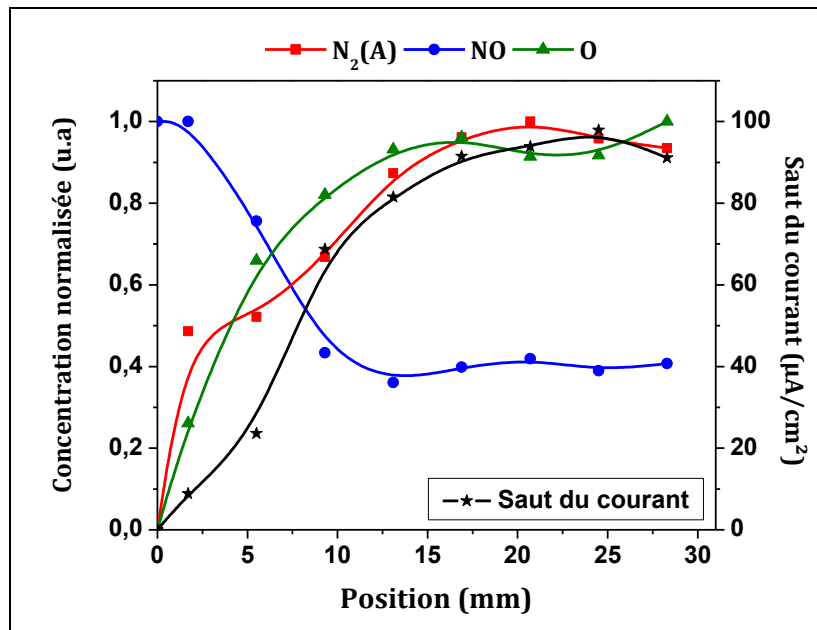
L'émission de la bande O(<sup>1</sup>S)N<sub>2</sub>, quant à elle, est due à un processus à deux étapes [43]:



Ainsi, comme pour NO, connaissant l'évolution relative de la densité de N<sub>2</sub>(A<sup>3</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup>) il est possible de déterminer celle des atomes d'oxygène O(<sup>3</sup>P) :

$$[O(^3P)] \propto \frac{I_{ON_2^*}}{[N_2(A^3\Sigma_u^+)]} \quad \text{Eq IV-7}$$

La Figure IV-20 présente l'évolution corrélée du saut de courant et des concentrations relatives de  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ ,  $NO(X)$  et  $O(^3P)$  ainsi déterminées en fonction de la position.



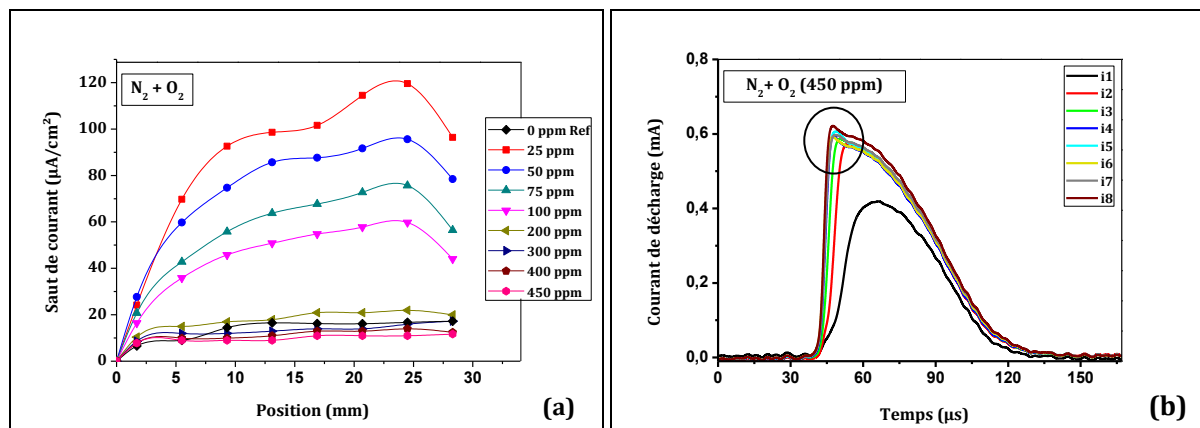
**Figure IV-20 : Corrélation entre le saut de courant entre deux décharges et les densités relatives de  $N_2(A)$ ,  $NO(X)$  et  $O(^3P)$  déduites des mesures spectroscopiques entre deux décharges dans un mélange  $N_2/NO(30ppm)$  ( $V=13kV_{co}$ ,  $f=2kHz$ )**

Les concentrations des métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  et de l'oxygène atomique sont minimales en entrée et maximales en sortie de la décharge. A l'inverse, la concentration de  $NO$  décroît depuis l'entrée de la décharge, pour saturer à partir de 1 cm. Cette saturation montre qu'il y a un équilibre entre la consommation de  $NO$  par les espèces de la décharge et un phénomène de production de  $NO$  en deuxième partie de décharge. Par ailleurs, la concentration de métastables est d'autant plus élevée que la concentration de  $NO$  est faible, ce qui est en accord avec le fort taux de quenching de  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  par  $NO$  [43]. Enfin, le saut de courant est maximum quand les concentrations de métastables et d'oxygène atomique sont maximales.

De la même manière que nous venons de le faire pour les décharges en présence de monoxyde d'azote, nous allons maintenant étudier le comportement local de la décharge en présence de dioxygène.

### III-2.Cas de l'ajout de O<sub>2</sub>

La Figure IV-21 représente l'évolution des sauts de courant en fonction de la position dans la décharge, et pour différents taux d'oxygène ajoutés dans le mélange. Nous constatons que quelque soit le taux d'oxygène ajouté, le saut du courant augmente toujours en fonction de la position dans la décharge, ce qui montre que la décharge est plus stable en sortie qu'en entrée. Par ailleurs, le saut de courant augmente fortement pour les plus faibles taux d'oxygène (entre 25 ppm et 100 ppm). La plus grande stabilité est obtenue pour 25 ppm de O<sub>2</sub>, avec une augmentation du saut de courant comparativement à l'azote pur d'un facteur 2.5 en entrée (4mm) et allant jusqu'à un facteur 9 au maximum en sortie (24-30mm). Il y a donc une forte augmentation de la production d'électrons entre deux décharges en sortie en lien avec l'ajout des molécules de O<sub>2</sub>. Néanmoins, au-delà de 25 ppm le saut de courant commence à diminuer progressivement jusqu'à sa disparition totale au delà de 450 ppm (passage en régime de décharge filamentaire).



**Figure IV-21 : Evolution du saut de courant local en fonction de la position les différents taux de O<sub>2</sub> injecté**

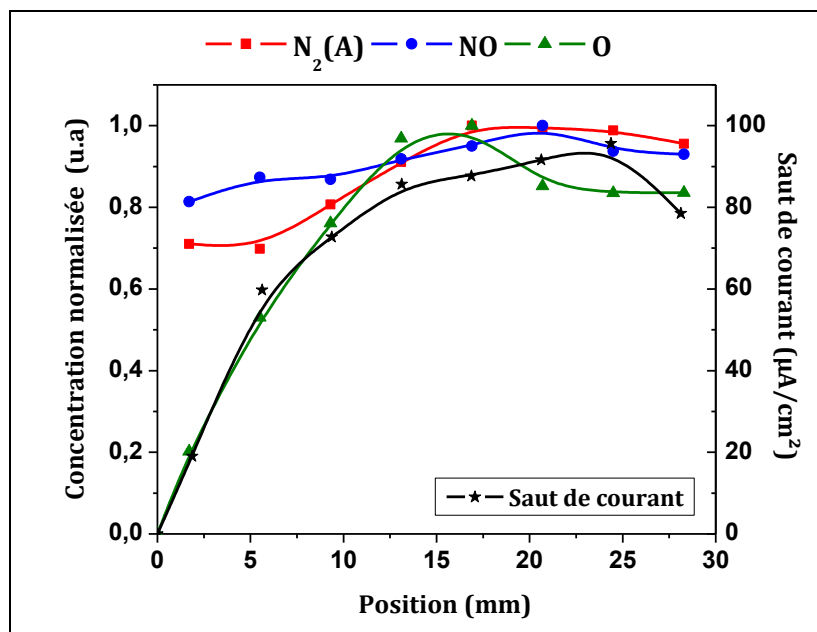
**Figure IV-22 : Evolution du courant local de décharge au moment de la déstabilisation de la décharge en fonction de la position dans un mélange N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>(450ppm)(V=12kV<sub>cc</sub>, f=3kHz)**

La Figure IV-22 illustre des mesures électriques du courant local associé à chaque zone de décharge au moment de la déstabilisation pour 450 ppm de O<sub>2</sub> et 12kV<sub>cc</sub> à 3kHz.

Comme dit précédemment, le calcul du courant de décharge entraîne un lissage du courant qui ne permet pas de bien distinguer les impulsions de courant caractéristiques d'un passage en régime filamentaire. Celles-ci sont réduites à de simples déformations sur les courants traités (entourées en noir sur la Figure IV-22) mais bien visibles sur les mesures brutes. Ainsi, dans ces conditions, la décharge se déstabilise plutôt en sortie de décharge, contrairement à ce qui était observé avec l'ajout de NO (déstabilisation en entrée). Ceci peut provenir du fait que le «quenching» de  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  par NO est environ 10 fois plus efficace que par l'oxygène [43] (passage en filamentaire à 45ppm dans un mélange  $N_2/NO$  et à 450 ppm dans un mélange  $N_2/O_2$ ).

De la même façon que pour le NO, nous avons corrélié ces mesures électriques à des mesures optiques permettant de remonter à l'évolution relative des métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ , de NO(X) et de  $O(^3P)$ .

La Figure IV-23 illustre le résultat obtenu dans le cas de l'ajout de 50 ppm de  $O_2$  dans la décharge.



**Figure IV-23 : Corrélation entre le saut de courant entre deux décharges et les densités relatives de  $N_2(A)$ , NO(X) et  $O(^3P)$  déduites des mesures spectroscopiques entre deux décharges dans un mélange  $N_2/O_2$  (50ppm) ( $V=13kV_{cc}$ ,  $f=2kHz$ )**

A la différence de ce qui était observé dans le cas de l'ajout de 30 ppm de NO (Figure IV-20), les concentrations relatives de métastables et de NO évoluent peu en fonction de

la position dans la décharge, et seule l'évolution de l'oxygène atomique suit l'augmentation du saut du courant.

A partir de ces deux résultats importants (Figure IV-20 et Figure IV-23), nous pouvons avoir une discussion sur l'origine de l'effet mémoire dans l'azote et en présence de gaz oxydants.

#### IV. DISCUSSION

Les différentes mesures exposées dans ce chapitre avaient pour but d'aider à une meilleure compréhension des phénomènes de production d'électrons germes entre deux décharges. En particulier, une observation claire est que l'ajout de faibles quantités de gaz oxydants (par exemple 30 ppm de NO ou 50 ppm de O<sub>2</sub>) conduit à une forte augmentation de la production d'électrons germes en sortie de décharge.

L'analyse couplée de la valeur du saut de courant en fonction de la position dans la décharge et des concentrations relatives de métastables N<sub>2</sub>(A<sup>3Σ<sub>u</sub><sup>+</sup>), de NO(X) et de O(<sup>3</sup>P) semble de plus indiquer que la création d'électrons germes est d'autant plus élevée que la concentration d'oxygène atomique est forte. De même, ces mesures montrent clairement la nécessité de la présence de métastables de N<sub>2</sub>, la décharge transitant vers la décharge filamentaire si le quenching de N<sub>2</sub>(A<sup>3Σ<sub>u</sub><sup>+</sup>) par les espèces oxydantes devient trop fort.</sup></sup>

Une analyse des articles de cinétique chimique dans des mélanges N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub> [43][45][46] révèle que peu de mécanismes peuvent expliquer nos observations. Néanmoins, l'ionisation associative de l'azote excité N(<sup>2</sup>P) avec l'oxygène atomique O(<sup>3</sup>P) pourrait intervenir, l'azote excité N(<sup>2</sup>P) étant créé par collision d'un atome d'azote dans son état fondamental avec un métastable N<sub>2</sub>(A) :



*où le N(<sup>2</sup>P) est excité selon la réaction suivante :*



Ce mécanisme suppose la concomitance d'une forte concentration d'oxygène atomique et de métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ , mais également d'azote atomique dans son état fondamental. Or Et-Touhami Es-Sebbar a réalisé pendant sa thèse des mesures par Fluorescence Induite par Laser pour déterminer la concentration d'azote atomique  $N(^4S)$  dans une DTPA en azote pur mais également en présence de faible concentration de  $O_2$  [42]. Ces mesures ont montré que la concentration d'azote atomique augmente avec la position dans la décharge. En particulier, la Figure IV-24 illustre l'évolution de la densité d'azote atomique  $N(^4S)$  en fonction de l'énergie dissipée dans la décharge [47], où l'énergie est le produit de la puissance moyenne dissipée dans la décharge et du temps de résidence du gaz à la position de mesure (=position/vitesse moyenne du flux de gaz).

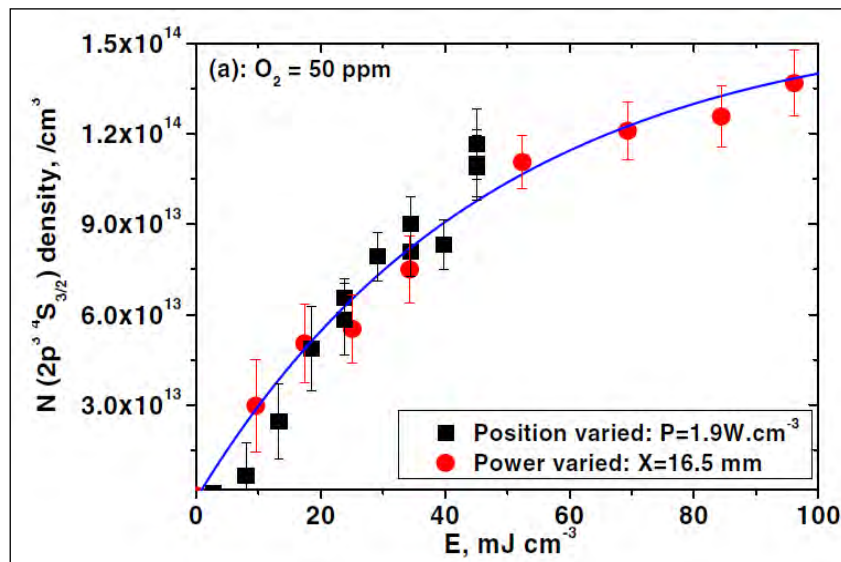
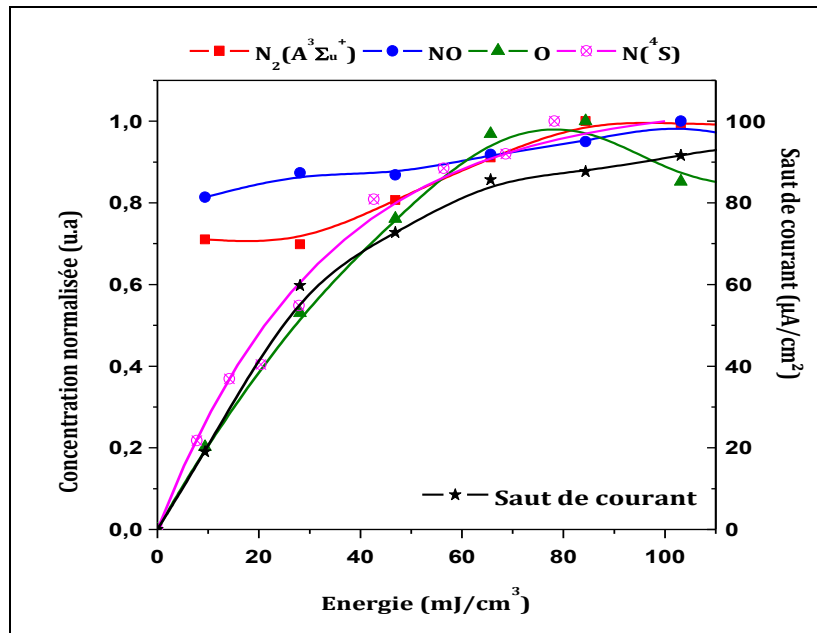


Figure IV-24 : Evolution de la densité de l'azote atomique en fonction de l'énergie avec 50 ppm d'oxygène injectée avec l'azote.  $E = (\text{puissance} \times \text{position}) / (\text{vitesse moyenne du gaz})$  [47]

Comme on peut le voir sur cette figure, la densité d'azote atomique  $N(^4S)$  augmente fortement de l'entrée à la sortie, pour atteindre des valeurs supérieures à  $1.10^{14} / \text{cm}^3$ .

Afin d'intégrer cette mesure à nos résultats, nous avons tracé la Figure IV-23 non plus en fonction de la position mais en fonction de l'énergie dissipée dans la décharge. Les résultats sont présentés sur la Figure IV-25.



**Figure IV-25 : Corrélation entre le saut de courant entre deux décharges, les densités relatives de  $\text{N}_2(\text{A})$ ,  $\text{NO}(\text{X})$  et  $\text{O}(\text{3P})$  déduites des mesures spectroscopiques entre deux décharges, et la densité d'azote atomique déterminée par LIF par Es-Sebbar également entre deux décharge, dans  $\text{N}_2/\text{O}_2$  (50ppm) ( $V=13\text{kV}_{co}$ ,  $f=2\text{kHz}$ )**

Même si cette mesure nécessite d'être renouvelée pour d'autres taux et d'autres types de gaz oxydant, l'accord entre l'augmentation du saut de courant et les concentrations relatives de  $\text{O}(\text{3P})$  et  $\text{N}(\text{4S})$  est tout à fait remarquable. Ainsi, le mécanisme d'ionisation associative entre l'azote atomique excité par  $\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+)$  et l'oxygène atomique pourrait être le mécanisme à l'origine de l'augmentation de l'effet mémoire d'une décharge à la suivante quand de faibles concentrations de gaz oxydants sont ajoutés à l'azote.

En effet, ce mécanisme nécessite la présence d'oxygène atomique (dont on peut supposer que la concentration augmente avec l'augmentation de gaz oxydant dans le mélange plasmagène) mais également d'azote atomique (dont on sait que la concentration décroît en présence de gaz oxydant [42][47]) et de métastables  $\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+)$ , ces molécules étant les seules espèces à longue durée de vie, et donc les seuls pouvant permettre la création d'électrons germes au moment où cela est nécessaire, c'est à dire au moment de l'amorçage de la décharge suivante.

Dans le cas de l'injection de plus de 40 ppm de NO, la déstabilisation de la décharge en entrée peut s'expliquer par la destruction rapide des métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  par le NO présent en quantité en entrée de la décharge puisque c'est là qu'il est injecté (Eq IV-2).

Cette hypothèse permet d'expliquer les comportements observés en azote mais également dans les différents mélanges de gaz étudiés. A partir des résultats de l'étude du saut de courant en fonction de la quantité du gaz injectée et de la position, nous avons constaté que lorsque la décharge commence à se déstabiliser, le saut de courant est à sa valeur minimale : ceci nous amène à conclure que la valeur minimale du saut de courant nécessaire pour avoir une décharge homogène est de  $10\mu A/cm^2 \pm 3\mu A$ .

## V. SYNTHÈSE

Les résultats évoqués lors de ce chapitre traitaient du comportement de la décharge en présence de traces de gaz oxydants. Ils ont permis de dégager plusieurs certitudes concernant la transition de la Décharge de Townsend à la Pression Atmosphérique vers le régime filamentaire. Les études antérieures avaient montré qu'un effet mémoire d'une décharge à la suivante est nécessaire pour ensemercer le gaz en électrons germes et ainsi obtenir un claquage de type Townsend. L'hypothèse admise au début de cette thèse était que les seuls états métastables à longue durée de vie  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  permettaient d'ensemencer le gaz en électrons germes par émission secondaire à la cathode.

Cependant, ceci ne permettait pas d'expliquer pourquoi l'ajout de faibles concentrations de gaz oxydants (typiquement inférieur à 100 ppm) augmente la stabilité de la décharge alors que ces gaz oxydants détruisent les  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ . Les mesures réalisées pendant cette thèse ont confirmé cette observation. Par ailleurs, elles ont également confirmé que la densité de métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  est quoi qu'il arrive un paramètre clé, la concentration maximale de gaz oxydant pouvant être rajoutée dans le mélange sans transition en régime filamentaire dépendant fortement de sa probabilité de quenching des  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ . Ainsi, alors que la concentration maximale de NO pouvant être ajouté à l'azote est de 40 ppm, cette concentration peut être augmentée jusqu'à 450 ppm dans le cas de  $O_2$ .

Par ailleurs, l'utilisation d'une cellule de décharge présentant une électrode fractionnée en huit zones a permis de mettre en évidence que même dans le cas d'une DTPA, les



propriétés de la décharge évoluent en fonction de la position dans la décharge. Ces mesures électriques résolues spatialement, couplées à une analyse fine de la spectroscopie d'émission optique résolue spatialement et temporellement dans différents mélanges de gaz ( $N_2$ ,  $N_2-O_2$ ,  $N_2-NO$ ) nous ont permis de montrer l'importance des  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  mais également de l'oxygène atomique  $O(^3P)$  sur l'augmentation de stabilité observée en présence de faibles concentrations de gaz oxydants.

Ces mesures nous permettent de proposer un mécanisme supplémentaire de créations d'électrons germes en présence de gaz oxydant basé sur l'ionisation associative de l'azote atomique excité  $N(^2P)$  et de l'oxygène atomique  $O(^3P)$ , l'azote atomique étant excité par les molécules métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ .



## Chapitre V : OPTIMISATION DU TRANSFERT DE LA PUISSANCE DANS UNE DTPA

Le principal verrou au développement industriel d'un procédé de dépôts de couches minces par DBD homogène à pression atmosphérique en gaz vecteur azote est la vitesse de dépôt qui est actuellement trop faible (typiquement de l'ordre de quelques dizaines de nm/min). Comme on peut le voir sur la Figure V-1, une augmentation significative de la vitesse de dépôt passe par un accroissement, à la fois de la puissance mais également de la quantité de précurseurs injectés dans le gaz. En effet, pour une puissance de  $0,5 \text{ W.cm}^{-2}$ , l'augmentation du taux d'hexaméthylsiloxane (HMDSO) de 10 à 30 ppm permet d'accroître la vitesse de dépôt de 25% alors que pour une puissance de  $0,65 \text{ W.cm}^{-2}$ , la même augmentation du taux d'HMDSO permet d'accroître la vitesse de dépôt de 90% pour atteindre une vitesse de  $38 \text{ nm/min}^{-1}$ .

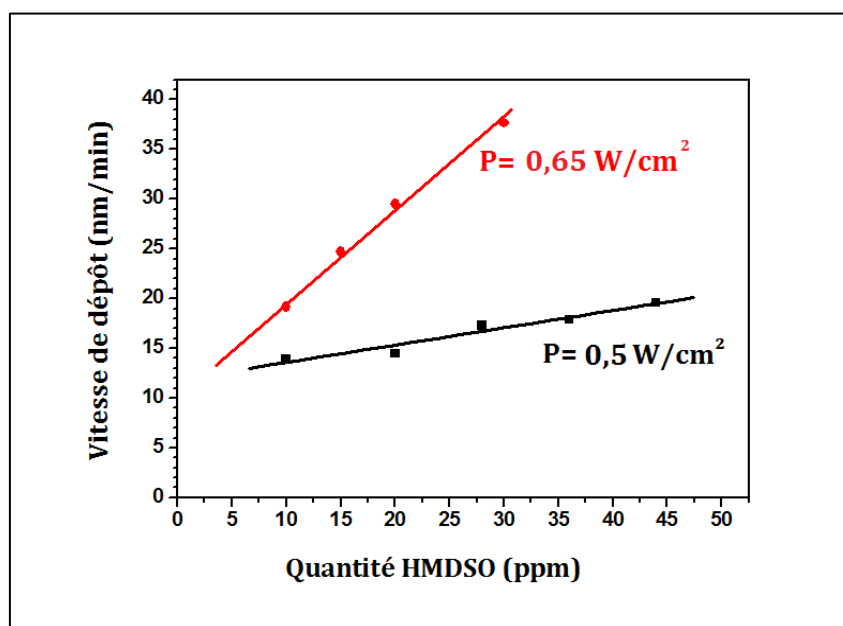


Figure V-1 : Variation de la vitesse de dépôt en fonction de la concentration de HMDSO injecté dans la décharge pour deux valeurs différentes de la puissance [48]

L'augmentation de la puissance entraîne une augmentation de la densité des métastables  $\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+)$  qui d'après les travaux de Ionut Enache sont majoritairement responsables de la dissociation de la molécule d'HMDSO en radicaux [48]. Cependant, la molécule d'HMDSO détruit efficacement la molécule métastable  $\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+)$ [48][49][50].

Ainsi, l'augmentation du taux d'HMDSO conduit à une destruction plus efficace des métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  entre deux décharges et donc de l'effet mémoire. L'augmentation de la vitesse de dépôt passera donc nécessairement par un accroissement de la puissance combiné à une solution permettant de maximiser l'effet mémoire d'une décharge à la suivante de manière à pouvoir augmenter la proportion de gaz réactifs.

Dans ce cadre, l'objectif de ce chapitre est d'étudier le transfert de puissance dans une décharge de Townsend à la pression atmosphérique en gaz vecteur azote. Pour cela, après avoir discuté la problématique de la limitation de la puissance en régime homogène, nous présenterons les deux approches étudiées dans le cadre de cette thèse qui sont basées sur l'optimisation, d'une part, de la capacité équivalente des barrières diélectriques et, d'autre part, du type d'alimentation.

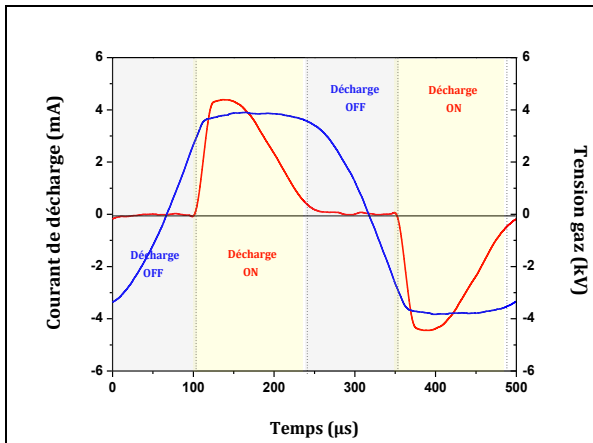
### I. PROBLEMATIQUE : LIMITATION DE LA PUISSANCE DANS UNE DTPA

La Figure V-2 présente un oscillogramme typique du courant de décharge et de la tension gaz dans le cas d'une DTPA. La première chose que l'on remarque est que la décharge est éteinte pendant près de la moitié de la période. Le deuxième point concerne le fait que le courant de décharge varie fortement durant la décharge alors que la tension gaz reste quasiment constante. La forme du courant vient du fait que la tension gaz est quasiment constante, ce qui entraîne un report des variations de la tension appliquée uniquement sur les diélectriques solides. Ceci a pour conséquence d'imposer le courant de décharge (Eq V-1) [51].

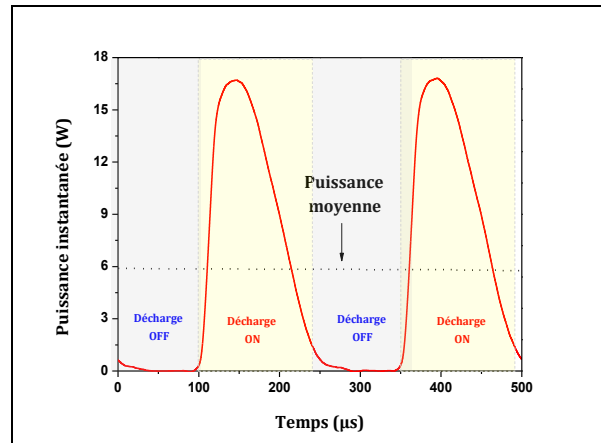
$$I_d(t) = C_{ds} \cdot \frac{dV_a(t)}{dt} \quad \text{Eq V-1}$$

avec :  $C_{ds}$  : capacité équivalente des diélectriques solides

Ainsi, le courant dépend à la fois de la valeur de la capacité diélectrique  $C_{ds}$  mais également de la dérivée de la tension appliquée (donc de sa fréquence et de son amplitude). Compte tenu de cela, le transfert de puissance ne sera pas constant durant toute la phase d'allumage de la décharge, et donc la durée pendant laquelle la puissance est maximale est très courte (Figure V-3).

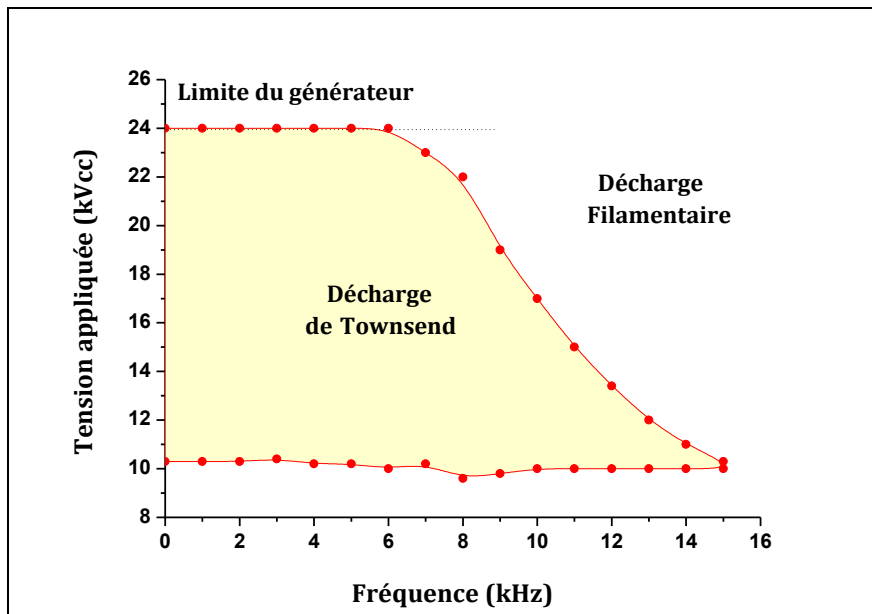


**Figure V-2 : Evolution temporelle du courant de décharge et de la tension gaz dans une DTPA ( $f=2\text{ kHz}$ ,  $V=15\text{ kV}_{cc}$ )**



**Figure V-3 : Evolution temporelle de la puissance instantanée dans une DTPA ( $f=2\text{ kHz}$ ,  $V=15\text{ kV}_{cc}$ )**

Pour une configuration de cellule de décharge donnée, une solution simple pour accroître le courant de décharge et donc la puissance transférée à la décharge consiste à augmenter la fréquence et/ou l'amplitude de la tension appliquée. Cependant, l'amplitude et la fréquence de la tension appliquée permettant de maintenir la décharge homogène sont limitées. La Figure V-4 présente un exemple de domaine de fonctionnement électrique typique de ce type de décharge dans le cas d'une alimentation en tension sinusoïdale. Afin d'obtenir ce domaine de fonctionnement, l'amplitude de la tension appliquée sur la cellule de décharge, à une fréquence donnée, est progressivement élevée. La limite inférieure du domaine de fonctionnement correspond à l'amplitude de la tension appliquée pour laquelle la décharge est étalée sur la totalité de la surface des électrodes. La limite supérieure correspond, soit à l'amplitude de la tension appliquée pour laquelle la décharge transite en régime filamentaire, soit à la limite du générateur. Notons que ce tracé a été réalisé avec une durée d'allumage très courte pour chaque point de mesure (de l'ordre de quelques secondes) afin de s'affranchir au maximum des effets thermiques [51].

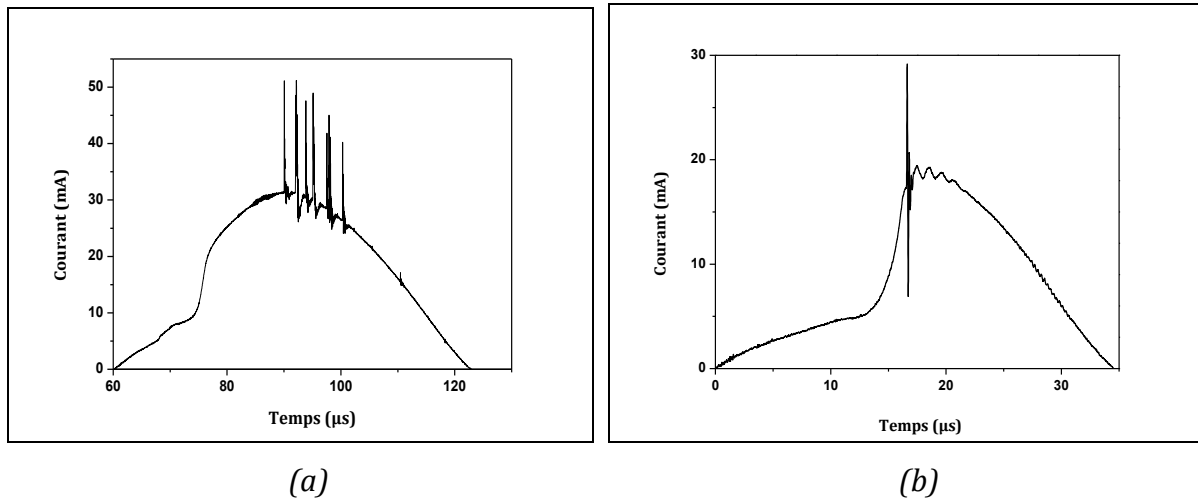


**Figure V-4 : Domaine de fonctionnement de la décharge en fonction de la fréquence et de l'amplitude de la tension appliquée pour une courte durée d'allumage ( $v_{gaz}=111 \text{ cm.s}^{-1}$ )**

Des travaux antérieurs ont permis de mettre en évidence les causes de déstabilisation de la décharge homogène liées aux conditions d'excitation de la décharge [4][5]. Suivant les conditions, la déstabilisation apparaît soit après le maximum du courant (Figure V-5-a) soit au moment de l'amorçage (Figure V-5-b).

Lorsque la déstabilisation apparaît après le maximum du courant, celle-ci est liée à un courant trop important imposé par le circuit extérieur au moment où le coefficient d'émission secondaire devient proche du coefficient intrinsèque du matériau, ce qui conduit à une augmentation de l'ionisation dans le gaz et à une localisation de la décharge [51].

Lorsque la décharge se déstabilise lors de l'amorçage de la décharge, des études optiques ont montré qu'au départ il y a une oscillation amortie de toute la lumière de la décharge sans localisation. Cet effet provient d'une résonance électrique liée aux éléments parasites du circuit d'alimentation [52].



**Figure V-5 : Courant mesuré lors de la transition en régime filamentaire, lorsque la déstabilisation est :**

- a) après le maximum de courant ( $f=8\text{kHz}$ ,  $V_a=24\text{kVcc}$ ),**
- b) durant l'amorçage de la décharge ( $f=14\text{kHz}$ ,  $V_a=11\text{kVcc}$ )**

## II. INFLUENCE DES MATERIAUX DIELECTRIQUES

Comme nous l'avons vu à l'instant, les diélectriques, dont le rôle premier est d'éviter la transition à l'arc, vont également, dans le cas d'une décharge de Townsend, imposer le courant de décharge par le biais de la valeur de leur capacité équivalente  $C_{ds}$  (Eq V-1). Dans cette optique, nous allons tester différents matériaux diélectriques afin de faire varier la capacité  $C_{ds}$  qui dépend à la fois de la permittivité relative du matériau  $\epsilon_r$ , de la surface  $S$  et de l'épaisseur du diélectrique  $e$  (Eq V-2).

Notons que cette étude a été réalisée pour une distance inter-diélectriques constante de 1mm et une surface de 6,4 cm<sup>2</sup>.

$$C_{ds} = \frac{\epsilon_0 \cdot \epsilon_r \cdot S}{e} \quad \text{Eq V-2}$$

avec :  $\epsilon_0$  permittivité du vide ( $8.854 \cdot 10^{-12} \text{ F.m}^{-1}$ );  $\epsilon_r$  : permittivité relative du matériau;  $S$  : surface des électrodes;  $e$  : épaisseur totale des diélectriques.

Après avoir présenté les caractéristiques électriques des différents matériaux diélectriques testés, nous présenterons par la suite les différents résultats obtenus avec les différentes configurations testées en nous focalisant sur le domaine de fonctionnement et la puissance transférée à la décharge. Enfin, la dernière partie sera

consacrée à une discussion sur l'influence des diélectriques dans le transfert de puissance pour une DTPA.

### **II-1. Caractéristiques des matériaux diélectriques utilisés**

Les matériaux diélectriques les plus souvent utilisés pour la réalisation de la barrière diélectrique sont les céramiques (généralement de l'alumine) mais on peut également citer le verre, le silicone ou encore les polymères. Le point commun de ces différents matériaux est que la permittivité relative  $\epsilon_r$  est inférieure à 10 et qu'ils sont généralement utilisés avec une épaisseur de l'ordre du mm. Cela conduit à une capacité  $C_{ds}$  relativement faible de l'ordre de quelques pF.cm<sup>-2</sup>.

Afin de pouvoir faire varier la capacité  $C_{ds}$  dans une plage de valeurs plus importante, nous avons utilisé différents matériaux dont les caractéristiques électriques (permittivité relative et conductivité) sont reportées dans le Tableau V-1. Notons que la permittivité relative a été mesurée à l'aide d'un analyseur d'impédance HP 4284A après avoir métallisé les diélectriques sur les deux faces tandis que la résistivité électrique surfacique est mesurée à l'aide d'une mesure du Potentiel de Surface. La résistivité volumique est issue des données constructeur. Les valeurs de  $C_{ds}$  sont calculées pour une surface d'électrodes de 6,4 cm<sup>2</sup> en considérant que l'on utilise une plaque pour recouvrir chacune des électrodes.



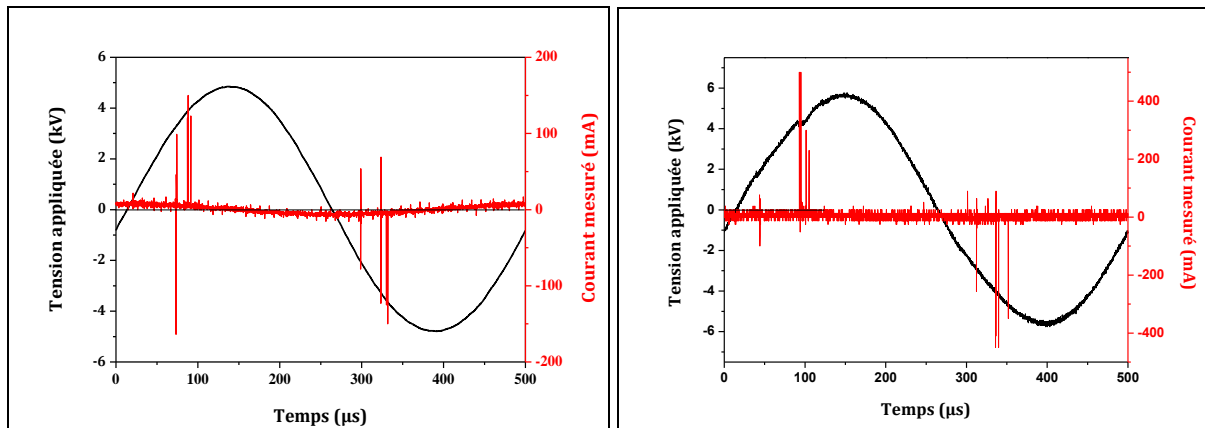
Matériaux	$\epsilon_r$	Résistivité électrique surfacique à 300 K ( $\Omega \cdot m$ )	Résistivité électrique volumique à 300 K ( $\Omega \cdot cm$ )	Epaisseur (mm)	$C_{ds}$ (pF)
Stumatite	7,3	$2 \cdot 10^{11}$	$5,2 \cdot 10^{13}$	2	10,3
Verre	8,2	$10^{17}$	$8 \cdot 10^{15}$	2	11,6
Alumine	9,9	$10^{12}$	$>10^{14}$	0,381	74
		$10^{12}$	$>10^{14}$	0,635	44,4
		$10^{12}$	$>10^{14}$	1	28,2
Carbure de Silicium (SiC)	113	$6,4 \cdot 10^2$	$10^3 \cdot 10^5$	2	159,8
Dioxyde de Titane (TiO <sub>2</sub> )	140	$7,8 \cdot 10^3$	$10^{13} \cdot 10^{18}$	2	198
Titanate de Baryum (BaTiO <sub>3</sub> )	328	$2,7 \cdot 10^5$	$>10^8$	1,5	618,6

Tableau V-1 : Caractéristiques électriques et épaisseur des différents matériaux diélectriques étudiés [53][54]

## II-2. Cas particulier des matériaux à forte permittivité

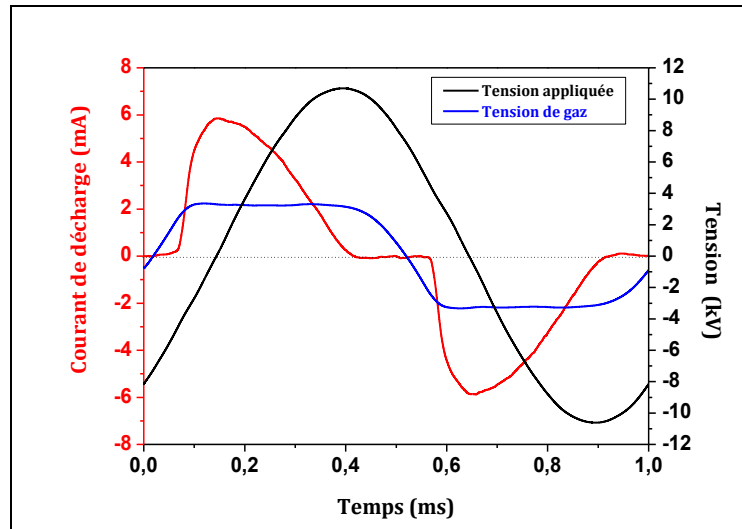
L'obtention d'une décharge homogène avec les matériaux de faible permittivité (Stumatite, Verre et Alumine) ne pose aucun problème. Par contre, dans le cas des matériaux présentant la permittivité relative la plus élevée (Carbure de Silicium, Dioxyde de Titane et Titanate de Baryum) la décharge est toujours filamentaire quelles que soient l'amplitude et la fréquence de la tension appliquée. La Figure V-6 présente les oscillogrammes de la tension appliquée et du courant mesuré dans le cas d'une cellule de décharge utilisant comme diélectrique des plaques de Carbure de Silicium (SiC) et de Dioxyde de Titane (TiO<sub>2</sub>). Nous observons qu'à faible tension appliquée (10 kV<sub>cc</sub>), les impulsions de courant mesurées dépasse les 100 mA pour la cellule de décharge utilisant le SiC et 400 mA dans le cas du TiO<sub>2</sub>. Les premiers essais en utilisant du BaTiO<sub>3</sub> comme diélectriques ont conduit à des impulsions de courant de plusieurs ampères

ayant entraîné l'apparition d'un arc localisé et la destruction rapide de la cellule de décharge. Notons que dans le cas du SiC, sa faible résistivité fait qu'il se comporte comme un circuit RC parallèle dont le terme résistif n'est pas négligeable devant la capacité. On peut donc supposer que ceci doit avoir un impact négatif sur l'obtention d'une décharge homogène. Néanmoins, dans le cas du  $\text{TiO}_2$  qui présente une résistivité volumique similaire à celle de l'alumine, le comportement de la décharge est le même.

(a) SiC ( $f = 2\text{kHz}$ ,  $V_a = 10\text{ kV}_{cc}$ )(b)  $\text{TiO}_2$  ( $f = 2\text{kHz}$ ,  $V_a = 11\text{ kV}_{cc}$ )

**Figure V-6 : Oscillogrammes d'une décharge filamentaire dans le cas d'une cellule de décharge à base de diélectriques de forte permittivité relative.**

Ainsi, compte tenu de ces résultats, nous avons voulu vérifier que l'impossibilité d'obtenir une décharge homogène avec ces matériaux était principalement liée à la valeur de capacité équivalente et non pas aux matériaux eux-mêmes. Pour cela, nous avons utilisé différentes configurations dans lesquelles une électrode était recouverte d'une plaque d'alumine alors que l'autre électrode était recouverte d'une plaque d'un matériau à forte permittivité (SiC,  $\text{TiO}_2$  ou  $\text{BaTiO}_3$ ). Notons que si on néglige la composante résistive de matériau, la valeur de la capacité équivalente  $C_{ds}$  d'une cellule composée de deux plaques diélectriques différentes est proche de la capacité diélectrique la plus petite des deux plaques (Alumine) (Eq V-3). Dans ces conditions, quel que soit le matériau utilisé il a été possible d'obtenir une décharge homogène. La Figure V-7 présente un exemple de courant mesuré dans le cas d'une décharge réalisée en utilisant une alumine et une plaque de SiC.



**Figure V-7 : Oscillogramme courant-tension dans le cas d'une décharge réalisée en utilisant un diélectrique en Alumine et un en SiC ( $f= 1$  kHz,  $V= 22$  kV<sub>cc</sub>)**

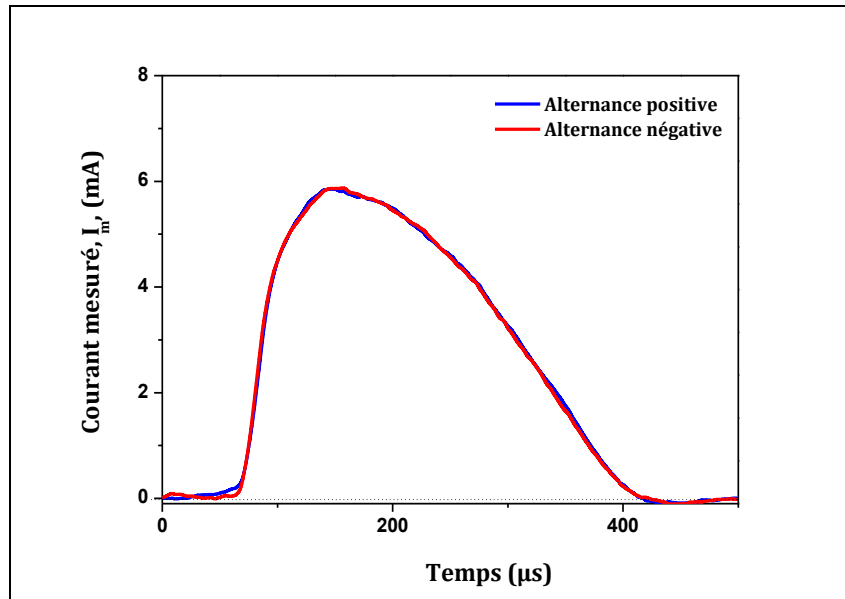
Dans ce cas, le courant de décharge présente la signature électrique d'une décharge homogène, ce qui a été également confirmé par imagerie rapide. Par rapport au courant mesuré dans le cas d'une cellule composée de deux plaques de SiC (Figure V-6-a), le courant de décharge est beaucoup plus faible. Cette différence peut s'expliquer par le fait que le courant est, comme nous l'avons vu précédemment, imposé par la valeur de la capacité équivalente des diélectriques. Lorsque l'on utilise deux diélectriques différents, la capacité équivalente des deux diélectriques placés en série est définie par l'équation Eq V-3. Comme la permittivité relative du SiC est bien plus élevée que celle de l'alumine (Tableau V-1), cela se traduit par une capacité  $C_{ds}$  qui est de 69,5 pF pour l'association des deux diélectriques alors qu'elle était de 160 pF pour une cellule de deux plaques de SiC et de 44,4 pF pour une cellule de deux plaques d'alumines.

$$C_{ds} = \frac{\epsilon_0 \cdot S \cdot \epsilon_{R1} \cdot \epsilon_{R2}}{e_1 \cdot \epsilon_{R2} + e_2 \cdot \epsilon_{R1}} \quad \text{Eq V-3}$$

avec :  $\epsilon_0$  permittivité du vide ( $8.854 \cdot 10^{-12}$  F.m<sup>-1</sup>) ;  $\epsilon_{R1}$  : permittivité relative de l'Alumine ;  $\epsilon_{R2}$  : permittivité relative du matériau ;  $e_1$  : épaisseur de l'Alumine ;  $e_2$  : épaisseur du matériau ;  $S$  : surface des électrodes

Le fait d'avoir remplacé une plaque de SiC par une plaque d'alumine a permis d'obtenir une décharge homogène. Il est intéressant de noter que dans ces conditions, comme on

peut le voir sur la Figure V-8, le courant de décharge lors de l'alternance positive se superpose parfaitement, en valeur absolue, à celui de l'alternance négative. Par conséquent, le type de diélectrique utilisé ne semble pas influencer la décharge et le paramètre important est visiblement la capacité équivalente globale des diélectriques solides qui ne doit pas être trop élevée de manière à limiter suffisamment le courant de décharge.



*Figure V-8 : Comparaison du courant mesuré lors des alternances positive et négative dans le cas d'une décharge réalisée en utilisant un diélectrique en alumine et un en SiC ( $f= 1$  kHz,  $V= 22$  kV<sub>cc</sub>)*

Il est également intéressant de noter que le fait d'avoir un des deux diélectriques qui a une résistivité relativement faible pour un isolant ne perturbe pas la décharge. Enfin, les plaques de carbure de silicium utilisées présentaient une porosité très importante qui se traduit par le fait qu'un flux de gaz peut traverser la plaque. Là encore, cela n'empêche pas d'obtenir une décharge homogène.

### **II-3. Influence de la valeur de la capacité équivalente des diélectriques solide**

A partir des premiers essais, nous avons constaté qu'il n'est pas possible de générer une décharge homogène avec les matériaux présentant la permittivité la plus forte (SiC, TiO<sub>2</sub> et BaTiO<sub>3</sub>) si ces matériaux sont utilisés sur les deux électrodes. Nous avons également mis en évidence que le paramètre qui semble prépondérant est la capacité équivalente

des diélectriques solides  $C_{ds}$ . Afin de faire varier ce paramètre sur la plage la plus large possible, nous avons utilisé différentes configurations de cellules de décharge qui sont répertoriées dans le Tableau V-2. Ainsi, mis à part la configuration classique utilisant deux plaques d'alumines de différentes épaisseurs (381  $\mu\text{m}$ , 635  $\mu\text{m}$  ou 1 mm), nous avons également utilisé des configurations utilisant de la stumatite, du verre ou encore des associations entre un matériau de forte permittivité et une plaque d'alumine. Ceci permet de faire varier la valeur de la capacité  $C_{ds}$  de 10 à 132 pF pour une surface de 6,4  $\text{cm}^2$ .

Diélectrique côté masse \ Diélectrique côté HT	Stumatite	Alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )	Verre
Verre			<b>11,6</b>
Stumatite	<b>10,3</b>	<b>15,1</b>	
$\text{Al}_2\text{O}_3$		<b>28,2</b> (e = 1mm) <b>44,4</b> (e = 635 $\mu\text{m}$ ) <b>74</b> (e = 381 $\mu\text{m}$ )	
SiC		<b>69,5</b> (e = 635 $\mu\text{m}$ )	
TiO <sub>2</sub>		<b>72,5</b> (e = 635 $\mu\text{m}$ )	
BaTiO <sub>3</sub>		<b>53,9</b> (e = 1mm) <b>82,8</b> (e = 635 $\mu\text{m}$ ) <b>132,2</b> (e = 381 $\mu\text{m}$ )	

**Tableau V-2 : Différentes cellules de décharge utilisées et valeurs de la capacité  $C_{ds}$  équivalente**  
(Note : l'épaisseur e correspond à l'épaisseur de la plaque d'alumine utilisée).

La Figure V-10 présente les différents domaines de fonctionnement obtenus pour toutes les configurations étudiées. Pour simplifier la lecture de ces domaines, nous n'avons pas représenté la limite inférieure qui correspond à la tension permettant un amorçage de la décharge sur la totalité de la surface des électrodes.

Comme on peut le voir, les domaines de fonctionnement présentent tous globalement la même allure. A faible fréquence, la limite du générateur est atteinte avant de transiter en régime filamentaire, puis on observe une décroissance linéaire de la tension de

transition en régime filamentaire. Plus la valeur de  $C_{ds}$  est élevée, plus cette décroissance apparaît à faible fréquence, ce qui entraîne une diminution de la fréquence maximale permettant d'obtenir une décharge homogène.

Une analyse plus fine des différents domaines de fonctionnement (Figure V-10) montre que les zones de transition en régime filamentaire présentent des droites parallèles de pente plus au moins constante. Cela va nous permettre de mettre en équation les paramètres liés à la transition en régime filamentaire. Nous allons donc étudier l'évolution de la pente de la tension de transition en régime filamentaire en fonction de la valeur de  $C_{ds}$  ainsi que l'évolution de l'ordonnée de la droite à l'origine,  $V_0$ . La Figure V-9 schématise l'influence de la capacité  $C_{ds}$  sur le domaine de fonctionnement de la décharge.

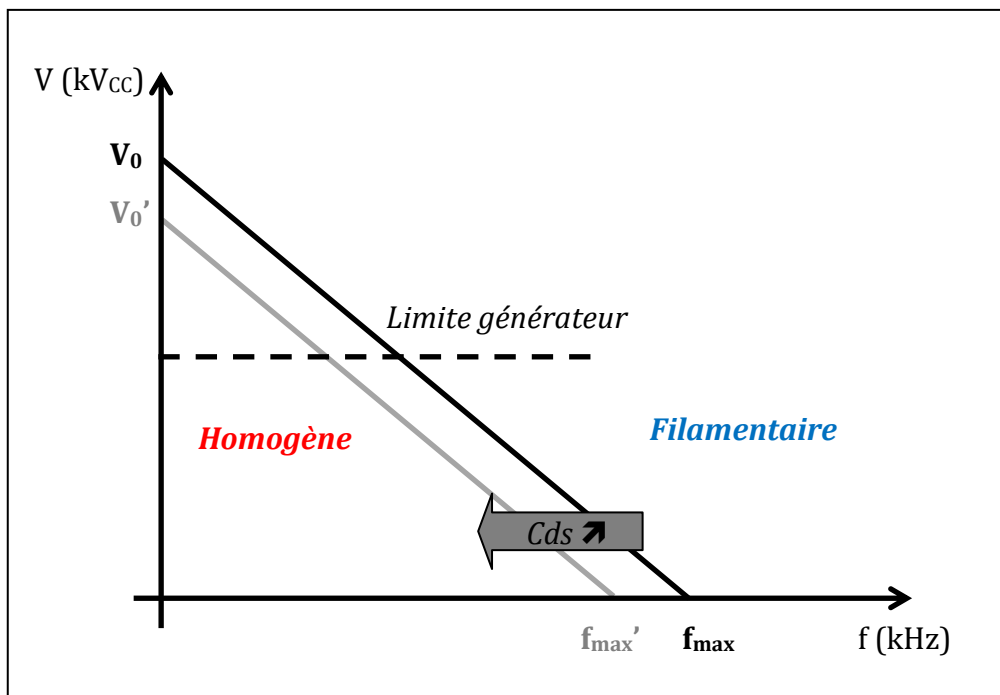


Figure V-9 : Illustration schématique de la modification du domaine de fonctionnement en fonction de la valeur de la capacité  $C_{ds}$

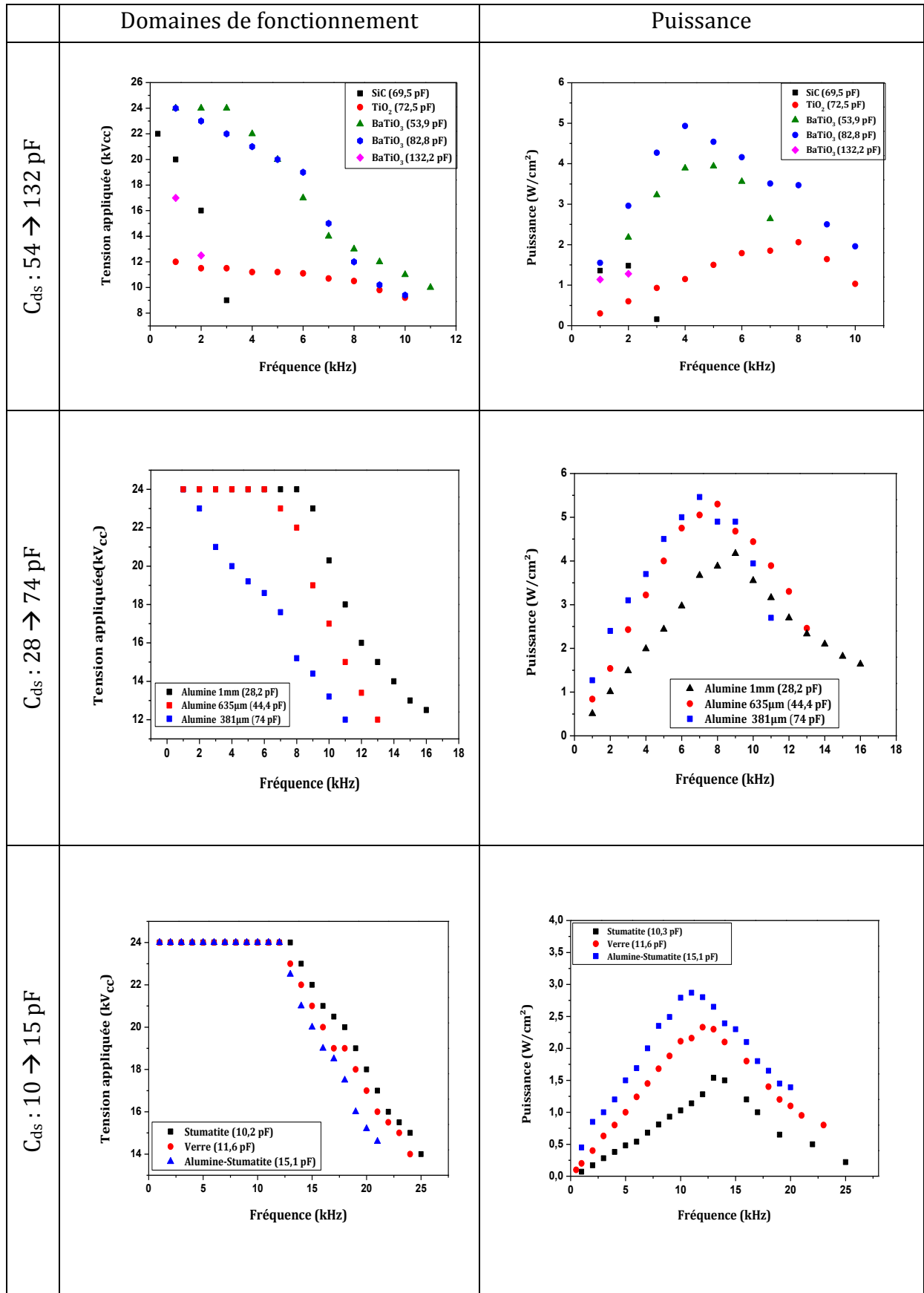
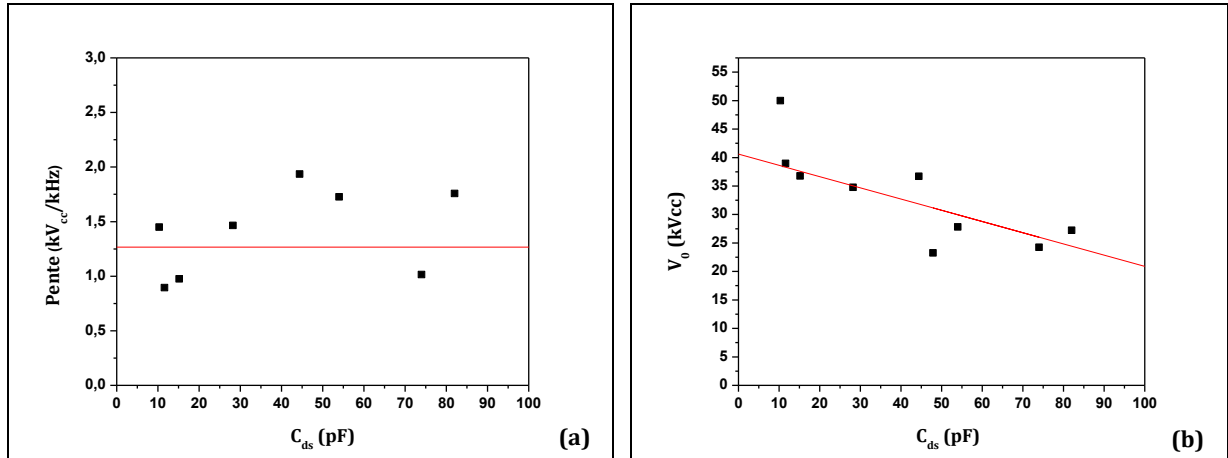


Figure V-10 : Domaines de fonctionnement et Puissances maximales obtenues en régime homogènes pour les différentes cellules de décharges étudiées

La Figure V-11-a présente l'évolution de la pente de la tension de transition en régime filamentaire en fonction de la valeur de  $C_{ds}$ , alors que la Figure V-11-b présente l'évolution de l'ordonnée de la droite à l'origine,  $V_0$ . Ainsi la tension de transition en régime filamentaire peut être déterminée par l'équation Eq V-4 qui dépend de la valeur de  $C_{ds}$  et de la fréquence d'excitation.



**Figure V-11 : Evolution des coefficients de l'équation de la tension de transition en régime filamentaire en fonction de la valeur de  $C_{ds}$  : (a) pente du domaine, (b) ordonnée à l'origine.**

$$V_{trans} = -1.25 \cdot f - 0.197 \cdot C_{ds} + 40.6 \quad \text{Eq V-4}$$

avec :  $V_{trans}$  : tension de transition en régime filamentaire (kV<sub>cc</sub>),  $f$  : fréquence (kHz),  $C_{ds}$  : capacité équivalente des diélectriques solides (pF)

Pour chaque point expérimental en limite du domaine homogène, nous avons calculé la puissance surfacique moyenne qui est également représentée sur la Figure V-10. La puissance présente une croissance linéaire liée à la limitation en tension du générateur, sauf dans le cas du TiO<sub>2</sub> + Alumine qui présente un comportement singulier pouvant être lié aux caractéristiques du TiO<sub>2</sub>. En effet, le courant étant limité par la capacité  $C_{ds}$ , l'augmentation de la fréquence à tension constante conduit à une croissance linéaire du courant et donc, dans le cas d'une décharge de Townsend, à une croissance linéaire de la puissance. On observe ensuite un optimum de puissance situé généralement à une fréquence à partir de laquelle la tension appliquée sur la cellule n'est plus limitée par le générateur. La puissance décroît ensuite jusqu'à atteindre la fréquence maximale permettant l'obtention d'une décharge homogène.



La Figure V-12 présente l'évolution de la puissance maximale dissipée dans la décharge en fonction de la valeur de la capacité  $C_{ds}$ . La courbe expérimentale est comparée à une courbe phénoménologique déterminée à partir de l'équation Eq V-4 associée à l'expression analytique de la puissance déterminée par Xavier Bonnin (Eq V-5) [55]. Comme on peut le voir, la puissance calculée est en bonne adéquation avec celle déduite des mesures. Pour une tension d'alimentation maximale donnée, lorsque la valeur de la capacité  $C_{ds}$  augmente, on observe une augmentation de la puissance maximale transférée à la décharge jusqu'à atteindre un optimum pour une capacité d'environ 60 pF. On observe ensuite une décroissance de la puissance.

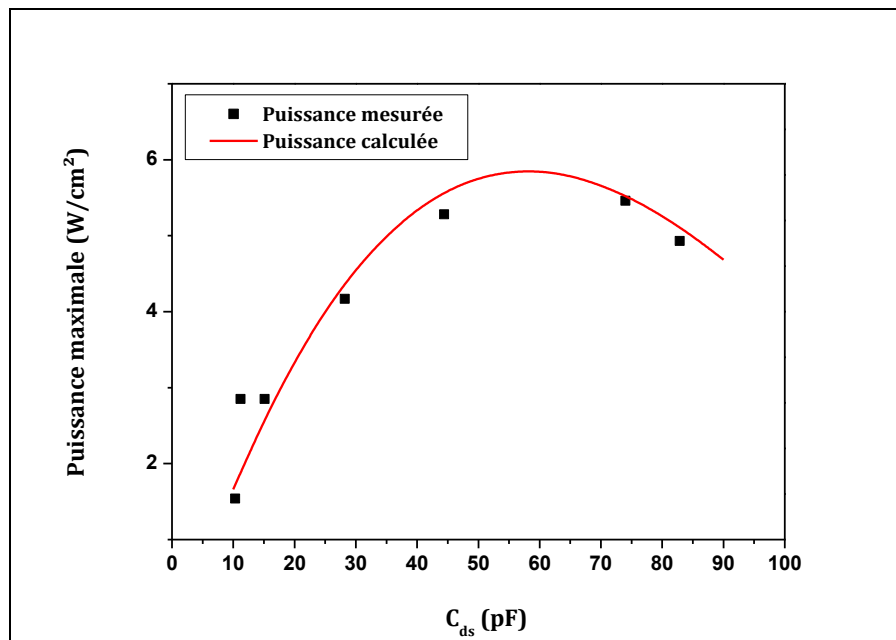


Figure V-12 : Evolution de la puissance maximale en régime homogène en fonction de valeur de la capacité diélectrique  $C_{ds}$  ( $S=6,4 \text{ cm}^2$ ).

$$P = 4 \cdot f \cdot C_{ds} V_{g\alpha} \cdot V_{trans} \left( 1 - \left( 1 + \frac{C_{gaz}}{C_{ds}} \right) \frac{V_{g\alpha}}{V_{trans}} \right) \quad (W) \quad \text{Eq V-5}$$

avec :  $f$  : fréquence(Hz);  $C_{ds}$  : capacité équivalente des diélectriques solides (F) ;  $C_g$  : capacité du gaz (F);  $V_{g\alpha}$  : tension d'amorçage de la décharge (=3500 V ici) ;  $V_{trans}$  : tension de transition en régime filamentaire (V) (Eq V-4)

## II-4. Discussion

Les essais réalisés en utilisant des matériaux de permittivités relatives très différentes ont permis de mettre en évidence que la valeur de la capacité équivalente des diélectriques solides est un paramètre clé pour l'obtention d'une décharge homogène. Si cette capacité est trop élevée, le régime homogène ne peut être maintenu et la décharge est filamentaire quelles que soient les conditions d'excitation.

Nous avons également déterminé une relation permettant de prédire la tension limite de transition en régime filamentaire (Eq V-4). Cette équation associée à l'expression analytique de la puissance (Eq V-5) permet d'estimer la puissance maximale que l'on peut transférer à la décharge tout en restant en régime homogène. La Figure V-13 présente l'évolution de cette puissance en fonction de la fréquence d'excitation et de la valeur de  $C_{ds}$  dans le cas d'une tension d'alimentation limitée à  $24 \text{ kV}_{CC}$ . Il est intéressant de noter que l'optimum de puissance est obtenu pour une fréquence de  $9 \text{ kHz}$  et une valeur de capacité de l'ordre de  $9 \text{ pF}\cdot\text{cm}^{-2}$  (ce qui correspond dans le cas de l'alumine à une épaisseur des plaques de l'ordre de  $500 \mu\text{m}$ ). La zone indiquée  $V=24 \text{ kV}_{CC}$  (en bas à gauche) correspond à la zone dans laquelle la puissance est limitée par la tension délivrée par le générateur (égale à  $24 \text{ kV}_{CC}$ ).

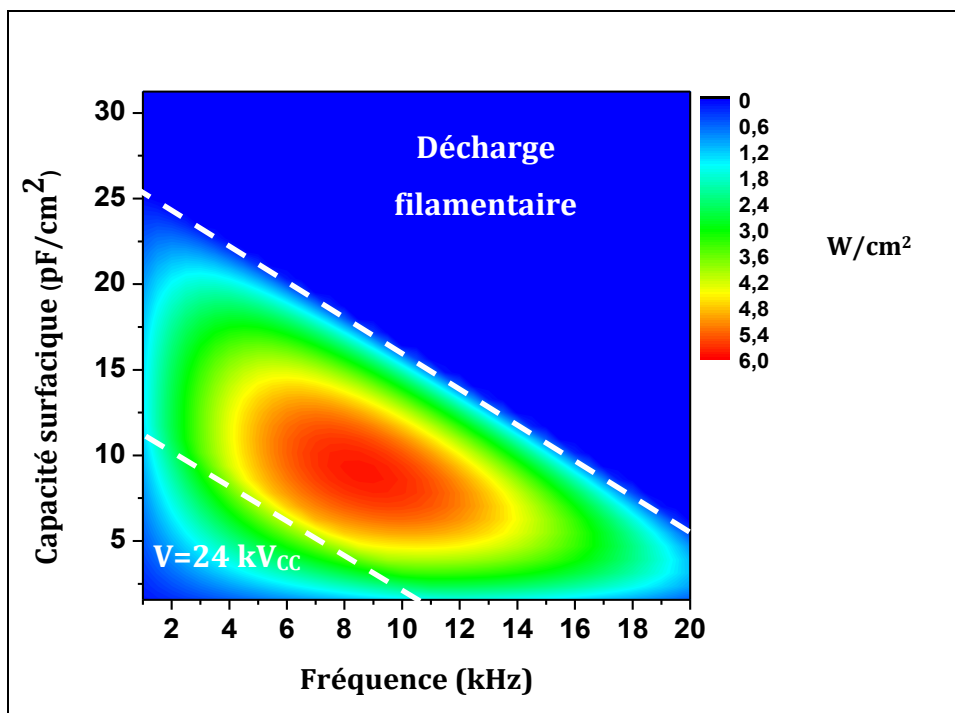
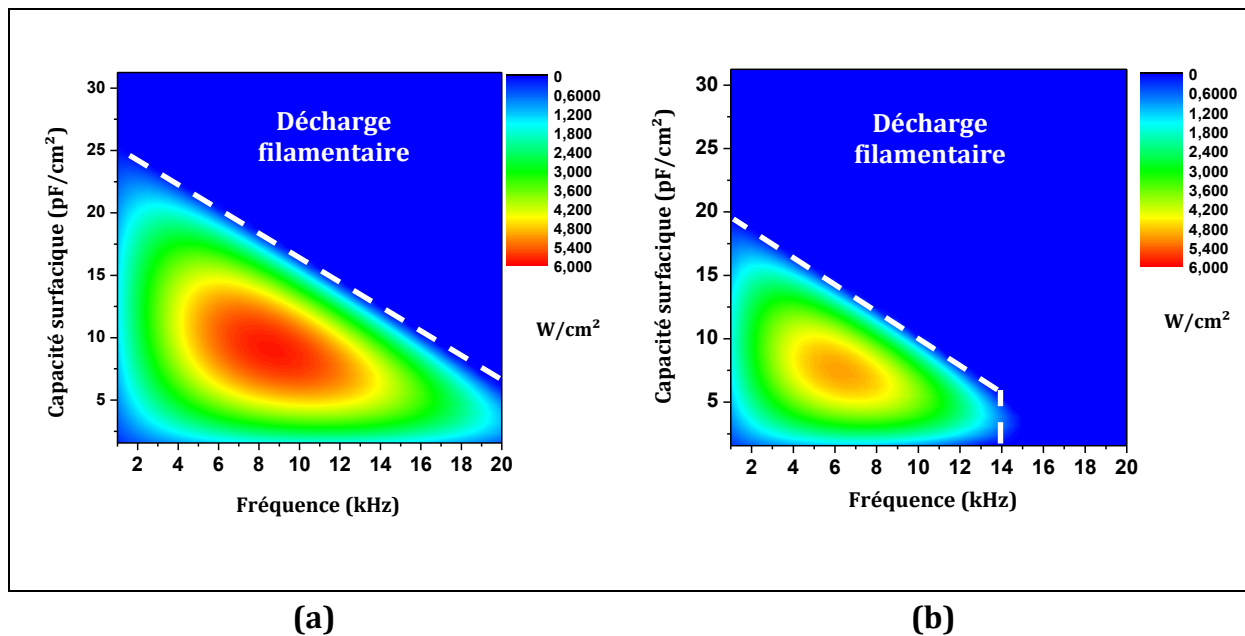


Figure V-13 : Evolution de la puissance maximale en régime homogène en fonction de la fréquence d'excitation et de la capacité équivalente des diélectriques solides par unité de surface pour une tension d'alimentation maximale de  $24 \text{ kV}_{CC}$ .

La Figure V-14-a présente l'évolution de la puissance dans le cas où la tension d'alimentation n'est pas limitée. Cela entraîne une légère augmentation de la puissance pour les faibles valeurs de fréquence et de capacité surfacique mais cela ne modifie pas l'optimum de puissance. Enfin, la Figure V-14-b présente l'évolution de la puissance dans le cas où la distance inter-diélectriques est de 2mm. Comme on peut le voir, cela entraîne une forte diminution de la puissance et un rétrécissement du domaine de fonctionnement similaire à ce qui est observé expérimentalement [51]. Il est également intéressant de noter que l'optimum de puissance est maintenant obtenu pour une fréquence de 6 kHz et une capacité surfacique de 7,5 pF.cm<sup>-2</sup>.

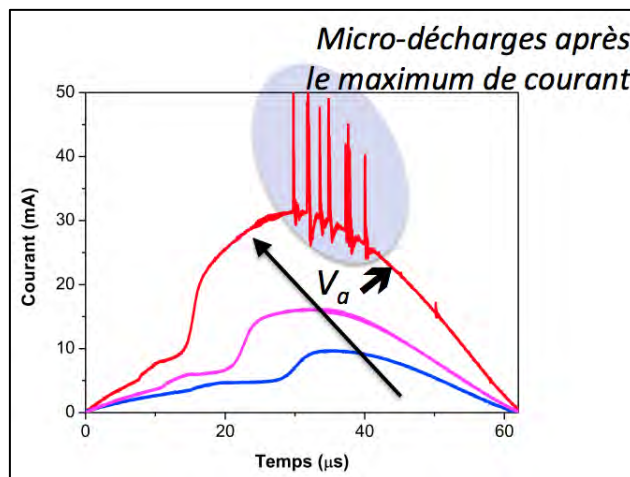


**Figure V-14 : Evolution de la puissance maximale en régime homogène en fonction la fréquence d'excitation et de la capacité équivalente des diélectriques solides par unité de surface : (a) sans limite de la tension d'alimentation, (b) pour une distance inter-diélectrique de 2mm.**

Ainsi, la variation de la capacité  $C_{ds}$  permet d'optimiser la puissance pour une condition donnée mais ne permet pas dans le cas d'une alimentation en tension sinusoïdale d'accroître la puissance maximale transférée à la décharge.

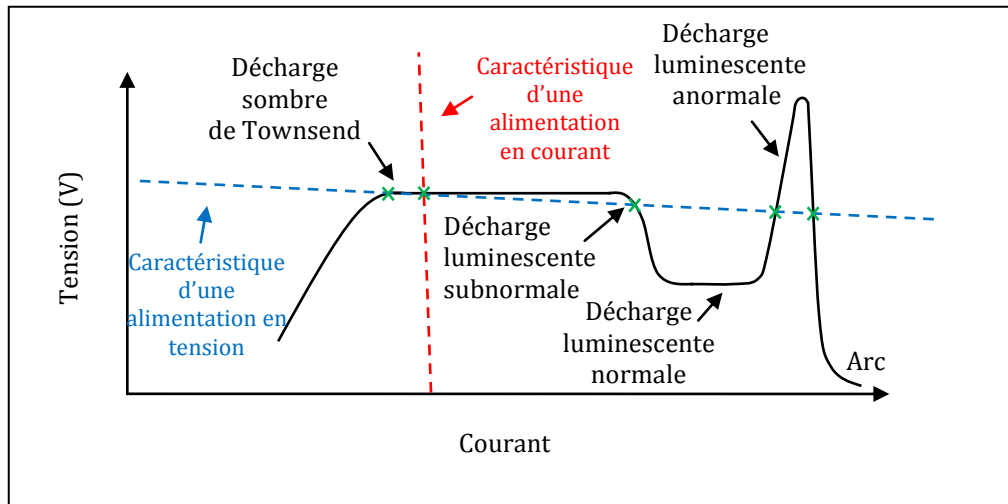
### III. OPTIMISATION DE L'ALIMENTATION

Nous avons vu précédemment que dans le cas d'une alimentation en tension sinusoïdale, la puissance maximale pouvant être dissipée en régime homogène est limitée. Cette limitation provient de la durée d'allumage de la décharge, qui est de l'ordre de la moitié de la période, et de la valeur maximale du courant. Comme il s'agit d'une décharge de Townsend, la tension appliquée sur le gaz est quasiment constante et par conséquent la limitation en puissance que nous avons mis en évidence peut être traduite en limitation en courant. Ceci peut être illustré par la Figure V-15 qui présente l'évolution du courant mesuré lorsque l'on augmente la tension appliquée sur la cellule de décharge. Lorsque le courant dépasse une certaine valeur, on observe l'apparition de micro-décharges après le maximum de courant qui conduisent à la déstabilisation de la décharge et à la transition en régime filamentaire.



**Figure V-15 : Illustration de la transition en régime filamentaire lorsque le courant devient trop important suite à une augmentation de la tension appliquée ( $f=8$  kHz)**

D'un point de vue électrique, une solution pour éviter cela est d'utiliser une alimentation en courant. L'intérêt est de permettre un contrôle précis du point de fonctionnement de la décharge. En effet, la caractéristique statique d'une décharge électrique (Figure V-16) permet de voir que dans le cas d'une alimentation en tension (de caractéristique quasi horizontale), il peut y avoir plusieurs points de fonctionnement, ce qui n'est pas le cas pour une alimentation en courant (dont la caractéristique est quasi verticale).



**Figure V-16 : Caractéristique courant-tension d'une décharge électrique avec l'illustration des caractéristiques d'une alimentation en tension et en courant**

Malgré cet intérêt évident, les alimentations de ce type ne sont, à ce jour, pas ou peu utilisées. Elles sont en effet très délicates à réaliser, en particulier à cause du faible niveau de courant demandé (qq. dizaines de mA), de la gamme de tension (qq. kV à qq. dizaines de kV) et de la fréquence de travail (de qq. kHz à qq. dizaines de kHz). Néanmoins, des structures d'alimentations en courant pour lampes DBD à excimères ont été réalisés au LAPLACE [56][57][58]. Plus récemment, Xavier Bonnin a étudié et réalisé une alimentation en courant pour dispositif DBD plan/plan [55]. Après avoir décrit la topologie de cette alimentation, nous comparerons les résultats obtenus avec cette alimentation à ceux obtenus avec une alimentation en tension sinusoïdale classique.

### III-1. Topologie et fonctionnement de l'alimentation en courant

Compte tenu du comportement capacitif de la charge, le courant dans la décharge ne peut pas être continu; cela conduirait à une croissance linéaire de la tension aux bornes de la cellule. C'est la raison pour laquelle l'alimentation réalisée par Xavier Bonnin est en fait une source de courant carré  $+I, -I$  de valeur moyenne nulle [55]. La Figure V-17 présente la topologie de l'alimentation réalisée. Il s'agit d'une structure en cascade qui est composée de deux convertisseurs. A partir d'une source de tension continue, un hacheur 2 quadrants en série avec une inductance de lissage permet de réaliser une source de courant continue. Ce courant est ensuite envoyé sur un commutateur de courant réalisant la conversion continue alternatif. Enfin, compte tenu du niveau de

tension demandé par la décharge, on insère entre le commutateur et la charge un transformateur élévateur en tension qui permet de travailler en basse tension du côté de l'alimentation et d'utiliser des transistors classiques.

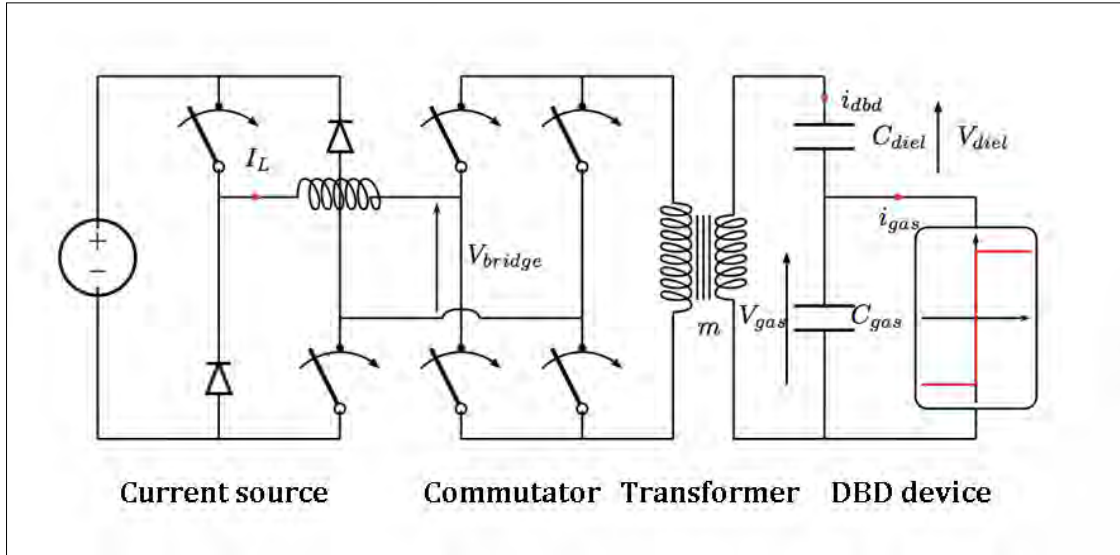


Figure V-17 : Topologie d'alimentation d'une DBD en courant rectangulaire [55]

Le principe de fonctionnement d'une alimentation de ce type est décrit sur la Figure V-18 qui présente les oscillogrammes de la tension appliquée aux bornes de la DBD et des courants délivré par l'alimentation ( $i_{dbd}$ ) et de décharge ( $i_{gas}$ ). A  $t=0$ , la décharge est éteinte et le courant  $i_{dbd}$  passe de  $-I$  à  $+I$ . Les tensions  $V_a$  et  $V_g$  augmentent linéairement jusqu'au claquage du gaz avec une pente définie par le produit du courant et de l'inverse de la capacité équivalente de la cellule de décharge ( $C_{ds}$  et  $C_g$ ). Lors de l'amorçage de la décharge, compte tenu du fait que la tension gaz est constante, la capacité équivalente à la cellule de décharge vue par l'alimentation devient égale à la capacité  $C_{ds}$ . Cela se traduit par une diminution de la pente de la tension  $V_a$  qui continue à augmenter linéairement jusqu'à l'inversion du courant.

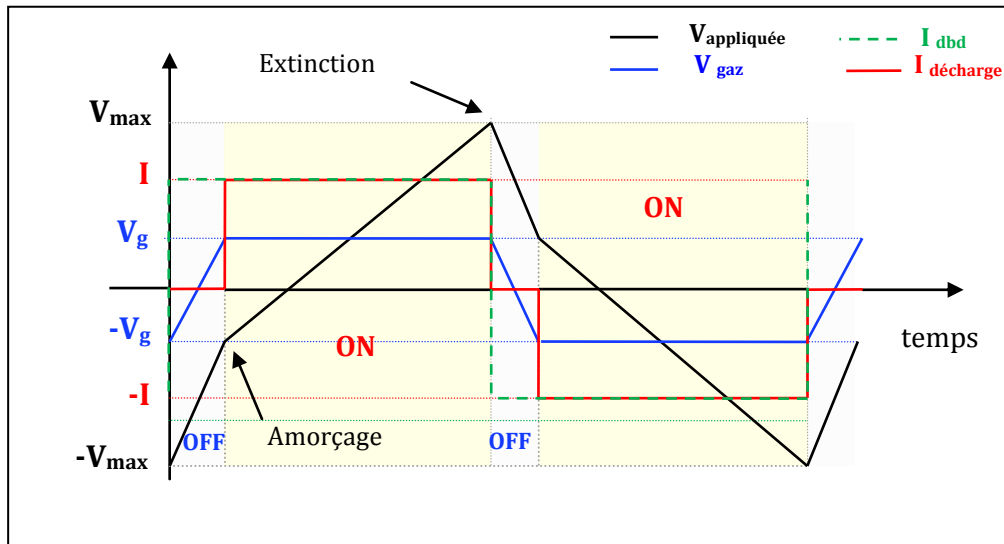


Figure V-18 : Oscillogrammes de la tension aux bornes de la DBD, du courant total et du courant de décharge dans le cas d'une alimentation en courant carré.

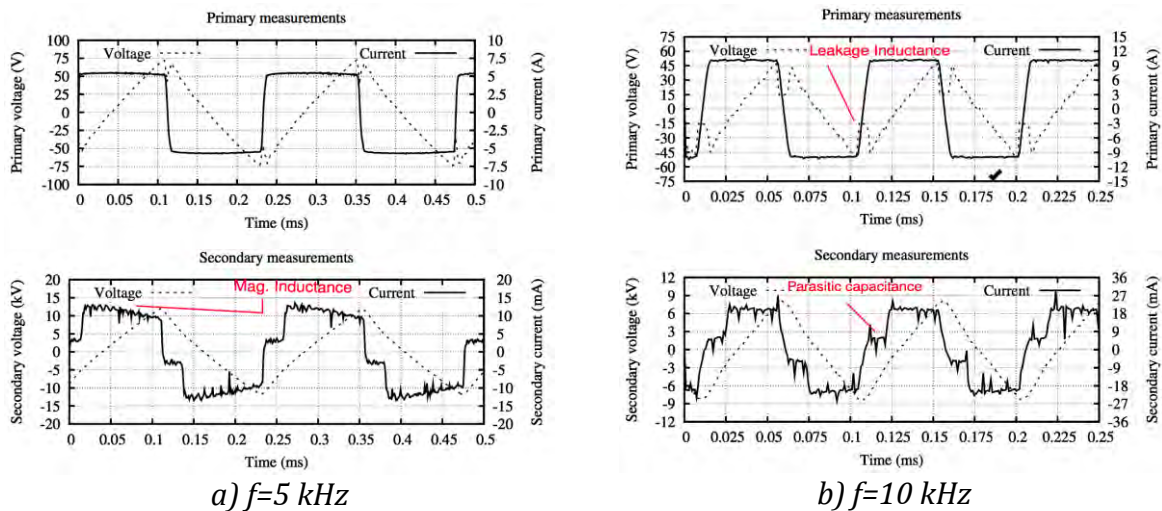
En utilisant une alimentation en courant carré idéal, l'intervalle de temps durant lequel la décharge sera éteinte est défini par l'équation Eq V-6. Ainsi, plus le courant  $I$  est élevé, plus la tension d'amorçage est atteinte rapidement et par conséquent plus le temps entre deux décharges est court.

$$t_{OFF} = \frac{2.V_{g\max}.C_g}{I} \quad \text{Eq V-6}$$

avec :  $V_{g\max}$  : tension gaz maximale ;  $C_g$  : capacité du gaz ;  $I$  : courant délivré par l'alimentation

La Figure V-19 présente des oscillogrammes courant-tension au primaire du transformateur (ce qui correspond à la sortie du commutateur de courant) et au secondaire du transformateur (ce qui correspond à la cellule de décharge). Ces oscillogrammes permettent de mettre en évidence l'influence des éléments parasites du transformateur (capacité parasite, inductances de fuite et magnétisante) [55]. En effet, comme on peut le voir sur la Figure V-19-a alors qu'au primaire du transformateur le courant présente une allure conforme à ce que l'on souhaite, le courant secondaire est quant à lui déformé. Ceci n'empêche cependant pas d'utiliser cette alimentation. L'optimisation du transformateur sera traitée dans le cadre de la fin de la thèse de Xavier Bonnin. On note également la présence de perturbations sur le courant mesuré au

secondaire du transformateur qui sont dues à des perturbations électromagnétiques liées au découpage des composants de puissance.



a)  $f=5$  kHz

b)  $f=10$  kHz

**Figure V-19 : Oscillogrammes courant-tension au primaire et au secondaire du transformateur obtenus en utilisant l'alimentation en courant pour des fréquences de 5 et 10 kHz [55]**

### III-2. Comparaison alimentation en courant vs alimentation en tension

La Figure V-20 présente un exemple d'oscillogramme obtenu en utilisant l'alimentation en courant. Comme on peut le voir, bien que les formes d'ondes puissent sembler assez différentes, le comportement électrique de la décharge correspond toujours à celui d'une décharge de Townsend avec une tension gaz quasiment constante durant la décharge. Ceci est confirmé également par des photographies rapides de la décharge qui montrent un maximum de lumière du côté de l'anode (Figure V-21).

Il est par contre intéressant de noter que dans le cas de la Figure V-20 la décharge est allumée pendant 85 % de la période, ce qui est bien supérieur à ce que l'on obtient avec une alimentation en tension sinusoïdale classique.



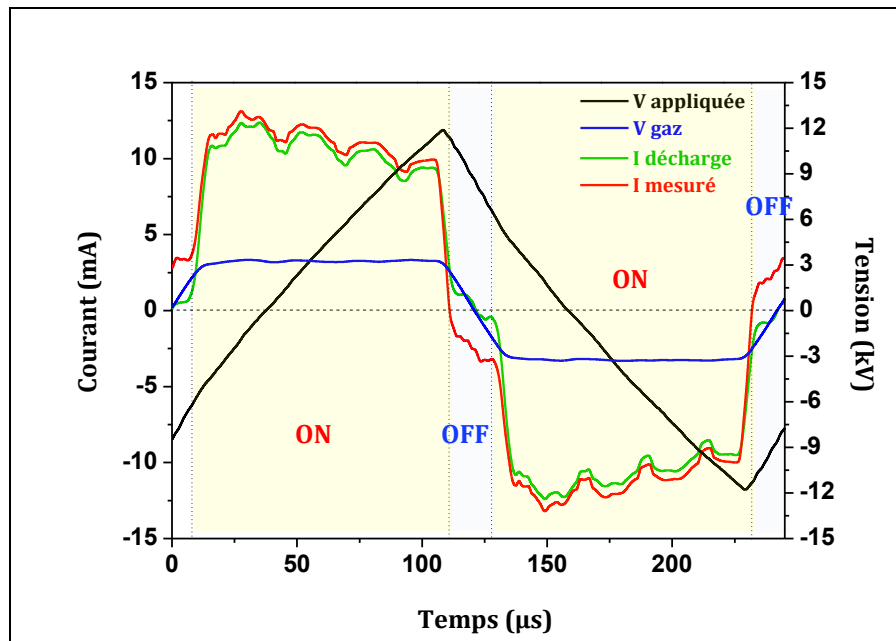


Figure V-20 : Relevés expérimentaux du courant mesuré, du courant de décharge, de la tension appliquée et de la tension gaz pour l'alimentation en courant ( $V_a=24 \text{ kV}_{CC}$ ,  $f=4,15 \text{ kHz}$ )

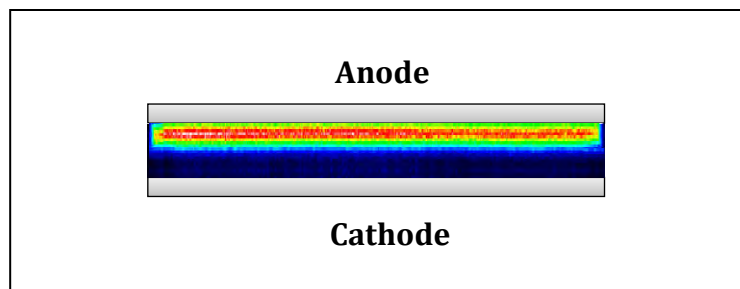


Figure V-21 : Photographie rapide de la décharge prise lors de l'alternance positive du courant avec un temps de pose de  $120 \mu\text{s}$  ( $V_a=24 \text{ kV}_{CC}$ ,  $f=4,15 \text{ kHz}$ )

Dans le cas de l'utilisation de l'alimentation en courant, le régime de décharge obtenu est le même que celui obtenu avec l'alimentation en tension sinusoïdale. Ainsi, après avoir comparé les résultats obtenus avec les deux types d'alimentation vis-à-vis de la puissance maximale en régime homogène, nous nous focaliserons sur l'impact de l'alimentation en courant sur l'effet mémoire d'une décharge à la suivante.

### III-2-1. Puissance maximale en régime homogène

L'alimentation en courant réalisée par Xavier Bonnin permet de fonctionner pour des fréquences allant de 4 kHz à 15 kHz. Le comportement de la décharge a été caractérisé sur toute cette gamme de fréquence. La Figure V-22 présente le domaine de

fonctionnement de l'alimentation en courant en terme de valeur maximale de la densité de courant surfacique en fonction de la fréquence. La zone correspondant à la croissance linéaire de la densité de courant est liée à la limitation en tension du transformateur à 24 kV crête à crête. La décroissance de la densité de courant observée à partir de 13 kHz est quant à elle liée à la limitation en courant que peut fournir le commutateur de courant (15A).

Ainsi dans les conditions étudiées, le courant est soit limité par la tension d'isolation du système, soit par le courant que peut fournir le commutateur de courant. La Figure V-23 présente l'évolution de la puissance moyenne par unité de surface dans le cas de l'alimentation en courant comparée à celle obtenue avec l'alimentation en tension sinusoïdale. Comme on peut le voir, l'utilisation de l'alimentation en courant a permis d'accroître de manière très importante la puissance maximale puisque l'on passe de  $5,2 \text{ W.cm}^{-2}$  à  $9,3 \text{ W.cm}^{-2}$ , ce qui correspond à une augmentation de 79%. Notons toutefois que la puissance obtenue avec l'alimentation en courant n'est pas représentative de la puissance maximale obtainable avec ce type d'alimentation puisque cette puissance est obtenue pour un cas où le courant est limité par le commutateur de courant et non par une transition en régime filamentaire.

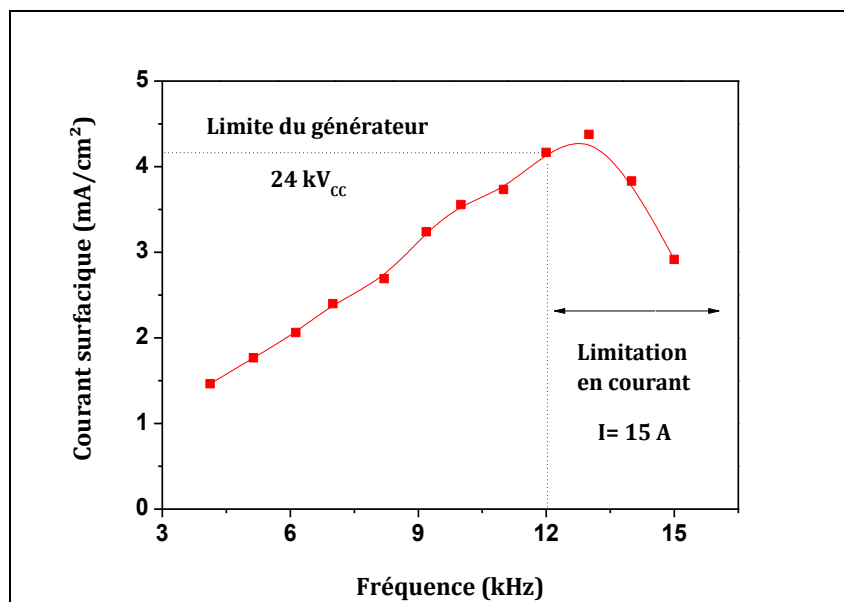
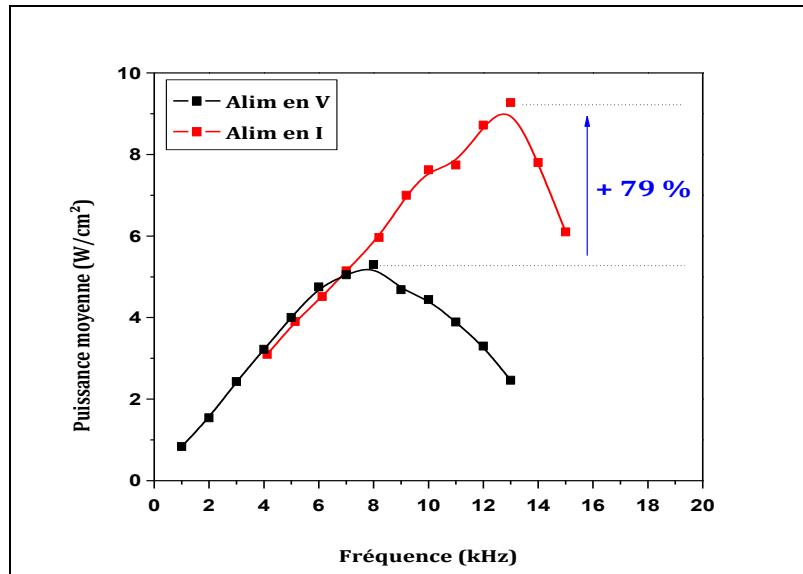
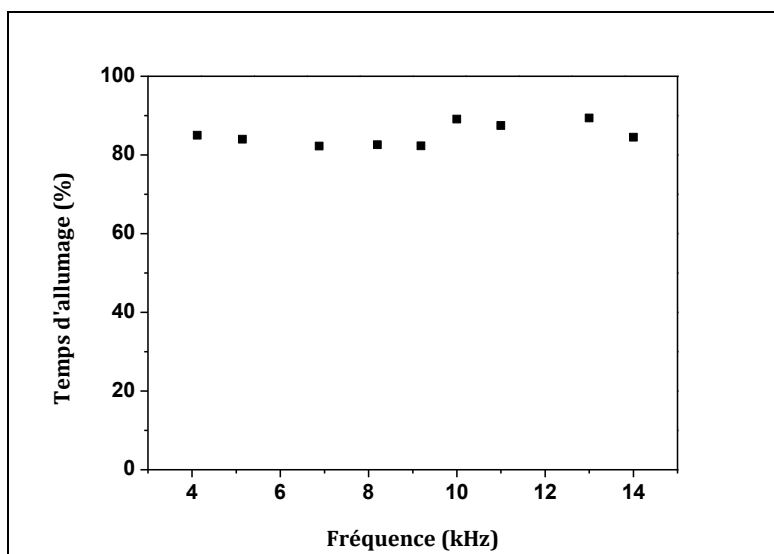


Figure V-22 : Domaine de fonctionnement de l'alimentation en courant ( $v_{gaz} = 111 \text{ cm/s}$ ,  $S = 9 \text{ cm}^2$ ,  $Cds = 62,48 \text{ pF}$ )



**Figure V-23 : Evolution de la puissance moyenne par unité de surface en limite du domaine de fonctionnement dans le cas de l'alimentation en courant et de l'alimentation en tension sinusoïdale ( $v_{gaz} = 111 \text{ cm/s}$ ,  $S = 9 \text{ cm}^2$ ,  $Cds = 62,48 \text{ pF}$ )**

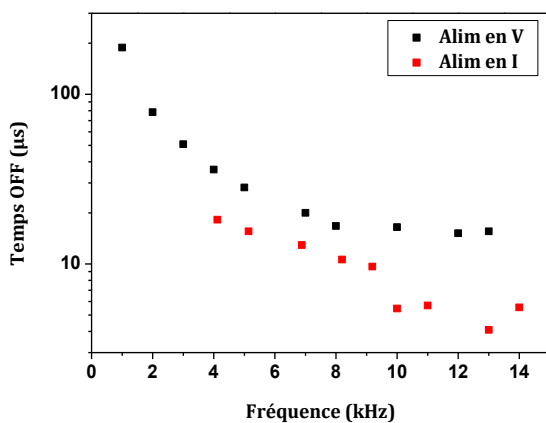
L'augmentation de la puissance observée en utilisant l'alimentation est principalement liée à une forte augmentation de la durée d'allumage de la période sur une période. La Figure V-24 présente l'évolution du pourcentage de temps durant lequel la décharge est allumée sur une période, calculé sur le domaine de fonctionnement de l'alimentation en courant présenté Figure V-22. Quelles que soient les conditions, la durée d'allumage est comprise entre 80 et 85 % de la période.



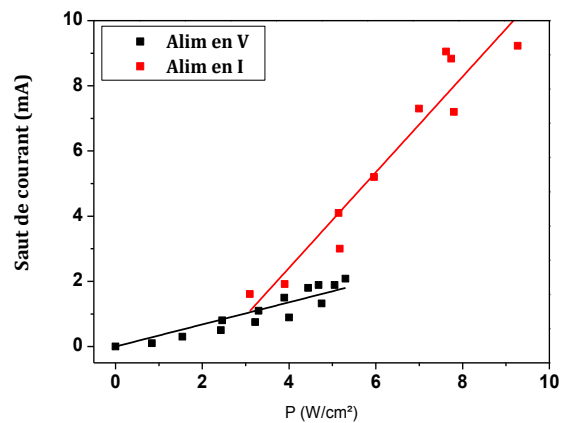
**Figure V-24 : Evolution de la durée d'allumage de la décharge en limite du domaine de l'alimentation en courant ( $v_{gaz} = 111 \text{ cm/s}$ ,  $S = 9 \text{ cm}^2$ ,  $Cds = 62,48 \text{ pF}$ )**

III-2-2. Effet mémoire

Nous avons vu dans le chapitre précédent l'importance de l'effet mémoire d'une décharge à la suivante dans le cas d'une DTPA. Cet effet mémoire est fortement lié à la présence des métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  dont la durée de vie dans l'azote a été estimée à  $80\mu s$ . L'utilisation de l'alimentation en courant permet comme nous venons de le voir d'accroître de manière importante le pourcentage du temps durant lequel la décharge est allumée. Cela se traduit par une diminution du temps durant lequel la décharge est éteinte (Figure V-25). Comme on peut le voir, l'alimentation en courant permet de diminuer fortement cette durée. Cela se traduit également par une augmentation du saut de courant lorsque la décharge est éteinte, attribué à l'effet mémoire (Figure V-26). Par conséquent, l'utilisation de l'alimentation en courant permet de maximiser l'effet mémoire d'une décharge à la suivante.



**Figure V-25 : Evolution du temps off entre deux décharges en limite du domaine de fonctionnement dans le cas de l'alimentation en tension sinusoïdale et en courant carré ( $v_{gaz}= 111$  cm/s,  $S= 9cm^2$ ,  $C_{ds}= 62,48pF$ )**



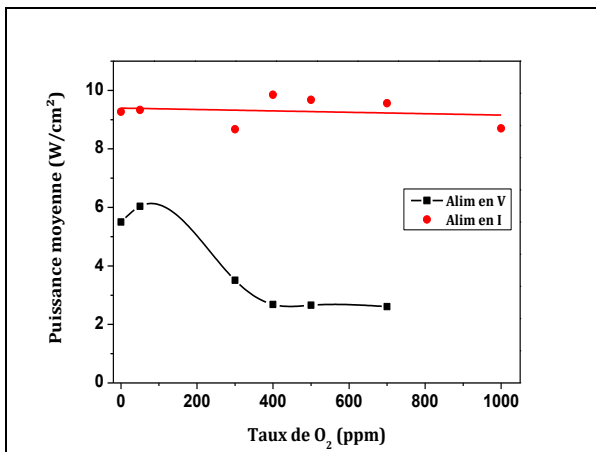
**Figure V-26 : Evolution du saut de courant lié à l'effet mémoire dans le cas de l'alimentation en tension sinusoïdale et en courant carré ( $v_{gaz}= 111$  cm/s,  $S= 9cm^2$ ,  $C_{ds}= 62,48pF$ )**

La maximisation de l'effet mémoire observé lorsque l'on utilise l'alimentation en courant permet de diminuer la sensibilité de la décharge aux impuretés rajoutées dans le gaz qui entraînent une destruction des métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ . Afin d'évaluer cela, nous avons étudié l'influence de l'ajout de  $O_2$  et de  $H_2$ . L'influence de l'ajout de  $O_2$  avec l'alimentation sinusoïdale a été étudiée dans le chapitre IV. Nous avons vu que l'ajout de quelques dizaines de ppm permet d'améliorer la stabilité de la décharge. Cependant au-delà de

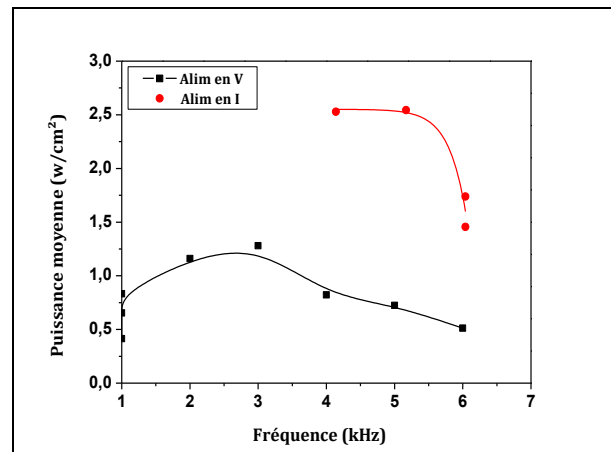
400 ppm, le domaine de la décharge est fortement réduit. L'hydrogène, quant à lui, va consommer efficacement les métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  [59].

La Figure V-27 présente l'évolution de la puissance moyenne pour les deux types d'alimentation en fonction du taux de  $O_2$  rajouté à  $N_2$ . Comme on peut le voir, l'utilisation de l'alimentation en courant permet de maintenir une puissance constante jusqu'à 1000 ppm de  $O_2$  alors que dans le cas de l'alimentation en tension, la puissance moyenne diminue fortement.

La Figure V-28 présente l'évolution de la puissance moyenne en limite de régime pour les deux types d'alimentation lorsque l'on rajoute 6000 ppm de  $H_2$  dans  $N_2$ . Au delà de 6 kHz, quelle que soit l'alimentation utilisée, la décharge est filamentaire. On remarque également que la puissance maximale obtenue avec l'alimentation en courant est bien supérieure à celle obtenue avec l'alimentation en tension sinusoïdale.



**Figure V-27 : Evolution de la puissance moyenne en limite de régime homogène en fonction du taux de  $O_2$  rajouté dans  $N_2$  pour les deux types d'alimentations ( $v_{gaz}= 111$  cm/s,  $S=9$ cm<sup>2</sup> cm<sup>2</sup>,  $C_{ds}= 62,48$ pF)**



**Figure V-28 : Evolution de la puissance moyenne en limite de régime homogène en fonction de la fréquence pour les deux types d'alimentation pour 6000 ppm de  $H_2$  rajoutés dans  $N_2$  ( $v_{gaz}= 111$  cm/s,  $S=9$ cm<sup>2</sup> cm<sup>2</sup>,  $C_{ds}= 62,48$ pF)**

### III-3. Discussion

L'alimentation en courant développée par Xavier Bonnin a permis d'obtenir une décharge homogène similaire à celle obtenue avec l'alimentation en tension classiquement utilisée. Nous avons mis en évidence que cette alimentation permet

d'accroître de manière très importante la puissance maximale transférée à la décharge. En effet, dans les conditions étudiées, celle-ci est passée de 5,2 W.cm<sup>-2</sup> à 9,3 W.cm<sup>-2</sup>. Cette augmentation provient principalement de la durée d'allumage de la décharge qui, dans les conditions étudiées, a atteint 85 % de la période. Nous avons également montré que cette augmentation de la durée d'allumage, qui entraîne un temps off entre deux décharges plus court qu'avec l'alimentation en tension sinusoïdale, permet de diminuer la sensibilité de la décharge aux impuretés. En effet, pour un même taux de O<sub>2</sub> ou H<sub>2</sub>, la puissance obtenue avec l'alimentation en courant a toujours été nettement supérieure à celle obtenue avec l'alimentation en tension. L'utilisation d'une alimentation de ce type permet également de s'affranchir des variations de capacité équivalente des diélectriques. En effet, comme on impose un courant, la valeur de la capacité C<sub>ds</sub> influencera le niveau de tension mais pas (ou peu) la puissance transférée à la décharge. Ceci peut s'avérer important par exemple dans le cas d'un matériau à traiter comme le verre dont la permittivité relative varie fortement avec la fréquence et la température. Dans le cadre de sa thèse, Xavier Bonnin a étudié l'influence des éléments parasites du transformateur sur le courant délivré à la cellule de décharge [55]. Il a, en particulier, montré l'importance de la capacité parasite vue du secondaire du transformateur. Cette étude a également permis de mettre en équation la puissance transférée à la décharge (Eq V-7), le temps off entre deux décharges successives (Eq V-8) et la tension maximale aux bornes de la cellule de décharge (Eq V-9). Ceci nous a permis d'étudier l'influence de la valeur de la capacité C<sub>ds</sub> et de la fréquence sur le comportement de la décharge. Pour cela, tous les calculs ont été réalisés pour :

- une surface de 9 cm<sup>2</sup> avec un gap gazeux de 1 mm.
- un courant I de 39,6 mA, ce qui correspond à la valeur maximale de la densité de courant (Figure V-22).
- une capacité parasite C<sub>p</sub> de 25 pF, ce qui correspond à l'ordre de grandeur de la capacité parasite du transformateur utilisé [51].
- une tension V<sub>gα</sub>=3500 V.

$$P = \frac{C_{ds} + C_p}{C_{ds}} \left( 1 - \left( 1 + \frac{C_p}{C_{ds}} + \frac{C_p}{C_g} \right) \frac{4.V_{g\alpha}.C_g.f}{I} \right) V_{g\alpha}.I \quad \text{Eq V-7}$$

$$t_{OFF} = \frac{2.V_{g\alpha}.C_g}{I} \frac{C_{ds} + C_g}{C_{ds}} \left( 1 + \frac{C_p}{C_{ds}} + \frac{C_p}{C_g} \right) \quad \text{Eq V-8}$$

$$V_{crête} = \frac{1 + \frac{I}{4.V_{g\alpha}.C_{ds}.f}}{1 + \frac{C_p}{C_{ds}}} \quad \text{Eq V-9}$$

avec :  $f$ : fréquence(Hz);  $C_{ds}$ : capacité équivalente des diélectriques solides (F);  $C_g$ : capacité du gaz (F);  $C_p$ : capacité parasite (F);  $V_{g\alpha}$ : tension d'amorçage de la décharge (V);  $I$ : courant total dans la décharge (A).

La Figure V-29 présente l'évolution de la puissance surfacique moyenne en fonction de la capacité par unité de surface et de la fréquence d'excitation calculée à partir de l'équation Eq V-7. Les barres verticales pointillées correspondent aux limites de fonctionnement du commutateur de courant utilisé dans cette étude ( $f_{\min}=5$  kHz et  $f_{\max}=15$  kHz). La croix rouge correspond aux conditions expérimentales pour lesquelles la puissance maximale a été obtenue. La puissance calculée dans ces conditions est de  $9 \text{ W.cm}^{-2}$  pour une puissance mesurée de  $9,3 \text{ W.cm}^{-2}$ . Il est intéressant de noter que, pour une fréquence et une surface données, plus la capacité  $C_{ds}$  augmente plus la puissance augmente. Ainsi, pour une même densité de courant, il serait possible d'obtenir une puissance supérieure à  $14 \text{ W.cm}^{-2}$  en utilisant d'autres diélectriques (de permittivité relative plus forte ou d'épaisseur plus faible).

La Figure V-30 présente l'évolution du temps off en fonction de la capacité par unité de surface et de la fréquence d'excitation calculée à partir de l'équation Eq V-8. Ce temps correspond au laps de temps durant lequel la décharge est éteinte entre deux alternances successives. Ce temps off est indépendant de la fréquence d'excitation mais dépend fortement de la capacité  $C_{ds}$ . Plus la valeur de la capacité  $C_{ds}$  sera élevée plus le temps durant lequel la décharge est éteinte sera réduit, ce qui explique l'augmentation de la puissance. Plus ce temps est réduit, plus l'effet mémoire d'une décharge à la suivante est important et par conséquent plus la sensibilité à l'ajout d'impuretés est faible.

Par rapport à une alimentation en tension sinusoïdale classique, le principal inconvénient d'une alimentation en courant est le niveau de tension qui peut atteindre des valeurs très élevées (Figure V-31). Dans les conditions considérées, la valeur crête

maximale calculée est environ de 250 kV (Figure V-31-a). Il s'agit bien évidemment d'un niveau de tension non envisageable pour une DBD. L'augmentation de la capacité et/ou de la fréquence d'excitation permet d'abaisser la valeur crête de la tension. Si on considère une valeur crête maximale de 20 kV, la Figure V-31-b permet de définir les valeurs de  $C_{ds}$  et de fréquence d'excitation utilisables pour fonctionner à puissance maximale.

Compte tenu des résultats présentés sur les Figure V-29, Figure V-30 et Figure V-31, si l'on désire fonctionner à puissance maximale tout en diminuant le temps off et en limitant la valeur crête de la tension appliquée sur la cellule de décharge de 10 à 20 kV, il faut utiliser une fréquence d'excitation de l'ordre de 3 à 6 kHz en utilisant une capacité la plus grande possible.

Notons qu'à l'heure actuelle, contrairement au cas de l'alimentation en tension sinusoïdale, la puissance maximale obtenue est limitée par le transformateur utilisé (tenue en tension et éléments parasites) et le courant que peut débiter la source de courant.



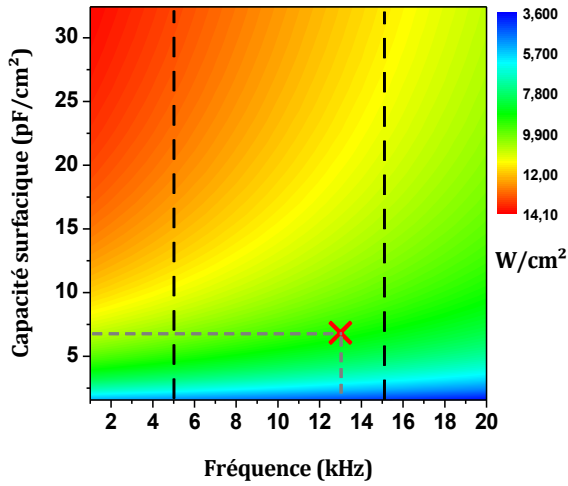


Figure V-29 : Evolution de la puissance surfacique en fonction de la capacité par unité de surface et de la fréquence d'excitation ( $S=9\text{cm}^2$ ,  $C_p=25\text{ pF}$ ,  $V_{g\alpha}=3500\text{V}$ ).

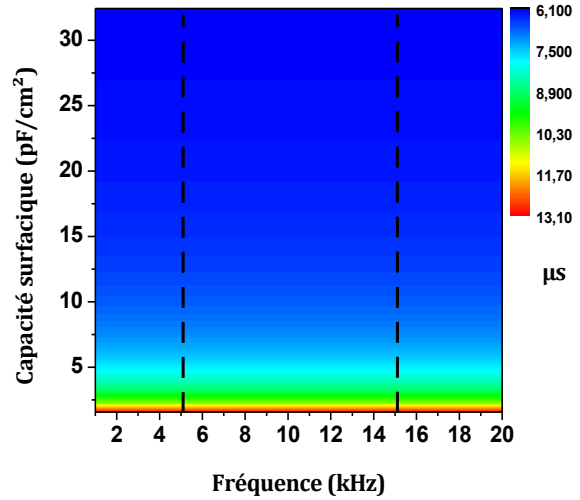


Figure V-30 : Evolution du temps off en fonction de la capacité par unité de surface et de la fréquence d'excitation ( $S=9\text{cm}^2$ ,  $C_p=25\text{ pF}$ ,  $V_{g\alpha}=3500\text{ V}$ ).

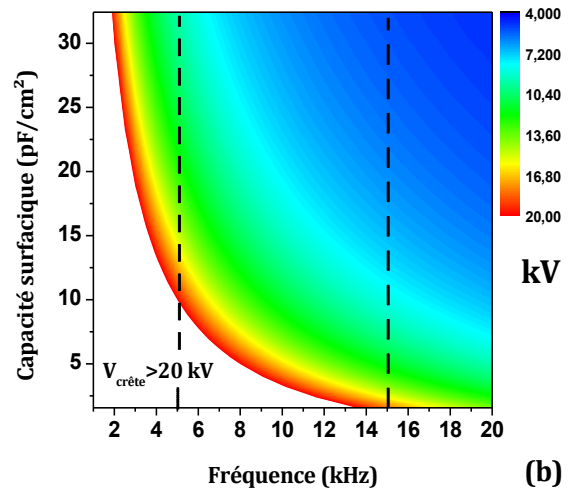
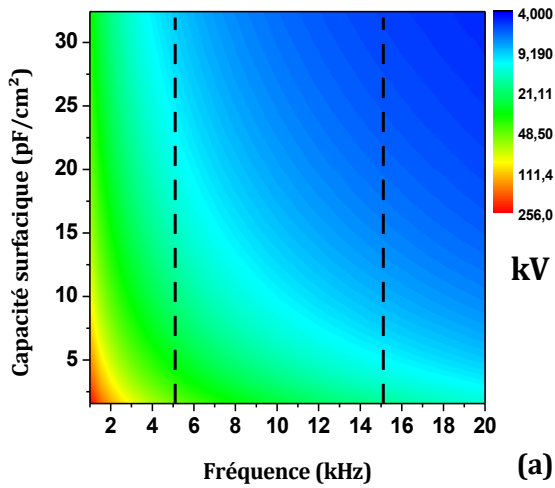


Figure V-31 : Evolution de la tension maximale en fonction de la capacité par unité de surface et de la fréquence d'excitation ( $S=9\text{cm}^2$ ,  $C_p=25\text{ pF}$ ,  $V_{g\alpha}=3500\text{ V}$ ) : a) échelle logarithmique, b) échelle linéaire.

#### IV. SYNTHÈSE

Les travaux réalisés ont permis de mettre en évidence l'importance des diélectriques solides et du type d'alimentation sur le transfert de puissance dans le cas d'une DTPA.

Concernant les matériaux diélectriques utilisés, les essais réalisés ont montré que le paramètre essentiel est la valeur globale de la capacité équivalente des diélectriques solides  $C_{ds}$  et que le type de matériau n'a que peu (ou pas) d'influence. Dans le cas d'une alimentation en tension sinusoïdale, nous avons montré qu'il était possible de maximiser la puissance transférée à la décharge à condition d'utiliser une capacité  $C_{ds}$  d'environ  $10 \text{ pF/cm}^2$  et une fréquence de 9 kHz.

En utilisant une alimentation en tension sinusoïdale classique, la durée d'allumage de la décharge ne dépasse pas généralement 70% de la période. Cela se traduit par un temps off relativement long et donc une sensibilité importante de la décharge aux impuretés qui détruisent l'effet mémoire d'une décharge à la suivante. L'utilisation d'une alimentation en courant nous a permis de diminuer fortement ce temps off et d'atteindre une durée d'allumage de l'ordre de 85% de la période. Cela se traduit également par une forte augmentation de la puissance pour atteindre quasiment  $10 \text{ W/cm}^2$ . Dans le cas d'une alimentation en courant, nous avons montré qu'il serait préférable d'utiliser une capacité  $C_{ds}$  la plus grande possible afin de maximiser la puissance transmise à la décharge. Ceci devra être vérifié expérimentalement. Nous avons également montré que ce type d'alimentation permet de diminuer la sensibilité de la décharge aux impuretés grâce à la diminution du temps off qui permet de maximiser l'effet mémoire d'une décharge à la suivante. L'utilisation d'une alimentation en courant carré semble donc être la meilleure solution pour le développement d'un procédé industriel.

## CONCLUSION GENERALE

Des travaux précédents ont montré l'intérêt de la Décharge de Townsend à la Pression Atmosphérique (DTPA) dans le cas de traitements de surface comme par exemple les dépôts de couches minces. Néanmoins, la vitesse de dépôt est encore trop limitée pour pouvoir développer un procédé de traitement de surface industriel. Or l'augmentation de la vitesse de dépôt passe par un accroissement de la quantité de gaz précurseurs et de la puissance dissipée dans la décharge, ce qui entraîne généralement, et dans les deux cas, une transition de la décharge vers le régime filamentaire.

Dans ce cadre, les objectifs de ce travail étaient d'une part l'amélioration de la compréhension de l'effet mémoire d'une décharge à la suivante, condition nécessaire à l'obtention d'une décharge de Townsend de forte puissance à la pression atmosphérique, et d'autre part l'optimisation du transfert de puissance depuis le générateur afin de maximiser la puissance tout en restant en régime homogène. La démarche adoptée a consisté en une étude expérimentale qui a couplée des mesures électriques et optiques. Au niveau des mesures électriques, nous avons développé une technique permettant des mesures du courant en différents points de la zone de décharge. Ceci nous a permis de remonter à des caractéristiques électriques locales de la décharge.

Concernant l'effet mémoire d'une décharge à la suivante, l'hypothèse privilégiée au début de cette thèse était que les états métastables à longue durée de vie  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  permettent d'ensemencer le gaz en électrons germes par émission secondaire à la cathode. Cependant, ce mécanisme ne permet pas d'expliquer pourquoi l'ajout de faibles concentrations de gaz oxydants (typiquement inférieures à 100 ppm) augmente la stabilité de la décharge alors que ces gaz oxydants détruisent les  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ . L'étude de la décharge de Townsend en présence de traces de gaz oxydants (dioxygène et monoxyde d'azote), et en utilisant des mesures électriques et optiques résolues spatialement et temporellement, a permis d'améliorer la compréhension des mécanismes à l'origine de cet effet mémoire et donc par conséquent de la transition en régime filamentaire. En effet, il apparaît que si effectivement les états métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$  sont

indispensables, nous avons également pu proposer un mécanisme supplémentaire de créations d'électrons germes en présence de gaz oxydant. Celui-ci est basé sur l'ionisation associative de l'azote atomique excité  $N(2P)$  et de l'oxygène atomique  $O(3P)$ , l'azote atomique étant excité par les molécules métastables  $N_2(A^3\Sigma_u^+)$ . Ce mécanisme permet d'expliquer l'augmentation de stabilité observée en présence de faibles concentrations de gaz oxydants. Sur la base des travaux réalisés dans cette thèse, des modélisations de la décharge couplées à des mesures par LIF ou CRDS permettront d'aller plus en avant dans la compréhension de ces mécanismes.

L'optimisation du transfert de puissance s'est faite à travers deux approches complémentaires. La première consiste à étudier l'influence des matériaux diélectriques recouvrant les électrodes et la seconde est focalisée sur l'alimentation électrique utilisée.

Une particularité de cette étude vient des matériaux diélectriques testés. En effet, mis à part les matériaux diélectriques classiquement utilisés pour des DBD (alumine et verre), nous avons également testé des matériaux présentant des permittivités relatives très élevées (carbure de silicium, dioxyde de titane et titanate de baryum). Il apparaît que du point de vue de la décharge de Townsend, le paramètre essentiel est la valeur globale de la capacité équivalente des diélectriques solides  $C_{ds}$ , alors que le type de matériau n'a que peu (ou pas) d'influence. Dans le cas d'une alimentation en tension sinusoïdale, nous avons mis en équation la puissance maximale en régime homogène en fonction de la fréquence, de la valeur de la capacité  $C_{ds}$ , du gap gazeux, etc. Ceci a permis de définir les conditions permettant de maximiser la puissance transférée à la décharge. Ainsi, dans ces conditions, la puissance maximale de  $6 \text{ W.cm}^{-2}$  ( $60 \text{ W.cm}^{-3}$ ) est obtenue pour une capacité  $C_{ds}$  d'environ  $10 \text{ pF/cm}^2$  et une fréquence de 9 kHz.

Concernant l'alimentation électrique, des travaux antérieurs avaient montré à partir de simulations électriques qu'une alimentation en courant carré devait permettre de maximiser la puissance dans le cas d'une décharge de Townsend à pression atmosphérique. Ce type d'alimentation n'existe pas commercialement. Cependant, dans le cadre de sa thèse, Xavier Bonnin, doctorant au LAPLACE, a développé et réalisé une alimentation de ce type. Grâce à cette alimentation, nous avons obtenu en limite de fonctionnement de l'alimentation une puissance de quasiment  $10 \text{ W.cm}^{-2}$  ( $100 \text{ W.cm}^{-3}$ ) sans transition en régime filamentaire. Cette augmentation importante peut s'expliquer

en grande partie par l'augmentation de la durée d'allumage de la décharge qui a atteint 85 % de la période. Ceci va de paire avec une diminution du temps off entre deux décharges, ce qui permet par ailleurs de maximiser l'effet mémoire d'une décharge à la suivante. Ainsi, nous avons montré que pour une même quantité d'impuretés injectées dans la décharge, l'alimentation en courant permet d'obtenir une puissance en régime homogène supérieure à celle obtenue avec une alimentation en tension sinusoïdale classique. L'intérêt de l'alimentation en courant devra être confirmé pour la réalisation de dépôts de couches minces afin de valider que cela permet effectivement d'augmenter la vitesse de dépôt, du fait de l'augmentation de puissance mais également de l'augmentation de stabilité de la décharge, permettant d'injecter une plus grande quantité de précurseurs dans le mélange plasmagène tout en conservant une décharge homogène.



## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] Yuri. P. Raizer, *Gas Discharge Physics*. 1991.
- [2] M. A. Lieberman and A. J. Lichtenberg, *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing*, Inc 572. New York, John Wiley & Sons: , 1994.
- [3] H. F. Winters and J. W. Coburn, "Surface science aspects of etching reactions," *ScienceDirect*, vol. 14, no. 4, pp. 162–269, 1992.
- [4] B. Wu, "Photomask plasma etching: A review," *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures*, vol. 24, no. 1, p. 1, 2006.
- [5] P. Favia, M. V. Stendardo, and R. D'Agostino, "Selective grafting of amine groups on polyethylene by means of NH<sub>3</sub>-H<sub>2</sub> RF glow discharges," *Plasmas and Polymers*, vol. 1, no. 2, pp. 91–112, Jun. 1996.
- [6] P. Favia, E. Sardella, R. Gristina, A. Milella, and R. Agostino, "Funcionalization of biomedical polymers by means of plasma process: plasma treated polymers with limited hydrophobic recovery and PE-CVD and -COOH functional coatings," *Journal of Photopolymer Science and Technology*, vol. 15, no. 2, pp. 341–350, 2002.
- [7] L. Reynard, "Modélisation tridimensionnelle de l'amorçage de l'arc électrique dans un disjoncteur basse-tension," Thèse de doctorat, Ecole Centrale de Lyon, 2006.
- [8] K. H. Schoenbach, F. E. Peterkin, and R. Verhappen, "Micro hollow cathode discharges," *Plasmas for Lighting*, vol. 49, no. June, p. 2680, 1995.
- [9] W. Shi, R. H. StarK, and K. H. Schoenbach, "Parallel Operation of Microhollow Cathode Discharges," *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 27, no. 1, pp. 16–17, 1999.
- [10] *Plasmas Froids : Génération, caractérisation et technologies*. Publications de l'Université de Saint Etienne, 2004.
- [11] *Les plasmas froids dans l'industrie*, *Electra*. ISBN 2-86995-017-9, 1991.
- [12] J. R. Roth, *Industrial Plasma Engineering : Volume I – Principles*. Institute of physics Publishing, Bristol and Philadelphia: ISBN: 0-7503-0318-2, 1995.
- [13] U. Kogelschatz, "Filamentary and diffuse barrier discharges," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 20, p. 1421, 1987.
- [14] U. Kogelschatz, "Dielectric-Barrier Discharges: Their History, Discharge Physics, and Industrial Applications," *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, vol. 23, no. 1, pp. 1–46, Mar. 2003.

- [15] A. Fridman, A. Chirokov, and A. Gutsol, "Non-thermal atmospheric pressure discharges," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 38, no. 2, pp. R1–R24, Jan. 2005.
- [16] W. Siemens, *Poggendorff's Ann. Phys. Chem*, vol. 102, pp. 66–122, 1857.
- [17] C. H. Kruger, C. O. Laux, L. Yu, D. M. Packan, and L. Pierrot, "Nonequilibrium discharges in air and nitrogen plasmas at atmospheric pressure," *Pure and Applied Chemistry*, vol. 74, no. 3, pp. 337–347, 2002.
- [18] N. Gherardi, "Physico-chimie et régimes des décharges contrôlées par barrière diélectrique en mélanges azote - gaz oxydant - silane. Application à l'activation de surfaces polymères et aux dépôts," Thèse de doctorat, Université Paul Sabatier, 1998.
- [19] H. R. Griem, "Principles of Plasma Spectroscopy," vol. 1255, pp. 99–101, 1997.
- [20] Princeton-Instrument, "Princeton-Instrument." [Online]. Available: <http://www.princetoninstruments.com/>.
- [21] U. Kogelschatz, B. Eliasson, and W. Egli, "Dielectric-Barrier Discharges. Principle and Applications," *edp sciences*, vol. 7, no. 1 997, 1997.
- [22] J. M. Meek and J. D. Craggs, *Electrical breakdown of gases*. Clarendon Press, Oxford: , 1953.
- [23] J. M. Meek and J. D. Craggs, *gas discharge physics*. Flügge, Springer Ferlag, Berlin: , 1991.
- [24] U. Kogelschatz, "10th Int. Conf. on Gas Disch. and App," 1992.
- [25] T. Uehara, "Corona discharge treatment of polymers," in *Adhesion Promotion Techniques: Technological Application*, Marcel Dek., K. L. M. and A. Pizzi, Ed. New York, Basel: , 1999, pp. 191–202.
- [26] S. Kanazawa, M. Kogoma, T. Moriwaki, and S. Okazaki, "Stable glow plasma at atmospheric pressure," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 838, pp. 189–200, 1988.
- [27] T. Yokoyama, M. Kogoma, T. Moriwaki, and S. Okazaki, "The mechanism of the stabilisation of glow plasma at atmospheric pressure," *J. Phys. D: Appl. Phys*, vol. 23, pp. 1125–1128, 1990.
- [28] R. Messaoudi, F. Massines, A. Younsi, B. Despax, and C. Mayoux, "Humidity effect on Corona Discharges. Role of electric field," in *Proc. 10th Int. Conf. Gas Disch. And App*, 1992, pp. 318–321.



- 
- [29] F. Massines, C. Mayoux, R. Messaoudi, A. Rabehi, and P. Ségur, "Experimental study of an Atmospheric Pressure Glow Discharge. Application to polymers surface treatment," in *Proc. 10th Int. Conf. Gas Disch. And App*, 1992, pp. 730–733.
- [30] C. Khamphan, "Modélisation numérique de décharges contrôlées par barrières diélectriques à la pression atmosphérique – Application à l'étude des précurseurs de poudres en mélange N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>O-SiH<sub>4</sub>," Thèse de doctorat, Université paul sabatier, 2004.
- [31] C. Khamphan, P. Segur, F. Massines, M. Bordage, N. Gherardi, and Y. Cesses, "Secondary electron emission by nitrogen metastable states in atmospheric-pressure glow discharge," in *16th Int. Symp. on plasma Chemistry (ISPC-16)*, 2003, p. 589.
- [32] R. Goffaux, "Propriétés des diélectriques réels dans un champ électrique : Décharges électriques dans les gaz – Partie II." Charleroi, Belgique.
- [33] M. Simek, V. Babicky, M. Clupek, S. DeBenedictis, G. Dilecce, and P. Sunka, "Excitation of N<sub>2</sub> ( C 3 Π u ) and NO ( A 2 Σ + ) states in a pulsed positive corona discharge in N<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> – O<sub>2</sub> and N<sub>2</sub> – NO mixtures," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 31, pp. 2591–2602, 1998.
- [34] G. Dilecce, P. F. Ambrico, and S. De Benedictis, "N<sub>2</sub>(A) density measurement in a dielectric barrier discharge in N<sub>2</sub> and N<sub>2</sub> with small O<sub>2</sub> admixtures," *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 16, no. 3, pp. 511–522, Aug. 2007.
- [35] F. Massines, P. Ségur, N. Gherardi, C. Khamphan, and A. Ricard, "Physics and chemistry in a glow dielectric barrier discharge at atmospheric pressure: diagnostics and modelling," *Surface & coatings technology*, vol. 174–75, pp. 8–14.
- [36] Nicolas Naudé, J. Paillol, A. Belinger, and R. Subileau, "Diagnostics électriques et alimentations des Décharges à Barrière Diélectrique," in *Plasma et son environnement Plasma Froids en France et au québec*, 2012.
- [37] N. Gherardi and F. Massines, "Mechanisms controlling the transition from glow silent discharge to streamer discharge in nitrogen," *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 29, no. 3, pp. 536–544, Jun. 2001.
- [38] F. Massines, N. Gherardi, N. Naudé, and P. SEGUR, "Recent advances in the understanding of homogeneous dielectric barrier discharges," *The European Physical Journal Applied Physics*, vol. 47–2, no. 22805, 2009.
- [39] R. Brandenburg, Z. Navrátil, J. Jánský, P. St'ahel, D. Trunec, and H.-E. Wagner, "The transition between different modes of barrier discharges at atmospheric pressure," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 42, no. 8, p. 085208, Apr. 2009.
- [40] K. V Kozlov, R. Brandenburg, H.-E. Wagner, A. M. Morozov, and P. Michel, "Investigation of the filamentary and diffuse mode of barrier discharges in N<sub>2</sub> /O
-

- 2 mixtures at atmospheric pressure by cross-correlation spectroscopy," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 38, no. 4, pp. 518–529, Feb. 2005.
- [41] R. Brandenburg, V. A. Maiorov, Y. B. Golubovskii, H.-E. Wagner, J. Behnke, and J. F. Behnke, "Diffuse barrier discharges in nitrogen with small admixtures of oxygen: discharge mechanism and transition to the filamentary regime," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 38, no. 13, pp. 2187–2197, Jul. 2005.
- [42] E. Es-esebbar, "Etude Electrique et Analyse par Fluorescence Induite par Laser des Décharges de Townsend à la Pression Atmosphérique dans N<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>O et N<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>," Thèse de doctorat, Université Paul Sabatier, 2007.
- [43] I. A. Kossyi, A. Y. Kostinsky, A. A. Matveyev, and V. P. Silakov, "Kinetic scheme of the non-equilibrium discharge in nitrogen-oxygen mixtures," *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 1, no. 3, pp. 207–220, Aug. 1992.
- [44] B. F. Gordiets, C. M. Ferreira, V. L. Guerra, J. M. A. H. Loureiro, J. Nahorny, D. Pagnon, M. Touzeau, and M. Vialle, "Kinetic Model of a Low-Pressure N<sub>2</sub>-O<sub>2</sub> Flowing Glow Discharge," vol. 23, no. 4, 1995.
- [45] N. A. Popov, "Associative ionization reactions involving excited atoms in nitrogen plasma," *Plasma Physics Reports*, vol. 35, no. 5, pp. 436–449, May 2009.
- [46] N. A. Popov, "Dissociation of Nitrogen in a Pulse Periodic Dielectric Barrier Discharge at Atmospheric Pressure," vol. 39, no. 5, pp. 420–424, 2013.
- [47] E. Es-sebbar, N. Gherardi, and F. Massines, "Effects of N<sub>2</sub>O and O<sub>2</sub> addition to nitrogen Townsend dielectric barrier discharges at atmospheric pressure on the absolute ground-state atomic nitrogen density," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 46, no. 1, p. 015202, Jan. 2013.
- [48] I. Enache, "Etude Expérimentale et Modélisation du Transfert de Matière dans des Décharges de Townsend à Pression Atmosphérique en Mélange HMDSO-N<sub>2</sub>O-N<sub>2</sub> et SiH<sub>4</sub>-N<sub>2</sub>O-N<sub>2</sub>," Thèse de doctorat, Université Paul Sabatier, 2007.
- [49] N. Gherardi, L. Maechler, C. Sarra-Bournet, N. Naudé, and F. Massines, "APGD and APTD for the deposition of silicon based thin films from N<sub>2</sub>O / HMDSO mixtures : application to gas-barrier layers," in *19th international symposium on plasma chemistry*, 2009, pp. 1–4.
- [50] C. Sarra-bournet, "Fonctionnalisation de surface de polymères par plasma à la pression atmosphérique. Amination de surface et dépôt de couches minces par un procédé de décharge par barrière diélectrique.," Thèse de doctorat, Université Paul Sabatier, 2009.
- [51] N. Naudé, "Etude Electrique de la Physique d'une Décharge de Townsend à la Pression Atmosphérique et de son Interaction avec un Générateur : Modèle et Expérience," Thèse de doctorat, Université Paul Sabatier, 2005.

- [52] N. Naudé, J.-P. Cambronne, N. Gherardi, and F. Massines, "Electrical model and analysis of the transition from an atmospheric pressure Townsend discharge to a filamentary discharge," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 38, no. 4, pp. 530–538, Feb. 2005.
- [53] Goodfellow, "Catalogue des matériaux," 2012. [Online]. Available: <http://www.goodfellow.com/catalogue>.
- [54] ELIT, "stumatite Céramique pour four industriel," 2009. [Online]. Available: [http://www.dthx.org/files/Telechargements/Fournisseurs/91/Stumatite\\_four\\_2009.pdf](http://www.dthx.org/files/Telechargements/Fournisseurs/91/Stumatite_four_2009.pdf).
- [55] X. Bonnin, H. Piquet, N. Naudé, M. C. Bouzidi, and N. Gherardi, "Design of a current converter to maximize the power into homogeneous Dielectric Barrier Discharge ( DBD ) devices," *EPJAP*, pp. 1–8, 2013.
- [56] R. Díez, H. Piquet, M. Cousineau, and S. Bhosle, "Current-Mode Power Converter for Radiation Control in DBD Excimer Lamps," vol. 59, no. 4, pp. 1912–1919, 2012.
- [57] H. Piquet, S. Bhosle, R. Diez, and M. V. Erofeev, "Pulsed Current-Mode Supply of Dielectric Barrier Discharge Excilamps for the Control of the Radiated Ultraviolet Power," *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 38, no. 10, pp. 2531–2538, Oct. 2010.
- [58] D. Medina, "Alimentation de puissance d'une lampe exciplexe à décharge à barrière diélectrique, en vue du contrôle du rayonnement," Institut Nationale Polytechnique de Toulouse, 2008.
- [59] E. Tatarova, F. M. Dias, B. Gordiets, and C. M. Ferreira, "Molecular dissociation in N<sub>2</sub> -H<sub>2</sub> microwave discharges," *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 14, no. 1, pp. 19–31, Feb. 2005.