

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE Frères Mentouri Constantine
Faculté des Sciences de la Technologie
DEPARTEMENT D'ELECTRONIQUE

N° d'ordre :
Série :

THÈSE

Présentée pour obtenir le diplôme de Doctorat en Sciences
en **Électronique**

Par

BERKANE AMAL

THEME

*Modélisation de mécanismes se
produisant dans un plasma de dépôt*

Soutenue le :15/11/2015

Devant le jury :

Président: Mr A. BELLEL *Prof. Université Frères Mentouri Constantine*

Rapporteur: Mme S. REBIAI *Prof. Université Frères Mentouri Constantine*

Examineurs: Mme S. BOUHEDJA *Prof. Université Constantine3*

Melle D. MEZDOUR *M.C.A Université Jijel*

Melle Z. ZIARI *M.C.A Université Frères Mentouri Constantine*

REMERCIEMENTS

*Je remercie tout d'abord **DIEU** le tout puissant qui m'a éclairé le Bon chemin et m'a donné la force pour le suivre, ainsi que l'audace pour dépasser toutes les difficultés. Nous en sommes reconnaissants et continuons infiniment à le remercier et le glorifier.*

*Je tiens à exprimer toute ma reconnaissante à ma directrice de thèse, le Professeur **SAIDA REBIAI**, pour sa compétence, sa grande patience, sa constante disponibilité ainsi que pour la confiance qu'elle a placée en moi et la liberté qu'elle m'a accordée. Qu'elle trouve en ces quelques mots, l'expression de mes vifs remerciements pour m'avoir aidée et soutenue, avant, pendant et après ma longue phase de rédaction*

*J'exprime ma profonde gratitude à M^r **A. BELLEL** Professeur à l'Université Frères Mentouri Constantine , qui m'a fait l'honneur d'assurer la présidence du jury.*

*Je tiens à remercier également tous les membres du jury pour avoir pris soin d'examiner mon travail et de siéger à ma soutenance: Mme **S. BOUHEDJA** Professeur à l'université Constantine3, Melle **D.MEZDOUR** Maitre de conférences A à l'université de Jijel et Melle **Z. ZIARI**, Maitre de conférences A à l'Université Frères Mentouri Constantine*

J'exprime également mes remerciements à tous mes collègues, pour leurs encouragements et soutiens. Mes remerciements vont particulièrement à l'équipe

plasmas froids de mon laboratoire **H.BAHOUH, F. BOUANAKA, R. ABIDAT et
K. SIARI.**

Enfin je remercie tous ceux qui ont contribué à mon aide de près ou de loin

A la mémoire de mes parents, qui auraient été Comblés de joie ;

*A la lumière de ma vie ; A mon mari, et mes deux chers enfants
qui ont su comprendre mes difficultés dans ce parcours et qui ont attendu
impatiemment ce jour*

Je dédie cette thèse

SOMMAIRE

Introduction Générale	1
Chapitre I : Notions fondamentales sur les décharges électriques basses et hautes pressions et théorie de la micro-décharge à cathode creuse	
I.1 Introduction.....	5
I.2 Définition d'un plasma.....	5
I.3 Classification des plasmas.....	6
I.3.1 Les plasmas chauds.....	6
I.3.2 Les plasmas froids.....	6
I.4 Grandeurs caractéristiques du plasma.....	8
I.4.1 Degré d'ionisation.....	8
I.4.2 Longueur de Debye et quasi neutralité.....	8
I.4.3 Notion de gaine de charge d'espace.....	9
I.4.4 Fréquence plasma.....	9
I.5 Les plasmas de laboratoire : Plasmas froids.....	10
I.5.1 Les plasmas à basse pression.....	11
I.5.1.1 Les plasmas à basse pression en courant continu.....	12
I.5.1.1.1 La caractéristique tension– courant $V(I)$	13
I.5.1.1.2 Etude de la décharge luminescente normale.....	15
I.5.1.2 Les plasmas à basse pression en courant alternatif.....	16
I.5.1.2.1 Les décharges basses fréquences	17
I.5.1.2.2 Les décharges radiofréquences.....	17
I.5.1.2.3 Les décharges micro-ondes.....	17
I.5.1.2.4 Le couplage capacitif (CCP).....	17

I.5.1.2.5 Le couplage inductif (ICP).....	21
I.5.2 Les plasmas à haute pression.....	23
I.5.2.1 Loi de Paschen en régime continu.....	23
I.5.2.2 Loi de Paschen en radiofréquence.....	25
I.5.3 Les micro-décharges ou micro- plasmas.....	26
I.5.3.1 Définition des micro-décharges.....	26
I.5.3.2 Types de micro-décharges.....	27
I.5.3.2.1 Les micro-décharges à cathode creuse en régime continu.....	27
I.5.3.2.2 Les micro- plasmas en courant alternatif	30
I.5.3.3 Application des micro-décharges.....	34
I.6 Conclusion.....	36
I.7 Bibliographie du chapitre I	38

Chapitre II : Mécanismes physico-chimiques dans un réacteur de plasma froid et modèles numériques mis en jeu

II.1 Introduction.....	44
II.2 Collisions dans les plasmas.....	44
II.2.1 Collisions élastiques.....	45
II.2.1.1 Paramètres de collision.....	45
II.2.1.1.1 Section efficace de collision.....	45
II.2.1.1.2 Le libre parcours moyen.....	48
II.2.1.1.3 Le temps moyen de collision.....	48
II.2.1.1.4 La fréquence de collision.....	48
II.2.2 Collisions inélastiques.....	49
II.2.2.1 Le processus d'excitation et états métastables.....	49

II.2.2.2 L'ionisation direct d'un atome par impact d'électron.....	51
II.2.2.3 L'ionisation par étape par impact électronique ou Stepwise-ionization.....	54
II.2.2.4 L'ionisation Penning.....	54
II.2.2.5 L'attachement.....	55
II.2.2.6 Le détachement.....	57
II.2.2.7 Mécanisme de perte d'électrons.....	57
II.3 Modèles numériques.....	60
II.3.1 Equations de base décrivant l'évolution des particules dans un plasma	60
II.3.1.1 Equation de Boltzmann.....	61
II.3.1.2 La fonction de distribution de Maxwell-Boltzmann.....	62
II.3.2 Le modèle particulaire	65
II.3.3 Le modèle fluide	65
II.3.3.1 Equations de transport du plasma.....	66
II.4 Conclusion	69
II.5 Bibliographie du chapitre II.....	70

Chapitre III : Modèle de transport en régime stationnaire d'une micro-décharge

III.1 Introduction.....	74
III.2 Présentation du modèle Fluide	74
III.2.1 Modèle numérique	75
III.2.2 Les données de base.....	75
III.2.3 Conditions aux limites.....	77
III.2.4 Conditions initiales.....	78
III.2.5 Traitement numérique des équations du plasma.....	78
III.2.5.1 Discrétisation des équations de continuité.....	79

III.2.5.2	Discrétisation de l' équation de poisson.....	80
III.2.6	Résultats et Discussion.....	80
III.2.6.1	Effet de la distance inter-électrodes sur la variation de la densité électronique.....	83
III.2.6.2	Effet de la distance inter-électrodes sur l'évolution du potentiel plasma.....	85
III.2.6.3	Effet de distance inter-électrodes sur l'évolution du champ électrique.....	86
III.2.6.4	Effet de la pression du gaz sur l'évolution du potentiel électrique.....	88
III.2.6.5	Effet de la pression du gaz sur l'évolution du champ électrique.....	88
III.3	Conclusion.....	89
III.4	Bibliographie du chapitre III.....	90

Chapitre IV : Simulation d'une microdécharge à cathode creuse par le logiciel Comsol

IV.1	Introduction.....	92
IV.2	Présentation du modèle.....	92
IV.2.1	Description de la géométrie du microréacteur.....	92
IV.2.2	Le modèle chimique	95
IV.2.3	Le modèle physique	95
IV.2.4	Conditions aux limites.....	97
IV.2.5	Les conditions initiales.....	97
IV.3	Traitement numérique.....	98
IV.4	Résultats et Discussion.....	98
IV.4.1	Evolution de la densité électronique et du courant dans la micro cathode creuse au cours du temps de la simulation.....	99
IV.4.2	Etude de l'évolution axiale des électrons dans la microcathode creuse.....	103

IV.4.3 Etude de l'évolution des espèces excitées et chargées dans la microcathode creuse.....	105
IV.4.4 Etude de l'évolution des différents processus physico-chimiques dans la microcathode creuse.....	106
IV.4.4 .1 Processus d'ionisation directe et par étapes.....	106
IV.4.4 .2 Processus d'excitation et d'ionisation Penning.....	108
IV.4.4 .3 Quenching des métastables.....	108
IV.4.5 Effet du coefficient de l'émission secondaire sur l'évolution des électrons et leur température électronique dans la microcathode creuse.....	109
IV.4.6 Mécanisme de chauffage des électrons dans la microcathode creuse.....	111
IV.4.7 Étude numérique du potentiel électrique dans la micro cathode creuse.....	112
IV.4.8 Effet de la pression sur l'évolution axiale et radiale de la densité des électrons.....	113
IV.4.9 Effet de la pression sur l'évolution radiale de la température électronique.....	115
IV.4.10 Étude numérique des paramètres physiques dans la micro cathode creuse en prenant en considération le maillage de la zone diélectrique.....	116
IV.4.10.1 Etude de l'évolution de la densité électronique.....	117
IV.4.10.2 Etude de l'évolution du potentiel et du champ électrique.....	118
IV.4.10.3 Influence de la tension V_{rf} sur l'évolution du potentiel plasma.....	120
IV.4.10.4 Influence de la pression du gaz sur l'évolution du potentiel plasma.....	122
IV.4.10.5 Influence de la température du gaz sur l'évolution du potentiel, de la densité et de la température électroniques.....	122
VI.5 Conclusion.....	125
IV.6 Bibliographie du chapitre IV.....	127
Conclusion générale.....	131
Publications Internationales.....	134
Abstract.....	i
Résumé en arabe et en français.....	ii



Introduction générale

Le plasma est un gaz partiellement ou totalement ionisé, composé de particules chargées (électrons et ions) et des neutres. Ce gaz est reconnu comme un quatrième état de la matière. La majeure partie de l'univers est constituée de plasma. On le trouve dans les aurores boréales et le vent solaire. Près de notre Terre, on le rencontre dans la foudre, l'ionosphère et la magnétosphère. L'état plasma n'existe pas sur Terre. Il est créé dans des laboratoires, dans des réacteurs dont les dimensions sont de l'ordre de dizaines de centimètres, sous des conditions de pression et de température bien déterminées. Le plasma de laboratoire ou plasma de décharge peut être généré par plusieurs sources d'énergie allant des rayons cosmiques jusqu'aux sources micro-ondes.

Les plasmas peuvent être classifiés suivant la température (froids ou chauds), comme ils peuvent être classifiés suivant la pression. En effet les réacteurs plasmas à basse pression fonctionnent avec une gamme allant du mTorr jusqu'au Torr. Leur champ d'application est très vaste. Citons comme exemple l'éclairagisme, l'industrie de la micro-électronique (dépot, gravure), dans l'agronomie, la métallurgie ainsi que la médecine.

Les travaux de recherches concernant cette discipline ne cessent de se développer pour l'amélioration des équipements utilisant les procédés plasmas[1-3]. La découverte de nouvelles applications dans le biomédical, le traitement des gaz et la propulsion spatiale a guidé vers l'avènement de la miniaturisation des sources plasmas[4-7]. C'est le transfert des macro-plasmas vers les micro-plasmas[8].

Dans les conditions où le produit pression×distance reste inférieur à 500 Torr.cm, les décharges plasmas régies par la théorie de Townsend peuvent être générées à haute ou à pression atmosphérique dans des cavités de petites dimensions. On les appelle les micro-décharges. Dans ce cas, les propriétés de la décharge plasma à haute pression restent pratiquement les mêmes que dans le cas de basse pression où l'on obtient un plasma diffus et stable sans passer à la filamentation.

Malgré la diversité et la variation des applications dans ce nouveau domaine, certaines caractéristiques de la micro-décharge restent mal connues et peu expliquées. La cause réside dans la production des décharges électriques dans des cavités à l'échelle submillimétrique, d'où la difficulté de contrôle et de suivi.



Par conséquent, il est devenu indispensable de passer à la modélisation des décharges plasmas macro et plus précisément micro-décharges.

Pour traiter numériquement les décharges plasmas, il existe deux approches principales : l'approche fluide et l'approche particulaire « particle in cell ». Chacune d'elle possède ses avantages et ses inconvénients. Le modèle traité dans cette thèse est un modèle fluide. Dans ce modèle les grandeurs physiques telles que la densité, la vitesse et l'énergie des particules sont considérées comme des grandeurs moyennes. Ce modèle est basé sur les trois premiers moments de l'équation de Boltzmann permettant la résolution des équations de transport des espèces considérées, couplées à l'équation de Poisson et fournit la distribution spatiale des espèces chargées, des espèces excitées, du potentiel et du champ électrique ainsi que la température électronique et les taux de réaction des différents processus chimiques mis en jeu.

L'intérêt de cette procédure réside dans la compréhension et la prédiction des propriétés des phénomènes physico-chimiques complexes des gaz dans les réacteurs plasma ainsi que pour les applications industrielles utilisant les propriétés des plasmas réactifs.

Ce travail qui porte sur la modélisation de mécanismes se produisant dans un plasma de dépôt est donc centré sur deux aspects majeurs : le premier consiste à la description de la cinétique chimique dans la phase gazeuse du plasma et le deuxième repose sur l'élaboration d'un modèle multidimensionnel pour simuler les décharges à haute pression.

Notre thèse de doctorat se compose à cet effet en quatre parties :

Dans le premier chapitre nous allons donner des notions fondamentales sur les plasmas à basse et à haute pressions. De plus nous allons aborder une étude théorique sur les micro-décharges. On exposera plus particulièrement leurs propriétés électriques et les différentes géométries existantes.

Le deuxième chapitre traite pour sa part les différents processus chimiques pouvant exister dans la phase gazeuse d'un réacteur plasma et les différents modèles numériques décrivant les phénomènes physico-chimiques. Une étude détaillée sera ainsi faite sur le modèle fluide choisi dans cette thèse.



Dans le troisième chapitre, nous présenterons le modèle numérique unidimensionnel basé sur la méthode des volumes finis pour la simulation d'une décharge à plasma d'hélium en régime continue à haute pression. Nous donnerons d'abord une description des équations du plasma et de la méthode numérique utilisée pour la résolution du système d'équations mis-en jeu. Le modèle est appliqué à une cinétique réduite du gaz hélium contenant seulement le processus d'ionisation. Cette étude sera focalisée sur l'effet de la variation de la pression et de l'espace inter-électrode sur l'évolution du potentiel et du champ électrique. Ensuite nous exposerons les résultats obtenus en termes de distribution de la densité électronique, du potentiel et du champ électriques en fonction de la distance inter-électrodes et la pression du gaz.

Le quatrième chapitre enfin, sera consacré à la simulation par le logiciel « Comsol » d'une micro décharge à cathode creuse en régime radio fréquence ($f=13.56$ Mhz) et pour une pression de 100 Torr. Cette simulation est appliquée pour une étude numérique assez profonde d'une micro-décharge en 2D dans une cavité de l'ordre de quelques centaines de microns. Le modèle sera appliqué à une cinétique de l'argon contenant les principaux processus d'ionisation et d'excitation afin de comprendre la physique des micro-décharges et plus particulièrement à cathode creuse (MHCD). Une étude sur l'effet des paramètres de contrôle comme la pression et la température du gaz sur la variation de la densité électronique, la température des électrons et du potentiel, sera aussi tenue en considération.

La thèse en question s'achève par une conclusion générale.



Bibliographie de l'introduction générale

[1] Vassili Karanassios, « Microplasmas for chemical analysis: analytical tools or research toys? », *Spectrochimica Acta Part B* 59, 2004, 909–928, doi:10.1016/j.sab.2004.04.005 www.elsevier.com/locate/sab

[2] R. Foest, M. Schmidt et K. Becker, « Microplasmas, an emerging field of low-temperature plasma science and technology », *International Journal of Mass Spectrometry*, vol. 248, 2006, 87–102, doi:10.1016/j.ijms.2005.11.010, www.elsevier.com/locate/ijm.s

[3] Daibing Luo et Yixiang Duan, « Microplasmas for analytical applications of lab-on-a-chip », *Trends in Analytical Chemistry*, Vol. 39, 2012 Elsevier Ltd, doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.trac.2012.07.004>

[4] T. Ichiki, Y. Sugiyama, R. Taura, T. Koidesawa et Y. Horiike, « Plasma applications for biochip technology », *Thin Solid Films*, vol. 435, 2003, 62–68, doi:10.1016/S0040-090(03)00370-5, www.elsevier.com/locate/tsf

[5] XIA Guangqing, MAO Genwang et Nader Sadegh, « Experimental Investigation of Microhollow Cathode Discharge for the Application to Microplasma Thrusters », *Tsinghua Science and Technology*, Vol.14, N°.S2, December 2009, 49-53, ISSN 1007-0214/10/21

[6] E. J. Berjano, R. Romero-Méndez et W. Franco, « Radiofrequency based hyperthermia therapy: a centennial technique serving modern surgery », *Revista Mexicana de Ingeniería Biomédica*, Vol. 31, N°. 2, December 2010, p142-153

[7] R.S. Besser et P.J. Lindener, « Microplasma reforming of hydrocarbons for fuel cell power », *Journal of Power Sources*, vol.196, 2011, 9008-9012, doi: 10.1016/j.jpowsour.2010.11.135, Elsevier

[8] Peter Bruggeman, « Special issue: diagnostics of atmospheric pressure microplasmas », *J. Phys. D: Appl. Phys.* Vol. 46, 2013, 460301 (3pp), doi:10.1088/0022-3727/46/46/460301

Chapitre I

**Notions fondamentales sur les
décharges électriques basses et
hautes pressions**

I.1 Introduction

La physique des plasmas est née particulièrement de l'étude des décharges dans les gaz. Depuis 1920, cette discipline s'est considérablement développée en raison de son intérêt [1]. En effet, elle jouit d'un rôle important dans une grande variété de procédés industriels, y compris le traitement des matériaux, le contrôle de l'environnement, la fabrication des puces électroniques ainsi que dans la biomédecine, la production de la lumière (UV - VUV) et même la propulsion des fusées spatiales [2]. Dans ce chapitre, nous exposerons quelques notions fondamentales sur les plasmas. Nous nous focaliserons sur les caractéristiques électriques des décharges plasmas basses et hautes pressions. Une étude théorique non exhaustive sur les micro-décharges sera prise en considération dans laquelle nous mettrons l'accent sur les décharges à microcathodes creuses.

I.2 Définition d'un plasma

Un plasma est un gaz ionisé. Contrairement aux gaz, il se compose d'électrons, d'ions et éventuellement, de particules neutres (atomes et/ou molécules). Les plasmas sont souvent désignés comme étant le « 4^{ième} état » de la matière [1-3], et font suite, dans l'ordre croissant des températures, aux états solides, liquides et gazeux. Ce mélange d'électrons, d'ions et de neutres ne mérite l'appellation « plasma » que si ce dernier est globalement neutre, qui en termes de densités se traduit par l'égalité de la densité électronique n_e et de la densité ionique n_i . Les figures 1 et 2 montrent la différence entre l'état plasma et l'état gazeux.

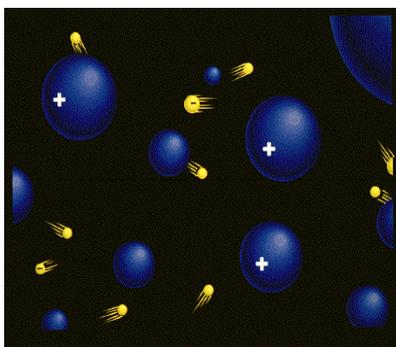


Figure I.1 : Electrons et Ions dans un plasma [2].

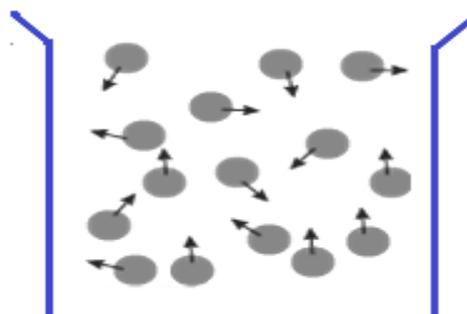


Figure I.2 : Molécules à l'état gazeux.

La majeure partie de l'univers est remplie d'une substance diluée. En effet il est constitué à 99% de plasma. A titre d'exemple, nous citons les étoiles ; le milieu interstellaire et dans l'environnement terrestre : l'ionosphère, la magnétosphère et la foudre [4]. Le plasma naturel est très rare sur terre. Par contre, on trouve souvent du plasma produit artificiellement dans des laboratoires dont les applications sont multiples et variées, comme les plasmas de dépôt, les réacteurs à fusion nucléaires, les torches, les propulseurs et les lampes à néons...

I.3 Classification des plasmas

D'après la définition du plasma, ce dernier peut être classifié en deux grandes familles selon la température des électrons T_e . Celle-ci peut être exprimée en degré Kelvin (K), en électronvolt (eV) ou en Volt (V). La règle de conversion s'écrit alors [5, 6] :

$$1 \text{ eV} = 1.16 \times 10^4 K$$

$$T_e(V) = \frac{k_B T_e(\text{kelvins})}{e}$$

k_B est la constante de Boltzmann, $k_B = 1.38 \times 10^{23} \text{ J/K}$

Une température ambiante de 297 K est équivalente à $T \approx 0.026 \text{ V}$.

I.3.1 Les plasmas chauds

Les plasmas chauds sont en équilibre thermodynamique. Les températures électroniques (T_e), ioniques (T_i) et des particules neutres du gaz (T_g) sont égales, exprimées par l'égalité : $T_e \approx T_i \approx T_g$.

La température des plasmas chauds est supérieure à plusieurs dizaines d'eV (de l'ordre du KeV (10^3 eV), voire du MeV (10^6 eV)). Des exemples de plasmas chauds sont le soleil, le vent solaire et les plasmas des Tokamaks pour la fusion thermonucléaire. Ces plasmas sont des gaz totalement, ou fortement ionisés où il n'existe pas de molécules neutres.

I.3.2 Les plasmas froids

Dans les plasmas froids, l'écart entre T_e , T_i et T_g peut-être important. La température des ions est proche de celle des neutres ($T_i \approx T_g \approx 300 \text{ K}$), alors que celle des électrons T_e est de l'ordre de $3 \cdot 10^4 \text{ K}$ [5]. On dit que le gaz est hors équilibre thermodynamique. Ce sont des

plasmas partiellement, ou faiblement ionisés. De tels plasmas sont rencontrés par exemple dans l'ionosphère et les décharges luminescentes. La densité des espèces chargées (électrons et ions) est donc très inférieure à celle des molécules neutres du gaz plasmagène.

Le tableau 1 montre quelques exemples de plasmas naturels et artificiels avec leurs paramètres (densité des électrons (n_e), densité des atomes (n_a), température des électrons (T_e) et température du gaz (T_g)).

Type de plasmas	n_e, cm^{-3}	n_a, cm^{-3}	T_e, K	T_g, K
Photosphère du soleil	10^{13}	10^{17}	6000	6000
Couche E de l'ionosphère	10^5	10^{13}	250	250
Laser $\text{H}_e\text{-N}_e$	3×10^{11}	2×10^{16}	3×10^4	400
Laser Ar	10^{13}	10^{14}	10^5	10^3

Tableau I.1 : Paramètres de quelques plasmas [6].

La figure 3 représente les conditions d'existence des plasmas et leur classement dans un diagramme d'équilibre en coordonnées : la température $T(K)$ et la densité des particules chargées (m^{-3}) [7].

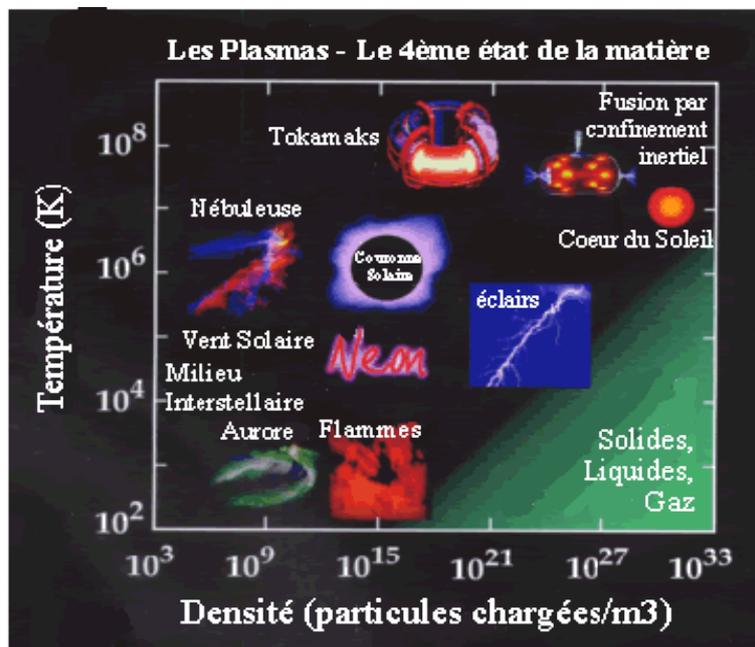


Figure I.3 : Diagramme de classification des plasmas et position de quelques plasmas typiques [7].

I.4 Grandeurs caractéristiques du plasma

I.4.1 Degré d'ionisation

Le degré d'ionisation est un paramètre qui permet de faire une première classification des plasmas [1]. Il est défini par le rapport :

$$\alpha = \frac{n}{n_0 + n} \quad I.1$$

Où n_0 est la densité des neutres et n celle des électrons (ou des ions positifs).

Lorsque ce rapport est inférieur à 10^{-4} ($\alpha \ll 1$), on dit que le gaz est faiblement ionisé. C'est le domaine des plasmas froids. Dans ce cas l'équation 1 peut aussi s'écrire :

$$\alpha = \frac{n}{n_0} \quad I.2$$

Au-dessus de cette limite ($\alpha \leq 1$), le gaz est considéré comme fortement ionisé [1]. C'est le domaine des plasmas chauds.

Quand le degré d'ionisation est égal à l'unité ($\alpha = 1$), la densité des molécules est nulle. On dit que le gaz est totalement ionisé [5].

I.4.2 Longueur de Debye et quasi neutralité

La longueur de Debye λ_{De} est une longueur critique d'interactions collectives (coulombiennes) à partir de laquelle, le potentiel des espèces en interaction est écranté. Cette valeur est donnée par [8-9]:

$$\lambda_{De} = \left(\frac{\epsilon_0 k_B T_e}{e^2 n_e} \right)^{1/2} \quad I.3$$

ϵ_0 est la constante diélectrique du vide, $\epsilon_0 = 8.854 \times 10^{-12}$ F/m.

e est la charge de l'électron.

Elle peut être aussi exprimée comme suit :

$$\lambda_{De}(cm) \approx 743 \left(\frac{T_e}{n_e} \right)^{1/2} \quad I.4$$

où T_e est en Volts(V) et n_e est en cm^{-3} .

Ainsi pour assurer la quasi-neutralité dans un plasma, deux conditions doivent être vérifiées :

1. Les dimensions du système (L) sont grandes par rapport à la longueur de Debye :

$$L \gg \lambda_{De} \quad I.5$$

2. La diminution du potentiel se produit si le nombre d'électrons dans la sphère de Debye est suffisant :

$$n_e \frac{4}{3} \pi \lambda_{De}^3 \gg 1 \quad I.6$$

Dans un plasma d'argon, pour $T_e = 4V$ et $n_e = 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, nous obtenons $\lambda_{De} = 0.14\text{mm}$, applicable pour les plasmas à basse pression.

I.4.3 Notion de gaine de charge d'espace

Si la dimension du système L est de l'ordre de la longueur de Debye λ_{De} , la condition de quasi-neutralité est violée. C'est ce qui se passe près des parois autour du plasma et à proximité des objets tels que des sondes insérées, ou tout objet électriquement isolé dans le plasma. Une gaine d'épaisseur environ $5 \lambda_{De}$ [3] se forme dans laquelle les ions sont plus nombreux que les électrons. Là, un fort champ électrique est créé. Il repousse les électrons et attire les ions. Le potentiel près des parois est négatif par rapport au plasma [10]. C'est le potentiel flottant. Par contre, le potentiel plasma a tendance à être positif par rapport aux murs. Les régions des gaines sont d'une importance capitale dans les plasmas industriels.

I.4.4 Fréquence plasma

Dans un plasma, le comportement collectif des particules chargées est déterminé par la fréquence plasma. Si un tas d'électrons est déplacé de sa position normale, ces derniers ont tendance à revenir vers l'état d'équilibre de neutralité sous l'action du champ électrique interne créé et qui va s'opposer à ce mouvement. Les électrons qui sont plus légers que les ions, oscillent en allée et retour (oscillation pendulaire) autour de leurs états d'équilibre avec une fréquence caractéristique. Ce mouvement est si rapide que les ions restent presque immobiles. La fréquence plasma électronique est alors définie par :

$$f_{pe} = \frac{\omega_{pe}}{2\pi} = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{e^2 n_{e0}}{\epsilon_0 m_e} \right)^{1/2} \approx 8980 \sqrt{n_e} (\text{Hz}) \quad I.7$$

Avec ω_{pe} (rad/s) : la pulsation plasma électronique et m_e (Kg) la masse des électrons.

Les ions à leur tour oscillent à une fréquence caractéristique si leur masse est considérée comme finie. Elle est appelée fréquence plasma ionique, déterminée par :

$$f_{pi} = \frac{\omega_{pi}}{2\pi} = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{e^2 n_{i0}}{\varepsilon_0 m_i} \right)^{1/2} \quad I.8$$

Avec ω_{pi} (rad/s) : la pulsation plasma ionique et n_i (cm^{-3}) la densité ionique. Pour $m_i = 40 \text{ uma}$, cas d'un plasma d'argon, f_{pi} est de l'ordre de $33\sqrt{n_i}$ (Hz).

La fréquence plasma est alors la somme des fréquences électroniques et ioniques :

$$f_p = \frac{\omega_p}{2\pi} = \frac{1}{2\pi} (\omega_{pe} + \omega_{pi}) \quad I.9$$

Remarques :

➤ Si $m_i \gg m_e$ alors $\omega_{pe} \gg \omega_{pi}$ et $f_p \cong \frac{\omega_{pe}}{2\pi}$ I.10

➤ La fréquence plasma dépend de la densité des particules chargées :

Pour un plasma d'argon de densité $n = n_e = n_i = 10^{10} \text{ cm}^{-3}$:

$$f_{pi} = 3 \text{ MHz}$$

$$f_{pe} = 0.9 \text{ GHz}$$

Nous remarquons bien que le temps de réponse au signal d'excitation des électrons est de l'ordre de la nanoseconde alors que celui des ions est de l'ordre de la microseconde.

I.5 Les plasmas de laboratoire : Plasmas froids

Les plasmas froids ou plasmas de décharge électrique sont créés artificiellement dans des laboratoires. Ils sont entretenus par une source d'énergie électrique, dont la gamme de fréquences varie de zéro (source continue) à plusieurs GHz (source microonde), en général dans une enceinte, entre deux électrodes cylindriques et parallèles séparées par une distance d appelée « distance inter électrodes », où un gaz est injecté sous une pression bien déterminée (Figure 4).

Le choix du gaz dépend de l'objectif de l'application. A titre d'exemple, l'argon et l'hélium sont utilisés comme gaz modèles pour les études académiques [11-12] et l'oxygène moléculaire pour la croissance des films d'oxyde de silicium [6].

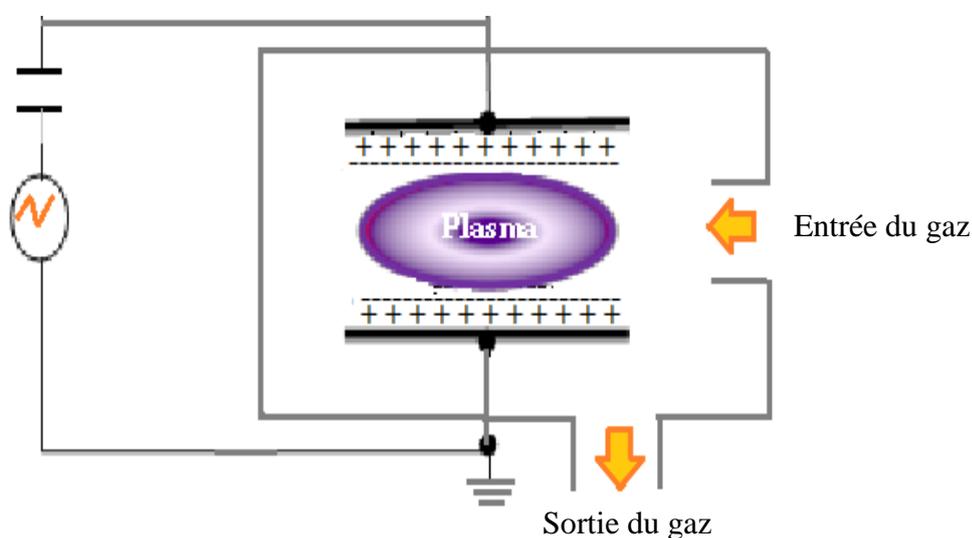


Figure I.4 : Dispositif de production d'une décharge plasma.

La pression du gaz utilisée s'étend sur une large gamme allant du milli-Torr (mTorr) jusqu'à la pression atmosphérique [13]. Différents régimes peuvent donc exister dans une décharge suivant une loi d'échelle basée sur le critère pression \times distance. Les plus connus sont la décharge luminescente et le régime d'arc.

La distinction entre ces deux décharges provient de la manière dont les électrons secondaires sont produits près de la cathode. Dans les décharges luminescentes, l'émission des électrons de la cathode est causée par les électrons secondaires découlant du bombardement ionique de la cathode ; tandis que dans une décharge d'arc, les électrons sont formés par des processus thermo-émission sur la cathode.

Pour des raisons purement technologiques, nous pouvons distinguer ou classer les plasmas suivant deux catégories en fonction de la pression de travail :

I.5.1 Les plasmas à basse pression

Les plasmas à basse pression sont utilisés beaucoup plus dans l'éclairage et le traitement des matériaux notamment dans la gravure, la pulvérisation et le dépôt des films minces [14 - 18]. De telles décharges se caractérisent par une température électronique T_e allant de 1V à

10V et une température des espèces lourdes T_i inférieure à T_e . La densité plasma n est de l'ordre de 10^8 à 10^{13} cm^{-3} . La pression du gaz p varie entre 10 mTorr à 10 Torr [8]. L'intérêt que suscitent ces plasmas est la production d'un grand nombre d'espèces réactives (ionisées et excitées) par impact d'électrons libres et énergétiques avec les molécules du gaz marquant un grand nombre de phénomènes réactionnels complexes tels que : l'ionisation, la dissociation, la recombinaison, la désexcitation, l'attachement... que nous détaillerons dans le deuxième chapitre. Ces plasmas sont généralement créés par une tension continue ou radiofréquence.

I.5.1.1 Les plasmas à basse pression en courant continu

Dans une enceinte à deux électrodes remplie d'un gaz sous une pression de l'ordre de 1 Torr est appliquée une tension continue V_0 de quelques centaines de Volts [5], comme le montre le dispositif expérimental de la figure 5 suivante.

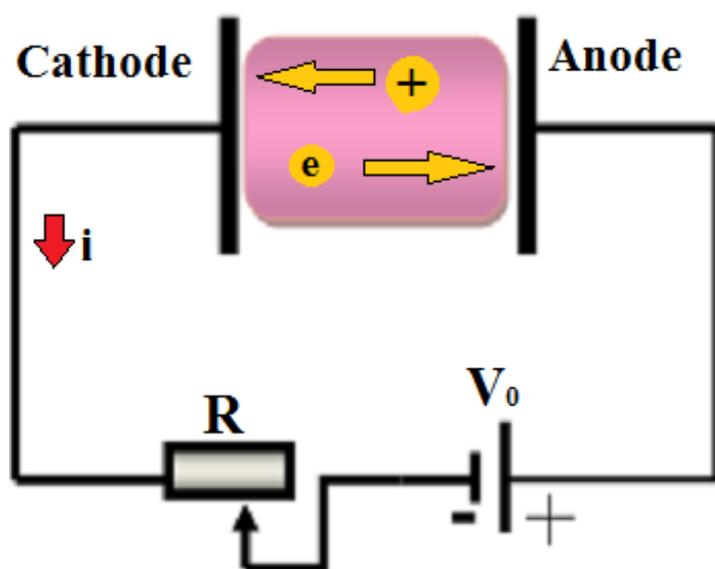


Figure I.5 : Dispositif expérimental.

L'amorçage de la décharge est atteint pour une valeur de tension appliquée supérieure à une certaine tension dite tension de claquage dépendant de la nature du gaz introduit dans l'enceinte, de la distance qui sépare les deux électrodes ainsi que de la géométrie des deux électrodes. Les ions positifs produits par l'impact d'électrons avec les molécules du gaz se dirigent vers la cathode et les électrons vers l'anode d'où établissement d'un courant continu dans le circuit.

I.5.1.1.1 La caractéristique tension – courant $V(I)$

La figure 6 montre la caractéristique tension – courant d’une décharge continue basse pression, à partir de laquelle apparaissent plusieurs régimes de fonctionnement cités dans le tableau 2 ci-dessous :

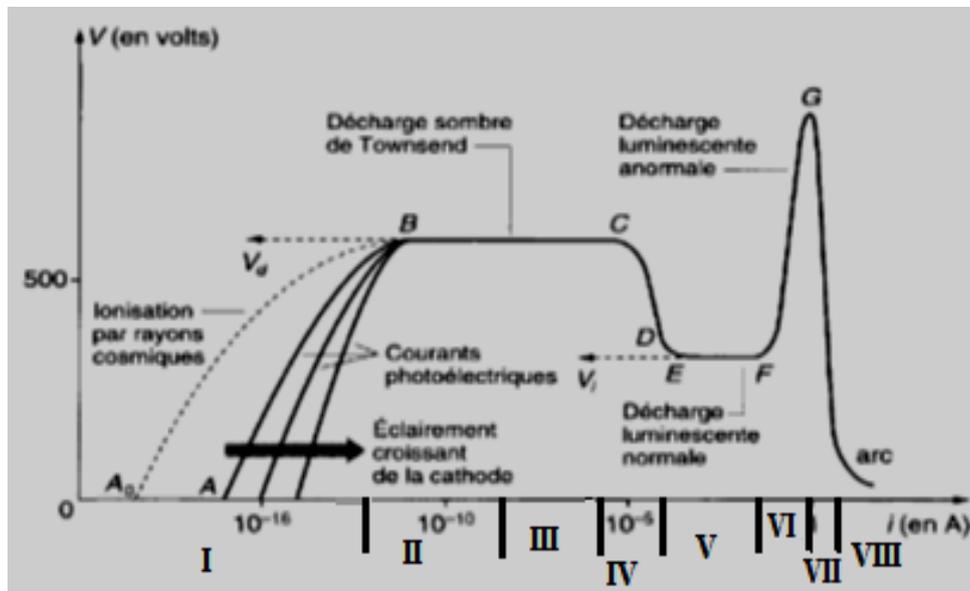


Figure I.6: Tracé de la caractéristique tension – courant [5].

Décharge sombre	Région I	Décharge non autonome (DNA) sans multiplication électronique (ME)
	Région II	DNA avec ME
	Région III	Décharge de Townsend
Décharge luminescente	Région IV	Décharge subnormale
	Région V	Décharge normale
	Région VI	Décharge anormale
	Région VII	Transition
	Région VIII	Décharge d’arc

Tableau I.2 : Différents régimes de fonctionnement dans une décharge basse pression

V_d est le potentiel disruptif ou la tension de claquage représenté sur la figure 6.

V_i est le potentiel d’entretien.

I.5.1.1.1.1 La décharge non autonome

Elle est représentée par la région I où le courant est très faible et la décharge ne peut se produire que si l'on fournit continuellement une source d'excitation extérieure (rayons cosmiques dans l'obscurité), autrement la décharge s'éteint.

I.5.1.1.1.2 La décharge non autonome avec multiplication d'électrons

Dans la région II, de faibles variations de la tension correspondent à de grandes variations de courant. Lors de ce régime la décharge est amorcée et on n'a pas besoin d'une source extérieure pour la maintenir.

I.5.1.1.1.3 Le régime sombre de Townsend

Le courant est également faible (de l'ordre du microampère) dans la région III. En effet tant que ce courant n'est pas assez grand, Les densités électroniques restent encore faibles et la luminosité demeure similairement faible d'où sa désignation de région sombre. Dans cette région, le courant peut s'écrire sous la forme suivante [5] :

$$i = i_0 \left(\frac{\exp \alpha d}{1 - \gamma(\exp \alpha d - 1)} \right) \quad I.11$$

i_0 représente le courant du aux sources extérieures, le facteur α décrit un effet de multiplication des électrons dans le gaz par les collisions ionisantes électron- molécule. On appelle cet effet : le régime α . Le facteur γ décrit divers effets secondaires de production de nouveaux électrons, par exemple l'émission secondaire des électrons par bombardement de la cathode par des ions produits dans le gaz. C'est le régime γ .

Les coefficients α et γ sont aussi appelés les coefficients de Townsend. Le potentiel V_d est une fonction du produit $p \times d$ (loi de Paschen, dont nous parlerons dans ce qui suit), où p est la pression du gaz et d la distance inter-électrodes.

Comme exemple : si la cathode est en cuivre et pour un gaz de H_e (Hélium) : $(p \times d)_m = 4$ Torr.cm, le potentiel disruptif passe par un minimum $V_m = 220V$ [5].

I.5.1.1.1.4 La décharge luminescente

Ce régime indiqué par les régions IV, V, VI se caractérise par des régions lumineuses et d'autres sombres. Ceci est dû aux fortes variations du champ électrique qui résulte de la présence importante de charges d'espaces. La tension présente un palier dans la zone EF sur

la caractéristique. En effet, celle dite normale se distingue par une chute de potentiel dans la région cathodique où se produit l'entretien de la décharge. La décharge lumineuse anormale apparaît juste après la précédente (VI) où on observe une augmentation de la tension.

I.5.1.1.1.5 La décharge d'arc

Si on continue à augmenter encore le courant, il apparaît une zone de transition où la tension décroît et on atteint le régime d'arc caractérisé par des effets thermiques importants : le gaz est très chauffé ainsi que les électrodes. La cathode peut émettre des électrons par effet thermo-ionique ; la tension devient très basse et le courant n'est limité que par la résistance de charge.

I.5.1.1.2 Etude de la décharge lumineuse normale

La décharge lumineuse normale est un domaine très intéressant pour la technologie des plasmas notamment dans l'éclairage (tubes fluorescents, tubes à néon).

On peut distinguer d'après la figure 7, trois régions principales : la gaine cathodique, la colonne positive et la gaine anodique. Chaque zone se caractérise par ses propres propriétés.

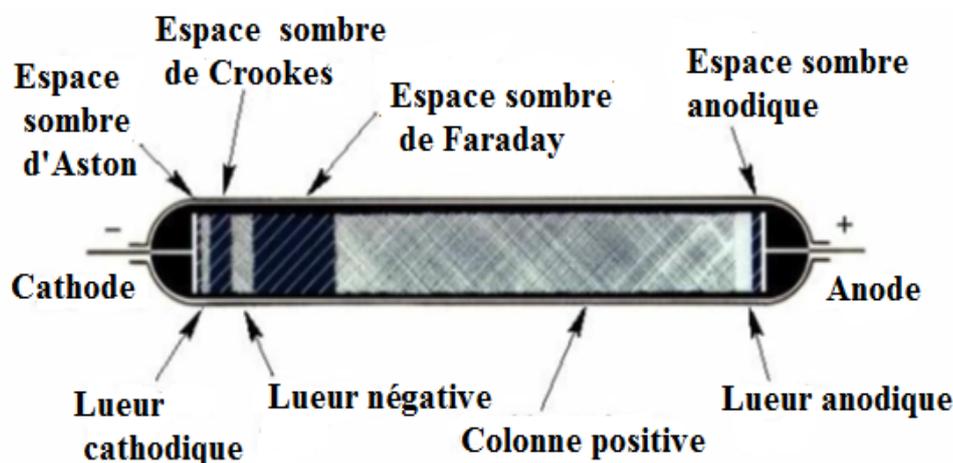


Figure I.7 : Différentes zones existantes dans une décharge lumineuse [5].

Le schéma suivant (figure 8) présente les mécanismes dominants dans une décharge lumineuse normale. La chute de potentiel et l'entretien de la décharge se produisent dans

la gaine cathodique. En général, la décharge luminescente présente les caractéristiques suivantes :

1. Une émission secondaire par bombardement ionique à la cathode.
2. La zone de lueur négative est entretenue par des électrons rapides accélérés dans la gaine. Le champ électrique est faible mais le rayonnement est intense.

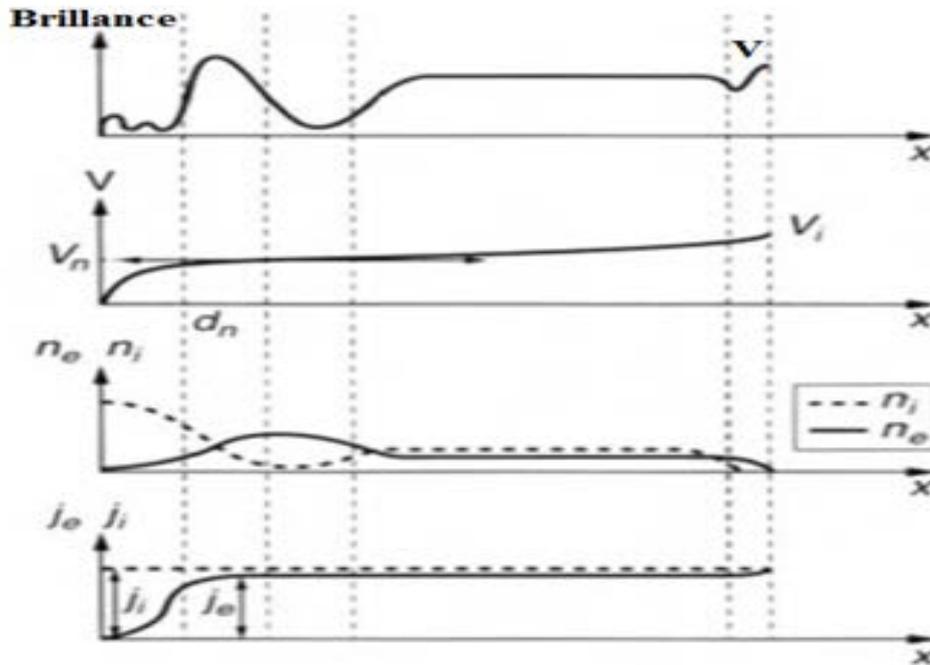


Figure I.8 : Différents mécanismes dominants dans une décharge luminescente [5].

3. Une zone de colonne positive dans laquelle le champ électrique est ambipolaire : les pertes électroniques par attachement aux parois sont récupérées par le processus d'ionisation.
4. Un champ électrique variable dans la gaine cathodique.

I.5.1.2 Les plasmas à basse pression en courant alternatif

Les décharges DC sont peu adaptées au traitement de surface, cependant l'électrode peut se couvrir d'une couche de diélectrique ce qui provoque le désamorçage de la décharge. Tandis que les décharges radiofréquences sont mieux adaptées à basse pression. Ils ont la possibilité de fonctionner à basse pression et à basse tension comme ils sont capables de fonctionner avec une couche isolante couvrant les électrodes.

Il existe trois domaines de fréquences :

1.5.1.2.1 Les décharges basses fréquences (BF) dont la gamme de fréquences f va de quelques 100 Hz à quelques 100 KHz . Les ions ont une fréquence d'oscillation propre f_{pi} de l'ordre de 1 Mhz donc $f < f_{pi} < f_{pe}$. Dans ce cas les électrons et les ions parviennent à suivre le mouvement du champ électrique instantané.

1.5.1.2.2 Les décharges radiofréquences (RF), dont la gamme de fréquences varie de quelques dizaines de MHz à quelques centaines de MHz . Les ions ne parviennent pas à suivre les variations instantanées du champ électrique dans les gaine alors que les électrons y arrivent ($f_{pi} < f < f_{pe}$) et peuvent être accélérés pendant leur expansion avec une énergie suffisante pour ioniser les molécules du gaz.

1.5.1.2.3 Les décharges micro-ondes, de quelques centaines de MHz à quelques GHz ($f_{pi} < f_{pe} < f$), les électrons et les ions ne sont sensibles qu'au champ moyen.

Selon les différentes applications des décharges radiofréquences, on peut distinguer deux modes de couplage de la puissance RF au réacteur plasma :

1.5.1.2.4 Le couplage capacitif (CCP)

Dans ce mode de couplage, la puissance RF est appliquée dans la chambre plasma au moyen d'une électrode reliée au générateur de tension RF (13.56 MHz), l'autre électrode est reliée à la masse. L'alimentation RF et l'électrode sont séparées par une capacité de blocage comme c'est illustré sur la figure 9:

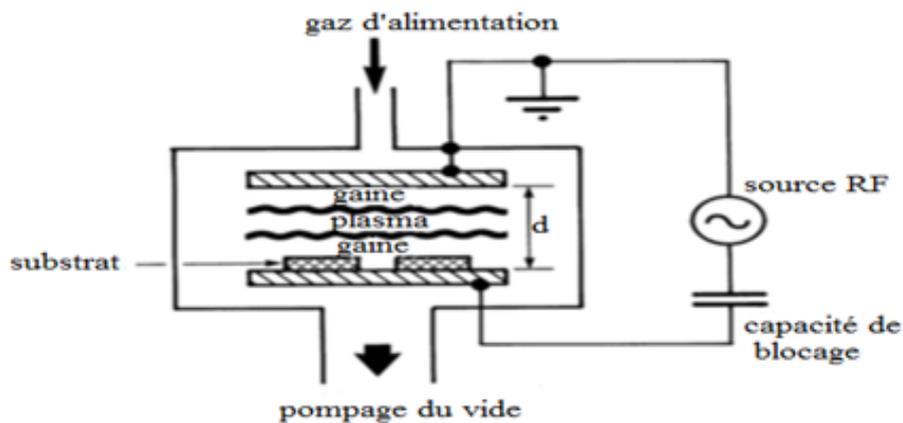


Figure I.9 Dispositif expérimental d'une source RF à couplage capacitif avec des électrodes planes et parallèles [8].

Les plasmas RF à couplage capacitif peuvent fonctionner à différents régimes, à basse ou à haute pression, avec de faible ou de forte puissance. Comme les électrons sont plus mobiles que les ions, les pertes électroniques aux parois sont plus élevées que les pertes ioniques. Par conséquent il y'a création d'une charge d'espace positive qu'on appelle gaine en face de chaque électrode où règne un fort champ électrique qui repousse les électrons vers le cœur du plasma et accélère les ions vers les parois. La propriété de bombardement ionique aux parois est un investissement important pour beaucoup de procédés plasmas industriels.

A basse pression, les paramètres typiques d'entrée utilisés en radiofréquence sont comme suit : un potentiel RF : $V_{rf} = 100 - 1000V$, une distance inter-électrode : $d = 2-10 \text{ cm}$, une pression : $p=10-100 \text{ mTorr}$, une densité de puissance : $P=0.1-1 \text{ W}$. La densité des particules chargées varient entre $10^9 - 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ et la température des électrons peut être de l'ordre de $3V$ [8].

I.5.1.2.4.1 Mécanismes d'amorçage et chauffage des électrons dans une décharge radiofréquence

L'émission secondaire aux électrodes n'est plus nécessaire à l'amorçage de la décharge comme dans le cas du continu car il existe d'autres mécanismes d'amorçage et d'entretien de la décharge. Citons comme exemple :

I.5.1.2.4.1.a L'effet surf « wave -riding »

Dans ce cas, les chutes de potentiel dans les gaines et leurs épaisseurs devant les électrodes varient avec la fréquence d'excitation comme c'est illustré sur la figure 10. Les électrons venant du plasma et qui arrivent au bord de la gaine avec leurs vitesses thermiques

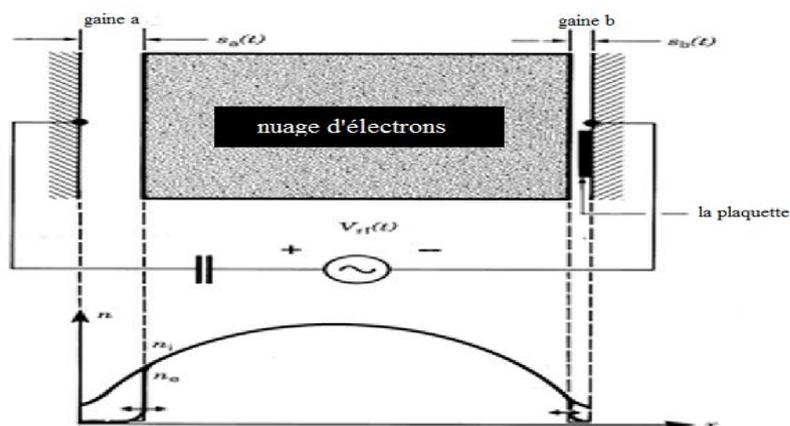


Figure I.10 : oscillation des gaines dans un dispositif à couplage capacitif [8]

voient ce bord de gaine se déplacer comme une vague. Ils peuvent être transportés par cette vague vers le plasma en prenant de l'énergie cinétique prise à la vague et deviennent des agents d'ionisation très efficaces.

1.5.1.2.4.1.b Le chauffage stochastique

A basse pression par exemple 10 mTorr, la fréquence de collision des électrons ν est faible devant la pulsation du champ ω , il n'y a pas absorption de puissance. On parle alors d'un régime non collisionnel. Ce mécanisme appelé chauffage stochastique est dû à l'interaction entre les électrons et la gaine en expansion, comparable à celui d'une balle de tennis frappée au mur. Les électrons repartent vers le plasma avec leur vitesse initiale v_0 plus deux fois la vitesse de dilatation de la gaine ($2v_g$).

1.5.1.2.4.1.c Le chauffage ohmique

L'oscillation des gaines est couplée avec le mouvement des électrons. Le mécanisme de chauffage des électrons est dû au champ électrique alternatif dans le cœur du plasma dit chauffage ohmique rendant les électrons des agents d'ionisation efficaces résultant des collisions qui transforment l'énergie gagnée par le champ en énergie thermique.

Un des inconvénients du couplage capacitif est que l'entretien de la décharge RF par le chauffage ohmique (collisionnel) ne se produit pas si la pression de travail est dans la gamme 10-100 mTorr (pas assez de collisions). Les électrons du plasma gagnent leur énergie à travers un mécanisme non collisionnel (stochastique) [19].

A haute tension et à basse pression, ce sont les électrons secondaires ou le régime γ qui contribue au maintien de la décharge radiofréquence similaire à l'émission secondaire en continu et la densité des électrons augmentent lors de la transition du régime α vers le régime γ [20-22].

1.5.1.2.4.2 La tension d'auto polarisation

En général, les électrodes d'une décharge RF sont asymétriques. Considérons le schéma de La figure 11. Si la tension RF est appliquée à la petite électrode ou cathode C, une tension DC d'auto polarisation s'ajoute à la tension RF. La tension RF sur cette électrode s'écrit alors :

$$V(t) = -V_{DC} + V_{rf}\sin\omega t \quad I.12$$

V_{DC} (self DC biasing ou DC offset) est la tension d'auto polarisation due à l'accumulation des charges sur le condensateur de blocage et s'écrit ainsi :

$$V_{DC} = V_A - V_C$$

V_C est le potentiel moyen de l'électrode connecté au générateur. V_A est le potentiel moyen de l'électrode à la masse

Dans ce cas la tension moyenne de gaine est plus grande sur la petite électrode suivant cette relation :

$$\frac{V_1}{V_2} = \left(\frac{A_2}{A_1}\right)^x \quad I.13$$

$$1.5 < x < 4$$

A_1 et A_2 représentent respectivement les aires de la petite et de grande électrode comme on les voit sur la figure 1.1.

V_1 et V_2 sont les tensions moyennes dans les deux gaines.

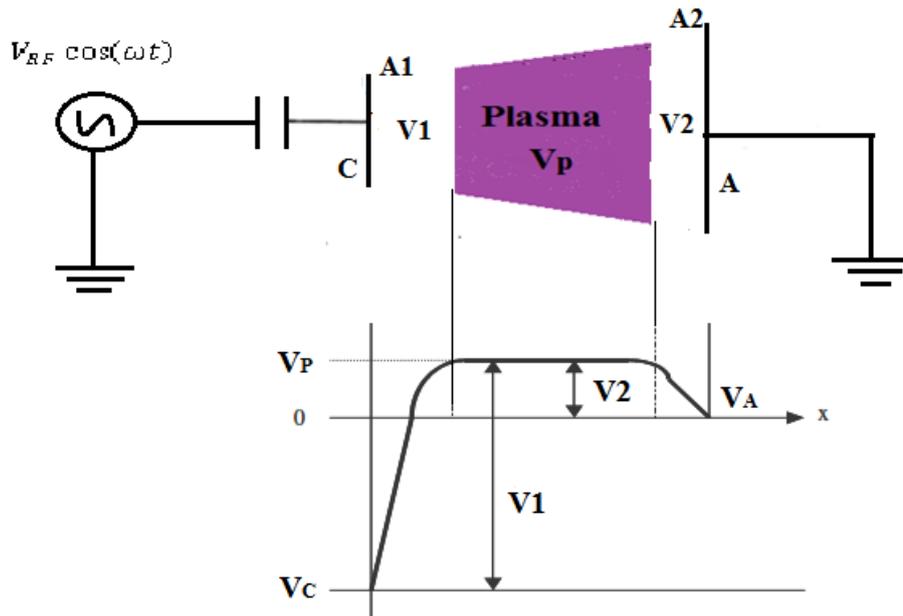


Figure I.11 : Electrodes asymétriques dans une décharge RF à couplage capacitif montrant la représentation schématisée de la distribution moyennée dans le temps du potentiel entre les électrodes (cathode C et anode A)

Cette plus grande chute de potentiel moyennée dans le temps augmente la vitesse des ions dirigés vers l'électrode C. Cet effet est très utile dans des applications du plasma comme la pulvérisation et la gravure.

Les décharges capacitives basses pressions deviennent limitées dans le cas où on a besoin d'augmenter la tension, ce qui entraîne l'augmentation des potentiels de gaines et donc de l'énergie des ions frappant les surfaces. Ceci représente un effet non désirable pour les procédés plasmas comme la gravure.

1.5.1.2.5 Le couplage inductif

Les réacteurs (ICP) représentent une solution pour le traitement par plasma car ils permettent d'avoir une haute densité plasma sans avoir besoin d'électrodes. L'énergie d'excitation est transmise au plasma par le biais d'une inductance comme on le voit sur la figure 12. Ce couplage inductif peut être configuré par une géométrie planaire (figure 12(a)) ou cylindrique (figure 12 (b)) :

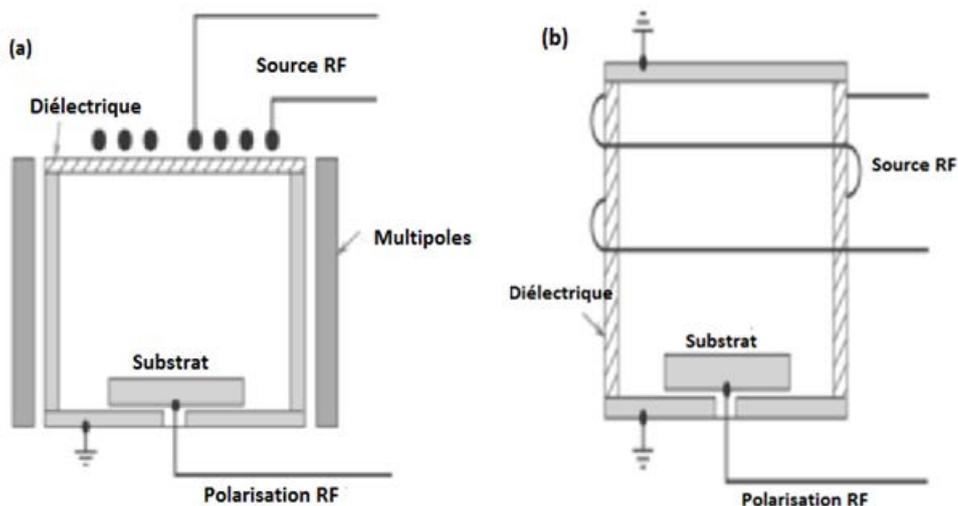


Figure I.12 : Schéma de principe d'une source RF à couplage inductif : a- géométrie planaire; b- géométrie cylindrique [8]

1.5.1.2.5.1 Principe de fonctionnement des décharges RF inductives

En considérant la géométrie plane (a) de la figure 12, un courant radiofréquence circule dans des bobines placées à l'extérieur du réacteur. Ce courant extérieur induit un courant dans

le plasma. Le champ magnétique axial crée par la bobine produit un champ électrique azimutal conformément à la loi de Faraday:

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \quad I.14$$

Où \vec{E} est le champ électrique

\vec{H} est le champ magnétique

μ_0 est la perméabilité du vide, $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{H/m}$

Et un courant azimutal dans le plasma :

$$\tilde{J}_\theta = \sigma \tilde{E} \quad I.15$$

$\sigma (\Omega^{-1} \cdot \text{m}^{-1})$ est la conductivité plasma déterminé par :

$$\sigma = \epsilon_0 \omega_p^2 \frac{\nu_m - i\omega}{\nu_m^2 + \omega^2} \quad I.16$$

ν_m est la fréquence de collision électron-neutre.

La puissance est transférée par le champ électrique vers les électrons de plasma ou ils sont chauffés principalement dans une couche de profondeur égale à une épaisseur de peau près de la surface de plasma, donnée par :

$$\delta_c = \frac{1}{\omega \mu_0 \sigma} \quad eq 1.17$$

Les électrons du plasma interagissant avec le champ électrique inductif en oscillation, seront accélérés et chauffés comme dans le cas du chauffage stochastique dans les gaines des décharges capacitives. Ces décharges sont caractérisées par :

- 1- Un mécanisme de chauffage des électrons entretenu par le champ électromagnétique induit.
- 2- L'énergie des ions peut être réglée séparément en appliquant une tension de polarisation (DC ou RF) sur le substrat à traiter.
- 3- Une tension très faible dans les gaines.

I.5.2 Les plasmas à haute pression

Les plasmas froids à haute pression ont connus un fort engouement ces dernières années, avec l'apparition de nombreux champs d'applications notamment dans la production d'excimères ainsi que la production d'espèces réactives pour les applications biologiques ou le traitement des matériaux [23]. Cet intérêt vient du fait que les plasmas à haute pression sont le siège de processus radiatifs et collisionnels entraînant un milieu hautement réactif constitué de particules chargées, d'espèces excitées, de radicaux et de photons.

En plus de leur forte réactivité, les plasmas à haute pression ou à pression atmosphérique à basse température peuvent fonctionner sous une faible tension pour leur maintien, avec des économies réalisées en termes d'équipement comme les systèmes de pompage lourds à mettre en œuvre.

En revanche l'un des facteurs limitant ces applications était toujours la pression : ces plasmas ont tendance à la filamentation et à la transition à l'arc [24] et donc à l'instabilité de la décharge.

Les arcs électriques ne sont pas concevables pour le traitement des matériaux du fait de la trop grande température du gaz. Il existe alors la loi de Paschen qui à partir de laquelle on peut déterminer la stabilité ou l'instabilité de la décharge.

I.5.2.1 Loi de Paschen en courant continu

Traditionnellement, les décharges de plasma RF fonctionnent à basse pression entre 1 mTorr à quelques Torr. Des exemples de décharges de plasmas à basse pression sont les décharges capacitatives (CCP) [25], les plasma à couplage inductif (ICP) [26-27] ou les sources à résonance cyclotron électronique (RCE) [28]. Les dimensions des réacteurs mis-en-jeu sont de l'ordre de quelques centimètres. La décharge dans ce cas est très stable.

Si on augmente la pression de travail, le plasma devient instable. L'instabilité de la décharge est due essentiellement à la tension de claquage qui est fonction du produit ($p \times d$) où p est la pression du gaz et d est la distance inter-électrode.

I.5.2.1.1 Tension de claquage et condition de stabilité de la décharge continue

La tension de claquage est la tension nécessaire pour initier un plasma. La figure 13 représente la courbe de Paschen entre deux électrodes planes et parallèles pour différents gaz.

Elle détermine la tension de claquage en fonction du produit ($p \times d$). Nous remarquons que la tension de claquage présente un minimum pour une certaine valeur du produit (pd). Si on augmente la pression pour une valeur fixe de d , la tension de claquage augmente.

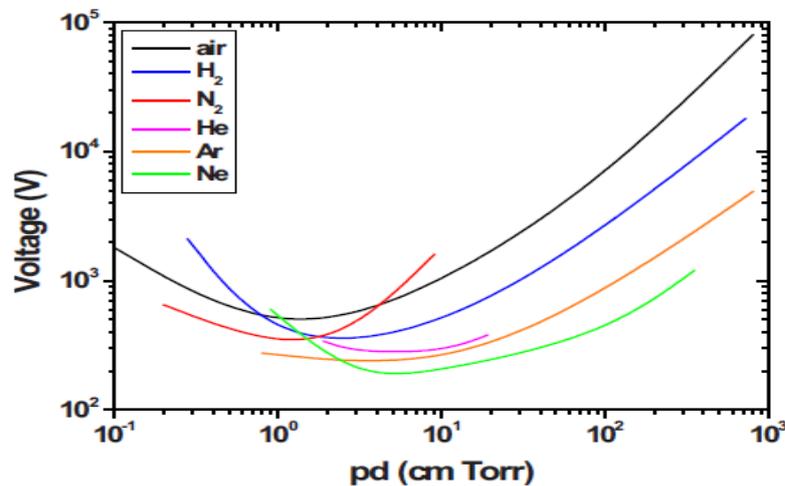


Figure I.13 : Tension de claquage (courbe de Paschen) en fonction du produit pression \times distance pour différents gaz [29]

A pression atmosphérique et pour une distance inter-électrode allant de 1-10 cm comme dans le cas à basse pression, la tension de claquage pour initier une décharge serait de l'ordre de 1 KV. Cette haute tension permet une augmentation du courant causant l'instabilité de la décharge dans la gaine cathodique, la région où se forme l'arc électrique.

Pour que la tension de claquage soit faible, il faut donc réduire la distance d quand la pression augmente. Par exemple si la pression de travail est de 1 atm (760 Torr), d doit être inférieure à 1 mm pour atteindre une valeur minimale de la courbe de Paschen.

La loi de Paschen ($p \times d$), montre alors la possibilité d'opération à pression atmosphérique à condition que la dimension du système soit de l'ordre de quelques centaines de micromètres.

La figure 14 représente la stabilité de la décharge plasma en faisant intervenir les deux paramètres de cette loi d'échelle : la pression en abscisse et la distance de claquage en ordonnée. Nous remarquons qu'il existe trois classes de plasmas selon la loi de Paschen :

- Les macro-plasmas dont la distance d est de l'ordre du centimètre.
- Les micro-plasmas dont la distance d est de l'ordre du micromètre

- Les nano- plasmas dont la distance d est de l'ordre du nanomètre

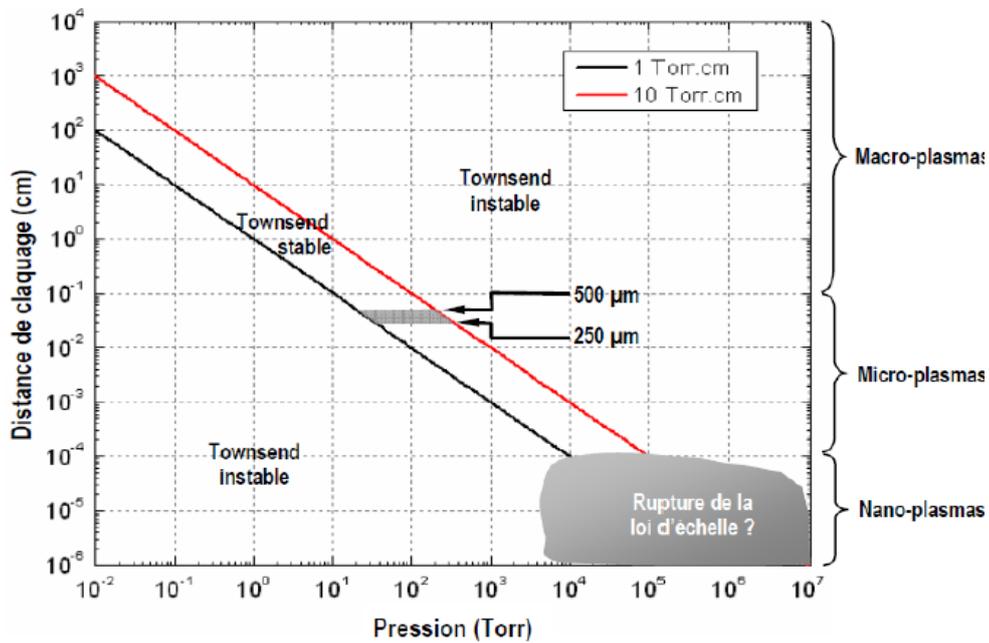


Figure I.14 : Critère Pression \times Distance montrant la stabilité de la décharge continue [30]

La figure 14 montre que la stabilité de la décharge dépend du produit $p \times d$ et qui doit être compris entre l'espace délimité entre les courbes à 1 Torr.cm et 10 Torr.cm, comme on peut localiser une zone de stabilité marquée en gris dont les dimensions caractéristiques sont représentées par les deux droites horizontales à 250 μm et 500 μm .

Donc en courant continu, de petites dimensions sont envisageables avec une grande pression pour des appareils typiques fonctionnant avec un produit $p \times d$ variant de 1 à 10 Torr.cm [31].

I.5.2.2 Loi de Paschen en radiofréquence

En radiofréquence, des recherches intensives ont été établies concernant l'influence de l'émission secondaire sur la répartition du gaz. Citons comme exemple Smith et ses collègues [32] qui ont supposé que dans la décharge continue, la tension de claquage est sollicitée par la diffusion des ions vers la cathode, par contre dans les décharges hautes fréquences, elle est contrôlée par la diffusion des électrons. La forme de la caractéristique dans les deux régimes est très similaire. Ils ont également confirmé que le minimum de la tension de claquage dans les décharges RF peut se produire avec un produit $p \times d$ égale à 0.3

mTorr.cm et une tension de 70V pour le cas des pressions allant de 1 à 500 mTorr et pour des distances entre les électrodes variant de 2 à 20 cm.

D'autre part, Zhang et ses collaborateurs [33] ont démontré qu'à la pression atmosphérique, la relation entre la tension de claquage et la distance est loin de la loi Paschen classique en DC : La densité des électrons dépend de la tension RF qui est la tension de claquage dans ce cas. La tension RF maximale pour éviter le passage à l'arc électrique doit être égale à 500V pour un espace de décharge de 500 μ m, alors qu'elle est d'environ 200V pour une distance de 100 μ m.

Pour pouvoir créer des plasmas stables à haute pression, il est nécessaire d'utiliser des dimensions à l'échelle submillimétrique. La génération de plasma dans cette échelle submillimétrique constitue la famille des micros- plasmas.

I.5.3 Les micro-décharges ou micro- plasmas

Le nouveau monde des micro-plasmas s'est apparu dans les années quatre-vingt-dix bien que sa découverte était vraiment pendant les années cinquante. Cette apparition s'est fondée avec l'apparition de nouvelles applications dans la technologie des plasmas notamment dans la chimie analytique, le domaine de la médecine et le traitement de surface [16,23-34].

I.5.3.1 Définition des micro-décharges

Par définition, les micro-décharges ou les micro-plasmas sont des décharges hors – équilibre thermodynamiques, créées avec des dimensions inférieures au millimètre. Ils fonctionnent à pression proche de l'atmosphérique. Ils sont stables comme les macro-plasmas mais se distinguent d'eux par l'émission d'excimères sous une faible tension (200-300V) [35-38]. Les micro-plasmas peuvent être générées par des sources de tension continue, alternatif ou micro-onde. Elles sont caractérisées par :

- ✓ Une densité électronique et ionique très élevée avec la présence d'espèces excitées et des radicaux.
- ✓ Un rapport surface sur volume plus élevé (1000 fois plus grand pour les micro-décharges que pour les macro-décharges).

I.5.3.2 Types de micro-décharges

Les micro-décharges sont générées dans différents microréacteurs. Ces derniers sont classés selon les caractéristiques de leurs géométries, liées à la diversité des applications en fonction de la fréquence d'excitation. Cette dernière varie du continu au domaine micro-onde. La structure qui a captivé notre attention est la microcathode creuse (MHCD) :

I.5.3.2.1 Les micro-décharges à cathode creuse en régime continu

I.5.3.2.1.1 Les micro- décharges à cathodes creuses (MHCD)

Les microcathodes creuses sont composées d'une structure sandwich, formée d'un métal –diélectrique- métal dont une cavité cylindrique est percée dans cette surface. Cette structure peut être ouverte ou fermée CBL (cathode boundary layer) comme le montre le schéma suivant (figure 15) [39-40] :

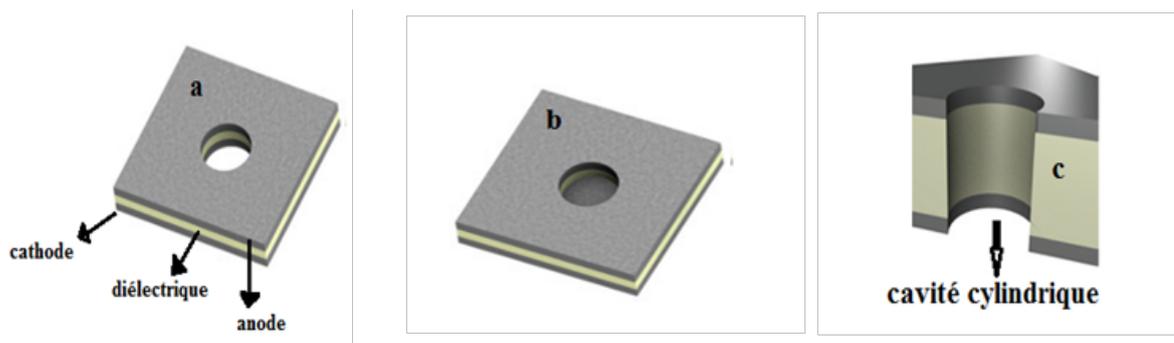


Figure I.15 : Les microcathodes creuses : a- ouverte, b- pleine (CBL), c- la cavité cylindrique

Les dimensions concernant l'épaisseur des électrodes et du diélectrique ainsi que le diamètre de la cavité sont de l'ordre du micromètre.

I.5.3.2.1.2 Les micro- décharges à trois électrodes (MCSD : microcathode sustained discharge)

Cette géométrie est semblable à la précédente. Elle utilise la MHCD comme source d'électrons. En plaçant une deuxième anode face à la première, cela permet d'avoir un plasma hors équilibre non entretenu comme on le voit sur la figure16. Cette configuration a connu un grand intérêt pour certains chercheurs [41-43].

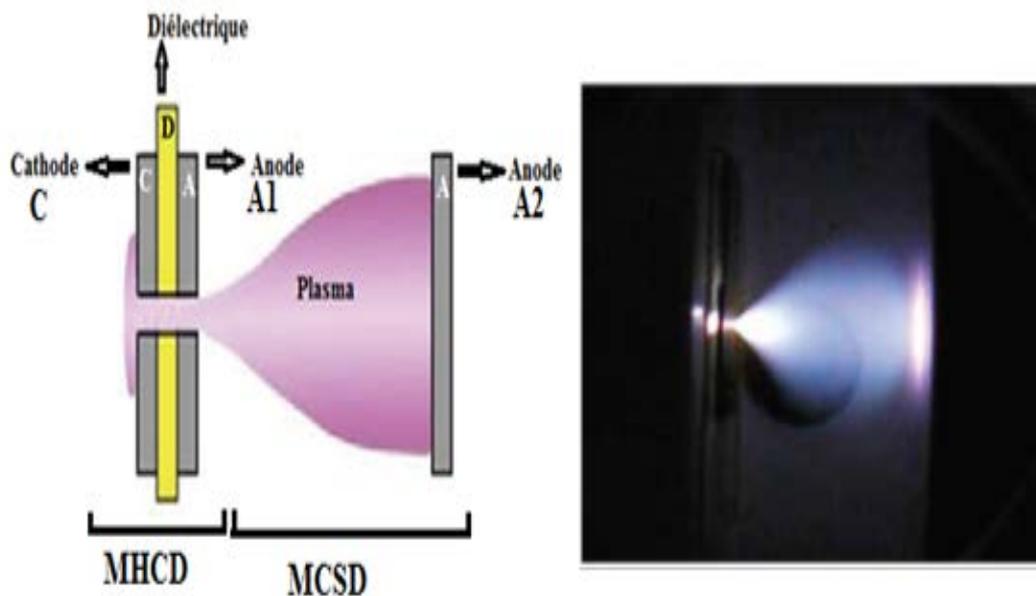


Figure I.16 : Structure MCSD [42]

Son avantage réside dans la faible tension appliquée et le grand volume qu'elle occupe par rapport à la MHCD.

I.5.3.2.1.3 La structure matrice

La figure 17 présente un micro-dispositif possédant plusieurs microréacteurs (10×10 micro-décharges) dont l'allumage est réalisé simultanément. Cette configuration de diamètre $50 \mu\text{m}$ s'appelle une matrice qui peut fonctionner à une pression de 1000 Torr

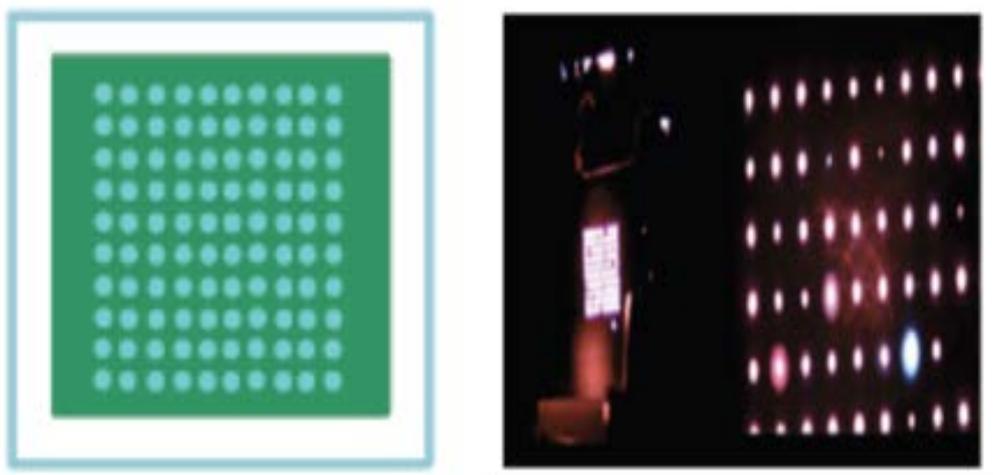


Figure I.17 : Structure matrice [44]

pour un courant total de 15 mA. Toutes ces configurations fonctionnent en régime continu, comme ils peuvent fonctionner en alternatif.

I.5.3.2.1.4 Caractéristique $V(I)$ de la MHCD et différents régimes de fonctionnement d'une microcathode creuse

La structure sandwich métal-diélectrique –métal a été proposée par Schoenbach [39, 45-46] (Figure 18). Les dispositifs cités ci-dessus ont été largement utilisés pour la génération du rayonnement ultraviolet UV et l'ultraviolet sous vide (VUV) en utilisant des gaz rares ou des mélanges de gaz noble, étant donné qu'ils possèdent une densité de puissance très élevée permettant de former une source lumineuse de rayonnement VUV [45,46-48]. En plus, une très haute densité de courant peut être générée dans la décharge lorsque les électrons sont tenus dans la lueur négative de la décharge à l'intérieur de la cathode creuse.

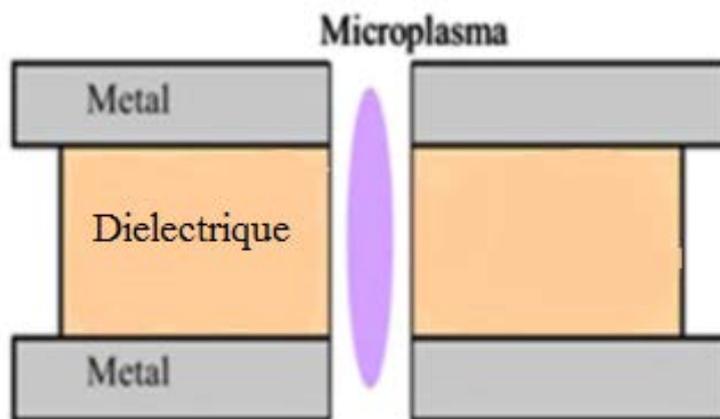


Figure I.18 : Structure MHCD

Cependant en raison de la température du gaz élevée et de la haute densité du courant due à l'émission secondaire des électrons par bombardement ionique ; la contamination des électrodes se produit fréquemment et peut limiter leur utilité.

La figure 19 représente la caractéristique courant-tension d'une micro-décharge d'Argon à cathode creuse à une pression de 56 Torr, issue d'un travail de recherche de Schoenbach et ses collaborateurs [45]. Cette caractéristique explique le régime de fonctionnement d'une MHCD en continu. On peut distinguer trois domaines de fonctionnement :

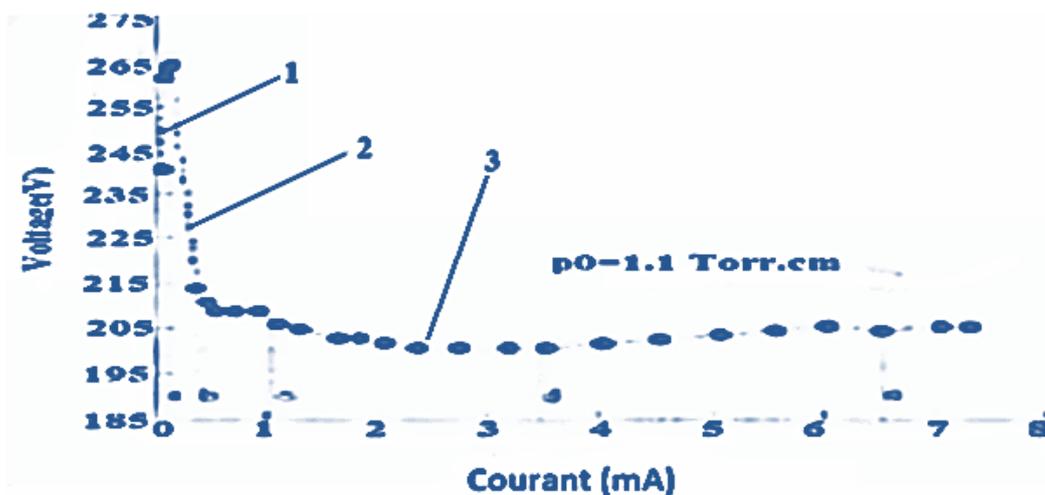


Figure I.19 : Caractéristique V(I) d'une MHCD d'Argon pour un diamètre de trou de 200 μm ; une pression de 56 Torr [46]

➤ Le premier domaine (1) : se caractérise par une légère augmentation du courant électrique et une forte augmentation de la tension de l'ordre de 265V. Cette partie de la caractéristique correspond à une pré-décharge ou à un régime anormal. Les électrons suivent le mouvement imposé par le champ électrique axial.

➤ La pente négative de la caractéristique V(I) dans le deuxième domaine (2) est considérée par une élévation du courant. Dans ce cas les électrons sont confinés dans le creux de la MHCD et oscillent de part et d'autre des deux cathodes opposés. Cette oscillation est appelée « oscillation pendulaire » ou « effet classique de la cathode creuse ». Il est dû à la composante radiale du champ électrique qui accélère les électrons vers une anode virtuelle située entre les deux cathodes opposées. Pendant le trajet parcouru par les électrons, ces derniers rentrent en collision avec les particules neutres et subissent de nombreuses collisions ionisantes.

➤ Dans la troisième région (3), la caractéristique présente un palier de tension constante malgré l'élévation du courant. Dans ce domaine, l'étalement du micro plasma atteint la surface cathodique extérieure. C'est le régime luminescent normal.

La deuxième région définie par une résistance négative est comprise donc entre deux régimes : le régime anormal et le régime normal.

1.5.3.2.2 Les micro-plasmas en courant alternatif

La miniaturisation des sources plasmas s'est développée ces dernières années avec la découverte de diverses applications notamment dans le domaine de la chimie analytique. On

distingue des micro-plasmas générés avec une source alternative : radiofréquence, inductive ou micro-onde [49]. L'intérêt que suscitent ces derniers est leur capacité de générer des plasmas à haute densité avec de faibles puissances (1-50 W) et de faibles tensions de maintien. Les plus utilisés sont :

I.5.3.2.2.1 Les micro-plasmas inductifs (mICP)

Ils sont largement utilisés comme des détecteurs spectrochimiques, et aussi dans le traitement de la matière [50]. Comme le plasma dans les sources mICP (microfabricated ICP) est séparé des bobines par un diélectrique, le problème de contamination et de pulvérisation ne se pose pas. La figure 20 représente un microréacteur à couplage inductif [23,34]. Les puces ICP sont des sources de haute densité d'électrons.

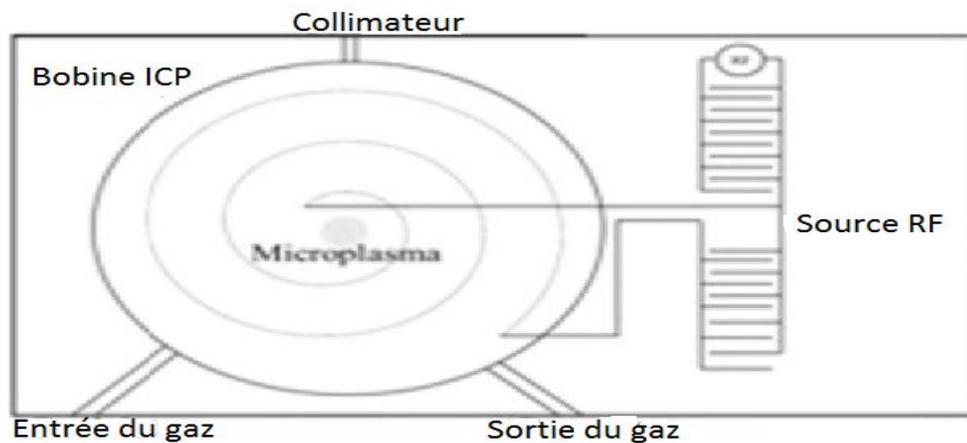


Figure I.20 : Structure mICP [34]

I.5.3.2.2.2 Les micro-plasmas capacitifs (CCP)

La miniaturisation des sources capacitives a été également étudiée pendant ces dernières années [23,34]. Pour le transfert de puissance à cette source, un réseau d'adaptation miniaturisé est conçu sur la puce. Des électrodes sont placées de chaque côté. Une simple structure libre de toute contamination des électrodes est représentée sur la figure 21 :

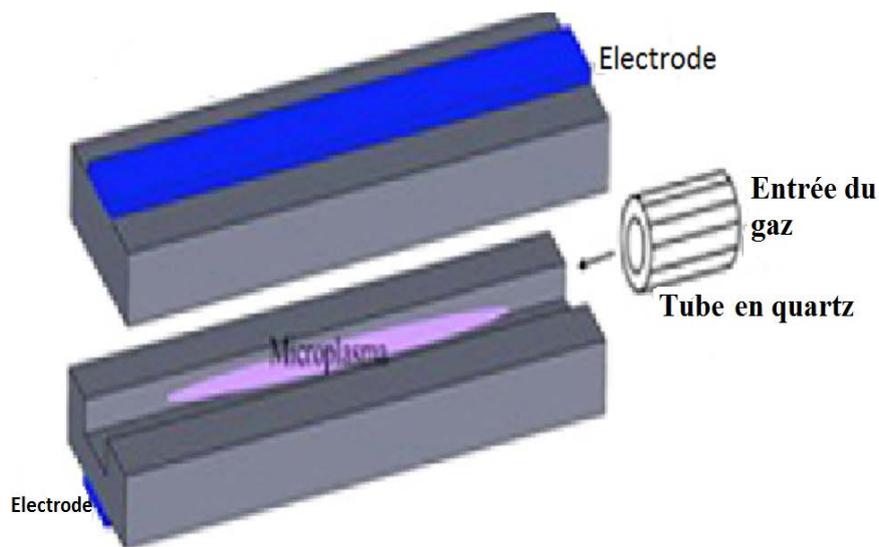


Figure I.21 : Structure CCP [34]

Ces sources peuvent être soutenues par une puissance inférieure à 30 W fournie à une paire d'électrodes séparée chacune par un tube de décharge à quartz de $200\mu\text{m}$ à $500\mu\text{m}$ de profondeur et de 10 mm de long [34], où un micro plasma est généré en formant efficacement une décharge capacitive transversale. La fréquence d'excitation peut être de 13.56MHz, 27.12 MHz ou 40.68 MHz, en utilisant un gaz rare. Le principe est toujours le même, une électrode est alimentée à la fréquence RF et l'autre reliée à la masse. Les puces CCP ont une durée de vie plus longue que les puces en DC parce que les électrodes sont recouvertes par des couches isolantes.

I.5.3.2.2.3 les micro-plasmas micro-onde (MIP : microstrip)

Un exemple de miniaturisation des sources micro-ondes est représenté sur la figure 22. Il consiste en une plaquette en saphir de 1.5 mm de long servant comme une couche dans laquelle se trouve un canal de 0.9 mm de diamètre et de 30 mm de long où circule un gaz. Cette microélectrode (micro ruban) est exploitée à la pression atmosphérique avec une puissance d'entrée microonde (2.45 GHz) variant de 5-30 W.

Le micro ruban ou micro fente peut fonctionner avec plusieurs gaz vecteurs, allant du gaz noble à des mélanges de gaz moléculaires. Ils sont utilisés pour la transmission de la puissance. Seulement à l'heure actuelle, la consommation d'énergie élevée et le taux d'écoulement de gaz peuvent restreindre l'utilisation des puces MIP au laboratoire plutôt que dans le domaine [34].

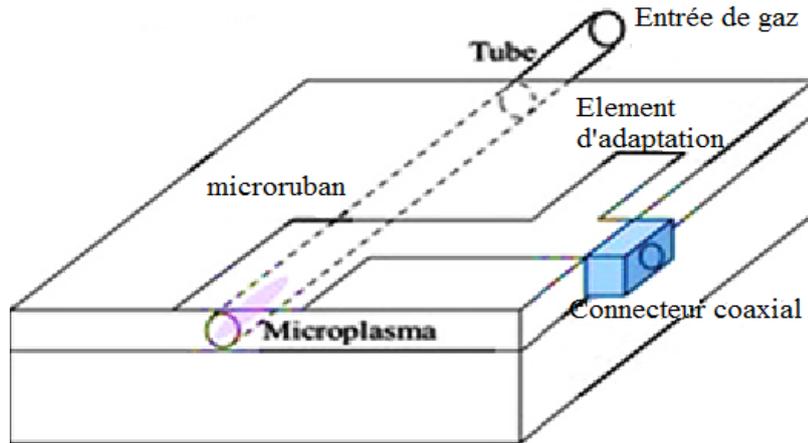


Figure I.22 : Structure MIP [34]

I.5.3.2.2.4 Les micro-plasmas à barrière diélectrique (DBD)

La configuration DBD est une décharge contrôlée par barrière diélectrique. Elle est souvent utilisée dans les décharges pulsées. La figure 23 montre une structure DBD. Comme son nom l'indique, La source DBD est caractérisée par la présence d'au moins une couche diélectrique entre les électrodes métalliques. Il existe aussi une entrée et une sortie du Gaz.

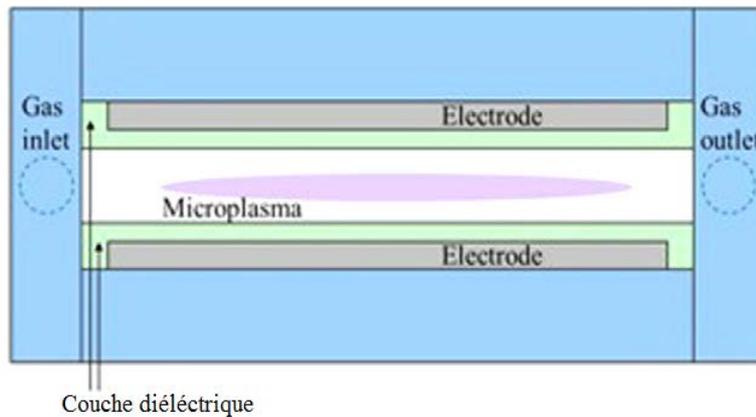


Figure I.23 : Structure DBD [34]

Les sources DBD sont excitées par une tension alternative dont la gamme de fréquences va de quelques Hz à quelques KHz et fonctionnent assez souvent à pression atmosphérique. La consommation en courant est très faible (puissance de 0.5 à 1W), d'où la possibilité de fonctionnement sur batterie. En outre la température du gaz est relativement faible ce qui permet le fonctionnement pendant une longue durée (plus de 500h de fonctionnement continu) [34].

Les DBD ont beaucoup d'applications, citons par exemple la chimie dans les gaz, comme la production d'ozone et la dépollution, dans le traitement de surface (nettoyage des métaux, dépôt de couches minces...). Elles sont également exploitées comme sources de lumière en particulier UV et VUV qui utilisent les excimères ainsi dans le contrôle de l'écoulement.

I.5.3.3 Application des micro-décharges

Il existe de très nombreuses applications dans le monde des micro- plasmas [49], ce qui rend impossible de fournir un compte rendu détaillé de toutes ces applications dans cette partie du chapitre. Pour cela, nous avons sélectionné celles qui nous paraissent les plus pertinentes pour les présenter ci-dessous :

I.5.3.3.1 Application des micro- plasmas dans le traitement de matériaux comme la gravure et le dépôt de couche mince [51-52].

La figure 24 montre un exemple de motifs effectué par gravure sans masque en utilisant un jet de micro-plasma. La figure de gauche représente un motif à graver par CAD (computer aided designer) et celle de droite le motif gravé.

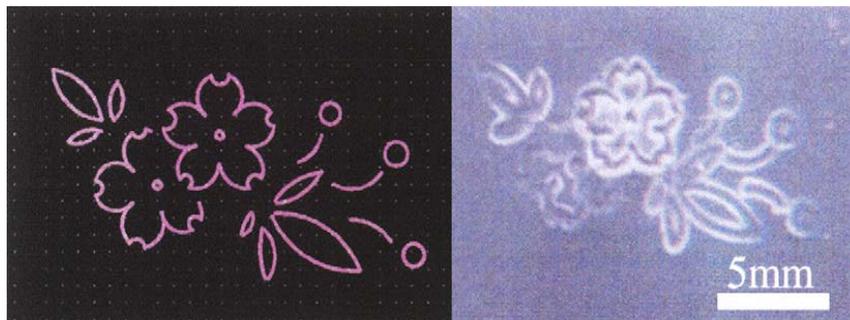


Figure I.24 : Image montrant la gravure par micro plasma [51].

I.5.3.3.2 Application des micro- plasmas dans la production du rayonnement (UV) et l'ultraviolet (VUV) sous-vide pour l'éclairage avancé

Le rayonnement ultraviolet (UV), appelé aussi lumière noire car il est invisible à l'œil nu, est un rayonnement électromagnétique avec une longueur d'onde plus courte que celle de la lumière visible, mais plus longue que celle des rayons X [53]. Le violet étant la couleur de fréquence la plus élevée de la lumière visible et l'UV signifie la couleur au-delà du violet, découvert en 1801 par le physicien allemand « Johann wilhelm Ritter», ne peut être observé que par fluorescence ou à l'aide des détecteurs spécialisés.

L'existence d'un grand nombre d'électrons rapides et énergétiques dans les micros plasma à haute pression favorise les collisions à trois corps qui permettent la production de la lumière excimère appelée aussi laser excimère, couramment utilisée en chirurgie oculaire et en photolithographie dans l'industrie des semi-conducteurs.

Plusieurs études ont été basées sur la production d'excimère par des gaz rares typiquement l'argon, l'hydrogène et l'xénon parfois mélangés avec des halogènes comme avec du fluor (A_rF) ou du chlore pour la formation par exemple de l'excimère A_{r2}^* [53]. La lumière UV des excimères est bien absorbée par les tissus et les composés organiques donc permet d'enlever de fines couches de matière en surface de façon très contrôlée par rupture des liaisons moléculaires sans altération excessive du reste du matériau. Leur utilisation dans les domaines de la micromécanique et de l'industrie des semi-conducteurs ainsi qu'en chirurgie oculaire est très importante.

1.5.3.3 Application des micro-plasmas dans la biologie et la médecine

➤ Dans la biologie

Dans les études sur le jet de plasma, un accent a été mis sur la levure. Les infections à levures sont connues pour être manifestement difficile à traiter par des méthodes d'actualités. La souche « Candida Kéfir » par exemple, a été cultivée sur la gélose dextrose de « Sabouraud agar ». Deux zones de gélose inoculée ont été exposées au plasma SF_6 expulsé avec un taux de débit d'air de 8 l/min, à une distance de 1 cm de la décharge par gravure chimique. Sous ces conditions, le jet a une longueur de 1.3 cm et une température de $45^\circ C$ (318K). Une image de traitement par microjet est montrée sur la figure 24 ci-dessous. En conséquence, la durée totale de traitement était de 90 s. L'image (a) représente la plume à micro jet utilisée. La figure (b) démontre que le champignon est complètement enlevé dans la zone exposée au jet [54].



Figure I.23 : Image montrant le traitement biologique par un micro jet plasma [54].

D'autres applications sont consacrées notamment au domaine médical comme la stérilisation, le traitement des tumeurs, la cicatrisation et le traitement dentaire [16] comme le montre la figure 24 [55].

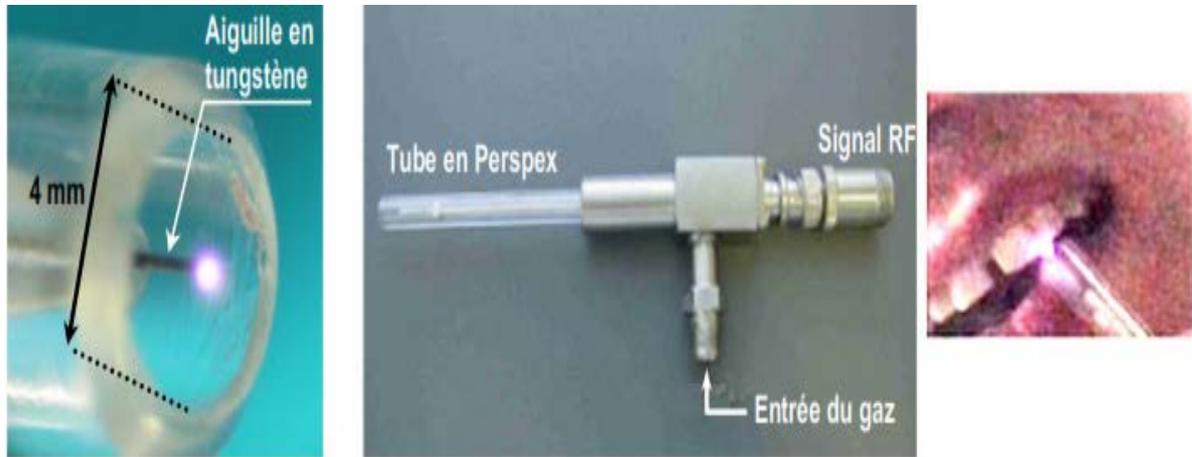


Figure I.24 : Système de traitement dentaire avec une source microplasma RF [55].

1.5.3.3.4 Application des micro-plasmas dans les micro-TAS (micro total analysis systems, microsystemes d'analyse totale)

Ce terme regroupe les systèmes miniaturisés, possédant généralement une dimension micrométrique, qui intègrent la séquence complète d'analyse d'un échantillon brut jusqu'à la lecture du résultat [53].

1.5.3.3.5 Autres applications

D'autres applications ont été rentables dans les domaines suivants :

- Application environnementales comme la Destruction de NO_x et l'analyse des gaz
- Dans l'aérodynamique
- Dans la propulsion spatiale
- Dans la technologie MEMS (micro- systèmes -électromécaniques).

I.6 Conclusion

Dans ce chapitre, une étude théorique sur les plasmas et leurs propriétés a été traitée fidèlement. Nous avons parlé des principaux paramètres plasma naturels et des plasmas de décharge. En outre nous avons mis l'accent sur les caractéristiques des plasmas froids selon la

pression de travail et les différents réacteurs mis en œuvre. Une étude sur les micro-décharges et leurs diverses applications a été donnée sans ambiguïté. Cette étude nous permettra de mettre en évidence le modèle numérique adéquat pour décrire et expliquer numériquement les phénomènes physico-chimiques dans les micro-décharges.

I.7 Bibliographie du chapitre I

- [1] Bernard Held, « Physique des Plasmas froids », Masson, Paris, 1994, ISBN : 2-225-84580-8, ISSN : 0229-2434, p10 - p11
- [2] Fridman, A.Alexander; Kennedy et A. Lawrence, «Plasma Physics and Engineering», Taylor & Francis Routledge, book isbn 13: 9780203334874, 2004, New York, NY 10001-2299, 2006, p5
- [3] Francis.F. Chen, Jane et P. Chang, « Lecture Notes on Principles of Plasma Processing », ISBN: 0-306-47497-2, ©2002, Kluxer academic, Plenum Publishers, New York, p1-p2
- [4] A.Bogaerts et al, « Gas discharge plasmas and their applications”, Spectrochimica Acta Part B 57, 2002, 609–658
- [5] Jean-Loup Delcroix et Abraham Bers, « Physique des plasmas », Inter Edition, 1994, CNRS Edition 20/22, Paris, ISBN 2-7296-0484-7, ISBN 2-271-05126-6, p9
- [6] Boris M. Smirnov, « Physics of Ionized Gaz», A Wiley –Interscience b Publication, John Wiley & Sons; Inc, New York, 2001, ISBN 0-471-17594-3, p 2
- [7] A.Berkane, « Contribution à la compréhension de processus se produisant lors de l’élaboration de films dans un plasma froid », mémoire de Magister (2006), Université Mentouri de Constantine, Bu.umc.edu.dz/theses/electronique/BER4519.pdf
- [8] Micheal A. Liebermann et Allan J. Lichtenberg, «Principles of plasma discharges and materials processing», A John Wiley &sons, INC Publication, 2nd Edition ISBN 0-471-72001-1, USA, 2005, p 45
- [9] Michael A. Liebermann, « A short course on the Principles of Plasma discharges and materials processing», first edition, John Wiley and Sons, Inc, 2001, p24.

- [10] Ph. Belenguer and J. P. Boeuf, « Self-consistent low pressure RF discharge modelling: comparisons with experiments in clean and dusty plasmas », *Pure & Appl. Chem.*, Vol. 66, No. 6, 1994, pp 1363-1372
- [11] Benyoucef, Yousfi, and Belmadani, «Self-consistent particle modeling of radio frequency discharge in Ar/O₂mixtures: Effects of crossed electric and magnetic fields and partial pressure», *J. Appl. Phys.* Vol. 109, 083304.9, 2011.
- [12] Yuanand Raja, «Computational Study of Capacitively Coupled HPG Discharges in Helium», *IEEE Transactions on plasma science*, VOL. 31, NO. 4, AUGUST 2003, 495-503
- [13] Annemie Bogaerts, « The glow discharge: an exciting plasma! †Invited Lecture », *J. Anal. At. Spectrom.*, Vol. 14, 1999, 1375–1384
- [14] J.P. Boeuf, «Characteristics of a dusty no thermal plasma from a particle – in- cell Monte Carlo Simulation», *Physical Review A*. Vol 46, N°12; 1994; 7910-7922
- [15] D. P. Lymberopoulos and D. J. Economou, « Fluid simulations of glow discharge & Effect of metastable atoms in argon», *J. Appl. Phys.*, Vol. 73, No. 8, 15 April 1993, 3668-3679
- [16] T. Ichiki, Y. Sugiyama, R. Taura, T. Koidesawa, Y. Horiike « Plasma applications for biochip technology», *Thin Solid Films* 435, 2003, 62–68
- [17] M.R. Winchester, R. Payling, « Radio-frequency glow discharge spectrometry: A critical review», *Spectrochimica Acta Part B* 59, 2004, 607–666
- [18] A.Bogaerts, L. Wilken, V. Hoffmann, R. Gijbels and K. Wetzig, « Comparison of modeling calculations with experimental results for rf glow discharge optical emission spectrometry », *Spectrochimica Acta Part B* 57, 2002, 109–119
- [19] O.A.Popov and V.A.Godyak, «Power dissipated in low–pressure radio- frequency discharge plasmas»; *J. Appl. Phys*; Vol 57; N°1, January 1985
- [20] V.A. Godyak, R.B.Piejak and B.M Alexandrovich, « Measurements of electron energy distribution in low-pressure RF discharges», *Plasma Sources Sci. Technol.*; Vol. 1, 1992, 36-58. Printed in the UK

- [21] V.A. Lisovski, V.D. Yegorenkov , «Alpha–gamma transition in RF capacitive discharge in low-pressure oxygen», *Vacuum* 74, 2004, 19–28
- [22] Ph.Belenguer and J.P.Boeuf, «Transition between different regimes of rf glow discharges», *Physical Review A*, Vol.41, Number 8, 15 April 1990, 4447-4459
- [23] Vassili Karanassios, « Microplasmas for chemical analysis: analytical tools or research toys? », *Spectrochimica Acta Part B* 59, 2004, 909– 928
- [24] Yuan et Raja, «Computational stud of capacitively coupled HPG Discharges In Helium», *IEEE Transactions On Plasma Science*, Vol 31, N°4, 2004, 495-503
- [25] I. Tanarro and V. J Herrero, « Large effects of small pressure changes in the kinetics of low pressure glow discharges», *Plasma Sources Sci. Technol.* Vol 20,N°2, 024006, 03/2011, DOI: 10.1088/0963-0252/20/2/024006
- [26] G. J. M. Hagelaar, G. Fubiani and J-P Boeuf, « Model of an inductively coupled negative ion source: I. General model», *Plasma Sources Sci. Technol.* 20015001, 2011
- [27] T. Lafleur and R. W. Boswell, « Particle-in-cell simulations of ambipolar and nonambipolar diffusion in magnetized», *Phys. Plasmas*, Vol. 19, 053505, 2012, pp7
- [28] L. Wang, B. Ke, T. L. Ni, F. Ding, M. D. Chen, X. D. Zhu, H. Y. Zhou and X. H. Wen « Role of bias frequency in a dual electron cyclotron resonance-radio-frequency», *Vacuum* 84, 2010, 348–351,
- [29] Yuri R Raizer, « Gas Discharge Physics », ISBN 3-540-19462-2, ISBN 0-387-19462-2, © Springer-Verlag Berlin Heidelberg 1991, printed in Germany, p134
- [30] Thierry Duffour, «Etude expérimentale et simulation des micro-plasmas générés dans des microcathodes creuses » ; thèse de doctorat 2009, Laboratoire GREMI ; Université d’Orléans.
- [31] Kushner M J, «Modeling of microdischarge devices: pyramidal structures», *J. Appl. Phys.*, Vol.95, N°3, 2004, 846–859.

- [32] H. B. Smith, C. Charles and R. W. Boswell, «Breakdown behavior in radio-frequency argon discharges», Phys. Plasmas. Vol. 10 , N°3, 2003, 875–881
- [33] Y. Zhang, W. Jiang, Q. Z. Zhang and A. Bogaerts, «Computational study of plasma sustainability in radiofrequency micro-discharges» J. Appl. Phys., Vol.115, 193301, 2014, 11pp
- [34] L. Daibing and D. Yixiang, «Microplasmas for analytical applications of lab-on-a-chip», Trends in Analytical Chemistry, Vol. 39, 2012, 254-265
- [35] R. M. Sankaran and P. G. Konstantinos, « Argon excimer emission from high-pressure microdischarges in metal capillaries»; Appl. Phys. Lett.; Vol. 83, N°. 23, 8 December 2003, 4728-4730
- [36] B-J. Lee, M. Iberler, H. Rahaman, J.Jacoby, S- H. Nam and K. Frank, «Xenon excimer emission from multicapillary discharges in direct current mode», Physics of Plasmas, Vol.18, 083506, 2011, 3pp.
- [37] P. Bruggeman, U. Czarnetzki, K. Tachibana, «Special issue: diagnostics of atmospheric pressure microplasmas», J. Phys. D: Appl. Phys. 46, 460301, 2013 (3pp) doi:10.1088/0022-3727/46/46/460301
- [38] R. Foest, M. Schmidt, K. Becker; « Microplasmas, an emerging field of low-temperature plasma science and technology », International Journal of Mass Spectrometry 248, 2006, 87–102
- [39] L. D. Biborosh, I. Petznauer, B-J. Lee, K0 Frank and K. H. Schoenbach, «Excimer emission of open and closed microhollow cathode discharges in xenon», Rom. J. Phys. 50 711, 2005
- [40] C. Lazzaroni, P. Chabert, A. Rousseau and N. Sadeghi, «The excitaion structure in a micro- hollow cathode discharge in the normal regime at medium argon pressure» J. Phys. D: Appl. Phys. Vol.43, 124008, 2010, 7pp.

[41] K. Makasheva, G. J. M. Hagelaar, J.-P. Boeuf, Th. Callegari, and L. C. Pitchford; «Ignition of Microcathode Sustained Discharge»; IEEE TRANSACTIONS ON PLASMA SCIENCE, Vol. 36, N°. 4, August 2008, 1236-1237

[42] J. P. Boeuf , L.C. Pitchford, Th. Callegari and J. Galy, «Microhollow cathode sustained discharges», Proceedings of the 27th International Conference on Phenomena in Ionised Gases, XXVIIth ICPIG, Eindhoven, the Netherlands, 18-22 July, 2005, 3pp,

[43] M. Maeyama, A. Ishigaya, Y. Takamine and Y. Akashi, « Parallel operation of microhollow-cathode sustained discharge», 28th (XXVIII) ICPIG (International Conference on Phenomena in Ionized Gases), July 15-20, 2007, Prague, Czech Republic, 1062-1065; icpig2007.ipp.cas.cz

[44] R. Dussart, L.J. Overzet, P. Lefauchaux, T. Dufour, M. Kulsreshath, M.A. Mandra, T. Tillocher, O. Aubry, S. Dozias, P. Ranson, J.B. Lee and M. Goeckner, « Integrated microplasmas in silicon operating in helium» Eur. Phys. J. D 60, 601–608, 2010; DOI: 10.1140/epjd/e2010-00272

[45] K. H. Schoenbach, R. Verhappen, T. Tessnow, and F. E. Peterkin, «Microhollow cathode discharges», Appl. Phys. Lett. 68 (1), 1 January 1996, 13-15

[46] K. H. Schoenbach, M. Moselhy, W. Shi, and R. Bentley, «Microhollow cathode discharges», J. Vac. Sci. Technol. A 21(4), Jul/ Aug 2003, 1260-1265

[47] L-D. Biborosch , I. Petznhauser, Byung.Yung-Joon Lee , K. Frank et K. H. Schoenbach, «Excimer Emission of Open and Closed Microhollow Cathode Discharges In Xenon», Plasma Physics; Paper presented at the 5th International Balkan Workshop on Applied Physics, 5–7 July, 2004, Constanța, Romania. Rom.Journ.Phys; Vol. 50, Nos. 7–8, P. 711–722, Bucharest, 2005

[48] B. J. Lee, H. Rahaman, S. H. Nam, M. Iberler, J. Jacoby, and K. Frank, «Excimer emission from pulsed microhollow cathode discharges in xenon», Physics of Plasmas; Vol. 20, 123510, 2013, 5pp

[49] R. Foest , M. Schmidt , K. Becker , «Microplasmas, an emerging field of low-temperature plasma science and technology »,International Journal of Mass Spectrometry; 248, 2006, 87–102

[50] Sang Ki Nam and Demetre J. Economou, «Two-dimensional simulation of a miniaturized inductively coupled plasma reactor», J. Appl. Phys.; Vol. 95, No. 5, 1 March 2004, 2272-2277

[51] T. Ideno and T. Ichiki, «Maskless etching of microstructures using a scanning microplasma etcher», Thin Solid Films; 506– 507, 2006, 235–238

[52] H. Barankova and L. Bardos, «Hollow cathode plasma sources for large area surface treatment», Surface and Coatings Technology; 146 –147, 2001, 486–490

[53] <https://www.wikipedia.org/>.

[54] J. F. Kolb, A-A H. Mohamed, R. O. Price, R. J. Swanson, A. Bowman , R. L. Chiavarini, M. Stacey and K. H. Schoenbach, «Cold atmospheric pressure air plasma jet for medical applications», Appl. Phys. Lett. **92**, 241501 (2008); 3pp, <http://dx.doi.org/10.1063/1.2940325>

[55] R. E. J. Sladek, E. Stoffels, R. Walraven, P. J. A. Tielbeek and R. A. Koolhoven, «Plasma treatment of dental cavities: a feasibility study», IEEE Transactions on plasma science. Vol. 32, N° .4, 2004, 1540-1543; ISSN: 0093-3813, DOI:[10.1109/TPS.2004.832636](https://doi.org/10.1109/TPS.2004.832636)

Chapitre II

Mécanismes physico-chimiques dans un réacteur de plasma froid et modèles numériques mis en jeu

II.1 Introduction

Dans un plasma, un électron ou un ion interagit à chaque instant avec beaucoup d'autres particules. Cette interaction est due aux forces coulombiennes. Ces interactions coulombiennes dites collectives déterminent essentiellement la dynamique des plasmas. On dit alors qu'il y'a interaction entre deux particules si le parcours ou l'état interne de l'une d'elle change. Dans ce chapitre, nous présentons les différents processus élémentaires pouvant exister dans un plasma froid. Nous commençons par donner un bref rappel sur la théorie de collision entre deux particules. Nous parlerons par la suite des types de collisions dans un plasma de décharge ainsi que des paramètres importants des collisions ; nous évoquerons par la suite les différents modèles décrivant le phénomène de transport dans un plasma et enfin nous terminerons par une conclusion.

II.2 Collisions dans les plasmas

On dit qu'il y'a collision lorsque deux ou plusieurs particules se heurtent à des distances assez faibles pour que les énergies d'interaction deviennent comparables aux énergies cinétiques [1]. En raison de l'agitation thermique de chacun des constituants du gaz, de multiples collisions se produisent au sein du plasma permettant le transfert de la quantité de mouvement et des échanges d'énergie entre les particules [2]. Les collisions jouent un rôle fondamental dans le maintien de la décharge par la production de paires électron-ion, et par la production des espèces chimiques. Il existe trois classes de collisions présentées dans l'ordre croissant de complexité physique :

- Les collisions élastiques, responsables de la diffusion des particules dont les états d'énergie internes sont inchangés.
- Les collisions inélastiques, modifiant les états internes des particules mais sans modification de la nature de l'espèce.
- Les collisions réactives, donnant des produits qui diffèrent des particules initiales. Ces chocs sont également inélastiques.

En général, dans un plasma, les particules interagissent par la présence des forces de Van der Waals et des forces de Coulomb, dépendant de leur nature (neutre ou chargé).

Notre étude est limitée aux collisions à deux corps. Les particules atomiques seront notées par les lettres A ou B. Les particules moléculaires, par les lettres AB.

II.2.1 Collisions élastiques

Dans ce type de collisions, il y'a seulement déviation des particules de leur position initiale avec échange de la quantité de mouvement et d'énergie cinétique, laissant les états d'énergie internes inchangés. La figure 1 représente une collision entre un électron et une molécule neutre AB.

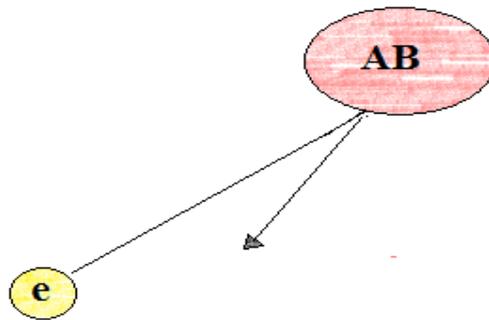


Figure II.1 : Collision élastique électron-neutre

Il faut noter que les particules lourdes échangent très facilement leur énergie par collisions élastiques ; Ce n'est pas le cas lors de la collision d'un électron et d'une particule lourde. Un électron devra subir des milliers de collisions élastiques pour perdre son énergie.

Les collisions élastiques jouent un rôle essentiel dans les phénomènes de transport (conductivité électrique, diffusion), alors il est utile de montrer quelques paramètres de collisions dans ce qui suit.

II.2.1.1 Paramètres de collision

II.2.1.1.1 Section efficace de collision

Le paramètre fondamental qui caractérise une collision est sa section efficace $\sigma(v_R)$, où v_R est la vitesse relative entre les particules avant la collision. Pour déterminer la section efficace d'une collision, nous considérons la figure suivante (2):

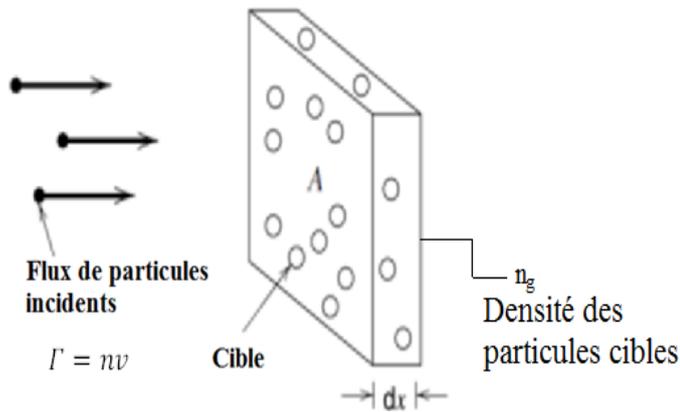


Figure II.2 : Schéma relatif à la notion de section efficace [3]

Soit un flux de particules ($\Gamma = nv$) de masse m , de densité n , incidents avec une vitesse fixe v sur une plaquette. La plaquette est prise pour une cible d'épaisseur dx et de surface A placée transversalement aux faisceaux de particules incidentes. Soit dn le nombre de particules diffusées pendant un intervalle de temps dt dans la plaquette. Il y'a dn réactions/sec dans cette plaquette.

Si la densité des particules (atomes, molécules) dans le volume d'épaisseur dx est n_g et si chaque particule présente une surface σ pour la réaction considérée, il y'a une aire effective de $(n_g A dx)\sigma$ qui peut intercepter le flux. Si à chaque collision il y'a une réaction qui produit un changement d'une propriété, le nombre de ces réactions est donné par :

$$dn = n \frac{n_g A \sigma dx}{A} = n n_g \sigma dx \quad \text{II.1}$$

La quantité σ est appelée section efficace différentielle de collision élastique. Il faut bien noter que la notion de section efficace ne s'applique pas seulement à la diffusion élastique mais aussi à d'autres phénomènes.

Pour une simple explication de σ , si les particules incidentes et cibles sont assimilées par approximations des sphères dures, à des boules rigides de rayons respectifs r_1 et r_2 , la collision a lieu si la distance entre leurs centres est inférieure ou égale à la somme de leurs rayons (r_1+r_2). La section efficace de collision sera alors :

$$\sigma_{12} = \pi(r_1 + r_2)^2 \quad \text{II.2}$$

Nous remarquons d'après l'équation 2 que σ est alors indépendante de la vitesse et correspond à la surface de la base d'un cylindre.

La section efficace différentielle σ est égale à la section efficace de transfert de la quantité de mouvement σ_m [3]. Si on considère une interaction entre un électron et un atome, on peut calculer σ_m comme suit :

$$\sigma_m = \pi(r_1 + r_2)^2 \approx \pi r_2^2 \quad II.3$$

On néglige le rayon de l'électron par rapport au rayon de l'atome qui est égale approximativement à 10^{-8}cm [3]. Donc $\sigma_m \approx 3 \times 10^{-16} \text{cm}^2$.

Si on multiplie chaque terme de l'égalité de l'équation (1) par v (terme de vitesse), on obtient une équation similaire pour le flux de particules comme suit :

$$d\Gamma = -\Gamma n_g \sigma dx \quad II.4$$

Cette équation admet pour solution :

$$\Gamma = \Gamma_0 \left(1 - e^{-\frac{x}{\lambda}}\right) \quad II.5$$

Avec $\Gamma_0 e^{-\frac{x}{\lambda}}$ est le flux entré en collision.

❖ Les collisions élastiques peuvent être de type électron-électron (e-e), électron-ion (e-i), ion-ion (i-i) ou particules chargées-neutres :

- Les collisions (e-e), (e-i), (i-i) sont soumises aux lois de l'interaction coulombienne entre les charges. Elles agissent à longue distance. Nous ne traiterons pas ce cas dans cette thèse

- Les collisions particules chargées- neutres sont des interactions à courte distance. Elles ont lieu entre les particules de masses différentes et le transfert de l'énergie entre les électrons et les particules lourdes dépend du rapport $\frac{m_e}{m_i}$ ($m_i \approx m_n$), avec m_i : masse des ions et m_n : masse des neutres.

- Par contre pour les collisions ion-neutre, l'échange d'énergie entre ces particules est très efficace à cause des masses voisines.

II.2.1.1.2 Le libre parcours moyen

Le libre parcours moyen est la distance parcourue par la particule sans faire de collisions. D'après l'équation 2, le libre parcours moyen de l'interaction considérée est :

$$\lambda = \frac{1}{n_g \sigma} \quad II.6$$

On peut déterminer la densité du gaz en appliquant la loi des gaz parfait :

$$P = n_g k_B T_g \quad II.7$$

Avec P : la pression du gaz.

II.2.1.1.3 Le temps moyen de collision

Le temps moyen de collision est défini par le rapport:

$$\tau = \frac{\lambda}{v} \quad II.8$$

II.2.1.1.4 La fréquence de collision

La fréquence de collision est l'inverse du temps moyen de collision, elle est déterminée par :

$$\nu \equiv \tau^{-1} = n_g \sigma v \quad II.9$$

La fréquence de collision est le nombre d'interactions par seconde entre les populations des particules incidentes et des particules cibles.

Elle peut être aussi exprimée par le taux constant de collisions (ou la constante de vitesse) déterminé par :

$$K = \sigma v \quad II.10$$

Ainsi la fréquence de collision peut s'écrire comme suit :

$$\nu = n_g K \quad II.11$$

Le libre parcours moyen des particules dans un réacteur plasma dépend de la pression de travail. Ainsi il permet de nous renseigner sur le phénomène collisionnel ou non collisionnel

dans la décharge. Une augmentation de la pression à puissance donnée réduit le libre parcours moyen et augmente la fréquence de collisions des électrons et des ions. Ceci entraîne une réduction des gaines de charge d'espace et une augmentation du volume de plasma. C'est le passage d'un régime dominé par le couplage d'énergie dans la lueur négative en DC, chauffage stochastique ou effet de surf en HF à un régime dominé par la colonne positive dans le volume du plasma.

II.2.2 Collision inélastiques

Les collisions inélastiques jouent un rôle important dans le maintien de la décharge, par la création des paires électron-ion, ainsi que dans la création d'espèces chimiques réactives.

Dans les collisions inélastiques entre particules chargées et neutres il n'y a pas seulement échange de quantité de mouvement et d'énergie cinétique, mais aussi transformation de l'énergie cinétique en énergie chimique.

On distingue plusieurs types de collisions inélastiques selon la nature des particules et les énergies qu'elles nécessitent. Dans cette thèse notre étude se focalise sur les processus faisant intervenir les particules chargées. Une collision électron-neutre inélastique implique un gain ou une perte d'énergie par l'électron.

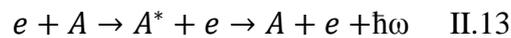
II.2.2.1 Le processus d'excitation et états métastables

Les états d'excitation d'un atome ou molécule peuvent être d'origine électronique, vibrationnelle ou rotationnelle suivant l'énergie nécessaire à l'électron pour passer d'un niveau à un autre. Il faut signaler dans ce cas que pour les neutres (atomes ou molécules) et les ions, l'énergie interne de chaque particule est la somme des trois énergies représentant respectivement les énergies d'excitation électronique, vibrationnelle et rotationnelle déterminées par l'équation 12 :

$$E_i = E_i^e + E_i^v + E_i^r \quad \text{II.12}$$

Ces niveaux d'énergie sont calculés en résolvant les équations aux valeurs propres de la mécanique quantique. La conversion de l'énergie cinétique en énergie interne n'est possible qu'au-dessus d'un certain seuil. Par exemple l'énergie nécessaire pour l'excitation électronique doit être supérieure à l'électronvolt [2].

Les atomes d'un gaz dans leurs états fondamentaux peuvent être excités par des collisions ou des radiations vers des états d'énergie plus hauts. Le retour vers l'état fondamental est dans la plupart du temps accompagné par l'émission d'un rayonnement comme c'est illustré dans l'équation 13 suivante :



$\hbar\omega$ est l'énergie du photon et ω est sa fréquence en radian. En général, le rayonnement est dans le visible ou l'ultraviolet [3].

En plus de la production du rayonnement par la désexcitation de niveaux radiatifs, l'impact des électrons conduit les atomes et également des ions vers des niveaux métastables. Les niveaux métastables ne peuvent pas émettre un rayonnement $\hbar\omega$ pour rejoindre un niveau plus bas. Dans ce cas, les atomes ont tendance à rester dans cet état jusqu'à la production d'une collision électronique pour libérer l'électron de son niveau excité. La présence des niveaux métastables dans un plasma est indispensable car cela permet de stocker l'énergie « interne » et de la transmettre à une autre espèce ou à une surface.

La désexcitation électronique est appelée collision super élastique.

La figure 3 représente les sections efficaces des différents processus d'ionisation, d'excitation et de collision élastique en fonction de l'énergie dans le cas d'un plasma d'argon.

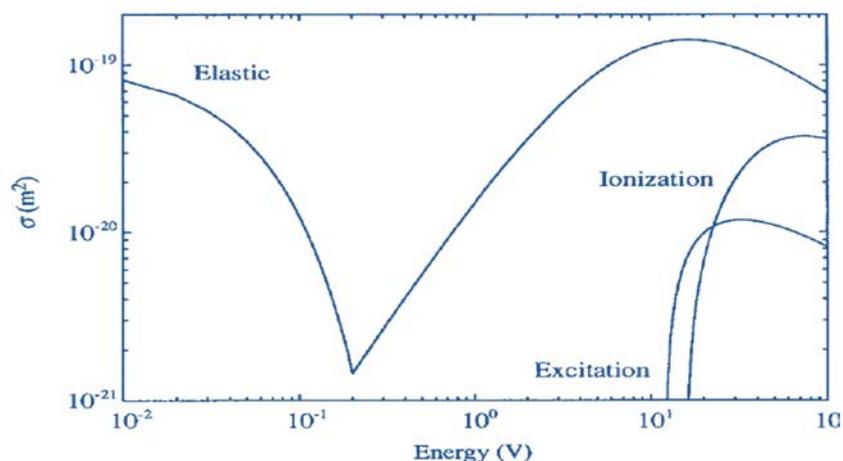


Figure II.3 : Section efficace des processus : ionisation, excitation et collision élastique des électrons dans un gaz d'argon [3]

Nous remarquons que la section efficace d'excitation suit la section transversale d'ionisation, sauf qu'elle s'étend vers les basses énergies. L'énergie d'excitation de l'atome d'argon est de l'ordre de 11.50 V.

II.2.2.2 L'ionisation direct d'un atome par impact d'électron

Dans ce processus, l'électron incident de vitesse v interagit avec l'électron de valence d'un atome et lui transfère une partie de son énergie cinétique qui doit être supérieure ou égale au potentiel d'ionisation de l'atome ce qui provoque le détachement de l'électron de valence de l'atome initialement neutre comme c'est représenté sur la figure 4 suivante :

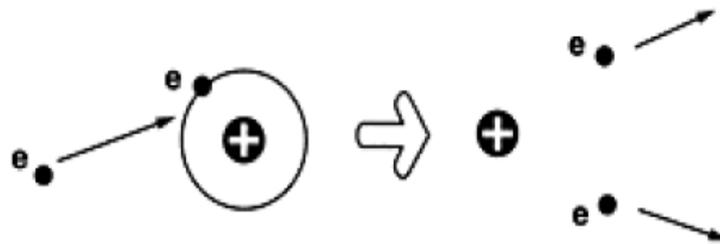
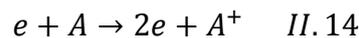


Figure II. 4 : Processus d'ionisation d'un atome [4]

L'équation de la réaction d'ionisation s'écrit alors :



Pour les molécules, on distingue trois types d'ionisation :

- a. L'ionisation simple : elle est représentée sur la figure 5. Sa réaction se traduit par l'équation suivante :

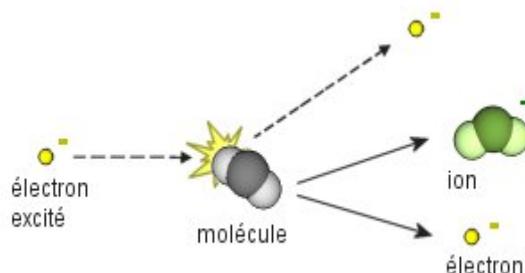
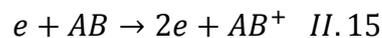
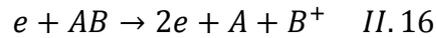


Figure II.5 : Processus d'ionisation simple d'une molécule

b. L'ionisation dissociative : elle est traduite par l'équation 16 :



c. L'ionisation dissociative avec formation de paire :



II.2.2.2.1 La section efficace d'ionisation

La section efficace d'ionisation de Thomson est donnée par [3] :

$$\begin{cases} \sigma_{iz} = \pi \left(\frac{e}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \frac{1}{\epsilon} \left(\frac{1}{\epsilon_{iz}} - \frac{1}{\epsilon} \right) & \epsilon > \epsilon_{iz} \\ \sigma_{iz} = 0 & \epsilon < \epsilon_{iz} \end{cases} \quad II.18$$

ϵ est l'énergie cinétique de l'électron donnée par :

$$\epsilon = \frac{m_e v^2}{2} \quad II.19$$

ϵ_{iz} est le potentiel d'ionisation de l'atome.

La section efficace d'ionisation atteint sa valeur maximale pour $\epsilon = 2\epsilon_{iz}$, dans ce cas on écrit :

$$\sigma_{iz}(\max) = \frac{\pi}{4} \left(\frac{e}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \left(\frac{1}{\epsilon_{iz}^2} \right) \quad II.20$$

La fréquence d'ionisation peut être calculée comme suit :

$$\nu_{iz} = n_g \sigma_{iz} v \quad II.21$$

II.2.2.2.2 La constante de vitesse de collision

La probabilité de l'ionisation est caractérisée par une constante de vitesse de collision analogue à celle trouvée en cinétique chimique par la relation suivante [5] :

$$K = \int_{\varepsilon} f(\varepsilon) \sqrt{\frac{\varepsilon}{2m_e}} \sigma(\varepsilon) d\varepsilon \quad II.22$$

$f(\varepsilon)$ est la fonction de distribution en énergie des électrons (FDEE) donnée par :

$$f(\varepsilon) = 2\sqrt{\varepsilon/\pi(kT_e)^3} \exp(-\varepsilon/kT_e) \quad II.23$$

La constante de vitesse des réactions électron - particule lourde ne dépend que de la FDEE ou en d'autres termes de l'énergie moyenne des électrons. La température du gaz n'a en particulier aucune influence directe sur ces constantes [5].

La relation 22 dévoile aussi que les constantes de vitesse de réactions et de mécanismes de transfert d'énergie entre les électrons et les espèces lourdes sont obtenues à partir de l'intégrale de recouvrement de la FDEE et des sections efficaces de collision qui sont données. Ainsi la constante de vitesse pour l'ionisation peut s'écrire [6] :

$$k_{iz} = \langle v_e \sigma_{iz} \rangle = k_0 \frac{\sqrt{Z}}{1+Z} \exp(-z) \quad II.24$$

Avec $Z = \frac{\varepsilon_{iz}}{T_e}$, $k_0 = \frac{\pi e^4}{\varepsilon_{iz}^2} \sqrt{\frac{2\varepsilon_{iz}}{m_e}}$

A basse température électronique, l'équation 24 peut s'écrire :

$$k_{iz} = \frac{\pi e^4}{m_e} \sqrt{\frac{2T_e}{m_e}} \exp\left(-\frac{\varepsilon_{iz}}{T_e}\right) \quad II.25$$

$$T_e \ll \varepsilon_{iz}$$

Ou plus simplement :

$$k_{iz} \approx k_{iz0} e^{-\frac{\varepsilon_{iz}}{T_e}} \quad Eq II.26$$

k_{iz0} est un facteur pré- exponentiel. Pour l'argon $k_{iz0} = 5 \times 10^{-14} m^3/s$.

La figure 6 représente le taux constant de collisions des différents processus dans le cas du plasma d'argon. Nous remarquons d'après la figure que chaque processus évolue exponentiellement avec la température électronique.

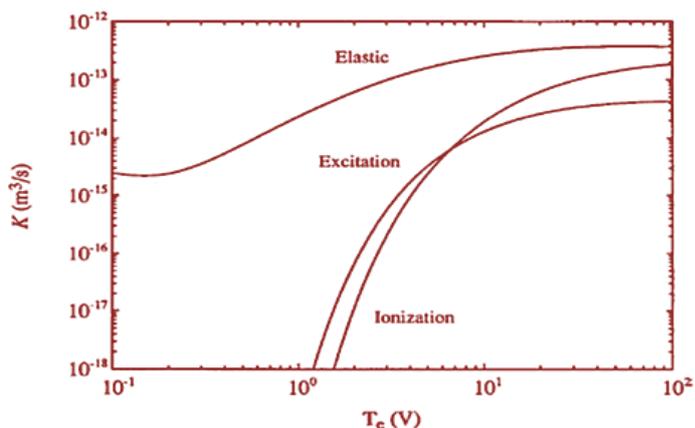
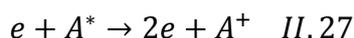


Figure II.6 : Taux constants des collisions inélastiques des électrons dans un gaz d'argon [3]

II.2.2.3 L'ionisation par étape par impact électronique ou Stepwise-ionization

Comme l'énergie moyenne des électrons dans un plasma est en général inférieure au potentiel d'ionisation atomique, par conséquent l'ionisation par impact électronique ne peut se produire que dans des collisions de haute énergie. Pour cette raison, l'atome doit passer par un certain nombre d'états excités. Ces transitions à ces états sont causées évidemment par des collisions avec des électrons. Ce mécanisme d'ionisation d'un atome est appelé ionisation par étapes. Ce processus est important surtout dans les décharges thermiques. L'équation de la réaction s'écrit alors :



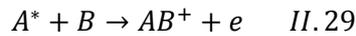
II.2.2.4 L'ionisation Penning

Si l'énergie d'excitation d'un atome métastable A^* est supérieure au potentiel d'ionisation d'un autre atome B, leur collision peut conduire à un processus d'ionisation dit ionisation Penning : en effet, l'atome A se désexcite et transmet son énergie à l'atome B qui perd son électron de valence et s'ionise. En général, la contribution de l'ionisation Penning dans la génération d'un plasma peut être significative en présence de l'espèce fortement excitée ou métastable.

Ainsi l'équation de cette réaction peut s'écrire :

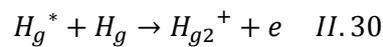


Lorsque les espèces lourdes interagissent entre elles, formant un ion moléculaire, leur énergie de liaison peut contribuer dans l'ionisation. Un tel processus est appelé ionisation associative. Il diffère de l'ionisation Penning par la stabilité de l'ion moléculaire :



II.2.2.4.1 Exemple de l'ionisation Penning

Un bon exemple de l'ionisation Penning est celle du mercure [6] :



Ici l'énergie d'excitation du mercure (9.6V) est inférieure au potentiel d'ionisation du mercure (10.4V), mais plus élevée que le potentiel d'ionisation de la molécule H_{g2} [6].

II.2.2.4.2 Exemple de sections efficaces pour l'ionisation Penning des gaz nobles

La section efficace de collision du xénon (Xe) avec les atomes d'hélium métastables d'énergie d'excitation 19.8 eV atteint la valeur de 10^{-15} cm^2 .

La section efficace pour l'ionisation Penning de l'argon (Ar) dont le potentiel d'ionisation est 15.8 eV avec les atomes de néon métastables d'énergie d'excitation égale à 16.6 eV atteint la même valeur de 10^{-15} cm^2 .

❖ L'ionisation associative est un processus inverse de la recombinaison dissociative :

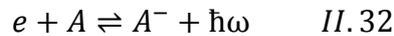


II.2.2.5 L'attachement

L'attachement correspond à un impact d'électron avec un atome électronégatif. Les atomes du gaz ont tendance à attirer l'électron et deviennent par la suite des ions négatifs. Les ions négatifs peuvent jouer un rôle fondamental dans les gaz ionisés électronégatifs. Ils augmentent leur rigidité en freinant la croissance des avalanches.

L'attachement peut être :

Radiatif: L'énergie de l'ion négatif formé lors d'une collision d'attachement est inférieure à l'énergie de la particule neutre dans son état initial. L'excès d'énergie est libéré sous forme de photon. La réaction chimique est traduite par l'équation suivante :



Le processus inverse est appelé photo détachement.

Dissociatif: Dans ce cas, l'excès d'énergie libéré peut causer la séparation des deux atomes d'une même molécule en atome neutre et ion négatif comme c'est illustré dans la figure 7. L'équation de la réaction est donnée comme suit :

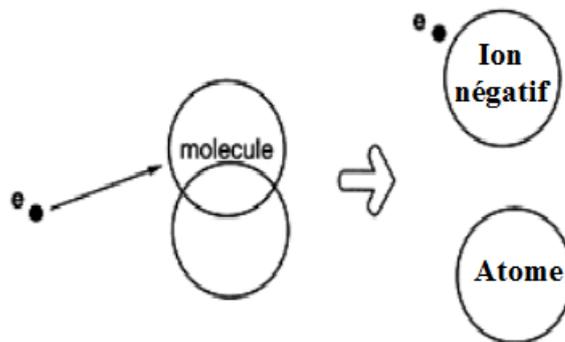
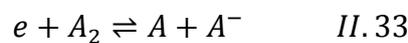
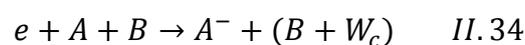


Figure II-7 : Attachement dissociatif et formation d'un ion négatif [4]

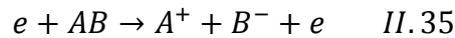
Le processus inverse est le détachement associatif.

Par collision triple : L'excès d'énergie libéré lors d'une collision d'attachement peut être pris par une autre particule comme énergie cinétique W_c . Ce processus est connu comme « collision d'attachement à trois corps ». L'équation s'écrit :



Production de pair – ion : Les ions négatifs peuvent être aussi créés après une collision d'un électron avec une molécule. Dans ce cas, la molécule est divisée en deux ions, un ion positif

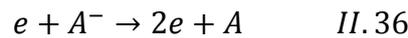
et un autre négatif sans qu'il y ait attachement de l'électron incident. L'équation de la réaction s'écrit :



Pour les faibles pressions, les attachements radiatifs et dissociatifs sont dominants. Sous pressions élevées, l'attachement à trois corps est le plus courant.

II.2.2.6 Le détachement

C'est le processus inverse de l'attachement. Un ion négatif perd son électron supplémentaire. L'équation de la réaction s'écrit alors comme suit :



Les processus de détachement peuvent être résumés comme suit :

- Photo détachement par absorption de radiations
- Détachement associatif
- Recombinaison des ions atomiques négatifs et positifs pour former une molécule diatomique neutre par collision à trois corps avec des électrons. Ce processus est très probable pour les plasmas à haute pression.

II.2.2.7 Mécanisme de perte d'électrons

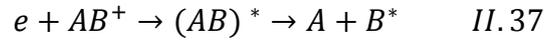
Nous avons vu que le processus d'ionisation est considéré comme source d'électrons et d'ions positifs, autrement dit comme source de génération de plasma. Contrairement, le principal mécanisme de perte des particules chargées est le processus de recombinaison. On distingue trois groupes de mécanismes de recombinaison :

II.2.2.7.1 Recombinaison électron - ion

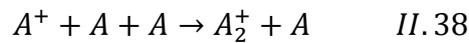
Dans ce processus, les collisions entre les particules chargées dans le volume du plasma conduisent à leurs neutralisations. La recombinaison électron-ion est un processus fortement exothermique [4]. L'énergie libérée correspond au potentiel d'ionisation et il est donc assez élevé. Il existe trois mécanismes de recombinaison électron-ion. On distingue :

➤ **La recombinaison dissociative électron-ion**

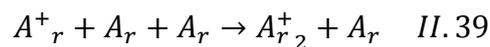
Elle est définie par l'équation 37 :



C'est le plus rapide mécanisme. Il consiste à la dissociation de l'ion moléculaire et à l'excitation des produits de dissociation. Ce processus peut être aussi important dans les gaz atomiques, où il y'a formation préliminaire de l'ion moléculaire par le processus de conversion de l'ion atomique et plus particulièrement à haute pression ($> 10 \text{ Torr}$). Ce phénomène est présenté dans l'équation 38 suivante :



Pour l'argon, par exemple, on peut écrire l'équation de conversion suivante avec un taux réaction de $10^{-31} \text{ cm}^6/\text{s}$:



La conversions des ions poly atomiques comme N_2^+ et O_2^+ à pression élevée conduit parfois à la formation intermédiaire de dimères comme N_4^+ et O_4^+ . Ainsi, la conversion mentionnée précédemment peut être essentielle pour la recombinaison dissociative de ces ions moléculaires de l'air.

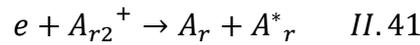
Le taux de recombinaison dissociative pour l'équation 37 est en général de l'ordre de 10^{-7} à $10^{-6} \text{ cm}^3/\text{s}$ [4, 6-7].

Un taux si grand décroît lorsque la température électronique croît. Cependant ce processus ne possède pas d'énergie d'activation et par conséquent dépend de la température des électrons T_e [4,7] et celle du gaz T_g qui n'est pas assez importante. Cette dépendance peut être estimée dans la formule semi-empirique suivante [4] :

$$k_r^{ei}(T_e, T_g) \propto \frac{1}{T_g \sqrt{T_e}} \quad II.40$$

Donc , il faut noter que le taux de recombinaison dépend aussi de l'excitation vibrationnelle de l'ion moléculaire.

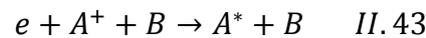
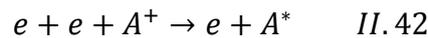
Un exemple de recombinaison dissociative est donnée pour le gaz d'argon [4] :



Dans ce cas $k_r^{ei} = 10^{-7} \text{ cm}^3/\text{s}$ pour $T_e = 1 \text{ eV}$ et $T_g = 300 \text{ K}$

➤ **La recombinaison à trois corps électron- ion**

En absence des ions moléculaires dans les gaz atomiques, la neutralisation peut être due à la recombinaison électron –ion à trois corps définie par les équations 42 et 43 :

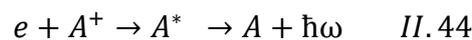


Ce processus peut être dominant dans un plasma de haute densité et avec une température électronique basse d'environ 1 eV.

Les électrons sont capturés par des ions pour former des atomes considérablement excités. L'atome excité est progressivement désactivé par impact électronique où il descend en cascade vers les niveaux bas de son orbitale jusqu'à ce qu'il arrive à l'état fondamental par transition radiative.

➤ **La recombinaison radiative**

Ce processus peut avoir lieu dans un plasma de faible densité et en absence de mécanisme à trois corps. L'énergie de recombinaison peut être convertie en un rayonnement dont l'équation est écrite ci-dessous :



II.2.2.7.2 Autres mécanismes de pertes d'électrons

Il existe d'autres mécanismes de pertes d'électrons. Ces derniers se perdent à cause de leur adhérence aux neutres et formation d'ions négatifs en formant le deuxième groupe de perte en volume. C'est le processus d'attachement déjà traité. Ces mécanismes sont souvent responsables de l'équilibre des particules chargées dans les gaz électronégatifs (O_2 : air).

Bien que les électrons perdus soient dus au processus d'attachement, il faut bien noter que le réel mécanisme de perte est la collision ion-ion, collision d'un ion négatif avec un ion

positif. Ce processus signifie une neutralisation mutuelle des ions positifs et négatifs dans les collisions binaires ou à trois corps.

Le troisième groupe de perte d'électron est dû à la recombinaison de surface. Ce processus est important dans les plasmas à basse pression où le libre parcours moyen des électrons devient considérable. Les processus de recombinaison en surface sont usuellement limités non par l'acte élémentaire e-ion, mais par la diffusion des particules vers les parois du réacteur plasma.

II.3 Modèles numériques

De nos jours, l'usage du plasma dans la technologie moderne ne cesse de se développer à une vitesse vertigineuse grâce à ses applications aussi diverses que prometteuses. L'optimisation des équipements utilisant ces applications reste assez coûteuse et difficile à mettre en œuvre. En plus l'analyse de certains phénomènes physiques basés sur des connaissances empiriques restent encore mal compris et inexpliqués ; d'où la nécessité de passer par la modélisation afin d'aider à la progression de ces procédés.

Dans ce contexte, plusieurs travaux théoriques sont menés depuis des années développant ainsi des approches aussi analytiques que numériques pour la description de la décharge plasma [8-11]. Citons comme exemple la simulation par la méthode de Monte Carlo, le modèle fluide, le modèle particulaire ou la combinaison de ces modèles appelés modèles hybrides [12-13].

Dans cette thèse nous présentons les modèles les plus utilisées tels que le modèle particulaire et le modèle fluide dont nous nous sommes basées lors de cette étude.

II.3.1 Equations de base décrivant l'évolution des particules dans un plasma :

Un plasma peut contenir des électrons, des ions et des neutres (molécules et/ou atomes) dans leur état fondamental ou excité. Ces particules peuvent transférer leur énergie cinétique par collisions élastiques et/ou inélastiques contribuant à la perte ou la génération de nouvelles espèces. Tout cela dépend de la température du gaz. A cet effet, la température cinétique du gaz plasma correspond à une distribution en énergie des particules. En

conséquence, la description d'un plasma est basée sur une loi de distribution statistique et probable des états étudiés [2].

II.3.1.1 Equation de Boltzmann

Donc pour suivre l'évolution cinétique des particules plasmas, on définit une fonction de distribution locale $f_p(\vec{r}, \vec{v}, t)$ pour chaque espèce de particule (électrons, ions et neutres). Cette fonction étant la solution de l'équation de Boltzmann [2,14] :

$$\frac{\partial f_p}{\partial t} + \vec{v}_p \cdot \vec{\nabla}_r f_p + \frac{\vec{F}_p}{m_p} \cdot \vec{\nabla}_v f_p = \frac{\delta f_p}{\delta t} \quad II.45$$

\vec{v}_p est le vecteur vitesse des particules p (electron et /ou ion),

\vec{r} est la position,

\vec{F}_p représente les forces extérieures appliquées à la particule p de masse m_p ,

$f_p(\vec{r}, \vec{v}, t)$ est la fonction de distribution locale de la particule p dans l'espace des phases à six dimensions (x, y, z, v_x, v_y, v_z) . Elle représente le nombre de particules d'une espèce donnée, située dans un élément de volume élémentaire $\vec{dr} \cdot \vec{dv}$ de l'espace des positions \vec{r} , et de l'espace des vitesses \vec{v} . L'ensemble étant appelé espaces des phases.

L'intégration de la fonction de distribution $f(\vec{r}, \vec{v}, t)$ par rapport aux vitesses dans le temps et l'espace permet d'avoir la densité moyenne des espèces présentes dans la décharge $n(\vec{r}, t)$ et leurs vitesses relatives $\vec{v}(\vec{r}, t)$:

$$n(\vec{r}, t) = \int_v f(\vec{r}, \vec{v}, t) d^3v \quad II.46$$

$$\vec{v}(\vec{r}, t) = \frac{\int_v \vec{v} \cdot f(\vec{r}, \vec{v}, t) \cdot d^3\vec{v}}{\int_v f(\vec{r}, \vec{v}, t) \cdot d^3\vec{v}} \quad II.47$$

$\frac{\delta f_p}{\delta t}$ est un terme de collision. Il représente les sources et les pertes en particules de position \vec{r} et de vitesse \vec{v} .

L'équation de Boltzmann explique que la fonction de distribution $f(\vec{r}, \vec{v}, t)$ dans un élément de volume de l'espace (\vec{r}, \vec{v}) varie dans le temps par $\frac{\partial f_p}{\partial t}$ et spatialement par $\vec{v}_p \cdot \vec{\nabla}_r f_p$, représentant le terme de dérive dans l'espace qui traduit la tendance du gaz à relaxer vers un état d'équilibre.

La variation de la fonction de distribution est causée d'une part par l'action des forces extérieures $\frac{\vec{F}_p}{m_p} \cdot \vec{\nabla}_v f_p$, créées en général par le champ électrique extérieure et d'une autre part par la création et la disparition des particules sous l'effet des collisions opérés par le terme $\frac{\delta f_p}{\delta t}$. Ce dernier englobe l'hypothèse des collisions à deux corps locales et instantanés ainsi que le nombre de variables considérées dans le terme gauche de l'équation. Cette expression complexe complique la tâche de résolution de l'équation de Boltzmann qui ne peut être analytique. Donc les modèles numériques sont utiles et primordialement conçus pour sa résolution.

II.3.1.2 La fonction de distribution de Maxwell-Boltzmann

On dit que la fonction de distribution est en état d'équilibre thermodynamique quand la solution de l'équation de Boltzmann est indépendante du temps en absence de toute force extérieure [14]. Dans ce cas, les particules en interaction ne causent aucun changement à la fonction de distribution avec le temps et il n'existe aucun gradient de densité des particules dans l'espace.

A cet égard, la solution de l'équation de Boltzmann correspond à l'équilibre thermodynamique local et conduit à une fonction de distribution de Maxwell quel que soit le type de particules considérées, appelée la fonction de Maxwell Boltzmann ou la fonction de distribution de vitesse maxwellienne déterminée par [2-3,14] :

$$f(v) = n \left(\frac{m}{2\pi k_B T} \right)^{\frac{3}{2}} \exp\left(\frac{-mv^2}{2k_B T} \right) \quad II.48$$

L'état du système est caractérisé uniquement par sa température T et la densités des diverses particules.

II.3.1.2 .a Grandeurs hydrodynamiques

➤ Vitesse des particules

La figure 7 représente la fonction de distribution maxwellienne en fonction d'une composante moyenne de vitesse pour deux valeurs de température électronique. Elle traduit le nombre de particules dans un élément de volume. Nous remarquons que la fonction est une distribution gaussienne de variance:

$$\langle v_i^2 \rangle = \frac{k_B T}{m} \quad II.49$$

avec $i = x, y, z$.

La racine carrée de la largeur moyenne de la distribution gaussienne est donc donnée par l'équation 50 :

$$\langle v_i^2 \rangle^{\frac{1}{2}} = \left(\frac{k_B T}{m} \right)^{\frac{1}{2}} \quad II.50$$

L'allure de la courbe de $f(v)$ montre que le facteur exponentiel décroît plus vite lorsque v croît. Cette courbe atteint son maximum pour une vitesse v_{pp} considérée comme la vitesse la plus probable, déterminée comme suit :

$$v_{pp} = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}} \quad II.51$$

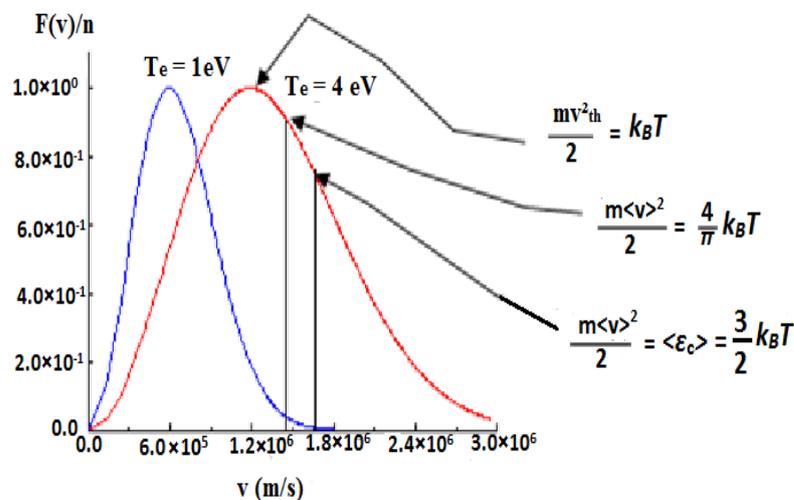


Figure II.7 : Allure de la fonction de distribution maxwellienne [14]

La vitesse moyenne se calcule en utilisant la formule 47 et qui donne :

$$\langle v \rangle = \left(\frac{8}{\pi}\right)^{1/2} \left(\frac{k_B T}{m}\right)^{1/2} \quad II.52$$

On peut définir La vitesse quadratique moyenne en calculant comme suit :

$$\langle v_{rms}^2 \rangle = \frac{1}{n} \int v^2 f d^3 v \quad II.53$$

qui donne :

$$\sqrt{\langle v_{rms}^2 \rangle} = \sqrt{\frac{3k_B T}{m}} \quad II.54$$

Il faut noter que les trois valeurs de vitesse trouvées (v_{pp} , $\langle v \rangle$, $\sqrt{\langle v_{rms}^2 \rangle}$) sont proportionnelles au terme de variance $\left(\frac{k_B T}{m}\right)^{1/2}$. Cette vitesse croît avec la température. Nous constatons que l'on a toujours l'inégalité [2, 14]:

$$v_{pp} < \langle v \rangle < \sqrt{\langle v_{rms}^2 \rangle} \quad II.55$$

Ce qui montre la dissymétrie de la distribution des vitesses de Maxwell- Boltzmann par rapport à son maximum.

➤ **L'énergie moyenne**

L'énergie cinétique moyenne des électrons est représentée par l'équation suivante :

$$\left\langle \frac{mv^2}{2} \right\rangle = \frac{1}{n_e} \int d^3 v \frac{1}{2} mv^2 f_e(v) = \frac{3}{2} k_B T_e \quad II.56$$

Cette équation traduit l'équipartition de l'énergie.

➤ **Flux des particules**

Le flux des particules $\Gamma_{\vec{n}}$ dans une direction \vec{n} normale à la surface, peut être calculé en écrivant :

$$\Gamma_{\vec{n}}(r, t) = n \langle v \rangle = \int f v \cdot n d^3 v \quad II.57$$

n est le nombre de particules

$\langle v \rangle$ est leur vitesse moyenne

Cette intégrale donne :

$$\Gamma_{\bar{n}} = n \frac{\langle v \rangle}{4} \quad II.58$$

➤ **La pression cinétique**

La pression cinétique p des particules est déterminée en utilisant la fonction de distribution maxwellienne :

$$p = nk_B T \quad II.59$$

II.3.2 Le modèle particulaire

Le modèle particulaire appelé aussi particle in – cell Monte Carlo (PIC-MC) est très largement utilisé dans la simulation des décharges plasmas [15-23]. Il est basé sur une description microscopique du transport des électrons et des ions. Les particules du plasma sont traitées individuellement à chaque instant. Les équations sont considérées statiquement en fixant des nombres aléatoires dont les densités de probabilités dépendent des sections efficaces. L'instant, la nature de la collision ainsi que la trajectoire de la particule après impact sont bien déterminés. Cette approche ne nécessite pas de simplifications sur la fonction de distribution des électrons et des ions, mais avec un système d'équations raisonnables, les résultats obtenus sont assurés et très précis par rapport à d'autres approches [24].

II.3.3 Le modèle fluide

Le modèle fluide a également occupé un grand espace dans la simulation des décharges plasmas [25-31]. Il permet la description du phénomène de transport des différentes composantes de plasma en considérant ces dernières comme des grandeurs macroscopiques. Le modèle fluide est basé sur les équations du transport pour les particules. Elles sont obtenues en prenant les trois premiers moments de l'équation microscopique de Boltzmann

qui correspondent aux grandeurs physiques caractéristiques du plasma (densité, quantité de mouvement, pression cinétique, flux d'énergie thermique,...).

II.3.3.1 Equations de transport du plasma

II.3.3.1.1 L'équation de continuité pour les électrons et les ions

Cette équation représente l'équation de conservation de la masse. Elle est de la forme [3] :

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \vec{\nabla}_r \cdot (n \cdot \vec{v}) = G - L \quad II.60$$

n et \vec{v} représentent respectivement la densité et la vitesse des espèces. Le produit $(n \cdot \vec{v})$ est le flux de dérive et de diffusion.

G est un terme de génération ou de gain des espèces du plasma

L est un terme de perte des espèces du plasma.

$(G - L)$ désigne le terme de collision (sources) au sein du plasma.

II.3.3.1.2 L'équation de transfert de la quantité de mouvement

En multipliant les termes de l'équation 60 par $(m\vec{v})$ et en intégrant dans l'espace des vitesses, nous obtenons le deuxième moment qui correspond à l'équation de transfert de la quantité de mouvement :

$$\frac{\partial nm\bar{v}}{\partial t} + nm(\bar{v} \cdot \nabla_r)\bar{v} + \nabla_r p - n\bar{F} = \left(nm \frac{\partial \bar{v}}{\partial t} \right)_{coll} \quad II.61$$

Dans cette équation les termes n et m sont respectivement la densité et la masse macroscopiques des particules.

P est la force de pression en la supposant isotrope ($p = nk_B T$)

$\left(nm \frac{\partial \bar{v}}{\partial t} \right)_{coll}$ représente la force de friction qui dans un gaz faiblement ionisé se réduit à la

force de frottement sur les neutres

\bar{F} représente les différentes forces extérieures appliquées au système qui sont en général les forces électriques et magnétiques. En ne considérant que la force due au champ électrique, l'équation 61 s'écrit :

$$\frac{\partial n m v}{\partial t} + \nabla_r(n m v v) + \nabla_r p = -e E n - n m v v_m \quad II.62$$

v_m est la fréquence de collision élastique avec la particule.

En supposant que le gaz est presque isotrope (hypothèse des petites perturbations), on peut en négligeant des infiniment petits d'ordre supérieur ignorer le terme quadratique $\nabla_r(n m v v)$ et supposer que la pression est un scalaire, ainsi en régime stationnaire, l'équation 62 se réduit à un terme de dérive et un terme de diffusion. Son expression s'écrit alors :

$$n_p v_p = \Gamma_p = \text{sgn}(q_p) \mu_p E n_p - D_p \nabla n_p \quad II.63$$

Γ_p est le flux de dérive et diffusion

μ_p est un coefficient de mobilité défini par : $\frac{v_p}{E} = \frac{e}{m v_m}$

L'indice p représente les particules mises en jeu (électrons, ions - positifs ou négatifs-, métastables)

$\text{sgn}(q_p)$ est le signe accordé au flux de dérive. Il est négatif si les particules sont des électrons ou des ions négatifs, positif s'ils sont des ions positifs.

D_p est le coefficient de diffusion des électrons, donné par la relation : $\frac{k_B T_p}{e} \mu_p$

Le rapport des deux coefficients (diffusion et mobilité) pour les électrons donne la relation d'Einstein suivante :

$$\frac{D_e}{\mu_e} = \frac{k_B T_e}{e} \quad II.64$$

μ_e, D_e sont respectivement les coefficients de mobilité et diffusion électroniques

II.3.3.1.3 L'équation de l'énergie pour les électrons

Elle est donnée comme suit [3] :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{3}{2} p \right) + \nabla \cdot \frac{3}{2} (pv) + p \nabla \cdot v + \nabla \cdot q = \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{3}{2} p \right) \Big|_c \quad II.65$$

Avec $p = nkT$, la pression cinétique ; $q = -\kappa_T \nabla T$, le flux de chaleur où κ_T est la conductivité thermique.

Si on écrit :

$\varepsilon_e = \frac{3}{2} kT_e$ est l'énergie moyenne de l'électron.

q est donnée par : $q = -\frac{5}{3} n_e D_e \nabla \varepsilon_e$

\vec{E} est le champ électrique

Cette équation peut également s'écrire [26-27] :

$$\frac{\partial n_e \varepsilon_e}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\Gamma_{\varepsilon, e}) = S_{\varepsilon e} \quad II.66$$

Avec :

$$\Gamma_{\varepsilon, e} = -\frac{5}{3} n_e \varepsilon_e \mu_e E - \frac{5}{3} D_e \nabla (n_e \varepsilon_e) \quad II.67$$

$$S_{\varepsilon, e} = -e \Gamma_e \cdot E - \sum_{j=1}^p n_e N_g k_j \Delta \varepsilon_j \quad II.68$$

$\Gamma_{\varepsilon, e}$ est le flux d'énergie

$S_{\varepsilon, e}$ est le terme source d'énergie, représente le gain d'énergie des électrons par chauffage dû au champ électrique et la perte de leur énergie due aux collisions.

$\Delta \varepsilon_j$ est l'énergie gagnée ou perdue Durant les collisions inélastiques

k_j est le taux de réaction.

II.3.3.1.4 Equation de poisson

La fonction de distribution des particules chargées (électrons, ions) dépend du champ électrique extérieur d'où nécessité de coupler avec le système l'équation de poisson définie comme suit :

$$\nabla \vec{E} = -\Delta V = \frac{e}{\epsilon_0} (n_i - n_e) \quad II.69$$

Le modèle composé par les équations cinétiques des particules couplées avec l'équation de poisson est un modèle auto-cohérent.

II.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté brièvement les différents types de collisions élastiques et plus précisément les collisions inélastiques. Cette étude a permis de connaître les paramètres importants de collisions comme la section efficace, le libre parcours moyen et le taux de réaction qui sont des paramètres nécessaires dans la simulation. Nous avons également dévoilé les approches les plus répandues ainsi que le système d'équations indispensables à la modélisation par l'approche fluide.

Nous devons retenir que l'initiation à la modélisation des décharges plasmas requiert la compréhension des différents modèles et essentiellement le calcul des grandeurs hydrodynamiques lesquels servent comme données utiles dans les conditions aux limites et initiales afin d'aboutir à la convergence du programme mis en œuvre.

Enfin notons que la simulation des décharges plasmas et la précision des algorithmes de résolution exigent une bonne compréhension de la physique des plasmas ainsi que la mise au point du système d'équations et des paramètres de contrôle.

II.5 Bibliographie du chapitre II

- [1] J.L. Delcroix et A. Bers, « Physique des plasmas », Inter-Edition, 1994, CNRS Edition 20/22, Paris, ISBN 2-7296-0484-7, ISBN 2-271-05126-6, p141
- [2] B. Held, « Physique des Plasmas froids », Masson, Paris, 1994, ISBN :2-225-84580-8, ISSN : 0229-2434, p29
- [3] M. A. Liebermann et A.J. Lichtenberg, « Principles of plasma discharges and materials processing», ,A John Wiley &sons, INC Publication, ISBN 0-471-72001-1, USA, 2005,p 44
- [4] F. Alexander, A. Kennedy et A. Lawrence, «Plasma Physics and Engineering», Taylor& Francis Routledge, book isbn 13: 9780203334874, 2004, New York, NY 10001-2299, 2006, p24,
- [5] A. Granier, M.C. Bordage, J-B-A Mitchell, C Rebrion-Rowe, Collectif, «Plasmas Froids, Cinétiques, transports et transferts », Publication de l'université Saint-Etienne,2005, collection : integrations, N°7 , ISBN : 2862723916, 2-86272-391-6, 9782862723914
- [6] B. M.Smirnov, « Physics of Ionized Gaz», A Wiley –Interscience b Publication, John Wiley & Sons; Inc, New York,2001, ISBN 0-471-17594-3, p 65
- [7] Y.P. Raizer, « Gaz Discharge Physics », ISBN 3-540-19462-2, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York , ISBN 0-387-19462-2, Springer-Verlag New York Berlin Heidelberg, Moscow, April 1991
- [8] K. J. K. Lee, and J. W. Shon, « Analytic model for a dual frequency capacitive discharge», Phy. Plasmas, volume 10, N°11, 2003
- [9] J.P. Boeuf, « Numerical model of rf glow discharge», Phys. Rev A, Volume 36, N°6, Septembre15, 1987.
- [10] J.P. Boeuf, « Characteristics of a dusty non thermal plasma from a particle- in- cell Monte Carlo simulation», Physic ReviewA, Volume 46, N°12, 1992

- [11] M. Meyyappan and J.P. Kreskovsky, « Glow discharge simulation through solutions to the moments of Boltzman transport equation », *J. Appl. Phys.*, 68(4), 15 August 1990, 1506-1512
- [12] A. Bogaerts, R. Gijbels, « Numerical modelling of gas discharge plasmas for various applications », *Vacuum* 69 (2003) 37–52
- [13] L.Wang, B. Ke, T.L. Ni, F. Ding, M.D. Chen, X.D. Zhu, H.Y. Zhou and X.H. Wen, «Role of bias frequency in a dual electron cyclotron resonance-radio-frequency hybrid plasma », *Vacuum* 84 (2010) 348–351
- [14] J.A. Bittencourt, « Fundamentals of Plasma Physics », first edition 1986, British Library Cataloguing in Publication Data, ISBN 0-08-033924-7, ISBN 0-08-033923-9, p182-186
- [15] Ph. Belenguer and J. P. Boeuf, « Self-consistent low pressure RF discharge modelling: comparisons with experiments in clean and dusty plasmas », *Pure & Appl. Chem.*, Vol. 66, No. 6, 1994, pp. 1363-1372,
- [16] V. Georgieva, A. Bogaerts, and R. Gijbels, « Particle-in-cell-Monte Carlo simulation of a capacitively coupled radiofrequency ArCF₄ discharge: Effect of gas composition », *J. Appl. Phys.*, Vol. 93, No. 5, 1 March 2003, 2369-2379
- [17] A. Bogaerts, L. Wilken, V.Hoffmann, R.Gijbel and K. Wetzig, « Comparison of modeling calculations with experimental results for rf glow discharge optical emission spectrometry », *Spectrochimica Acta Part B* 57, 2002, 109–119
- [18] A.Bogaerts, T. Kathleen De Bleecker, I. Kolev, M. Madani, « Modeling of gas discharge plasmas: What can we learn from it? », *Surface & Coatings Technology* 200 , 2005, 62– 67
- [19] A.Bogaerts, E. Neytsa, R.Gijbelsa, J. Mullen, « Gas discharge plasmas and their applications », *Spectrochimica Acta Part B* 57, 2002, 609–658
- [20] T. Lafleur and R. W. Boswell, « Particle-in-cell simulations of hollow cathode enhanced capacitively coupled radiofrequency discharges », *Physics of Plasmas*, Vol.

- 19, 023508 , 2012.
- [21] Y. Zhang, W. Jiang, Q. Z. Zhang, and A. Bogaerts, « Computational study of plasma sustainability in radio frequency micro-discharges», *Journal of Applied Physics*, Vol. 115, 193301, 2014.
- [22] T. Lafleur and R. W. Boswell, « Particle-in-cell simulations of hollow cathode enhanced capacitively coupled radio frequency discharges », *Phys. Plasmas* 19, 023508 , 2012
- [23] T. Lafleur and R. W. Boswell, « Particle-in-cell simulations of ambipolar and non ambipolar diffusion in magnetized plasmas », *Phys. Plasmas* 19, 053505, 2012
- [24] D. P. Lymberopoulos and D. J. Economou, «Fluid Simulation of glow discharges: Effect of metastable atoms in argon », *J. Appl. Phys.*73(8), 1993, 3668-3679.
- [25] T. E. Nitschke and D. B. Graves, « A comparison of particle in cell and fluid model simulations of low-pressure radio frequency discharges», *J. Appl. Phys.*, Vol. 76, No. 10, 15 November 1994 , 5646-5660
- [26] J.P.Boeuf and L.C.Pitchford, « Two- dimensional model of a capacitively coupled rf discharge and comparisons with experiments in the Gaseous Electronics Conference reference reactor», *Physical review*, Vol51, N°2, 1995, 1376-1390
- [27] K. Bera, B. Farouk and Y H Lee, « Effects of reactor pressure on two-dimensional radio-frequency methane plasma: a numerical study», *Plasma Sources Sci. Technol.* 8 1999, 412–420
- [28] A. Salabas, G. Gousset, L.L. Alves « Charged particle transport modelling in silane–hydrogen radio-frequency capacitively coupled discharges », *Vacuum* 69 , 2003, 213–219
- P. S. Kothnur and L. L. Raja, « Two-dimensional simulation of a direct-current microhollow cathode discharge », *J. Appl. Phys.* 97, 043305, 2005, pp12
- [29] G J M. Hagelaar, G. Fubiani and J-P Boeuf, «Model of an inductively coupled negative ion source: I. General model description», *Plasma Sources Sci. Technol.* 20

2011, 015001 , 16pp.

- [30] X.X. Jiang, F. He, Q. Chen, T. Ge and J.T. Ouyan, «Numerical simulation of the sustaining discharge in radio frequency hollow cathode discharge in argon », Physics of Plasmas, 21, 033508 , 2014.
- [31] J. Hromadka, T. Ibehej and R. Hrach, « Computational study of plasma sheath interaction », Phys. Scr. T161 014068, 2014, 3pp.

Chapitre III

Modèle de transport en régime
stationnaire d'une micro-décharge

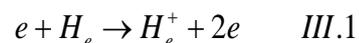
II.1 Introduction

L'étude théorique des caractéristiques d'un plasma froid de laboratoire est possible par simulation. Pour cela, il est nécessaire d'établir le bon modèle qui tient compte de l'interaction des différents paramètres qui sont à l'origine de ce plasma. Dans ce chapitre, nous présentons les résultats issus de la simulation d'une décharge continue à haute pression entre deux électrodes planes et parallèles, dans le cas d'un plasma d'Hélium. Ce chapitre est une suite du travail de magister [1] où nous allons étudier l'effet de la variation de la distance inter-électrode et de la pression sur l'évolution du champ électrique et du potentiel plasma au sein de la décharge. Nous allons tout d'abord décrire la méthode numérique utilisée pour la résolution du système d'équations régissant le phénomène de transport dans le plasma. Les équations utilisées sont les trois premiers moments de l'équation de Boltzmann avec l'approximation de dérive et diffusion. Le modèle est unidimensionnel, il est établi en langage Fortran.

III.2 Présentation du modèle Fluide

Notre modèle est simple. Il est basé sur les suppositions suivantes :

1. Dans la décharge, nous nous basons sur un seul processus d'ionisation direct de l'atome d'Hélium, représenté par l'équation suivante :



Cette réaction est choisie pour décrire le comportement électrique des décharges microscopiques dans l'hélium..

L'énergie de seuil pour le processus d'ionisation direct des atomes d'hélium étant de 24.58 eV.

2. La distribution en énergie des électrons est maxwellienne.
3. La température des ions (particules lourdes), est prise égale à celle du gaz
4. Nous négligeons l'effet de l'émission secondaire (pas d'effet d'impact sur les électrodes).

III.2.1 Modèle numérique

Le système d'équation utilisé est celui traité dans le chapitre II. Il se résume comme suit :

- L'équation de continuité pour les électrons (II.60) devient:

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (n_e \vec{v}_e) = k_i n_e N_g \quad III. 2$$

- L'équation de continuité pour les ions (II.60) s'écrit :

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (n_i \vec{v}_i) = k_i n_e N_g \quad III. 3$$

- L'équation de transfert de la quantité de mouvement avec approximation dérive-diffusion pour les électrons et les ions respectivement (II.63) devient:

$$n_e \mathbf{v}_e = -e \mu_e \mathbf{E} n_e - D_e \nabla n_e \quad III.4$$

$$n_i \mathbf{v}_i = e \mu_i \mathbf{E} n_i - D_i \nabla n_i \quad III.5$$

Où k_i , N_g , n_e , n_i , \vec{v}_e , \vec{v}_i , μ_e , μ_i , D_e , D_i sont respectivement le coefficient de la réaction d'ionisation, le nombre d'atomes d'Hélium, les densités électronique (e) et ionique (i), les coefficients de mobilité électronique et ionique, les coefficients de diffusion électronique et ionique.

Ce système est couplé avec l'équation de poisson donnée dans le chapitre II (équation II.60).

III.2.2 Les données de base

Le modèle fluide appliqué aux décharges plasmas, décrivant le transport des électrons et des ions par les trois premiers moments de l'équation de Boltzmann (traités dans le chapitre II et représentés par les équations citées ci-dessus), nécessite la détermination des coefficients de transports et des taux des différentes réactions. Ces coefficients dépendent en général de la fonction de distribution en énergie des électrons. Ils se calculent à partir des sections efficaces de collision par la résolution de l'équation de Boltzmann.

Les données de base tels que les coefficients de diffusion, les coefficients de mobilité et les coefficients de réaction pour les espèces chargées sont donc indispensables pour la simulation.

Si dans le modèle fluide, on ne considère pas l'équation d'énergie, Les coefficients de mobilité électronique et ionique μ_e et μ_i sont en général fonction du champ électrique local réduit E/N_g . Ils se calculent en général à partir des mesures expérimentales [2-3].

G.J.M. Hagelaar et al [4] ont développé un code numérique "BOLSIG+" ou « BE solver » qui permet le calcul des coefficients de transport des électrons et les taux de réactions.

Dans le cas de ce modèle simple, nous avons considéré le cas des mobilités électronique μ_e et ionique μ_i constantes. Elles sont inspirées de la littérature [5].

Nous avons calculé le coefficient de diffusion électronique D_e , en se basant sur la relation d'Einstein déjà donnée dans le chapitre II (équation II.64) [6].

Le coefficient de diffusion des ions est calculé à partir de la formule suivante :

$$D_i = \frac{kT_g \mu_i}{e} \quad III.6$$

Par ailleurs, pour des raisons de commodité, les propriétés de transport du plasma sont données en termes de coefficient de diffusion et mobilité réduits par le calcul suivant [5] :

$$D_k = D'_k \times \frac{760}{p} \quad III.7$$

$$\mu_k = \mu'_k \times \frac{760}{p} \quad III.8$$

Avec $k=$ (ion ou électron).

Ou $D'_k = 5.026 \times 10^{-5} m^2/s$ et $\mu'_k = 1.482 \times 10^{-3} m^2/V.s$ pour l'hélium He^+

Et $D'_k = 1.737 \times 10^{-1} \left(\frac{T_e}{17406} \right) m^2/s$ et $\mu'_k = -1.132 \times 10^{-1} m^2/V.s$ pour les

électrons. La température T_e est en Kelvins.

Afin de pouvoir valider nos résultats, nous avons utilisé le tableau suivant issu de la littérature [5] :

Paramètres d'entrée	micro discharge en DC
Gaz	He pur
Pression du gaz	300 -600 Torr
Température du gaz	393 K
Distance inter-électrodes	160-320 μm
Potentiel	-300, 300 V

Tableau III.1 : Paramètres importants dans la simulation

La géométrie considérée dans la simulation est présentée sur la figure 1.

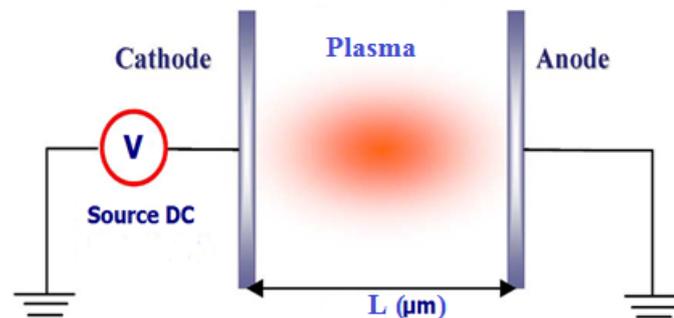


Figure III.1 : Géométrie du micro- réacteur modélisé [7]

Elle est constituée de deux électrodes planes et parallèles dont la distance est de l'ordre de quelques centaines de micromètres, entre lesquelles règne un plasma d'hélium sous une pression allant de 300 à 600 Torr. La cathode est alimentée avec une tension continue variant entre -300 et 300V.

III.2.3 Conditions aux limites

L'ensemble des équations décrit précédemment a été résolu avec les conditions aux limites suivantes:

Le potentiel au niveau de l'anode est nul ($V=0$)

Le potentiel au niveau de la cathode est égale à $-300V$ (ou $300V$).

Au niveau des électrodes ($x=0, x=d$), La densité des électrons est prise égale à 0.

III.2.4 Conditions initiales

Pour les conditions initiales que nous avons considérées :

A l'instant initial, $t=0$, les densités des charges initiales sont :

$$n_e = n_i = n_{e0} = 10^7 \text{ cm}^{-3}$$

Le potentiel est nul :

$$V = 0$$

III.2.5 Traitement numérique des équations du plasma

Le système d'équations cité ci-dessus (2-3-4-5) avec l'équation de poisson peut s'écrire sous la forme :

$$\text{Div}(-D_e \nabla n_e + n_e \mu_e \nabla V) + \frac{\partial n_e}{\partial t} = S_e \quad \text{III. 9}$$

$$\text{Div}(-D_i \nabla n_i - n_i \mu_i \nabla V) + \frac{\partial n_i}{\partial t} = S_i \quad \text{III. 10}$$

$$\Delta V = -\frac{\rho}{\epsilon_0} \quad \text{III. 11}$$

Avec $\rho = |e|(n_i - n_e)$

et $S_e = S_i = n_e v_i$

Le système d'équations citées ci-dessus (9-10-11) est composé d'équations différentielles à dérivées partielles. Ce système est non linéaire. De ce fait, nous avons choisi une discrétisation par la méthode des volumes finis avec un schéma numérique en amont. Le maillage de la géométrie est monodimensionnel divisé en N segments ou N mailles de centre x_k et de longueur L . Chaque maille a une taille $\Delta x_k = x_{k+1/2} - x_{k-1/2}$. Les indices demi-entiers désignent

les interfaces de la maille avec les mailles voisines représentées par les indices $k+1$ et $k-1$, comme c'est présenté par le schéma suivant (figure2) :

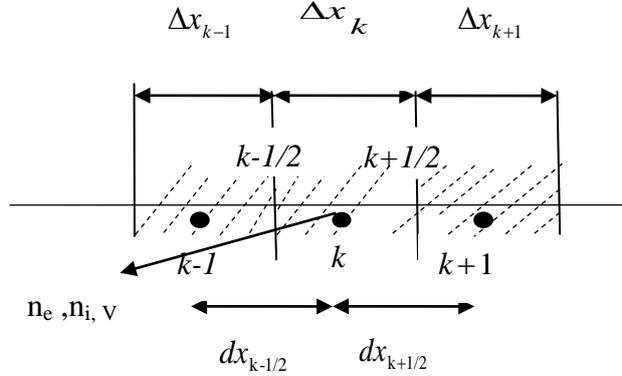


Figure III.2 : maillage 1D du micro-réacteur

La discrétisation spatiale par les volumes finis consiste à intégrer chaque équation dans un volume fini typique.

III.2.5.1 Discrétisation des équations de continuité

- La discrétisation de l'équation de continuité pour les électrons donne :

$$A_k n_{e,k}^{t+\Delta t} = A_{k+1} n_{e,k+1}^{t+\Delta t} + A_{k-1} n_{e,k-1}^{t+\Delta t} + S_e \quad III.12$$

Où A_k, A_{k+1}, A_{k-1} sont des coefficients qui dépendent des coefficients de diffusion et de mobilité ainsi que du potentiel V obtenus comme suit :

$$A_k = \frac{D_e}{dx_{k+1/2}} + \mu_e \frac{1}{2} \left(\frac{V_{k+1}^t - V_k^t}{dx_{k+1/2}} \right) + \frac{D_e}{dx_{k-1/2}} - \mu_e \frac{1}{2} \left(\frac{V_k^t - V_{k-1}^t}{dx_{k-1/2}} \right) + \frac{\Delta x_k}{\Delta t}$$

$$A_{k+1} = \frac{D_e}{dx_{k+1/2}} - \mu_e \frac{1}{2} \left(\frac{V_{k+1}^t - V_k^t}{dx_{k+1/2}} \right)$$

$$A_{k-1} = \frac{D_e}{dx_{k-1/2}} + \mu_e \frac{1}{2} \left(\frac{V_k^t - V_{k-1}^t}{dx_{k-1/2}} \right)$$

$$S_e = \frac{n_{e,k}^t \Delta x_k}{\Delta t} + KN n_k^t \Delta x_k$$

- L'équation de continuité pour les ions est traitée de la même façon que pour les électrons.

III.2.5.2 Discrétisation de l'équation de poisson

- La discrétisation de l'équation de poisson donne:

$$A_k V_k^{t+\Delta t} = A_{k+1} V_{k+1}^{t+\Delta t} + A_{k-1} V_{k-1}^{t+\Delta t} + S_i \quad III.13$$

La discrétisation du système d'équations permet d'obtenir une matrice triangulaire dont la résolution se fait grâce à l'algorithme de Thomas.

La méthode numérique basée sur un schéma implicite, a permis la convergence du programme pour des pas de temps de $\Delta t = 10^{-9}$ s.

III.2.6 Résultats et Discussion

Dans cette section, nous présentons les résultats obtenus dans une décharge continue pour une température du gaz égale à 393 K et pour une haute pression allant de 300 jusqu'à 600 Torr.

Les premiers résultats étaient acquis dans le travail de Magister [1] dans un mélange de gaz d'Hélium hydrogéné avec un pourcentage de 5% d'hydrogène. Cette simulation a été réalisée en considérant une dimension, pour une pression de 200 Torr et une température du

gaz égale à 300K dans un espace inter-électrodes de 350 μm . Les coefficients de diffusion et de mobilité ont été pris de la littérature [8]. Le potentiel appliqué à la cathode étant de -250V

La figure 3 montre respectivement l'évolution spatiale de la densité électronique et du profil du champ électrique [1]. Nous remarquons sur la figure 3(a) l'existence de la gaine de charge d'espace où la densité des électrons est nulle.

Dans la lueur négative, la densité électronique a une valeur maximale de $0.9 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$. La colonne positive n'existe pas. Nous remarquons d'après la figure 3(b) que le champ électrique est intense au niveau de la gaine avec une valeur maximale de l'ordre du 10^4 V/cm . Ces résultats sont comparés avec ceux trouvés dans la littérature, représentés sur la figure 3(c). Ils ont été obtenus par simulation de la décharge d'argon par la méthode particulière PIC-MCC à basse pression.

Nous remarquons également que la colonne positive n'existe pas. La valeur du champ électrique dans la littérature est 10 fois supérieure à celle trouvée par notre simulation, parce que nous avons négligé l'effet de l'émission secondaire et par conséquent l'ionisation est faible.

Comme extension de ce travail et afin de bien comprendre les phénomènes physico-chimiques gouvernant dans les décharges à haute pressions, nous avons étudié numériquement l'effet de la variation de la distance inter-électrodes et de la pression du gaz sur l'évolution des caractéristiques de la décharge.

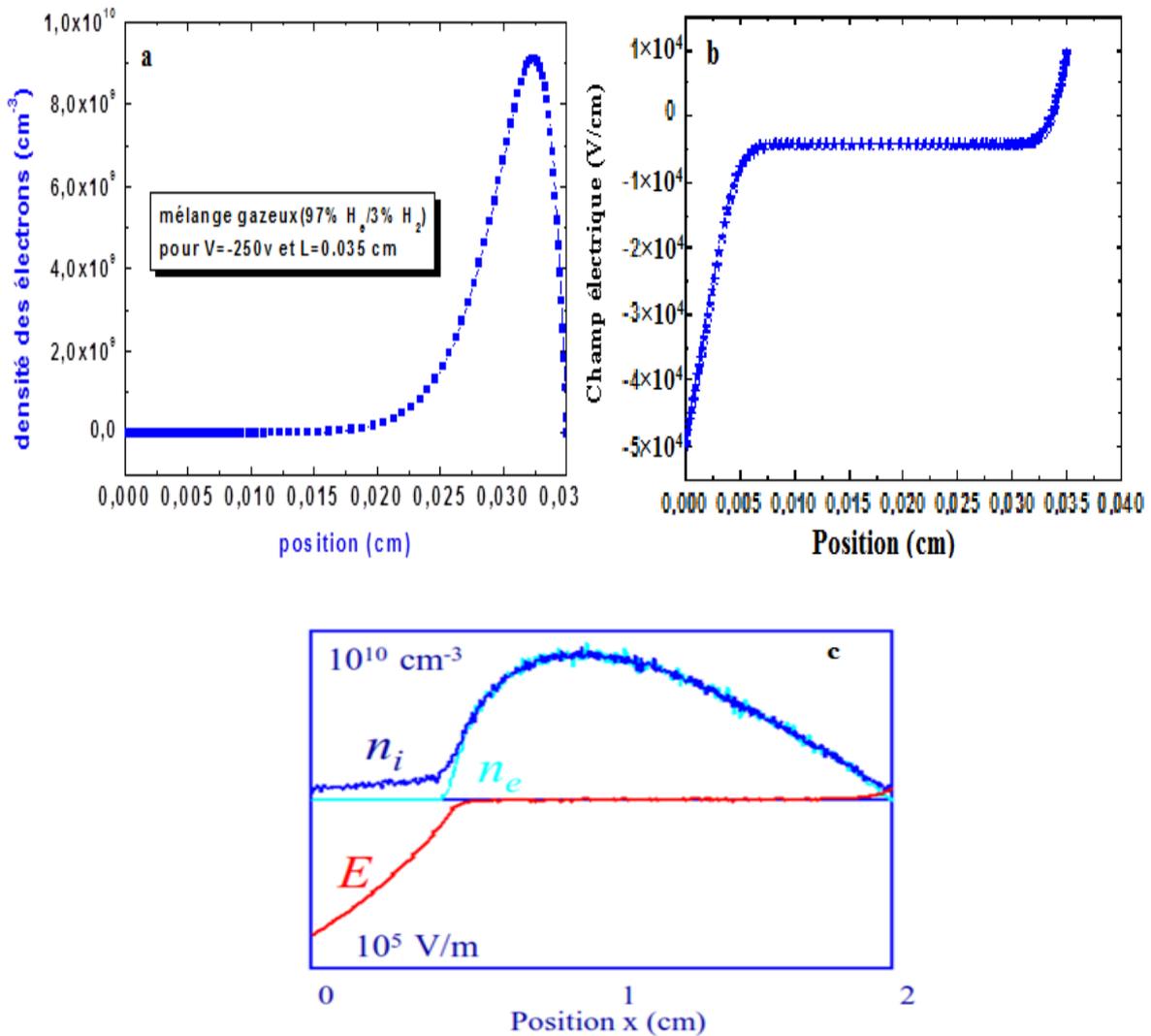


Figure III.3 : (a)- Evolution spatiale des électrons, (b)- Profil du champ électrique [1] dans un plasma d'hélium hydrogéné (5%) pour $p=200$ Torr, $d=0.035$ cm, $V=-250$ V en régime continu ; (c)- Résultats de la simulation de PIC-MCC d'une décharge lumineuse de l'Ar, avec $p=0.02$ Torr, $V_{DC}=300$ V, $d=2$ cm et $\gamma=0.2$ [9].

Dans cette étude, la simulation de la décharge continue est réalisée pour un gaz d'hélium pur, entretenu entre deux électrodes planes et parallèles dont la distance varie entre 160 et 320 μ m.

III.2.6.1 Effet de la distance inter-électrodes sur la variation de la densité électronique

La figure 4 montre le profil de la densité électronique pour différentes valeurs de l'espace inter-électrodes : 160, 240 et 320 μm .

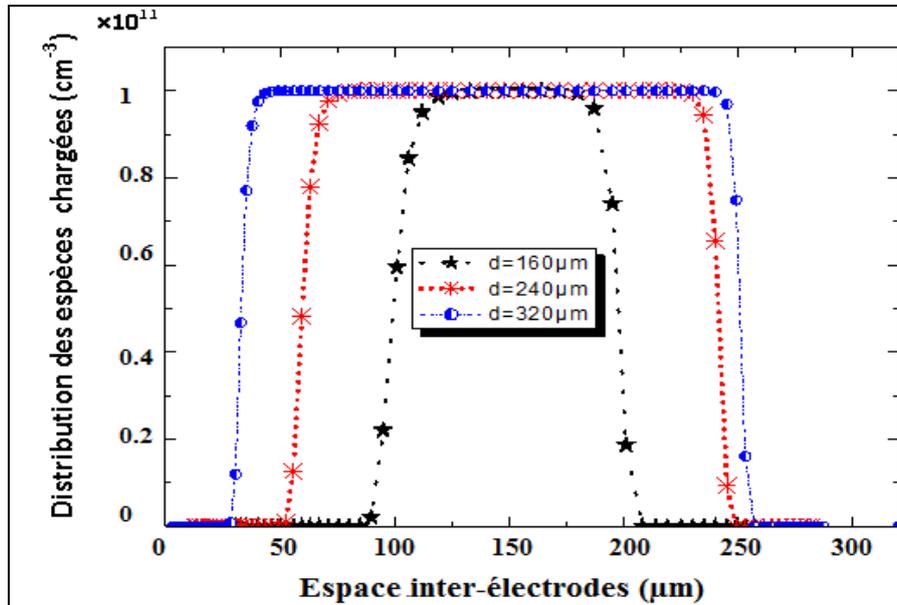


Figure III.4 : Distribution spatiale des particules chargées pour trois valeurs de l'espace inter-électrodes : $d=160\mu\text{m}$, $d=240\mu\text{m}$, $d=320\mu\text{m}$

L'allure montre que la densité électronique atteint sa valeur maximale de l'ordre de 10^{11} cm^{-3} dans le cœur du plasma. Dans la gaine cathodique, les électrons sont repoussés vers la colonne positive par le champ électrique créé dans les gaines. Nous remarquons également que la longueur de la colonne positive est affectée par la distance inter-électrodes. En effet elle augmente avec l'augmentation de la distance. Si on continue à diminuer l'écart entre les deux électrodes en respectant toujours la loi de Paschen en faisant accroître la pression du gaz, la colonne positive va disparaître et la décharge continue serait alors maintenue par la leur négative. C'est le principe des micro-décharges dans les applications industrielles notamment dans la fabrication des écrans d'affichage appliquées pour la génération de la lumière. X.Yuan et Raja [5] ont simulé une décharge capacitive radio fréquence à haute pression (HPG : high pressure discharge) de l'hélium pur par un modèle fluide. Ils ont étudié numériquement à une dimension la variation de la distance inter-électrode à pression fixe 600 Torr. Les résultats trouvés dans la figure 5 d'après Yuan et al confirment une augmentation

relativement faible du nombre d'électrons maximale au centre de la décharge en fonction des trois valeurs de l'espace entre les électrodes, mais ce nombre reste toujours au voisinage de 10^{11}cm^{-3} . Ils ont également prouvé que l'augmentation de la distance inter-électrodes affecte l'augmentation de la longueur de la colonne positive.

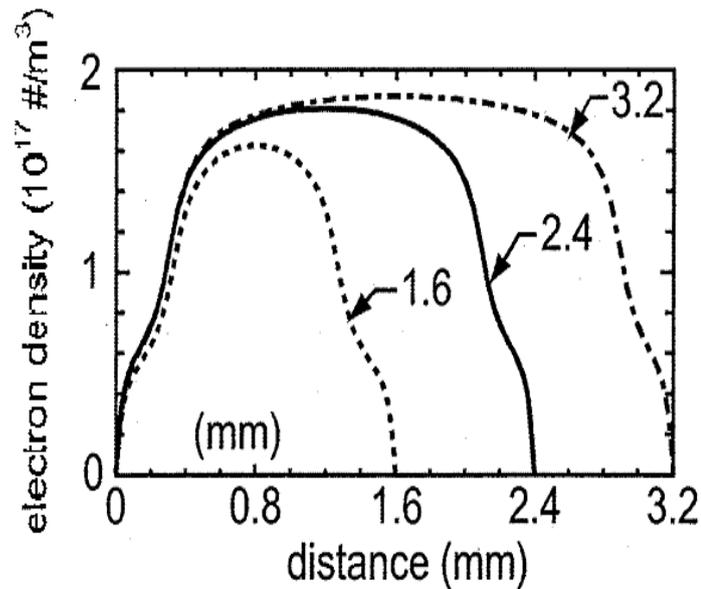


Figure III.5 : Variation de la distance inter-électrode d'une décharge de He pur à pression fixe $p=600\text{Torr}$, $f=13.56\text{Mhz}$ [5]

Par ailleurs, la simulation de Salabas [10] a abouti aux mêmes caractéristiques de la décharge malgré la différence des conditions de travail. Notre simulation concerne les micro décharges alors que celle de de Salabas traite le cas des macro décharges. Sur la figure 6, nous remarquons que la densité électronique est de l'ordre de 10^{10}cm^{-3} et elle s'étale du côté de l'électrode (cathode) alimenté par la tension radiofréquence .

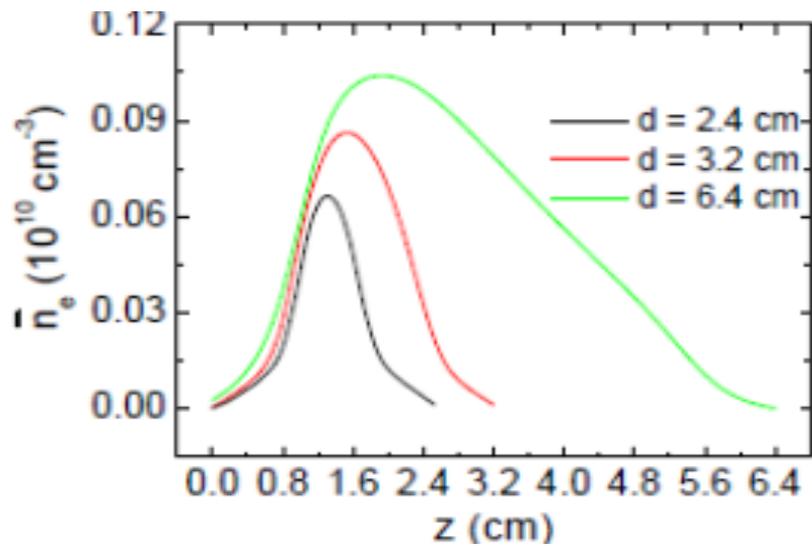


Figure III.6 : Variation de la distance inter-électrode d'une décharge de H_2 pur à pression fixe $p=0.5\text{Torr}$, $f=13.56\text{Mhz}$ [7]

III.2.6.2 Effet de la distance inter-électrodes sur l'évolution du potentiel plasma

La figure 7 illustre l'évolution du potentiel plasma en fonction de l'espace inter-électrodes pour deux cas a et b suivant les conditions aux limites:

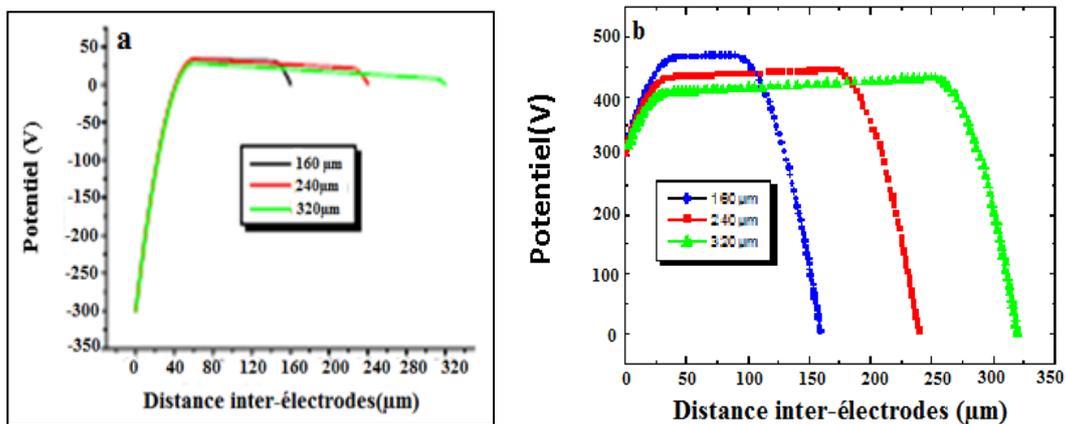


Figure III.7 : Profil du potentiel plasma pour trois valeurs de l'espace inter-électrodes : $d=160\mu\text{m}$, $d=240\mu\text{m}$, $d=320\mu\text{m}$ dans deux cas : a- $V=-300\text{V}$, b- $V=300\text{V}$ et $p=600\text{Torr}$

Dans le cas a, nous avons pris comme condition aux limites pour le potentiel appliqué -300V et pour le cas b, une valeur positive différente égale à 300V . Dans les deux cas et quelle que

soit la valeur de la tension d'entrée choisie, Nous remarquons bien que le potentiel plasma diminue avec l'élévation de l'espace inter-électrodes dans la région plasma. Pour le cas (b), la valeur maximale est d'environ 460V pour une distance de 160 μm , et elle est de 410 V pour $d=320 \mu\text{m}$.

Salabas [10] a également simulé une décharge capacitive (13.56 Mhz) d'hydrogène par un modèle fluide à basse pression, de l'ordre de 0.5 Torr et une tension maximale de 200 V. L'étude numérique de la variation du potentiel en fonction de la distance inter-électrode a donné le profil axial présenté dans la figure 8 ci-dessous :

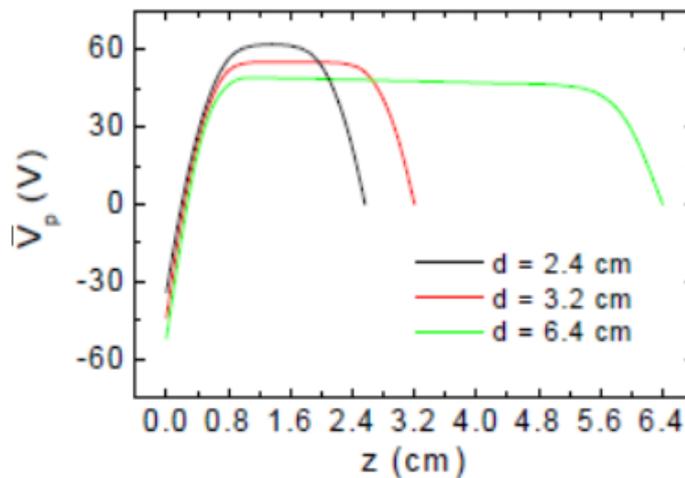


Figure III.8 : Profil du potentiel plasma pour trois valeurs de l'espace inter-électrodes : $d=2.4\text{cm}$, $d=3.2\text{cm}$, $d=6.4\text{cm}$ pour $p= 0.5 \text{ Torr}$ et $V_{\text{eff}}=200\text{V}$ [10].

La valeur du potentiel plasma dans ce cas est d'environ 60 V. Nous remarquons que le potentiel plasma diminue d'environ 60 V à 40V lorsque la distance inter-électrodes croit de 2.4cm à 6.4cm dans le centre de la décharge.

III.2.6.3 Effet de distance inter-électrodes sur l'évolution du champ électrique

La figure 10 représente la variation du champ électrique interne en fonction de la distance inter-électrode. Cette figure montre une augmentation de l'espace inter-électrodes qui est de l'ordre du micromètre. La valeur maximale du champ électrique est atteinte au niveau des gaines. Elle est de l'ordre du Kv/cm ($\approx 12500\text{V/cm}$). Cette valeur est typiquement supérieure à

celle dans les décharges basse pression (environ 0.5kV/cm) [5]. En outre les régions des gaines diminuent et la décharge dans ce cas est maintenue par l'effet de la colonne positive.

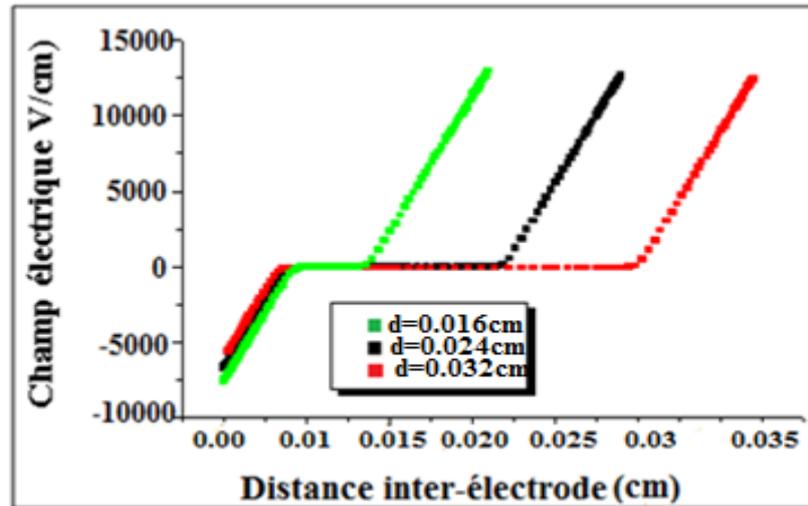


Figure III.9 : Profil du champ électrique pour trois valeurs de l'espace inter-électrodes : $d=160\mu\text{m}$, $d=240\mu\text{m}$, $d=320\mu\text{m}$ pour $p=600\text{Torr}$

La figure 10 montre la variation du champ électrique axial réduit en fonction de la variation de l'espace inter-électrodes prise de la littérature [10]. Là aussi nous remarquons l'élévation de la longueur de la colonne positive due à l'accroissement de la distance inter-électrodes.

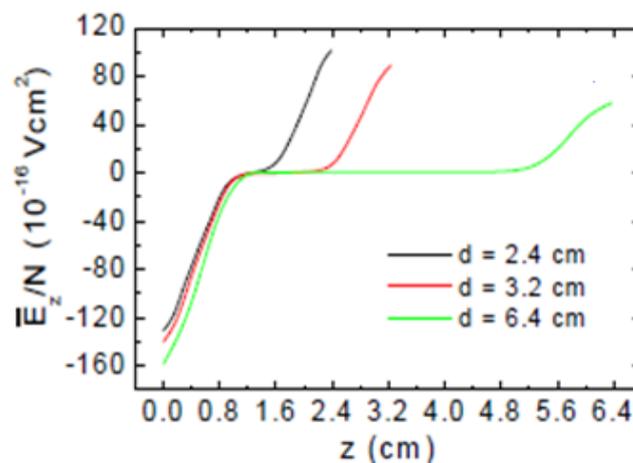


Figure III.10 : Profil du champ électrique axial pour trois valeurs de l'espace inter-électrodes : $d=2.4\text{cm}$, $d=3.2\text{cm}$, $d=6.4\text{cm}$ pour $p=0.5\text{Torr}$ et $V_{rf}=200\text{V}$ [7]

III.2.6.4 Effet de la pression du gaz sur l'évolution du potentiel électrique

Nous avons simulé l'effet de la variation de la pression du gaz de 300 à 600 Torr sur le potentiel et le champ électrique. Sur la figure 10, nous distinguons la relation entre la variation de la pression et l'évolution du potentiel plasma dans l'espace inter-électrodes.

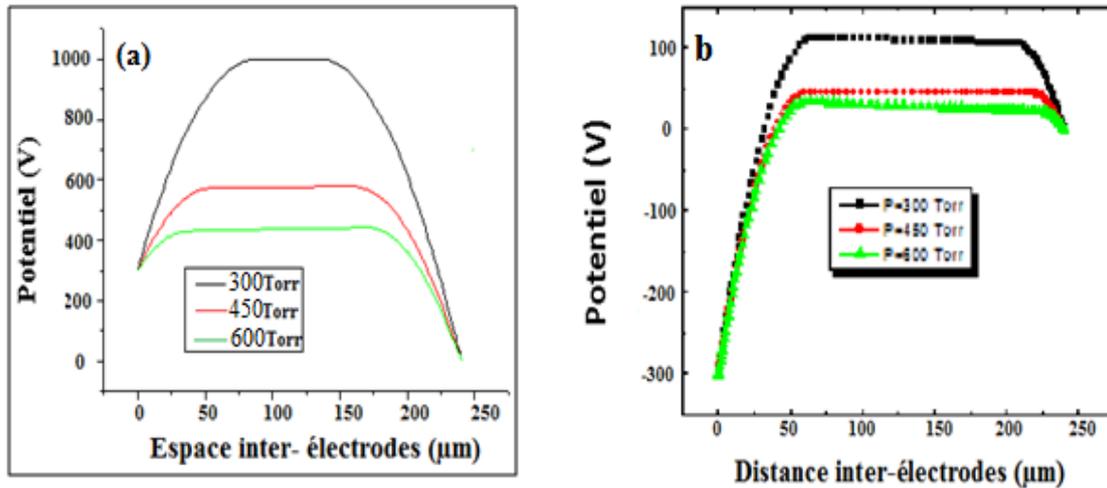


Figure III.11: Profil du potentiel plasma pour trois valeurs de la pression du gaz: $p=300$ Torr, $p=450$ Torr, $p=600$ Torr dans deux cas : a- $V=300$ V, b- $V=-300$ V et $d=240$ μm

Nous remarquons dans le cas (a) que le potentiel plasma diminue d'environ de 1000 V à 410 V si la pression du gaz augmente de 300 à 600 Torr. Ceci est dû à l'augmentation de la densité plasma sous l'effet de la pression.

III.2.6.5 Effet de la pression du gaz sur l'évolution du champ électrique

La figure 12 montre l'effet de la pression sur l'évolution spatiale du champ électrique. Le profil présente une augmentation du champ électrique au niveau des gaines de charge d'espace. La valeur maximale est approximativement 20kV/cm pour une pression de 300 Torr. L'épaisseur des gaines dans ce cas s'élargit et la longueur de la colonne positive se réduit.

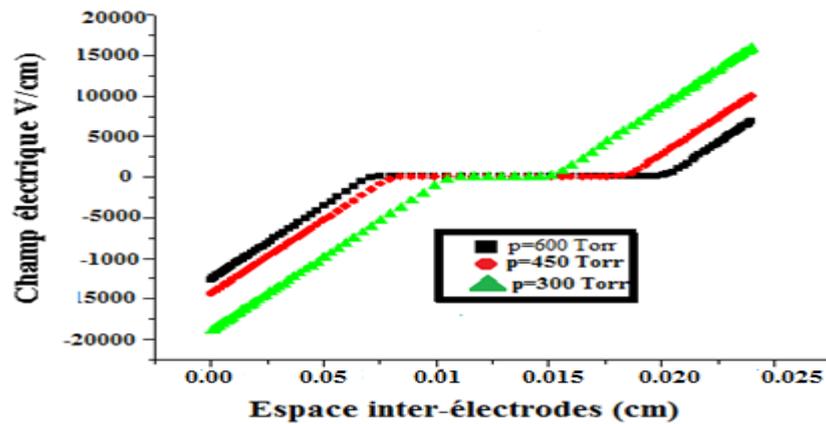


Figure III.12 : Profil du champ électrique pour trois valeurs de la pression du gaz : $p=300$ Torr, $p=450$ Torr, $p=600$ Torr avec $d=240 \mu\text{m}$

III.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats issus de la modélisation de la décharge électrique de l'hélium à haute pression dans un espace inter-électrodes de l'ordre du micromètre. Les équations du plasma ont été discrétisées par la méthode des volumes finis. La résolution du système différentiel à dérivés partielles acquis a été accomplie par l'algorithme de Thomas écrit en langage Fortran.

Afin de valider nos résultats, nous avons opté pour la comparaison avec la littérature. Ces résultats ont fait preuve d'une similitude évidente de notre modèle du point de vue qualitatif.

Cette simulation nous a permis de faire une étude paramétrique des propriétés électriques du plasma, tels que la densité, le potentiel et le champ électrique. Les résultats obtenus indiquent l'augmentation de la densité électronique pour une augmentation de la distance inter-électrodes. Par contre le potentiel plasma diminue et la colonne positive s'élargit lorsque la pression augmente.

La tâche accomplie s'avère délicate car le manque de données de base et la non maîtrise d'une méthode numérique adéquate pour modéliser en multi dimension les phénomènes physico-chimiques risquent d'aboutir à une divergence du programme. A cet effet, le recours à un logiciel performant devient une nécessité absolue.

III.4 Bibliographie du chapitre III

- [1] A. Berkane, «Contribution à la compréhension de processus se produisant lors de l'élaboration de films dans un plasma froid », mémoire de magister, Université Mentouri de Constantine, 20-06-2006
- [2] E. Gogolides and H.H. Sawin, «Continuum modeling of radio-frequency glow discharges. I. Theory and results for electropositive and electronegative gases», *Appl. Phys.*, Volume 72, N°.9, 1 November 1992, 3971-3987
- [3] E. Gogolides and H.H. Sawin, «Continuum modeling of radio-frequency glow discharges. II. Parametric studies and sensitivity analysis», *J. Appl. Phys.*; Volume 72 N°.9, 1 November 1992, 3988-4002
- [4] G.J.M. Hagelaar and L.C. Pitchford, «Solving the Boltzmann equation to obtain electron transport coefficients and rate coefficients for fluid models», *Plasma Sources Sci.Technol.* 14 , 2005, 722–733, [doi:10.1088/0963-0252/14/4/011](https://doi.org/10.1088/0963-0252/14/4/011)
- [5] X. Yuan and L.L. Raja, « Computational Study of Capacitively Coupled High-Pressure Glow Discharges in Helium», *IEEE Transactions on Plasma Science*, Vol. 31, N°. 4, August 2003, 495-503.
- [6] G. J. M Hagelaar, G. M. W. Kroesen, «Speeding up fluid models for gas discharges by implicit treatment of the electron energy source term», *Journal of computation physics* 159, 2000, 1-12
- [7] J.C.F. Iza, *Member, IEEE*, J.K. Lee, *Senior Member, IEEE*, and C-Mo Ryu, « Electron and Ion Kinetics in a DC Microplasma at Atmospheric Pressure », *IEEE Transactions On Plasma Science*, Vol. 35, N°. 5, October 2007, 1274-1278
- [8] G. J. M. Hagelaar, G. M. W. Kroesen, "Modelling of the micro discharges in plasma addressed liquid crystal displays," *J. Appl. Phys.* Vol. 88, N° 5, 1 September 2000,

2252-2262

- [9] Micheal A. Liebermann et Allan J. Lichtenberg, « Principles of plasma discharges and materials processing », A John Wiley & sons, INC Publication, ISBN 0-471-72001-1, USA, 2005.
- [10] Aurel Salabas, « Fluid model for charged particle transport in capacitively couled radio-frequency discharges », these de doctorat en physique, 2003, Université technique de Lisbonne, p133

Chapitre IV

**Simulation d'une
microdécharge à cathode creuse
par le logiciel Comsol**

IV.1 Introduction

Les décharges radiofréquences peuvent générer des plasmas hors équilibre thermodynamiques stables sans streamer ou filamentation, dans des cavités de l'ordre du submillimétrique à haute pression comme celles en DC. Dans ce travail, nous allons présenter une étude numérique d'une micro-décharge d'un gaz d'argon créé à haute pression. Le but de notre travail est de pouvoir simuler et prévoir les propriétés physiques et chimiques qui se produisent dans la microcathode creuse (MHCD) et de comparer ses caractéristiques et ses performances en RF haute pression à celles en DC. Pour cela, nous commençons par décrire le modèle physique et chimique en présentant le système d'équations gouvernant. Par la suite, nous présenterons les résultats de notre simulation par l'utilisation du logiciel multiphysics Comsol [1] à haute pression puis nous terminerons par une conclusion.

IV.2 Présentation du modèle

IV.2.1 Description de la géométrie du microréacteur

La géométrie du microréacteur plasma que nous avons considéré dans cette thèse est présentée ci-dessous dans la figure1. Elle est inspirée du modèle proposé par Schoenbach et al [2-3] dans le but de pouvoir générer un microplasma stable et diffus à pression

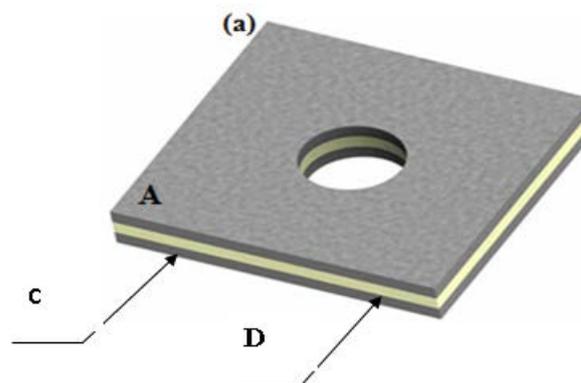


Figure IV.1 : Géométrie du microréacteur [2-3]

atmosphérique dans de petites dimensions. Avec les conditions de travail à haute pression, Cette structure a permis de produire une lumière excimère très efficace en régime continue (DC) ou pulsé [4-5]. Par la suite ce modèle géométrique a été traité par plusieurs chercheurs à travers des études expérimentales, analytiques et numériques en DC [6-15]. Peu d'études ont été menées sur les micro-décharges en radiofréquence (RF) [16-18] et en particulier avec cette structure [19-20]. Cependant certains phénomènes physico-chimiques restent encore mal expliqués.

La configuration MHCD est un système multicouche ouvert composé de deux couches métalliques en molybdène (Mo) de 150 micromètres d'épaisseur, séparées par un isolant en alumine (Al_2O_3) de 250 microns d'épaisseur. Un trou de 400 microns de diamètre est percé à travers cette structure multicouche. La figure 2 représente une coupe transversale du microréacteur où on peut voir le trou cylindrique percé avec ses directions axiales (Z) et radiale (R).

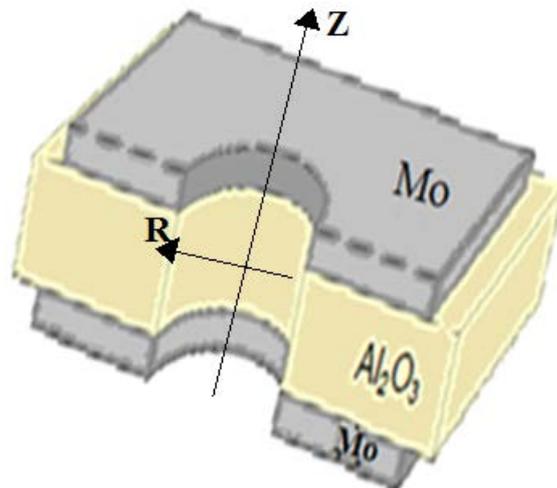


Figure IV.2 : Coupe transversale du microréacteur [19]

Les couches métalliques de la structure sont reliées à un générateur RF basé sur une conception de faible puissance, en général inférieure à 50W [19-20, 21-23]. Le transfert de puissance RF au plasma est assuré par un circuit d'accord externe. La cathode est reliée à la source RF et l'anode à la masse comme dans les décharges à faible pression.

Comme la simulation est bidimensionnelle, nous avons la géométrie plane représentée par la figure 3 ci-dessous. Cette géométrie est redessinée en se servant de la boîte d'outils de

« Model Builder » du logiciel Comsol par l'utilisation de la fenêtre « Geometry » avec les dimensions prévues. L'axe horizontal correspond à la direction axiale Z, noté par X sur le schéma du maillage et l'axe verticale correspond à la direction radiale R, noté par Y.

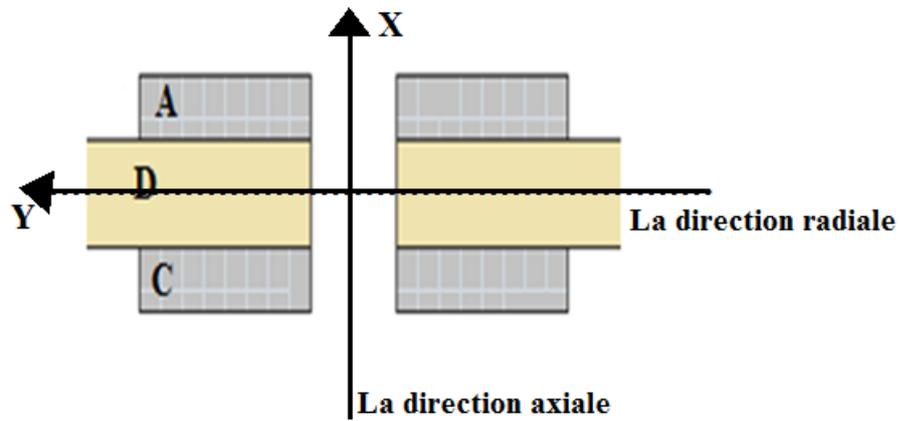


Figure IV. 3 : Géométrie plane du microréacteur

Le maillage de la structure est défini en utilisant la fenêtre « Mesch ». La figure 4 représente la géométrie dessinée par le biais du logiciel « Comsol » avec le maillage réalisé. Dans le cas de cette étude, il est de type extrarfin avec un total de 2612 éléments.

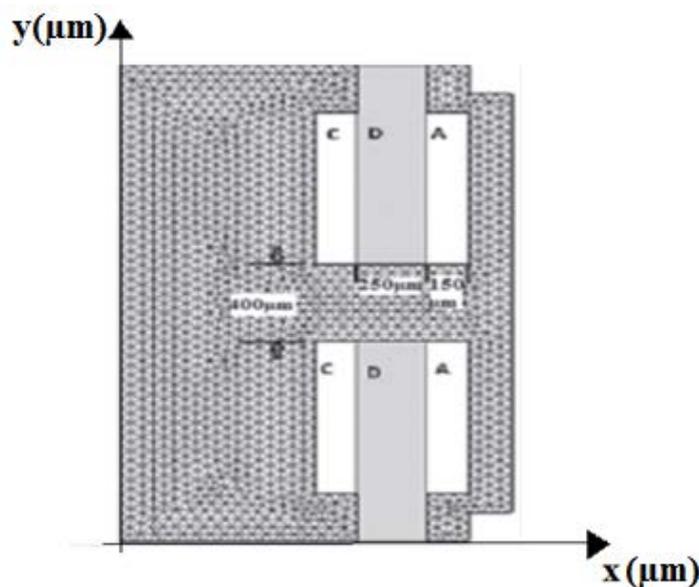


Figure IV.4 : Géométrie d'une microcathode avec maillage [24]

Dans un premier temps, la simulation est effectuée pour une pression de 100 Torr et une tension V_{rf} égale à 150V, dans un espace de 400 micromètres, assurant un produit $p \times d$ égale à 4 Torr.cm.

IV.2.2 Le modèle chimique

Les différentes réactions chimiques prises en considération dans ce modèle sont la réaction élastique, l'excitation, la réaction super-élastique, l'ionisation directe, l'ionisation par étape, l'ionisation penning, quenching des métastables. Elles sont résumées dans le tableau suivant [1] :

Reactions	Formules	Type	energie	Taux de réaction
1	$e+Ar \Rightarrow e+Ar$	Elastique	0	k_1
2	$e+Ar \Rightarrow e+Ar^*$	Excitation	11.50	k_2
3	$e+Ar^* \Rightarrow e+Ar$	Super élastique	-11.50	k_3
4	$e+Ar \Rightarrow 2e+Ar^+$	Ionisation directe	15.8	k_4
5	$e+Ar^* \Rightarrow 2e+Ar^+$	Ionisation Step wise	4.42	k_5
6	$Ar^* + Ar^* \Rightarrow e+Ar+Ar^+$	Ionisation Penning	-	k_6
7	$Ar^* + Ar \rightleftharpoons Ar+Ar$	Quenching des métastables	-	k_7

Tableau IV.1 : Différentes réactions prises en considération dans la simulation [1]

IV.2.3 Le modèle physique

Le modèle fluide utilisé est basé sur les trois premiers moments de l'équation de Boltzmann. Les espèces considérées dans ce travail sont les ions (Ar^+), les métastables (Ar^*) et les électrons (e). Le système d'équations gouverné par ce modèle est constitué donc par l'équation de continuité pour les trois espèces, déjà donnée dans le chapitre II (II.60), l'équation de transfert de la quantité de mouvement avec approximation dérive et diffusion (II.63) et l'équation d'énergie pour les électrons (II.66). Ces trois équations sont couplées avec l'équation de poisson (II.69). Ce système d'équations s'écrit alors :

- **L'équation de continuité** , l'équation II.60 devient [24] :

Pour les électrons :

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + \vec{\nabla}(n_e \cdot \vec{v}_e) = k_4 n_e n_i + k_5 n_e n_* + k_6 n_*^2$$

Pour les ions :

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} + \vec{\nabla}(n_i \cdot \vec{v}_i) = k_4 n_e n_i + k_5 n_e n_* + k_6 n_*^2$$

Pour les métastables :

$$\frac{\partial n_*}{\partial t} + \vec{\nabla}(n_* \cdot \vec{v}_*) = k_2 n_e N_g - k_3 n_e n_* - k_5 n_e n_* - 2k_6 n_*^2 - k_7 n_* N_g$$

➤ **Pour l'équation de la quantité de mouvement**, et par approximation de dérive et diffusion, nous obtenons d'après l'équation II.63 pour les électrons et les ions respectivement :

$$\Gamma_e = -e\mu_e E n_e - D_e \nabla n_e$$

$$\Gamma_i = e\mu_i E n_i - D_i \nabla n_i$$

Pour les métastables, on ne considère que le terme de diffusion dans l'équation II.63 :

$$\Gamma_* = n_* v_* = -D_* \nabla n_*$$

Où n_* , v_* et D_* sont respectivement la densité ; la vitesse et le coefficient de diffusion du métastable.

➤ **L'équation pour l'énergie** (équation II.66)

$$\frac{\partial n_e \mathcal{E}_e}{\partial t} + \vec{\nabla}(\Gamma_{\mathcal{E}_e}) = S_{\mathcal{E}_e}$$

➤ **L'équation de poisson** (équation II.69)

$$\nabla \vec{E} = -\nabla \cdot \epsilon \epsilon_0 \vec{\nabla} V = \frac{e}{\epsilon_0} (n_i - n_e)$$

IV.2.4 Conditions aux limites

La condition aux limites pour le flux électronique au niveau des parois (électrodes ou diélectrique) est donnée par [1]:

$$n \Gamma_e = \frac{1}{2} v_{e,th} n_e - \sum \gamma_i (\Gamma_i \cdot n) \quad IV.1$$

γ_i est le coefficient de l'émission secondaire.

$v_{e,th}$ est la vitesse thermique des électrons donnée dans le chapitre II (II.52) et déterminée par :

$$v_{e,th} = \sqrt{\frac{8 k_B T_e}{\pi m_e}}$$

Γ_i est le flux des ions sur les parois

Par ailleurs, le potentiel électrique doit satisfaire les conditions suivantes:

$V = 0$ à l'électrode connectée à la masse

$V = V_{rf} \sin 2\pi f t$ à l'électrode alimentée

avec: $f = 13.56 \text{ Mhz}$ et $V_{rf} = 150 \text{ V}$.

IV.2.5 Les conditions initiales

Pour les conditions initiales que nous avons considérées afin de satisfaire la convergence du programme :

A l'instant initial, $t=0$, les densités des charges initiales sont :

$$n_e = n_i = n_{e0} = 10^{13} \text{ m}^{-3}$$

Le potentiel est nul :

$$V = 0$$

Et la température électronique est de :

$$T_e = T_{e0} = 4 \text{ eV}$$

IV.3 Traitement numérique

Le modèle que nous avons utilisé pour étudier la MHCD en RF est basé sur la solution des équations de transport des électrons, des ions et des métastables, couplées avec l'équation de Poisson.

Comme la géométrie de notre modèle est composée de trois parties : cathode, diélectrique et anode, avec un creux cylindrique à l'intérieur, et comme la simulation est bidimensionnelle comprenant des équations non linéaires, différentielles à dérivés partielles (EDP) et couplées avec l'emploi de sept processus chimiques, le traitement numérique s'avère délicat et long. Pour cela, nous avons utilisé le logiciel commercial multiphysics « Comsol ». C'est un outil de simulation puissant car il peut traiter plusieurs physiques. En effet il comprend un certain nombre de modules qui peuvent être couplés entre eux. Par exemple, on couple le module plasma avec le module transfert de chaleur. Il permet aussi de faire le maillage d'une à trois dimensions. Il est doté d'une bibliographie riche de données. Il est aussi à base d'éléments finis pour la discrétisation du problème EDP dépendant du temps comme il permet de résoudre plus facilement le système non linéaire par un solveur robuste Newton en un temps court. Nous avons effectué notre simulation par ce logiciel à l'aide des processeurs Intel, Core (TM) 2 Duo CPU, 2.93GHz, 2.94 GHz, disponibles au niveau de notre laboratoire LMI.

Dans le module plasma, « Comsol » dispose de différents modèles de réacteurs plasmas et leurs régimes de fonctionnement, sans oublier les modèles numériques incorporés comme le modèle fluide ainsi que la cinétique des gaz. La tâche que doit accomplir l'utilisateur du logiciel est de savoir dessiner la géométrie, choisir le module et les réactions chimiques nécessaires ainsi que l'optimisation d'un maillage adéquat et le bon choix des conditions aux limites et initiales. Cependant la mauvaise conception du maillage et le mauvais choix des conditions aux limites et initiales peuvent ralentir la convergence du programme et mener jusqu'à sa divergence.

IV.4 Résultats et Discussion

Les résultats de notre simulation de la décharge d'argon dans la microcathode creuse en régime RF, pour une température de gaz de 300 K à haute pression sont analysés dans cette section. Nous présentons dans un premier temps les propriétés de la décharge pour une pression de 100 Torr en l'absence de l'émission secondaire d'électrons par la cathode. Par la

suite, nous traiterons l'effet d'un coefficient d'émission secondaire non nul et nous terminerons l'étude par l'analyse de l'effet de la pression du gaz sur les propriétés de la MHCD.

IV.4.1 Evolution de la densité électronique et du courant dans la micro cathode creuse au cours du temps de la simulation

Ces résultats obtenus pour une décharge radiofréquence du gaz Ar, sont présentés pour une pression $p=100$ Torr. L'effet de l'émission secondaire est négligeable.

Pour plus de commodité, nous utiliserons le terme «cathode» pour décrire l'électrode alimentée par la tension RF et «anode» pour décrire celle reliée à la masse.

La distribution de la densité des électrons dans la MHCD pour différents instants de la simulation ($t= 0.44; 0.66; 2.65; 6.10$ and $7.58 \mu\text{s}$) est présentée sur la figures 5.

Dans les cas (a) à (e), le profil de la densité des électrons est observé entre la cathode et le diélectrique tout le long de la ligne centrale de la décharge, à l'intérieur de la cathode creuse. Une forme annulaire avec un diamètre de $200\mu\text{m}$ et une densité maximale de $4.47 \times 10^{17}/\text{m}^3$ apparaît à l'intérieur du centre du trou dans la figure 5(a) à $t=0.44 \mu\text{s}$. Dans ce cas, l'épaisseur de la gaine auprès de la cathode est égale approximativement à la moitié de la dimension du rayon du creux ($100\mu\text{m}$). Cette forme évolue dans le temps et une seconde région de plasma apparaît à l'extérieur de la cathode creuse observée dans les figures 5(c) à 5(e).

Dans tous les cas, nous remarquons un confinement des électrons dans le centre du trou avec un prolongement axial qui atteint le côté arrière de la surface de la cathode et aussi la région de l'anode [24].

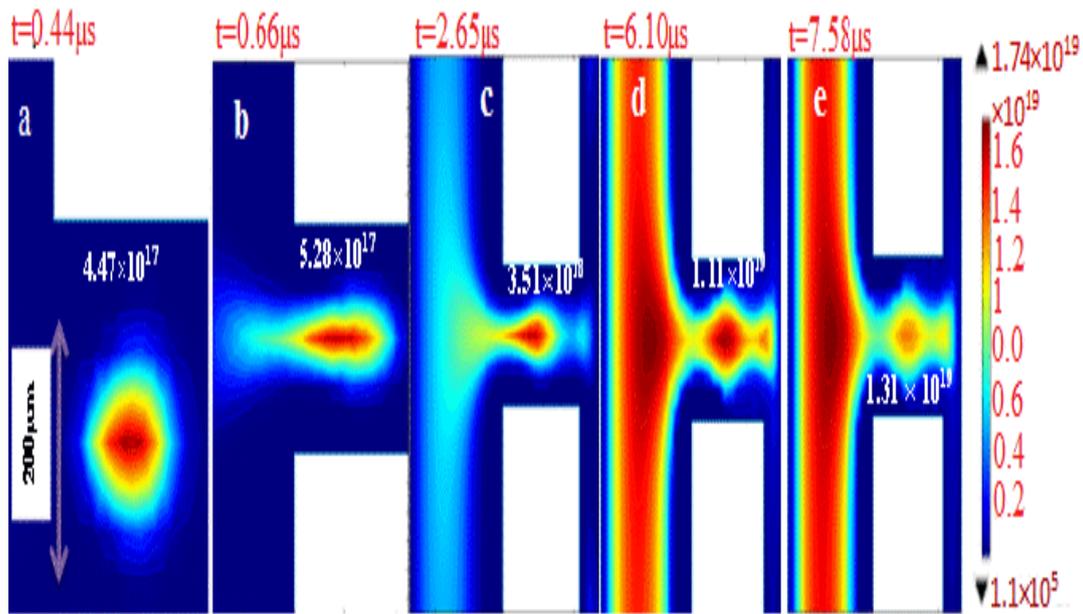


Figure IV.5 : Contour de la densité des électrons dans la MHCD pour $t =$: (a) $0.44\mu\text{s}$; (b) $0.66\mu\text{s}$; (c) $2.65\mu\text{s}$; (d) $6.10\mu\text{s}$ and (e) $7.58\mu\text{s}$ [24]

Il est donc important de noter que dans la figure 5(e), la micro- décharge est caractérisée par trois régions ou zones de plasma séparées :

- Une zone à haute densité d'électrons, située à l'extérieur du creux atteint une valeur de $1.7 \times 10^{19}/\text{m}^3$
- Une deuxième région se situe au milieu du creux avec une densité maximale de $1.3 \times 10^{19}/\text{m}^3$
- La troisième région se trouve à l'intérieur du creux au niveau de l'anode. Elle présente une faible densité électronique.

❖ la répartition des électrons dans la MHCD est non uniforme au niveau des électrodes et du diélectrique. En effet, sur la figure 6, nous remarquons qu'au niveau de la cathode, existe une région complètement vide d'électrons entre le cœur du plasma et la surface de l'électrode indiquant l'existence d'une gaine de charge d'espace considérable où règne un champ électrique. Par contre, au niveau du diélectrique, nous observons que la gaine de charge d'espace est moins importante devant le diamètre du trou.

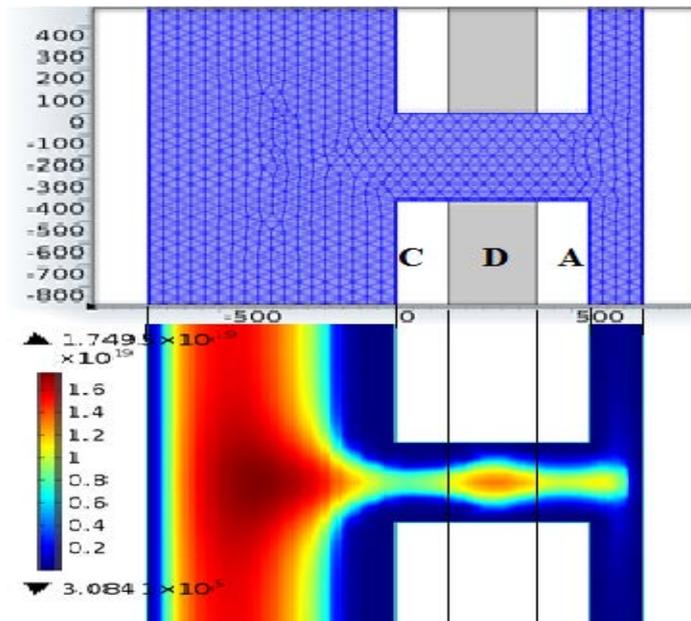


Figure IV.6 : Contour de la densité des électrons dans la MHCD montrant la répartition non uniforme des électrons dans la MHCD

Lazzaroni et al [14] ont trouvé que la densité des électrons varie de $6 \times 10^{19}/\text{m}^3$ à 30 Torr jusqu'à $8 \times 10^{19}/\text{m}^3$ à 150 Torr, dans une décharge continue anormale de l'argon, avec les conditions opératoires de courant et de tension respectivement 1mA et 250V. Par contre, ils ont trouvé dans le régime auto-impulsionnel que la densité des électrons à 150 Torr atteint la valeur de $4 \times 10^{21}/\text{m}^3$ dans la même configuration géométrique utilisée dans notre modèle.

De même, Kothnur et al [25] ont trouvé dans leur simulation, une densité maximale d'électrons de l'ordre de $10^{20}/\text{m}^3$ pour une gamme de pression allant de 300 à 1000 Torr et un courant variant de 0.38 mA à 0.5 mA dans le régime anormal d'une décharge d'Hélium en DC comme nous le voyons sur la figure 7.

De même, Deconinch et al [12] ont trouvé une densité électronique de l'ordre de $10^{19}/\text{m}^3$. Cette densité croît avec le courant pour une pression fixe de 50 Torr.

La densité élevée des électrons obtenue dans la littérature indique que la fiabilité des dispositifs des décharges à courant continu est limitée par le courant et la tension appliqués en raison de la température élevée des gaz et de la pulvérisation cathodique [20]. En effet une augmentation du courant est due grâce une croissance du nombre d'électrons émis de la surface de la cathode et non pas par une augmentation de la densité de courant [26].

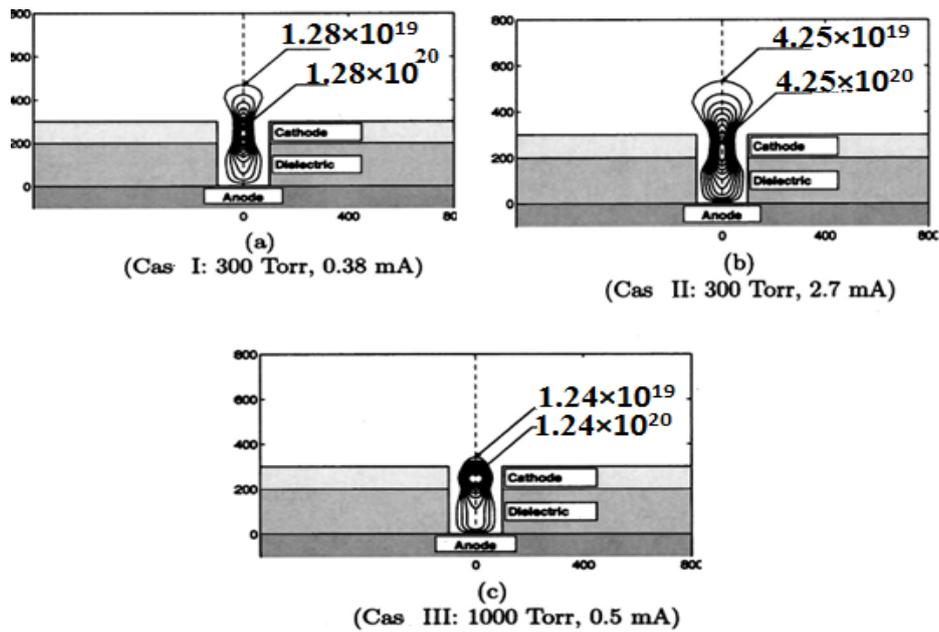


Figure IV.7 : Contour de la densité des électrons dans la MHCD (unités en m^{-3}) dans le cas d'une décharge d'hélium continue avec $\gamma_i = 0.105$ pour les ions et $\gamma_* = 0.115$ pour les métastables pour :a) $I = 0.38$ mA , b) $I = 2.7$ mA et $p = 300$ Torr, c) $I = 0.5$ mA et $p = 1000$ Torr [25]

La figure 8 illustre l'évolution du courant d'électrons dans la MHCD pour différents instants de la simulation ($t = 0.44; 0.66; 2.65; 6.10$ and $7.58 \mu s$) :

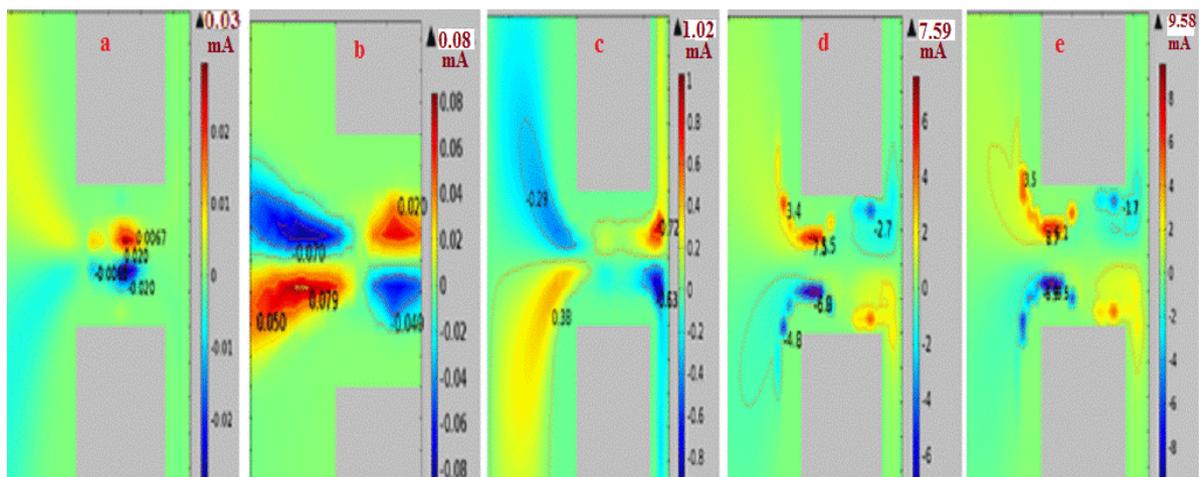


Figure IV. 8: Contour du courant dans la MHCD pour différents instants de la simulation : (a) $t = 0.44 \mu s$ (b) $t = 0.66 \mu s$; (c) $t = 2.65 \mu s$; (d) $t = 6.10 \mu s$; (e) $t = 7.58 \mu s$ [24]

Ce courant est comparé à la densité électronique présentée sur la figure 5. Il est important de noter que la transition de l'état (a) vers l'état (c) sur la figure 5 nécessite un intervalle de temps de $2.21 \mu\text{s}$. Il correspond à la transition du régime anormal, lorsque le courant varie entre 0.01 et 0.08 mA (figure 8 (a-b) où la décharge est confinée dans la région creuse, au régime normal, où la valeur du courant peut atteindre 1 mA, observé sur la figure 8 (c).

Les cas (d) et (e) représentent également le régime normal dont le courant varie entre 2 mA et 9.60 mA. Sur la figure 8(c), nous remarquons que le courant varie entre 0.1 mA et 1 mA. Cette phase existe entre deux régimes stables présentés par les cas (a) et (d).

IV.4.2 Etude de l'évolution axiale des électrons dans la microcathode creuse

La figure 9 représente la distribution de la densité des électrons dans la position axiale (suivant l'axe x) du creux cylindrique. Nous observons évidemment les deux pics liés aux régimes anormal et normal à trois instants différents de la simulation. Le pic le plus élevé dans le régime anormal est d'environ $1.3 \times 10^{19}/\text{m}^3$. Le pic le plus élevé correspondant au régime normal est de l'ordre de $1.7 \times 10^{19}/\text{m}^3$.

Un troisième pic apparaît dans la région de l'anode. Il est dû à la diffusion des électrons résiduels vers l'anode.

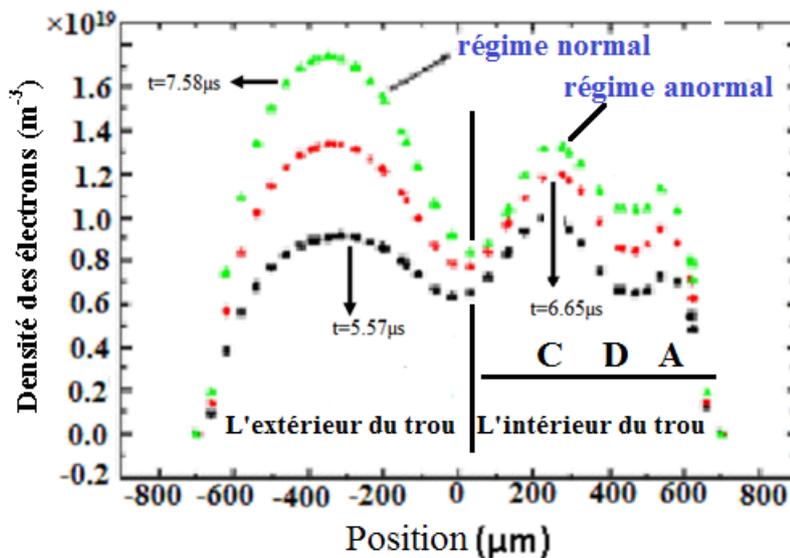


Figure IV.9 : Distribution axiale des électrons dans le régime anormal et normal [24]

La figure 10 illustre l'évolution axiale de la densité électronique dans la cavité de la MHCD, entre les électrodes, à différents instants de simulation. C'est le même profil que celui sur la figure 9. Le profil de la figure 10 (a), tracée à $0,44 \mu\text{s}$, montre un confinement des électrons dans le creux cylindrique, avec un pic d'environ $4,5 \times 10^{17} \text{m}^{-3}$. Par la suite, la densité des électrons augmente par l'effet de cathode creuse et atteint une valeur maximale de $5 \times 10^{17} \text{m}^{-3}$ à $0,66 \mu\text{s}$ (figure 10 (b)).

A ce moment, un second pic commencé à apparaître à l'extérieur de la cathode. Ce pic augmente et devient égale à celui dans le trou à $t = 6.10 \mu\text{s}$ (figures 10 (c) et 10 (d)) et puis supérieure après $1.46 \mu\text{s}$.

La population des électrons à haute énergie ainsi générée est accélérée par le champ électrique de la gaine. Un troisième pic apparaît dans la région de l'anode, comme c'est présenté sur la figure 5 ainsi que les figures 10 (c) - (f).

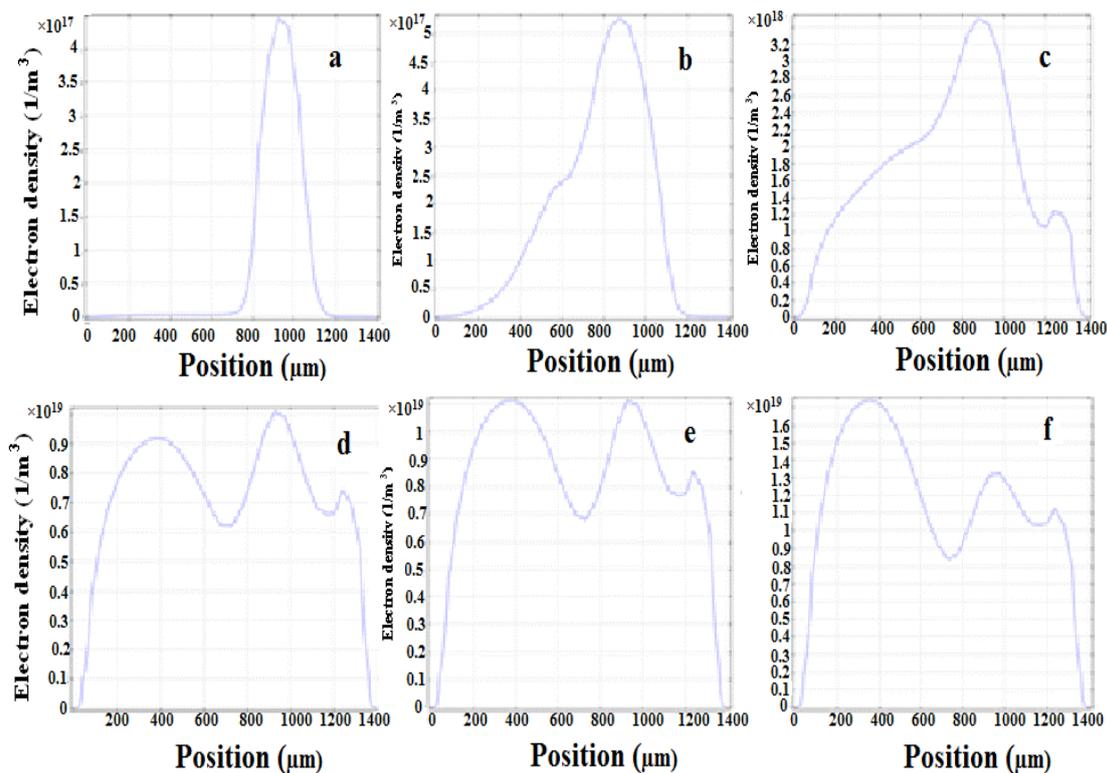


Figure IV.10: Evolution de la densité axiale des électrons dans la cathode creuse pour différents instants : a- $t=0.44\mu\text{s}$; b- $t=0.66\mu\text{s}$; c- $t=2.65\mu\text{s}$; d- $t= 5.58\mu\text{s}$; e- $t=6.10\mu\text{s}$ et f- $7.58\mu\text{s}$ [24]

IV.4.3 Etude de l'évolution des espèces excitées et chargées dans la microcathode creuse

Le profil de la densité des différentes espèces (excitées, ions et électrons) est présenté suivant la position radiale ($y = 400 \mu\text{m}$) de la cavité creuse de la MHCD, au niveau des deux cathodes opposées C1 et C2 ($x = 100 \mu\text{m}$). Il en serait de même pour les résultats qui suivent. Ce profil est illustré sur la figure 11. Nous remarquons d'après cette figure que la densité des atomes d'argon excités produits au centre de la décharge avec un maximum de $1.35 \times 10^{20} \text{m}^{-3}$ est plus élevée que celle des particules chargées. La densité des électrons et des ions sont égales dans le centre du creux assurant la quasi-neutralité. Seulement au niveau des deux cathodes opposées, on remarque que la densité des ions est légèrement supérieure à celle des électrons qui est pratiquement nulle, ce qui veut dire que les électrons sont repoussés vers le centre de la décharge grâce au champ électrique radial dont nous parlerons dans ce qui suit.

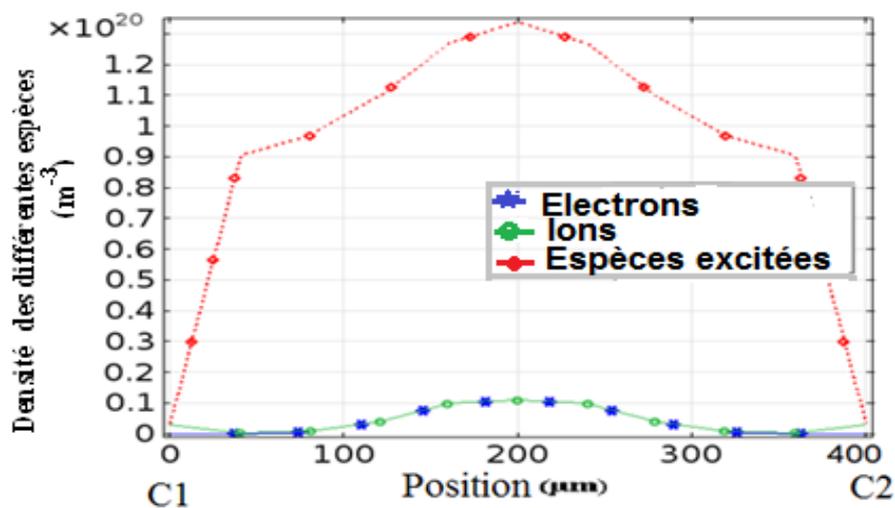


Figure IV.11: Profil de densité des espèces excitées (Ar^*), des ions (Ar^+) et électrons dans la MHCD [24]

En outre, deux bosses symétriques par rapport au centre du trou des espèces excitées sont observées dans les gaines, montrant ainsi la production importante de ces espèces à l'intérieur de ces régions grâce à l'excitation des atomes d'argon par impact électronique. Des résultats typiques ont été obtenus pour des densités métastables d'hélium par la référence [25]

et de xénon par [26], montrant la localisation maximale de ces espèces près de la cathode comme on le voit sur la figure 12 suivante :

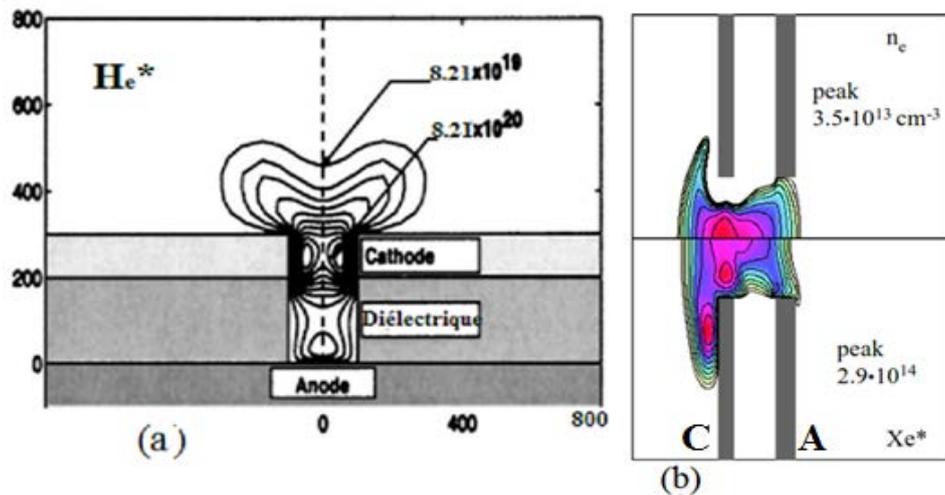


Figure IV.12 : contour de densité des métastables : (a) - He^* pour $I = 0.38 \text{ mA}$, $p = 300 \text{ Torr}$ avec $\gamma_i = 0.105$ et $\gamma_* = 0.115$; (b) - Xe^* pour $I = 0.2 \text{ mA}$, $p = 100 \text{ Torr}$, avec $\gamma_i = 0.002$ et $\gamma_* = 0.005$; $T_g = 300 \text{ K}$ dans la MHCD en DC [25-26]

IV.4.4 Etude de l'évolution des différents processus physico-chimiques dans la microcathode creuse

IV.4.4.1 Processus d'ionisation directe et par étapes

Nous avons tracé, sur la figure 13, les taux des différentes réactions prises en considération par le logiciel représentées dans le tableau 1. Nous avons remarqué que notre simulation de la MHCD montre que l'ionisation directe avec une énergie seuil de 15.80 eV (Tableau1) est beaucoup plus importante que tous les autres processus considérés. Elle se déroule uniquement au niveau des gaines, avec un taux maximal de l'ordre de $4.3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$. Par ailleurs, Le processus d'ionisation par étapes (stepwise ionisation ou ionisation des métastables) existe seulement dans le centre de la décharge avec un taux maximal de $0.48 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$. Il faut noter que l'ionisation des atomes excités (stepwise) par impact électronique ne peut avoir lieu qu'avec un grand nombre d'électrons [27] qui sont dans notre cas localisés au centre du creux comme l'indique la figure 5(e). Ce processus établi avec une énergie seuil de 4.46 eV, ne nécessite pas des électrons énergétiques. Son maximum représente environ 11% de celui de l'ionisation directe.

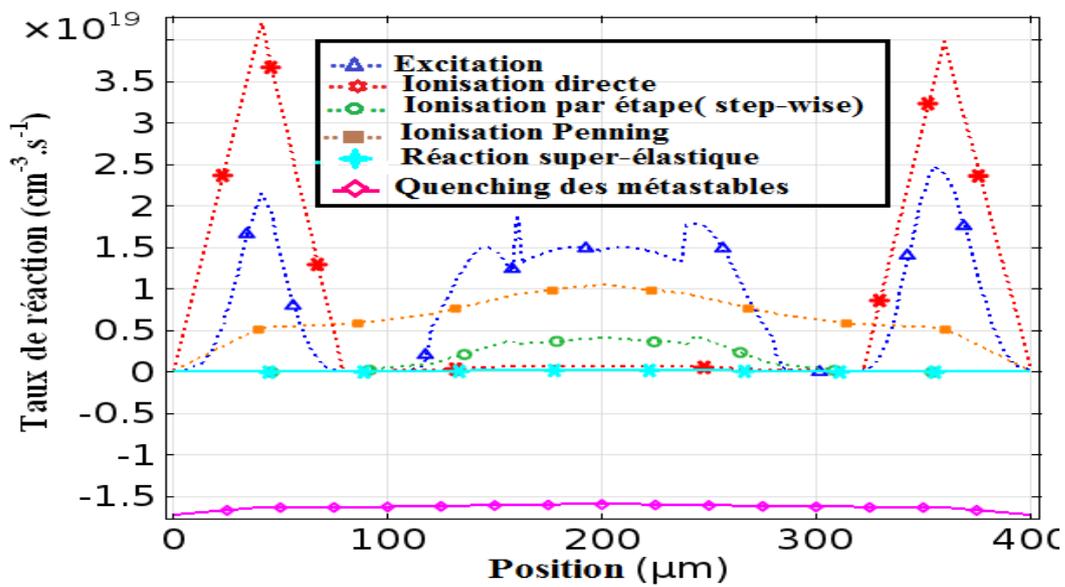


Figure IV.13: Profil des taux de différentes réactions dans la MHCD [24]

Pitchford et Boeuf ont constaté que la contribution de l'ionisation par étapes est significative. D'après la figure 14, elle atteint un maximum de $0.6 \times 10^{20} \text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$, alors que l'ionisation directe a un taux maximal de $3.7 \times 10^{20} \text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$. Ils confirment que la contribution de la réaction d'ionisation par étape est de 10 à 20% de l'ionisation totale à 100 Torr dans le centre de la MHCD en courant continu [26].

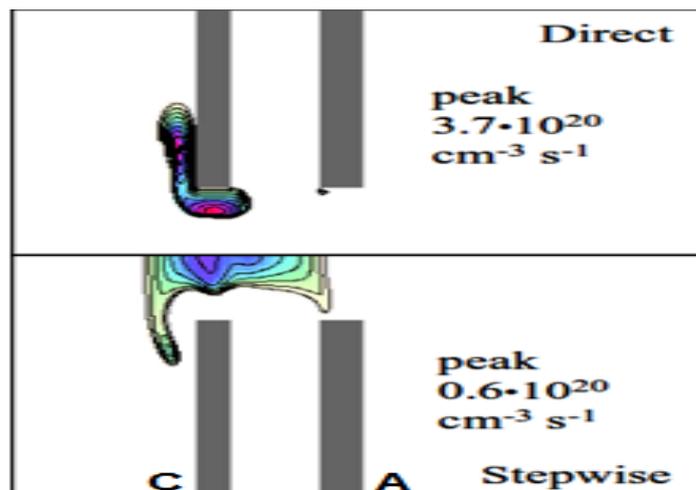


Figure IV.14 : Ionisation directe et par étapes dans un gaz de Xénon pour $I = 0.2 \text{ mA}$, $p = 100 \text{ Torr}$, avec $\gamma_i = 0.002$ et $\gamma_* = 0.005$; $T_g = 300 \text{ K}$ dans la MHCD en DC [26]

Ces deux processus contribuent fortement à la génération des espèces chargées dans la MHCD.

IV.4.4.2 Processus d'excitation et d'ionisation Penning

Les profils des taux d'excitation directe par impact électronique et de l'ionisation Penning sont représentés également sur la figure 13. Nous remarquons que ces deux mécanismes existent dans tout l'espace du creux de la MHCD. Le profil du taux de la réaction d'excitation présente trois maximums dont deux sont au niveau des deux cathodes opposées avec un taux maximal d'environ $2.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$. Par contre, au centre de la décharge, cette excitation est peu efficace. Ce résultat s'explique par le fait que les électrons perdent leur énergie au niveau des cathodes opposées pendant leur parcours de la cathode vers le centre du plasma. Le taux maximal de l'ionisation Penning est de $1.1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ au centre du creux. Les résultats obtenus à cet effet sont en accord avec le fait que la densité des espèces excitées est maximale au centre de la décharge (figure 11). Ce mécanisme contribue également à la production des espèces chargées et ainsi au maintien de la décharge.

IV.4.4.3 Quenching des métastables

Le taux de la réaction quenching (figure 11) est en réalité peu significatif. Nous pouvons constater ceci sur la figure suivante (15):

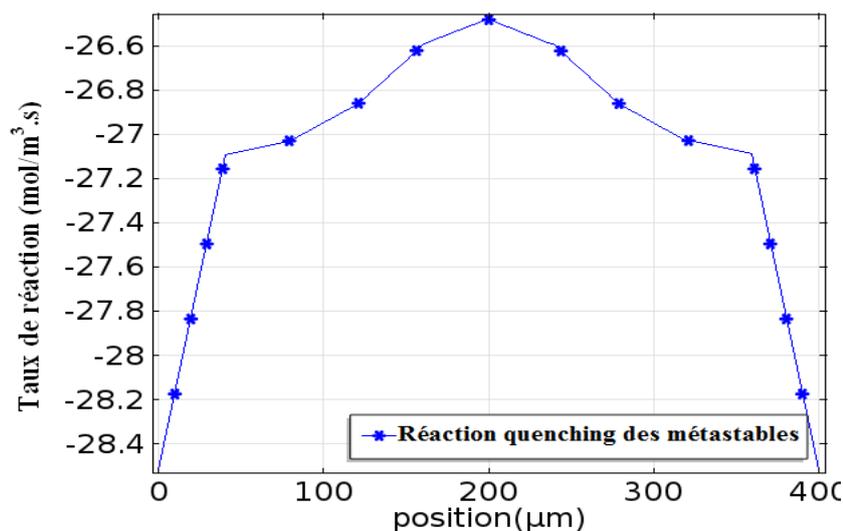


Figure IV.15: Taux de la réaction quenching dans la MHCD

Le mécanisme quenching, (appelé également perte des métastables par les atomes neutres du gaz d'argon), est négligeable par rapport aux autres processus traités auparavant. Il se situe surtout au centre de la décharge où il y'a autant d'espèces excitées. Les métastables qui étaient des réactifs dans la phase initiale sont perdus ce qui explique la présence d'un taux négatif.

IV.4.5 Effet du coefficient de l'émission secondaire sur l'évolution des électrons et leur température électronique dans la microcathode creuse

Après avoir étudié les caractéristiques de la micro décharge en négligeant l'émission d'électrons secondaires par la cathode, nous traitons dans cette partie l'effet du coefficient de cette émission en considérant trois valeurs (0, 0.035 et 0.07) du coefficient d'émission secondaire γ_i .

a- Densité et température électroniques

Le résultat de la simulation est illustré sur la figure 16 en termes de densité et de température électroniques. Dans la microcathode creuse par exemple, nous remarquons que la densité des électrons augmente légèrement de $1,1 \times 10^{19} / \text{m}^3$ à $1,7 \times 10^{19} / \text{m}^3$ dans le centre de la décharge lorsque γ_i augmente de zéro à 0,07. Ces valeurs sont inférieures à celles obtenues dans la littérature citée ci-dessus dans le cas de la MHCD en mode continu.

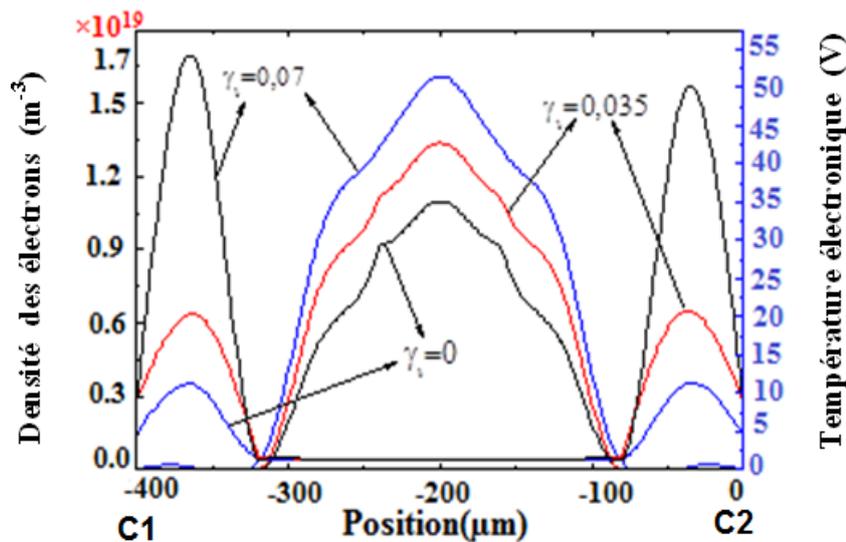


Figure IV.16: Effets du coefficient de l'émission secondaire sur la variation de la densité et de la température électronique [24]

Yoou-bin Guo et al [16] ont confirmé que les microplasmas, pulsés et en régime continu, nécessitent une très haute tension pour leur maintien avec des courants très faibles (5 mA pour le courant continu et 25 mA pour le pulsé). En outre, une tension supérieure à 400 V pour ces deux régimes peut causer l'arc et ainsi détruire la structure de la cathode, même avec une résistance ballast électrique de 200 Ω et de puissance 50W. Cette confirmation montre l'effet négatif de la forte émission secondaire des électrons due au bombardement de la cathode par les ions et les métastables.

En Radiofréquence, le maintien de la décharge peut exister sans l'émission des électrons secondaires : Le plasma se caractérise par l'oscillation des gaines, ce qui donne la possibilité d'un effet pendulaire à basse tension. Ceci conduit au confinement des électrons dans le centre de la MHCD. Mahony et al [20] ont proposé trois modes d'échauffement possibles des électrons, dans un mélange néon-argon en RF : stochastique, ohmique et le mode γ . En effet ils prouvent que la puissance RF pourrait générer un plasma plus stable que celui pulsé ou en continu avec des tensions de maintien basses, grâce à la haute fréquence qui stabilise le plasma [16].

La multiplication des électrons par l'émission secondaire conduit à une augmentation de leur température, qui varie entre 10 V pour $\gamma_i = 0$ et 54 V pour $\gamma_i = 0,07$ (figure 16) au niveau de la cathode. Dans le centre de la décharge, la valeur de la température des électrons est d'environ 1 V. Cette basse température est généralement acquise dans les plasmas à basse pression. Les plasmas radiofréquences sont donc conçus pour l'activation du gaz et le dépôt des couches minces [16, 28].

b- Mécanismes

La contribution des différentes interactions qui ont lieu dans le gaz de la MHCD en RF pour $\gamma_i = 0,07$ à 100 Torr est illustrée sur la figure 17. Nous remarquons que l'ionisation directe domine largement dans les régions des gaines et existe même au centre de la décharge. Les mécanismes Penning et stepwise présentent un taux plus grand que celui pour $\gamma_i = 0$. En plus, le processus d'excitation contribue plus fortement pour $\gamma_i = 0,07$ surtout au centre du creux de la MHCD. Ces phénomènes sont dus à l'excès des électrons participant aux différents mécanismes, et à l'augmentation de leur énergie par l'effet de l'émission secondaire.

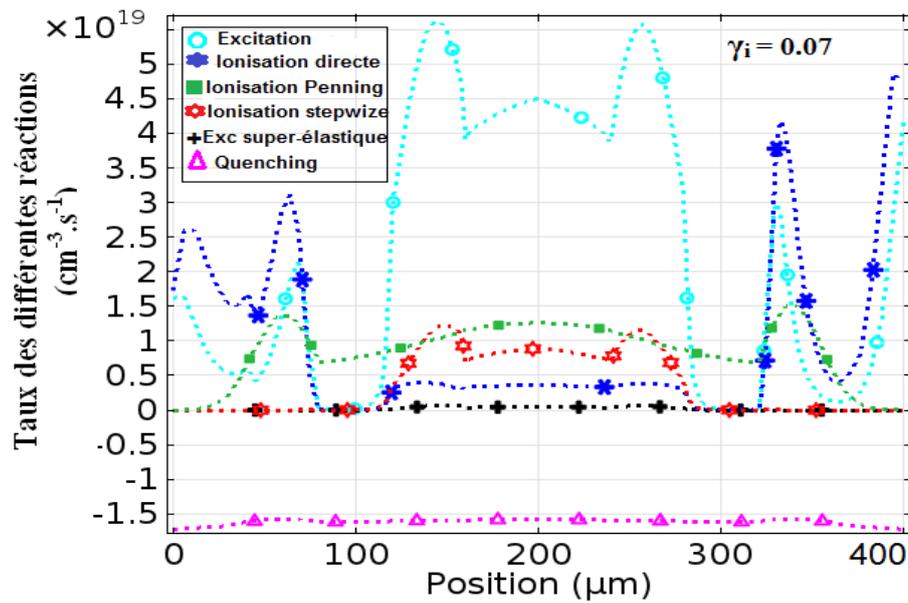


Figure IV.17 : Taux de réaction pour $\gamma_i = 0,07$ à 100 Torr [24]

IV.4.6 Mécanisme de chauffage des électrons dans la microcathode creuse

Pour mieux comprendre le mécanisme se produisant dans la MHCD en RF, la figure 18 montre les profils du champ électrique et du taux d'ionisation à quatre instants du cycle RF.

Sur la figure 18 (a), le champ électrique a une valeur maximale d'environ $2,4 \times 10^6 \text{V.m}^{-1}$ pour un coefficient de l'émission secondaire égal à zéro (0) pendant la demi-période du cycle RF. Dans ce cas, la largeur de la gaine est d'environ $150 \mu\text{m}$. Cette valeur est considérable devant le rayon du creux cylindrique ($200 \mu\text{m}$). Ainsi, nous pouvons conclure que le champ électrique radial a un rôle majeur dans le comportement des particules chargées. Les électrons sont accélérés vers le centre de la décharge (anode virtuelle) grâce à ce champ radial en ayant une énergie cinétique suffisante pour faire des collisions inélastiques.

En outre, la valeur du champ électrique augmente légèrement pour un coefficient d'émission secondaire égal à 0,07 comme le montre la figure 18 (b). La valeur maximale est d'environ $2,6 \times 10^6 \text{V.m}^{-1}$. Cette faible différence produit un changement remarquable du taux d'ionisation. En effet, La figure 18 (c) montre un taux d'ionisation régissant dans la région des gaines pour $\omega t = \pi$ et $\gamma_i = 0$, atteignant la valeur maximale de l'ordre de $4,3 \times 10^{19} \text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$.

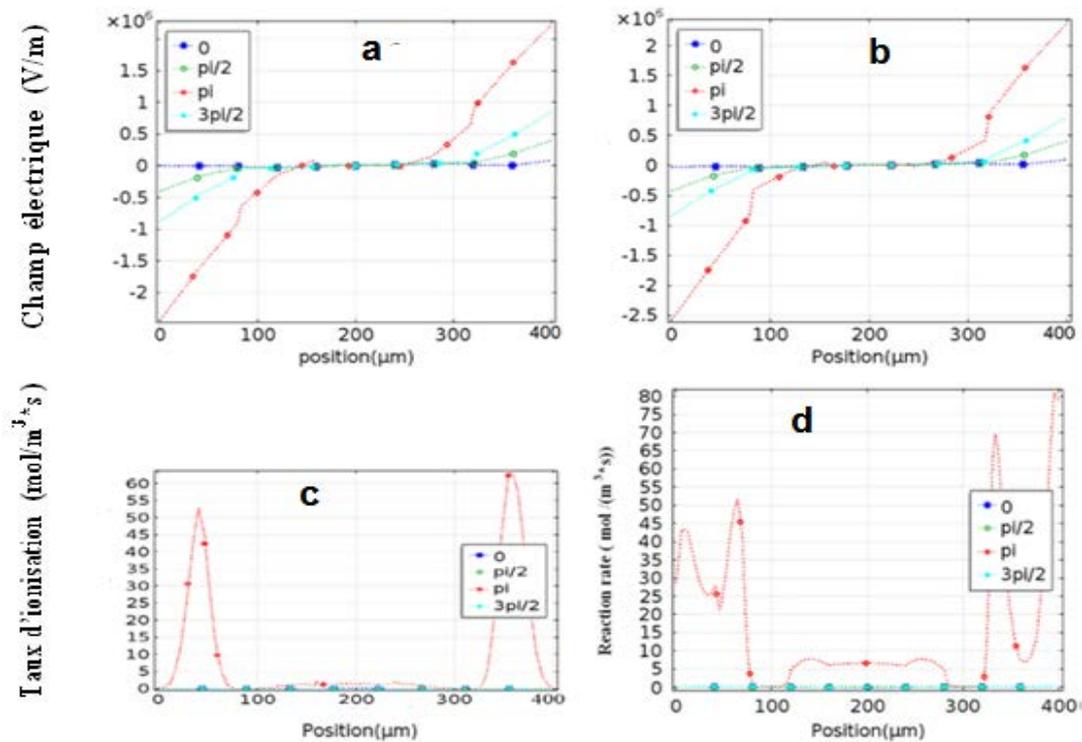


Figure IV.18: Profil du champ électrique et du taux d'ionisation pour - (a) et (c) : $\gamma_i = 0$, - (b) et (d) : $\gamma_i = 0.07$ durant les quatre instants du cycle RF [24].

Sur la figure 18 (d), cette valeur s'élève pour atteindre un maximum de $4.8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ dans la gaine et affecte même le centre de la décharge. Le mécanisme de chauffage des électrons est donc réalisé par la combinaison de l'oscillation des électrons due au champ électrique radial et par l'effet pendulaire des électrons entre les deux cathodes opposées dans une décharge à cathode creuse. Par conséquent une forte densité de plasma peut être acquise à faible tension.

IV.4.7 Étude numérique du potentiel électrique dans la micro cathode creuse

La figure 19 présente l'évolution du potentiel dans la cavité de la MHCD à différents instants de la simulation ($0.42 \mu\text{s}$, $0.44 \mu\text{s}$, $0.58 \mu\text{s}$, $1.17 \mu\text{s}$, $3.09 \mu\text{s}$ et $6.10 \mu\text{s}$).

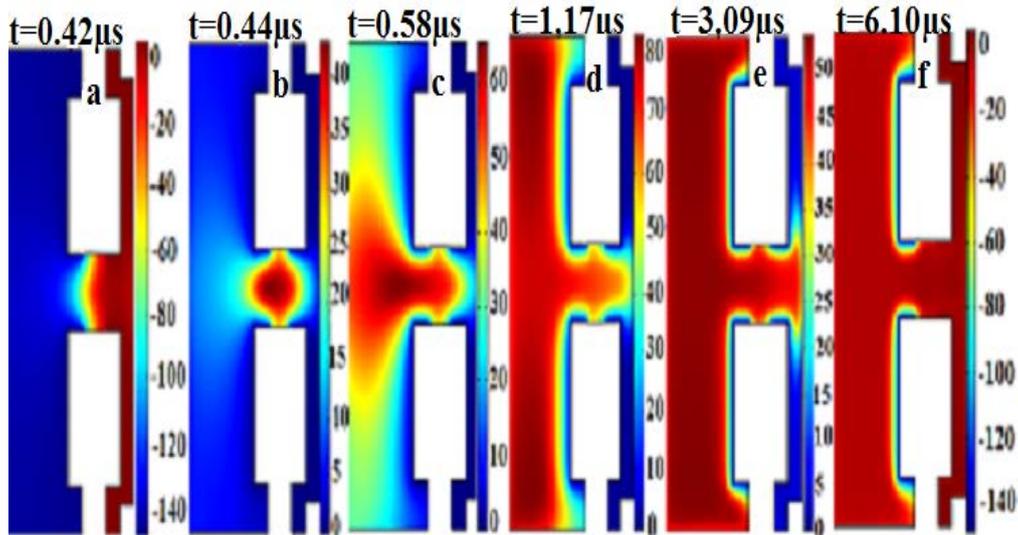


Figure IV.19 : Potentiel électrique dans la MHCD pour différents instants : $t =$: (a) $0.42\mu\text{s}$; (b) $0.44\mu\text{s}$; (c) $0.58\mu\text{s}$; (d) $1.17\mu\text{s}$; (e) $3.09\mu\text{s}$ et (f) $6.10\mu\text{s}$ [28].

Le potentiel électrique axial apparaît alternativement sur la figure 19 (a) dans la cavité creuse, entre le diélectrique et les deux électrodes, où l'épaisseur de la région de charge d'espace est supérieure au rayon du trou. Dans les cas (b) et(c), l'évolution du potentiel est devenu radiale à l'intérieur et à l'extérieur de la région creuse et les gaines commencent à apparaître. L'augmentation radiale du potentiel électrique entraîne une réduction des gaines à l'intérieur du trou et en dehors de la surface de la cathode et l'est également à l'anode (d). Dans les cas (e-f), il est clair que le potentiel électrique chute dans les régions des gaines.

IV.4.8 Effet de la pression sur l'évolution axiale et radiale de la densité des électrons

Nous nous intéressons dans cette partie à l'effet de la pression du gaz sur la distribution axiale et radiale de la densité électronique. Pour cela, nous avons considéré six valeurs de la pression comprises entre 50 et 100 Torr, ce qui permet le fonctionnement de la décharge pour un produit $p \times d$ compris entre 2 et 4 Torr.cm.

La figure 20 représente la variation de la densité électronique axiale et radiale pour différentes valeurs de pression avec $\gamma_i = 0.07$. Nous remarquons, d'après ces courbes que plus la pression augmente, la densité calculée des électrons augmente. Elle passe de $1 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$ à $p = 50 \text{ Torr}$ pour un régime normal jusqu'à $2 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$ à $p = 100 \text{ Torr}$ (Figure 20-a), comme elle passe de $1.69 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$ à $p = 50 \text{ Torr}$ pour le régime anormal jusqu'à $1.52 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$ à $p = 100 \text{ Torr}$ (Figure 20-b).

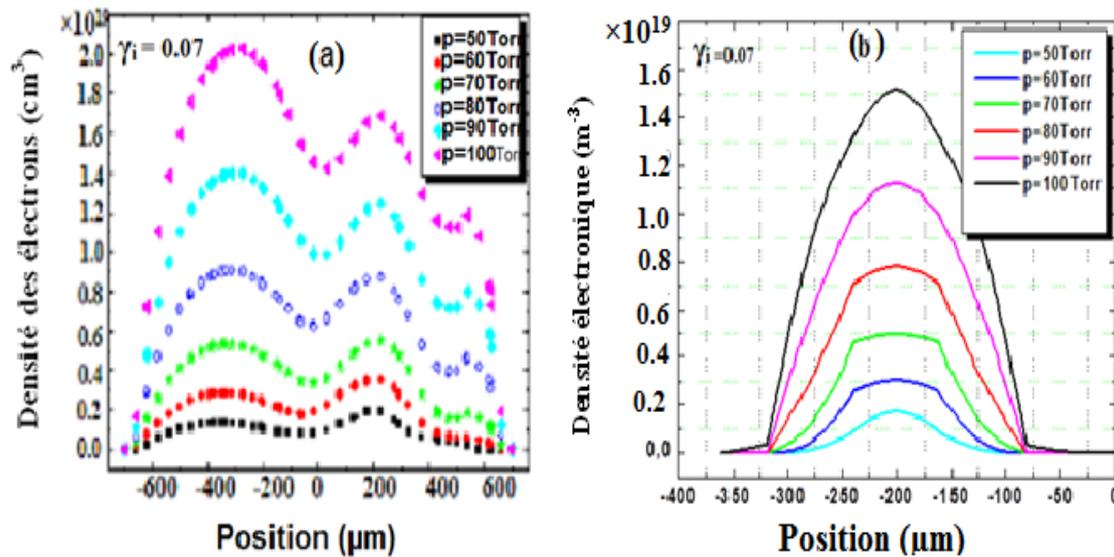


Figure IV.20: Effet de la pression sur la distribution axiale et radiale de la densité électronique : (a) distribution axiale (b) distribution radiale [24].

Il faut noter que sur la figure 20 (b), nous observons que la densité électronique occupe un volume plus grand dans le cœur du plasma lorsque la pression augmente, et par conséquent les régions des gaines se resserrent et leur épaisseur diminue comme c'est schématisé sur la figure 21 (a). Cette décroissance est due au fait que plus la pression augmente, plus le libre parcours moyen des électrons est faible entraînant ainsi un taux d'ionisation plus important qui nécessite un espace important dans le volume du plasma. Nos résultats ont été confirmés par des résultats expérimentaux dans la littérature, présentés par la figure 21(b) [30].

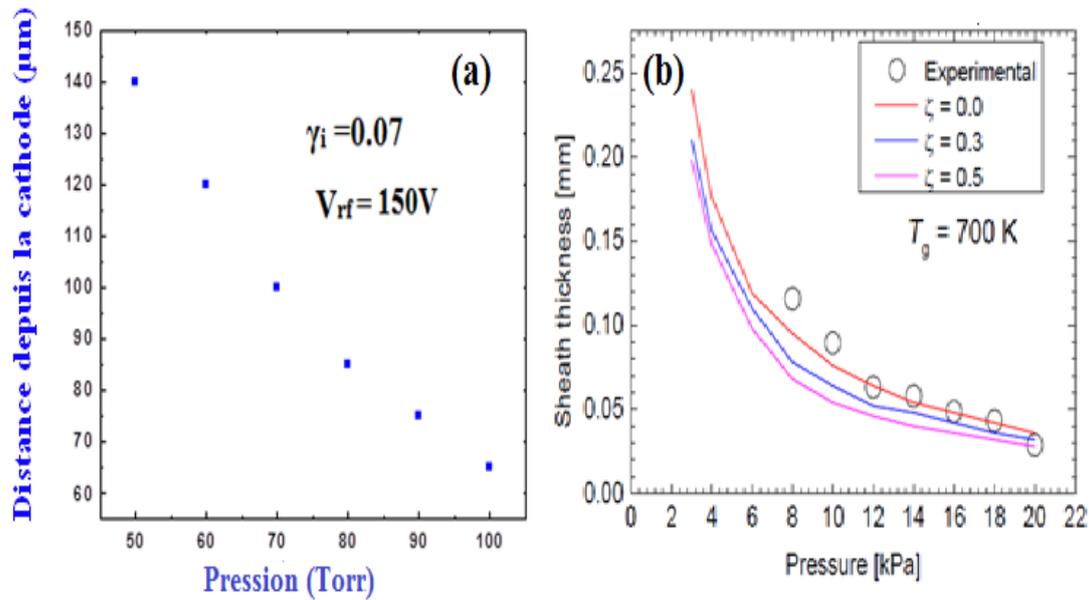


Figure IV.21: Evolution de l'épaisseur de la gaine en fonction de la pression du gaz :
 (a) - RF (Ar pur), $p=100$ Torr, $K=300K$; (b) - Ar (80 %)-He (20 %), $V_{rf}=220$ V, $I= 8$ mA ,
 $p= (0.5\sim 20$ kPa), $K=700K$ [30].

IV.4.9 Effet de la pression sur l'évolution radiale de la température électronique

Nous avons déjà vu dans le paragraphe précédent que la densité électronique croît avec la pression du gaz au centre de la décharge, par contre la température électronique est une fonction décroissante de la pression. Sur la figure 22, la température électronique augmente dans les régions des gaines en passant d'une valeur de 15 V à la pression de 50 Torr jusqu'à la valeur de 54 V à la pression de 100 Torr et diminue dans le centre de la décharge en passant d'une valeur de 3V à $p = 50$ Torr jusqu'à 1V à $p = 100$ Torr.

Ce phénomène peut s'expliquer par le fait que le taux d'ionisation augmente avec la pression du gaz, les électrons ayant subi beaucoup de collisions avec les atomes neutres du gaz ont tendance à perdre une énergie importante lors de leur retour au cœur du plasma et arrivent au centre de la décharge avec une faible énergie.

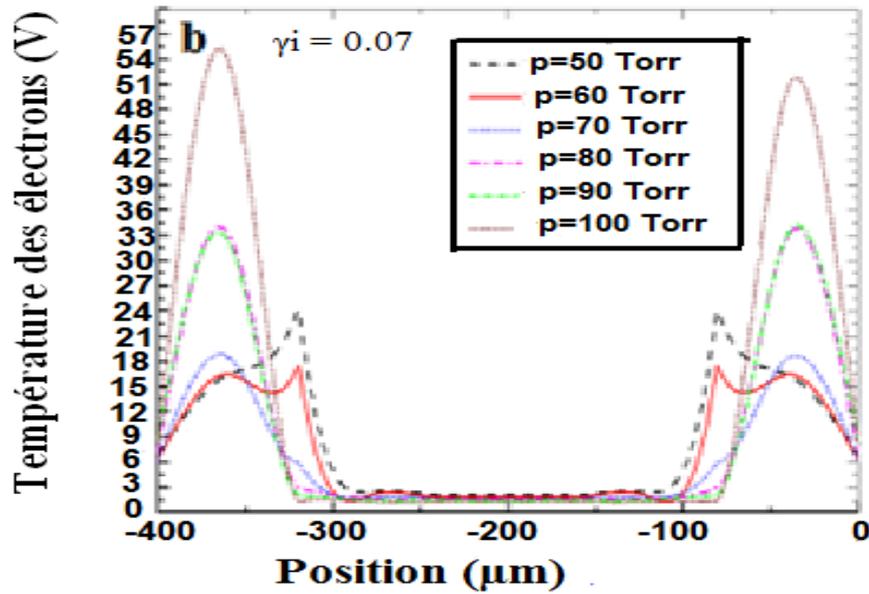


Figure IV.22: Effet de la pression sur l'évolution radiale de la température électronique [24].

IV.4.10 Étude numérique des paramètres physiques dans la micro cathode creuse en prenant en considération le maillage de la zone diélectrique

Nous abordons, dans ce paragraphe les résultats de la simulation par Comsol, de l'évolution des paramètres physiques du plasma (densité - potentiel et champ électrique) dans la microdécharge d'argon étudiée, en prenant en considération le maillage de la zone diélectrique. Nous discuterons l'effet des paramètres technologique, tels que la pression, la tension d'alimentation et la température du gaz sur ces paramètres.

La figure 23 présente le maillage de la même géométrie étudiée en prenant en plus en considération le maillage de la zone diélectrique.

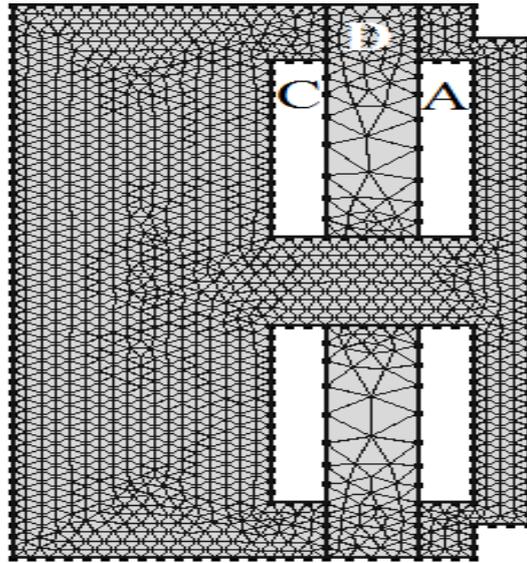


Figure IV.23 : Géométrie de la MHCD avec maillage de la zone diélectrique [28].

Nous avons considéré un maillage très fin dans les régions plasma et grossier dans la zone diélectrique sauf qu'il est raffiné à la limite de la région creuse. Le nombre d'éléments considérés étant de 2876 éléments. Nous avons dans un premier temps considéré l'évolution des paramètres physiques dans la MHCD dans le cas d'un signal RF de 150V et 13.56 MHz avec une pression de gaz de 100 Torr et une température de 300 K.

IV.4.10.1 Etude de l'évolution de la densité électronique

La figure 24 présente le contour de la densité électronique avec et sans maillage de la zone diélectrique dans la structure MHCD. Nous remarquons une légère différence de la densité des électrons dans les trois régions entre les deux figures (a) et (b) (Cathode - Anode - Extérieur de la cathode), cependant elle est toujours de l'ordre de 10^{19} m^{-3} . La diminution de la densité des électrons observée sur la figure b est due à la diffusion des charges électriques et leur accumulation sur la surface du diélectrique.

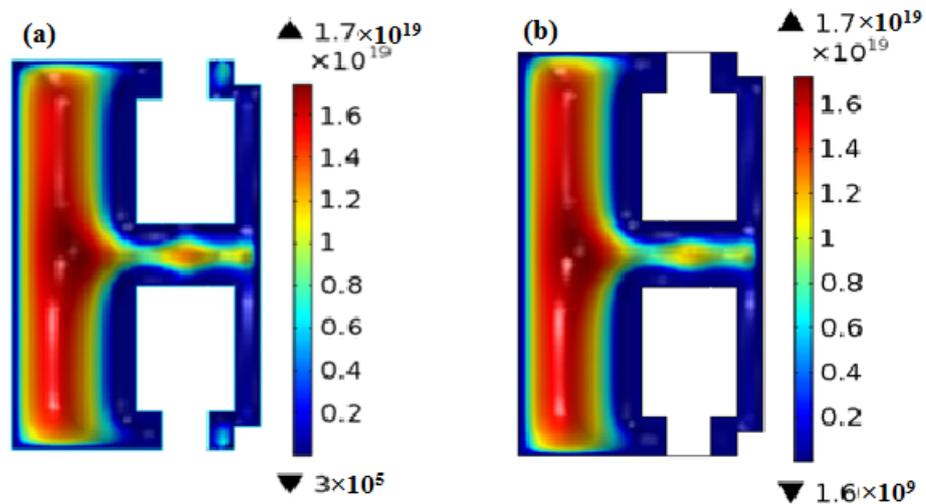


Figure IV.24 : contour de la densité électronique : (a) sans maillage de la zone D ; (b) avec et sans maillage de la zone D, dans la structure MHCD pour $V_{rf} = 150V$, $p = 100\text{Torr}$, $K = 300K$

IV.4.10.2 Etude de l'évolution du potentiel et du champ électrique

La figure 25 présente le contour du potentiel électrique dans la MHCD à deux instants de la simulation.

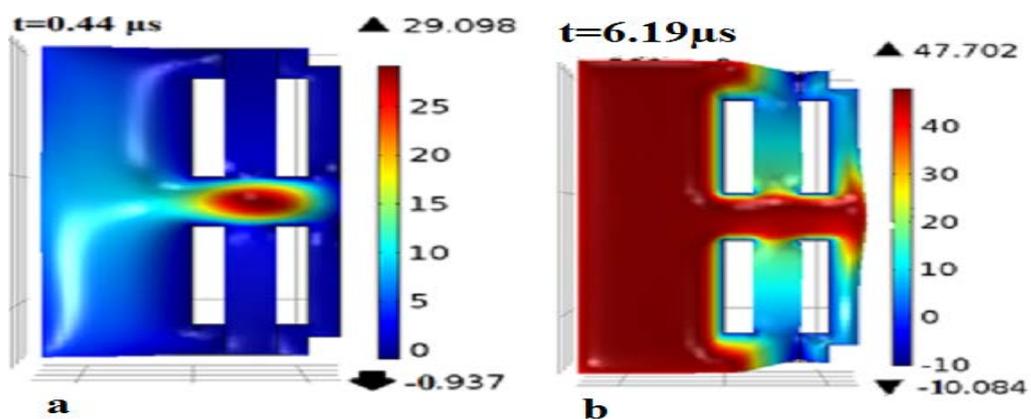


Figure IV.25: Contour du potentiel électrique dans la MHCD : a- $t = 0.44 \mu s$, b- $t = 7.59 \mu s$ avec maillage de la zone D à $p = 100 \text{ Torr}$, $V_{rf} = 150 \text{ V}$ et $T_g = 300K$

Le potentiel plasma apparaît au début de la simulation à $t=0.44 \mu\text{s}$ avec une valeur maximale d'environ 25 V dans le centre du creux de la MHCD. A la fin de la simulation correspondant à $t=7.59\mu\text{s}$, le potentiel plasma s'étend jusqu'à la surface extérieure de la cathode ainsi qu'au niveau de l'anode avec une valeur constante de 40 V. Les régions des gaines apparaissent également dans les trois zones (cathode - anode - surface extérieure). Nous remarquons également qu'au niveau du diélectrique, le potentiel de surface atteint une valeur variante entre 20 et 25 V, ce qui n'était pas le cas sur la figure 19.

La figure 26 correspond au profil du potentiel plasma dans la direction radiale, depuis le centre de la décharge (rayon de la cavité), pendant les quatre instants du cycle RF.

Sur les figures 26(a) et 26 (b), nous remarquons une forte augmentation du potentiel (140 V) observé au niveau de l'électrode (cathode) **C** et la région du diélectrique **D**. La gaine ne peut pas être détectée à proximité de la cathode à l'instant t égal à zéro. Tandis qu'au niveau de l'anode **A**, Le potentiel décroît jusqu'à la valeur nulle. Là, nous pouvons voir clairement la région de la gaine avec une épaisseur égale approximativement à $150 \mu\text{m}$, schématisée sur la figure 26(c). Ce phénomène s'inverse pendant la demi-période du cycle RF ($\omega t = \pi$). Cette différence de potentiel dans les deux régions (cathode (ou anode) - diélectrique) est liée à la physique différente dans ces deux régions. En effet, le paramètre responsable du déplacement des électrons est le champ électrique instantané dont nous traiterons dans le paragraphe suivant.

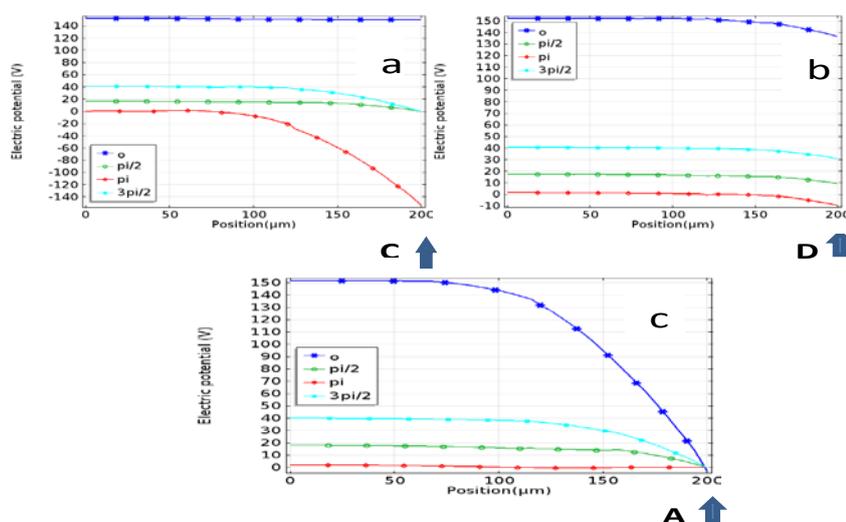


Figure IV.26 : Profil du potentiel électrique dans les trois régions : (a) cathode, (b) diélectrique, (c) anode à quatre instants du cycle RF pour $P= 100 \text{ Torr}$, 13.56 MHz [28]

La figure 27 montre le contour du champ électrique radial et axial ainsi que le profil du champ électrique à quatre instants du cycle RF.

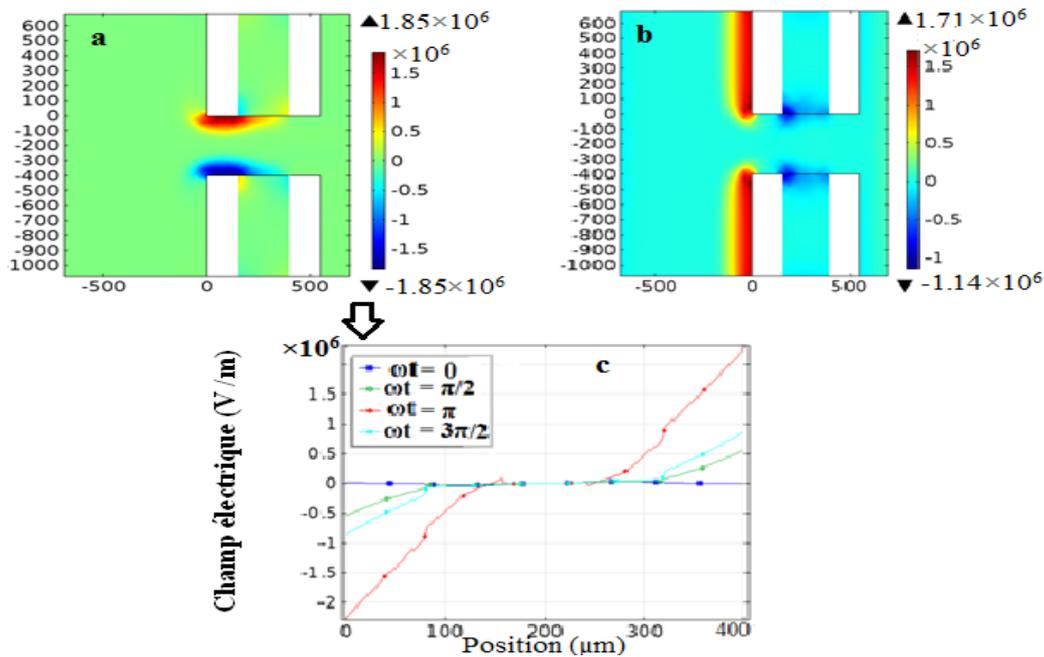


Figure IV.27: champ électrique pour $\gamma_i = 0.07$: (a) radial, (b) axial, (c) durant les quatre instants du cycle RF, avec maillage de la zone diélectrique pour $P=100$ Torr et $V_{rf}=150$ V

D'après cette figure, le champ électrique est radiale au niveau des cathodes opposées avec une valeur maximale supérieure à 1.5×10^6 V/m, présentée par les figures 27(a) et 27(c) dans la demi-période du cycle RF. La gaine de charge d'espace peut atteindre dans ce cas une épaisseur de $150 \mu\text{m}$. La largeur de gaine trouvée dans la littérature est de $200 \mu\text{m}$ pour une excitation RF à pression atmosphérique [29].

Un champ axial faible existe seulement au niveau du diélectrique avec une valeur négligeable par rapport au champ radial, de l'ordre de 1.14×10^6 V/m comme il existe sur la face extérieure de la cathode avec une valeur intense de l'ordre de $17\,000$ kV/m. ces résultats ont été confirmés par les références [10, 14].

IV.4.10.3 Influence de la tension V_{rf} sur l'évolution du potentiel plasma

Nous avons étudié l'influence de la tension RF et la pression du gaz sur l'évolution du potentiel plasma. La figure 28 illustre cet effet pour différentes valeurs de la tension V_{rf}

(90, 100, 150, 175, 200 V). Le potentiel croît de 27 V jusqu'à 48 V quand V_{rf} varie de 90 V à 200 V. Cette augmentation entraîne une diminution de l'épaisseur des gaines.

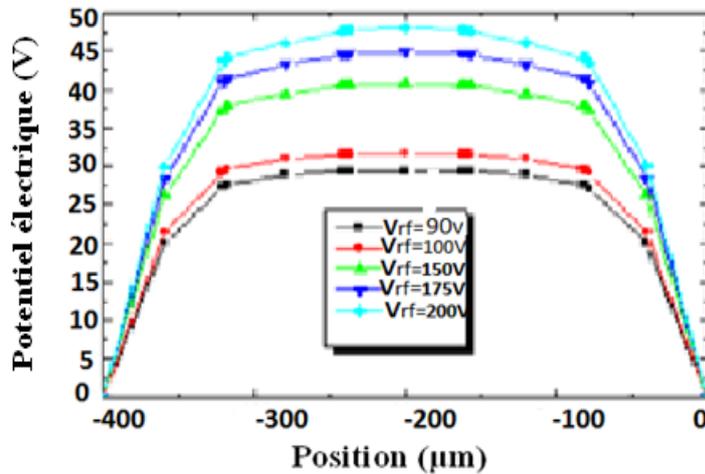


Figure IV.28 : Profil du potentiel électrique radial dans la MHCD pour différentes valeurs du voltage avec $p= 100\text{Torr}$ [28].

Nous avons comparé nos résultats avec ceux trouvés dans la littérature [18]. En effet, la figure 29 présente la variation spatio-temporelle du potentiel plasma pour deux valeurs du diamètre du creux cylindrique. Nous remarquons bien que cette tension augmente avec la tension de décharge V_{rf} et les gaines de charge d'espace diminuent ainsi le diamètre du trou n'a aucune influence sur cette variation. La diminution de l'épaisseur de la gaine avec la tension V_{rf} est en accord avec la nature ionisante de la gaine [8,14].

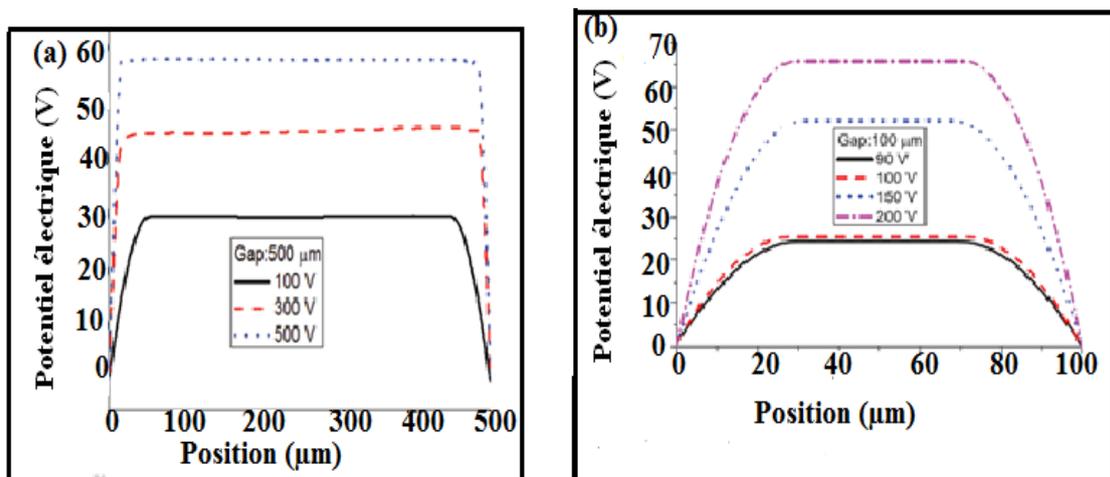


Figure IV.29: Distribution spatio-temporelle du potentiel électrique en fonction de la tension de décharge V_{rf} avec: (a) un espace de 500 μm, (b) 100 μm [18]

IV.4.10.4 Influence de la pression du gaz sur l'évolution du potentiel plasma

La figure 30 représente la répartition moyenne dans le temps du potentiel plasma à différentes valeurs de pression, en prenant en considération l'effet de l'émission secondaire ayant pour coefficient $\gamma_i = 0,07$. Sur la figure 30, nous observons que le potentiel plasma diminue avec l'augmentation de la pression au centre du plasma. Il passe de 60 V pour $p=50$ Torr à 35 V pour $p=100$ Torr. Nous remarquons qu'il n'y a aucun effet de l'émission secondaire dans ce cas.

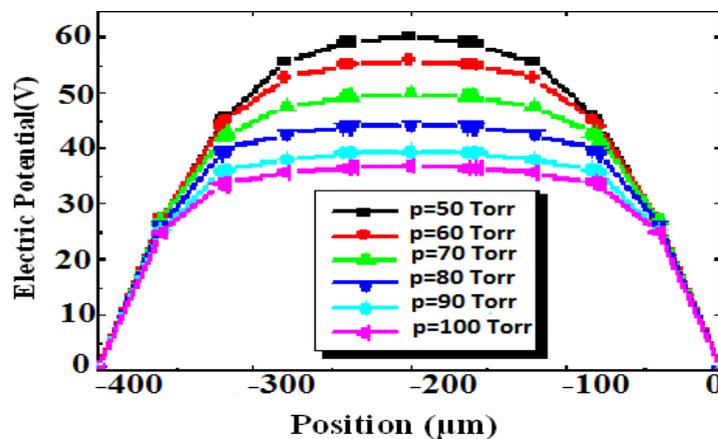


Figure IV.30 : Distribution spatio-temporelle du potentiel plasma pour différentes valeurs de pression avec $\gamma_i = 0,07$ [28]

IV.4.10.5 Influence de la température du gaz sur l'évolution du potentiel, de la densité et de la température électroniques

Dans l'industrie de plasma, il est indispensable de contrôler de nombreux paramètres qui peuvent affecter les caractéristiques électriques de la décharge et qui sont : la pression du gaz, la tension, la fréquence et même la géométrie. En plus, la température du gaz reste la clé qui peut influencer sur les propriétés de la décharge tels que la densité, le champ électrique, le courant et la même l'épaisseur de la charge d'espace.

Pour ce faire, nous avons considéré dans notre simulation par le logiciel « Comsol », trois valeurs de température du gaz T_g égale à 300 K, 400 K et 500 K, dans la microcathode creuse en mode RF et pour une pression p égale à 100 torr, la tension V_{rf} étant égale à 220V.

Les figures 31, 33 et 34 présentent l'influence de la température du gaz sur l'évolution de la densité des électrons, du potentiel électrique et de la température des électrons.

➤ *Potentiel électrique*

La figure 31 montre une décroissance du potentiel électrique à proximité des gaines et au niveau du diélectrique pour un accroissement de la température du gaz d'argon de $T_g = 300\text{ K}$ (fig. 31a) jusqu'à $T_g = 500\text{ K}$ (fig. 31c).

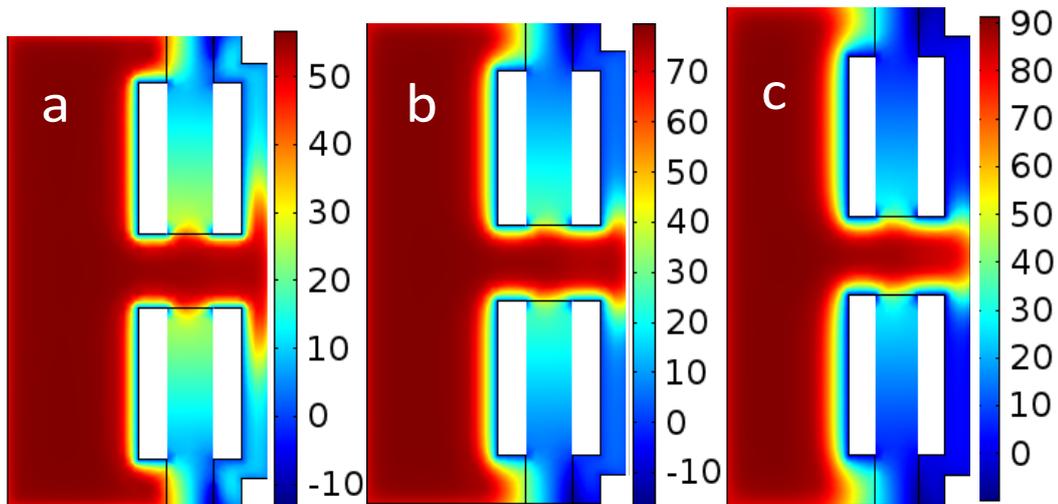


Figure IV.31 : Potentiel simulé pour : (a) $T_g=300\text{ K}$; (b) $T_g=400\text{ K}$; (c) $T_g=500\text{ K}$ à $p=100\text{ Torr}$ et $V_{rf}=220\text{ V}$.

Cette décroissance s'explique par le fait que lorsque la température du gaz augmente, pour une pression fixe, la densité du gaz diminue en se référant à la loi des gaz parfaits (chapI) :

$$P = n_g k T_g \quad II.7$$

La diminution des atomes neutres du gaz entraîne une diminution des espèces chargées dans le volume du plasma et par conséquent, l'épaisseur de la gaine s'élargit. Ces résultats ont été confirmés expérimentalement comme c'est montré sur la figure 32 [30] et par simulation hybride (2D PIC/MCC) [31].

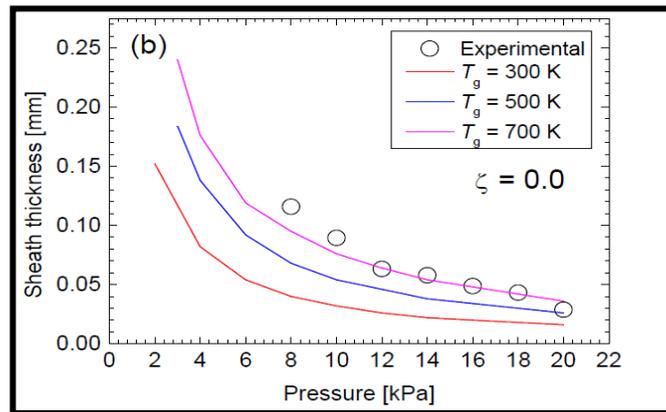


Figure IV.32 : épaisseur de gaine pour différentes valeurs de température de gaz : $T_g=300\text{ K}$; $T_g=500\text{ K}$; $T_g=700\text{ K}$ [30].

➤ *Densité électronique*

Sur la figure 33, nous remarquons que la densité maximale des électrons est de $1,8 \times 10^{19}\text{ m}^{-3}$ pour $T_g = 300\text{ K}$ (figure 33(a)), $7 \times 10^{18}\text{ m}^{-3}$ pour $T_g = 400\text{ K}$ (figure 33 (b)) et $4,5 \times 10^{18}\text{ m}^{-3}$ à $T_g = 500\text{ K}$ (figure 33 (c)).

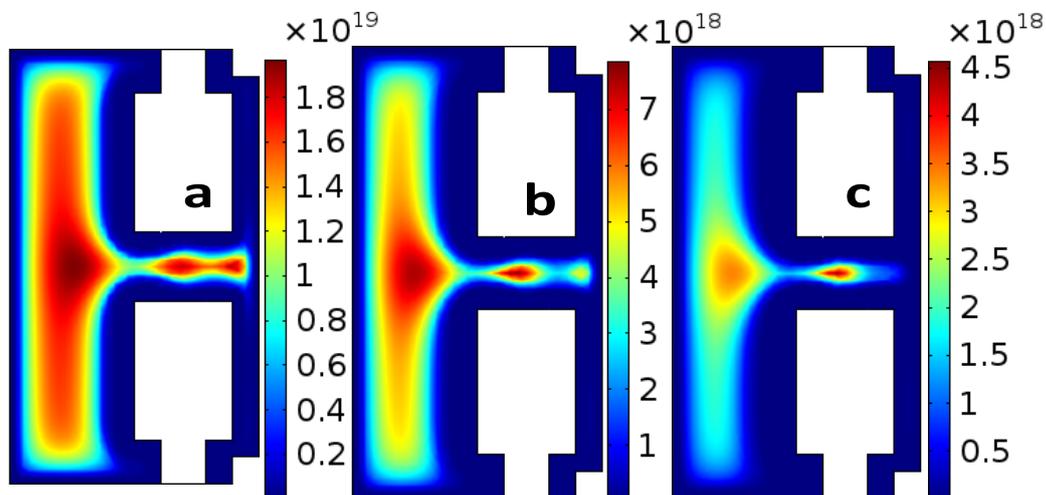


Figure IV.33 : Densité électronique simulée pour différentes valeurs de température de gaz : (a) $T_g=300\text{ K}$; (b) $T_g=400\text{ K}$; (c) $T_g=500\text{ K}$ à $p=100\text{ Torr}$ et $V_{rf}=220\text{ V}$

Cette décroissance est liée à la décroissance de la densité du gaz. Nous remarquons également que la densité électronique décroît à l'intérieur et à l'extérieur du trou jusqu'à ce

qu'elle devient plus faible dans le régime normal et normal. Elle est presque nulle au niveau de l'anode.

➤ *Température électronique*

La figure 34 illustre une évolution de la température des électrons à l'intérieur et à l'extérieur de la cavité creuse. Nous remarquons que cette température passe approximativement de 4V (figure 34 (a)) à une valeur maximale de 7V (figure 34 (c)) au niveau des électrodes pour une variation du gaz T_g de 300 K à 500 K.

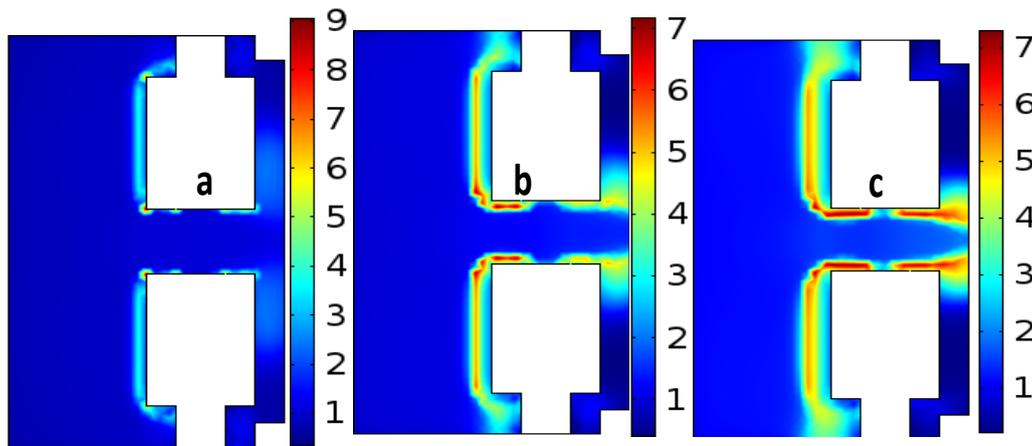


Figure IV.34 : Température électronique simulée pour différentes valeurs de gaz : (a) $T_g=300\text{ K}$; (b) $T_g=400\text{ K}$; (c) $T_g=500\text{ K}$ à $p=100\text{ Torr}$ et $V_{rf}=220\text{ V}$

IV.5 CONCLUSION

Dans ce travail, une étude numérique sur les phénomènes physico-chimiques dans la microcathode creuse a été réalisée. En utilisant le logiciel multi physique COMSOL, un modèle fluide bidimensionnel avec une pression de 100 Torr et une température du gaz ambiante, à basse tension et à haute fréquence (13.56 MHz) a été élaboré. Les résultats de la simulation ont montré que :

- La décharge radiofréquence présente différents régimes sans l'effet d'émission secondaire dans la MHCD, comme dans les micro-décharges DC. La décharge est confinée dans la région creuse avec un faible courant (0,05 mA inférieure à 0,1 mA). La décharge s'étend jusqu'à la surface extérieure de la cathode avec des courants plus importants (égale à 1,08 mA).

- La densité des espèces chargées est de l'ordre de 10^{19} m^{-3} , mais celle des espèces excitées est plus élevée, de sorte que leur contribution dans la production d'électrons par les processus de Penning et par étapes d'ionisation est importante ; en effet elles ont un rôle important dans le maintien de la décharge.
- Les électrons secondaires dans la MHCD RF ont pour effet d'élever le processus d'ionisation ainsi que la température des électrons au niveau des gaines des cathodes opposées.
- En augmentant la pression de 50 à 100 Torr, la densité des électrons augmente dans le centre de la cathode creuse. Leur température diminue dans le centre de la décharge ; par contre elle augmente dans les gaines.
- Le champ électrique radial atteint une valeur intense dans les régions des gaines de l'ordre de 10^3 kV / m et conduit vers une élévation du courant et une réduction du potentiel électrique pendant la demi-période du cycle RF. L'épaisseur de la gaine dans ce cas est égale approximativement à $150 \mu\text{m}$.
- la température du gaz, peut causer la réduction du potentiel plasma à proximité des électrodes et contribue à l'élargissement de l'épaisseur de la gaine. la densité des électrons diminue et leur température croit.

Les résultats de notre contribution ont été comparés à ceux trouvés dans la littérature en courant continu et en RF. Ils ont montré un bon accord de notre modèle du point de vue qualitatif pour prédire les phénomènes physiques et chimiques dans la microcathode creuse.

IV.6 Bibliographie du chapitre IV

- [1] www.comsol.com
- [2] K. H. Schoenbach, R. Verhappen, T. Tessnow, and F. E. Peterkin, «Microhollow cathode discharges», Appl. Phys. Lett. Vol 68 N° 1, 1 January 1996, 13-15
- [3] K. H. Schoenbach, M. Moselhy, W. Shi, and R. Bentley, « Microhollow cathode discharges», J. Vac. Sci. Technol. A, Vol 21 N° 4, Jul/ Aug 2003, 1260-1265
- [4] R. M. Sankaran and K.P. Giapis, M.Moselhy and K.H. Schoenbach, «Argon excimer emission from high-pressure microdischarges in metal capillaries», Appl. Phys. Lett Vol. 83 N° 23, 8 December 2003, 4728-4730
- [5] L. D. Biborosh, I.Petznauser, B.J.Lee, K.Frank and K.H.Schoenbach, « Excimer emission of open and closed microhollow cathode discharges in xenon», Rom.J.Phys Vol.50, N°7-8, 2005, p711-722
- [6] J.P. Boeuf, L.C. Pitchford and K.H. Schoenbach, «Predicted properties of microhollow cathode discharges in xenon », Appl. Phys. Lett. 86, 071501 (2005); <http://dx.doi.org/10.1063/1.1862781>
- [7] P.S. Kothnur, X. Yuan and L.L. Raja, « Structure of direct-current microdischarge plasmas in helium », Appl. Phys. Lett, Vol. 82 N° 4, 27 January 2003, <http://dx.doi.org/10.1063/1.1540246>
- [8] C.Lazzaroni, P.Chabert, A.Rousseau and N.Sadeghi, «The excitation structure in a micro-hollow cathode discharge in the normal regime at medium argon pressure » J.Phys. D :Appl. Phys; Vol 43, N°12, 2010, (7pp)
- [9] XIA Guangqing, MAO Genwang and Nader Sadeghi, « Experimental investigation of micro-hollow cathode discharge for the application to microplasma thrusters», Tsinghua Sci. Technol; Vol 14, 2009,49-53

- [10] C.Lazzaroni and P.Chabert, «Electrical characteristics of microhollow Cathode discharge », J. Phys. D. Appl. Phys; Vol 46, 455203, 2013
- [11] P. Chabert, C.Lazzaroni and A.Rousseau, « A model for the self-pulsing regime of micro-hollow cathode discharges », J.Appl. Phys, Vol 10, N°.8, 113307, 2010
- [12] T. Deconinck and L. L. Raja, « Modeling of mode transition behavior in argon micro-hollow cathode discharges », Plasma Process. Polym, Vol. 6, 335–346, 2009
- [13] C. Lazzaroni and P. Chabert, « A global model of micro-hollow cathode discharges in the stationary regime », J. Phys. D. Appl. Phys, Vol. 44, 445202, 2011
- [14] C.Lazzaroni, P. Chabert, A.Rousseau and N.Sadeghi, « Sheath and electron density dynamics in the normal and self-pulsing regime of a micro hollow cathode discharge in argon gas », Eur. Phys. J. D (23010)
- [15] T.Duffour, R.Dussart, P.Lefauchaux, P.Ranson, L.Overzet,M. Mancira, J.B.Lee, and M. Goeckner, « Effect of limiting the cathode surface on direct current microhollow cathode discharge in helium », App. Phys. Lett , Vol. 93, 071508, 2008
- [16] Y.B. Guo and F. C. N. Hong, « Radio-frequency microdischarge arrays for large-area cold atmospheric plasma generation», Appl. Phys. Lett., Vol. 82, N°. 3, 20 January 2003, 337-339
- [17] T. Lafleur and R.W. Boswell, «Particle-in-cell simulations of hollow cathode enhanced capacitively coupled radio frequency discharges», Phys. Plasmas 19, 023508, 2012
- [18] Y. Zhang, W. Jiang, Q. Z. Zhang, and A. Bogaerts, «Computational study of plasma sustainability in radio frequency micro-discharges», J. Appl. Phy, Vol. 115, 193301, 2014
- [19] R. Heming, S. Tombrink, M. Miclea, M. Gruber, J. Franzke, «RF driven Microhollow Cathode Discharge for Atomic Emission Spectrometry», DGaO-Proceedings 2007 - <http://www.dgao-proceedings.de> - ISSN: 1614-8436
- [20] C.M.O. Mahony, T. Gans, W.G. Graham, P.D. Maguire and Z.Lj. Petrović, «

- Ultrasmall radio frequency driven microhollow cathode discharge», *App. Phys. Let.* 93 011501, 2008, 3pp
- [21] R. Foest, M. Schmidt and K. Becker, «Microplasmas, an emerging field of low-temperature plasma science and technology», *International Journal of Mass Spectrometry*, Vol. 248 (2006) 87–102
- [22] V. Karanassios, «Microplasmas for chemical analysis: analytical tools or research toys? » *Spectrochimica Acta Part B* 59 (2004) 909– 928
- [23] D. Luo, Y. Duan, «Microplasmas for analytical applications of lab-on-a-chip», *Trends in Analytical Chemistry*, Vol. 39, 2012
- [24] A. Berkane, S. Rebiai, F. Bouanaka and H. Bahouh, «Computational study of RF micro-hollow cathode discharge», *Phys.Scr.* Vol.90, 065602 (9pp), doi:10.1088/0031-8949/90/6/065602, April 2015
- [25] P.S.Kothnur and L.L.Raja, «Two-dimensional simulation of a direct-current microhollow cathode discharge», *J. Appl. Phys*, Vol. 97, 043305, 2005
- [26] L. C. Pitchford and J.P. Boeuf, « Modelling high pressure micro hollow cathode discharges », Grant 33083 Final report 10 December 2004
- [27] Boris M. Smirnov, « Physics of Ionized Gases », A Wiley-Interscience Publication by John Wiley & Sons Inc ISBN 0-471-17594-3, 2001, 113-121
- [28] A.Berkane et S.Rebiai, « Numerical Study of Electrical Characteristics in RF Micro Discharge », *Proceedings of the 4th International Conference on Systems and Control, Sousse, Tunisia, April 28-30, 2015*, 978-1-4799-8318-6/15/\$31.00 ©2015 IEEE , 378-383
- [29] D. Söderström, H. Baránková et L. Bárdoš, «Time evolution of the space-charge sheath in an rf hollow Cathode », *Journal of Physics: Conference Series* 100 (2008) 062020, IOP Publishing, doi:10.1088/1742-6596/100/6/062020
- [30] D. Fukuhara, S. Namba et K. Takiyama, «Cathode Sheath Thickness of a Microhollow Cathode Discharge Plasma In Argon High Gas Pressures», *Engineering Journal* Vol.

17 Issue 5 ISSN 0125-8281; DOI:10.4186/ej.2013.17.5.1, 31 December 2013, 1-6

- [31] Z. Guoming ,S. Qian ,Z. Shuxia,G. Shuxia et Z.Lianzhu , « The Effect of Gas Flow Rate on Radio-Frequency Hollow Cathode Discharge Characteristics», Plasma Science and Technology, Vol.16, No.7, 669-676, Jul. 2014

Conclusion générale

L'objectif du travail dans cette thèse consiste à élaborer un modèle numérique pour la compréhension des phénomènes physiques qui interviennent dans la décharge plasmas froids.

Ainsi, après une étude théorique faite sur les plasmas à basse et à haute pressions et plus particulièrement sur les micros décharges et leurs applications, dans le premier chapitre, nous avons traité dans le deuxième chapitre les différentes collisions élastiques et inélastiques pouvant exister dans la phase gazeuse, en se basant sur le calcul des paramètres indispensables décrivant ces collisions tels que la section efficace de collisions, le libre parcours moyen et le taux de réaction. La compréhension et le calcul de ces paramètres sont très utiles pour pouvoir simuler les décharges plasmas. Nous avons aussi exposé les différents modèles numériques disponibles pour la simulation et les équations mises en jeu.

Cette étude théorique nous a permis de :

- Choisir le modèle à traiter dans cette thèse. En effet, nous avons développé le modèle fluide auto-cohérent unidimensionnel en mode continu tout en adoptant la méthode des volumes finies pour la discrétisation des équations différentielles à dérivées partielles. Afin de pouvoir les résoudre, nous avons mis au point un code numérique en langage Fortran en une dimension. Cette résolution nous a permis de faire une étude paramétrique d'une décharge d'hélium, contenant seulement le processus d'ionisation. Les résultats obtenus montrent que:

- la longueur de la colonne positive est affectée par la distance inter-électrodes. En effet, elle augmente avec l'augmentation de la distance. Si on continue à diminuer l'écart entre les deux électrodes en respectant toujours la loi de Paschen, en faisant accroître la pression du gaz, la colonne positive va disparaître et la décharge continue serait alors maintenue par la lueur négative. C'est le principe des micro-décharges dans les applications industrielles.

- Le potentiel électrique par conséquent diminue dans le cœur du plasma .

- L'augmentation de la pression dans une décharge continue conduit à une diminution du potentiel électrique et la décharge sera maintenue par le processus de la colonne positive

Afin de bien comprendre les phénomènes physiques de la micro décharge en régime radiofréquence, nous avons étudié numériquement les propriétés de cette micro décharge

en exploitant le logiciel « Comsol » Multi physique. L'étude à été réalisée pour deux dimensions, à haute pression et pour une géométrie creuse qu'on appelle micro cathode creuse. Pour cela, nous avons opté pour le modèle fluide dans lequel Comsol repose et nous avons mis aux point sept réactions chimiques et trois espèces (les métastables, les ions et les électrons).

Nous avons étudié à partir de cette simulation la distribution des électrons dans la microcathode creuse ou nous avons démontré l'effet de la cathode creuse. En outre nous avons traité l'influence des paramètres de contrôle telles que la pression du gaz, la tension et la température du gaz sur la variation des particules considérées, de la température électronique, du potentiel et champ électrique ainsi que les différents taux de réactions .

Les résultats obtenus de la simulation par le logiciel « **Comsol** » ont montré que :

1. Les MHCD en radiofréquence sont caractérisées par trois régimes comme en DC :
 - Le régime anormal où la décharge est confinée à l'intérieur du micro trou avec un faible courant (varie entre 0.01 et 0.08 mA)
 - Le régime normal où la décharge est allumée à l'intérieur du trou et s'étend sur la surface extérieure de la cathode avec des courants plus forts (de 1 mA à 9.60 mA)
 - Entre ces deux régimes stables, il existe un régime non stable dont le courant varie entre 0.1 mA et 1 mA.
2. Les décharges radio fréquences à haute pression montrent l'existence importante du processus d'ionisation dans les gaines oscillantes comme dans les décharges RF classiques et la présence des espèces excitées dans tout le creux et à proximité des cathodes.
3. Les processus de l'ionisation Penning et par étapes sont considérables et contribuent au maintien de la décharge.
4. Le chauffage des électrons dans la microcathode creuse est du à la combinaison du chauffage ohmique du au fort champ électrique radial et à l'effet pendulaire des électrons.
5. La densité électronique évolue énormément à l'intérieur et à l'extérieur du creux de la microcathode creuse avec l'augmentation de la pression. En conséquence, la

température électronique croit aux niveaux des gaines et diminue au centre du plasma

6. L'augmentation de la température du gaz a un effet significatif sur la diminution de la densité électronique et l'augmentation de la température électronique au niveau des électrodes.

Publications Internationales

- **A Berkane**, S Rebiai, F Bouanaka and H Bahouh, « Computational study of RF micro-hollow cathode discharge », **IOP** publishing, Phys. Scr. Vol .90,N°6, 065602,(9pp),(2015), [doi:10.1088/0031-8949/90/6/065602](https://doi.org/10.1088/0031-8949/90/6/065602)

Communications

a- Internationales

- 1- **A.Berkane**, S.Rebiai, « Numerical Study of Electrical Characteristics in RF Microdischarge», Proceedings of the 4th International Conference on Systems and Control, Sousse, Tunisia, 378-383, April 28-30, 2015, 978-1-4799-8318-6/15/\$31.00©2015 IEEE.
- 2- **A.Berkane**, S.Rebiai, S.Sahli, « A Numerical method to simulate Continue Glow Plasma Discharges», 2nd International Conference on Electrical Engineering Design and Technologies ICEEDT'08, November 8-10, 2008 Hammamet, Tunisia, www.iceedt.esrgroups.org

b- Nationales

- 1- **A.Berkane**, S.Rebiai, S.Sahli, «Simulation Par un modèle Fluide, d'une Décharge Continue Dans un Réacteur Plasma », Conférence Internationale sur la physique et ses applications, CIPA'2007, 2-4 Décembre 2007, Oran, Algérie.
- 2- **A.Berkane**, S.Rebiai, S.Sahli, «Modélisation d'un réacteur plasma pour un dépôt en RF», Conférence Internationale sur la physique et ses applications, CIPA'2007, 2-4 Décembre 2007, Oran, Algérie.
- 3- **A.Berkane**, S.Rebiai, S.Sahli, « A Conservative Finite Volume Method for the Numerical Solution of Plasma Fluid Equations», Intenational Conference on Knowledge Discovery and Databases: Materials Informatics and DFT, Eden Palace, Oran, Algéria, 11-13th October 2008.
- 4- **A.Berkane**, S.Rebiai, « Simulation d'une Décharge luminescente Continue Dans un Gaz Plasma», The International Seminar on Plasmas Physics, SIPP'2011, Ouargla, 13-15 Février 2011
- 5- **A.Berkane**, S.Rebiai, « Simulation d'une Décharge Radio-Fréquence Dans l'Argon à Basse Pression », The 2nd International Seminar On Plasma Physics SIPP'2013, Ouargla, 11-12 Mars 2013

Abstract

The present work is to develop a single and multi-dimensional numerical model to describe the transport phenomena of charged and excited species in a cold plasma microreactor. For that, we first developed a simple fluid model using the drift and diffusion approximation containing only the ionization process in continuous mode and simulated by the finite volume method written in FORTRAN code. Eventually we developed this model by exploiting the commercial software Comsol, for a digital micro-hollow cathode discharge study submitted to radiofrequency excitation. The two dimensional simulation performed allowed us to do a study on the effect of control parameters, such as pressure, gaz temperature and frequency on the change in the electron density , the electron temperature , potential, and reaction rates of various chemical process.

Keywords: microplasma, microreactor, finite volume, microdischarge, hollow cathode, Comsol

ملخص

إن العمل المتعلق برسالة دكتوراه علوم هو وضع نموذج عددي أحادي و مختلف الأبعاد، لوصف ظواهر نقل الأنواع المشحونة داخل ميكرومفاعل للبلازما الباردة. لذلك فمننا بوضع أولاً نموذجاً مائعاً بسيطاً باستخدام مقارنة الانجراف و النشر ، يحتوي فقط على عملية التأين في الوضع المستمر و الذي يحاكيه أسلوب حجم محدود و مكتوب ببرنامج "فورترون". في نهاية المطاف قمنا بتطوير هذا النموذج من خلال استغلال البرمجيات " Comsol " التجاري. و ذلك لدراسة الميكرو مصعد الأجوف مشحون بموجات راديو . و بمحاكاة ثنائية الأبعاد سُمح للقيام بدراسة حول تأثير عوامل المراقبة مثل الضغط و درجة حرارة الغاز و التردد على التغيير في كثافة الالكترونات، درجة حرارة الإلكترتون و معدلات التفاعل من العمليات الكيميائية المختلفة.

الكلمات المفتاحية : ميكرو بلازما، ميكرومفاعل، حجم محدود، ميكرو تفرغ، مصعد أجوف،

Comsol

Résumé

Le présent travail consiste à développer un modèle numérique mono et bidimensionnel pour décrire le phénomène de transport des espèces chargées et excitées dans un microréacteur à plasma froids. Pour cela, nous avons tout d'abord élaboré un modèle fluide simple en utilisant l'approximation dérive et diffusion contenant seulement le processus d'ionisation en mode continue et simulé par la méthode des volumes finis écrite en langage Fortran. Par la suite nous avons développé ce modèle en exploitant le logiciel commercial Comsol, pour l'étude numérique d'une micro-décharge à cathode creuse soumise à une excitation radiofréquence. La simulation bidimensionnelle réalisée a permis de faire une étude sur l'effet des paramètres de contrôle, comme la pression, la température du gaz et la fréquence, sur la variation de la densité électronique, de la température des électrons et du potentiel, ainsi que les taux de réaction des différents processus chimiques.

Mots clés : microplasma, microréacteur, volumes finis, micro-décharge ; cathode creuse, Comsol