




GDR EMILI – Octobre 2021



**Décharges  
contrôlées par  
barrière diélectrique :  
Toujours de la  
nouvelle physique !**





Décharges contrôlées par barrière diélectrique :  
Toujours de la nouvelle physique !

## SOMMAIRE

### 1) DBD basse fréquence (RF)

- 1) Principe
- 2) Régimes de décharge

### 2) DBD homogènes de la basse fréquence, kHz, à la radiofréquence (RF), 13.56MHz

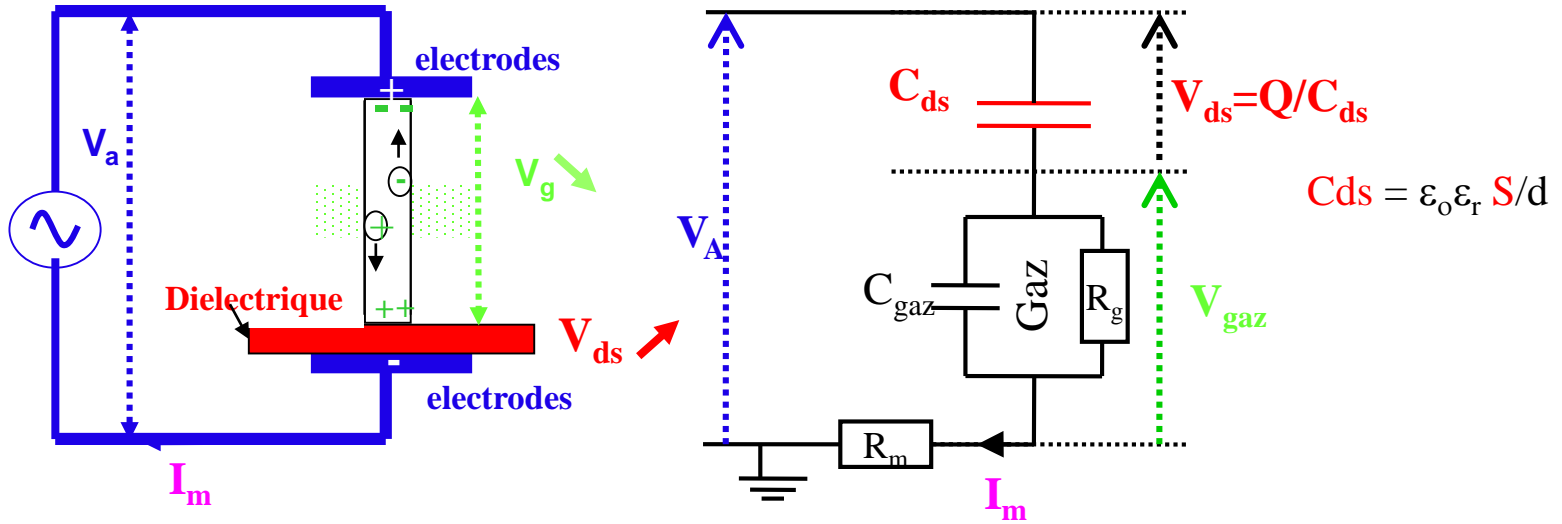
- 1) Transition glow-RF
- 2) Caractéristiques des différentes décharges

### 3) DBD double fréquence: RF-BF

- 1) Effet de l'amplitude de la tension BF
- 2) Identification des régimes de décharges
- 3) Effet de l'amplitude de la tension RF
- 4) Et la photoémission?

### 4) Conclusion

# DBD : un diélectrique solide dans le passage du courant de décharge ou comment la décharge s'éteint



$$V_g(t) = V_A(t) - V_{ds}(t)$$

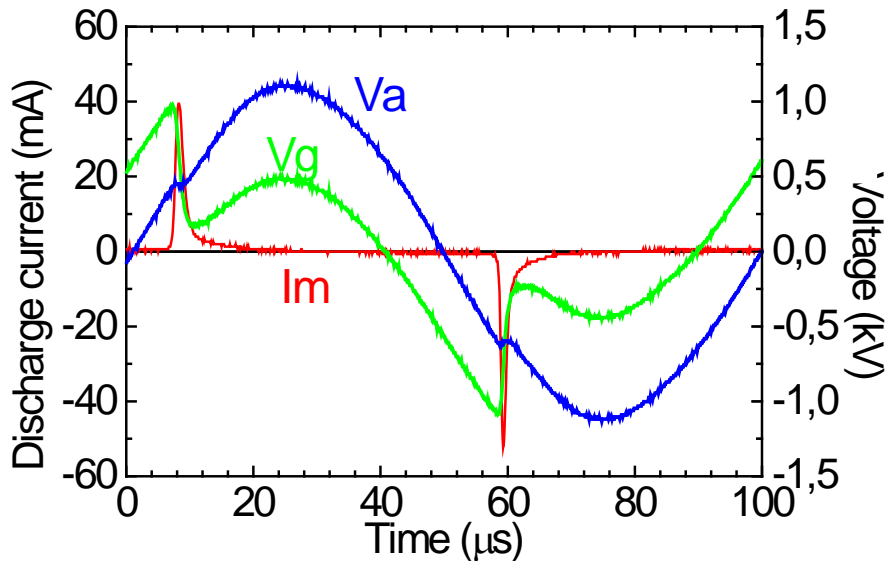
$$\int V_{ds}(t) dt = \frac{\int I_m(t) dt}{C_{ds}} + V_{ds}(t_0)$$

$$\int_0^T V_g dt = 0$$

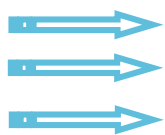
DBD : un diélectrique solide dans le passage du courant de décharge ou comment la décharge s'éteint

Variation de la tension gaz dans une DBD

$$V_g(t) = V_A(t) - V_{ds}(t)$$



Dielectrique



Evite la transition à l'arc

Décharge pulsée

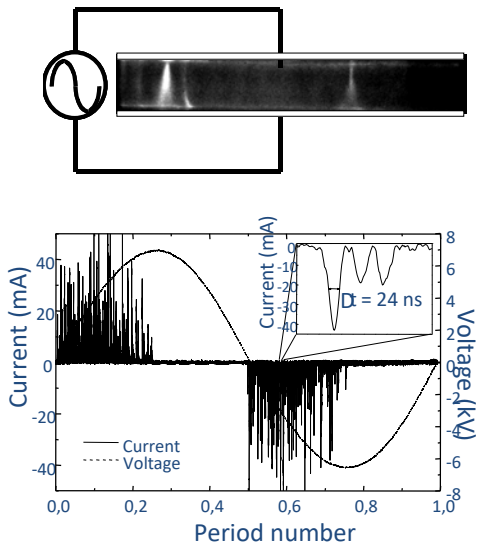
Solution robuste pour générer un plasma froid à la pression atmosphérique



Produit (Pxd) élevé + mémoire d'une décharge à la suivante  
ou du claquage de streamer au claquage Townsend

### Claquage de streamer

(1 électron -> 1 avalanche  
-> 1 streamer -> 1 microdécharge)



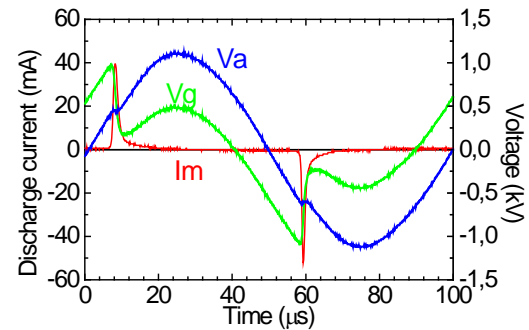
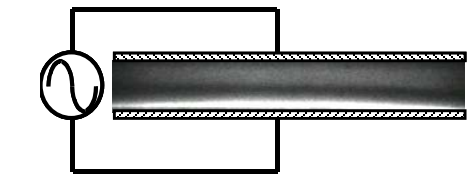
ICCD,  $t=10\text{ns}$



$\gamma \rightarrow \alpha$

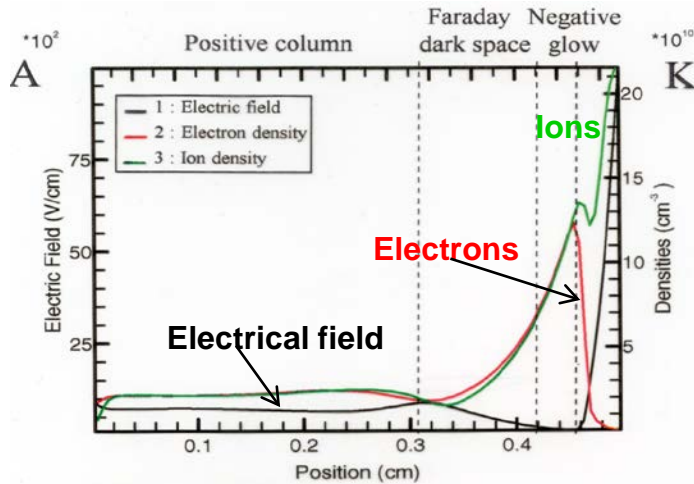
### Claquage de Townsend

Electrons secondaires à la cathode à l'origine de la décharge



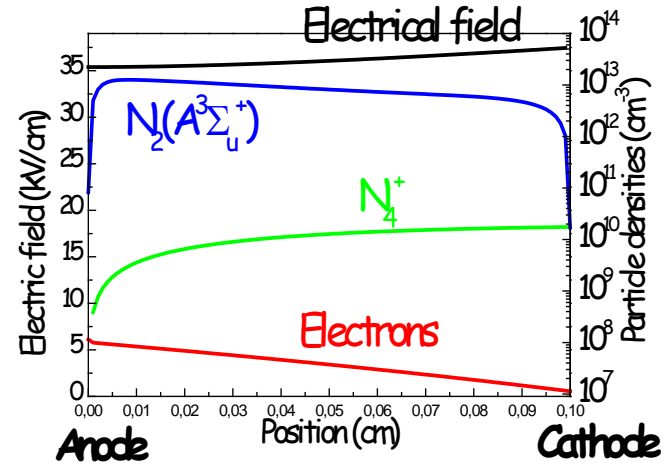
# Les DBD homogènes à basse fréquence: luminescente et Townsend

## Décharge luminescente He, mélange Penning de gaz rare



$N_e \approx N_{\text{ions}} \approx N_{\text{He}^*} \approx 10^{11} \text{ cm}^{-3}$   
 $E_{\text{He}^*} = 19.6 \text{ eV}$   
 Chute cathodique : 400  $\mu\text{m}$

## Décharge de Townsend $\text{N}_2$ , air



$N_e \approx 10^8 \text{ cm}^{-3}$   $E_{\text{moy}} \approx 4 \text{ eV}$   
 $N_{\text{ions}} \approx 10^{10} \text{ cm}^{-3}$   
 $N_{\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+)} \approx 10^{13} \text{ cm}^{-3}$   
 $E_{\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+)} = 6.2 \text{ eV}$



Décharges contrôlées par barrière diélectrique :  
Toujours de la nouvelle physique !

## SOMMAIRE

### 1) DBD basse fréquence

- 1) Principe
- 2) Régimes de décharge

### 2) DBD homogènes de la basse fréquence (kHz) à la radiofréquence (13,56 MHz)

- 1) Transition glow-RF
- 2) Caractéristiques des différentes décharges

### 3) DBD double fréquence: RF-BF

- 1) Effet de l'amplitude de la tension BF
- 2) Identification des régimes de décharges
- 3) Effet de l'amplitude de la tension RF
- 4) Et la photoémission?

### 4) Conclusion

# Regime de DBD homogènes et fréquence de la tension appliquée

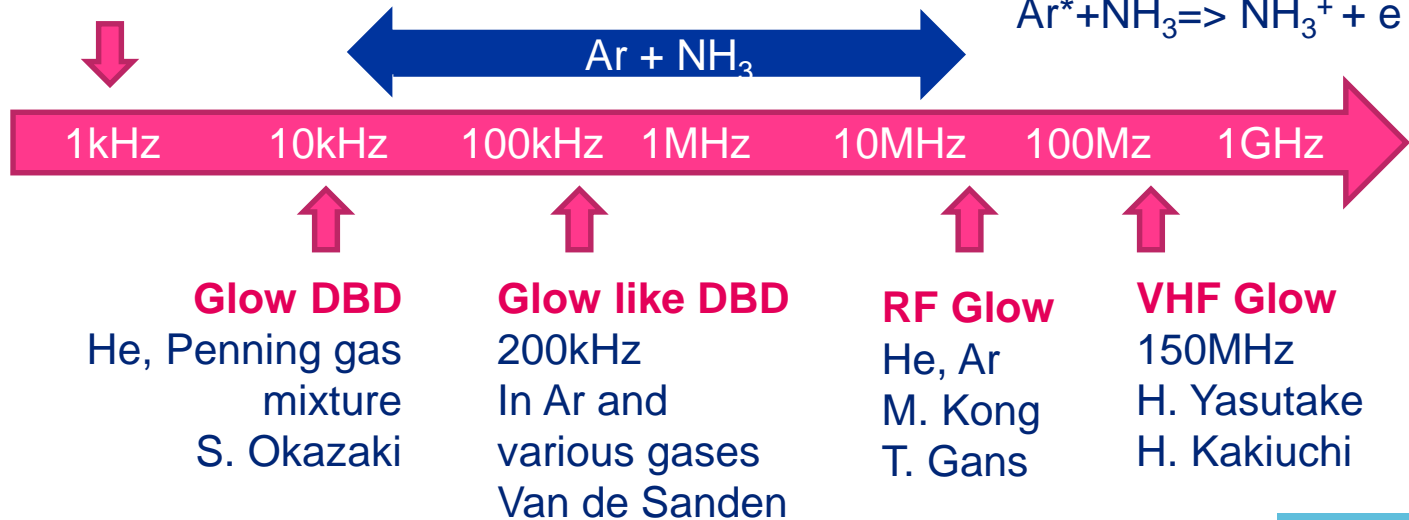
- **Single frequency DBD**
- **Pulsed DBD**
- **Dual frequency DBD**

## Townsend DBD

In  $N_2$ , air  
F. Massines *et al.*  
N. Naudé *et al.*



In a Penning gas  
 $Ar^* + NH_3 \Rightarrow NH_3^+ + e + Ar$

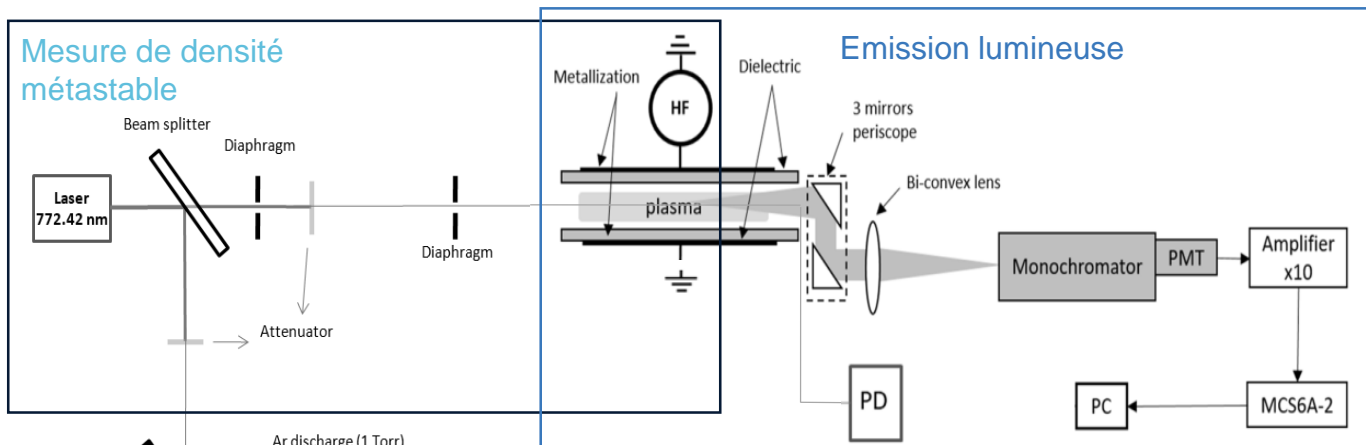




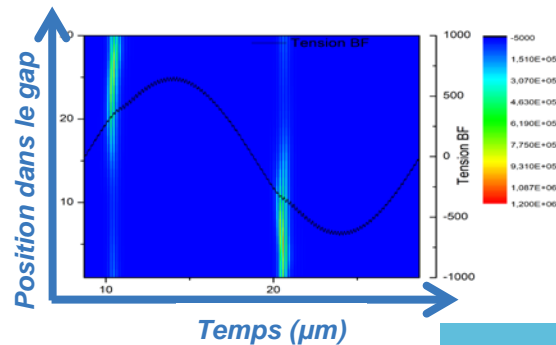
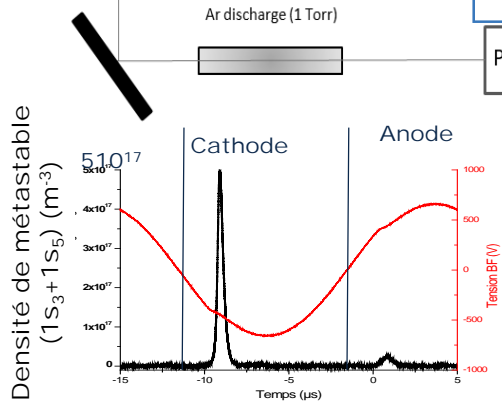
# Caractérisation optique de la DBD

## Absorption des $Ar^*$ et Emission résolue spatiotemporellement

En collaboration avec Nader Sadeghi, laboratoire LiPhy, Grenoble dans le cadre du réseau plasma froid



Time of flight  
multiScaler  
Counter  
(LPGP)



# Modélisation de la DBD en Ar-NH<sub>3</sub>

## Collaboration avec Gerjan Hagelaar

- Equations:

For all species: continuity and momentum transfer equations coupled to Poisson's equation

**For electrons: energy equation**

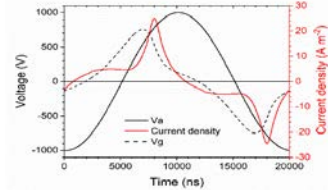
- Five species: Ar, Ar\*, Ar<sup>+</sup>, Ar<sub>2</sub><sup>+</sup>, e

Reaction	Rate coefficient	ref
e + Ar (elastic collision)	F(E/N)	Bolsig+, Arakoni 2007
e + Ar (inelastic collision)	F(E/N)	Bolsig+, Arakoni 2007
e + Ar → e + Ar*	F(E/N)	Bolsig+, Arakoni 2007
e + Ar <sub>2</sub> <sup>+</sup> → Ar* + Ar	7.35 x 10 <sup>-14</sup> x Te <sup>-0.67</sup> m <sup>3</sup> s <sup>-1</sup>	Mehr and Biondi
Ar* → Ar	1.55 x 10 <sup>6</sup> s <sup>-1</sup>	
e + Ar* → e + Ar	2 x 10 <sup>-13</sup> m <sup>3</sup> s <sup>-1</sup>	
e + Ar* → 2e + Ar <sup>+</sup>	F(E/N)	Bolsig+, Arakoni 2007
e + Ar → 2e + Ar <sup>+</sup>	F(E/N)	Bolsig+, Arakoni 2007
2Ar* → Ar + e + Ar <sup>+</sup>	6,4 x 10 <sup>-16</sup> m <sup>3</sup> s <sup>-1</sup> (ratio 30%)	Ferreira 1985
Ar* → e + Ar <sup>+</sup> (Penning simulation)	2.06 x 10 <sup>5</sup> s <sup>-1</sup> Ar* + NH <sub>3</sub> (139ppm) → Ar + NH <sub>3</sub> <sup>+</sup> + e	Arakoni 2007
Ar <sup>+</sup> + 2Ar → Ar <sub>2</sub> <sup>+</sup> + Ar	2.5 x 10 <sup>-43</sup> m <sup>6</sup> s <sup>-1</sup>	Arakoni 2007, Lam et al 2000
2Ar* → e + Ar <sub>2</sub> <sup>+</sup>	6.4 x 10 <sup>-16</sup> m <sup>3</sup> s <sup>-1</sup> (ratio 70%)	Ferreira 1985

# Modélisation de la DBD dans Ar-NH3(200ppm)

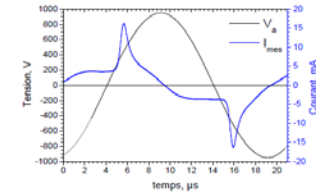
50 KHZ

Modelling



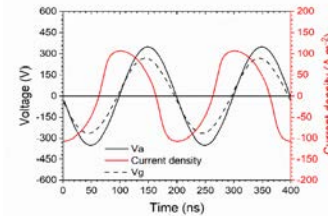
Power =  $0.25 \text{ W/cm}^3$   
 $\text{Ar}^* = 6 \times 10^{10} / \text{cm}^3$

Experimental

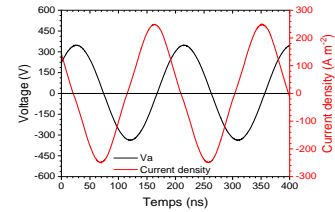


Power =  $0.4 \text{ W/cm}^3$   
 $\text{Ar}^* = 3 \times 10^{10} / \text{cm}^3$

5 MHZ



Power =  $3.25 \text{ W/cm}^3$   
 $\text{Ar}^* = 2 \times 10^{10} / \text{cm}^3$



Power =  $4 \text{ W/cm}^3$   
 $\text{Ar}^* = 4 \times 10^9 / \text{cm}^3$

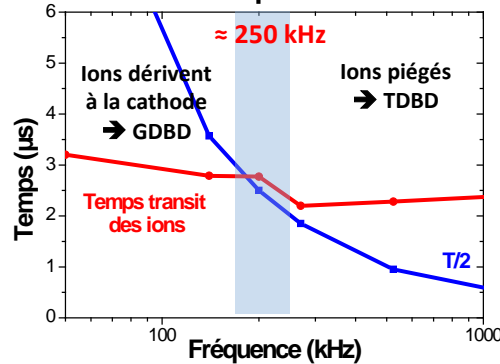
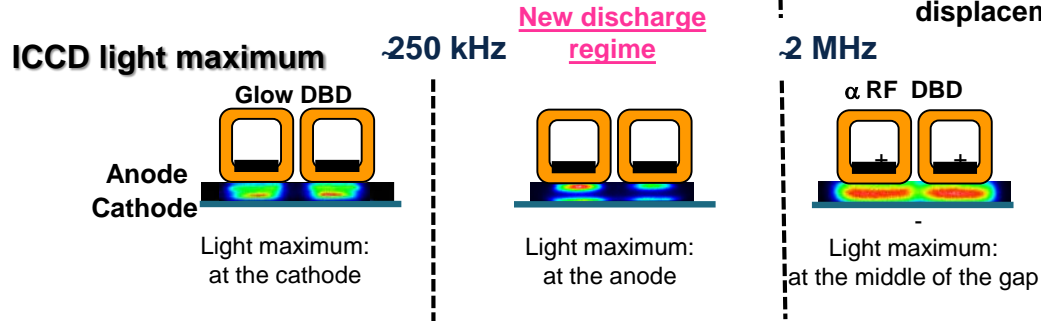


# Regime de DBD homogènes fréquence de la tension appliquée

50 kHz → Frequency increase Sinus 13.56 MHz

LF : Discharge controlled by secondary electrons

RF : Cathode fall due to electron displacement





# Regime de DBD homogènes fréquence de la tension appliquée

50 kHz → Frequency increase → 13.56 MHz

LF : Discharge controlled by secondary electrons

RF : Cathode fall due to electron displacement

ICCD light maximum

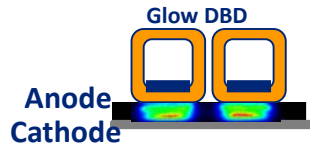
~250 kHz

**New discharge regime**

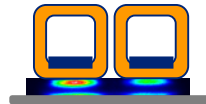
~2 MHz

Voltage increase →

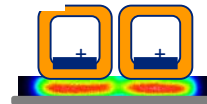
$\gamma$  RF DBD ( $\approx$  MHz)



Light maximum:  
at the cathode



Light maximum:  
at the anode



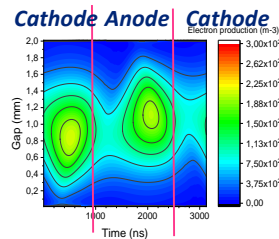
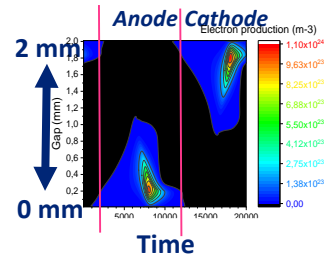
Light maximum:  
at the middle of the gap

Ions drift to the cathode  
↓  
cathode fall

Ions trapped in the gap

Bulk ion density increase  
Ionisation decrease  
High bulk electric field

Electron production ( $m^{-3}$ )



# Regime de DBD homogènes fréquence de la tension appliquée

Ar + NH<sub>3</sub> (133ppm)

50 kHz → Frequency increase Sinus → 13.56 MHz

LF : Discharge controlled by secondary electrons

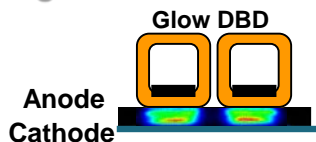
RF : Cathode fall due to electron displacement

ICCD light maximum

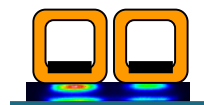
250 kHz

New discharge regime

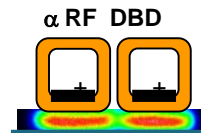
2 MHz



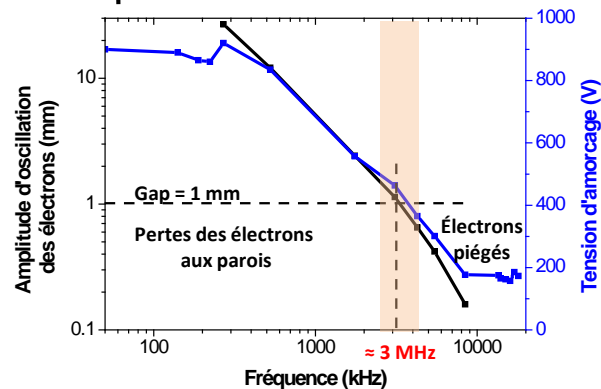
Light maximum:  
at the cathode



Light maximum:  
at the anode



Light maximum:  
at the middle of the gap



# Regime de DBD homogènes fréquence de la tension appliquée

Ar + NH<sub>3</sub> (133ppm)

50 kHz → Frequency increase → 13.56 MHz

LF : Discharge controlled by secondary electrons

RF : Cathode fall due to electron displacement

ICCD light maximum

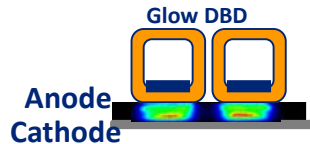
~250 kHz

**New discharge regime**

~2 MHz

Voltage increase →

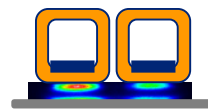
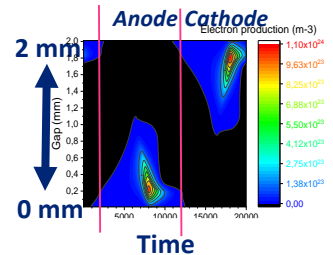
$\gamma$  RF DBD ( $\approx$ MHz)



Light maximum:  
at the cathode

Ions drift to the cathode  
↓  
cathode fall

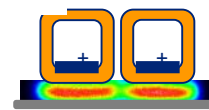
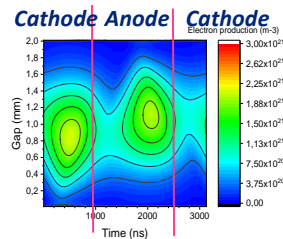
Electron production (m<sup>-3</sup>)



Light maximum:  
at the anode

Ions trapped in the gap

Bulk ion density increase  
Ionisation decrease  
High bulk electric field



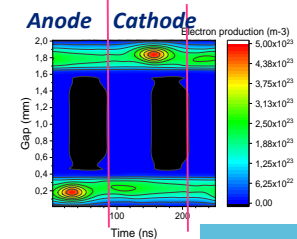
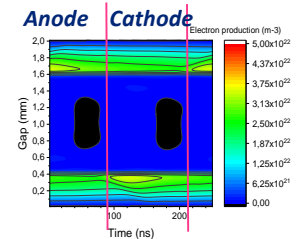
Light maximum:  
at the middle of the gap

Electrons trapped in the gap

Electrons oscillations

Cathode fall  
+  
cathode secondary emission

RF  $\alpha$

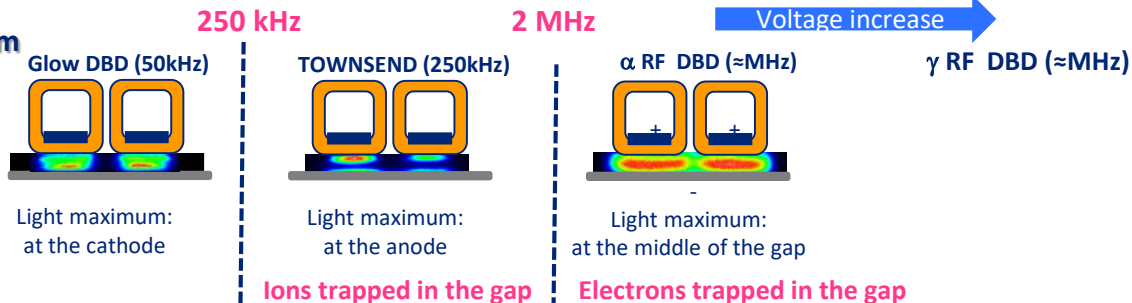


# Regime de DBD homogènes fréquence et forme de la tension appliquée

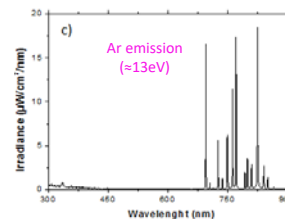
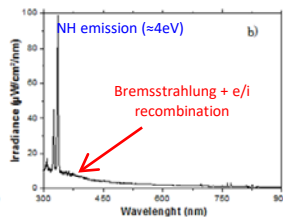
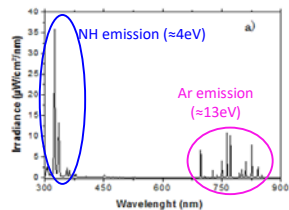
Ar + NH<sub>3</sub> (133ppm)

50 kHz → Frequency increase → 13.56 MHz

ICCD light maximum



Emission spectroscopy



Ar metastable

$[Ar_3P^2] = 10^{10} \text{ cm}^{-3}$   
≈ densité électronique

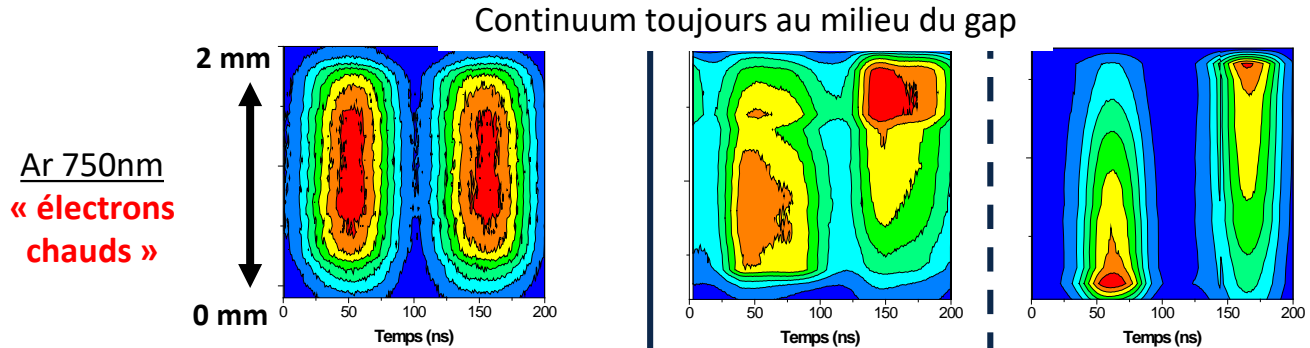
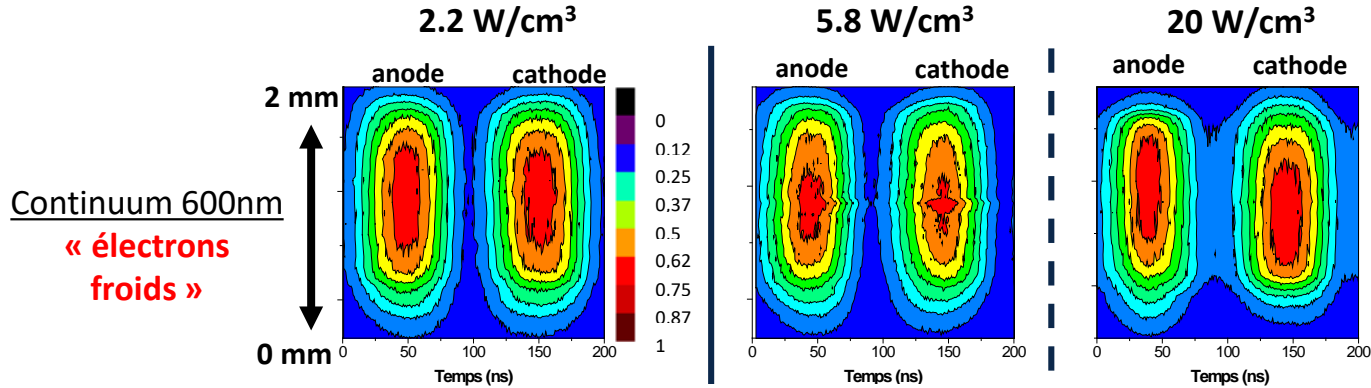
$[Ar_3P^2] = 10^8 \text{ cm}^{-3}$   
< densité électronique



# Regime de DBD homogènes radiofréquence

## Effet de l'amplitude de la tension

gap gazeux 2 mm et 5 MHz



Emission dans le volume Chauffage par les gânes

Emission importante à la cathode

Régime alpha

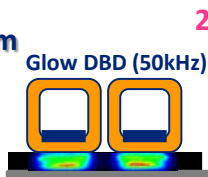
Régime gamma

# Regime de DBD homogènes fréquence et forme de la tension appliquée

Ar + NH<sub>3</sub> (133ppm)

50 kHz → Frequency increase → 13.56 MHz

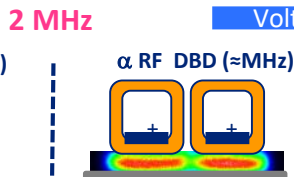
ICCD light maximum



Light maximum:  
at the cathode



Light maximum:  
at the anode

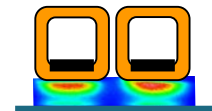


Light maximum:  
at the middle of the gap

Voltage increase →  
γ RF DBD (≈MHz)

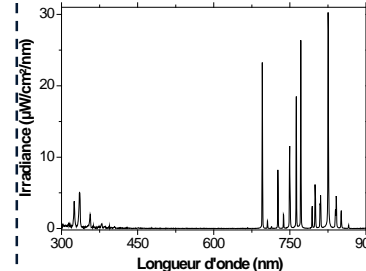
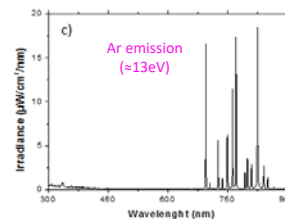
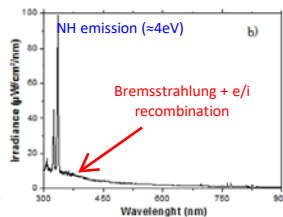
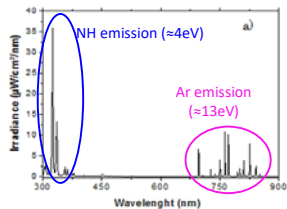
Nanopulsed

(10ns 1kHz)



Light maximum:  
at the anode with low  
emission at the cathode side

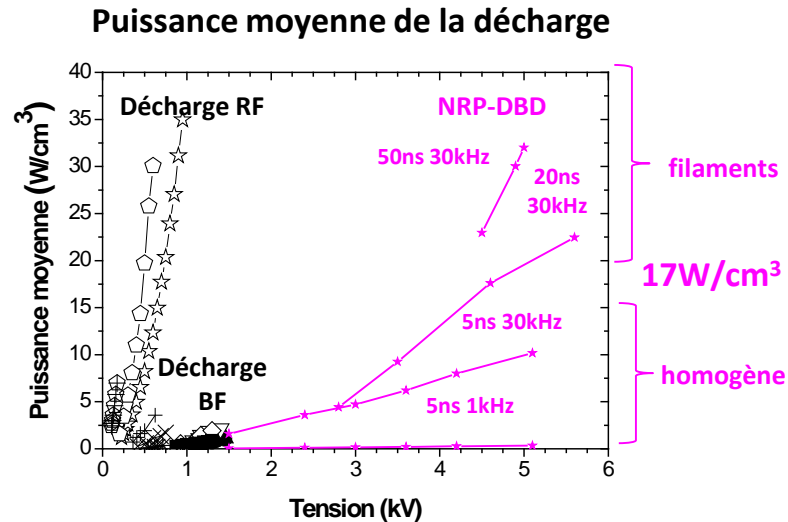
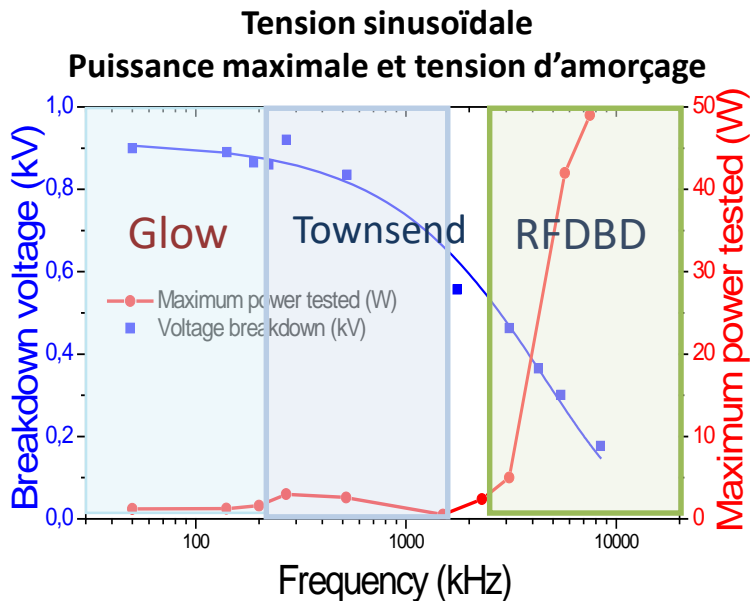
Emission spectroscopy



Ar metastable

$[Ar_3P^2] = 10^{10} \text{ cm}^{-3}$   
≈ densité électronique

$[Ar_3P^2] = 10^8 \text{ cm}^{-3}$   
< densité électronique



- Transition homogène filamentaire : 1 ou 2 W/cm<sup>3</sup> en BF et 17 W/cm<sup>3</sup> en NRP-DBD
- Décharge toujours homogène en RF, puissance supérieure à 36 W/cm<sup>3</sup>
- Tension de claquage 6 fois plus faible en RF qu'en BF

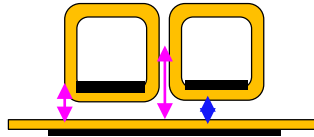
# Contrôle du transport des électrons : transition TDBD/RF-DBD

Régime RF-DBD → amplitude d'oscillation des électrons < gap



Combinaison de 3 paramètres : fréquence, tension et gap

Configuration roll to roll :



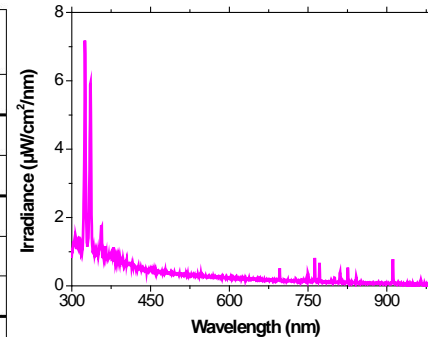
Le gap gazeux n'est pas constant :

- Sous les électrodes 1 mm
- En dehors > 1 mm

Lumière intégrée dans le temps (3 ms) et l'espace

Régime de décharge	Fréquence	Image		Echelle	Intensité maximale (u.a.)
		Electrode gauche	Electrode droite		
GDBD	50 kHz			 Max. Min.	5922
TDBD	250 kHz				3245
	550 kHz				2168
Transition	800 kHz				1683
	1.5 MHz				1410
RF-DBD	4.4 MHz				1676
	8.3 MHz				14717

Spectre des décharges supplémentaire



Continuum = RF-DBD


En dehors du gap de 1 mm : décharges RF-DBD supplémentaires dès 800 kHz



# Caractéristiques des différentes DBD homogènes

Ar + NH<sub>3</sub> (133ppm)  
Gap=1mm

Régimes	Tension sinusoïdale		Transition	Tension impulsionnelle	
	GDBD	TDBD		RF-DBD	NRP-DBD
Puissance	1 W/cm <sup>3</sup>	x 2	Une TDBD et une RF-DBD peuvent être obtenues dans les mêmes conditions: <ul style="list-style-type: none"> <li>• A des endroits différents</li> <li>• A des tensions différentes</li> </ul>	x 36	x 17
Tension d'amorçage	900 V			/ 6	x 3
	Diélectriques + Mélange Penning			Electrode métallique Sans mélange Penning	
Métastable	10 <sup>10</sup> cm <sup>-3</sup>			10 <sup>8</sup> cm <sup>-3</sup>	
Electrons	10 <sup>10</sup> /cm <sup>3</sup>			10 <sup>12</sup> /cm <sup>3</sup> 2 populations électroniques	10 <sup>13</sup> /cm <sup>3</sup> Electrons chauds



Décharges contrôlées par barrière diélectrique :  
Toujours de la nouvelle physique !

## SOMMAIRE

### 1) DBD basse fréquence

- 1) Principe
- 2) Régimes de décharge

### 2) DBD homogènes de la basse fréquence (kHz) à la radiofréquence (13,56 MHz)

- 1) Transition glow-RF
- 2) Caractéristiques des différentes décharges

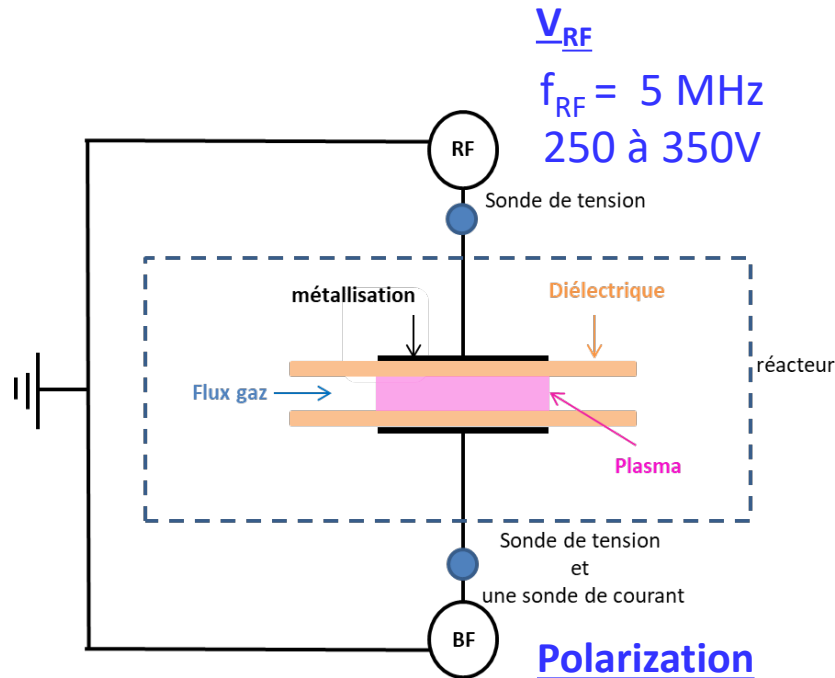
### 3) DBD double fréquence: RF-BF

- 1) Effet de l'amplitude de la tension BF
- 2) Identification des régimes de décharges
- 3) Effet de l'amplitude de la tension RF
- 4) Et la photoémission?

### 4) Conclusion

# REACTEUR

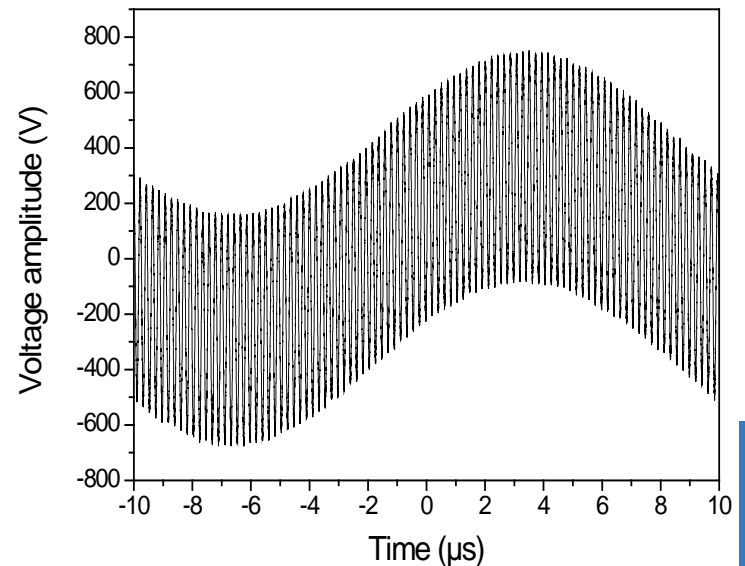
Ar + NH<sub>3</sub> (133 ou 200 ppm)  
Gap=2mm



## Polarization

$f_{LF} = f_p = 50 \text{ kHz}$   
Up to 1000 V

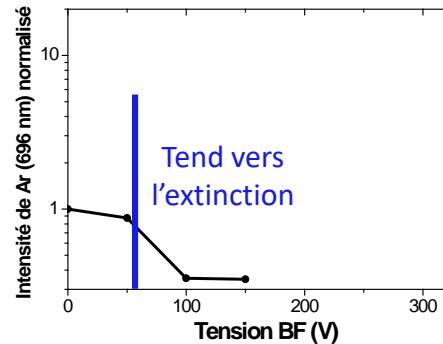
## Dual frequency applied to the electrodes



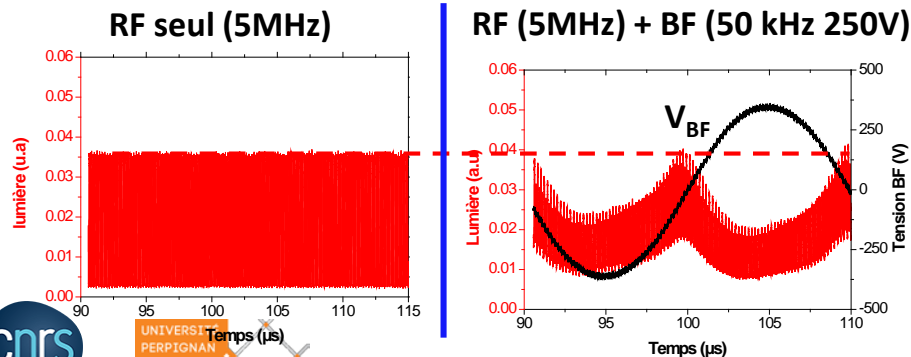
# DBD Double fréquence RF-BF

## Effet de la tension BF

Effet de  $V_{BF}$  à 50 kHz avec  $f_{BF}$  à 5 MHz ( $V_{rf} = 300$  V) : Intensité normalisée raie d'argon (696 nm)



### Lumière de la décharge en fonction du temps à l'échelle de la BF



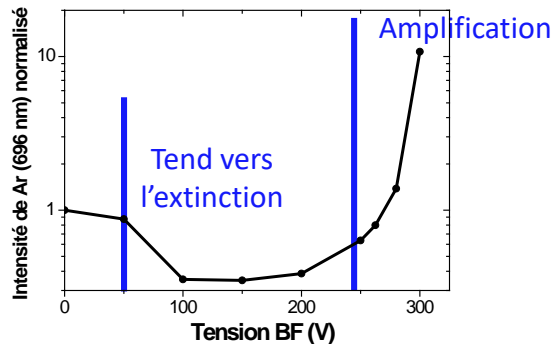
### Extraction des ions au maximum de $V_{BF}$

- Tend vers l'extinction
- ↗ tension amorçage RF-DBD

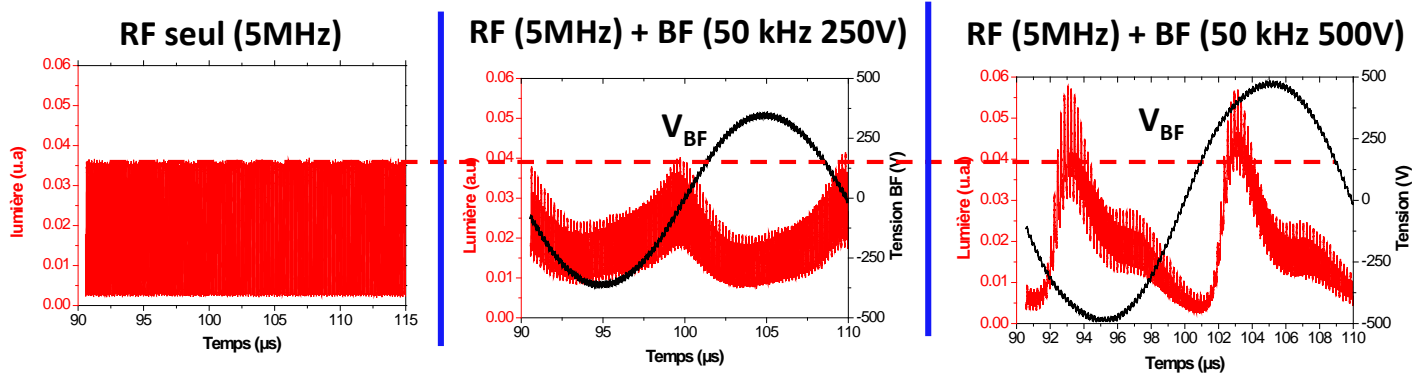
# DBD Double fréquence RF-BF

## Effet de la tension BF

Effet de  $V_{BF}$  à 50 kHz avec  
 $f_{BF}$  à 5 MHz ( $V_{rf} = 300$  V) :  
 Intensité normalisée raie  
 d'argon (696 nm)



### Lumière de la décharge en fonction du temps à l'échelle de la BF



### Extraction des ions au maximum de $V_{BF}$

- Tend vers l'extinction
  - ↗ tension amorçage RF-DBD
- Amplification

# DBD Double fréquence RF-BF

## Effet de la tension BF

Au maximum de  $V_{BF}$  (alternance négative)

Raie d'argon à 750 nm dans le temps et l'espace à l'échelle de la RF

RF seul (5MHz)

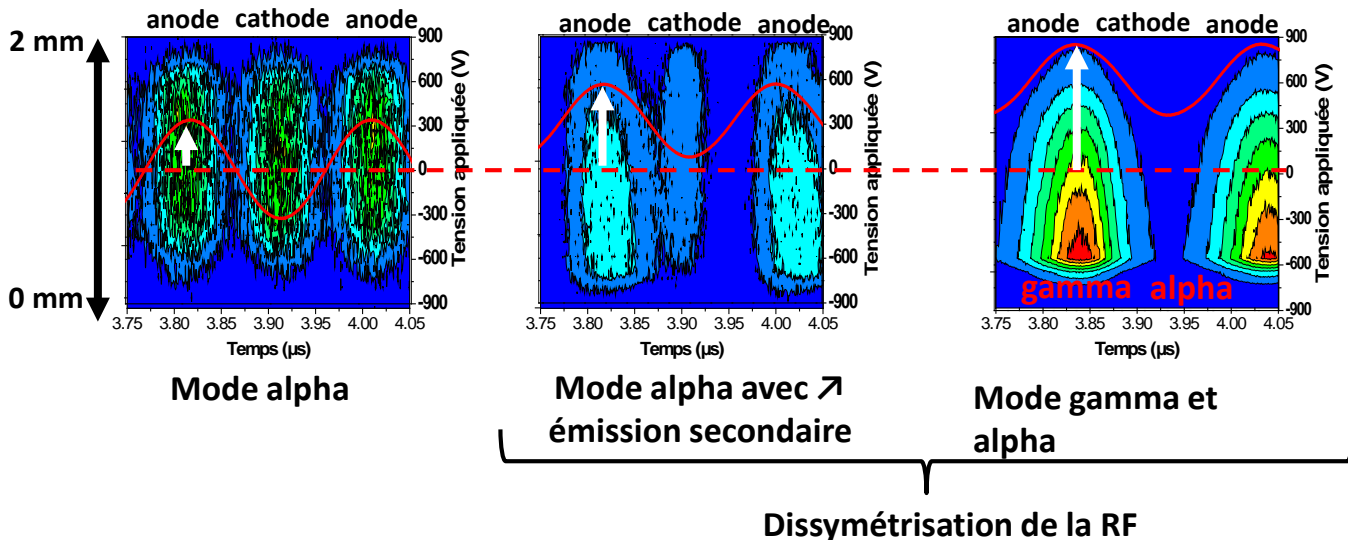
RF (5MHz) + BF (50 kHz 250V)

RF (5MHz) + BF (50 kHz 500V)

Extinction de la décharge

Amplification de la décharge

Cathode BF



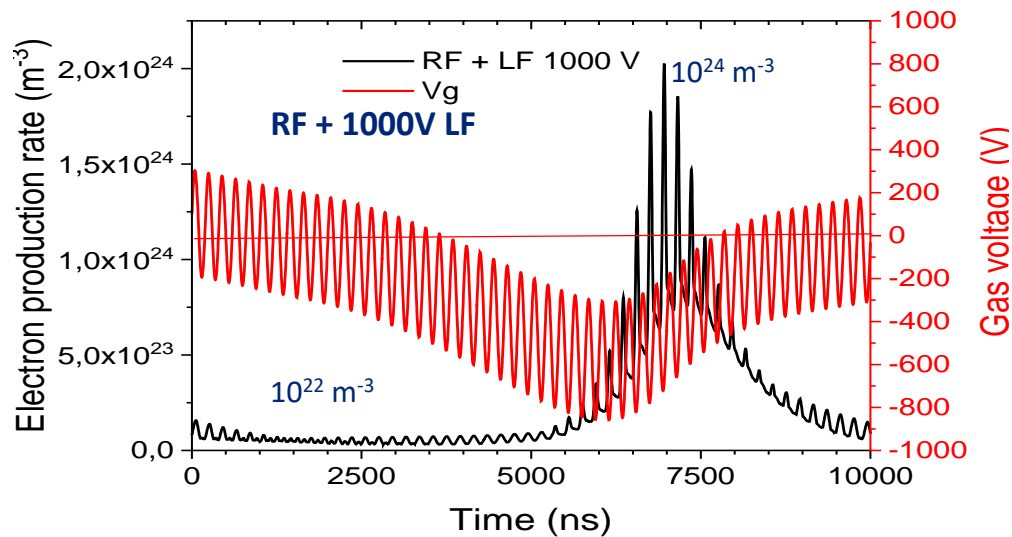
« 2 cathodes du même coté » :  $V_{RF} + V_{BF} \rightarrow \nearrow$  champ électrique vue par les ions



# DBD Double fréquence RF-BF

## Effet de la tension BF

Time variation of electron production and gas voltage on half a LF cycle

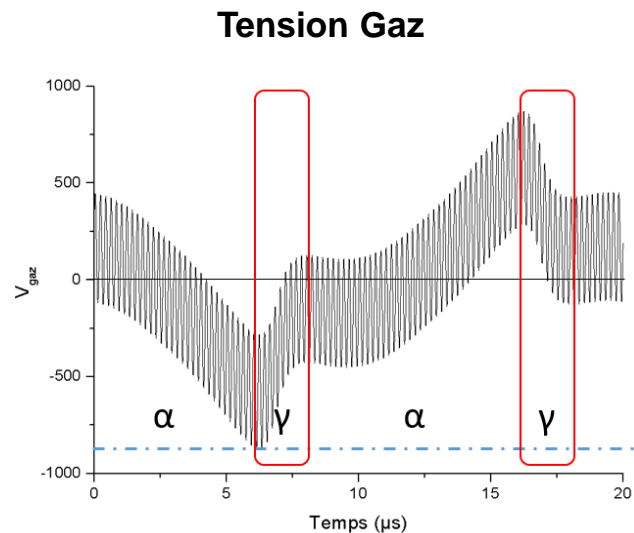
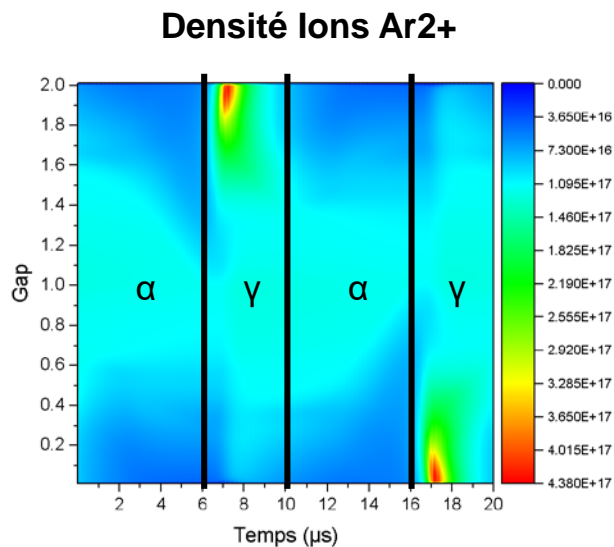


The gamma mode decreases  $V_g$ . It is pulsed like a LF DBD.

# DBD Double fréquence RF-BF

## Effet de la tension BF

Alternance des modes gamma et alpha pendant chaque alternance de la BF

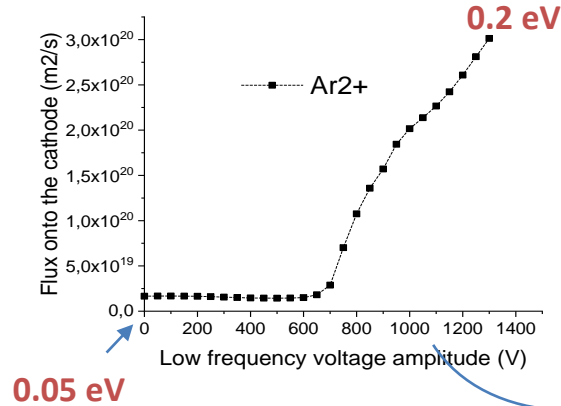


# DBD Double fréquence RF-BF

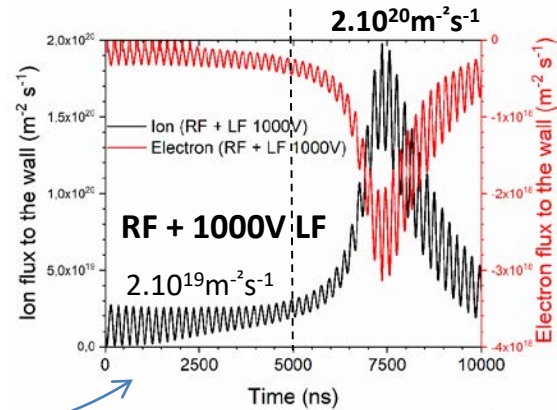
## Effet de la tension BF

### Ion flux to the wall and energy

Maximum ions flux on one of the wall



Ions and electrons flux to and from the cathode during a half LF cycle



⇒ Maximum ions flux density to the cathode X 10

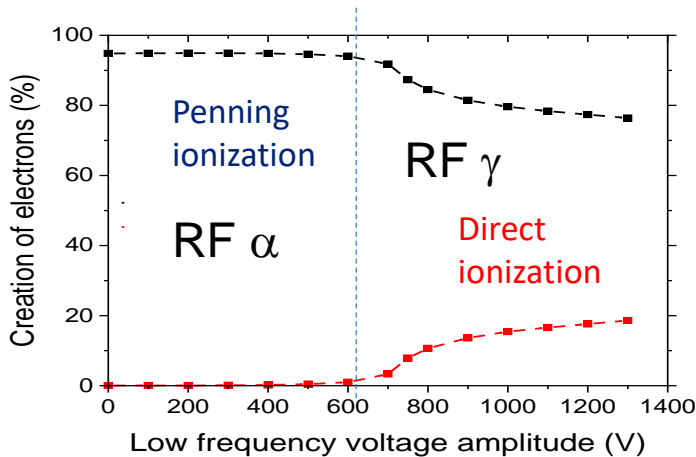
⇒ Ions energy X 4

# DBD Double fréquence RF-BF

## Effet de la tension BF

### Electron production

*Penning and direct ionization on a LF cycle as a function of LF amplitude*



➡ The secondary electrons increases the direct ionization up to 20%

DBD Double fréquence RF-BF  
Régime gamma ?

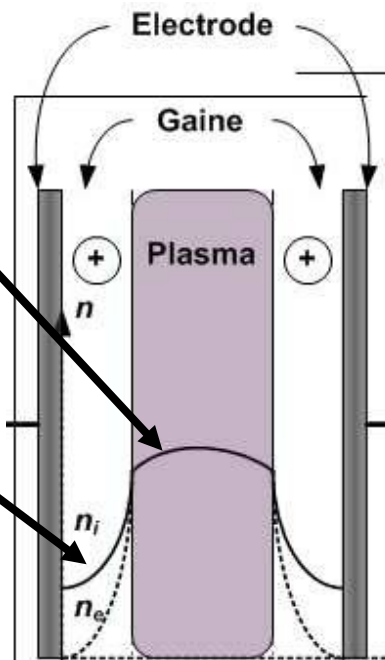
### Contribution des différents mécanismes d'ionisations (simulation)

Ionisation dans le volume plasma → « chauffage » ohmique (collision)

Ionisation dans la gaine → multiplication des électrons secondaires émis à la cathode

Région du volume plasma →  $n_e/n_i \geq 1$

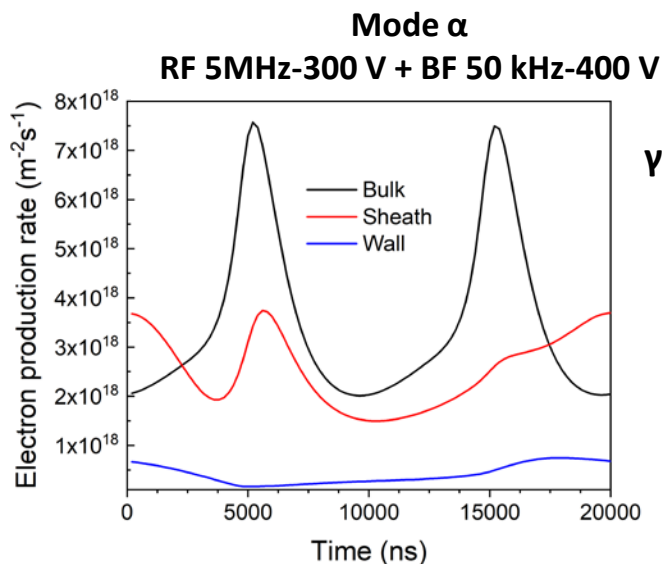
Région de gaine →  $n_e/n_i \ll 1$



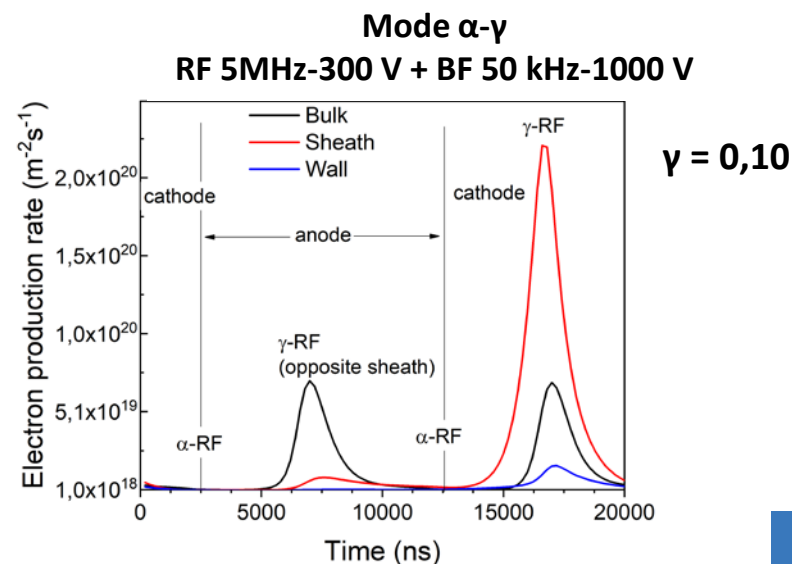
# DBD Double fréquence RF-BF Régime gamma ?

## Contribution des différents mécanismes d'ionisations (simulation)

Variation du taux de de production d'électron sur une période BF (Valeurs moyennées sur une RF)



Le maximum de production d'électron est en volume



Le maximum de production d'électron est dans la gaine cathodique même si l'ionisation en volume est x 10



# DBD Double fréquence RF-BF Régime gamma ?

## Critère d'auto entretien de la gaine (simulation)

La gaine cathodique est auto-entretenu si chaque électron secondaire produit suffisamment d'ions dans la gaine pour provoquer l'émission d'un ou plusieurs nouveaux électrons secondaires

$$\frac{\text{nombre d'électron créés dans la gaine}}{\text{nombre d'électron émis à la paroi}} > \frac{1}{\gamma}$$

Coefficient d'émission d'électron secondaire à la paroi

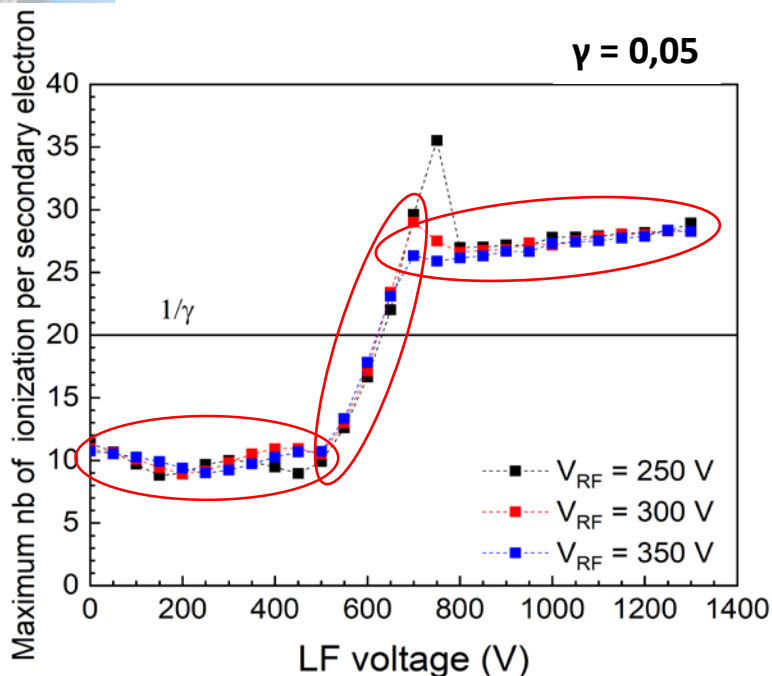
Le maximum de ce paramètre durant une période BF

=

max d'ionisation dans la gaine / max d'émission d'électron à la paroi

# DBD Double fréquence RF-BF Régime gamma ?

## Critère d'auto entretien de la gaine (simulation)



3 zones visibles

### Mode $\alpha$

Ionisation insuffisante pour auto-entretien

### Transition


↑ de l'ionisation au-delà du critère d'auto-entretien

### Mode $\alpha$ - $\gamma$

Ionisation suffisante pour auto-entretien

**Le passage d'une gaine non auto-entretenu à une gaine auto-entretenu explique la transition observée d'un mode  $\alpha$  à un mode  $\alpha$ - $\gamma$**

Effet du coefficient d'émission d'électron secondaire ?



Décharges contrôlées par barrière diélectrique :  
Toujours de la nouvelle physique !

## SOMMAIRE

### 1) DBD basse fréquence

- 1) Principe
- 2) Régimes de décharge

### 2) DBD homogènes de la basse fréquence (kHz) à la radiofréquence (13,56 MHz)

- 1) Transition glow-RF
- 2) Caractéristiques des différentes décharges

### 3) DBD double fréquence: RF-BF

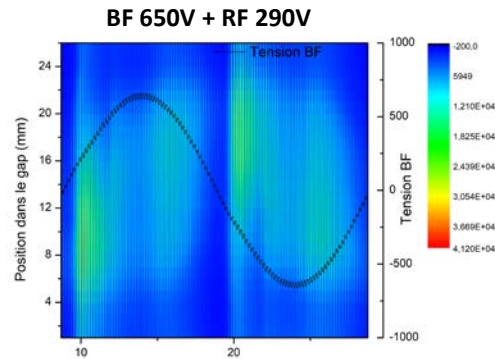
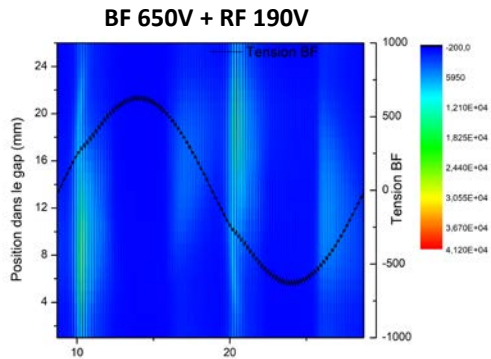
- 1) Effet de l'amplitude de la tension BF
- 2) Identification des régimes de décharges
- 3) Effet de l'amplitude de la tension RF
- 4) Et la photoémission?

### 4) Conclusion

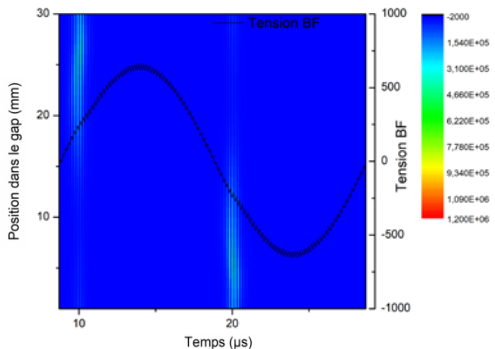
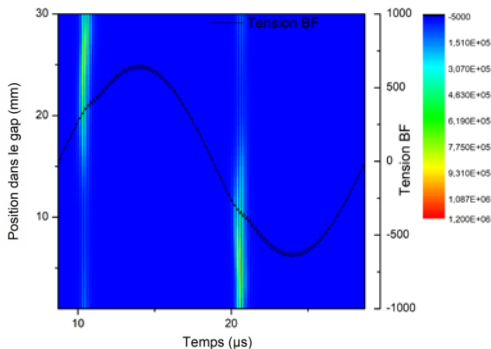
# DBD double fréquence RF-BF Effet de la RF

Spectroscopie d'émission ↗ de 100V de  $V_{RF}$

Continuum  
500nm



Raie d'Ar  
750 nm



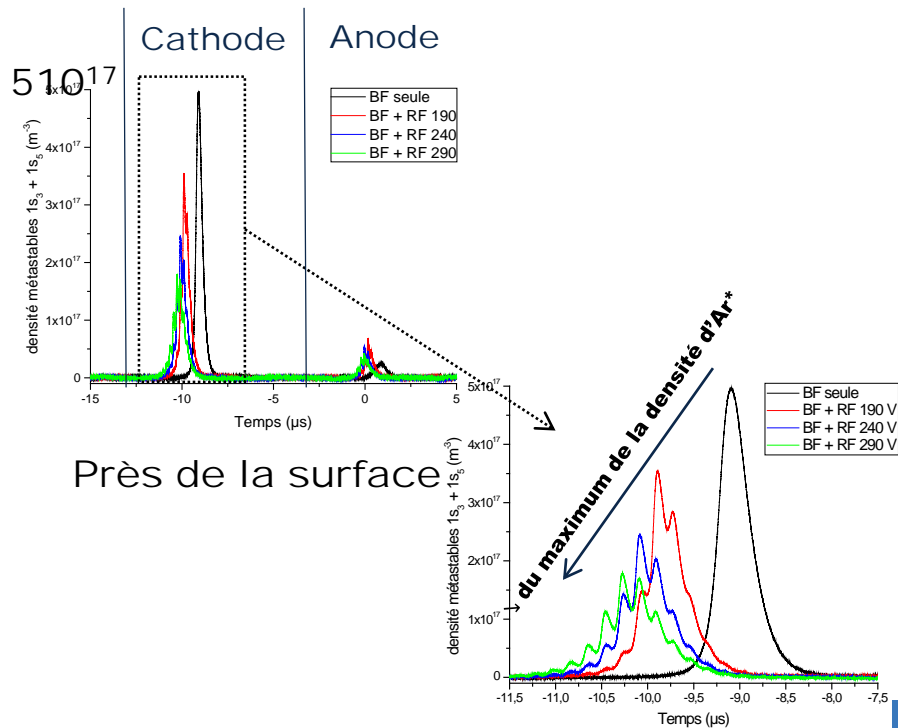
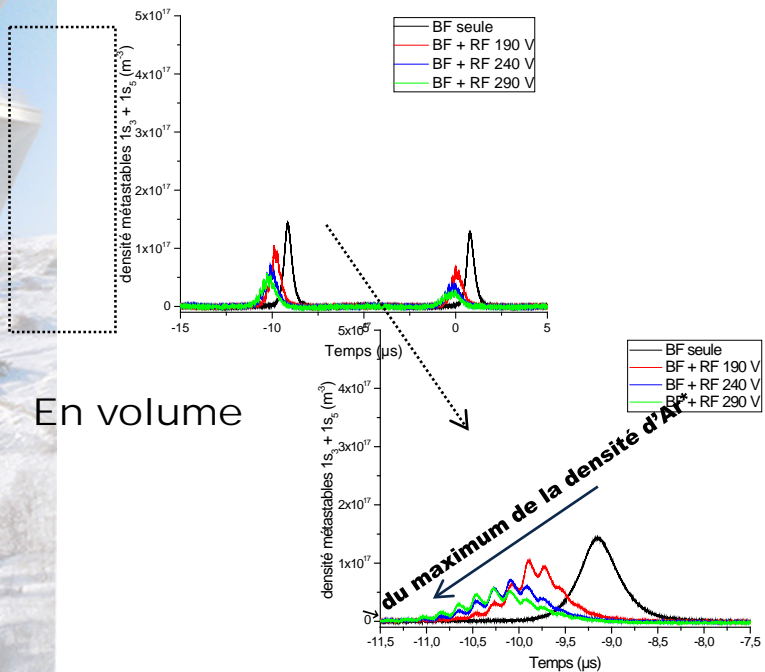
Émission du  
continuum ↗ avec ↗  
de la  $V_{RF}$  appliquée  
=> hypothèse :  $N_e$   
augmente ?

Émission d'Ar ↘ avec  
↗ de la  $V_{RF}$   
appliquée  
=> hypothèse :  $T_e$   
local diminue ?

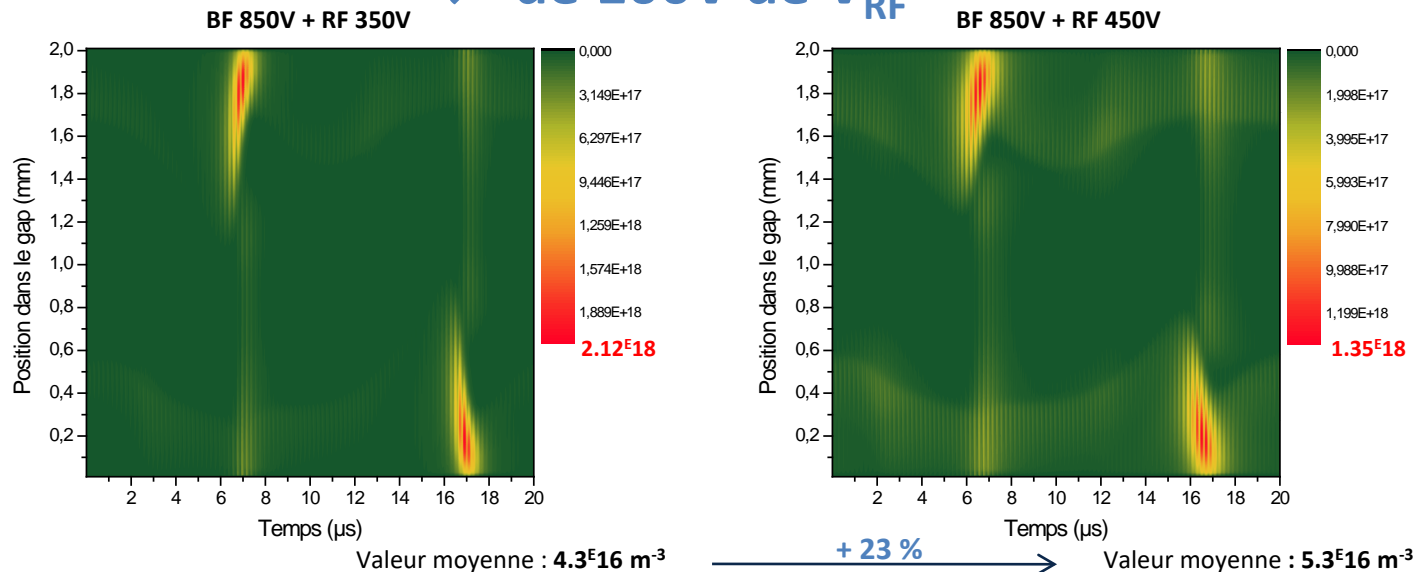
# DBD double fréquence RF-BF

## Effet de la RF

### Densité de métastables



↗ de 100V de  $V_{RF}$



Diminution de la densité de métastable max avec l'augmentation de la  $V_{RF}$   
Augmentation  $V_{RF}$  de 100V  $\rightarrow$  densité d'Ar\*/1.6

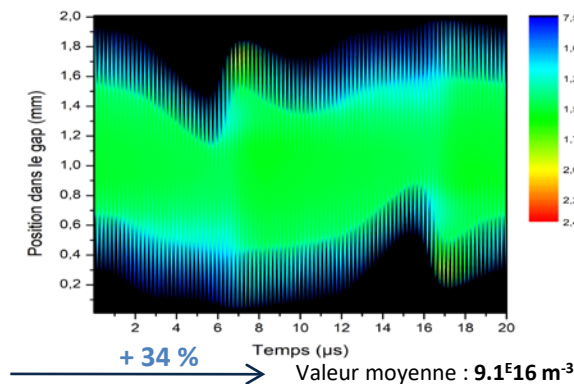
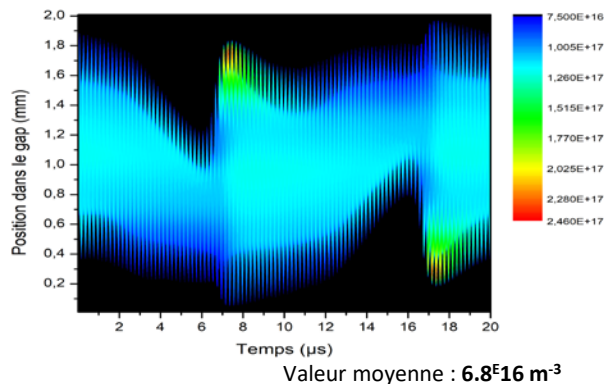
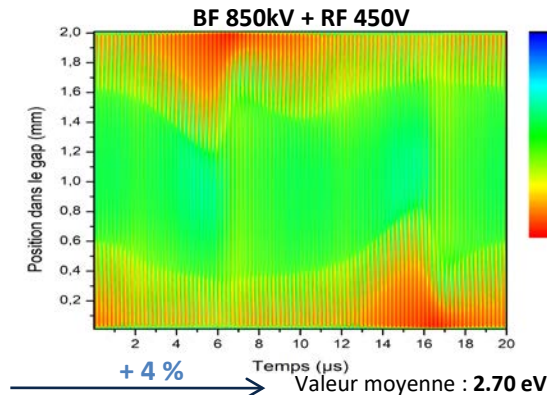
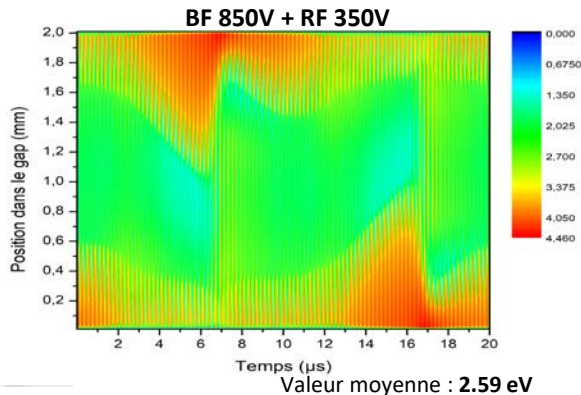
En accord avec les mesures d'absorptions expérimentales



# DBD double fréquence RF-BF

## Effet de la RF

## Modélisation

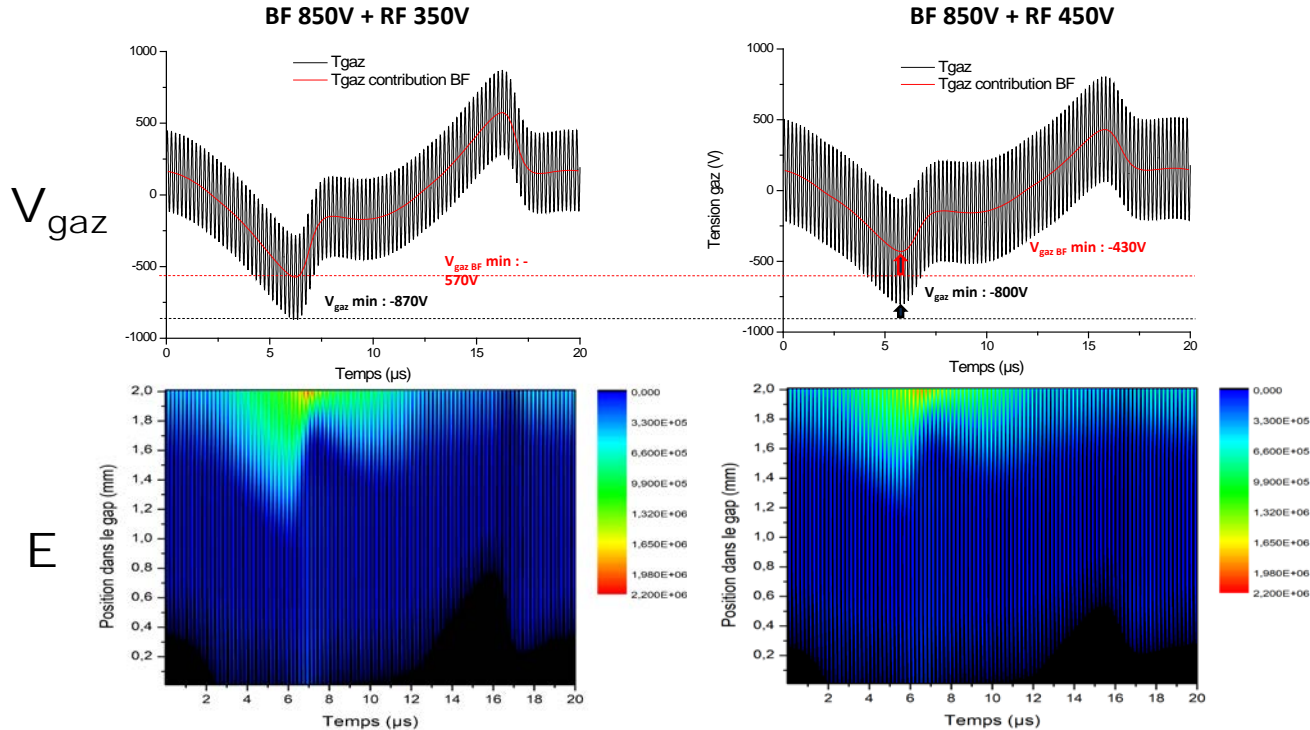


- $T_e$  quasi constant dans le bulk
- $T_e \searrow$  localement pendant le claquage  $\gamma$
- $N_e \nearrow$  dans le bulk (+34%)
- $N_e \searrow$  localement pendant le claquage  $\gamma$

# DBD double fréquence RF-BF

## Effet de la RF

# Modélisation



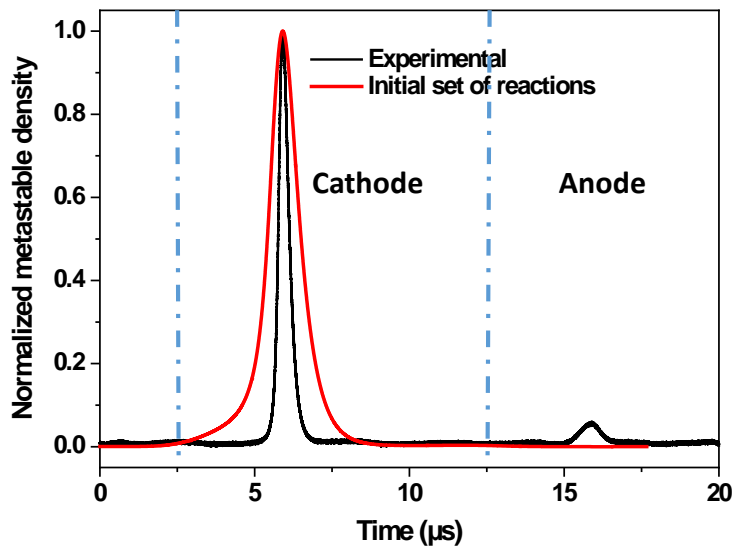
Quand  $V_{\text{RF}}$  augmente, le plasma est plus dense, le régime gamma apparaît pour une tension BF appliquée sur le gaz plus faible

→ le champ maximum est plus faible

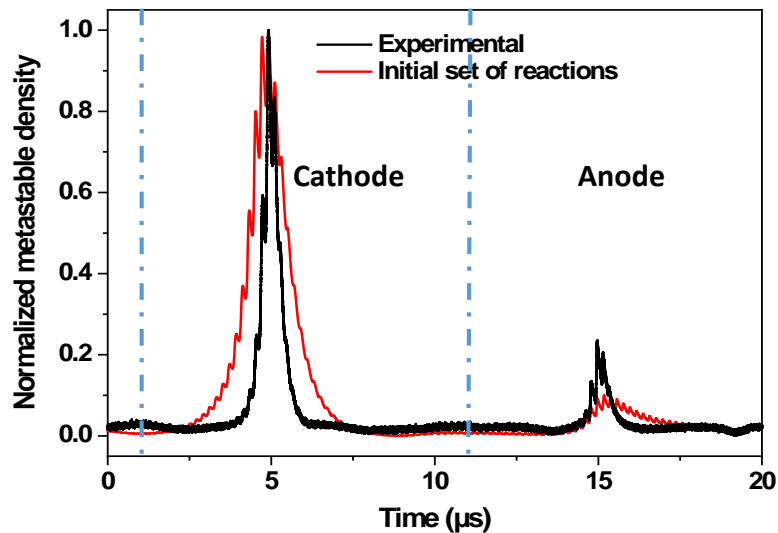
# DBD double fréquence RF-BF

## Rôle de la photoémission?

### Low frequency



### Dual frequency



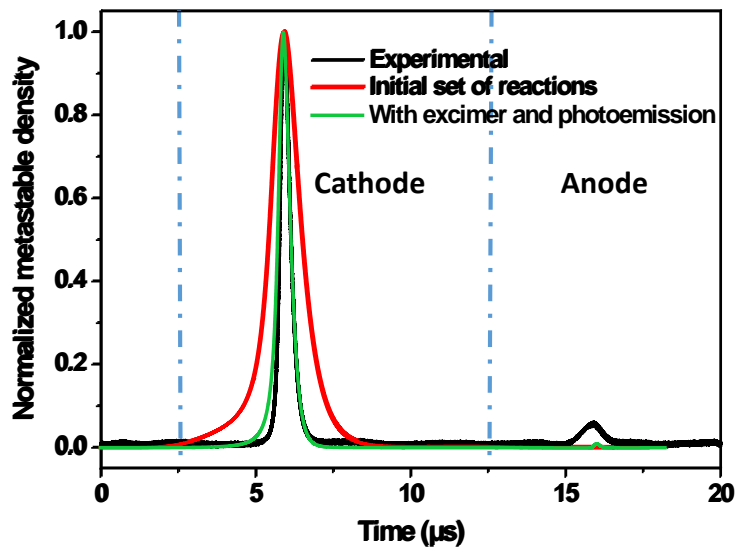
Ar  $1s_3$  density measurement near electrode as function of time (experimental in black, calculated in red)



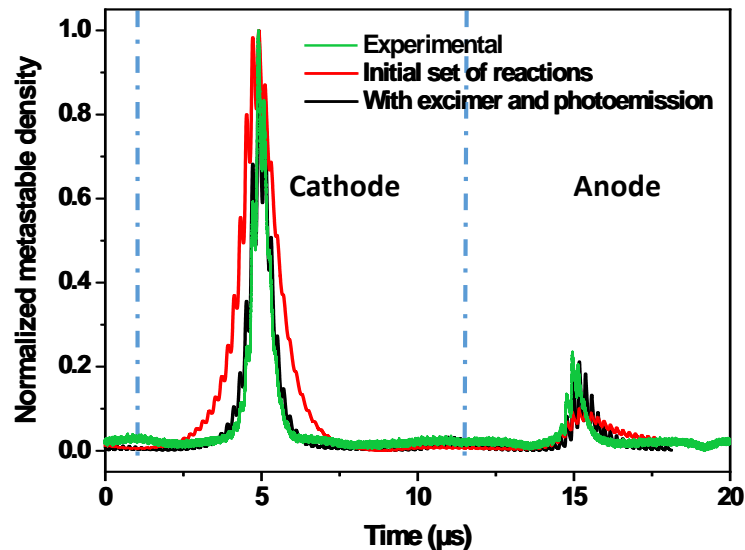
# DBD double fréquence RF-BF

## Effet de la photoémission?

### Low frequency

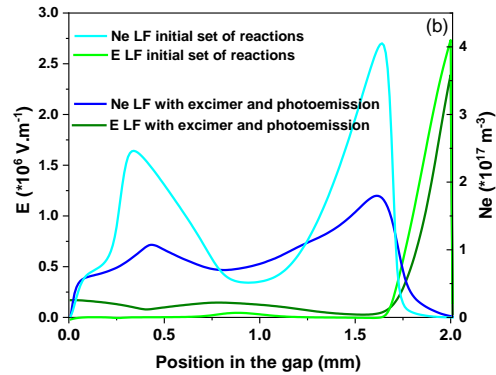
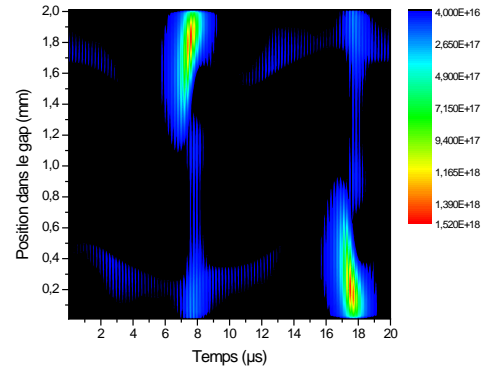
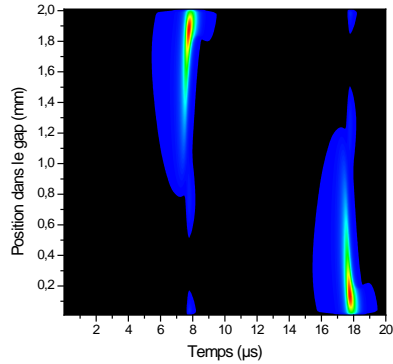


### Dual frequency



Ar 1s3 density measurement near electrode as function of time (experimental in black, calculated in green and red)

# Densité de métastable avec le schéma avec la photoémission





## CONCLUSION

**Les DBDs offrent un panel de sources de plasmas froids à la pression atmosphérique très large**

**Dans un même gaz, pour une même configuration, avec une tension sinusoïdale, en augmentant la fréquence de la tension on obtient successivement:**

- une décharge filamentaire
- une décharge luminescente,
- une décharge de Townsend,
- une décharge RF alpha
- Une décharge RF alpha-gamma

**En double fréquence RF-BF en augmentant la tension BF on peut :**

- pulser la décharge à la fréquence BF,
- alterner les modes alpha et gamma à chaque alternance.