

MÉTHODES ET TECHNIQUES DE DIAGNOSTIC APPLIQUÉES AUX MICRO-PLASMAS

Résumé

Cette affiche propose un aperçu des méthodes de diagnostic particulièrement adaptées à l'étude expérimentale de **réacteurs plasmas hors-équilibres de très petites dimensions** appelés *micro-plasmas*. Ces micro-plasmas sont réalisés de multiple façon qui en font leur particularité bien que ces sources aient pour point commun de fonctionner –au voisinage ou– à la pression atmosphérique.

Les techniques et méthodes abordées ci-après sont majoritairement basées sur la spectroscopie d'émission pour remonter à des propriétés essentielles à la compréhension des décharges et des procédés associés. Des méthodes d'excitation laser ainsi que la spectrométrie de masse seront également abordées. L'ensemble de ces méthodes ont pour point commun de **conserver l'information selon une dimension de l'espace**, au moins, et de pouvoir être appliquées à de **très petites échelles spatio-temporelles**.

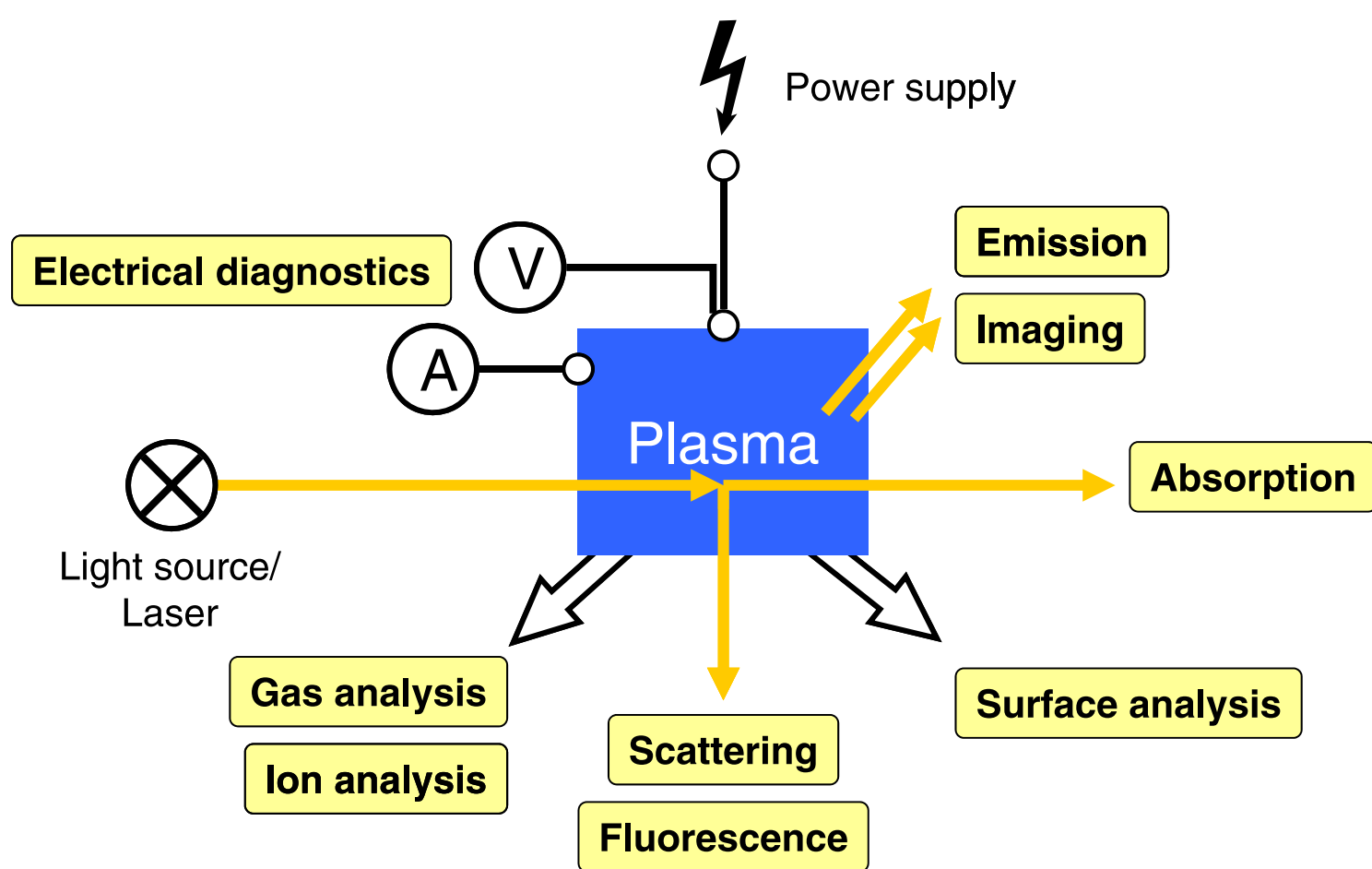


Figure 4. Schematic summary of the different plasma diagnostic techniques.

P. BRUGGEMAN, R. BRANDENBURG, *Plasma Sources Sci. Technol.* **46**, 464001-464001, ISSN : 0022-3727\1361-6463 (nov. 2013)

Comment et pourquoi choisir une ou des techniques de diagnostic ?

- L'accès à la grandeur à mesurer peut-t-il être de nature :
 - Électrique et mesurable via le circuit d'alimentation ?
 - Optique et donc observable au moyen de l'émission du plasma ?
 - Chimique en analysant un échantillon prélevé ?
 - Sondé au moyen d'un détecteur / capteur ?
 - ...
- Avons-nous besoin de résoudre une dynamique temporelle ?
- La distribution dans l'espace est-elle à prendre en compte ? Peut-on utiliser une ou des symétries ?
- La décharge est-elle de nature reproductible ?
- Difficultés d'implémentation de la technique à la source.
- Éventuelle complémentarité des méthodes de diagnostic.

Spectroscopie d'émission optique 1D

Considérons un atome –ou une molécule– ayant une transition radiative d'énergie ΔE entre un niveau d'énergie initial E_i et final E_j ; son émissivité ε_{ij} peut s'exprimer,

$$\Delta E = E_j - E_i = \frac{h \cdot c}{\lambda} = h \cdot \nu, \quad (1)$$

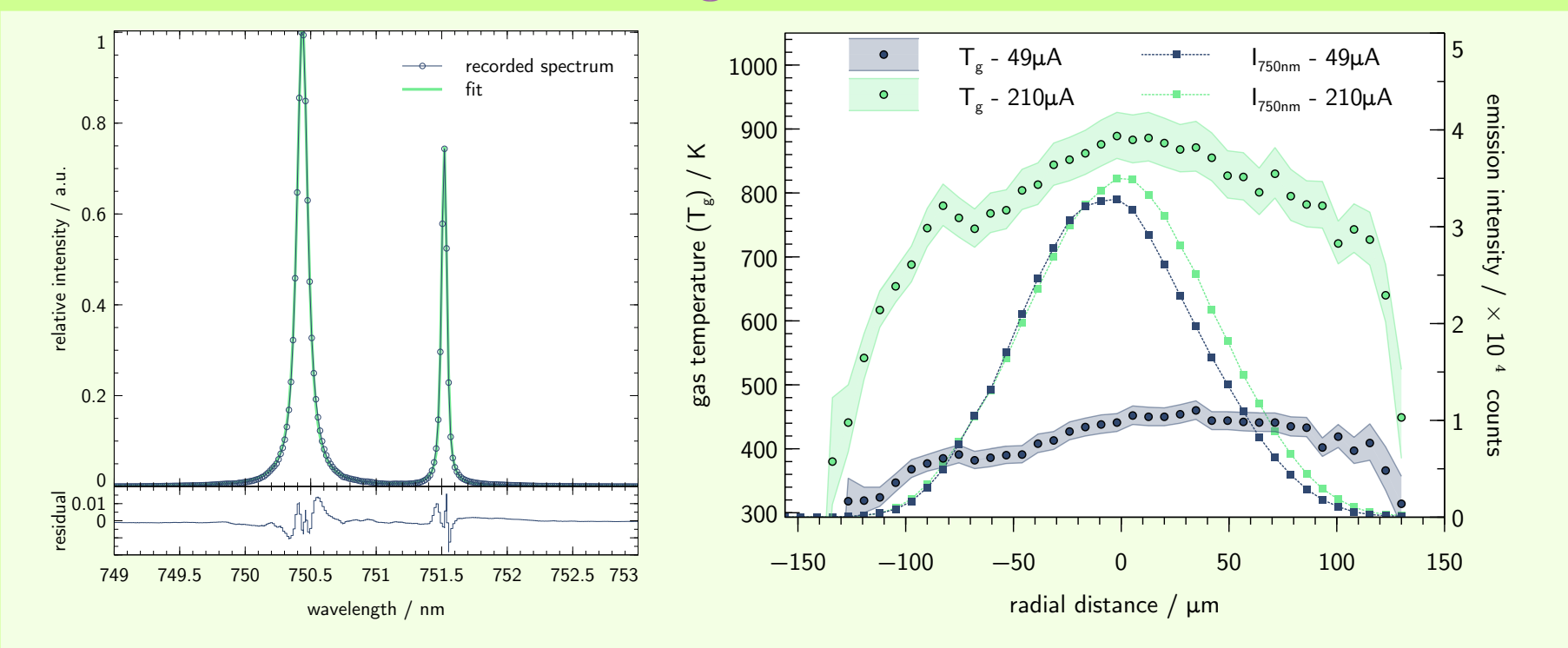
$$\varepsilon_{ij} = n(p) \cdot A_{ij} \cdot \frac{h \cdot c}{4\pi \cdot \lambda_0} = \int_{\text{line}} \varepsilon_{\lambda} d\lambda. \quad (2)$$

avec λ sa longueur d'onde (nm) et ν sa fréquence (GHz) analogue. On note A_{ij} le coefficient d'émission d'Einstein (1/s) et $n(p)$ la densité de particule dans le même état énergétique. λ_0 est la longueur d'onde centrale de la transition radiative.

Affectée par un ou plusieurs mécanismes d'interactions élémentaires inhérent au milieu dans lequel se trouve les particules émettrices, le profil de la raie résulte de convolutions –plus ou moins complexes– avec des profils ($g(\lambda)$) décrivant les mécanismes d'élargissement et/ou de décalage de la raie centrale.

$$\varepsilon(\lambda) = \varepsilon_{ij} * g(\lambda). \quad (3)$$

Température du gaz T_g – élargissement résonance



Au moyen d'un spectromètre "imageur" et d'une matrice de photodétecteurs, il est possible d'analyser le profil de raie et de déterminer spatialement –et temporellement si le système le permet– des informations sur le milieu. Par exemple, l'élargissement de raie dû à la pression peut se manifester au moyen de mécanisme de résonance et d'interaction de Van der Waals. Ces élargissements peuvent être décrit de manière analytique par,

$$w_R [\text{nm}] = K(0, 1) \frac{r_e}{\pi} \sqrt{\frac{gG}{gR}} \lambda_0^2 \lambda_{RF} N_R, \quad (4)$$

$$w_{vdw} [\text{cm}] = 8.18 \cdot 10^{-12} \lambda_0^2 (\bar{\alpha} R^2)^{2/5} \left(\frac{T_g}{\mu}\right)^{3/10} \cdot N. \quad (5)$$

où w_R et w_{vdw} sont les largeurs à mi-hauteur des les composantes lorentziennes contribuant à l'élargissement de la raie. À partir de ces relations, il est alors possible de remonter à la température du gaz au à des paramètres hydrodynamiques tels que la forces électro-hydrodynamique ou la fraction molaire.

Introduction: les micro-plasmas

Les sources appelées *micro-plasmas* font partie des plasmas hors-équilibres dont –au moins– une de leurs dimensions reste à l'échelle micrométrique. Une classification –non-exhaustive– des différentes sources micro-plasmas est proposée par P. BRUGGEMAN, R. BRANDENBURG, *Plasma Sources Sci. Technol.* **46**, 464001-464001, ISSN : 0022-3727\1361-6463 (nov. 2013). La figure à droite présente la plupart de ces sources en regard du type d'excitation électrique utilisée. Les diagnostics particulièrement adaptés à l'étude de ces micro-plasmas y sont expliqués en détails.

- DC "glow" micro-décharges et transition vers une décharge spark,
 - D. STAACK *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **14**, 700-711, ISSN : 0963-0252 (oct. 2005)
 - P. BRUGGEMAN *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **17**, 025012, ISSN : 0963-0252 (avr. 2008)
- Mono-filament Décharge à Barrière Diélectrique (DBD)
 - M. KETTLITZ *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **45**, 245201, ISSN : 0022-3727 (mai 2012)
 - U. KOGELSCHATZ, *Plasma Chem Plasma Process* **23**, 1-46, ISSN : 0272-4324 (2003)
- Micro-décharge à cathode creuse (MHCD) et décharge "glow" maintenue
 - R. H. STARK, K. H. SCHOENBACH, *J. Appl. Phys.* **85**, 2075-2080, ISSN : 0021-8979 (15 fév. 1999)
 - K. H. BECKER *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **39**, R55-R70, ISSN : 0022-3727, 1361-6463 (7 fév. 2006)
- Jets plasmas froids et streamer guidés à pression atmosphérique
 - K.-D. WELTMANN *et al.*, *Constr. Plas. Phys.* **49**, 631-640, ISSN : 1521-3986 (2009)
 - X LU *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **21**, 034005-034005, ISSN : 0963-0252 (juin 2012)
 - J. GOLDA *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **49**, 084003, ISSN : 0022-3727 (jan. 2016)

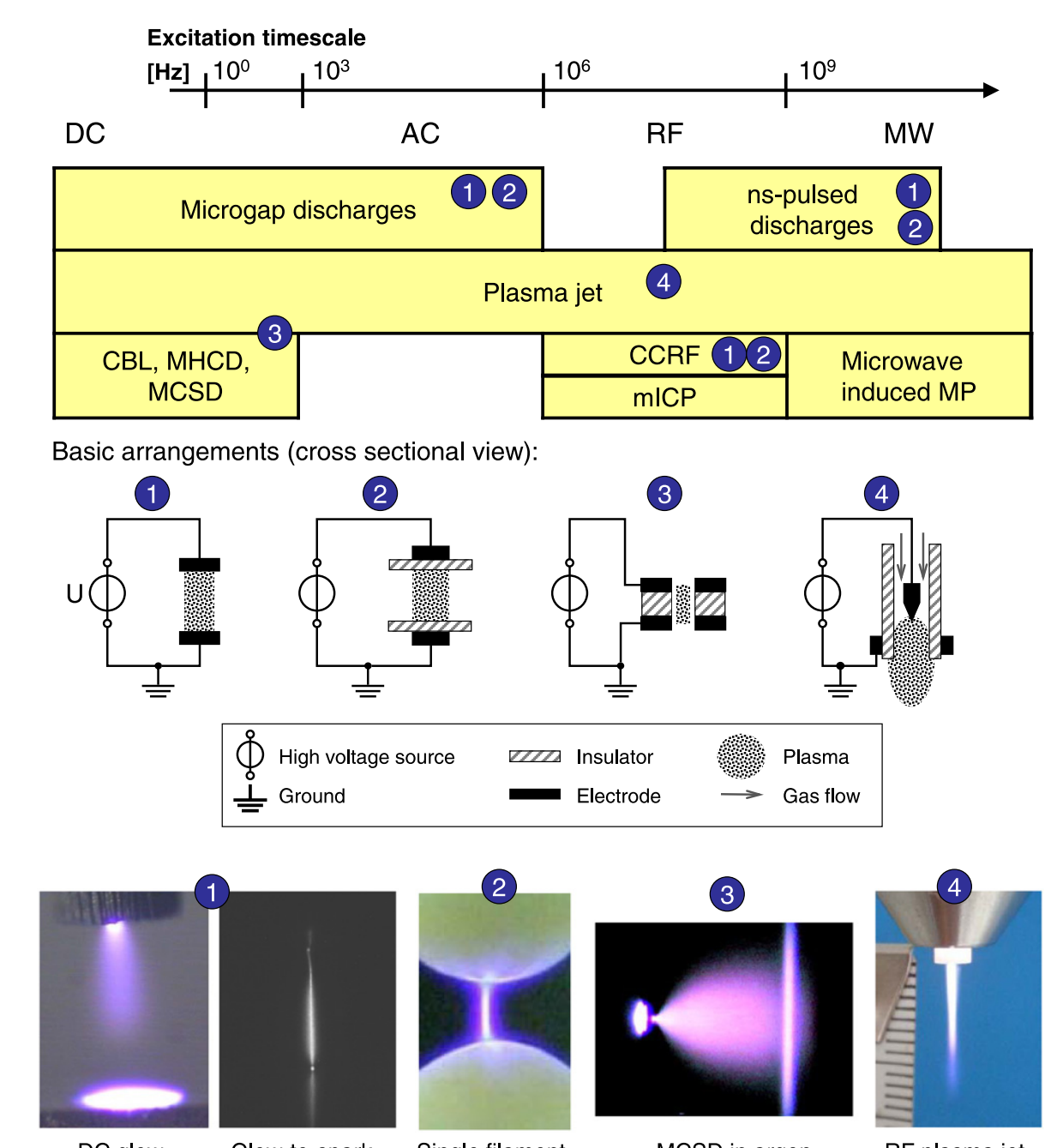
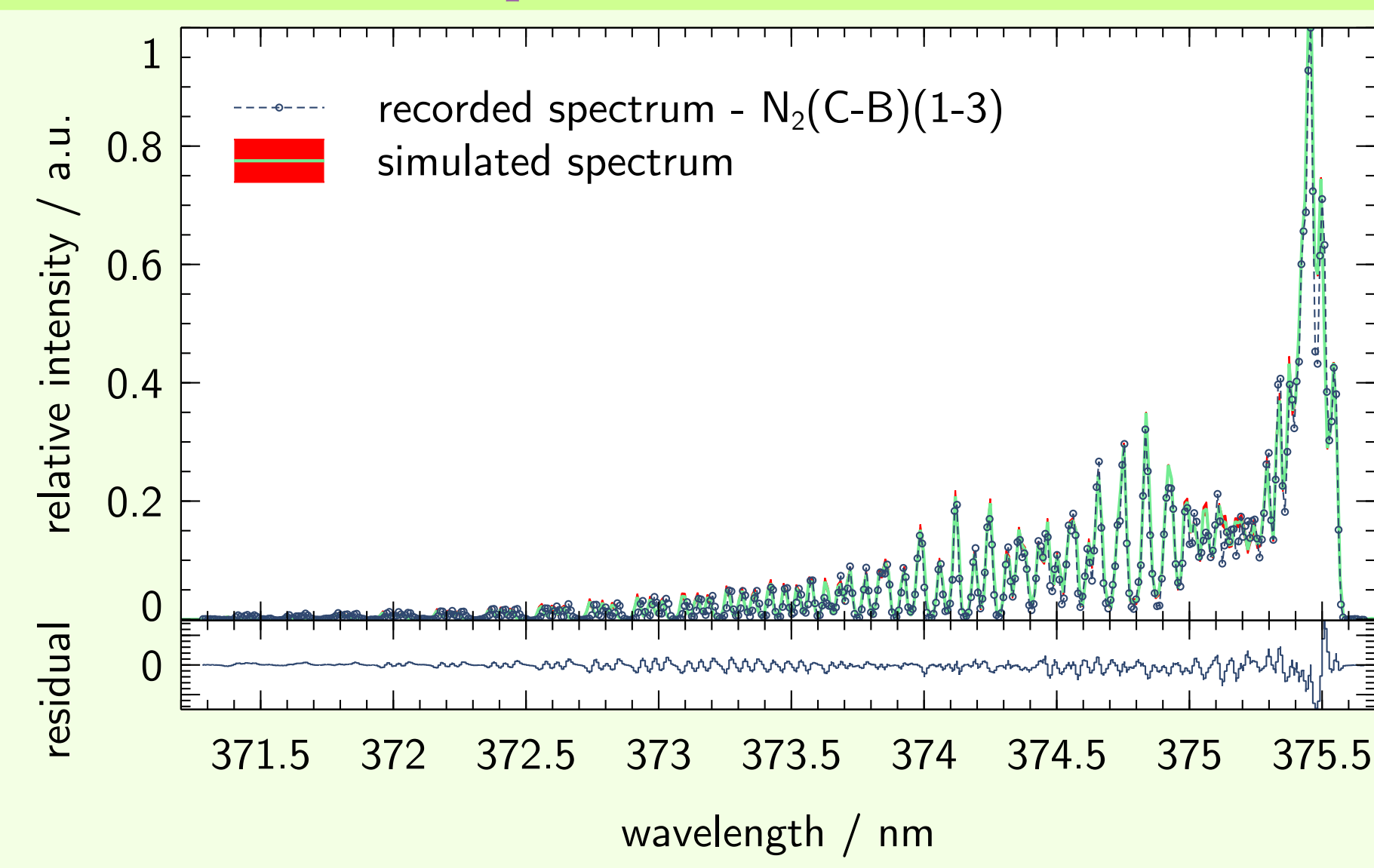


Figure 2. Microplasma arrangements categorized by excitation timescale and basic electrode geometry. The images in the bottom part of the figure represent a dc excited stable glow discharge [66] © IOP, a partly contracted glow discharge (with clearly a visible anode and cathode spot) during a glow-to-spark transition [65] © IOP, a semi-spherical volume DBD with a single filament as described in [136], a side-on view of a MHCD (left) and the MCS glow discharge (right) [83] © AIP, and an RF-driven plasma jet as described in [230]. The images are reproduced with permission from IOP, AIP and IOP/Greifswald, respectively. The abbreviations are explained in detail in the text.

- S. ISENI *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **28**, 065003, ISSN : 0963-0252 (mai 2019).
- S. ISENI *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **115**, 034102, ISSN : 0003-6951 (15 juill. 2019).

Température du gaz T_g – bandes rotationnelles de molécules diatomiques



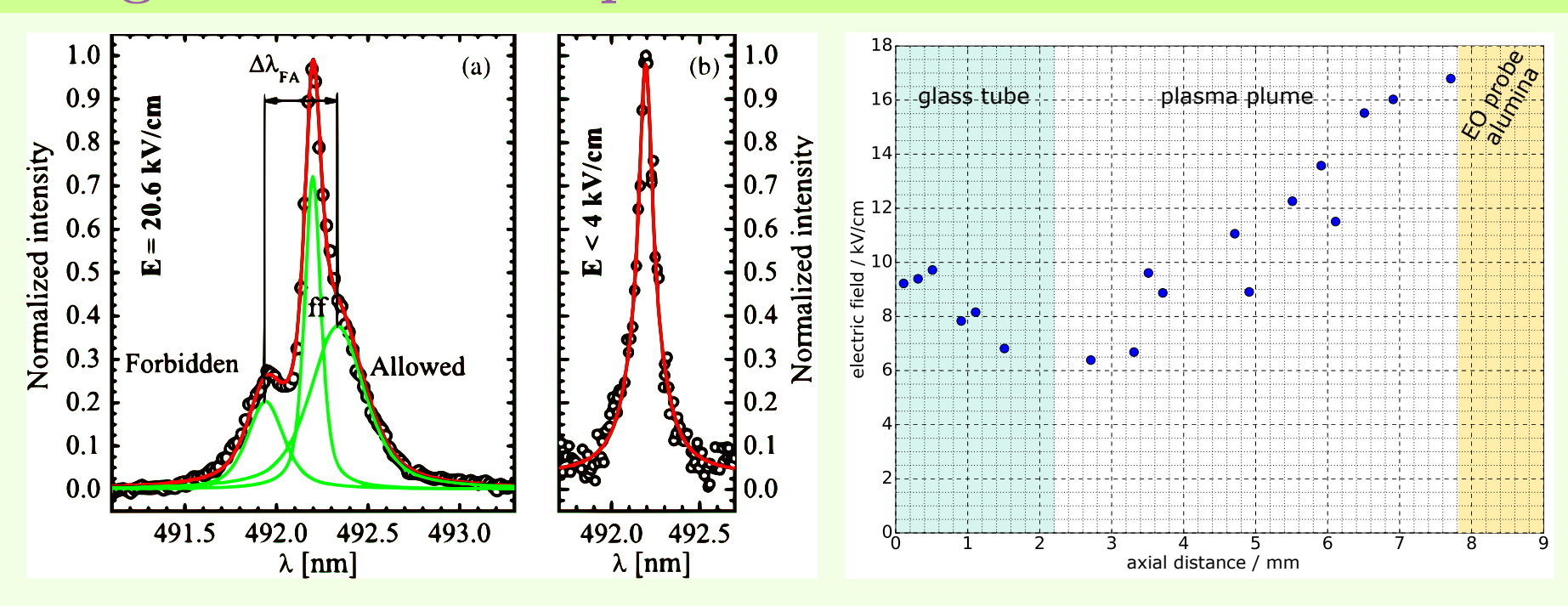
Moyennant quelques hypothèses explicitement détaillée dans l'article de revue de BRUGGEMAN *et al.*, la température du gaz peut être déterminée en analysant la structure des bandes rotationnelles de molécules diatomiques tel que N_2 . L'analyse peut se présenter sous la forme d'un diagramme de Boltzmann ou en comparant par diverses méthodes numériques le spectre expérimental avec son semblable préalablement simulé et ajuster. L'intensité de chacune des transitions ro-vibrationnelles s'exprime par:

$$I'_{J''} \propto N_{v'} S'_{J''} \left(\nu_{v''}^{v', J''} \right)^4 \exp \left[-\frac{hc}{k_B T_{rot}} F_{v''}^{(1,2,3)}(J'') \right], \quad (6)$$

En supposant une distribution des intensités relatives de type Boltzmann, il est possible de simuler un spectre synthétique qui sera ajusté au moyen du paramètre T_{rot} ($\approx T_g$).

- P. J. BRUGGEMAN *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **23**, 023001, ISSN : 0963-0252, 1361-6595 (7 avr. 2014).
- S. ISENI *et al.*, *Plasma Sources Sci. Technol.* **28**, 065003, ISSN : 0963-0252 (mai 2019).

Mesure de champ électrique – Déplacement et élargissement Stark polarisé-II

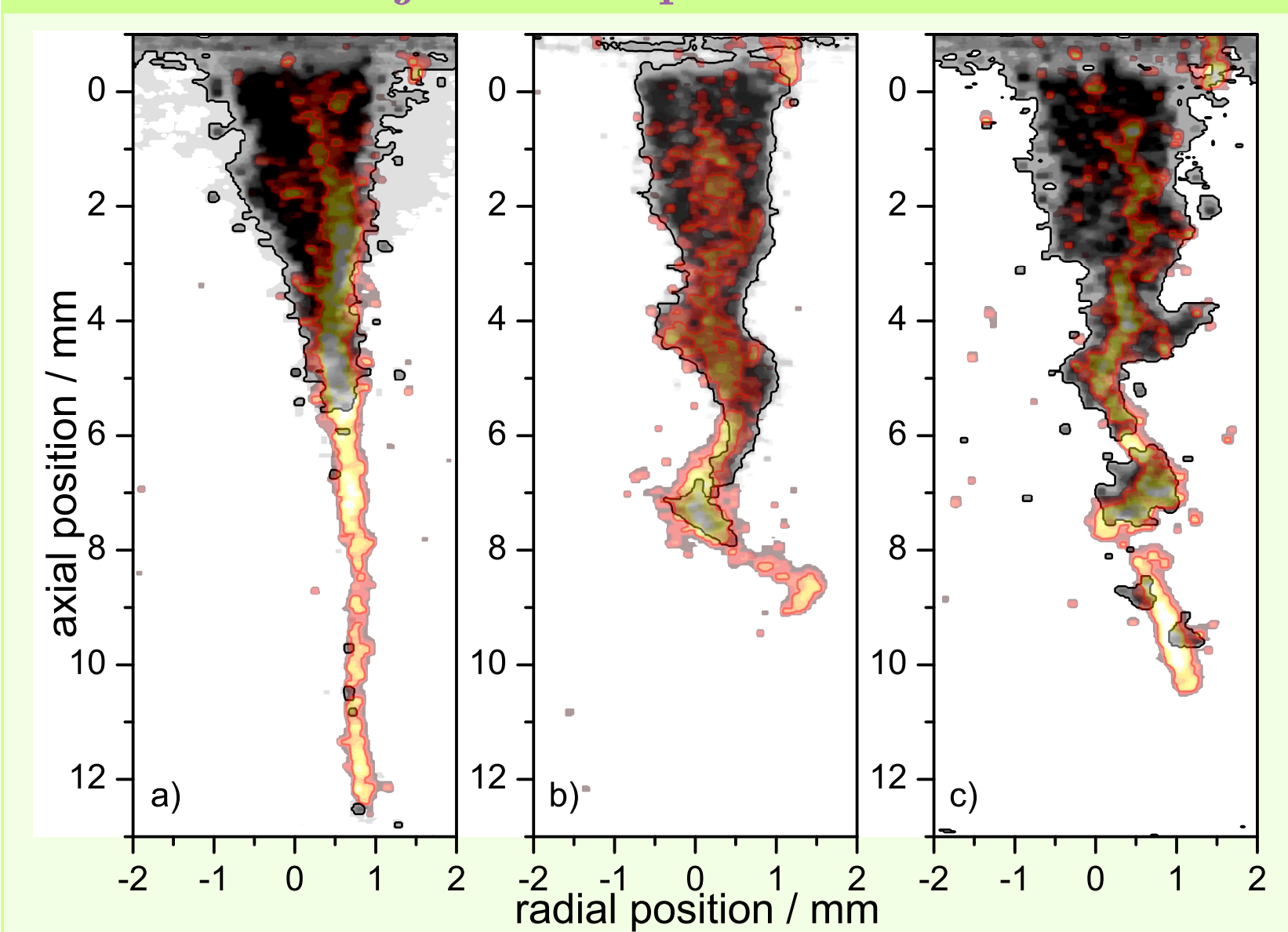


La spectroscopie d'émission permet aussi de mesurer le champ électrique au moyen d'analyse fine de profil de raie. Si le spectromètre est "imageur", la mesure peut être effectuée simultanément en 1D.

- M. M. KURAICA, N. KONJEVIĆ, *Applied Physics Letters* **70**, 1521-1521, ISSN : 9788021433595 (1997).
- G. B. SRETENOVIC *et al.*, *Applied Physics Letters* **99**, 161502-161502 (2011).

Spectroscopie laser: fluorescence induite

Fluorescence induite par laser (LIF) de la molécule hydroxyle (OH) utilisée comme traceur dans un jet micro-plasma RF



- S. ISENI *et al.*, *Journal of Physics D: Applied Physics* **47**, 152001-152001 (avr. 2014)

Les méthodes basées sur la fluorescence induite par laser consistent – en complément de la spectroscopie d'émission– à exciter artificiellement et de manière contrôlée une particule pour ensuite collecter puis analyser son émission. En fonction du type d'excitation (longueur d'onde et durée), des conditions du milieu et du profil spectral et temporel, il est alors possible de remonter à de multiple information. Considérons un système à deux niveaux d'énergie n_1 et n_2 soumis à une impulsion laser d'intensité $I(t)$, l'équation de bilan s'écrit,

$$\frac{dn_2(t)}{dt} = B_{12}I(t)n_1(t) - [B_{21}I(t) + A_2 + Q] \cdot n_2(t). \quad (7)$$

En évitant la saturation du milieu et l'émission stimulé, le signal de LIF, $S_{lif}(t)$ est décrit par,

$$S_{lif}(t) = \int_{V_c} \epsilon \frac{\Omega_c}{4\pi} A_{acq} n_2(t) dV_c, \quad (8)$$

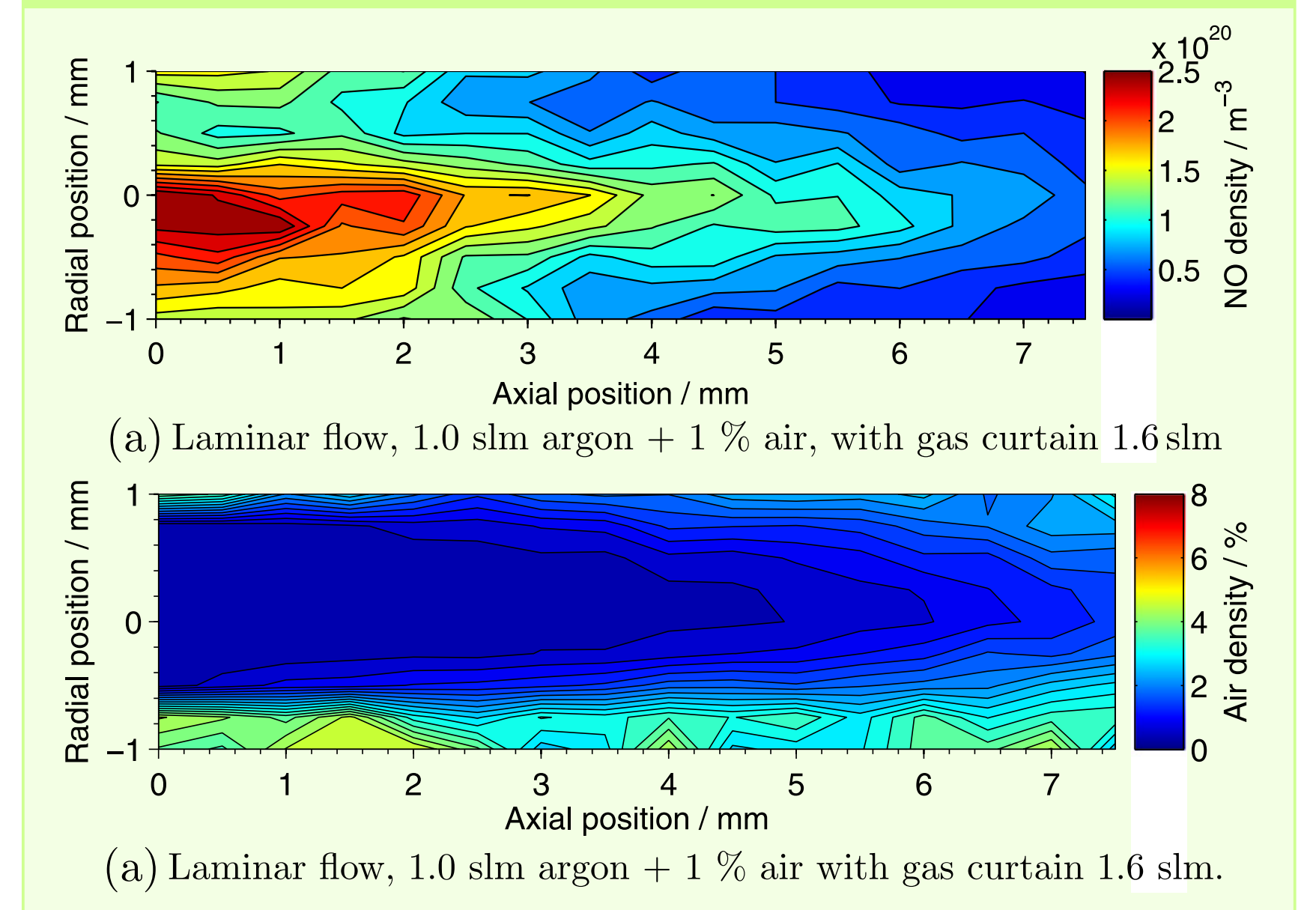
qui, intégré sur le volume sondé peut s'écrire,

$$S_{lif}(t) = \epsilon \frac{\Omega_c V}{4\pi} \cdot \frac{E_{laser} \Gamma}{\phi_{laser}} \cdot \frac{A_{acq}}{A_2 + Q} n_1 B_{12}. \quad (9)$$

La technique LIF –et ses dérivées à multiple photons– connaît divers usages à la complexité graduelle,

- Détection sélective spatio-temporelle d'atome ou molécule,
- Mesure de densité relative; de températures,
- Mesure de concentration absolue.

Mesure de densités absolues d'oxyde nitrique (NO) et d'air dans la plume d'Ar d'un jet micro-plasma RF



La connaissance du terme de *quenching*, Q , peut permettre d'utiliser la LIF comme simple traceur d'écoulements stationnaire ou turbulent.

$$Q = \sum n_i k_Q^i \approx n_{O_2} k_Q^{O_2} + n_{N_2} k_Q^{N_2} + n_{H_2O} k_Q^{H_2O}, \quad (10)$$

$$S_{lif} \propto \frac{A_{acq}}{A + n_{air} k_Q^{air}}. \quad (11)$$

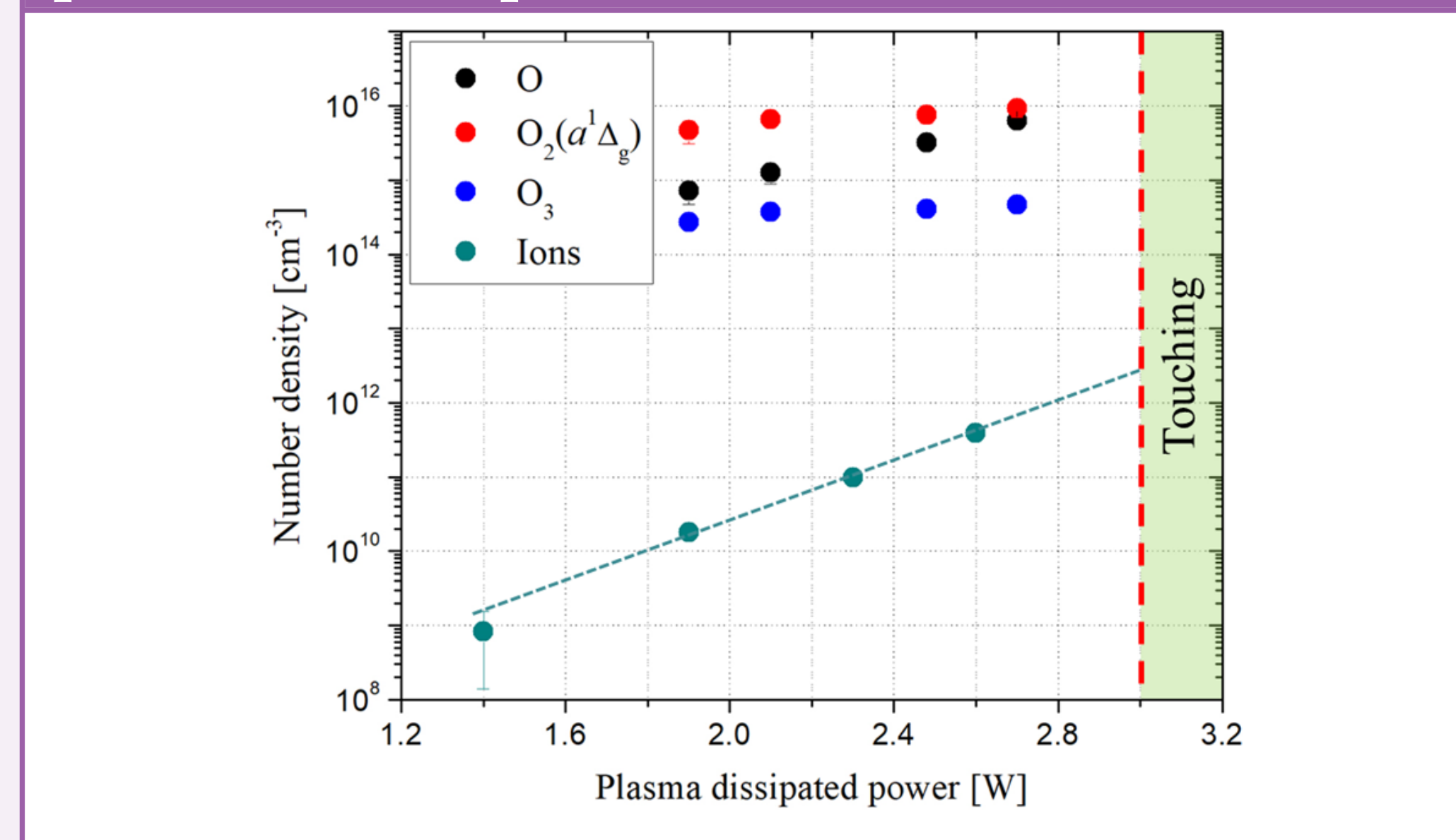
En fonction des conditions expérimentales, il est parfois possible de déterminer la concentration de l'espèce sondée, à partir des relations suivantes:

$$n_{air} = \frac{\tau_{calib} - \tau_{acq}}{\tau_{calib} \tau_{air} \tau_{acq}}, \quad (12)$$

$$n_{NO(X)} = \frac{S_{lif}}{E_{laser} \tau_{acq}} \cdot \left[\frac{n_{calib} \cdot E_{calib} \cdot \tau_{calib}}{S_{calib}} \right]. \quad (13)$$

- S. ISENI *et al.*, *New Journal of Physics* **16**, 123011-123011 (déc. 2014).

Spectrométrie de masse avec prélèvement par faisceau moléculaire



- J. JIANG, P. J. BRUGGEMAN, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **54**, 15LT01, ISSN : 0022-3727 (jan. 2021).