

Université de Montréal

**Transition des basses fréquences aux hautes fréquences d'une décharge  
à barrière diélectrique en hélium à la pression atmosphérique**

par  
Jean-Sébastien Boisvert

Département de physique  
Faculté des arts et des sciences

Thèse présentée à la Faculté des études supérieures  
en vue de l'obtention du grade de Philosophiæ Doctor (Ph.D.)  
en physique

Juin, 2016

© Jean-Sébastien Boisvert, 2016.

Université de Montréal  
Faculté des études supérieures

Cette thèse intitulée :

**Transition des basses fréquences aux hautes fréquences d'une décharge  
à barrière diélectrique en hélium à la pression atmosphérique**

présentée par :

Jean-Sébastien Boisvert

a été évaluée par un jury composé des personnes suivantes :

Luc Stafford,	président-rapporteur
Joëlle Margot,	directrice de recherche
Françoise Massines,	directrice de recherche
Sylvain Coulombe,	membre du jury
Laurent Thomas,	membre du jury
François Vidal,	membre du jury
Steven Girshick,	examineur externe
Khaled Hassouni,	examineur externe
Patrick Hayes,	représentant de la doyenne

Thèse acceptée le : 18 novembre 2016

## RÉSUMÉ

Les décharges à barrière diélectrique homogènes à la pression atmosphérique représentent un véritable intérêt autant pour les applications industrielles que pour la richesse de leur comportement physique. Jusqu'à maintenant, la gamme des basses fréquences (sous 300 kHz) et la gamme des hautes fréquences (au-dessus de 3 MHz) ont été amplement étudiées ; la physique contrôlant la décharge est donc relativement bien connue. Par contre, la gamme des moyennes fréquences (entre 0,3 et 3 MHz) reste à ce jour très peu explorée.

Cette thèse par article vise, dans un premier temps, à comprendre le fonctionnement de la décharge à barrière diélectrique dans la gamme des moyennes fréquences. Dans un deuxième temps, l'effet de la fréquence sur la décharge est étudié sur la plage des basses aux hautes fréquences. Cette recherche expérimentale est poursuivie à l'aide d'une décharge à barrière diélectrique dans une atmosphère contrôlée d'hélium à la pression atmosphérique. Afin d'identifier les multiples régimes de décharge, plusieurs diagnostics sont mis en oeuvre. L'imagerie rapide est d'abord employée pour permettre l'identification des régimes de décharge en fonction de leur évolution temporelle. Ensuite, des mesures électriques, de la spectroscopie d'émission optique et de la spectroscopie d'absorption sont utilisées de manière à déterminer la densité électronique, la température électronique ainsi que la densité des atomes dans un état métastable.

Pour une fréquence d'excitation fixe dans la gamme des moyennes fréquences, la décharge peut se comporter selon deux régimes distincts. Ceux-ci sont identifiés comme le régime  $\Omega$ , pour lequel l'ionisation se produit au centre de la décharge et la densité de puissance est d'environ  $0,1 \text{ W cm}^{-3}$ , et le régime hybride, pour lequel l'ionisation se produit dans les gaines et la densité de puissance est d'environ  $10 \text{ W cm}^{-3}$ . Lorsque la fréquence est supérieure à 1 MHz, le passage du régime  $\Omega$  au régime hybride est accompagné d'une hystérèse. Cette hystérèse est due au piégeage efficace des ions dans l'espace interdiélectrique qui ne permet pas aux ions de participer à l'émission secondaire tant que la charge d'espace n'est pas suffisante

pour déformer le champ électrique. Quant aux fréquences inférieures à 1 MHz, le régime hybride qui leur est associé n'est pas maintenu de manière continue, mais transite spontanément entre les régimes  $\Omega$  et hybride. Un phénomène qui est dû au piégeage des ions qui n'est pas encore suffisant pour conserver les ions dans la gaine dans le cas où le champ électrique est perturbé par la charge d'espace.

De plus, sur toute la gamme de fréquences étudiée (de 25 kHz à 15 MHz), il est possible de générer plusieurs autres régimes de décharge homogènes. Jusqu'à 100 kHz, en plus du régime luminescent (pour lequel l'ionisation est maximum près de la cathode) habituellement observé en basses fréquences, un régime dit quasi-Townsend, pour lequel l'ionisation est à son maximum près de l'anode a pu être observé. Entre 200 et 3000 kHz, ce sont les régimes  $\Omega$  et hybride qui sont observés. À partir de 5 MHz, le régime RF- $\alpha$  est finalement atteint. Sur la plage de fréquence étudiée, la densité électronique moyenne (intégrée spatialement et temporellement) varie de  $10^{14}$  à  $10^{17} \text{ m}^{-3}$  tandis que la température électronique moyenne se situe entre 0.3 et 0,5 eV. Tout comme la température électronique, la densité des atomes dans un état métastable est maximale dans le régime hybride.

**Mots clés : Décharge à barrière diélectrique, Plasma à la pression atmosphérique, Hélium, Basse fréquence, Moyenne fréquence, Haute fréquence, Densité électronique, Température électronique, Atomes dans un état métastable.**

## ABSTRACT

Atmospheric-pressure diffuse discharges are of great interest both for their physical complexity as well as for their numerous industrial applications. A good method to generate diffuse discharges at atmospheric pressure is by means of a dielectric barrier discharge. Up to now, the low frequency range (below 300 kHz) and the high-frequency range (above 3 MHz) have been vastly studied, leaving the medium frequency range (between 0.3 and 3 MHz) almost empty of experimental data.

The aim of this thesis by publications is two fold. First, the discharge modes obtained in the medium frequency range are to be understood and characterized. Second, the influence of the excitation frequency on the discharge is studied over a wide spectrum (from 25 kHz to 15 MHz). This includes frequencies from the very-low-frequency range to the high-frequency range. The experimental investigation is undertaken with a dielectric barrier discharge in a well-controlled environment of helium at atmospheric pressure. In order to identify the multiple discharge modes, many diagnostics are performed. Fast imaging is used to identify discharge modes according to their time evolution. Then electrical measurements, optical emission spectroscopy and absorption spectroscopy are deployed to measure the electron density, the electron temperature and the density of atoms in a metastable state respectively.

At a fix excitation frequency in the medium-frequency range, two distinct discharge modes occur. The first one is identified as the  $\Omega$  mode in which ionization is at the centre of the discharge and the power density is about  $0.1 \text{ W cm}^{-3}$ . The second one is identified as the hybrid mode in which ionization mainly occurs in the sheath region and the power density can reach about  $10 \text{ W cm}^{-3}$ . When the frequency is above 1 MHz, the transition from  $\Omega$  mode to hybrid mode is subject to a hysteresis. This hysteresis is due to efficient trapping of ions in the gas gap which does not allow ions to participate in secondary electron emission as long as the space charge is too low to modify the applied electric field. However, when the frequency is below 1 MHz the hybrid mode can no longer be sustained continu-

ously but rather oscillate spontaneously between the  $\Omega$  and the hybrid mode. This phenomenon is due to less efficient ion trapping that cannot maintain ions in the sheath when the electric field is modified by the space charge.

Furthermore, over the entire investigated frequency range, many other diffuse discharge modes are sustained. In addition to the atmospheric pressure glow discharge (in which maximum ionization occurs on the cathode side) usually observed in the low-frequency range, a Townsend-like mode is also generated at frequencies about 100 kHz. In this case, the maximum ionization occurs on the anode side. From 200 to 3000 kHz, the  $\Omega$  and the hybrid mode are achieved. Finally, from 5 MHz, the usual RF- $\alpha$  mode is reached. Over the complete range of frequency investigated, the mean electron density (time and spatially averaged) increase from  $10^{14}$  to  $10^{17}$  m<sup>-3</sup> while the electron temperature ranges between 0.3 and 0.5 eV. Both electronic temperature and density of atoms in a metastable state are maximum in the hybrid mode.

**Keywords:** Dielectric barrier discharge, Atmospheric-pressure plasma, Helium, Low frequency, Medium frequency, High frequency, Electron density, Electron temperature, Atoms in a metastable state.

## TABLE DES MATIÈRES

<b>RÉSUMÉ</b> . . . . .	<b>iii</b>
<b>ABSTRACT</b> . . . . .	<b>v</b>
<b>TABLE DES MATIÈRES</b> . . . . .	<b>vii</b>
<b>LISTE DES TABLEAUX</b> . . . . .	<b>x</b>
<b>LISTE DES FIGURES</b> . . . . .	<b>xi</b>
<b>LISTE DES SIGLES</b> . . . . .	<b>xiv</b>
<b>NOTATION</b> . . . . .	<b>xv</b>
<b>DÉDICACE</b> . . . . .	<b>xvii</b>
<b>REMERCIEMENTS</b> . . . . .	<b>xviii</b>
<b>INTRODUCTION GÉNÉRALE</b> . . . . .	<b>1</b>
<b>CHAPITRE 1 :MISE EN CONTEXTE</b> . . . . .	<b>3</b>
1.1 Notions fondamentales . . . . .	3
1.1.1 Modèle à plaques parallèles . . . . .	3
1.1.2 Claquage du gaz . . . . .	5
1.1.3 Décharge autoentretenue . . . . .	7
1.1.4 Décharge en courant continu . . . . .	9
1.1.5 Décharge à pression atmosphérique . . . . .	14
1.2 DBD en basses fréquences . . . . .	19
1.2.1 Éviter le passage à l'arc : décharge filamentaire . . . . .	19
1.2.2 Claquage homogène . . . . .	22
1.2.3 DBD homogène dans les basses fréquences . . . . .	24

1.3	DBD en hautes fréquences et décharge capacitive . . . . .	29
1.3.1	Décharge capacitive à pression réduite . . . . .	30
1.3.2	Décharge capacitive homogène à la pression atmosphérique . . . . .	32
1.3.3	Comparaison entre les régimes homogènes . . . . .	36
1.4	L'hélium comme gaz plasmagène . . . . .	38
1.4.1	Plasma d'hélium à la pression atmosphérique . . . . .	38
1.4.2	Structure atomique de l'hélium . . . . .	40
<b>CHAPITRE 2 : DÉCHARGE EN MOYENNES FRÉQUENCES . . . . .</b>		<b>43</b>
2.1	Présentation de l'article 1 . . . . .	43
2.2	DBD in the Medium-Frequency Range . . . . .	45
2.2.1	Introduction . . . . .	46
2.2.2	Experimental setup . . . . .	47
2.2.3	Optical characterization . . . . .	49
2.2.4	Electrical characterization . . . . .	59
2.2.5	Gas temperature measurement . . . . .	62
2.2.6	Discussion . . . . .	65
2.2.7	Conclusion . . . . .	67
<b>CHAPITRE 3 : EFFET DE LA FRÉQUENCE SUR UNE DBD . . . . .</b>		<b>69</b>
3.1	Présentation de l'article 2 . . . . .	69
3.2	Transition from LF to HF in a helium DBD . . . . .	71
3.2.1	Experimental setup . . . . .	73
3.2.2	Time-averaged characterization . . . . .	77
3.2.3	Time-resolved characterization . . . . .	82
3.2.4	Discussion . . . . .	91
3.2.5	Conclusion . . . . .	95
<b>CHAPITRE 4 : CARACTÉRISATION DE LA DÉCHARGE . . . . .</b>		<b>97</b>
4.1	Présentation de l'article 3 . . . . .	97
4.2	The role of helium atoms in a metastable state . . . . .	99



4.2.1	Introduction . . . . .	100
4.2.2	Experimental setup . . . . .	101
4.2.3	Calculations of the metastable atoms densities . . . . .	104
4.2.4	Average metastable densities . . . . .	110
4.2.5	Time-resolved evolution . . . . .	114
4.2.6	Discussion and conclusion . . . . .	123
4.3	Présentation de l'article 4 . . . . .	126
4.4	Electron Density and Temperature . . . . .	128
4.4.1	Introduction . . . . .	129
4.4.2	Experimental setup . . . . .	130
4.4.3	Models . . . . .	132
4.4.4	Results . . . . .	134
4.4.5	Discussion . . . . .	147
4.4.6	Conclusion . . . . .	152
	<b>CONCLUSION GÉNÉRALE . . . . .</b>	<b>154</b>
	<b>BIBLIOGRAPHIE . . . . .</b>	<b>158</b>
	<b>ANNEXE I : CALCULS D'ÉLARGISSEMENT SPECTRAL . . . . .</b>	<b>xix</b>
I.1	Élargissement naturel . . . . .	xix
I.2	Élargissement Doppler . . . . .	xx
I.3	Élargissement de résonance . . . . .	xxii
I.4	Élargissement van der Waals . . . . .	xxiii
I.5	Élargissement Stark . . . . .	xxv
I.6	Élargissement instrumental . . . . .	xxvi
I.7	Élargissement total . . . . .	xxvii

## LISTE DES TABLEAUX

1.I	Comparaison des décharges en BF et HF . . . . .	37
2.I	Measured values of discharge parameters . . . . .	67
3.I	List of frequencies tested . . . . .	75
3.II	Discharge classification based on $I_{RMS} - V_{RMS}$ inflections . . .	79
3.III	Discharge modes observed from 25 kHz to 15 MHz. . . . .	91
4.I	Contributions of different broadening mechanisms . . . . .	106
4.II	Data used for the calculation of the densities . . . . .	107
4.III	Conditions at which absorption measurement were quantifiable	112
4.IV	Typical time-averaged values of the metastable densities . . .	124
5.V	Comparaison des régimes . . . . .	155
I.I	Données atomiques de transitions vers les états métastables . .	xix
I.II	Résumé des élargissements pour la décharge d'hélium . . . . .	xxvii

## LISTE DES FIGURES

1.1	Modèle à plaques parallèles . . . . .	4
1.2	Circuit équivalent d'une décharge entre deux plaques . . . . .	5
1.3	Schématisation d'une avalanche électronique . . . . .	6
1.4	Courbe caractéristique d'une décharge en courant continu . . . . .	9
1.5	Régime luminescent de la décharge en courant continu . . . . .	12
1.6	Courbe de Paschen . . . . .	16
1.7	Développement du <i>streamer</i> . . . . .	17
1.8	Géométrie de la DBD plane . . . . .	20
1.9	Circuit équivalent de la DBD . . . . .	20
1.10	Courant et tension d'une DBD filamentaire . . . . .	21
1.11	Comportement électrique d'une DBD homogène . . . . .	26
1.12	Photographie d'une APGD . . . . .	27
1.13	Comportement électrique et optique d'une APTD . . . . .	28
1.14	Schématisation d'une décharge capacitive . . . . .	31
1.15	Comportement électrique et optique du régime $\alpha$ . . . . .	34
1.16	Comportement électrique et optique du régime $\gamma$ . . . . .	35
1.17	Comportement électrique du régime $\Omega$ . . . . .	36
1.18	Diagramme des états excités de l'hélium . . . . .	42
2.1	Discharge cell and electrical circuit . . . . .	47
2.2	Time-averaged pictures of the discharge . . . . .	50
2.3	Volume of the discharge . . . . .	52
2.4	Time-averaged and spectrally integrated light intensity . . . . .	53
2.5	Optical emission spectroscopy of the discharge . . . . .	54
2.6	Time and spectrally resolved discharge emission . . . . .	57
2.7	Time and spatially resolved discharge emission . . . . .	58
2.8	Time evolution of the measured voltage and current . . . . .	60
2.9	$I_{\text{RMS}}-V_{\text{RMS}}$ curves in the MF range . . . . .	61

2.10	$I_{RMS}$ - $V_{RMS}$ curve of the discharge at 1.6 MHz . . . . .	62
2.11	Example of rotational spectrum of $N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$ . . . . .	63
2.12	Gas temperature as a function of the power density . . . . .	64
2.13	Time and spatially resolved evolution of the light emission . . . . .	65
3.1	Discharge cell and electrical circuit . . . . .	74
3.2	$I_{RMS} - V_{RMS}$ characteristic curves for different frequencies . . . . .	76
3.3	Pictures of the discharge for different frequencies and power . . . . .	78
3.4	Optical emission spectra of the DBD at different frequencies . . . . .	80
3.5	Dielectric temperature ( $T_{die}$ ) and gas temperature ( $T_{gas}$ ) . . . . .	81
3.6	Time evolution of the light emission along the gas gap . . . . .	83
3.7	Time evolution of the helium $He(3^3S \rightarrow 2^3P)$ emission . . . . .	86
3.8	Decrease of the $He(3^3S \rightarrow 2^3P)$ emission intensity . . . . .	88
3.9	Time evolution of the spectrally integrated light emission . . . . .	89
3.10	Time evolution of the distribution of $He(3^3S \rightarrow 2^3P)$ emission . . . . .	90
3.11	$T_{rot}(P)$ slope as a function of the frequency for different modes . . . . .	92
3.12	$I_{RMS} - V_{RMS}$ characteristic curves for different frequencies . . . . .	94
3.13	Power density of the different observed modes . . . . .	95
4.1	Diode laser absorption setup . . . . .	102
4.2	Spectral lamp absorption setup . . . . .	103
4.3	Time-dependence of the absorption coefficient . . . . .	105
4.4	Global absorption rate $A_L$ . . . . .	108
4.5	Absorption rate $A_L$ as a function of the power . . . . .	109
4.6	Time-averaged density of $He(2^1S)$ and $He(2^3S)$ . . . . .	111
4.7	Density of $He(2^3S)$ as a function of time at different powers . . . . .	115
4.8	RMS voltage, RMS current and density of $He(2^3S)$ . . . . .	116
4.9	Density of $He(2^3S)$ as a function of time at different powers . . . . .	117
4.10	RMS voltage, RMS current and density of $He(2^3S)$ at 2.7 MHz . . . . .	118
4.11	Time dependence of the density of $He(2^3S)$ . . . . .	120
4.12	RMS voltage, RMS current and density of $He(2^3S)$ at 540 kHz . . . . .	121

4.13	Voltage, current and density of He( $2^3S$ ) as a function of time .	122
4.14	Experimental setup for the OES measurements . . . . .	131
4.15	Typical optical spectrum for the measurement of $T_e$ . . . . .	132
4.16	Equivalent circuit of the DBD . . . . .	133
4.17	RMS gas voltage against the RMS discharge current density .	135
4.18	$dV/dI$ of the RMS characteristic curves . . . . .	138
4.19	RMS sheath thickness as a function of the power density . . .	140
4.20	Electron density as a function of the power density . . . . .	142
4.21	Average electron density in the $\Omega$ mode . . . . .	143
4.22	Electron density as a function of the RMS gas voltage . . . . .	145
4.23	Electron temperature as a function of the power density . . .	146
4.24	Absorbed power per electron . . . . .	148
4.25	Minimum and maximum of the amplitude of oscillation . . . .	149
4.26	Ratio of metastable density over electron density . . . . .	152

## LISTE DES SIGLES

APGD	Atmospheric-pressure glow discharge
APTD	Atmospheric-pressure Townsend discharge
BF	Basse fréquence
CCRF	Capacitively coupled radio-frequency
DBD	Décharge à barrière diélectrique
HF	Haute fréquence / High frequency
LF	Low frequency
MF	Moyenne fréquence / Medium frequency
PA	Pression atmosphérique
RF	Radio fréquence / Radio frequency

## NOTATION

$A$	Aire d'une surface, constante expérimentale
$A$	Ampère, espèce chimique arbitraire
$B$	Constante expérimentale
$C$	Capacité
$C_g$	Capacité du gaz
$C_{sd}$	Capacité du diélectrique solide
$d$	Distance séparant les électrodes (diélectriques)
$\mathbf{E}$	Champ électrique appliqué
$E_b$	Norme du champ électrique de claquage du gaz
$\mathbf{E}_e$	Champ électrique de charge d'espace
$e$	Constante de Neper
$e$	Électron
$eV$	Électron-volt
$f$	Fréquence d'excitation
$f_{pe}$	Fréquence plasma des électrons
$f_{pi}$	Fréquence plasma des ions
$I$	Courant dans le circuit électrique
$I_d$	Courant de conduction dans la décharge
$I_{C_g}$	Courant de déplacement dans la décharge
$j_d$	Densité de courant de conduction dans la décharge
$k$	Constante de Boltzmann : $1,381 \times 10^{-23} \text{ J}\cdot\text{K}^{-1}$
$\ell$	Libre parcours moyen d'une espèce quelconque
$n$	Densité d'une espèce quelconque
$n_e$	Densité électronique
$N_e$	Nombre d'électrons
$p$	Pression
$P$	Puissance
$P_d$	Densité de puissance

$Q$	Quantité de charges
$R$	Résistance électrique
$T$	Température
$T_e$	Température électronique
$T_g$	Température du gaz
$v_d$	Vitesse de dérive des électrons
$V$	Tension, tension appliquée
$V_a$	Tension appliquée
$V_b$	Tension de claquage du gaz
$V_{sd}$	Tension sur les diélectriques
$V_g$	Tension sur le gaz
$Z_g$	Impédance de la décharge
$\alpha$	Premier coefficient de Townsend, Régime de décharge
$\gamma$	Second coefficient de Townsend, Régime de décharge
$\Gamma$	Flux de particules
$\epsilon_0$	Permittivité du vide
$\epsilon_r$	Permittivité relative
$\nu$	Fréquence de collision
$\nu_i$	Fréquence d'ionisation
$\omega$	Fréquence d'excitation angulaire
$\Omega$	Régime de décharge



À mon neveu Cédrik, pour qui la physique n'est  
encore qu'enthousiasme et inconnu.

## REMERCIEMENTS

Je tiens d'abord à exprimer ma gratitude envers Françoise et Joëlle. Elles ont, non seulement accepté de diriger ma thèse, mais m'ont aussi ouvert la porte vers ce domaine des plus stimulants qu'est la physique des plasmas. Leur différente expertise et la complémentarité de leurs compétences m'auront permis d'avoir une vision élargie de ce vaste domaine. Je remercie également les professeurs Sylvain Coulombe, Steven Girshick, Khaled Hassouni, Patrick Hayes, Luc Stafford, Laurent Thomas et François Vidal d'avoir accepté généreusement d'être membres du jury.

Merci aux collègues de PROMES. En particulier à Rémy qui connaît les réacteurs comme le fond de sa poche, mais aussi à Laura, Jean-Paul, Béatrice et José pour avoir rendu le parcours beaucoup plus amical. Un énorme merci au groupe de plasma de l'Université de Montréal pour m'avoir accueilli et initié au plasma. Un merci tout spécial à Danielle, Luc et Antoine à qui je pouvais poser toutes mes questions, même les moins pertinentes. Chapeau à Olivier et à Vincent pour leur goût musical hautement compatible avec ma concentration au travail.

Encore et encore merci à Natali et Stéphane qui m'ont transmis l'assiduité nécessaire pour accomplir une telle entreprise. Leur présence, leur soutien inébranlable et leur chambre au sous-sol m'auront été utiles plus d'une fois, surtout avec tous ces allers-retours France-Québec. Finalement, j'offre à Carolane mes remerciements les plus chaleureux pour ses encouragements et sa patience.

## INTRODUCTION GÉNÉRALE

Pendant la deuxième moitié du 20<sup>e</sup> siècle, les procédés plasma à basse pression ont atteint leur maturité [1]. Souvent à des pressions de l'ordre du Pascal, les réacteurs plasma sont largement utilisés dans l'industrie (en particulier dans l'industrie de la microélectronique [2]). Qui plus est, les connaissances techniques autant que les modèles numériques ont permis la conception de réacteurs à haute performance. En contrepartie, les réacteurs basse pression nécessitent l'utilisation de systèmes de pompage et de procédés par lots. Ainsi, l'intérêt de concevoir des réacteurs pouvant fonctionner à la pression atmosphérique (PA) est d'éviter ces inconvénients. Par contre, en augmentant la pression, on rencontre des phénomènes tels que la contraction et la filamentation de la décharge qui posent d'importants problèmes d'inhomogénéités [3]. Or, l'obtention de décharge homogène est importante pour plusieurs applications (traitement de surface [4, 5], dépôt de couche mince [6–8], éclairage [9], médecine [10, 11], etc.).

Une manière de générer des décharges homogènes à la pression atmosphérique est par l'entremise d'un dispositif que l'on nomme décharge à barrière diélectrique (DBD) [12]<sup>1</sup>. Typiquement, la DBD permet d'obtenir des décharges homogènes dans des conditions expérimentales où la fréquence d'excitation est de quelques kilohertz [13]. Bien que les mécanismes physiques de la décharge soient bien différents, nous savons que la DBD peut aussi générer des décharges homogènes à des fréquences de quelques mégahertz [14, 15]. Ainsi, l'objet de la présente étude est de comprendre les phénomènes fondamentaux régissant la transition entre les différents régimes d'une décharge à barrière diélectrique lorsque la fréquence d'excitation augmente de quelques kilohertz à quelques mégahertz. Dans le premier cas, la décharge est pulsée et contrôlée par l'émission d'électron secondaire à la cathode tandis que dans le second cas, la décharge est continue et contrôlée par l'émission d'électron en volume. Par ailleurs, puisque nous nous intéressons ici à

---

<sup>1</sup>Parfois, on utilise la désignation DBD pour désigner l'appareil expérimental tandis que d'autres fois on utilise DBD pour désigner la décharge elle-même.

des questions fondamentales sur la physique des décharges homogènes à la pression atmosphérique, le gaz d'hélium est choisi pour sa simplicité et sa capacité à générer des décharges homogènes à la pression atmosphérique.

La thèse est divisée en quatre chapitres. Le premier chapitre constitue la mise en contexte de l'étude. Les phénomènes fondamentaux menant à des décharges homogènes à la pression atmosphérique y sont donc introduits. Une revue de littérature sur les DBD en basses fréquences ainsi que les décharges en hautes fréquences y sont incluses. Quelques calculs préliminaires au sujet des plasmas d'hélium à la pression atmosphérique sont finalement intégrés.

Les trois autres chapitres constituent le coeur de la thèse. Par l'entremise de quatre articles<sup>2</sup>, ils contiennent l'essence de la contribution scientifique de l'étude. Les trois premiers ont déjà été publiés alors que le dernier a été récemment soumis. Ainsi, le second chapitre de la thèse consiste en un article et met en lumière les deux régimes de décharge pouvant être soutenus lorsque la DBD d'hélium est excitée par une fréquence dans une gamme de fréquences intermédiaire entre les basses et les hautes fréquences. Le troisième chapitre est aussi constitué d'un article. Celui-ci fait état des cinq régimes de décharge rencontrés lors du passage des kilohertz aux mégahertz. Finalement, le quatrième chapitre est constitué de deux articles. Ceux-ci sont consacrés à des méthodes diagnostiques permettant d'étudier plus fondamentalement les cinq régimes de décharge précédemment identifiés. Le troisième article est dédié à la mesure de la densité des atomes d'hélium dans un état métastable et permet donc de décrire le rôle de ces espèces énergétiques dans les différents régimes de décharge. Finalement, le quatrième article est consacré à la détermination de la densité et de la température des électrons dans les cinq régimes. Ces valeurs sont obtenues grâce à des mesures électriques ainsi que des mesures de spectroscopie d'émission optique.

---

<sup>2</sup>Depuis le dépôt initial de la thèse, un cinquième article a été publié [16]. Celui-ci complète la description fondamentale des régimes de décharge dans les moyennes fréquences.

## CHAPITRE 1

### MISE EN CONTEXTE : LES DÉCHARGES HOMOGENÈNES À LA PRESSION ATMOSPHÉRIQUE

Dans ce chapitre, nous introduisons les définitions et les mécanismes fondamentaux des décharges homogènes à la pression atmosphérique. Nous discutons aussi des différents régimes de décharge connus dans les plages des basses fréquences et des hautes fréquences. Finalement, certaines spécificités des décharges d'hélium à la pression atmosphérique sont traitées.

#### 1.1 Notions fondamentales

Avant de s'intéresser aux complexités de la pression atmosphérique, introduisons d'abord quelques notions fondamentales des décharges homogènes issues du domaine des basses pressions. Ensuite, nous pourrions voir comment certains concepts s'appliquent à la pression atmosphérique et, dans le cas contraire, de quelle autre manière il est possible de maintenir une décharge homogène à pression élevée.

##### 1.1.1 Modèle à plaques parallèles

En général, une décharge électrique est définie par le transfert de particules chargées entre deux milieux possédant différentes quantités de charge. Lorsque ce transfert de charge s'effectue en milieu gazeux et que la décharge est macroscopiquement neutre (c'est-à-dire qu'à partir d'une certaine échelle de grandeur, on compte autant de particules chargées positivement que négativement), on dit du gaz qu'il est un plasma.

Au laboratoire, on génère une décharge électrique en appliquant un champ électrique à un gaz. Le champ électrique accélère les particules chargées, ce qui permet de leur transférer de l'énergie par le biais des collisions<sup>1</sup> et créer de nouvelles

---

<sup>1</sup>Les collisions peuvent être de différentes natures ; soit entre différentes particules dans le gaz,

particules chargées (par ionisation).

Autant pour générer des décharges en courant continu que des décharges en courant alternatif, le modèle à deux plaques parallèles séparées par un espace gazeux est certainement le plus simple à étudier. Celui-ci est illustré à la figure 1.1. Aussi longtemps qu'il n'y a pas de décharge entre les plaques parallèles, le disposi-

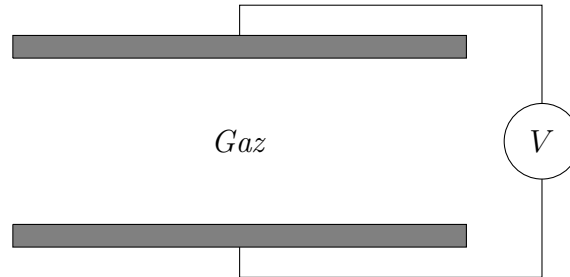


Figure 1.1 – Modèle d’applicateur de champ à plaques parallèles. Deux électrodes métalliques identiques sont disposées de part et d’autre d’un espace gazeux.

tif peut être caractérisé par la valeur de sa capacité. La capacité est le rapport de proportionnalité entre la quantité de charges ( $Q$ ) présentes sur les deux plaques et la tension ( $V$ ) qui leur est appliquée [17, Tome 2, Chapitre 6]

$$Q = CV. \quad (1.1)$$

Dans le cas de la figure 1.1, on parle d’un dispositif électronique connu comme un condensateur plan [18]. Dans ce cas, la valeur de la capacité est donnée par [19]

$$C = \frac{\epsilon_r \epsilon_0 A}{d} \quad (1.2)$$

avec  $A$ , l’aire des plaques,  $d$ , la distance entre les plaques,  $\epsilon_0 = 8,85 \times 10^{-12} \text{ F m}^{-1}$ , la permittivité du vide et  $\epsilon_r$ , la permittivité relative du milieu. Le condensateur est représenté électriquement dans un circuit électronique simple à la figure 1.2a où  $C_g$  représente la capacité du gaz qui remplit l’espace entre les deux plaques métalliques.

---

soit entre les particules du gaz et les parois ou encore des matériaux solides insérés dans le gaz.

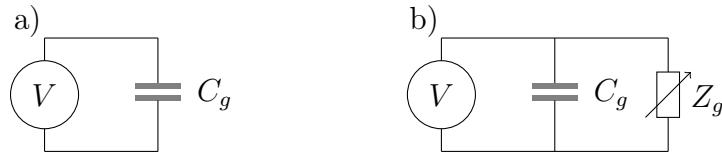


Figure 1.2 – a) Circuit équivalent du condensateur avec une source de tension. b) Circuit équivalent d’une décharge dans le modèle à plaques parallèles.

Maintenant, supposons qu’on augmente graduellement la tension électrique  $V$  appliquée sur les électrodes. À un certain point, une décharge s’allume ; on dit alors qu’il y a claquage du gaz. À ce moment, le gaz passe d’un état isolant à un état conducteur [20, Chapitre 7]. À partir du moment où il y a une décharge, le gaz ne peut plus être simplement décrit comme un diélectrique avec une valeur de capacité donnée. Le circuit équivalent de la figure 1.2a doit être modifié pour prendre en considération le comportement conducteur de la décharge. Le circuit équivalent de la figure 1.2b permet donc de bien représenter le comportement électrique grâce à l’impédance variable ajoutée au circuit.

### 1.1.2 Claquage du gaz

Lorsqu’une tension est appliquée aux bornes des électrodes d’un dispositif du type de celui de la figure 1.1, les électrons germes (ou primaires), présents naturellement en très faible quantité dans le gaz, sont accélérés. Pour une faible tension, ces électrons effectuent des collisions élastiques avec les atomes ou molécules neutres du gaz avant de se recombiner sur l’électrode positive. Dans une telle situation, il n’y a pas de claquage du gaz ni de décharge. Ainsi, pour qu’il y ait claquage du gaz, il faut que la tension soit suffisamment élevée pour que ces électrons germes produisent le phénomène d’avalanches électroniques. L’avalanche s’amorce par la collision d’un électron sur un atome ou une molécule neutre du gaz donnant lieu à une réaction d’ionisation. Autrement dit, si l’électron primaire est suffisamment énergétique au moment de la collision, la réaction entraîne la création d’un ion et

un second électron <sup>2</sup> :



De cette réaction émergent deux électrons d'énergie relativement faible. Cependant, ces électrons sont accélérés par le champ électrique de l'applicateur de champ et entrent à nouveau en collision. Ainsi, cette réaction en chaîne forme une avalanche électronique qui a pour effet de multiplier la quantité d'électrons dans le gaz (figure 1.3).

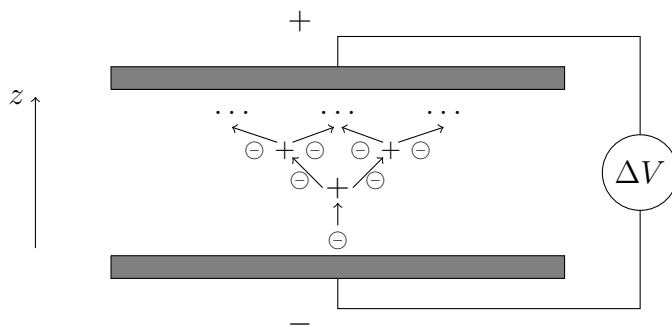


Figure 1.3 – Schématisation d'une avalanche électronique. Les électrons, accélérés par le champ électrique induit par  $\Delta V$ , entrent en collision avec des atomes ou molécules neutres et engendrent des réactions d'ionisation créant une multiplication électronique.

Les mécanismes d'ionisations comme celui de l'équation (1.3) sont responsables de la multiplication des électrons et des ions dans le volume de la décharge. Cette multiplication est caractérisée par le premier coefficient de Townsend  $\alpha$  (aussi appelé coefficient d'ionisation de Townsend) qui représente la production d'électrons lors des réactions d'ionisation. Plus précisément, c'est la production d'électrons par unité de longueur dans le champ électrique  $\alpha = \nu_i/v_d$  où  $\nu_i$  est la fréquence d'ionisation et  $v_d$  est la vitesse de dérive des électrons [20, Chapitre 4]. Il est d'ailleurs donné en  $m^{-1}$ . Le coefficient d'ionisation dépend surtout de la nature du gaz ; lorsque l'io-

<sup>2</sup>Par exemple, l'énergie de première ionisation de l'atome d'hélium est de 24,6 eV, la plus haute des éléments du tableau périodique. Comme nous le verrons plus loin, cette énergie peut favoriser différents mécanismes d'ionisation [21].



nisation du gaz provient essentiellement de la réaction (1.3), il est donné par la formule empirique [20, Chapitre 4]

$$\alpha = Ape^{-Bp/E}, \quad (1.4)$$

où  $A$  et  $B$  sont des constantes expérimentales pour un gaz donné,  $p$  est la pression et  $E = |\mathbf{E}|$  est la norme du champ électrique appliqué.

### 1.1.3 Décharge autoentretenu

Une fois que les avalanches électroniques ont permis l'amorçage de la décharge, celle-ci doit pouvoir s'autoentretenir, c'est-à-dire qu'il doit y avoir de nouveaux électrons injectés dans le gaz, et ce, sans autre apport énergétique que celui du champ électrique appliqué. Dans le modèle à plaques parallèles, la création de nouveaux électrons se produit par deux mécanismes. Comme nous venons de le voir, le premier est l'ionisation en volume, caractérisé par le premier coefficient de Townsend. Le second mécanisme d'apport en électron dans la décharge met en jeu l'interface gaz-solide. Ce sont des électrons qui sont éjectés de la surface solide et injectés dans le gaz. Ce type de mécanisme de gain est appelé émission secondaire et est caractérisé par le second coefficient de Townsend  $\gamma$  (ou coefficient d'émission secondaire de Townsend). Il s'agit simplement du nombre d'électrons secondaires émis par collision avec la surface. Il dépend de la nature du matériau solide et des caractéristiques de la particule incidente (ion, métastable, photon). Dans le cas le plus simple, ce sont les ions contenus dans le gaz qui sont accélérés par le champ électrique appliqué et entrent en collision avec l'électrode négative.

En gardant ces deux mécanismes de création d'électrons en tête, considérons le modèle unidimensionnel suivant : soit les deux électrodes de la figure 1.3 disposées sur l'axe  $z$  avec la cathode (d'où partent les électrons) en position  $z = 0$ . Les électrons émis par la cathode, accélérés par le champ électrique, génèrent de l'ionisation dans le gaz. Pour un flux  $\Gamma_e$  parallèle au champ électrique ( $z$ ), la variation du flux

selon  $z$  est donnée par l'équation différentielle

$$\frac{d\Gamma_e}{dz} = \alpha(z)\Gamma_e, \quad (1.5)$$

où,  $\alpha(z)$  est le premier coefficient de Townsend, qui peut varier avec la position le long de la décharge. Cette équation différentielle se résout aisément par séparation de variable :  $d\Gamma_e/\Gamma_e = \alpha(z)dz$ . Nous pouvons donc écrire

$$\int_{\Gamma_e(0)}^{\Gamma_e(z)} \frac{1}{\Gamma_e} d\Gamma_e = \int_0^z \alpha(z') dz' \quad \Rightarrow \quad \Gamma_e(z) = \Gamma_e(0)e^{\int_0^z \alpha(z') dz'}.$$

Pour une décharge de longueur  $d$ , la conservation de la charge totale (création d'un nombre égal d'électrons et d'ions) nous indique que le flux d'électrons à l'anode (à  $z = d$ ) moins le flux d'électrons émis à la cathode ( $z = 0$ ) doit être égal au flux d'ions frappant la cathode moins le flux d'ions à l'anode ( $z = d$ ); ce qui prend la forme

$$\Gamma_i(0) - \Gamma_i(d) = \Gamma_e(0) \left[ e^{\int_0^d \alpha(z') dz'} - 1 \right].$$

Supposons maintenant qu'à la cathode, le flux d'électrons provienne seulement de l'impact des ions sur la paroi ( $\Gamma_e(0) = \gamma\Gamma_i(0)$ ). Comme il n'y a pas d'ions générés à l'anode ( $\Gamma_i(d) = 0$ ) nous pouvons écrire

$$\begin{aligned} \Gamma_i(0) &= \gamma\Gamma_i(0) \left[ e^{\int_0^d \alpha(z') dz'} - 1 \right] \\ \Rightarrow \frac{1}{\gamma} + 1 &= e^{\int_0^d \alpha(z') dz'}, \end{aligned} \quad (1.6)$$

qui est la condition pour que la décharge soit autoentretenu au-delà du claquage. Essentiellement, on voit que les flux de particules chargés ont été éliminés dans l'équation (1.6) de la sorte que les quantités  $\alpha$  et  $\gamma$  sont interdépendantes. Bref, pour que la décharge soit autoentretenu, autant l'émission secondaire que l'ionisation en volume sont nécessaires.

### 1.1.4 Décharge en courant continu

Comme nous l'avons vu précédemment, le modèle à plaques parallèles permet de générer une décharge en courant continu. Par contre, selon la tension appliquée au gaz, différents phénomènes peuvent survenir, ou plus précisément, plusieurs régimes de décharge peuvent être soutenus.

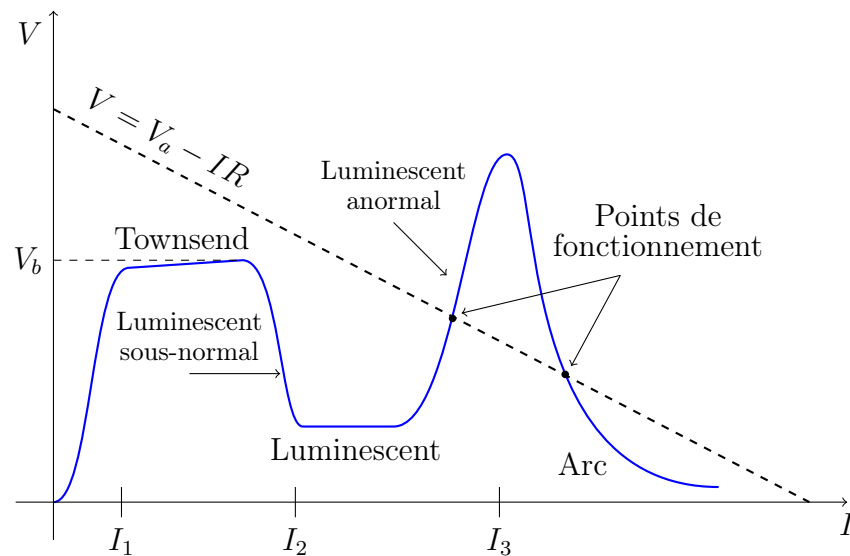


Figure 1.4 – Courbe caractéristique d'une décharge en courant continu.  $I$  est le courant qui circule dans le circuit,  $V$  est la tension appliquée au gaz et  $V_b$  est la tension de claquage du gaz. La tension appliquée au circuit  $V_a$  et la résistance variable  $R$  permettent d'ajuster le point de fonctionnement de la décharge sur la courbe.

La figure 1.4 illustre ces différents régimes sur la courbe caractéristique courant-tension, où  $I$  est le courant qui circule dans le circuit et  $V$  est la tension appliquée au gaz [22, Chapitre 11]. En commençant par le point de tension et courant nuls, nous allons analyser le déplacement du point de fonctionnement de la décharge sur la courbe caractéristique<sup>3</sup>.

<sup>3</sup>Afin de se déplacer sur la courbe caractéristique, on connecte les électrodes en série avec une source de tension et une résistance variable. En variant la tension de la source ou la valeur de la résistance, on peut contrôler le point de fonctionnement de la décharge défini par l'intersection de la droite de charge  $V = V_a - IR$  avec la courbe caractéristique courant-tension de la décharge.

### 1.1.4.1 Régime non autoentretenu

En appliquant une faible tension, les électrons primaires sont accélérés par le champ électrique créé entre les électrodes. À ce stade, les électrons effectuent des collisions majoritairement élastiques avec les neutres. Il n'y a pas véritablement d'avalanches et la décharge a besoin d'une source externe d'électrons pour pouvoir se maintenir. C'est la région qui correspond à la première montée abrupte de la tension (sous le courant  $I_1$ ), concordant avec l'extraction des électrons germes présents dans le gaz.

Si  $I_0$  est un courant extérieur (par exemple, un photocourant généré par une lampe ultraviolette) et que le coefficient d'ionisation de Townsend est constant, le courant à l'anode (et dans le circuit) est donné par [20, Chapitre 7]

$$I = I_0 e^{\alpha d} \frac{1}{1 - \gamma(e^{\alpha d} - 1)}. \quad (1.7)$$

Aussi longtemps que le dénominateur est positif, la décharge n'est pas autoentretenu et  $I_0$  est nécessaire.

### 1.1.4.2 Régime de Townsend

Pour une tension suffisamment élevée, le flux d'ions à la cathode permet d'entretenir la décharge par l'entremise de l'émission secondaire. Il commence donc à y avoir beaucoup d'avalanches électroniques, ce qui donne lieu à un claquage de Townsend. Puisque la décharge est autoentretenu, le courant externe  $I_0$  n'est plus nécessaire. En considérant l'équation (1.7), on voit que lorsque  $I_0$  est nul, le courant total peut seulement être non nul si le dénominateur est aussi égal à zéro. Nous obtenons alors le critère de claquage de Townsend<sup>4</sup>

$$\alpha d = \ln \left( \frac{1}{\gamma} + 1 \right). \quad (1.8)$$

---

<sup>4</sup>Notons que ce critère s'obtient aussi à partir de l'équation (1.6) de la section précédente. En fait, il s'agit d'effectuer l'intégrale de  $\alpha$  entre 0 et  $d$  avec  $\alpha$  constant.

Qui plus est, la figure 1.4 nous montre que la valeur de la tension dans la décharge tend vers  $V_b$  (à partir de  $I_1$ ). C'est-à-dire que la valeur de la tension dans le gaz peut rester approximativement la même sur une grande plage de courant. Cette stabilisation de la tension de la décharge est appelée plateau de Townsend. Dans le plateau, le courant croît énormément pour une faible augmentation de la tension parce que l'intensité du champ électrique est près du seuil d'énergie d'ionisation permettant aux avalanches électroniques de s'amorcer. Comme chaque avalanche génère une quantité importante de paires électron-ion, elles contribuent fortement au courant. Ainsi, une des caractéristiques des décharges de Townsend est que la tension au gaz est constante pendant son fonctionnement.

Dans ce type de décharge, il n'y a pas une grande densité d'électrons puisque ceux-ci sont perdus à l'anode. Quant aux ions, moins mobile que les électrons, leur densité peut atteindre 100 fois celle des électrons. Par contre, cette densité ionique est toujours suffisamment faible pour que le champ électrique appliqué ne soit pas significativement perturbé par celle-ci [23]. Autrement dit, le champ électrique est approximativement constant le long du gaz. On peut noter aussi que, puisque la densité d'électrons dans la région de l'anode est élevée, c'est dans cette région qu'il y a le plus d'atomes ou de molécules dans un état excité menant à de l'émission de photons. Autrement dit, dans les cas où la décharge émet une quantité significative de lumière, cette luminosité se trouve dans la région de l'anode.

#### 1.1.4.3 Régime luminescent

En poursuivant notre parcours sur la courbe caractéristique de la figure 1.4, on constate que la tension chute et se stabilise sur un deuxième plateau (à partir de  $I_2$ ). Cette chute est due à la formation d'une charge d'espace positive créée par les ions accumulés dans la zone de la cathode. Pendant la chute, la décharge est en régime luminescent sous-normal. Par contre, une fois que la tension est stabilisée sur le second plateau, la décharge est en régime luminescent normal. Ce régime se caractérise par la présence d'une charge d'espace positive dans la région de la cathode [24, 25]. Ainsi, la tension est plus faible, mais le champ électrique est

plus intense dans la région de la cathode puisqu'il est appliqué sur une courte distance (voir la figure 1.5). Dans de telles conditions, différentes régions spatiales de luminescence apparaissent. Elles sont indiquées à la figure 1.5. En gris, nous pouvons voir les trois régions de luminescence : la lueur cathodique (LC), la lueur négative (LN) et la lueur positive (LP). En blanc, nous voyons les régions sombres : celles d'Aston (As), de Crookes (C), de Faraday (F) et de l'anode (An) et en pointillé, il y a la colonne positive [26, Chapitre 9].

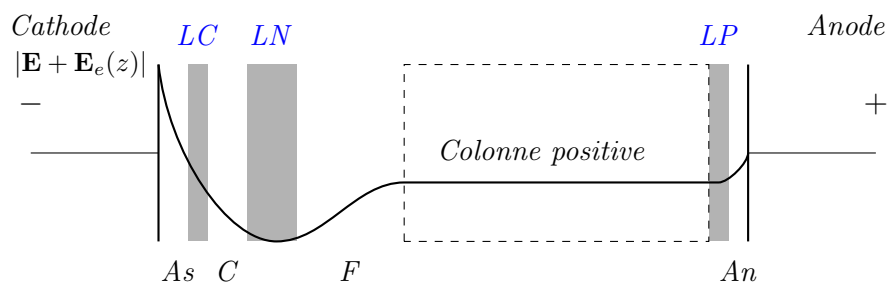


Figure 1.5 – Régime luminescent de la décharge en courant continu. Les zones de luminescences sont illustrées en gris. La norme du champ électrique (appliqué et de charge d'espace) en fonction de la position est superposée sur le schéma.

Celles-ci sont décrites comme suit :

**Région sombre d'Aston :** Elle est directement en contact avec la cathode. Le champ électrique y est intense et la charge d'espace, négative. Cette région contient des électrons qui viennent d'être éjectés de la cathode et qui sont encore lents; ils ont encore une énergie trop faible pour exciter le gaz et conduire à de l'émission lumineuse.

**Lueur cathodique :** Lorsque les ions percutent la cathode, il est possible que certains atomes excités soient éjectés du matériau. Ceux-ci peuvent alors émettre de la lumière et parfois même cacher la région sombre d'Aston. Cette région contient une bonne densité d'ions. En pratique, elle est moins lumineuse que les autres et peut être difficile à observer.

**Région sombre de Crookes :** Cette région, aussi appelée région sombre cathodique, possède un champ électrique plutôt faible, une charge d'espace positive

et une densité d'ions assez élevée. C'est à l'interface entre la région sombre cathodique et la lueur négative que survient la plus grande partie de la chute de tension. Cette chute de tension est appelée chute de tension cathodique. C'est aussi entre la cathode et la fin de la région sombre cathodique qu'est dissipée la plus grande partie de l'énergie favorisant le déclenchement des avalanches dans la lueur négative. D'ailleurs, on nomme souvent la zone située entre la cathode et la fin de la région sombre de Crookes : région de la cathode.

**Lueur négative :** C'est l'endroit le plus lumineux de la décharge. Ce sont les électrons qui transportent la majeure partie du courant dans cette région. Ceux-ci, ayant été préalablement accélérés, fournissent un maximum d'ionisation et une intense excitation des neutres. Au fur et à mesure qu'ils ralentissent, il y a de moins en moins d'énergie disponible pour l'ionisation et une région sombre (appelée région sombre de Faraday) débute graduellement en allant vers la cathode.

**Région sombre de Faraday :** Dans cette région, la densité d'électrons diminue par recombinaison en volume et par diffusion vers les parois du tube. C'est la zone de transition entre la lueur négative et la colonne positive.

**Colonne positive :** La colonne positive est la région de quasi-neutralité. C'est donc la seule zone où la décharge électrique peut être considérée un plasma. Le champ électrique y est faible (typiquement de  $100 \text{ V m}^{-1}$ ) ; ce qui permet tout juste de maintenir un taux d'ionisation suffisant pour compenser les pertes. La température électronique est typiquement d'environ 1 à 2 eV [26, Chapitre 9].

**Lueur positive :** À la fin de la colonne positive apparaît parfois une région de lueur plus intense. C'est l'interface entre la colonne positive et la gaine anodique.

**Région sombre de l'anode :** C'est la gaine de l'anode ; elle récolte donc le courant électronique. Son champ électrique est plus élevé que celui de la colonne positive.

Il est à noter que les régions les plus distinctives sont la colonne positive et la lueur négative. La colonne positive est la seule région pour laquelle toutes les conditions nécessaires au plasma sont respectées (la neutralité macroscopique et le comportement collectif). Dans le cas de la lueur négative, elle est caractérisée par son intensité lumineuse plus importante que les autres régions. C'est sa présence qui permet bien souvent de déterminer que la décharge est dans le régime luminescent.

#### 1.1.4.4 Régime d'arc

Pendant le régime luminescent normal, la tension est constante puisque l'augmentation du courant est habituellement due à un agrandissement de l'aire de la surface de contact entre les électrodes et la décharge. Lorsque la surface est complètement recouverte, la tension se remet à augmenter. C'est le régime luminescent anormal. Finalement, lorsque l'on déplace le point de fonctionnement de la décharge encore plus à droite, le courant devient tellement intense que la cathode se met à chauffer de manière significative. Dans de telles circonstances, une grande quantité d'électrons secondaires sont produits par émission thermoélectronique ou par émission par effet de champ ; ce qui donne lieu à une décharge en *régime d'arc*. Celle-ci est habituellement concentrée dans un canal de décharge en quasi équilibre thermique [26, Chapitre 9].

#### 1.1.5 Décharge à pression atmosphérique

Jusqu'à maintenant, nous avons vu les principes et les mécanismes fondamentaux expliquant l'amorçage et l'entretien des décharges électriques en milieu gazeux. Ceux-ci sont généralement utilisés pour décrire les décharges à basse pression, où les collisions sont peu fréquentes. Au contraire, à la pression atmosphérique, les collisions sont très fréquentes. Par exemple, dans l'air à température ambiante, le



libre parcours moyen entre deux collisions impliquant des molécules passe de l'ordre du millimètre à la dizaine de nanomètres selon que la pression est basse ( $\sim 1$  Pa) ou atmosphérique ( $\sim 100$  kPa). Nous allons maintenant nous demander de quelle manière l'augmentation de la pression influence l'amorçage de la décharge.

Comme nous l'avons vu précédemment, la constante  $\alpha$  (le premier coefficient de Townsend) caractérise l'ionisation au sein du gaz. De manière générale, ce coefficient est une fonction de la pression et du champ d'accélération. En utilisant à nouveau l'équation empirique (1.4), il est possible d'obtenir une expression pour le champ minimal  $E_b$  nécessaire à l'amorçage d'une décharge de Townsend :

$$dApe^{-Bp/E_b} = \ln\left(\frac{1}{\gamma} + 1\right),$$

où le côté droit provient du critère de claquage de Townsend (1.8). En remplaçant  $E_b$  par  $V_b/d$  et en isolant la tension de claquage  $V_b$ , on obtient la loi de Paschen

$$V_b = \frac{Bpd}{\ln(Apd) - \ln[\ln(1 + 1/\gamma)]}. \quad (1.9)$$

Cette loi fut initialement énoncée empiriquement par Friedrich Paschen [27]. Ce que l'on peut remarquer dans cette loi est que la tension de claquage ne dépend que des constantes expérimentales  $A$ ,  $B$  et  $\gamma$  ainsi que du produit pression-distance. Autrement dit, pour un gaz et une électrode donnée, la seule variable dans cette expression est  $pd$ .

### 1.1.5.1 Loi d'échelle

La loi de Paschen nous donne la tension minimale nécessaire pour qu'il y ait claquage dans un gaz. La figure 1.6 illustre la courbe de Paschen de différents gaz rares et moléculaires [28, Chapitre 4]. Un point important sur cette courbe est le minimum de Paschen. À partir de ce point, l'augmentation ou la diminution de l'espacement entre les électrodes ou de la pression fait nécessairement augmenter la tension de claquage du gaz. Comme on peut le voir, le produit  $pd$  détermine la

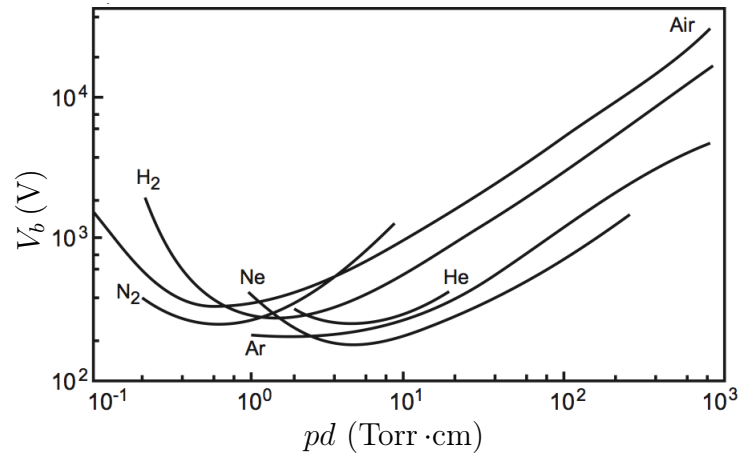


Figure 1.6 – Courbe de Paschen pour certains gaz nobles et moléculaires. Adapté de [28, Chapitre 4].

tension nécessaire au claquage du gaz. Ce que le produit  $pd$  symbolise fondamentalement est le nombre de collisions qu'un électron peut faire pendant sa course d'une électrode à l'autre. Si la tension de claquage est élevée pour une forte pression, c'est parce que les électrons effectuent un grand nombre de collisions élastiques avant d'atteindre l'anode ; la distance sur laquelle les électrons sont accélérés devient trop faible. Si la tension de claquage est élevée pour une grande distance interélectrode, c'est parce que le champ d'accélération local est diminué par la distance  $d$ . De l'autre côté, si la tension de claquage est grande pour une faible pression et une faible espace interélectrode, c'est parce qu'il n'y a pas suffisamment d'atomes ou de molécules neutres disponibles pour l'ionisation.

Bien que la loi de Paschen nous indique que la tension nécessaire pour établir une décharge à pression atmosphérique est élevée et qu'il est favorable d'utiliser une courte distance interélectrode, il reste que la densité des atomes ou molécules neutre est telle que l'avalanche électronique favorise la génération d'un arc électrique plutôt que d'une décharge homogène (une décharge de Townsend ou une décharge luminescente). Cet arc se produit via le claquage en *streamer* que déclenche l'avalanche électronique. Il est donc important de s'intéresser à la formation de *streamer* dans le gaz.

### 1.1.5.2 De l'avalanche électronique à l'arc via le *streamer*

À la pression atmosphérique, le produit  $pd$  est élevé et la tension nécessaire pour initier une décharge l'est aussi. Le claquage est alors beaucoup plus rapide que dans le cas du claquage de Townsend contrôlé par la dérive des ions vers la cathode ( $10^{-6}$  s). En fait, le claquage est si rapide ( $10^{-8}$  s) que les ions peuvent être considérés comme immobiles ; les mécanismes d'émission secondaire ne jouent donc plus aucun rôle. C'est alors que le claquage devient un claquage en *streamer*.

Le claquage en *streamer* survient lorsqu'une avalanche électronique crée assez d'ions pour que leur charge d'espace localise le champ électrique. En effet, les électrons dérivent très vite vers l'anode, laissant les ions derrière eux. Il est alors possible pour les électrons créés par photo-ionisation d'être influencés par ce champ électrique. Il existe deux types de *streamers* : celui qui se développe vers la cathode

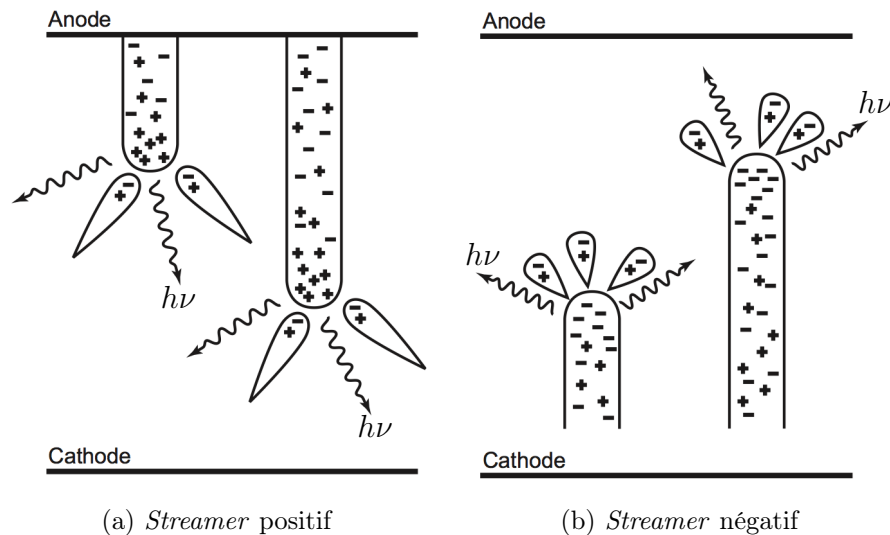


Figure 1.7 – Développement du *streamer* positif et du *streamer* négatif. Adapté de [29, Chapitre 4].

(*streamer* positif 1.7a) et celui qui se développe vers l'anode (*streamer* négatif 1.7b). Dans le cas du *streamer* positif (figure 1.7a), les avalanches primaires doivent d'abord atteindre l'anode. Ensuite, les électrons créés par photo-ionisation dans le gaz sont attirés par les ions lents laissés par les avalanches primaires. Ce canal

d'ion forme alors un *streamer*, qui, avec la formation de nouveaux ions à sa tête, se déplace rapidement vers la cathode. Dans le cas du *streamer négatif*, où le champ électrique appliqué est encore plus intense, les électrons des premières avalanches peuvent ioniser suffisamment pour que le champ de charge d'espace soit du même ordre de grandeur que le champ appliqué avant même que les électrons aient atteint l'anode. Les ions créés par photo-ionisation en amont peuvent donc augmenter le champ électrique appliqué et permettre au canal ionisé de se diriger vers l'anode (figure 1.7b).

Dans tous les cas, lorsque le *streamer* atteint les deux électrodes, le gaz est encore faiblement ionisé et froid. Il constitue néanmoins un canal conducteur dans lequel le courant risque d'augmenter rapidement. Ce courant chauffe alors les électrodes et leur permet d'émettre un grand nombre d'électrons secondaires. Ceci génère une décharge en régime d'arc électrique (tout comme dans le cas de la courbe caractéristique 1.4 au-delà de  $I_3$ ).

Une manière commode d'évaluer si l'avalanche produite par une différence de potentiel conduit à un claquage de Townsend ou à un claquage en *streamer* est de vérifier que la condition de claquage de Meek n'est pas surpassée. Sous forme simplifiée, celle-ci s'écrit [29, Chapitre 4]

$$\alpha d \approx 20 \quad \text{et} \quad N_e = e^{\alpha d} \approx 10^8, \quad (1.10)$$

qui s'obtient en considérant que le *streamer* survient lorsque le champ de charge d'espace de l'avalanche est approximativement égal au champ électrique appliqué. Ainsi, lorsque ce critère est dépassé, il y a formation de *streamers*. Par exemple, pour l'hélium à pression atmosphérique, en utilisant les coefficients  $A$  et  $B$  de la figure 1.6 dans l'équation 1.4, on a  $\alpha d \approx 30$  pour  $d = 1$  mm et une tension de 3000 V entre les électrodes.

## 1.2 DBD en basses fréquences

### 1.2.1 Éviter le passage à l'arc : décharge filamentaire

Comme nous l'avons vu précédemment, à pression atmosphérique, c'est généralement le régime d'arc qui domine le fonctionnement des décharges générées entre deux électrodes métalliques. Afin d'éviter ce régime, il est nécessaire d'arrêter le développement de la décharge avant ou aussitôt que le *streamer* connecte les deux électrodes. Une bonne façon de procéder est en introduisant une couche de matériau diélectrique entre les deux électrodes (figure 1.8). Ceci empêche les électrons de circuler dans le circuit électrique. Qui plus est, l'accumulation des électrons à la surface du diélectrique permet la création d'un champ électrique qui réduit le champ effectif sur le gaz, prévenant ainsi le passage à l'arc. Par contre, puisque les électrons ne peuvent pas circuler, il est impossible de générer une décharge en courant continu par cette méthode; il faut donc utiliser une tension alternative. C'est ce qu'on appelle une décharge à barrière diélectrique (DBD)<sup>5</sup>.

Même si la DBD est excitée par un signal de tension alternatif de basse fréquence (où la demi-période est plus longue que l'établissement de la décharge et est donc semblable à une décharge en courant continu pendant une grande portion de la période d'oscillation), elle se distingue d'une décharge en courant continu par ce que l'on appelle l'effet mémoire. Cet effet est assez complexe et peut se manifester dans le gaz ou sur les surfaces en contact avec la décharge. Dans la configuration de la figure 1.8, il se manifeste surtout par la présence d'ions résiduels dans le gaz

---

<sup>5</sup>On peut noter qu'à partir du principe de la barrière diélectrique, plusieurs géométries sont possibles. Outre les géométries planes (un diélectrique sur une électrode, un diélectrique central et un diélectrique sur chaque électrode), il existe différents types de configurations. Par exemple, la décharge peut être engendrée par des électrodes cylindriques insérées l'une dans l'autre; c'est souvent le cas des jets de plasmas dans lesquels le gaz est soufflé le long des électrodes de manière à obtenir une décharge à l'extérieur de la zone du champ électrique appliqué [30]. D'ailleurs, la diversité des configurations de la DBD se reflète aussi dans la variété des applications dans lesquelles elle peut être utilisée. Les premières expériences à l'aide de décharges à barrière diélectrique remontent aux années 1850 pour la génération d'ozone par Siemens [31]. Depuis, elle a, entre autres, été employée comme source d'éclairage, pour la dépollution et pour la modification de surfaces [12]. Aujourd'hui, ce sont beaucoup les applications biomédicales qui sont en développement. Par exemple, il est possible d'établir une décharge entre une électrode et un tissu organique vivant à l'aide, par exemple, de la DBD à électrode flottante [32].

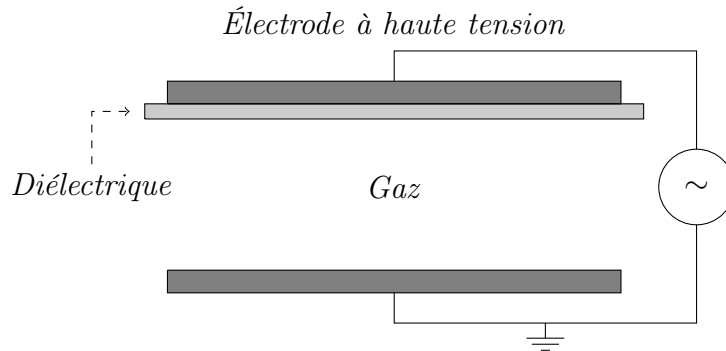


Figure 1.8 – Géométrie de la DBD plane avec un seul diélectrique solide.

et d'électrons accumulés à la surface du diélectrique. Au cours d'une demi-période, un *streamer* se propage jusqu'à l'anode et forme une microdécharge. Celle-ci cesse de se développer lorsque le champ électrique entre les électrodes est réduit par l'accumulation d'électrons ou d'ions à la surface du diélectrique, ce qui évite le passage à l'arc. Par la suite, lorsque la polarité est inversée, les charges accumulées jouent le rôle inverse, c'est-à-dire qu'elles contribuent à augmenter le champ électrique et favorisent l'établissement d'un *streamer* dans le même canal de microdécharge.

Afin de mieux comprendre le fonctionnement de la décharge à barrière diélectrique, on peut la schématiser par le circuit équivalent de la figure 1.9 [5]. Dans ce

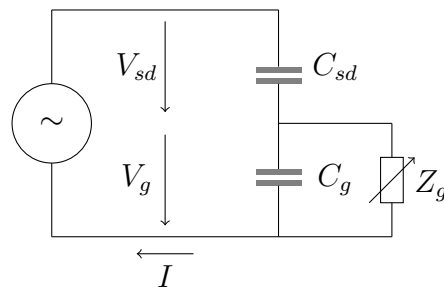


Figure 1.9 – Circuit équivalent de la décharge à barrière diélectrique. L'impédance variable  $Z_g$  est nulle en l'absence de décharge.

schéma, le diélectrique solide et le gaz neutre sont représentés par des condensateurs, de capacité  $C_{sd}$  et  $C_g$  respectivement. La décharge est représentée par une impédance variable  $Z_g$ ,  $V$  est la différence de potentiel appliquée sur les électrodes et  $I$  est le courant total circulant. Ce sont les valeurs de  $V$  et  $I$  qui peuvent être

mesurées expérimentalement. La tension appliquée à la DBD ( $V$ ) étant la somme de celles sur les diélectriques ( $V_{sd}$ ) et sur le gaz ( $V_g$ ), la capacité équivalente de la DBD est donnée par

$$C = \frac{C_{sd}C_g}{C_g + C_{sd}}.$$

Ainsi, en négligeant les capacités parasites dans le circuit, la valeur de la capacité équivalente de la DBD peut être obtenue à partir d'une mesure de la tension en fonction du courant (équation (1.1)) lorsqu'il n'y a pas de décharge ( $Z_g \rightarrow 0$ ) [33, Chapitre III].

L'évolution temporelle du courant dans le circuit et de la tension appliquée aux électrodes est tracée à la figure 1.10. On peut voir l'inversion de polarité à chaque demi-période ainsi que la présence de microdécharges qui se manifeste par l'apparition d'intenses et courtes impulsions de courant superposées au signal sinusoïdal du courant de déplacement.

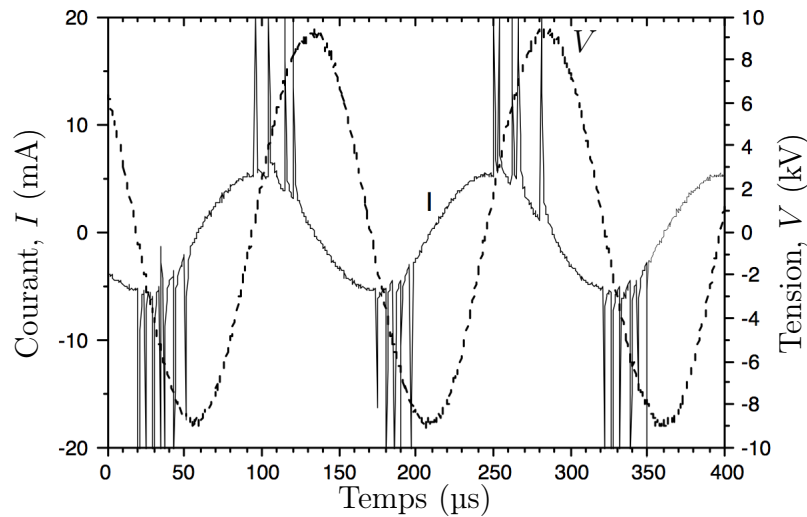


Figure 1.10 – Exemple de profil du courant dans le circuit et de la tension appliquée aux électrodes pour une DBD typique dans l'air. La décharge est en régime filamentaire. Adapté de [5].

Afin d'estimer la puissance consommée pour maintenir la décharge (un paramètre essentiel pour analyser et comparer les décharges), on peut utiliser l'intégrale

[5]

$$P = f \oint U(t) dQ, \quad (1.11)$$

où  $f$  est la fréquence de la tension appliquée et  $dQ = I(t) dt$  est l'élément de charge<sup>6</sup>. Notons que, même si l'utilisation d'un diélectrique solide entre les électrodes prévient le passage à l'arc, le fonctionnement typique d'une DBD est en régime filamentaire. Dans une telle situation, le passage à l'arc est évité, mais la décharge n'est pas homogène.

### 1.2.2 Claquage homogène

Comme nous indique le critère de claquage de Meek (1.10), le claquage homogène s'obtient en minimisant  $\alpha d$ . Ainsi, la manière la plus simple de favoriser un claquage homogène est en réduisant la distance séparant les électrodes ( $d$ ). C'est d'ailleurs pourquoi on associe souvent les décharges à pression atmosphérique aux microplasmas [1, 34] (la distance entre les électrodes est souvent plus faible que le millimètre). Toujours selon le critère de claquage de Meek, l'autre manière évidente de favoriser le claquage homogène est de minimiser le coefficient  $\alpha$ , ce qui est beaucoup moins simple à implémenter expérimentalement.

Afin de bien comprendre comment la décharge évolue vers un régime homogène, il faut donc d'abord définir ce que l'on signifie par une décharge homogène. On dit simplement d'une décharge qu'elle est homogène lorsqu'elle est dépourvue de *streamer* isolé. En vertu de cette définition, la décharge en régime d'arc n'est pas du tout homogène puisqu'elle est formée par un seul canal de *streamer*. De façon similaire, la décharge en régime filamentaire n'est pas homogène non plus. Néanmoins, en pratique, on peut obtenir une DBD homogène de différentes manières. Par exemple, en multipliant les avalanches électroniques se développant simultanément de façon à ce qu'elles interagissent avant d'avoir créé suffisamment d'ions

---

<sup>6</sup>Cette expression est équivalente à l'aire à l'intérieur du diagramme de Lissajous de la tension par rapport à la charge.



pour évoluer en *streamer*. Dans un même ordre d'idées, on peut ralentir l'ionisation de façon à ce que les ions et l'émission secondaire jouent un rôle dès l'amorçage de la décharge. Nous allons maintenant considérer ces méthodes un peu plus en détail.

### 1.2.2.1 Interaction de *streamers*

La première solution consiste donc à éviter le claquage en *streamer* isolé en faisant interagir les avalanches électroniques. On prévient ainsi, l'aspect isolé des *streamers* dans la définition de claquage homogène. En fait, lorsque plusieurs avalanches s'amorcent à proximité les unes des autres dans la région de la cathode, elles ont tendance à interagir et même à compétitionner entre elles. Par exemple, les électrons créés par photo-ionisation entre deux avalanches sont autant attirés par le champ électrique d'une avalanche que par le champ d'une autre. Ainsi, lorsque les avalanches ont une plus grande interaction entre elles, la condition de claquage de Meek (1.10) nécessite un terme de correction. La condition de claquage modifiée prenant en considération deux avalanches débutant au même moment prend la forme

$$\alpha d - \frac{R^2}{L^2} \approx cst, \quad (1.12)$$

où  $R$  est le rayon maximal de l'avalanche,  $L$  la distance entre les deux avalanches et  $cst = 20$  pour l'air à la pression atmosphérique [29, Chapitre 4]. Ainsi, la transition vers le claquage en *streamer* peut être évitée en augmentant le rayon de l'avalanche ou en diminuant la distance entre celles-ci. Cette manipulation peut être réalisée en utilisant un fort champ électrique appliqué dès le début de décharge et en maximisant les électrons germes ; possiblement en utilisant une fréquence élevée ou une tension d'excitation en forme d'onde carrée [35].

### 1.2.2.2 Modulation des coefficients de Townsend

L'autre solution afin d'éviter les *streamers* isolés consiste simplement à ne pas former de *streamers*. Cette solution passe par un contrôle du niveau d'ionisation

dans le volume du gaz. La manière d'atteindre ces objectifs est par un contrôle des coefficients de Townsend. Autrement dit, c'est par une modulation des coefficients  $\alpha$  et  $\gamma$  au cours de la décharge que les avalanches électroniques sont optimisées de manière à éviter le claquage en *streamer*.

Une façon de procéder est en diminuant le taux de croissance du courant par une réduction du premier coefficient de Townsend  $\alpha$ . On peut alors permettre un ralentissement du processus d'ionisation en favorisant l'ionisation par étape. Ce qui est le cas, par exemple, de l'ionisation Penning. Ce type d'ionisation est un procédé qui utilise les états métastables pour ralentir l'ionisation. Plutôt que d'ioniser directement le gaz (1.3), on cherche à effectuer deux étapes :



où  $M^*$  est un atome ou une molécule dans un état excité d'une durée de vie suffisamment longue pour pouvoir effectuer une collision avec A.

Une autre manière importante vise à moduler le coefficient d'émission secondaire. Ayant un fort coefficient d'émission secondaire en début de décharge, mais un faible coefficient pendant le maintien, un claquage de Townsend peut être obtenu tout en limitant le courant, évitant ainsi que le *streamer* se développe. Ce type de comportement est exactement celui qui est obtenu avec l'utilisation d'une barrière diélectrique sur chaque électrode. Dans une telle situation, en début de décharge, le coefficient  $\gamma$  est augmenté par la désorption des électrons qui ont chargé la surface de la cathode lors de la décharge précédente et, en fin de décharge (lorsque les électrons sont tous désorbés), le coefficient  $\gamma$  diminue.

### 1.2.3 DBD homogène dans les basses fréquences

Comme nous l'avons vu précédemment, lorsque l'on introduit un matériau diélectrique entre les électrodes d'une décharge en courant alternatif, il est possible d'éviter le passage à l'arc électrique. C'est la DBD. Nous avons aussi mentionné que de l'utilisation d'une barrière diélectrique sur chaque électrode pouvait permettre

la génération d'une décharge homogène grâce au contrôle de l'émission secondaire. Ici, nous allons voir qu'en utilisant une configuration où les deux électrodes sont couvertes de diélectrique solide, il est possible de générer différents régimes de décharge homogène.

Commençons par analyser le comportement électrique de la DBD homogène à deux barrières diélectriques. En supposant que la décharge possède la même surface que les électrodes, il est possible de déterminer le courant de conduction dans le gaz ainsi que la tension sur le gaz. En premier lieu, le circuit équivalent 1.9 nous permet d'obtenir la tension dans le gaz. Elle est donnée par la tension appliquée aux électrodes soustraite de la tension aux bornes des diélectriques [36, Chapitre II]

$$V_g(t) = V(t) - V_{sd}(t) \quad \text{avec} \quad V_{sd}(t) = \frac{1}{C_{sd}} \int_{t_0}^{t_0+1/f} I(t) dt + V_{sd}(t_0), \quad (1.14)$$

où l'intégrale sur le courant est effectuée sur une période de la tension appliquée,  $V_{sd}(t_0)$  est la tension due à la charge accumulée à la surface du diélectrique lors de la demi-période précédente et  $C_{sd}$  est la capacité équivalente des deux diélectriques solides. La tension appliquée, la tension aux bornes des diélectriques solides et la tension aux bornes du gaz sont illustrées à la figure 1.11.

Ensuite, on peut décrire le courant de la décharge  $I_d$  comme le courant  $I$  mesuré à la sortie de la DBD dont on soustrait le courant de déplacement dans le gaz  $I_{C_g}$  :

$$I_d(t) = I(t) - I_{C_g}(t) \quad \text{avec} \quad I_{C_g}(t) = C_g \frac{dV_g(t)}{dt}, \quad (1.15)$$

où le courant de déplacement est obtenu à partir de la tension dans le gaz calculée précédemment. Le courant de conduction dans le gaz est aussi illustré à la figure 1.11.

Selon les conditions expérimentales (nature du gaz, fréquence, tension appliquée, etc.), la DBD homogène peut se maintenir dans différents régimes de décharge. Nous allons maintenant considérer les deux régimes de fonctionnement les

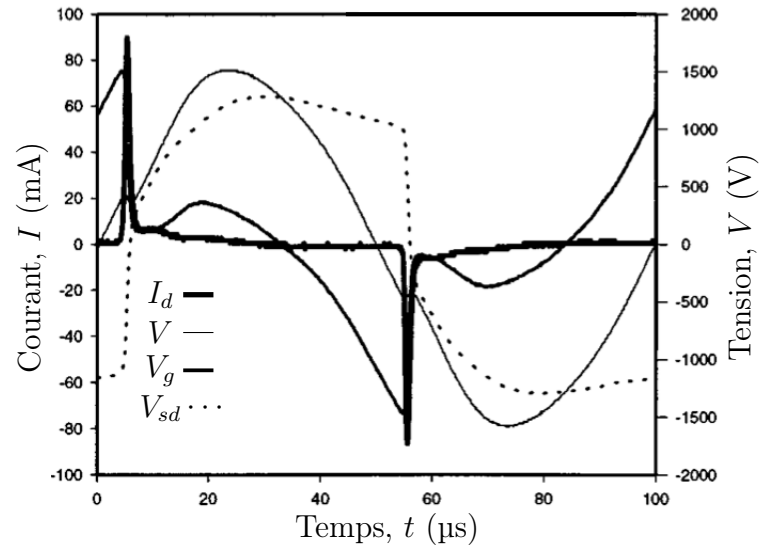


Figure 1.11 – Exemple de l'évolution temporelle des tensions et courants dans une DBD homogène dans l'hélium à pression atmosphérique. Adapté de [37].

plus communs de la DBD homogène : les régimes luminescent et Townsend. Ces deux régimes sont obtenus dans des conditions classiques de DBD, soit la DBD à géométrie plan-plan avec deux barrières diélectriques et où la source de tension appliquée est sinusoïdale.

### 1.2.3.1 DBD en régime luminescent (APGD)

Le régime luminescent est le plus commun des régimes de DBD homogène ; c'est d'ailleurs le premier à avoir été observé [38]. On dit de ce régime qu'il est luminescent par analogie avec la décharge en courant continu de la basse pression (voir section 1.1.4.3)<sup>7</sup>. On l'identifie habituellement grâce à sa distribution lumineuse (illustrée à la figure 1.12) similaire à celle de la décharge luminescente à basse pression schématisée à la figure 1.5. On remarque que puisque la longueur de la chute cathodique est grande en comparaison avec le minimum de Paschen, la décharge est plus précisément en régime luminescent sous-normal. Il est tout de même possible d'identifier la lueur négative (régions de luminosité la plus intense à proximité de

<sup>7</sup>L'abréviation APGD provient de l'anglais : *Atmospheric-pressure glow discharge* mais on retrouve aussi dans la littérature l'expression GDBD.

la cathode) ainsi, que la colonne positive.

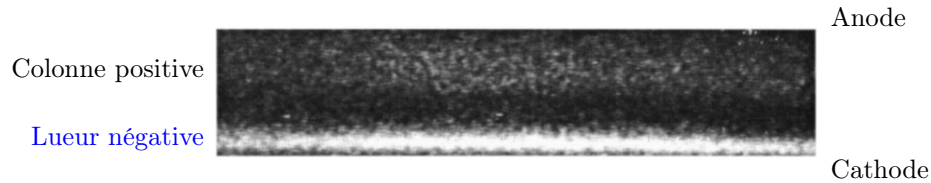


Figure 1.12 – Photographie lors du maximum de courant pendant la période d’une APGD. Le temps d’exposition est de 10 ns, le gaz plasmagène est l’hélium la distance interdiélectrique est de 5 mm. Adapté de [39].

Le comportement électrique de l’APGD est celui illustré à la figure 1.11. Il se distingue électriquement par un fort courant de décharge sur un temps court par rapport à la demi-période. Comme on peut le voir à la figure 1.11, la tension dans le gaz chute ( $V_g$ ) rapidement lorsque le courant de décharge ( $I_d$ ) devient important. Cette chute de tension est due à l’accumulation de charge sur la surface du diélectrique, elle a pour effet de ralentir le développement des avalanches électronique et donc de maintenir une décharge homogène. On peut remarquer que le courant de décharge est approximativement nul pendant la plus grande partie de la période d’oscillation. Par ailleurs, la tension résiduelle sur les diélectriques solides est importante jusqu’à la demi-période suivante, ce qui permet une augmentation de l’émission secondaire en début de demi-période et facilite donc l’établissement d’une décharge homogène en multipliant les électrons germes.

Outre la présence d’électrons adsorbés à la surface des diélectriques, l’effet mémoire de l’APGD est généralement associé aux ions piégés dans la colonne positive qui peuvent être encore présents lors de l’amorçage de la décharge suivante [13]. Ces ions résiduels sont alors rapidement accélérés vers l’électrode récemment devenue la cathode et permettent de libérer les électrons adsorbés à la surface du diélectrique. Bref, l’APGD est généralement obtenue pour des fréquences d’excitation de quelques dizaines de kilohertz dans les gaz rares. Certains paramètres de cette décharge sont comparés avec d’autres décharges homogènes au tableau 1.I.

### 1.2.3.2 Décharge de Townsend

La décharge en régime de Townsend (APTD)<sup>8</sup> est typiquement obtenu pour une fréquence d'excitation inférieure à 10 kHz dans les gaz moléculaires (souvent  $N_2$ ). Elle se distingue visuellement du régime APGD par sa luminosité maximum du côté de l'anode (figure 1.13). Électriquement, l'APTD est aussi très différente de l'APGD. Par exemple, dans le cas d'une décharge en d'azote (figure 1.13), on peut voir la tension dans le gaz ( $V_g$ ) se stabiliser à une valeur d'environ 4 kV (pour un espace interdiélectrique de 1 mm). En fait, si l'on compare le comportement électrique de l'APTD avec la décharge en courant continu à basse pression (figure 1.4) on s'aperçoit que la tension sur le gaz se stabilise sur le plateau de Townsend. Ainsi, dans une APTD, on peut considérer le champ électrique comme à peu près constant le long de la décharge, c'est donc qu'il n'y a pas de formation d'une charge d'espace significative.

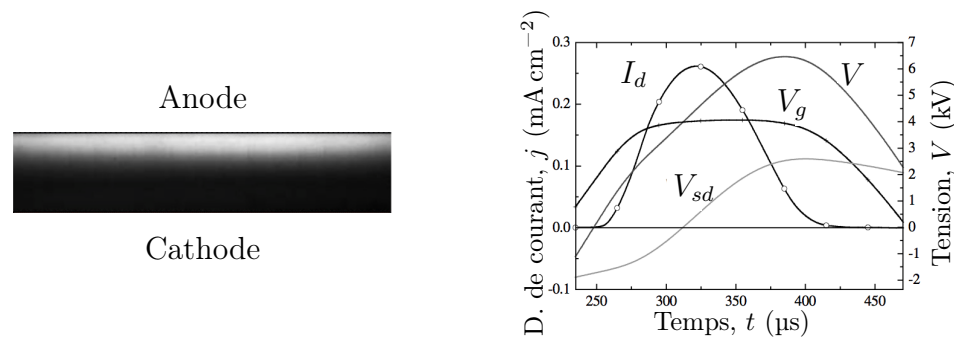


Figure 1.13 – Comportement électrique et optique d'une APTD dans l'azote (espace interdiélectrique de 1 mm). À gauche : photographie (exposition de 10 ns) pendant la montée du courant de décharge. À droite : évolution du courant de décharge et de la tension au gaz. Adapté de [39].

L'APTD est une décharge homogène. Encore ici, les électrons adsorbés à la surface du diélectrique jouent un rôle fondamental dans le rallumage de la décharge à chaque demi-période ; l'émission secondaire est très importante en début de demi-période. Par contre, contrairement à l'APGD pour laquelle les ions piégés dans le

<sup>8</sup>L'abréviation APTD vient de l'anglais : *Atmospheric-pressure Townsend discharge* mais on utilise parfois aussi TDBD dans la littérature.

gaz fournissent les impacts nécessaires sur le diélectrique pour produire l'émission secondaire, la densité des ions est trop faible pour contribuer significativement à l'émission secondaire dans une APTD. Il faut donc une autre source d'espèces énergétiques pour jouer ce rôle. Dans l'azote, les molécules dans un état métastable créé près de l'anode diffusent indépendamment du champ électrique appliqué. Ainsi, une fraction importante peut entrer en contact avec le diélectrique qui contient des électrons adsorbés, et donc transférer leur énergie pour éjecter les électrons dès que la tension appliquée est inversée. Ces électrons sont alors les électrons germes des nouvelles avalanches électroniques [40, Chapitre 2].

### 1.3 DBD en hautes fréquences et décharge capacitive

Maintenant que nous avons considéré les principaux régimes de décharge homogènes des DBD en basses fréquences, nous allons nous intéresser à ce qu'il advient lorsque la fréquence d'excitation est plutôt dans la gamme des hautes fréquences (HF). Le fonctionnement des décharges en HF est fondamentalement différent de celles en BF, et ce sur bien des aspects. Par ailleurs, l'une des distinctions majeures entre les deux gammes de fréquences sinon la plus grande distinction est la continuité temporelle de la décharge. Plus précisément le claquage. En BF, le claquage survient à chaque demi-période de la fréquence d'excitation. Il est alors primordial de s'assurer que le claquage soit homogène et d'éviter les *streamers* isolés. Par contre en HF, le claquage devient un évènement plutôt anecdotique puisqu'il ne survient qu'une seule fois. Il s'agit donc surtout de maintenir la décharge de manière homogène. En fait, même à la pression atmosphérique, lorsqu'une tension de haute fréquence est appliquée entre des électrodes métalliques (sans aucune barrière diélectrique) il est possible de maintenir une décharge homogène, ce qui est généralement appelé une décharge capacitive. De manière analogue à l'étude que nous avons réalisée à propos des décharges homogènes en basses fréquences, nous allons d'abord discuter de quelques principes fondamentaux des décharges capacitatives à basse pression pour ensuite discuter des régimes de décharge homogène qu'il

est possible d'obtenir à la pression atmosphérique.

### 1.3.1 Décharge capacitive à pression réduite

Les décharges capacitatives sont souvent qualifiées de décharges radiofréquences (RF) du fait que la gamme de fréquences de fonctionnements se trouve dans la plage des radiofréquences du spectre électromagnétique. De manière inclusive le spectre RF contient les fréquences de 3 kHz à 300 GHz [41]. En physique des plasmas, on caractérise une décharge comme RF lorsque, d'une part, les ions ne réagissent pas au champ oscillant instantané, mais seulement au champ moyen tandis que, d'autre part, les électrons sont suffisamment mobiles pour répondre au champ instantané. Un critère formel peut être donné sous la forme<sup>9</sup>

$$f_{pi} < f < f_{pe}, \quad (1.16)$$

avec  $f_{pi}$ , la fréquence plasma des ions et  $f_{pe}$ , la fréquence plasma des électrons. Autrement dit, la fréquence de l'onde d'excitation ( $f$ ) est supérieure à la fréquence plasma des ions, mais inférieure à la fréquence plasma des électrons [42]. Cette situation revient souvent à travailler sous l'hypothèse d'une décharge pour laquelle les électrons se déplacent dans un fond continu d'ions. Ainsi, le domaine de fréquence concerné se réduit environ à la plage de 0.3 à 300 MHz qui couvrent les moyennes fréquences (0.3 - 3 MHz), les hautes fréquences (3 - 30 MHz) et les très hautes fréquences (30 - 300 MHz) selon le vocabulaire des télécommunications [43].

Même lorsque le critère 1.16 est respecté et que la décharge se situe dans les conditions RF, le problème demeure trop complexe pour qu'une théorie générale explique le fonctionnement de la décharge. En fait, selon le régime de pression, la géométrie et la fréquence, différents régimes de décharge peuvent s'établir. Ceux-ci sont fortement liés à la manière dont le transfert de l'énergie du champ électromagnétique au plasma est effectué. Afin d'obtenir un portrait le plus global possible, considérerons la figure 1.1, mais cette fois-ci avec un plasma déjà allumé et la

---

<sup>9</sup>La fréquence plasma sera discutée plus en détail à la section 1.4.



condition (1.16) respecté. Le fonctionnement de la décharge capacitive est le suivant. Selon la tension appliquée, la zone de neutralité macroscopique oscille d'une électrode à l'autre (du fait du déplacement des électrons) en laissant une gaine ionique du côté de la cathode [44, 45]. Comme l'indique la figure 1.14, le champ électrique est très intense dans la gaine ionique dû à la forte densité d'ions [46]. Afin que la conservation du courant soit respectée et puisque les ions ne répondent pas au champ instantané, le courant dans la gaine doit être largement capacitif.

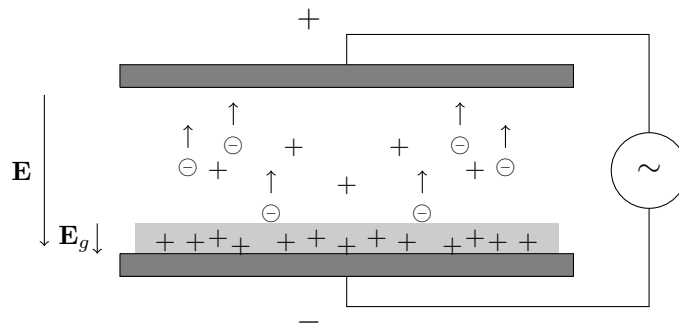


Figure 1.14 – Schématisation d'une décharge capacitive. Représentation instantanée lors du maximum de tension appliquée. La gaine ionique est illustrée en gris et le champ électrique de la gaine est  $\mathbf{E}_g$ .

Dans la situation de la figure 1.14, le transfert d'énergie vers le plasma peut se produire à différents endroits dans la décharge et de différentes manières :

1. dans le volume du plasma, par l'intermédiaire des collisions ; c'est le chauffage ohmique qui est majoritairement produit par les collisions électron-neutre [47],
2. de l'interface gaz-solide, par les collisions de particules énergétiques sur la paroi ; c'est l'émission secondaire qui est majoritairement due aux impacts ioniques [48, 49],
3. à l'interface entre le plasma et la gaine, par les électrons qui sont fortement accélérés dans le champ électrique oscillant ; c'est le chauffage stochastique [44, 50–52].

Dans différentes conditions, certains mécanismes sont prédominants sur les autres, de multiples régimes de décharge peuvent donc être établis. Même dans la configuration plan-plan à basse pression, les régimes de décharge deviennent rapidement complexe. Certains phénomènes sont d'ailleurs très différents de ceux observés à la pression atmosphérique. Nous allons donc considérer directement les régimes de décharge à la pression atmosphérique.

### 1.3.2 Décharge capacitive homogène à la pression atmosphérique

À la pression atmosphérique, les décharges homogènes en hautes fréquences ont d'abord été développées sous la forme de jets de plasma [53, 54]. Dans ce cas, la géométrie des électrodes est souvent cylindrique et le flux de gaz employé est élevé. Par la suite, les décharges capacitatives homogènes à la pression atmosphérique ont été rapidement développées et étudiées autant expérimentalement [14] que numériquement [55]. Selon les conditions expérimentales, différents régimes de décharge peuvent être générés. Ce sont les régimes  $\alpha$ ,  $\gamma$  et  $\Omega$  qui sont habituellement obtenus dans une plage de fréquence allant du mégahertz à quelques dizaines de mégahertz.

Il est à noter qu'il est aussi possible de générer des décharges dans une configuration plan-plan à des fréquences de quelques centaines de mégahertz [56, 57]. Par contre, ce type de décharge tend très rapidement vers l'équilibre thermique. Bien que des applications de dépôts de couches minces soient effectuées avec ce type de décharge, à des fins de refroidissement, l'utilisation d'une électrode cylindrique rotative est souvent privilégiée afin d'éviter que la même zone de l'électrode soit en constamment contact avec le plasma [58, 59]. Par ailleurs, ce type de décharge a été développé dans le contexte d'usinage par plasma, où il est nécessaire d'avoir un plasma thermique [60].

### 1.3.2.1 Régime $\alpha$

Le régime  $\alpha$  est sans doute le régime le plus commun des décharges capacitives ; expérimentalement, c'est le régime de fonctionnement normal<sup>10</sup>. En fait, c'est celui que l'on observe naturellement lorsqu'une tension sinusoïdale suffisamment élevée est appliquée entre deux électrodes (très souvent avec une fréquence de 13,56 MHz). En fait, puisque c'est le premier régime à avoir été observé à la pression atmosphérique, on en parle souvent de manière implicite [61–64].

Tout comme les régimes de décharge APTD et APGD de la basse fréquence, nous allons considérer brièvement certaines caractéristiques optiques et électriques de la décharge capacitive en régime  $\alpha$ . La distribution lumineuse dans l'espace gazeux en fonction du temps est illustrée à la figure 1.15. Pendant une demi-période d'oscillation (36,9 ns), la distribution spatiale de l'émission lumineuse est caractérisée par une intensité élevée dans la région de la gaine. En fait, on peut voir qu'à l'instant où l'intensité est maximum, autant du côté de l'anode que du côté de la cathode, il y a un pic d'intensité. Ainsi, le profil de l'émission lumineuse est maximum près des bordures du gaz, mais avec une diminution vers les parois tout comme vers le volume de la décharge. Ce comportement est typique du régime  $\alpha$  [61, 65, 66].

Pour ce qui est du comportement électrique de la décharge, on remarque que celui-ci est beaucoup moins élaboré que celui des décharges en basses fréquences. En fait, autant la tension mesurée que le courant mesuré ont une évolution quasi sinusoïdale. On peut tout de même remarquer que le comportement lisse des signaux est cohérent avec le caractère continu de la décharge. Qui plus est, le déphasage entre le courant et la tension est typique d'un système à comportement fortement capacitif.

---

<sup>10</sup>Notons qu'il ne faut pas confondre le régime  $\alpha$  de la décharge capacitive à la pression atmosphérique avec le régime  $\alpha$  à pression réduite. À la pression atmosphérique, seul le chauffage ohmique est important tandis qu'à pression réduite, le chauffage stochastique domine dans le régime  $\alpha$ .

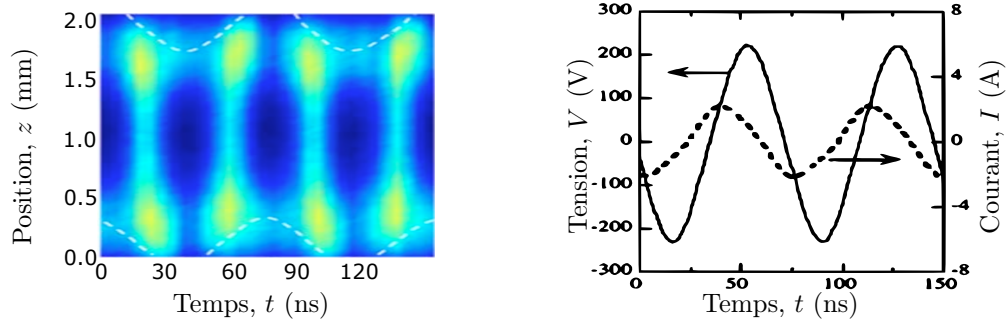


Figure 1.15 – Comportement électrique et optique du régime  $\alpha$  dans l’hélium à 13,56 MHz. À gauche : distribution lumineuse dans l’espace gazeux de 2 mm et un courant de 31 mA (adapté de [67]). À droite : courant et tension pour un espace gazeux de 1,6 mm et pour une densité de puissance de  $7,8 \text{ W cm}^{-3}$  (adapté de [61]).

### 1.3.2.2 Régime $\gamma$

De manière analogue au second coefficient de Townsend, le fonctionnement du régime  $\gamma$  est basé sur les électrons secondaires émis à partir de collisions à l’interface gaz-solide. Il est habituellement obtenu expérimentalement par l’augmentation de la tension appliquée à partir du régime  $\alpha$ . Un exemple de la distribution lumineuse dans l’espace gazeux en fonction du temps est illustré à la figure 1.16. Pendant une demi-période d’oscillation (36,9 ns), la distribution spatiale de la luminosité est caractérisée par un maximum d’intensité dans la gaine, qui est d’ailleurs beaucoup plus étroite qu’en régime  $\alpha$  (la zone entre les pointillés et les bords d’image dans la figure 1.15).

D’un point de vue électrique, le courant et la tension sont encore une fois quasi sinusoïdaux. Par contre, le courant peut-être légèrement déformé par une forte contribution du courant électronique pendant l’intervalle durant lequel l’émission secondaire survient [68].

Finalement, on note que la transition entre les régimes  $\alpha$  et  $\gamma$  a été beaucoup étudiée. Celle-ci est habituellement accompagnée d’une contraction de la décharge [65, 69, 70]. Il a d’ailleurs été montré que, contrairement au régime  $\alpha$ , la barrière diélectrique peut s’avérer très utile dans le régime  $\gamma$  puisqu’elle permet de diminuer la contraction de la décharge lors de la transition  $\alpha - \gamma$ .

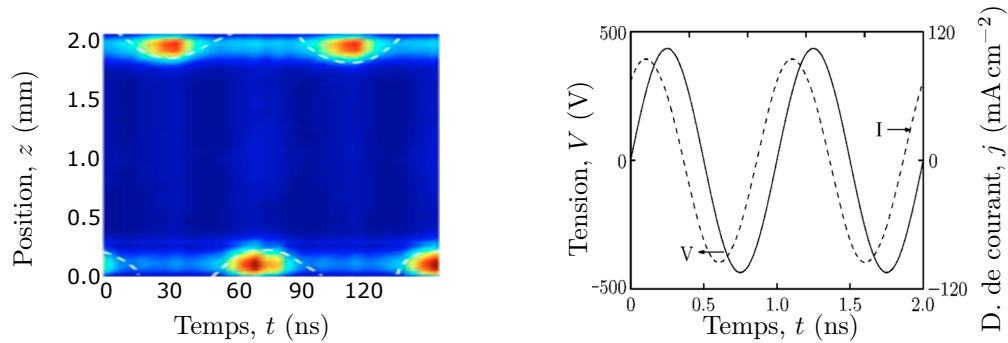


Figure 1.16 – Comportement électrique et optique du régime *gamma* dans l’hélium à 13,56 MHz. À gauche : distribution lumineuse dans l’espace gazeux de 2 mm et un courant de 65 mA (adapté de [67]). À droite : courant et tension théorique pour un espace gazeux de 2 mm et une tension appliquée de 436 V (adapté de [68]).

### 1.3.2.3 Régime $\Omega$

À la pression atmosphérique, les collisions sont nombreuses et le mécanisme de chauffage dominant est habituellement le chauffage ohmique. D’un point de vue fondamental, autant pour le régime  $\alpha$  que le régime  $\gamma$ , l’énergie est transférée à la décharge par l’entremise de collisions. En fait, la différence entre les régimes émane plutôt des déformations du champ électrique dues à la charge d’espace. Dans le cas des régimes  $\alpha$  et  $\gamma$ , le champ électrique est perturbé par la charge d’espace, ce qui affecte donc les régions où l’ionisation et l’excitation sont les plus importantes. Dans le régime  $\gamma$  l’émission secondaire s’ajoute à cette perturbation du champ électrique appliqué, ce qui donne lieu à un régime distinct. Le troisième régime considéré est, en fait, le plus simple puisqu’il est purement caractérisé par le chauffage ohmique sans perturbation majeure de la charge d’espace. De telle sorte, le champ électrique est pratiquement uniforme et donne lieu à une ionisation et une excitation dominant dans le volume (au centre) de la décharge [71, 72]. En l’absence de résultats expérimentaux dans la littérature, la figure 1.17 illustre le taux d’ionisation théorique en fonction de la position le long de l’espace gazeux et du temps pendant une période d’excitation. Dans le cas d’une décharge d’hélium à la pression atmosphérique, le taux d’ionisation donne une bonne approximation

du taux d'excitation, ce qui nous permet de comparer les simulations de la figure 1.17 avec la distribution lumineuse expérimentale des autres régimes de décharge. Ainsi, on peut voir que le comportement est fortement concentré en volume selon l'oscillation de la tension appliquée, ce qui est complètement différent de ce que l'on observe en régime  $\alpha$  ou  $\gamma$ .

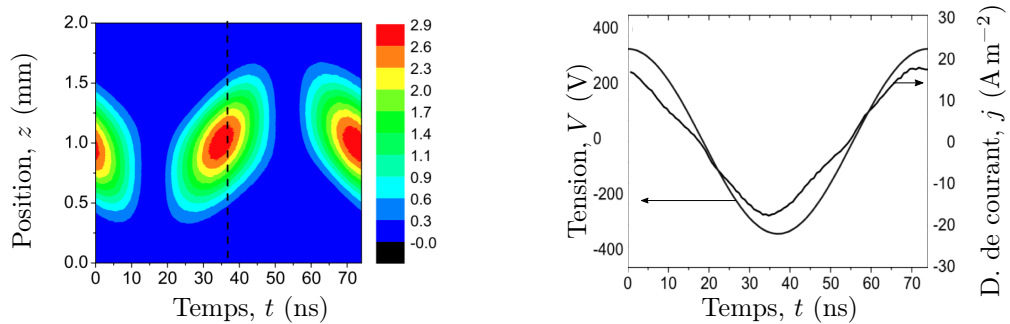


Figure 1.17 – Comportement électrique du régime  $\Omega$  dans l'hélium à 13,56 MHz avec un espace gazeux de 2 mm et une tension appliquée de 300 V. À gauche : taux d'ionisation théorique ( $10^{21} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$ ). À droite : densité de courant de décharge et tension théoriques. Adapté de [71].

Dans de telles conditions, la densité des électrons et des ions est beaucoup plus faible que dans les régimes précédents. La décharge a donc un comportement beaucoup plus résistif. Par ailleurs, d'un point de vue électrique, le courant et la tension sont encore une fois quasi sinusoïdaux [71]. Toutefois, on note que seul le courant de conduction est modélisé dans la figure 1.17, ce qui provoque un déphasage beaucoup plus faible que pour les résultats expérimentaux présentés aux figures 1.15 et 1.16.

### 1.3.3 Comparaison entre les régimes homogènes à la pression atmosphérique

À la lumière des récentes études sur l'effet des barrières diélectriques dans les décharges capacitatives [15, 73–76], il a été montré que la présence de la barrière diélectrique n'influence pas le comportement physique de la décharge. L'impact se répercute sur le coefficient d'émission secondaire qui n'intervient que dans le

régime  $\gamma$ . En conséquence, la présence des diélectriques solides sur le régime  $\gamma$  est désirable puisqu'elle permet de maintenir une décharge de plus grand volume sans pour autant affecter les mécanismes de fonctionnement du régime. Bref, nous allons comparer les DBD avec les décharges capacitives sans égard à la présence de barrière diélectrique dans les décharges capacitives.

Afin de pouvoir mieux comparer les différents régimes de décharge homogènes connus dans la configuration de la DBD, le tableau 1.I indique des valeurs typiques de différents paramètres plasma. Ces valeurs sont obtenues de la littérature pour une décharge homogène d'hélium à la pression atmosphérique dans la géométrie plan-plan avec une espace gazeuse entre 1 et 3 mm. Certaines valeurs proviennent de simulations alors que d'autres proviennent de mesures expérimentales.

	APTD (N <sub>2</sub> )	APGD (He)	$\Omega$ (He)	$\alpha$ (He)	$\gamma$ (He)
$n_e$ (m <sup>-3</sup> )	10 <sup>13</sup>	10 <sup>17</sup>	10 <sup>15</sup>	10 <sup>17</sup>	10 <sup>18</sup>
$n_m$ (m <sup>-3</sup> )	10 <sup>19</sup>	10 <sup>17</sup>	X	10 <sup>16</sup>	10 <sup>17</sup>
$T_e$ (zone 1) (eV)	4	3-4	X	6	4
$T_e$ (zone 2) (eV)	-	0.2	X	1	2
Référence	[39]	[37, 77, 78]	[71]	[65]	[65, 68]

Tableau 1.I – Valeurs typiques de certains paramètres plasma pour les différents régimes de décharge. Les X symbolisent les informations non disponibles. Seules les valeurs de la APTD ne sont pas pour l'hélium, mais plutôt pour une décharge dans l'azote. La zone 1 est la zone où a majoritairement lieu l'ionisation tandis que la zone 2 est la zone de quasi-neutralité.

Les valeurs des paramètres plasma du tableau 1.I illustrent bien la grande diversité des décharges homogènes dans l'hélium à la pression atmosphérique. Pendant que la densité intégrée des atomes dans un état métastable tend à décroître lors du passage des BF aux HF, la densité électronique croît de plusieurs ordres de grandeur. Quant à la température électronique, celle-ci dépend très fortement du régime de décharge. Notons que dans le cas de l'APTD, les valeurs indiquées sont pour une décharge d'azote puisque la décharge d'hélium donne plutôt lieu à une APGD. En fait, selon la courbe caractéristique 1.4, on peut s'attendre à ce l'APGD transite par une APTD pendant l'allumage. Dans une telle situation, les résultats

de simulation montrent que la densité électronique est d'environ  $10^{14} \text{ m}^{-3}$  [79, 80] pendant le début du pic de courant de décharge. Durant la même période, la température électronique peut atteindre une valeur d'environ 1,4 eV, ce qui est en bon accord avec le comportement d'une APTD.

## 1.4 L'hélium comme gaz plasmagène

La plupart des considérations théoriques précédentes sont indépendantes de la composition précise du gaz utilisé dans la décharge. En contrepartie, afin d'étudier précisément les phénomènes collisionnels et radiatifs, il est nécessaire de considérer la nature du gaz. Ainsi, nous allons maintenant introduire quelques particularités des décharges d'hélium à la pression atmosphérique en plus de certaines notions concernant la structure atomique de l'hélium.

### 1.4.1 Plasma d'hélium à la pression atmosphérique

L'hélium est le deuxième élément le plus léger après l'hydrogène, ce qui en fait un atome relativement simple à étudier et, par le fait même, assez bien compris. À la pression atmosphérique ( $\sim 100 \text{ kPa}$ ) et à la température ambiante ( $\sim 300 \text{ K}$ ), on peut considérer l'hélium comme un gaz parfait [81], et simplement calculer la densité des atomes dans le gaz comme

$$p = nkT \quad \Rightarrow \quad n = \frac{p}{kT} = 2,4 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}. \quad (1.17)$$

Toujours en considérant l'hélium comme un gaz parfait à la pression atmosphérique, on peut calculer le libre parcours moyen des atomes d'hélium comme [82]

$$\ell = \frac{1}{\sqrt{2}\pi nd^2} \approx 120 \text{ nm}, \quad (1.18)$$

où  $d = 280 \text{ pm}$  est le diamètre de l'atome d'hélium (deux fois le rayon de van der Waals). Cette distance est très courte, en comparaison aux  $\sim 100 \mu\text{m}$  de l'hélium dans un vide primaire ( $\sim 1 \text{ Pa}$ ). Comme nous l'avons vu dans les sections



précédentes, cette forte collisionnalité a un impact important sur le développement de la décharge. Par ailleurs, ce taux de collision élevé a aussi un impact important sur le maintien de la décharge. Nous allons donc calculer certains paramètres fondamentaux des plasmas à la pression atmosphérique.

Considérons un plasma d'hélium à la pression atmosphérique et hors équilibre. Selon le tableau 1.I, il est raisonnable de poser une densité et une température électronique de  $10^{17} \text{ m}^{-3}$  et 1 eV respectivement<sup>11</sup>. La distance maximale de non-neutralité électrique, la longueur de Debye des électrons, peut alors prendre la valeur de [83]

$$\lambda_{D_e} = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k T_e}{e^2 n_e}} \approx 7 \mu\text{m}. \quad (1.19)$$

On peut remarquer que dans ces conditions, il ne peut y avoir de plasma si la densité électronique descend sous le  $10^{14} \text{ m}^{-3}$  puisque la longueur de Debye électronique serait du même ordre de grandeur que la longueur de la décharge ( $\sim 1 \text{ mm}$ ).

Une autre valeur fondamentale à prendre en compte est le libre parcours moyen des électrons dans la décharge d'hélium à pression atmosphérique. Celle-ci peut être estimée à partir de la section efficace microscopique de collision électron-neutre [83]. Toujours en supposant une température électronique de 1 eV, on obtient

$$\langle \ell \rangle = \left\langle \frac{w}{\nu} \right\rangle = \left\langle \frac{w}{n_{He} \hat{\sigma} w} \right\rangle \approx 0,8 \mu\text{m}, \quad (1.20)$$

où  $\hat{\sigma} = 5,5 \times 10^{-20} \text{ m}^2$  [83, Chapitre 1.7] est la section efficace microscopique,  $n_{He} = 2,4 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$  est la densité des centres diffuseurs précédemment calculée et

$$\langle w \rangle = \sqrt{\frac{8k_b T_e}{\pi m_e}} \approx 6,7 \times 10^5 \text{ m s}^{-1} \quad (1.21)$$

est la vitesse moyenne des électrons dans le plasma. Le libre parcours moyen des

---

<sup>11</sup>Notons que dans tous les cas où nous posons une température électronique, nous faisons l'hypothèse que les électrons respectent une fonction de distribution en énergie de Maxwell-Boltzman, ce qui n'est habituellement pas le cas pour l'entièreté de la fonction de distribution.

électrons dans le plasma nous indique que sur une distance de l'ordre du millimètre, un électron subit environ 1000 collisions. Le faible libre parcours moyen des électrons ainsi que celui des atomes neutres illustre l'une des particularités fondamentales des plasmas à la pression atmosphérique : la localité. À la pression atmosphérique, les effets surviennent habituellement localement à proximité de leur cause. Par exemple, lorsqu'une région de l'espace contient un fort champ électrique, les électrons qui y sont accélérés effectuent des collisions à proximité de cette zone de fort champ. Conséquemment, l'ionisation et l'excitation se produisent aussi dans la même région. Dans le cas de l'excitation, puisque les atomes neutres ont aussi un très faible libre parcours moyen, ceux-ci sont désexcités localement par collision (pour un atome dans un état métastable, par exemple) s'ils ne se sont pas déjà désexcités radiativement.

Finalement, la fréquence plasma est aussi un paramètre important à calculer. Comme qu'indiqué à la section 1.3, ce paramètre permet de nous situer dans la zone de fonctionnement d'une décharge capacitive. La fréquence plasma des électrons est donnée par [83]

$$f_{pe} = \frac{1}{2\pi} \left( \frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0} \right)^{1/2} \quad (1.22)$$

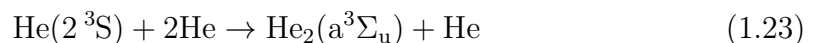
pour l'électron. Une définition similaire existe pour les ions. Dans un plasma d'hélium où l'ion  $\text{He}_2^+$  est dominant, on trouve que  $f_{pi}$  augmente de 2,4 à 24 MHz lorsque la densité augmente de  $10^{15}$  à  $10^{17} \text{ m}^{-3}$ . Sur cette même plage de densité,  $f_{pe}$  est toujours supérieur à 100 MHz. On peut donc constater que la décharge capacitive à 13,56 MHz est habituellement près de la limite inférieure du critère 1.16.

#### 1.4.2 Structure atomique de l'hélium

Bien que l'hélium constitue un gaz monoatomique simple à étudier de sa nature de gaz parfait, la structure atomique de l'atome d'hélium comporte plusieurs particularités qui jouent des rôles clés lorsque le gaz forme un plasma. D'abord, l'énergie d'ionisation de l'hélium neutre (24,6 eV) est la plus élevée des éléments du

tableau périodique. Ainsi, dans un plasma d'une température électronique d'environ 1 eV, seuls les électrons de la queue de la distribution en énergie possèdent une énergie suffisante pour ioniser un atome d'hélium par collision directe à partir de son état fondamental. Dans une telle situation, l'ionisation passe souvent par un processus par étape nécessitant des atomes ou molécules dans un niveau d'intermédiaire. Dans un plasma d'hélium pur, ce sont les atomes dans un état métastable qui jouent souvent ce rôle.

Un diagramme des états excités de l'hélium est donné à la figure 1.18. Ce dernier illustre qu'il existe deux états métastables pour l'atome d'hélium. Dans la notation de couplage LS (utilisé pour les atomes d'hélium et les ions héliumoïdes) ces états métastables sont désignés par  $2^1S$  et  $2^3S$  et sont respectivement à 20,6 eV et 19,8 eV du niveau fondamental. En fait, le seul état inférieur à  $2^1S$  et  $2^3S$  est l'état fondamental  $1^1S$ . Ainsi, la règle de Laporte, dictant que le moment cinétique orbital doit varier de  $\pm 1$  lors d'une transition, interdit une transition de  $2^1S$  ou  $2^3S$  vers  $1^1S$  où le moment cinétique orbitale ne varie pas ( $S \rightarrow S$ ). Puisque la radiation spontanée d'un atome dans un état métastable est interdite, la durée de vie de ces états est souvent déterminée par les collisions avec d'autres atomes ou les parois de la décharge. En comparaison avec les états radiatifs qui ont une durée de vie de quelques dizaines de nanosecondes, les atomes dans un état métastable peuvent contribuer significativement, entre autres, à l'ionisation par étape dans un plasma d'hélium à la pression atmosphérique [21, 86]. Ainsi, la limite supérieure de la durée de vie des états métastable est habituellement contrôlée par l'importante présence d'atomes neutres. En particulier, si l'on considère seulement les collisions à trois corps (un atome métastable avec deux atomes dans leur niveau fondamental) ainsi que la réaction [21]



avec un taux de réaction  $k = 1,9 \times 10^{-46} \text{ m}^6 \text{ s}^{-1}$  on peut estimer la durée de vie maximale des états métastables à environ 10  $\mu\text{s}$ , et ce indépendamment de la densité

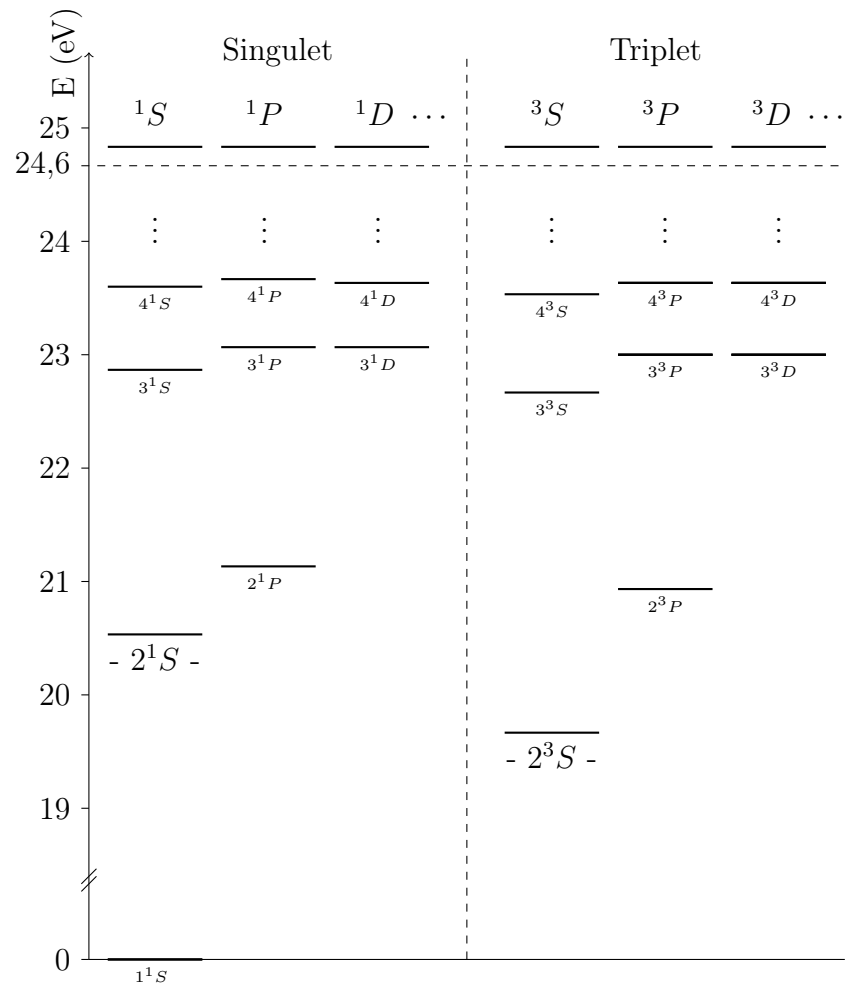


Figure 1.18 – Diagramme des états excités de l'hélium. Adapté de [21, 84, 85].

des ions et des électrons dans la décharge.

## CHAPITRE 2

### DÉCHARGE À BARRIÈRE DIÉLECTRIQUE EN MOYENNES FRÉQUENCES

#### 2.1 Présentation de l'article 1

Au chapitre précédent, le fonctionnement des décharges à barrière diélectrique a été introduit dans les cas où la fréquence d'excitation se situe dans la gamme des basses fréquences ou des hautes fréquences. Nous allons maintenant nous attarder au cas où la fréquence se trouve sur une plage particulière des fréquences intermédiaires, c'est-à-dire de 1 à 2,7 MHz. Ainsi, l'article qui suit présente pour la première fois le fonctionnement d'une DBD dans l'hélium à la pression atmosphérique excitée à l'aide d'une onde dans les moyennes fréquences. Nous y verrons que dans la situation où la fréquence d'excitation se situe entre 1 et 2,7 MHz, la décharge possède deux comportements distincts selon la tension appliquée. Lorsque la tension appliquée est faible, le régime  $\Omega$  est obtenu. En contrepartie, lorsque la tension appliquée est élevée, le régime obtenu est différent de tous les régimes présentés dans la littérature.

Ce travail est d'une importance considérable puisqu'il permet à la fois de comprendre le fonctionnement d'une DBD d'hélium dans de nouvelles conditions, mais aussi de proposer une approche novatrice pour les applications industrielles. En effet, utiliser une fréquence d'excitation dans la plage des moyennes fréquences permet de générer deux régimes de décharge dans les mêmes conditions expérimentales (la tension appliquée étant le seul paramètre de contrôle). Ainsi, la densité de puissance peut être contrôlée sur environ deux ordres de grandeur.

La suite de ce chapitre est donc constituée entièrement de l'article intitulé : *Transitions Between Various Diffuse Discharge Modes in Atmospheric-Pressure Helium in the Medium-Frequency Range* [87]. Cet article a été publié dans *Journal of Physics D : Applied Physics*. Les manipulations expérimentales ont été conduites

sur un réacteur DBD situé au laboratoire PROMES-CNRS à Perpignan en France. Ainsi, j'ai effectué toutes les mesures expérimentales lors de mes séjours en France. Par la suite, j'ai analysé les données et procédé à l'interprétation des résultats qui ont mené à l'article. J'ai finalement rédigé une version préliminaire de l'article qui fut ensuite amélioré sous la supervision de Joëlle Margot et Françoise Massines.

Il est à noter que, puisque le format de l'article est en deux colonnes, certaines figures ont été reformatées, facilitant ainsi la lecture. Par ailleurs, les références ont été retirées, évitant ainsi les redondances entre les différents articles. La liste complète des références est donc à la fin de la thèse.

## 2.2 Transitions Between Various Diffuse Discharge Modes in Atmospheric-Pressure Helium in the Medium-Frequency Range

Jean-Sébastien Boisvert<sup>1,2</sup>, Joëlle Margot<sup>1</sup> and Françoise Massines<sup>2</sup>

<sup>1</sup> *Département de physique, Université de Montréal, 2900 Blvd Édouard-Montpetit, H3T 1J4, Montréal (Qc), Canada*

<sup>2</sup> *Laboratoire PROMES-CNRS, Rambla de la Thermodynamique, 66100, Perpignan, France*

**Abstract.** In this paper, we investigate DBDs in the medium frequency range (MF, 0.3-3 MHz). More precisely, for a 2 mm inter-dielectric gap in helium at atmospheric pressure, the frequency is varied from 1.0 to 2.7 MHz. The generated discharge shows similarities with both the low-frequency atmospheric-pressure glow discharge (APGD) and the atmospheric pressure capacitively coupled radio-frequency (CCRF) discharge. In the frequency range under investigation, two diffuse discharge modes can be observed depending on the voltage applied between the electrodes. At low applied voltage, the discharge emissions are barely visible and are concentrated in the center of the gas gap similarly to CCRF discharges in the  $\Omega$  mode where the electron density is concentrated in the bulk. Ohmic heating is the main power transfer mechanism. At higher applied voltage, the discharge emissions are 10 times more intense and are closer to the dielectric surfaces similarly to the more common radio-frequency  $\alpha$  mode. These two discharge modes can be observed in the same experimental conditions with the amplitude of the applied voltage as sole control parameter. The gas temperature obtained from  $N_2$  impurities rotational spectrum increases from room temperature to about 500 K while the power density rises from  $10^{-1}$  to  $10^1$   $W\ cm^{-3}$  when the applied voltage is increased. In addition, when the discharge transits back and forth from the  $\Omega$  to the  $\alpha$  mode, a hysteresis is observed. The transition from the  $\Omega$  to the  $\alpha$  mode occurs abruptly with a large RMS current increase while the transition from the  $\alpha$  to the  $\Omega$  mode is rather smooth with no significant discontinuity in the RMS current.

### 2.2.1 Introduction

Low-temperature diffuse atmospheric-pressure discharges are of great interest both on scientific grounds and for applications (e.g., surface treatment [5], thin film coating [6], plasma medicine [10], etc.). This increasing interest has triggered the need for a deeper understanding of the underlying physics and for a broader variety of discharges. Since the 1980's, dielectric barrier discharges (DBDs) were proven to be an efficient way to sustain many diffuse discharges, the driving frequency playing a major role in the discharge mode. As low pressure DC Townsend and glow discharges, the atmospheric pressure Townsend discharge [39] (APTD) and the atmospheric pressure Glow discharge [38] (APGD) generated at frequencies ranging from  $10^2$  to  $10^5$  Hz are now well understood. Since the diffuse DBD requires a slow ionization to be sustained, this is achieved by generating APTD in  $N_2$  or air at reduced frequencies. On the other hand, the APGD is usually generated in noble gases at higher frequencies [13]. However, recent studies have shown that Townsend and glow discharges are not constrained to the use of such parameters. For instance, both Townsend-like and glow-like discharges were observed in helium by changing the shape of the applied waveform [79, 88, 89].

When the frequency is increased to  $10^7$  Hz, it is still possible to generate diffuse DBDs at atmospheric pressure. At such frequencies (most usually 13.56 MHz), the discharge by plane parallel electrode geometry is capacitive and it can be sustained in two modes, namely the RF- $\alpha$  and the RF- $\gamma$  modes [14, 62, 65, 74]. In these RF discharges, the solid dielectric is not absolutely necessary, but is mainly used to avoid arcing and to increase the discharge volume in the  $\gamma$  mode [15, 69]. In any case, the fundamental mechanisms driving the discharge are completely different whether the discharge is generated at low frequency or at about 13.56 MHz.

Recent work has shown that in an Ar/ $NH_3$  Penning mixture, it is possible to generate diffuse discharges over a wide range of frequency (50 kHz to 9 MHz) [90]. It was also proven that stable discharges can be sustained at 1.6 MHz in helium at atmospheric pressure [91, 92]. In contrast with previous works in helium that



were not specifically focused on the underlying physics driving the discharge, the aim of the present paper is to identify and describe the fundamental mechanisms governing diffuse DBDs generated in the medium frequency range (MF : 0.3 to 3 MHz) in helium at atmospheric pressure. Accordingly, we report that two very different discharge modes can be sustained. In particular, we explore the physics controlling the transition between the two discharge modes. Section 2.2.2 describes the experimental setup while sections 2.2.3 to 2.2.5 are devoted to the experimental results and to the discharge characterization. Finally, we discuss the results and we conclude in section 2.2.6.

## 2.2.2 Experimental setup

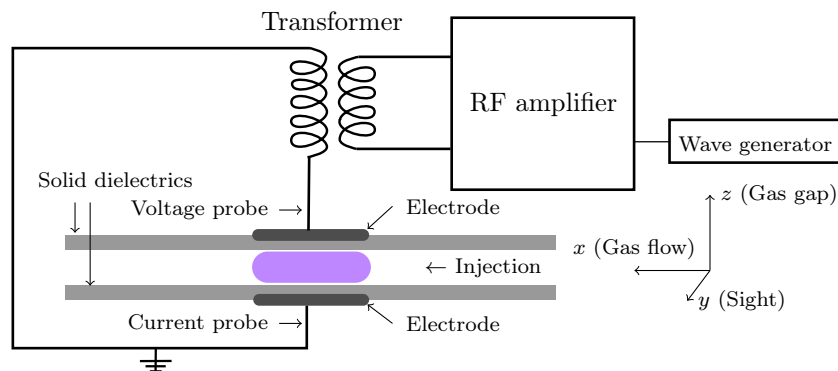


Figure 2.1 – Discharge cell and electrical circuit. The gas is flowing along the  $x$  axis, from the right to the left. The gas gap of 2 mm between the dielectrics lies along the  $z$  axis, while the line of sight of the optical measurements (camera, spectrometers and PMTs) is along the  $y$  axis.

The plasma reactor consists of a plane parallel DBD with solid dielectrics on each electrode. The discharge cell is placed in a chamber connected to a mechanical pump aiming to minimize the amount of impurities. Experiments are thus performed in a well-controlled atmospheric environment at a pressure of 101.3 kPa with a constant helium flow (99.999% purity) of  $8.3 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$  through a 2 mm gap between the alumina solid dielectric surfaces.

The electrodes cover a symmetric area of  $10 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$  on each dielectric.

With respect to figure 3.1, the gas is flowing along the  $x$  axis across the 10 mm electrode length. The power is coupled to the discharge cell via non-commercial air core transformers [90]. Using different transformers with various coaxial cable lengths between the electrical transformer and the discharge cell, the resonance frequency of the whole electrical circuit can be tuned according to

$$f_r = \frac{1}{2\pi\sqrt{LC}}, \quad (2.1)$$

where  $L$  is the inductance of the secondary coil and  $C$  is the equivalent capacitance of the system formed by the cable and the discharge cell. Varying  $f_r$  then enables to achieve different driving frequencies ranging unevenly from 1.0 to 2.7 MHz (namely : 1.0, 1.5, 1.6, 2.1, and 2.7 MHz). The waveform generator (Agilent 33220A) delivers the corresponding sinusoidal voltage to the power amplifier (Prâna GN 500). Current measurements are performed with a Rogowski coil (Lilco 13W5000) located on the grounded electrode while voltage measurements are achieved with a probe (Tektronix P6015) placed on the high-voltage electrode. The electrical measurements are recorded via an oscilloscope of 100 MHz bandwidth (Tektronix TDS 2014). Three different voltages are discussed in this paper. The applied voltage refers to the voltage selected on the waveform generator and it represents the amplitude of the waveform. The measured voltage refers to the instantaneous voltage recorded by the voltage probe on the high voltage electrode. The RMS voltage is the root mean square of the measured voltage calculated from the recorded waveform. Similar definitions apply to the measured current and to the RMS current.

The power density is calculated from voltage and current measurements as

$$P_d = \frac{P}{\mathcal{V}_t(P)} = \frac{1}{\tau \mathcal{V}_t(P)} \int_0^\tau V(t) \cdot I(t) dt, \quad (2.2)$$

where  $\tau = 1/f$  is the waveform period,  $\mathcal{V}_t(P)$  is the total discharge volume (defined in section 2.2.3.2) and  $V(t)$  and  $I(t)$  are the instantaneous measured voltage and current. Considering the calibration of the probes and the fluctuations on the

measured values, the uncertainty on the RMS voltage and current is estimated to be 10 V and 1 mA respectively.

In addition to the electrical measurements, the optical emission of the discharge was also recorded. Time-resolved optical emission (230 to 920 nm) was recorded using either H10721-210 (optimized for UV) or H10721-20 (optimized for VIS) Hamamatsu photomultiplier tubes (PMT). Optical filters (bandpass of 10 nm FWHM) were used in front of the PMTs in order to measure the emission of specific species. Imaging and fast imaging were carried out with a Princeton PI-max 2 camera while time and spatially-integrated emission spectra were recorded by a Maya 2000-Pro spectrometer system (165 to 1100 nm) equipped with a Hamamatsu S10420 CCD detector. A Princeton instrument Acton SP2500 spectrometer equipped with the PI-max 2 camera was also used to record rotational spectra of  $\text{N}_2(\text{C}^3\Pi_u \rightarrow \text{B}^3\Pi_g)$  and  $\text{OH}(\text{A}^2\Sigma^+ \rightarrow \text{X}^2\Pi)$  in order to measure the gas temperature. In each case, the light was collected along the  $y$  axis, perpendicularly to the gas flow direction (see figure 3.1).

### 2.2.3 Optical characterization

Several optical measurements are discussed in this section. First, the discharge modes will be identified from spectrally integrated emission. Then, we will define the discharge volume and we will investigate the spatially and spectrally-integrated light emission as a function of the power density. Finally, the spatially and spectrally resolved emission will provide insights on the mechanisms governing the discharge.

#### 2.2.3.1 Identification of the discharge modes

As it can be seen with the naked eye, varying the waveform generator's applied voltage leads to different discharge modes when the frequency lies between 1.0 and 2.7 MHz. Figure 3.3 shows pictures of patterns observed in the direction perpendicular to the gas flow at 2.1 MHz by spectrally integrated (300 to 900 nm) imaging with long exposure ( $\geq 1 \mu\text{s} > \tau = 1/f$ ).

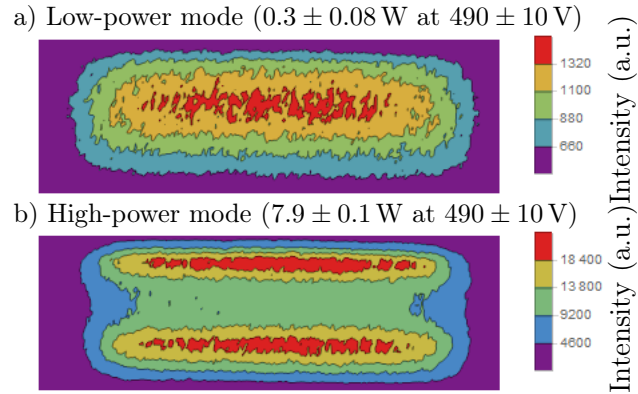


Figure 2.2 – Time-averaged spectrally integrated discharge emission at 2.1 MHz for RMS voltage of  $490 \pm 10$  V. The upper electrode is connected to the high voltage source and the gas flows from the right to the left. a) The low-power mode is first obtained when the RMS voltage is increased from 410 to  $530 \pm 10$  V. b). The high-power mode is obtained once the RMS voltage reaches  $530 \pm 10$  V and is sustained down to  $490 \pm 10$  V.

At 2.1 MHz (figure 3.3) and RMS voltage from 410 to 530 V, the light emission is concentrated in the gas bulk. For now, we will refer to this mode as the low-power mode. It is sustained from the breakdown voltage to the transition voltage. The breakdown and transition voltages are defined by the lowest applied voltage at which the emission is detected (during the rise of the applied voltage) and the applied voltage immediately after which the spatial distribution of the emission dramatically changes, respectively. When the waveform generator voltage is further increased, the measured voltage drops to an RMS value of 510 V and light emission then concentrates near the dielectric surfaces. This mode will be referred as the high-power mode. The discharge exhibits the same behavior at 1.5, 1.6, 2.1 MHz, where both the breakdown voltage and the transition voltage show a standard deviation better than 11 V while a slightly different behavior is observed at 1.0 and 2.7 MHz. The remaining of this paper will focus on the characterization of these discharges and in an attempt to understand their underlying physics. We further note that filaments or instabilities are not visible on neither picture nor any single shoot oscilloscope sample recorded at each applied voltage of each frequency tested.

### 2.2.3.2 Discharge volume

In order to compare the properties of the observed discharges, it is helpful to determine the volume of the discharge. The latter is determined by the visible plasma emission and it is plotted against the power (defined in eq. (3.1)) and the frequency in figure 2.3. It is worth mentioning that, on the one hand, the discharge boundary is not perfectly defined as the plasma can easily expand beyond the volume determined by the area of the electrodes ( $1 \text{ cm}^3$ ). On the other hand, when the discharge undergoes its transition from the low-power to the high-power mode, the electrode area is not always entirely covered. In order to determine the volume of the discharge, its length along each axis was considered. While the discharge always fills the entire gap along the  $z$  axis, the discharge extent in the  $x$  and  $y$  axes are measured with rulers located in the reactor<sup>1</sup>. As a consequence of all these uncertainties, the error on the calculated power density is about 20 %.

For each frequency investigated, the volume increases with the power, very steeply below 5 W and then more slowly above. As expected, as no walls are enclosing the discharge along neither the  $x$  nor the  $y$  axis, the discharge volume can reach a value 15 % larger than the volume solely defined by the electrodes. While in the low-power mode the discharge expansion occurs at the same rate along the  $x$  and  $y$  axis, in the high-power mode, the discharge contraction (at 1.0 and 2.7 MHz) primarily occurs along the  $y$  axis, i.e. perpendicular to the gas flow. Although the contraction is likely due to the imprecise parallelism of the solid dielectrics, it suggests a more stable discharge in the intermediate frequencies than at 1.0 and 2.7 MHz. In support, the volume at the transition in figure 2.3b is very close to the volume defined by the electrodes, suggesting a smaller contraction of the discharge during the transition. We also note that the volume at breakdown tends to increase slightly with the frequency.

The volume exhibits a similar behavior for 1.5, 1.6 and 2.1 MHz, but the power

---

<sup>1</sup>This method is used for driving frequencies of 1.0, 1.6, 2.1 and 2.7 MHz. The volume of the 1.5 MHz discharge is extrapolated from long exposure time pictures and from the data recorded at other driving frequencies.

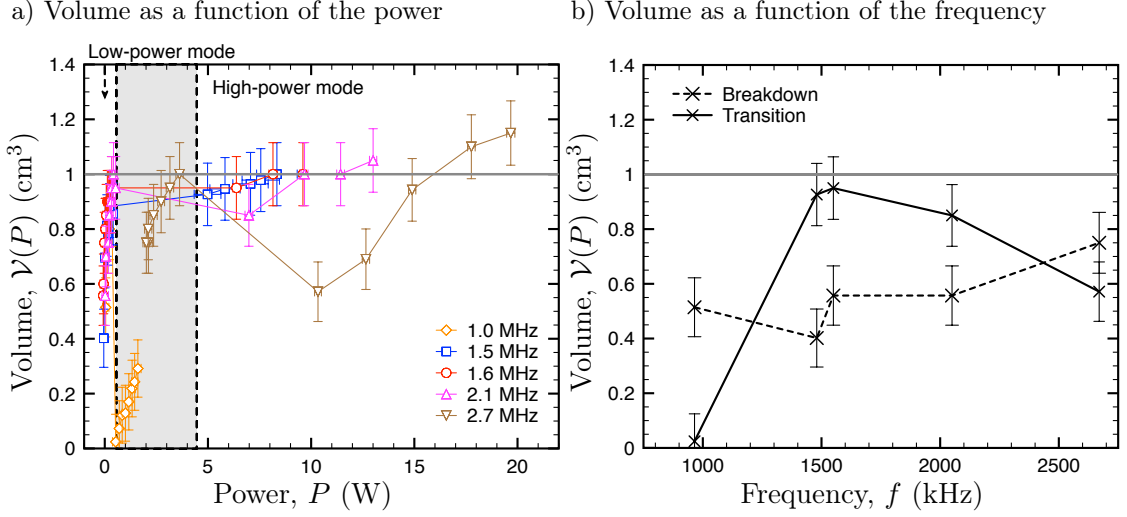


Figure 2.3 – a) Discharge volume at different frequencies against the power. The gray line ( $\mathcal{V} = 1 \text{ cm}^3$ ) is the volume defined by the electrodes. The volume can reach 15% more than the volume defined by the electrode surface. The gray box separates typical values of low-power and high-power modes. b) Discharge volume as a function of the frequency immediately after the breakdown and immediately after the transition.

jump required for the transition between the two discharge modes tends to increase with the frequency. At 1.0 MHz, the low-power mode is also well-defined but with a larger contraction of the discharge volume during the transition to the high-power mode. At 2.7 MHz, breakdown is achieved at higher power so that the low power mode is not well defined. The transition to the high-power mode is accompanied by a significant shrinking of the discharge. For all the frequencies tested, we note that when the high-power discharge does not fully cover the electrode surface, the remaining surface is still covered by a low-power discharge. Hence the power density (eq. 3.1) is calculated from the total discharge volume  $\mathcal{V}_t(P)$ . Let us note that even though the discharge always remains diffuse from 1.0 to 2.7 MHz, the power dissipated in the high-power mode is not evenly distributed along the electrode surface.

### 2.2.3.3 Spectrally-integrated discharge emission

Figure 2.4 shows the spatial maximum of the spectrally integrated (150 to 900 nm) light intensity in the  $z - x$  plane. The values are obtained from time-averaged spectrally integrated pictures as in figure 3.3. The light intensity is integrated along the  $y$  axis and normalized to its highest value for each driving frequency investigated.

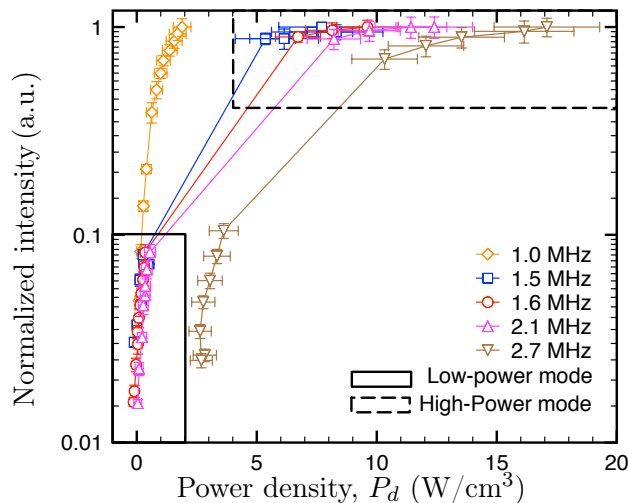


Figure 2.4 – Time-averaged and spectrally integrated maximum light intensity in the gap as a function of the power density for the different frequencies tested. Each curve is normalized to its maximum value.

As expected, the intensity increases with the power density. In the low-power mode, the light intensity measured along the  $y$  axis (figure 2.4) reaches only 10% of the intensity of the high-power mode. Moreover, as the discharge volume shown in figure 2.3, the intensity varies steeply with the power. Considering that the light intensity is integrated along the  $y$  axis, one can conclude that the increase of energy deposited in the discharge is mostly spent to enlarge the discharge volume rather than the power density. On the other hand, the mild slope present in the high-power mode indicates that the increase of the energy deposited in the discharge is almost solely spent to increase the power density.

### 2.2.3.4 Spectrally-resolved discharge emission

Examples of spatially-integrated optical emission spectra of the discharge in the low-power and the high-power modes are displayed in figure 3.4. These spectra were recorded over a long integration window ( $> 10$  ms) and were corrected to take into account the response curve of both the spectrometer and the detection system.

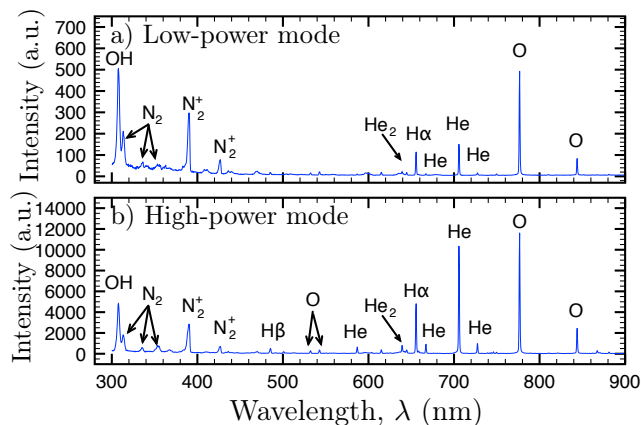


Figure 2.5 – Optical emission spectra corrected by the response curve of both spectrometer and detection system for the discharge at 1.5 MHz in the a) low-power mode at  $0.4 \pm 0.2 \text{ W cm}^{-3}$  and b) high-power mode at  $4.0 \pm 1.0 \text{ W cm}^{-3}$ .

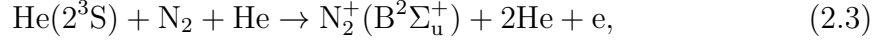
As the integrated light emission shown in figure 2.4, the spectrally-resolved emission intensity is roughly 10 times higher in the high-power mode than in the low-power mode. Even though the plasma is operated in pure helium, emission from impurities is observed in the spectra with intensities that can be quite significantly depending on the discharge mode. Indeed, the spectrum of the low-power mode is dominated by the  $\text{OH}(A^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Pi)$  ( $\lambda = 306.4 \text{ nm}$ ) and  $\text{N}_2^+(B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+)$  ( $\lambda = 391.4 \text{ nm}$ ) molecular bands as well as by the  $\text{O}(3^5P \rightarrow 3^5S)$  ( $\lambda = 777.5 \text{ nm}$ ) atomic line. In the high-power mode, the spectrum is dominated by the  $\text{O}(3^5P \rightarrow 3^5S)$  and  $\text{He}(3^3S \rightarrow 2^3P)$  ( $\lambda = 706.4 \text{ nm}$ ) atomic lines.

Above some tens of ppm, the  $\text{N}_2^+$  ions should be completely dominant over  $\text{He}^+$  and  $\text{He}_2^+$  [93–96]. In our conditions, the main impurities are produced by desorption from the dielectric surface and mainly consist of  $\text{N}_2$ ,  $\text{O}_2$  and water [97]. They should remain below 10 ppm. Nevertheless, such desorption explains the presence of the



strong hydroxyl molecular band as well as of several nitrogen molecular bands and of the strong oxygen line in the experimental spectra. We further note that every measurement is conducted under the same conditions except the power density  $P_d$ . The impurity optical emission strongly depends on the heating of the dielectric surfaces while the helium emission mostly depends on the electron energy and density. With the assumption that the impurities ( $N_2$ ,  $O_2$  and water) are desorbed from the dielectric surfaces, the origin of their main emissions can be understood as follows.

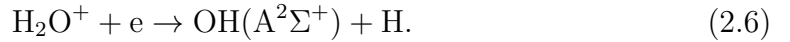
The presence of the  $N_2^+(B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+)$  band is likely to be related to the creation of  $N_2^+(B^2\Sigma_u^+)$  from the  $N_2$  ground state by reactions [98]



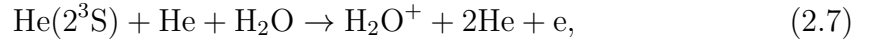
Therefore,  $N_2^+(B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+)$  emission intensity should be related to the  $\text{He}(2^3\text{S})$  metastable atoms density or to the  $\text{He}_2^+$  ion or both. The  $\text{OH}(A^2\Sigma^+)$  excited state can be created directly by collision with helium molecular ions :

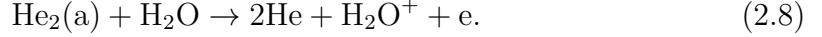


However, it is more likely to be populated by Penning effect from the helium neutral dimer or the helium metastable [98] with  $\text{H}_2\text{O}^+$  as intermediate species followed by its dissociative recombination :



The three-body collision of  $\text{H}_2\text{O}$  with helium metastable and the binary collision of  $\text{H}_2\text{O}$  with helium dimer are [98] :





Hence, the  $\text{OH}(A^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Pi)$  emission should be related to helium metastable atoms (through reaction (2.7)), to helium dimer (through reaction (2.8)) and to low-energy electrons (through reaction (2.6)). Moreover, reaction (2.6) is probably at the origin of hydrogen emission (see figure 3.4).

In addition, assuming that the  $\text{O}_2$  molecules are desorbing from the solid dielectrics, they can be quickly excited in their  $A^3\Sigma_u^+$  and  $B^3\Sigma_u^-$  long-lived states by electrons with energy higher than 6 eV [99]. These species can then dissociate into  $\text{O}(3^5\text{P})$  by electron-impact with electrons of 1 eV or more. Finally, the  $\text{He}(3^3\text{S})$  state can be populated by three main mechanisms, namely direct electron impact on helium ground state (threshold energy of 22.72 eV), electron impact with  $\text{He}(2^3\text{S})$  (threshold energy of 2.9 eV) and dissociative  $\text{He}_2^+$  recombination with low-energy electrons [100]. Therefore, the presence of the  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$  emission is related to either a significant concentration of electrons with energy higher than 2.9 eV or a few high-energy electrons compensated by a significant concentration of  $\text{He}_2^+$  ions.

Considering the origin of the main emissions, it is possible to compare the spectra of the low-power and of the high-power mode shown in figure 3.4. Impurities emissions are mainly due to a stepwise excitation through the metastable helium atoms while helium emissions are strongly correlated with high-energy electrons. Figure 3.4 indicates that the ratio of emission from impurities over emission from helium is significantly lower in the high-power than in the low-power mode. Then, the ratio of high-energy electrons over helium metastable atoms density must be higher in the high-power mode than in the low-power mode. This suggests that the electron temperature is higher in the high-power mode.

### 2.2.3.5 Time-resolved spectral emission

Time-integrated optical imaging provides insights on the overall behavior of the different discharge modes. More detailed understanding of the basic mechanisms driving the discharge requires to use time-resolved optical emission spectroscopy.

Before comparing the discharge modes, we start by identifying the various components of discharge emission. Figure 2.6 shows an example of the spatially-integrated evolution of the main emissions selected with appropriate bandpass filters and illuminating photomultiplier tubes. The bandpass filters allow to record the discharge emission over a width of 10 nm in the spectral region of interest. Each emission is normalized to its maximum.

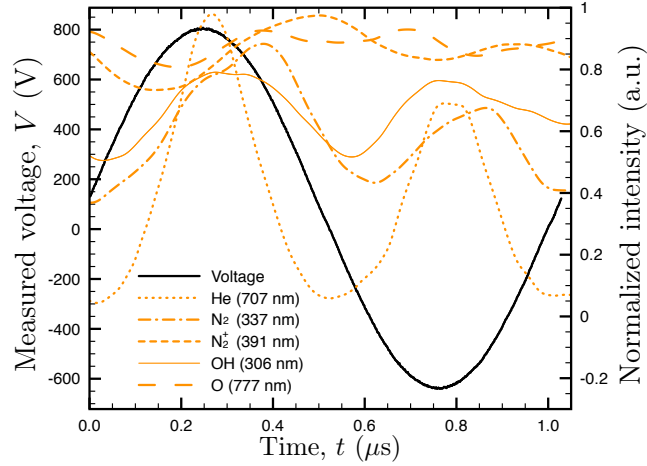


Figure 2.6 – Time evolution of different emissions during a complete cycle for 1.0 MHz discharge at  $1.9 \pm 0.3 \text{ W cm}^{-3}$ . Each emission is normalized to its maximum value. The emissions are selected with 10 nm FWHM bandpass filters illuminating photomultipliers.

From figure 2.6, it is possible to see that the  $\text{N}_2^+(\text{B}^2\Sigma_u^+ \rightarrow \text{X}^2\Sigma_g^+)$  and  $\text{O}(3^5P \rightarrow 3^5S)$  emissions remain almost constant over the full period. This indicates that  $\text{N}_2^+(\text{B}^2\Sigma_u^+ \rightarrow \text{X}^2\Sigma_g^+)$  is likely to rely on helium metastable atoms (reaction (2.3)) which is supported by the metastable state lifetime that is expected to be about  $1 \mu\text{s}$  at atmospheric pressure [101]. On the other hand, since  $\text{O}(3^5P \rightarrow 3^5S)$  depends on  $\text{O}^2(\text{A}^3\Sigma_u^+)$  and  $\text{B}^3\Sigma_u^-$  long-lived states, there should exist a time lap during which the  $\text{O}(3^5P \rightarrow 3^5S)$  emission only depends on low-energy electrons provided the  $\text{A}^3\Sigma_u^+$  and  $\text{B}^3\Sigma_u^-$  long-lived states get sufficiently populated during the preceding period of time that features electrons with energy higher than 6 eV.

Figure 2.6 also indicates that  $\text{OH}(\text{A}^2\Sigma^+ \rightarrow \text{X}^2\Pi)$ ,  $\text{N}_2(\text{C}^3\Pi_u \rightarrow \text{B}^3\Pi_g)$  and

He( $3^3S \rightarrow 2^3P$ ) oscillate with the measured voltage<sup>2</sup>. While the helium emission decays to almost zero between two half cycle, the N<sub>2</sub> emission only drops to half its peak value. Since N<sub>2</sub>( $C^3\Pi_u$ ) radiative lifetime is about 37 ns [102] (faster than He( $3^3S \rightarrow 2^3P$ )), assuming that it is populated by collisions with low-energy electrons [98], this indicates that the electron temperature decreases between two half cycles. This is also supported by the fluctuation in OH( $A^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Pi$ ) emission, which is due to the decrease of the electron temperature during the polarity inversion.

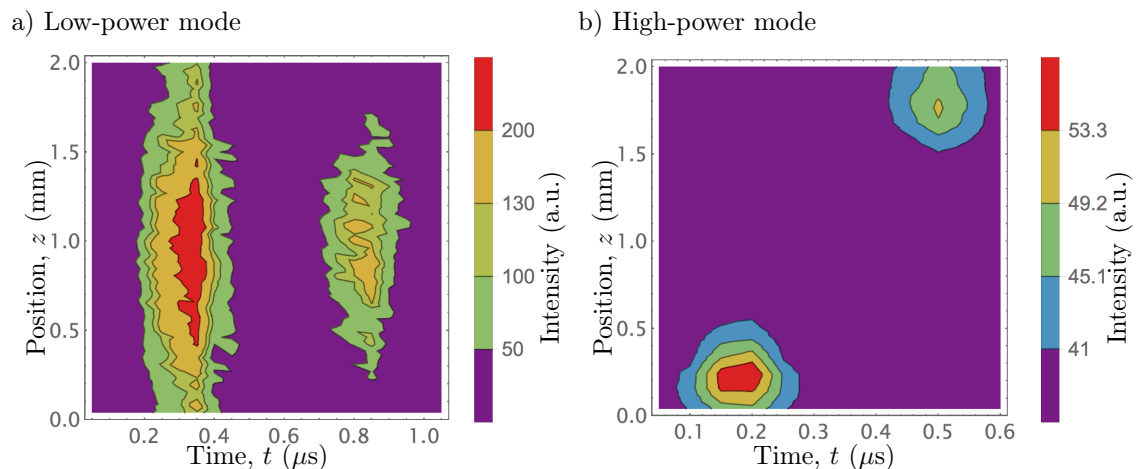


Figure 2.7 – Time evolution of light emission during a complete cycle around 707 nm (FWHM of 10 nm) along the gas gap, i.e. He( $3^3S \rightarrow 2^3P$ ) evolution. The first picture acquisition is synchronized with the measured voltage intersection with zero, making the upper electrode positive (anode) during the first half-period (cathode during the next half-period). a) Low-power mode at 1.0 MHz with  $0.13 \pm 0.03 \text{ W cm}^{-3}$ . Twenty-one consecutive pictures (gate width of 50 ns and accumulation over 20 000 cycles) are juxtaposed in order to plot the time evolution. b) High-power mode at 1.6 MHz with  $8.2 \pm 1.0 \text{ W cm}^{-3}$ . Twelve consecutive pictures (gate width of 50 ns and accumulation over 20 000 cycles) are juxtaposed in order to plot the time evolution.

Figure 2.7 shows the spatial distribution of the emission of the He( $3^3S \rightarrow 2^3P$ ) line emission integrated over 10 nm in the spectral region of interest. The high

<sup>2</sup>Considering the center wavelength (310 nm) of the bandpass filter used for measuring OH( $A^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Pi$ ), a small contribution of N<sub>2</sub>( $b^1\Pi_u \rightarrow a^1\Pi_g$ ) (band head at 313.5 nm) could be expected. However, taking into account the relative intensity of each transition, the contribution of N<sub>2</sub> should never exceed 20%.

voltage electrode lies above the solid dielectric located at the position 2.0 mm (along the  $z$  axis), which means that the upper electrode is the anode for the first half-period and the cathode for the second half-period. Pictures are taken as in figure 2 but all pixels in a row are summed to obtain the light distribution along the  $z$  axis. Several consecutive images were juxtaposed to obtain the light emission over a full time-period with a resolution of 50 ns. Since the electron mean free path is very short (about  $1\ \mu\text{m}$ ) in helium discharge at atmospheric pressure with an electron of about 1 eV [78, 103],  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$  emission must occur close to the position where  $\text{He}(3^3\text{S})$  was excited as  $\text{He}(3^3\text{S})$  has a radiative lifetime about 86 ns [104].

As it can be seen in figure 2.7a, in the low-power mode, the  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$  light emission is concentrated at the middle of the gas gap and is synchronized to the maximum of the measured voltage. This suggests that electrons are mostly concentrated in the center of the gap. Furthermore, the emission starts from the middle of the gas gap and spreads toward both dielectric surfaces. In order to spread in both directions electrons should need an electric field to be strongly different from the uniform field generated by the applied voltage. Let us note that emission falls below the detection level during the polarity inversion.

In the high-power mode, figure 2.7b shows that the  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$  emission is concentrated much closer to the dielectric surfaces. It is clear from these images that the emission is not spreading from the dielectric surfaces but starts rather at about 0.25 mm from them and spreads in both dielectric and bulk directions. The emission also falls below the detection level between two half-periods. With respect to the frequency of the applied voltage, the decrease of  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$  intensity is always following the decrease of the measured voltage. Whether  $\text{He}(3^3\text{S})$  is populated by high-energy electrons or by dissociative recombination of electrons with  $\text{He}_2^+$ , figure 2.7b suggests that the charge particles are strongly concentrated near the cathode.

#### 2.2.4 Electrical characterization

Typical waveforms of the discharge (measured voltage and measured current) are shown in figure 2.8. The low-power and the high-power mode waveforms are

displayed.

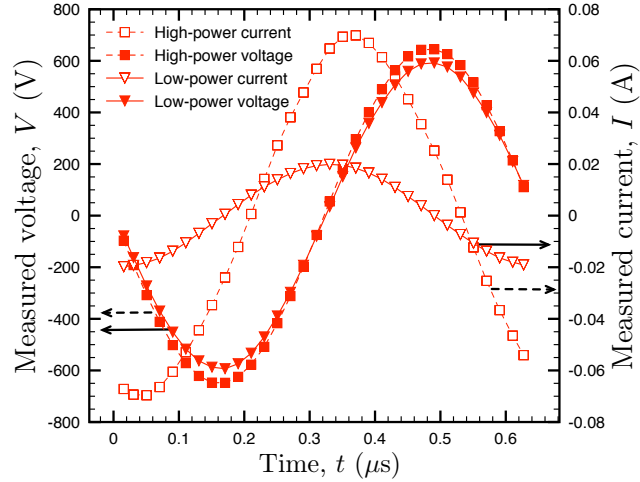


Figure 2.8 – Measured voltage and current for the discharge at 1.6 MHz. The power density is  $0.11 \pm 0.05 \text{ W cm}^{-3}$  in the low-power mode and  $9.6 \pm 1.2 \text{ W cm}^{-3}$  in the high-power mode.

The first noticeable feature observed in figure 2.8 is the sine-like shape of both measured voltage and current for each mode. Even at the lowest frequency investigated (1.0 MHz), the measured current waveform differs significantly from that usually observed in LF discharges (below 300 kHz) [13], where the measured current shape clearly displays a capacitive component and a conductive component. The low-power mode measured voltage and current are shown in figure 2.8 with the solid lines. The RMS voltage is 500 V while the RMS current is 14 mA. The phase shift between the two signals is 1.54 rad (about  $88^\circ$ ) which indicates the highly capacitive behavior of the discharge. In the case of the high-power mode (dashed lines), the phase shift reduces to 1.10 rad (about  $63^\circ$ ) which indicates a larger resistive contribution.

The  $I_{\text{RMS}}-V_{\text{RMS}}$  curves (characteristic curves) are shown in figure 3.2 at the various frequencies investigated. At each frequency, two trends can be observed : 1) a steep RMS voltage increase for nearly constant RMS current (low-power mode) and 2) a large RMS current increase for nearly constant RMS voltage (high-power mode). The voltage drop between low-power and high-power modes indicates a

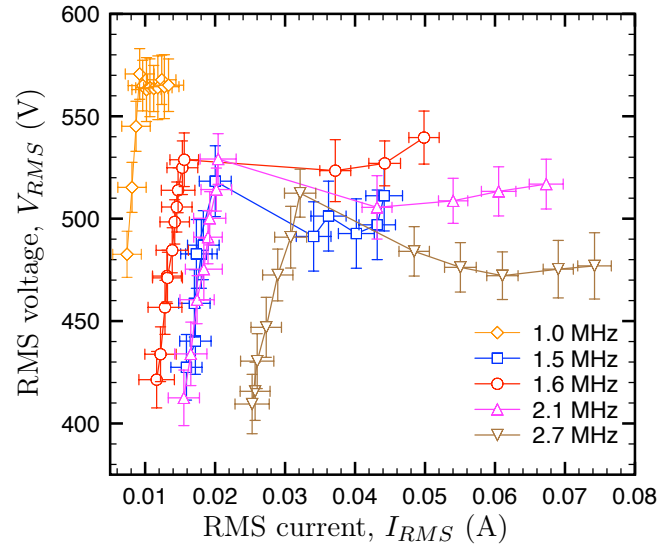


Figure 2.9 –  $I_{RMS}$ - $V_{RMS}$  curves for the frequencies tested from 1.0 to 2.7 MHz.

significant change of the electric field distribution in the gas gap, likely resulting from the accumulation of an important space charge. At 1.0 MHz, the transition from low-power to high-power occurs without neither any significant RMS voltage drop nor large RMS current leap. This can be explained by the small area covered when the high-power mode is ignited after the transition (see section 2.2.3.2). At 2.7 MHz, the RMS current becomes important even in the low-power mode where the slope is slightly smaller than at other frequencies.

When the applied voltage is successively increased and decreased, the discharge undergoes a transition from low-power to high-power and then another one from high-power to low-power. Figure 2.10 illustrates the corresponding RMS characteristic curve of the discharge at 1.6 MHz for both cycles. The discharge is first in the low-power mode with no significant increase of the RMS current as the RMS voltage increases. When the RMS current is large enough and the electrode surface is fully covered, the discharge switches to the high-power mode. This occurs at an RMS current of about 16 mA. When the discharge turns in the high-power mode, the ion density should be large enough to create a space charge modifying the applied electric field (as suggested by light emission in figure 2.7b), while the RMS

voltage slightly decreases from 530 to 520 V and the RMS current increases from 16 to 37 mA. The RMS voltage then remains almost constant whereas the RMS current increases. In the decreasing cycle, the RMS voltage varies linearly with the RMS current. The high-power mode is still sustained down to  $V_{RMS} = 490$  V which results in a hysteresis. Finally, the transition to the low-power mode occurs and the RMS voltage follows the same curve as during the increasing phase.

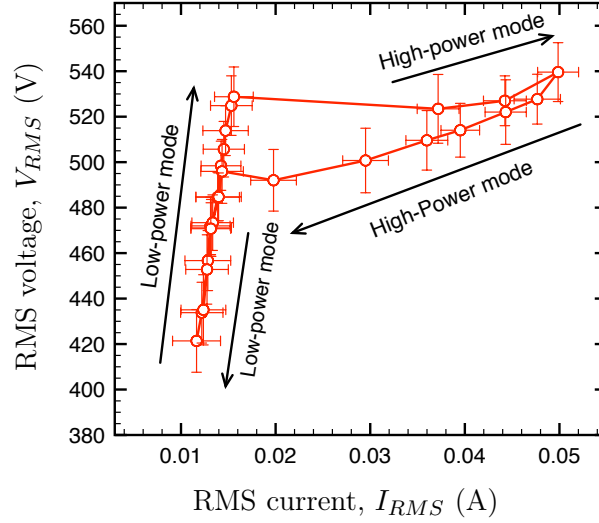


Figure 2.10 –  $I_{RMS}$ - $V_{RMS}$  curve of the discharge at 1.6 MHz. The solid line shows the path of the experiment during the increasing and decreasing phases of the applied voltage.

### 2.2.5 Gas temperature measurement

As other non-thermal helium atmospheric pressure discharges, those generated in the MF range are expected to be out of thermodynamic equilibrium [105]. Several temperatures coexist in the discharge with

$$T_{room} \leq T_{die} \leq T_g \leq T_e, \quad (2.9)$$

where  $T_{die}$  is the temperature of the solid dielectrics ( $295 \text{ K} < T_{die} < 325 \text{ K}$ ) and  $T_g$  is the gas temperature. The gas temperature is assumed to be close to the



rotational temperature of the  $N_2$  second positive system  $N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$  and of the  $OH(A^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Pi)$  band. These spectra were recorded with an integration over the whole discharge (the  $z-x$  plane) with an Acton SP2500 spectrometer equipped with a PI-max 2 camera (see section 2.2.2). The spectra were time integrated with an integration time varying from 10 to 1000 ms. The experimental rotational spectra were fitted with synthetic spectra generated by the SPECAIR program [106] to determine their rotational temperature. An example of the experimental and synthetic spectra showing their good agreement is presented in figure 2.11.

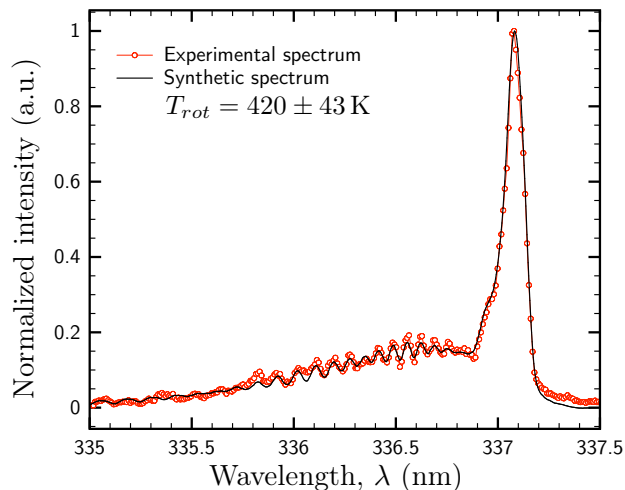


Figure 2.11 –  $N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$  example of synthetic and experimental spectra of the high-power mode at 2.67 MHz,  $T_{rot} = 420 \pm 43$  K. Experimental spectrum was recorded over the whole discharge (the  $z-x$  plane) with an integration time of 100 ms.

Figure 2.12 shows the rotational temperature of the  $OH(A^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Pi)$  and  $N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$  band as a function of the power density in the discharge at 1.6 MHz. As it can be seen,  $T_{rot}$  is relatively low (below 500 K) and it is higher at high power than at low power. The discrepancy between the rotational temperature of  $N_2$  and  $OH$  is unlikely to emerge from spatial emission inhomogeneity since  $N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$  and  $OH(A^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Pi)$  have the same emission distribution in the  $z-x$  plane (confirmed by camera measurements). On the other hand, it might arise from an inefficient thermalization of the  $OH(A^2\Sigma^+)$  state with the neutral gas.

This would be in agreement with the fact that  $\text{OH}(A^2\Sigma^+)$  is mostly populated by collisions with helium metastable atoms. In fact, the  $\text{OH}(A^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Pi)$  rotational spectrum exhibits a poorer agreement than the  $\text{N}_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$  band when fitted with synthetic spectra. This might suggest that OH rotational distribution is characterized by two temperatures.

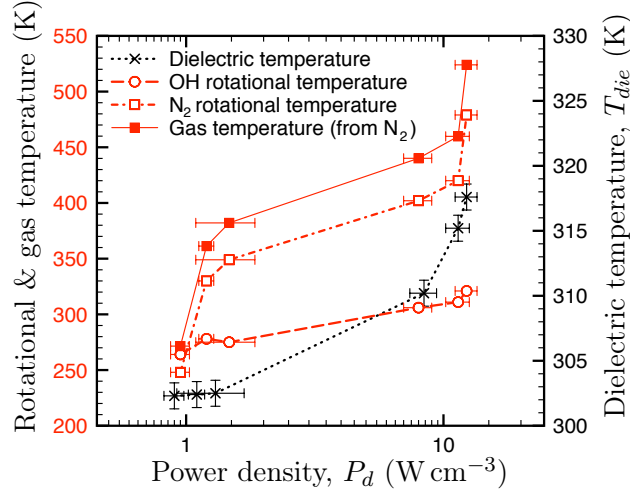


Figure 2.12 – Rotational, gas and dielectric temperatures as a function of the power density for the discharge at 1.6 MHz. The rotational and gas temperatures are shown on the left axis while the dielectric temperature is shown on the right axis. The uncertainty of the rotational temperature varies from 53 to 82 K for  $\text{OH}(A^2\Sigma^+)$  and from 41 to 81 K for  $\text{N}_2(C^3\Pi_u)$ .

In our experimental setup,  $\text{N}_2$  molecules are present in traces likely to be desorbed from the solid dielectrics. As it is populated by direct electron collisions from the ground state  $\text{N}_2(X)$ , the excited level  $\text{N}_2(C)$  should be in equilibrium with the gas temperature. The  $\text{N}_2(C)$  excited molecules should therefore be good candidates to determine the gas temperature. The gas temperature can then be obtained by multiplying the  $\text{N}_2(C)$  rotational temperature by the rotational factors ratio  $B''/B' = 1.998/1.825$ , where  $B''$  and  $B'$  are the rotational constant of the  $X$  and  $C$  states respectively [107]. The gas temperature deduced from the rotational temperature measurements is plotted alongside the rotational temperature in figure 12 and is found to be consistent with other reported gas temperature obtained in

similar atmospheric-pressure helium discharges [61, 108–110].

### 2.2.6 Discussion

In the light of the previous sections, it is possible to infer some information about the discharge modes. Figure 2.13 shows the time evolution of the spectrally integrated light emission (300 to 900 nm) along the gas gap (the two dielectric surfaces lies at positions 0.0 and 2.0 mm). The images displayed in figure 2.13 are made from pictures using the same procedure as those of figure 2.7.

According to the whole spectrum observed in the low-power mode (cf. figure 3.4a), the spectrally integrated emission should be dominated by the  $O(3^5P \rightarrow 3^5S)$  and  $OH(A^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Pi)$  emissions. However, the quantum efficiency of the iCCD has its peak value at 150 nm yielding the camera to be 3 times more sensitive at 310 nm than at 777 nm. Therefore, figure 2.13a mainly represents the  $OH(A^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Pi)$  emission. Assuming that the density of helium metastable atoms is large

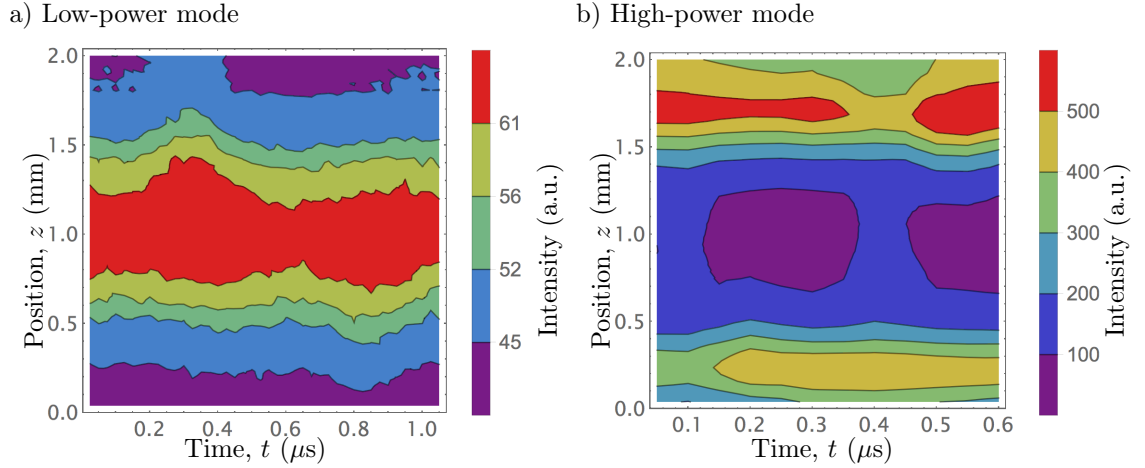


Figure 2.13 – Time evolution of the spectrally integrated light emission along the gas gap. The first picture acquisition was synchronized with the measured voltage intersection with zero, making the upper electrode positive during the first half-period. a) Low-power mode at 1.0 MHz with  $0.13 \pm 0.03 \text{ W cm}^{-3}$ . Forty-two consecutive images are juxtaposed with a gate width of 25 ns and a total accumulation over 20 000 cycle. b) High-power mode at 1.6 MHz with  $8.2 \pm 1.0 \text{ W cm}^{-3}$ . Twelve consecutive images are juxtaposed with a gate width of 50 ns and a total accumulation over 20 000 cycle.

enough and that the electron density is smaller than  $10^{17} \text{ m}^{-3}$  [98], we can conclude that  $\text{OH}(A^2\Sigma^+)$  is mostly populated by dissociative recombination according to reaction (2.6). As this mechanism involves low-energy electrons, the time evolution of the spectrally integrated light in the low-power mode shown in figure 2.13a should map the low-energy part of the EEDF. In agreement with figure 2.7, where the emission is mainly concentrated at about 1 mm from both solid dielectrics, the electron density should be higher in the bulk than close to the dielectrics. While figure 2.7a, indicated that higher energy electrons are only present during the peak of the voltage, figure 2.13a illustrates that some low-energy electrons survive during the whole time-period. Furthermore, since the bulk emission is strong through the whole cycle, this suggests that a sufficient amount of low-energy electron always remain in the bulk. Hence, unlike the APTD and the APGD, an actual plasma should be sustained continuously in the middle of the gas gap. In this regard, the low-power mode is akin to the  $\Omega$  mode of the capacitively coupled radio-frequency atmospheric pressure discharge in helium reported in [71]. In other words, ohmic heating in the bulk is likely to be the main heating mechanism of the low-power mode.

In contrast to the low-power mode, figure 2.13b cannot be approximate to display only  $\text{OH}(A^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Pi)$  emission. The recorded intensity should therefore be proportional to an uneven contribution of every emitting species. Nevertheless, its spectrally-integrated emission shows that light intensity is maximum at about 0.25 mm from the dielectrics. It is concentrated on the cathode side like the  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$  emission displayed in figure 2.7b. Figure 2.13b also shows time continuous emission suggesting that a plasma is surviving during the entire cycle. Electron density should always be non-zero over the whole cycle. The light intensity distribution close to the dielectric surfaces of figure 2.7b indicates that the ionization should occur mainly in the sheath boundaries similarly to a capacitive discharge in the  $\alpha$ -mode at atmospheric pressure as reported in [61, 65, 69]. Figure 2.13b also displays fluctuating intensity in the middle of the gas gap during the cycle. This intensity is about of the same magnitude as the low-power mode,

suggesting that ohmic heating is also dominating in the bulk.

### 2.2.7 Conclusion

The main measured parameters of the discharge in the low-power and high-power modes are summarized in table 2.I. In the low-power mode, the power density is of the order of  $10^{-1} \text{ W cm}^{-3}$  and the gas temperature varies from 295 to 375 K. In the high-power mode, the power density in the discharge is of the order of  $10^1 \text{ W cm}^{-3}$  while the gas temperature is between 375 and 500 K. Only the RMS voltage possess values common to both low and high-power modes.

Tableau 2.I – Measured values of discharge parameters for the low-power and the high-power mode.

Discharge parameters	Low-power mode	High-power mode
$P_d$ ( $\text{W cm}^{-3}$ )	$10^{-1}$	$10^1$
$I_{RMS}$ (mA)	12 – 20	27 – 67
$V_{RMS}$ (V)	410 – 530	480 – 540
$T_g$ (K)	295 – 375	425 – 525

In conclusion, the medium frequency range allows two diffuse discharge modes to exist in a plane parallel DBD in helium at atmospheric pressure. Low-power and high-power modes behave differently and allow to cover a broad range of plasma parameters. Like the  $\Omega$  mode of the capacitively coupled radio-frequency discharge, the low-power mode electron heating must happen mainly in the bulk. On the other hand, like the RF- $\alpha$  mode of CCRF discharge, the high-power mode is characterized by electron heating occurring near the sheath. Finally, the fact that these two modes can be achieved in the same reactor by only varying the applied voltage could enable to use the same experimental setup for applications requiring different discharge parameters.

**Acknowledgements**

The authors would like to acknowledge the French "Agence Nationale de la Recherche" (ANR) and the Natural Sciences and Engineering Research Council (NSERC) of Canada for their financial support.

## CHAPITRE 3

### EFFET DE LA FRÉQUENCE D'EXCITATION SUR UNE DÉCHARGE À BARRIÈRE DIÉLECTRIQUE

#### 3.1 Présentation de l'article 2

Au chapitre précédent, le fonctionnement des décharges à barrière diélectrique sur la gamme de fréquences allant de 1 à 2,7 MHz a été étudié. Cette plage de fréquences est, en fait, un sous ensemble du spectre des moyennes fréquences se situant entre 0,3 et 3 MHz. Dans le présent chapitre, nous étudions une vaste plage de fréquences incluant à la fois les basses, les moyennes et les hautes fréquences. Plus précisément, une plage de fréquences allant de 25 kHz à 15 MHz est étudiée. À tension élevée, lorsque la fréquence augmente graduellement, la décharge est d'abord dans le régime APGD (luminescent) à 25 kHz, elle transite ensuite à un régime hybride dans les MF avant de s'établir dans le régime RF- $\alpha$  dans les HF. Qui plus est, pour une basse tension appliquée, il est possible de générer une décharge dans un régime quasi-Townsend (APTD-L) dans le cas où la fréquence est près de la limite supérieure des BF (jusqu'à environ 100 kHz). Lorsque la fréquence augmente, ce régime laisse place au régime  $\Omega$ .

Ce travail se révèle pertinent pour le domaine des décharges homogènes à la pression atmosphérique puisqu'il permet de faire le pont entre les études conduites dans les basses fréquences (APGD) [37] et les hautes fréquences [14]. De surcroît, il permet de mettre en évidence un nouveau régime de décharge, le régime quasi-Townsend. Il permet aussi de préciser la nature du régime hybride observé dans l'article précédent.

La suite de ce chapitre est constituée entièrement de l'article intitulé : *Transitions of an Atmospheric-Pressure Diffuse Dielectric Barrier Discharge in Helium for Frequencies Increasing from kHz to MHz* [111]. Cet article a été publié dans le journal *Plasma Sources Science and Technology*. Les manipulations expérimentales

ont été conduites sur le même réacteur DBD que pour l'article du chapitre 2. De la même manière que pour le précédent article, j'ai effectué toutes les mesures expérimentales lors de mes séjours en France. Par la suite, j'ai analysé les données et procédé à l'interprétation des résultats qui ont mené à l'article. J'ai finalement rédigé une version préliminaire de l'article qui fut ensuite amélioré sous la supervision de Joëlle Margot et Françoise Massines.

Il est à noter que, puisque le format de l'article est en deux colonnes, certaines figures ont été reformatées, facilitant ainsi la lecture. Par ailleurs, les références ont été retirées, évitant ainsi les redondances entre les différents articles. La liste complète des références est donc à la fin de la thèse.



### 3.2 Transitions of an Atmospheric-Pressure Diffuse Dielectric Barrier Discharge in Helium for Frequencies Increasing from kHz to MHz

Jean-Sébastien Boisvert<sup>1,2</sup>, Joëlle Margot<sup>2</sup> and Françoise Massines<sup>1</sup>

<sup>1</sup> *Laboratoire PROMES-CNRS, Rambla de la Thermodynamique, 66100, Perpignan, France* <sup>2</sup> Département de physique, Université de Montréal, 2900 Blvd Édouard-Montpetit, H3T 1J4, Montréal (Qc), Canada

**Abstract.** Recent studies have shown that tuning a dielectric barrier discharge (DBD) in the medium-frequency range (MF : from 0.3 to 3 MHz) allows to sustain a low-power and a high-power mode. In the present article the effect of the driving frequency on a DBD is studied from the low-frequency range (LF : from 30 to 300 kHz) to the high-frequency range (HF : from 3 to 30 MHz). This is achieved using fast imaging together with electrical and spectroscopic diagnostics. At every frequency, a diffuse discharge is sustained. It is observed that at 25 kHz the discharge is an atmospheric-pressure glow discharge (APGD) while at 15 MHz the discharge behaves as a capacitive discharge in the RF- $\alpha$  mode. The usual LF APGD behavior is observed up to 100 kHz. Above 200 kHz, the positive column remains during the whole cycle so that the hybrid mode is sustained. At 5 MHz, the hybrid mode finally turns into the RF- $\alpha$  mode. In addition to the LF APGD, RF- $\alpha$  and hybrid modes obtained when the applied voltage is significantly higher than the ignition value, two other modes can be reached at low applied voltage. A Townsend-like mode is achieved from 50 to 100 kHz while in the medium-frequency range, the  $\Omega$  mode is sustained. Moreover, only from 1.0 to 2.7 MHz there is a large hysteresis occurring when the discharge transits back and forth from the  $\Omega$  to the hybrid mode. It is also found that when the frequency increases from 25 kHz to 15 MHz, the RMS current increases over two orders of magnitudes while the RMS voltage decreases by about 60%. The gas temperature estimated from N<sub>2</sub> rotational spectra is always close to room temperature but the discharge is more energy efficient (in the HF range) as a lower fraction of energy turns into gas heating.

Since the mid 1980s, dielectric barrier discharges (DBDs) have been known to be an efficient way to generate diffuse discharges at atmospheric pressure [37, 38, 112]. Since then, studies have mainly focused on two intervals of the radio-frequency range, namely, the low-frequency range (LF), defined as 30-300 kHz (in practice, often including frequencies below) and the high-frequency range (HF) defined as 3-30 MHz. In the low-frequency range, helium DBD typically give rise to an atmospheric pressure glow discharge (APGD) that is similar to the low-pressure DC discharge [113]. It features a positive column and a cathode fall that oscillate according to the excitation frequency. The light intensity is usually maximum close to the cathode. Low frequencies also give rise to the atmospheric-pressure Townsend discharge (APTD) [114]. Typically, in nitrogen gas, the APTD is characterized by its low ion density. Consequently, the applied electric field is undisturbed by the low space charge in the gas and the light intensity is maximum close to the anode.

On the other hand, in the high-frequency range, the discharge is usually identified as a radio-frequency (RF) discharge. Diffuse atmospheric-pressure discharges are mainly categorized in three different modes : the  $\alpha$  mode [15, 115], the  $\Omega$  mode [71] and the  $\gamma$  mode [68, 116]. The first two ones rely on Ohmic heating. In this case, the electron density is always maximum in the middle of the gas gap (if recombination is neglected). Then the light emission is maximum in the sheaths (close to the solid surfaces) or in the middle of the gas gap whether the space charge modifies the electric field significantly or not. This gives rise to the  $\alpha$  or the  $\Omega$  mode respectively [72]. The third diffuse discharge mode that is sustained in the HF range is characterized by a large contribution of secondary electrons emitted at the solid surface. The ion density is then maximum in the sheaths while the light emission is concentrated very close to the solid surface.

While the discharge behavior is well understood for frequencies in the LF and the HF range, only a very few studies were performed for the frequency band in-between, namely the medium-frequency range. According to the International Telecommunication Union (ITU) the medium frequency (MF) range spreads from 0.3 to 3 MHz [43, 117]. In plasma physics, this frequency band is a transitory

region between low and high frequencies. In an atomic gas, below the MF range, the electric field oscillations are slow enough for the charged species (electrons and He or He<sub>2</sub> ions, in the case of a helium discharge) to follow it. On the other hand, above the MF range, ions might be considered static while the electrons oscillations are dramatically reduced. Accordingly, plasma scientists often refer to LF range when ions can follow the electric field (typically below 300 kHz, including the very low-frequency (VLF) range, etc.) and HF range when ions are approximately static (typically above 3 MHz). Therefore, the aim of the present study is to investigate the behavior of a DBD over a frequency range spanning from LF to HF.

Previous studies on the effect of the frequency on a helium diffuse DBD were focused on the low or the high-frequency range separately [73, 118–122]. In argon and ammonia Penning mixture, some studies were carried over a wide frequency range [90, 123, 124]. However, the gas nature and the DBD configuration often give rise to different behaviors. In a previous paper, we showed that in a helium DBD, two diffuse discharge modes can be sustained in the MF range, namely the  $\Omega$  mode and a mode showing an emission pattern similar to that of the RF- $\alpha$  mode [87]. These two modes are obtained in the same experimental conditions except for the applied voltage. While our previous endeavors were focused on identifying these discharge modes between 1.0 and 2.7 MHz, in this paper, we investigate the discharge behavior beyond the boundaries of the medium-frequency range. The frequency is therefore varied from 25 kHz to 15 MHz while the RMS applied voltage is varied from 190 to 850 V. Section 3.2.1 describes the experimental setup while sections 3.2.2 and 3.2.3 are devoted to results and analysis of time-averaged and time-resolved discharge diagnostics respectively. Finally, results are interpreted and discussed in section 3.2.4.

### 3.2.1 Experimental setup

The plasma reactor consists of a plane parallel DBD with one solid dielectric on each electrode. The discharge cell is placed in a chamber connected to a mechanical pump aiming to minimize the amount of impurities. Experiments are thus

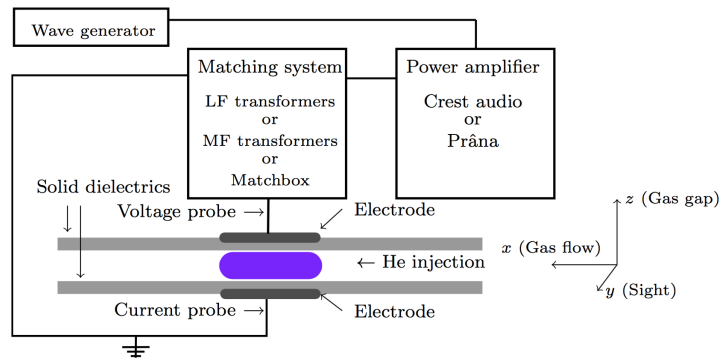


Figure 3.1 – Discharge cell and electrical circuit. The gas is flowing along the  $x$  axis, from the right to the left. The gas gap of 2 mm between the dielectrics lies along the  $z$  axis, while the line of sight of the optical measurements (camera and spectrometers) lies along the  $y$  axis.

performed in a well-controlled atmospheric environment at a pressure of 101.3 kPa with a constant helium flow (99.999% purity) of  $8.3 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  through a 2 mm gap between the alumina solid dielectric surfaces. The linear flow speed is about  $0.06 \text{ m s}^{-1}$ , a value that is sufficient to ensure a gas refresh rate that allows the impurities to be limited. More precisely, in another paper, the impurity percentage was estimated using the time constant of the helium metastable atoms density determined during the afterglow of the discharge at 50 kHz (in the same conditions as here), i.e.  $2.3 \mu\text{s}$ . The quenching of the metastable atoms corresponds to that caused by either 15 ppm of water impurities or 130 ppm of air impurities [125].

The electrodes cover a symmetric area of  $10 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$  on each dielectric (solid dielectric thickness of 1 mm). With respect to figure 3.1, the gas is flowing along the  $x$  axis across the 10 mm electrode length. In order to achieve frequencies ranging from 25 kHz to 15 MHz, three distinct power supply systems are employed. In each case, the waveform generator (Agilent 33220A) delivers the corresponding sinusoidal voltage to a power amplifier. However, the power amplifier and the matching circuit depends on the targeted frequency. Table 3.I enumerates the frequencies tested along with the corresponding power system.

Current measurements are always performed with a Rogowski coil (Lilco 13W5000) located on the grounded electrode while voltage measurements are achieved with a

Frequencies (kHz)	Amplifier	Matching
25 - 50 - 75 - 100 - 125	Crest Audio	Transformer
150 - 200 - 280 - 370 - 550 - 730 - 1000 - 1500 1 600 - 2 100 - 2 700 - 3 700 - 4 900 - 5 000	Prâna	Transformer
10 000 - 11 000 - 12 000 - 13 560 - 15 000	Prâna	Matchbox

Tableau 3.I – Frequencies tested and the power supply systems used to tune it. Frequencies ranging from 25 to 125 kHz are amplified by a Crest Audio amplifier (CC4000) matched with a transformer. Frequencies ranging from 150 to 5000 kHz are amplified by the Prâna amplifier (GN 500) and matched using a set of non-commercial transformers. The frequency is tuned to be at the resonance of the system made by the transformer and the discharge cell [124]. Frequency variation induces voltage amplitude variation, however, for a given frequency, the voltage amplitude can be varied by changing the waveform generator voltage amplitude. In this case, the exact frequency is very sensitive to the quality of the connexions (noncommercial soldering). Consequently, the frequency can vary up to 3% of the indicated values. From 10 MHz and beyond, the same Prâna amplifier is used but the transformer is replaced by an Advanced Energy (Navio) digital matching network allowing to tune the frequency.

probe (Tektronix P6015) placed on the high-voltage electrode. The latter is connected directly to the transformers secondary coil (below 10 MHz) or to the electrode cable inside the chamber (10 MHz and above, when no transformer is used). The electrical measurements are recorded via an oscilloscope of 1 GHz bandwidth (Tektronix DPO 4104). Using the electrical measurement, the power density is obtained by dividing the measured power ( $P$ )

$$P = f \int_0^{1/f} V(t) \cdot I(t) dt, \quad (3.1)$$

by the measured volume ( $\mathcal{V}$ ) of the discharge. In equation (3.1),  $f$  is the frequency,  $V(t)$  is the instantaneous measured voltage and  $I(t)$  is the instantaneous measured current. The volume is obtained by direct measurement of discharge lengths. While the discharge always fills the entire gap from a dielectric to the other ( $z$  axis), the discharge extent in the  $x$  and  $y$  axes are measured with rulers located in the reactor

[87] (see figure 3.1).

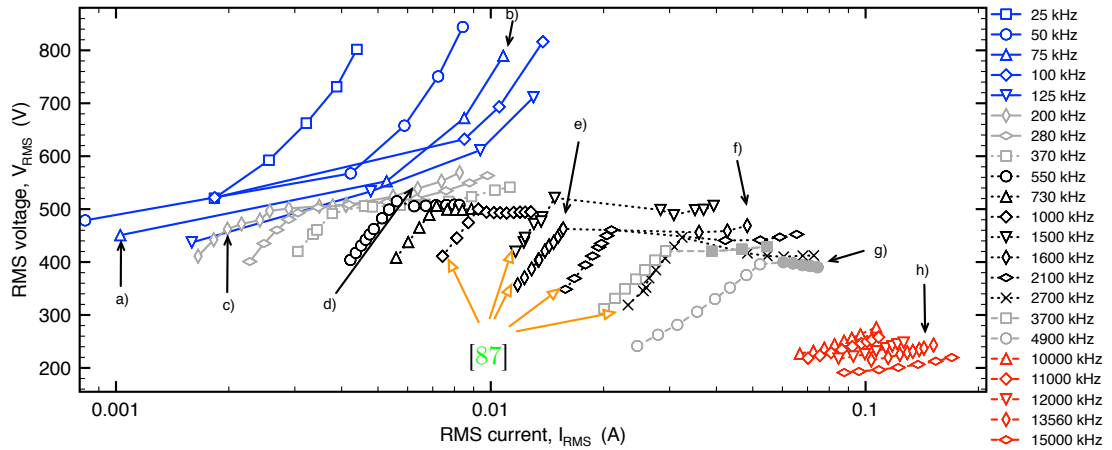


Figure 3.2 –  $I_{RMS} - V_{RMS}$  characteristic curves for different frequencies from 25 kHz to 15 MHz. Blue solid lines indicate frequencies for which the behavior is typical of the LF range (including 25 kHz in the VLF range), black dotted lines indicate frequencies for which the discharge behavior is typical of the MF range and red dashed lines indicate frequencies for which the discharge behavior is typical of the HF range. Gray lines indicate transitory frequencies for which the discharge behavior is unclear. The letters indicate the current and voltage associated with pictures in figure 3.3. The curves indicated by orange arrows are those already reported [87].

In addition to the electrical measurements, the optical emission of the discharge was recorded. Time-resolved optical emission was recorded using a Princeton PI-max 2 camera (300 to 900 nm). An optical filter (center wavelength at 707 nm and bandpass of 10 nm FWHM) was occasionally added in front of the camera in order to measure the emission of helium at 706.4 nm :  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$ . The emission spectra were recorded by a Maya 2000-Pro spectrometer system (165 to 1100 nm) including a Hamamatsu S10420 Detector. A Princeton instrument Acton SP2500 spectrometer equipped with the PI-max 2 camera was also used to record rotational spectra of  $\text{N}_2(\text{C}^3\Pi_u \rightarrow \text{B}^3\Pi_g)$  in order to estimate the gas temperature. In each case, the light was collected along the  $y$  axis, perpendicularly to the gas flow direction.

### 3.2.2 Time-averaged characterization

In this section, we provide an overview of the discharge behavior in the complete range of experimental parameters, i.e. from 25 kHz to 15 MHz and from 0 to 850 V<sub>RMS</sub>. Differences as well as similarities are highlighted via electrical and emission spectroscopy characterizations. Then, temperature measurements are discussed with respect to selected frequencies.

#### 3.2.2.1 Identification of discharge modes

To illustrate the extent of the diffuse conditions, figure 3.2 shows the RMS current and voltage evolution for most of the frequencies available. The  $I_{RMS} - V_{RMS}$  curves are obtained by increasing the voltage of the waveform generator while measuring the RMS voltage and current. Experiments always started at 0 V of applied voltage and stopped before leak discharge or instabilities could occur (arbitrary upper boundary). Let us note that the illustrated data were recorded only during the increase of the applied voltage. Additional conditions are also accessible considering the decreasing part of the applied voltage. For instance, at some frequencies, it is still possible to sustain a discharge significantly below the breakdown voltage (see section 3.2.4). Based on long exposure camera measurements together with oscillograms of current and voltage, the discharge is always found diffuse except between 3.7 and 4.9 MHz where the discharge displays some instabilities when high voltage is applied. Diffuse conditions are represented by open symbols in figure 3.2.

Although precise quantitative analysis of the  $I_{RMS} - V_{RMS}$  curves would require to consider the discharge current and the voltage applied to the gas instead of the measured current and voltage, important information with respect to the classification of the discharge modes can be found in figure 3.2. For instance, inflections of the  $I_{RMS} - V_{RMS}$  curves of figure 3.2 can be interpreted as major change in the discharge behavior, i.e. mode transitions. Accordingly, figure 3.3 shows examples of gas gap pictures (wavelength integrated from 300 to 900 nm) for different  $I_{RMS} - V_{RMS}$  conditions reported in figure 3.2. Power density is indicated

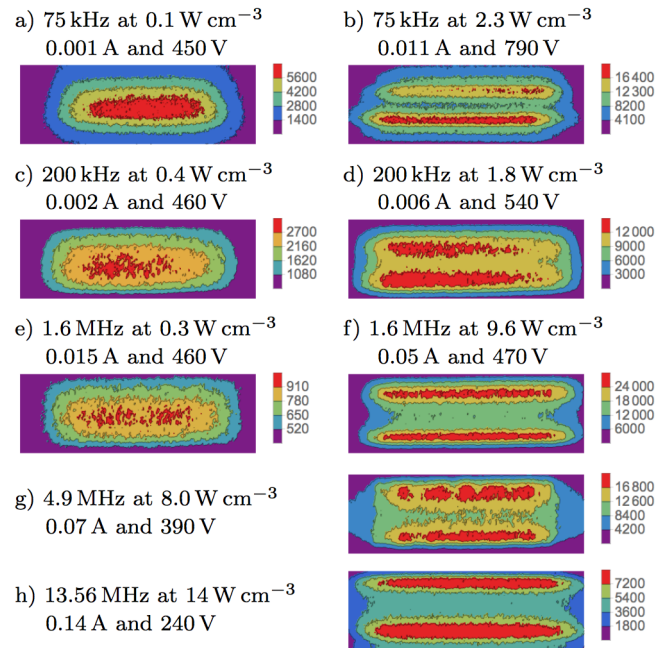


Figure 3.3 – Pictures of the discharge for different frequencies and power densities corresponding to the labeled  $I_{RMS} - V_{RMS}$  data of figure 3.2. Exposure varies from 1 to 100 ms. Intensities in arbitrary units are indicated at the right of each picture.

on the pictures to better compare conditions at different frequencies. From these images only two emission patterns can be distinguished : either emission is concentrated in the bulk or it is concentrated in the sheath regions. Actually, emission is concentrated in the bulk from 50 kHz to 4.9 MHz, when the applied voltage is close to breakdown voltage (up to inflection). For every other conditions the light emission is concentrated close to the solid dielectrics. This is after inflection (when it exists) or during the whole curve (when no inflection occurs). Let us note, that picture 3.3g exhibits instabilities that occur at 3.7 and 4.9 MHz when the applied voltage is high enough.

Going back to figure 3.2, one can foresee some discharge modes with respect to the inflections of the  $I_{RMS} - V_{RMS}$  curves. Whatever the frequency is, we will refer to the low-power mode before the  $I_{RMS} - V_{RMS}$  inflection i.e. when emission takes place in the gas bulk. Similarly, we will refer to the high-power mode after the  $I_{RMS} - V_{RMS}$  inflection, when the light is emitted close to the dielectric surfaces. In



the low-frequency range (solid blue lines), the inflection of the  $I_{RMS} - V_{RMS}$  curve gives rise to the low-power LF and to the high-power LF modes. In the MF range (dotted black lines), the inflection of the  $I_{RMS} - V_{RMS}$  curve gives rise to the low-power MF and the high-power MF modes. Finally, from 10 MHz and above (dashed red lines), when no inflection occurs in the  $I_{RMS} - V_{RMS}$  curves, the corresponding mode will be referred as the high-power HF mode. The boundaries of these modes with respect to the frequency are difficult to identify in figure 3.2. Consequently, the gray lines represent transitions for which the classification of the modes are still to be determined. Discharge modes are roughly indicated in table 3.II.

Tableau 3.II – Discharge classification based on  $I_{RMS} - V_{RMS}$  inflections and long exposure pictures.

LF range	MF range	HF range
25 to 100 kHz	0.2 to 3 MHz	5 to 15 MHz
Low-power LF	Low-power MF	
High-power LF	High-power MF	High-power HF

Before deploying efforts to understand the mechanisms underlying these discharge modes and investigating their boundaries, we briefly comment some spectroscopic features of the discharge modes.

### 3.2.2.2 Spectrally-resolved discharge emissions

Even if the discharge behavior is completely different when the frequency grows from 25 kHz to 15 MHz, some features are quite similar, as illustrated by the time integrated spectra shown in figure 3.4. The same emitting species are present in all spectra. Significant intensity of  $\text{OH}(A^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Pi)$  ( $\lambda = 306.4$  nm),  $\text{N}_2(\text{C}^3\Pi_u \rightarrow \text{B}^3\Pi_g)$  ( $\lambda = 337.8$  nm) and  $\text{N}_2^+(\text{B}^2\Sigma_u^+ \rightarrow \text{X}^2\Sigma_g^+)$  ( $\lambda = 391.4$  nm) molecular bands as well as  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$  ( $\lambda = 706.4$  nm) and  $\text{O}(3^5\text{P} \rightarrow 3^5\text{S})$  ( $\lambda = 777.5$  nm) atomic lines are observed. We note that while the lines present in the visible spectrum are the same for each frequency and power density, their ratios can vary substantially with respect to experimental parameters (e.g. figure 3.4a compared to figure 3.4b).

While the plasma composition should be constant whatever the frequency is, this suggests changes in the electron dynamics.

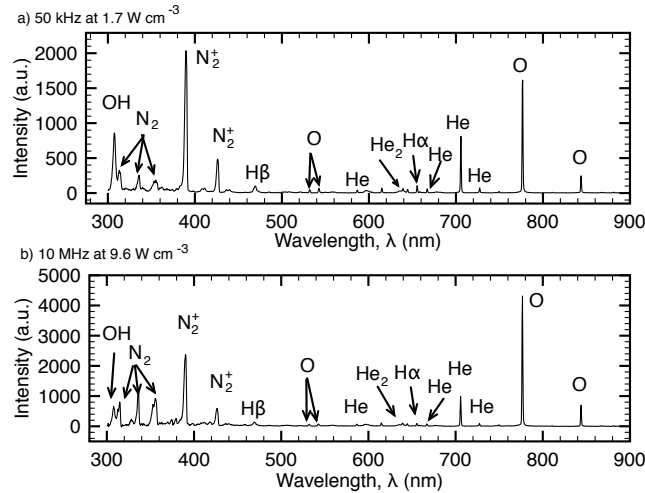


Figure 3.4 – Optical emission spectra corrected by the response curve of both spectrometer and detection system for the discharge at a) 50 kHz for  $1.7 \text{ W cm}^{-3}$  and b) 10 MHz for  $9.6 \text{ W cm}^{-3}$ .

The emission at 706.4 nm is the strongest one among helium emissions and it can easily be detected in all conditions. Therefore, in the following sections, many experimental investigations will be devoted to this transition. In order to understand the upcoming results, let us note that the  $\text{He}(3^3\text{S})$  state can be populated by three main mechanisms, namely direct electron impact on helium ground state (threshold energy of 22.7 eV) [98], electron impact with  $\text{He}(2^3\text{S})$  metastable state (threshold energy of 2.9 eV) [108] and dissociative  $\text{He}_2^+$  recombination with low-energy electrons [100]. Therefore, the presence of the  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$  emission should be related to either a significant concentration of electrons with energy higher than 22.7 eV or a few high-energy electrons compensated by a significant concentration of metastable atoms or  $\text{He}_2^+$  ions. For a deeper discussion on the observed transitions and the origin of their emission, see [87].

The emission from nitrogen molecule,  $\text{N}_2(\text{C}^3\Pi_u \rightarrow \text{B}^3\Pi_g)$ , is also present in all of the conditions tested. Its presence is usually associated with impurity desorption from the solid dielectrics [97]. In fact,  $\text{N}_2(\text{C}^3\Pi_u)$  has been used as a thermal probe

in similar cases [87, 110, 126]. Here, the transition  $N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$  is used as a thermal probe via rotational spectroscopy. By fitting the recorded rotational spectra with the Specair program [106], we calculated the gas temperature by multiplying the fitted rotational temperature by 1.095 (rotational factor correction of the ground state [107]). By means of a thermocouple probing the dielectric surface near the electrode area, the dielectric temperature ( $T_{die}$ ) was also recorded. Both measured temperatures are shown for selected frequencies in figure 3.5.

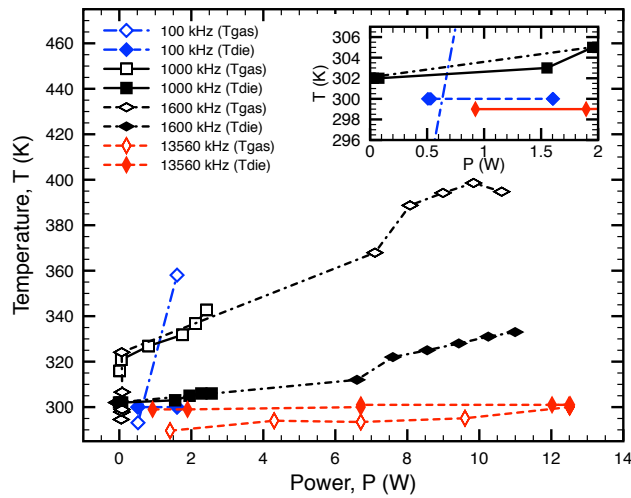


Figure 3.5 – Dielectric temperature ( $T_{die}$ ) and gas temperature from  $N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$  rotational spectra ( $T_{gas}$ ) as a function of the power at different frequencies. The rotational spectra are spatially integrated and the exposure varies between 100 and 1000 ms. The rotational temperature is obtained by fitting the experimental spectra to simulated spectra generated by the Specair program. Dielectric temperatures are measured with a thermocouple placed near the discharge zone between the solid dielectrics. The inset is a magnification of the zone of low power and low temperature. Uncertainties are about 3 and 50 K for dielectric and gas temperature respectively.

Figure 3.5 shows that, at each frequency, both rotational and dielectric temperatures increase with power. Whatever the frequency is, at the lowest power, the dielectric temperature is at room temperature and the gas temperature calculated from  $N_2$  rotational spectra is slightly lower (likely due to the gas temperature drop from the pressure release between the gas bottle and the reactor). In the LF range, at 100 kHz, the gas temperature increases very steeply up to 360 K with the power

while the dielectric temperature is constant at 300 K. This suggests that, in the LF range, surface cooling by the helium feed at room temperature is more efficient than surface heating by the discharge. For frequencies in the MF range (e.g. at 1 and 1.6 MHz), both temperatures vary in a similar manner. Their variations are clearly related to the discharge modes : low-power and high-power MF modes. In this case, the gas temperature maximum is 400 K and the maximum dielectric temperature is 335 K. Finally, in the HF range, for 13.56 MHz, both temperatures are almost constant. In agreement with discharge in similar conditions (HF range in pure helium), the gas temperature does not exceed 300 K [69].

### 3.2.3 Time-resolved characterization

In this section, time-resolved light emission is investigated as a function of the frequency. In order to facilitate the discussion, we will first consider the case of the high-power modes, and then the low-power modes.

#### 3.2.3.1 High-power discharge modes

In order to describe the basic mechanisms behind frequency transitions, let us consider the time-resolved optical emission (wavelength integrated from 300 to 900 nm). Figure 3.6 shows the spatio-temporal distribution of the spectrally integrated emission along the gas gap over one cycle for various frequencies from the LF to the HF range. The high-voltage electrode lies above the solid dielectric located at 2 mm (along the  $z$  axis) while the grounded electrode lies below the solid dielectric located at 0.0 mm. To represent the light distribution from one electrode to the other as a function of time, each picture is integrated along the direction parallel to the gas flow (the  $x$  axis) and the results are adjoined to get the variation of the spatial distribution of the light from an electrode to the other as a function of time. Results are presented over one cycle. Each figure is made from at least eight pictures and time resolution is increased from 100 to 15 ns when the frequency increases. The first picture of a series is triggered when the measured

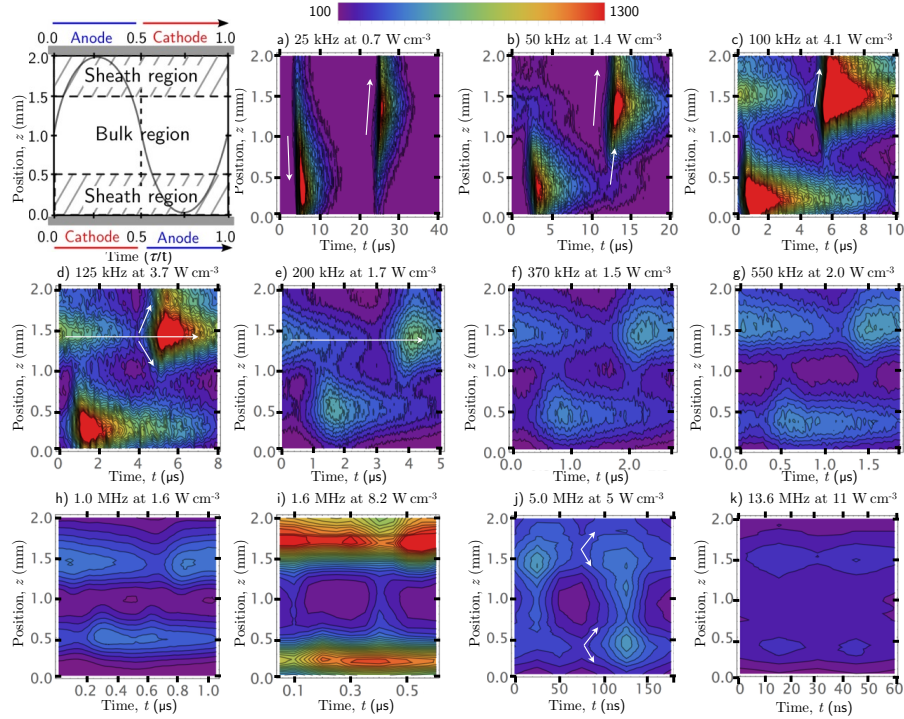


Figure 3.6 – Time evolution of the light emission along the gas gap over one cycle for high-power modes at different frequencies. The first picture acquisition is synchronized with the measured voltage intersection with zero, making the upper electrode positive during the first half-period. Each measurement is recorded with a different number of accumulations and exposure time varying from 200 to 20 000 and from 15 to 100 ns respectively. Every recording is on the same scale as intensities are corrected by the number of accumulations and the exposure. A schematic of the images indicates relevant gap zones and the position of the transient anode and cathode.

voltage intersects 0 V towards positive values. This means that the upper electrode is the anode for the first half-period and the cathode for the second half-period.

Considering the optical emission spectrum of the discharge in figure 3.4 and the spectral response of both camera and lens (more sensitive in UV than in visible), the light emission of figure 3.6 should represent mainly  $\text{OH}(A^2\Sigma^+)$ ,  $\text{N}_2(C^3\Pi_u)$ , and  $\text{N}_2^+(B^2\Sigma_u^+)$ . While  $\text{OH}(A^2\Sigma^+)$  and  $\text{N}_2^+(B^2\Sigma_u^+)$  are mostly populated by stepwise excitation using helium metastable atoms,  $\text{N}_2(C^3\Pi_u)$  is usually populated by direct excitation [87, 98]. Accordingly, the emission recorded in figure 3.6 represents the

excitation from various contributions (direct excitation, stepwise excitation, etc.) and can barely be associated with the ionization rate. Nonetheless, let us describe figure 3.6 with respect to the discharge modes previously suggested from LF to HF :

1. **High-power LF mode.** First, at 25 kHz (figure 3.6a), the discharge exhibits features expected from a typical LF APGD [113, 127] : the maximum light emission occurs on the cathode side and, during the discharge development, light emission propagates mostly from the anode to the cathode. At each position in the gas gap, the emission falls below 10% of the maximum value over about 20% of the cycle suggesting that very few energetic species remain in the gas between two pulses. From 50 kHz, the discharge behavior starts to slightly deviate from that of a typical LF APGD. While the maximum intensity value is similar to that of 25 kHz, the emission intensity never falls below 10% (on the whole gap) because of the reduction of the half period. We observe that the tail of the glow at the cathode connects to the ignition of the following pulse in the spatial region newly became the anode side. There is still a region where the emission is below 10%, namely the anode side before it becomes the cathode side. At 100 kHz (figure 3.6c), not only the tail of the cathode region connects to the anode region half a cycle later but it also connects to the cathode region one complete cycle later. Only in the bulk there is a small delay during which the emission is below 10% of the maximum. However, the discharge is still clearly a LF APGD as the pulse grows from the anode to the cathode and the maximum emission is on the cathode side.
2. **Transition.** At 125 kHz (figure 3.6d), the emission pattern becomes more spatially symmetric, i.e. the emission does not grow simply towards the cathode. The emission starts from the sheath region and increases from the middle of the sheaths towards both the dielectric surface (cathode side) and the bulk. On the other hand, the intensity of the sheath falls as low as 20% of the

maximum, illustrating the still largely fluctuating emission.

3. **High-power MF mode.** At 200 kHz (figure 3.6e), the cycle duration is 500 ns. The intensity fluctuation during the cycle becomes very weak (about 50% of the maximum intensity in the sheath). In addition, the light emission of the bulk is almost constant over the whole cycle. This suggests that the positive column of the APGD is now very homogeneous over the time-period. Let us note that the maximum emission is always on the cathode side while no relative maximum appears on the anode side, hence, the emission on the anode side should only be due to the long-lived species that remains from the previous cycle. Because of its continuous positive column and light evolution from the sheath region towards both the bulk and the dielectric surface, this mode can no longer be identified as an APGD (in the LF APGD sense [13]). However, since there is no relative maximum on the anode side ( $\alpha$  mode signature), it cannot be identified as the RF- $\alpha$  mode either. Therefore, we will refer to this mode as the hybrid mode. A similar behavior occurs up to 1.6 MHz. However, at 1.6 MHz, the power density is significantly higher than at lower frequencies in the MF range. The light emission is also slightly closer to the solid dielectrics. This corresponds to one of the  $I_{RMS} - V_{RMS}$  curves with an RMS current jump in figure 3.2. In fact, even if the light emission proposes that the same discharge mechanism underlies the discharge from 200 kHz to 2.7 MHz, the discharge mode appears to be slightly different below and above 1 MHz.
4. Transition. Between 2.7 and 5 MHz, according to figure 3.3g there is a transition region. However, no time-resolved data was recorded in this range.
5. **High-power HF mode.** From 5.0 MHz (figure 3.6j), the  $\alpha$  mode is finally well established. The emission becomes more symmetric between the anode and the cathode, i.e. there is a relative maximum on both sides at about the same time. This is similar to the RF- $\alpha$  mode of atmospheric-pressure discharges in helium [65, 69]. In addition, this mode is identified as  $\alpha$  rather

than  $\gamma$  on the basis of the following arguments : 1) the observed ratio between the intensity near the surfaces and the intensity in the bulk is much lower than in the  $\gamma$  mode [65, 67], 2) the recorded light emission is located much farther from the surface than it would be in the  $\gamma$  mode [65, 67], and 3) the measured light emission pattern displays the same space and time relative maxima than the simulated electric field [71]. Let us note that, the same behavior is observed at 13.56 MHz (figure 3.6k) although the time resolution of the recorded data is not as good as for other frequencies because of the shorter time-period (73.7 ns).

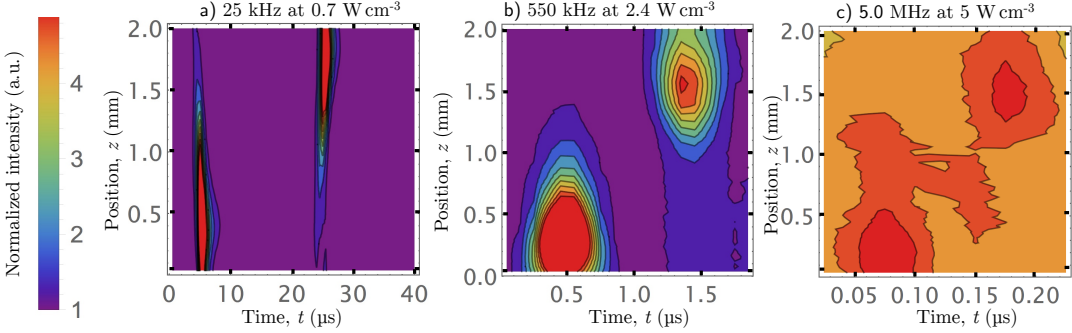


Figure 3.7 – Time evolution of the helium  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$  emission along the gas gap. The acquisition of the first picture is synchronized with the measured voltage intersection with zero, making the upper electrode positive during the first half-period. Each measurement is recorded with a different number of accumulation and exposure : a) 25 kHz for 100 ns gate width and 40 000 accumulations, b) 550 kHz for 50 ns gate width and 20 000 accumulations and c) 5.0 MHz for 25 ns gate width and 10 000 accumulations. Every recording is on the same scale as intensities are corrected by the number of accumulation and the exposure

A better understanding of the discharge evolution can be reached from the helium  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$  emission as a function of the frequency. This emission is measured with a 10 nm bandpass filter centred on 707 nm. Using the same procedure as for figure 3.6, figure 3.7 shows the spatial distribution of the helium emission along the gas gap.

1. **APGD mode.** At 25 kHz, the helium emission grows from the anode to the



cathode and no emission is detected during a significant part of the time-period. This is quite similar to the integrated emission shown in figure 3.6a with the difference that the helium emission last for a shorter period of time than the integrated emission.

2. **Hybrid mode.** At 550 kHz, unlike the integrated emission, the helium emission is neither connected in space nor in time and falls below the detection level between two half-cycles. We note that the emission starts from the sheath regions and grows towards both the bulk and the dielectric surface but in contrast to the integrated emission, no significant helium emission is recorded on the anode side. Above 500 kHz ( $1/f \leq 2 \mu\text{s}$ ), assuming that the density of helium metastable atoms is almost constant during the whole cycle and across the entire gas gap (the lifetime of  $\text{He}(2^3\text{S})$  metastable atoms was measured to be  $2.3 \mu\text{s}$  by using a diode laser [125]), the  $\text{He}(3^3\text{S})$  state should be easily populated by stepwise excitation. As a consequence, the absence of  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$  emission on the anode side suggests that unlike the RF- $\alpha$  mode [71], ionization does not occur significantly in this region (see figure 3.7c for comparison).
3. **RF- $\alpha$  mode.** At 5.0 MHz, the helium emission is maximum on the cathode side (similarly to all other frequencies in their high-power mode). However, in agreement with ionization rate simulated in similar conditions [71], there is a small increase of the helium emission on the anode side. This suggests that the hybrid mode is different than the RF- $\alpha$  mode. Let us note that the signal to noise ratio is not as good as for other frequencies.

Finally, in order to compare the hybrid mode to the APGD mode, the decay of the  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$  emission as a function of time is illustrated in figure 3.8 for both the APGD and the hybrid modes. Emission at the position  $z = 1.5 \text{ mm}$  (see figure 3.7) is considered with  $t = 0 \mu\text{s}$  chosen at the maximum intensity. Since the  $\text{He}(3^3\text{S})$  state is radiative, it is expected that its loss is controlled by spontaneous emission (collisional quenching can become important at atmospheric pressure but it should

be the same in every condition under investigation). Then, the intensity should be proportional to the population of  $\text{He}(3^3\text{S})$  which should depend on the electron density and metastable density as the  $\text{He}(3^3\text{S})$  is created by electron collisions from the fundamental level or from the metastable level by a two-step process. In

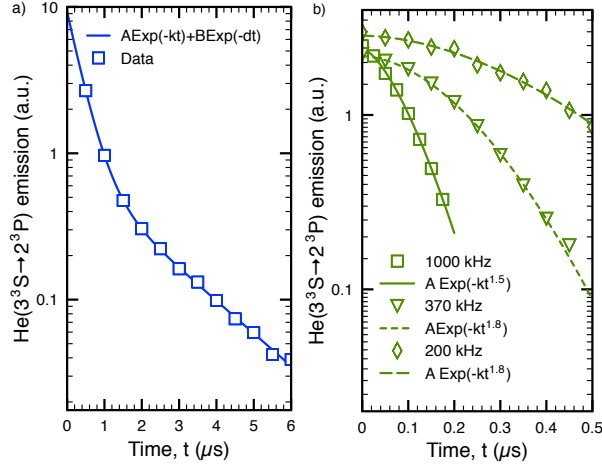


Figure 3.8 – Decrease of the  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$  emission intensity at  $z = 1.5$  mm as a function of time. Data extracted from figures similar to those of figure 3.7. a) APGD mode at 25 kHz and  $0.7 \text{ W cm}^{-3}$ . b) Hybrid mode at 1 MHz, 370 and 200 kHz.

figure 3.8, very different behaviors are observed for frequencies above (figure 3.8b) and below or equal to 100 kHz (Figure 3.8a). From 200 kHz, the usual exponential decrease is replaced by a slower decrease. This occurs when the time scale of the memory effect shifts from half a cycle to a full cycle, resulting in a longer accumulation of different species which induce higher densities. Thus, a possible explanation for this observation is that the recombination of  $\text{He}_2^+$  and electrons significantly participate to the population of  $\text{He}(3^3\text{S})$  when the memory time scale increases. However, when the frequency increases from 200 to 1000 kHz, the  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$  decays faster while still governed by the same decreasing function. This could be explained by the lower electron energy considering that the ignition phase is reduced, thereby reducing the contribution of direct and stepwise excitations in the  $\text{He}(3^3\text{S})$  population.

### 3.2.3.2 Low-power discharge modes

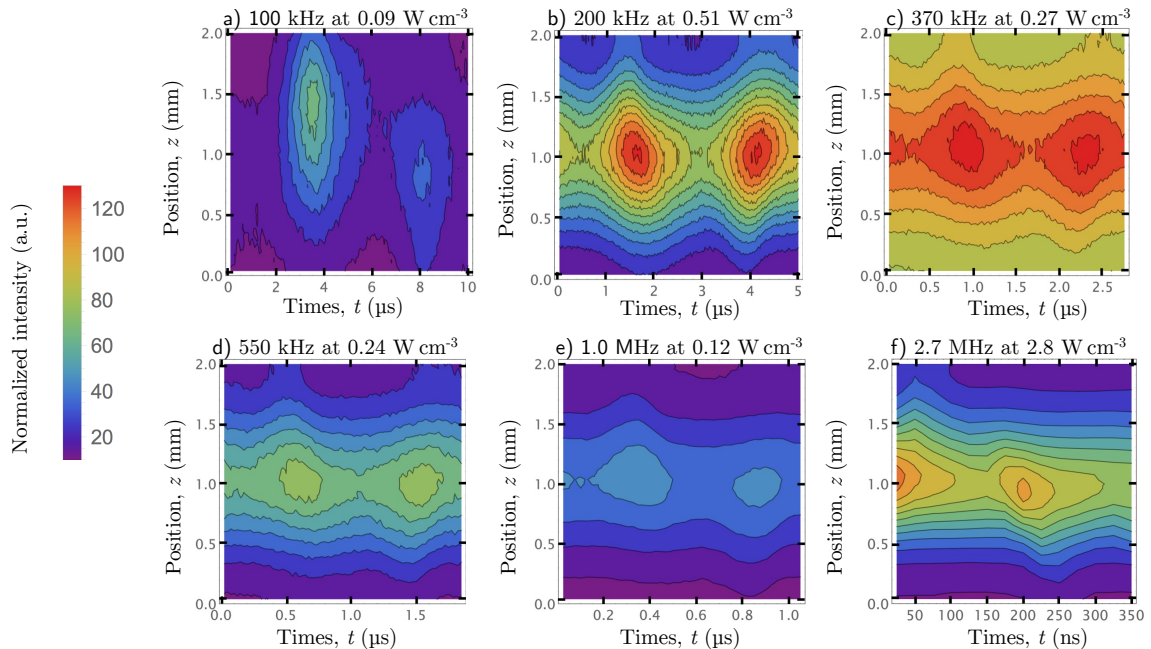


Figure 3.9 – Time evolution of the spectrally integrated light emission along the gas gap. The acquisition of the first picture is synchronized with the measured voltage intersection with zero, making the upper electrode positive during the first half-period. Each measurement is recorded with a different number of accumulation and exposure varying from 200 to 20 000 and from 25 to 100 ns respectively.

When the applied voltage is close to its breakdown value and the frequency lies between 50 kHz and 2.7 MHz, the spectrally-integrated emission is concentrated in the bulk (see figure 3.3). In order to investigate the behavior of the discharge in such conditions, let us consider time-resolved optical imaging. Figure 3.9 shows the spatial distribution of the spectrally integrated emission along the gas gap.

1. **Low-power LF mode.** At 100 kHz, one observes that the emission is stronger on the anode side than on the cathode side. This behavior significantly differs from the APGD at 100 kHz depicted in figure 3.6c. To be more precise, let us consider the  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$  transition. This is achieved in figure 3.10 where the time evolution of the distribution of  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$  line emission

along the gas gap is illustrated at 100 kHz. Helium emission reaches a maximum at the anode with a strong increase from the cathode. This behavior is similar to the APTD and can be explained by a quasi-uniform electrical field in the gap. As the electron energy is constant over the gap, emission is maximum where the density of electrons is the highest, i.e. at the anode [39]. This suggests that the ion density is too weak to enhance the electric field locally and form a cathode fall. Such a behavior is a characteristic of APTD and the corresponding mode will be referred as APTD-like (APTD-L) mode.

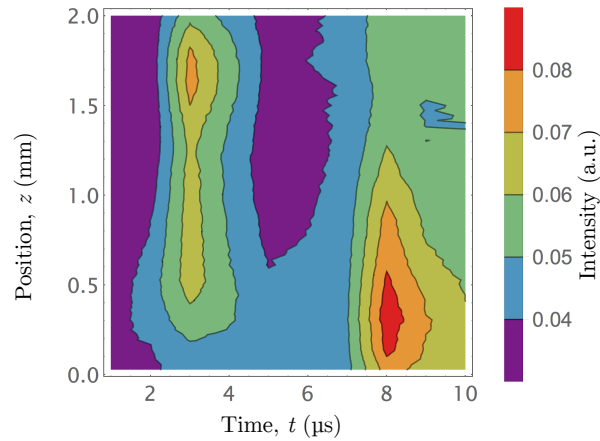


Figure 3.10 – Time evolution of the distribution of  $\text{He}(3^3\text{S} \rightarrow 2^3\text{P})$  line emission along the gas gap. The acquisition of the first picture is synchronized with the measured voltage intersection with zero, making the upper electrode positive during the first half-period. The frequency is 100 kHz and the power density is  $0.09 \text{ W cm}^{-3}$ . The pictures were recorded with 200 000 accumulations and exposure of  $1 \mu\text{s}$ .

2. **Transition.** Between 100 and 200 kHz, there is a transition region. However, no time-resolved data was recorded.
3. **Low-power MF mode.** From 200 kHz to 2.7 MHz, light emission behaves very similarly. It is concentrated in the bulk and oscillates according to the applied voltage. The emission is continuous over the whole cycle, which means that the light intensity never falls below 70% of the maximum value (at position  $z = 1 \text{ mm}$ ). Like for the APTD-L mode, there is no cathode fall

signature and the ion density is low. In addition, the emission builds up from the bulk to the dielectrics. This behavior is in agreement with that occurring for the  $\Omega$  mode [71, 72] previously reported in the MF range [87].

### 3.2.4 Discussion

In section 3.2.2, we defined possible discharge modes as a function of the power they absorb and the approximate range of frequency in which they could be obtained. With the help of fast imaging, these modes were identified as APGD, APTD-L,  $\Omega$ , hybrid and RF- $\alpha$  modes. This allows us to convert table 3.II into table 3.III in which the discharge modes are now pointed out. Before undertaking a more specific classification, let us consider a novel analysis of the rotational temperature and a brief comment about the discharge modes in the MF range.

Tableau 3.III – Discharge modes observed from 25 kHz to 15 MHz.

	LF range	MF range	HF range
	25 to 100 kHz	0.2 to 3 MHz	5 to 15 MHz
Low power	APTD-L	$\Omega$	
High power	APGD	Hybrid	RF- $\alpha$

#### 3.2.4.1 Effect of the frequency from LF to HF

In section 3.2.2.2, the gas temperature in the discharge was obtained at several frequencies. Going back to the rotational temperature of  $N_2$ , one observes that for each mode at each frequency, the rotational temperature increases linearly with the power. The slopes  $S(f)$  of these curves were calculated and are presented in figure 3.11 as a function of the frequency. The slope of the rotational temperature as a function of the power corresponds to the amount of injected energy converted into rotational energy. In other words, the higher  $S(f)$  is, the higher is the power loss to increase the rotational temperature. Therefore, figure 3.11 indicates that as  $S(f)$  decreases with the frequency, less energy is converted into rotational temperature

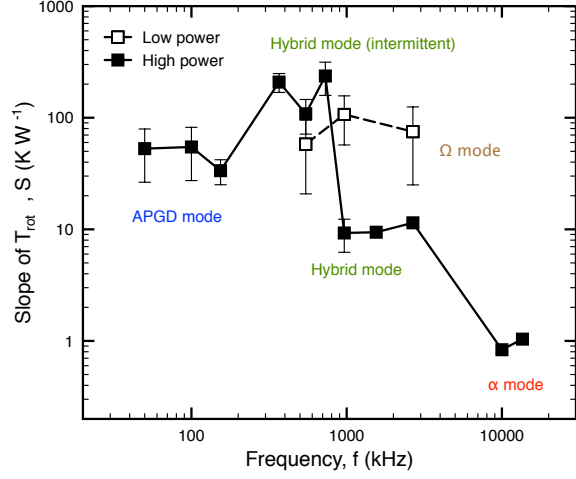


Figure 3.11 –  $T_{rot}(P)$  slope as a function of the frequency for different modes. The rotational temperature was recorded from  $N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$  spectra fitted to simulated spectra (with the help of Specair). Error bars represent the error on the fitted slope  $S(f)$ .

at higher frequencies.

Figure 3.11 shows that  $S(f)$  varies over three orders of magnitude in the frequency range investigated. It is also clearly correlated to the discharge mode. While the value of  $S(f)$  decreases from the APGD mode, to the hybrid mode (from 1 MHz and above) to the  $\alpha$  mode, it does not seem to follow the same trend for the  $\Omega$  and the hybrid (below 1 MHz) modes. For the  $\Omega$  mode, both light emission and power density are very low (see figure 3.3e, for instance) and the discharge should be almost purely resistive. As a consequence, the energy transfer to rotation should be important, hence leading to high  $S(f)$  values. Below 1 MHz,  $S(f)$  is also quite high in the hybrid mode. This could be explained by spontaneous oscillations (intermittent hybrid mode) that are observed between the  $\Omega$  and the hybrid modes (more details about this phenomenon are provided in [125]). Since  $S(f)$  is quite high in the  $\Omega$  mode, measurements corresponding to averages over the two modes should result in intermediate values (much closer to  $\Omega$  mode value since the discharge spends more time in the  $\Omega$  than in the hybrid mode [125]). We further note that the small difference between the value of the actual  $\Omega$  mode and the intermittent

hybrid mode (below 1 MHz) is not significant according to the uncertainties. In fact, the relative uncertainty on the power is much larger for the  $\Omega$  and the hybrid (below 1 MHz) modes than for the other modes. Consequently, the uncertainties are actually significantly larger than the error bars shown in this mode. Finally, we note that the APTD-L mode is absent from this figure because not enough data were available to derive the slopes.

### 3.2.4.2 Hysteresis in the MF range

As reported in a previous study [87], an interesting feature of the MF range ( $f > 1$  MHz) is the occurrence of a hysteresis when the applied voltage is increased and decreased in the same experiment. It was observed that during the transition from the  $\Omega$  mode to the hybrid mode, the RMS current jumps significantly while the measured RMS voltage slightly drops. On the other hand, during the transition from the hybrid mode to the  $\Omega$  mode, both the RMS current and the RMS voltage decrease smoothly. In the present study, we found out that this hysteresis is restricted to the hybrid mode above 1 MHz. Examples of complete  $I_{RMS} - V_{RMS}$  curves are shown in figure 3.12 where a small hysteresis is also observed at 4.9 MHz. This occurs when instabilities are observed, i.e. when the discharge is not purely diffuse (data indicated by filled symbols in figure 3.2).

From figure 3.12, it is also possible to infer that the slope of the  $\Omega$  mode decreases when the frequency increases. In addition, the discharge is sustained at RMS current and voltage significantly lower than the breakdown value at and beyond 10 MHz. This behavior is only observed in the HF range and is associated with the time averaged light emission becoming concentrated in the bulk. This suggests that the  $\alpha$  mode smoothly switches to the  $\Omega$  mode when the applied voltage is decreased, as expected at such frequency [71]. However, the transition is smooth so that it cannot be observed in electrical measurements in contrast to the hybrid mode.

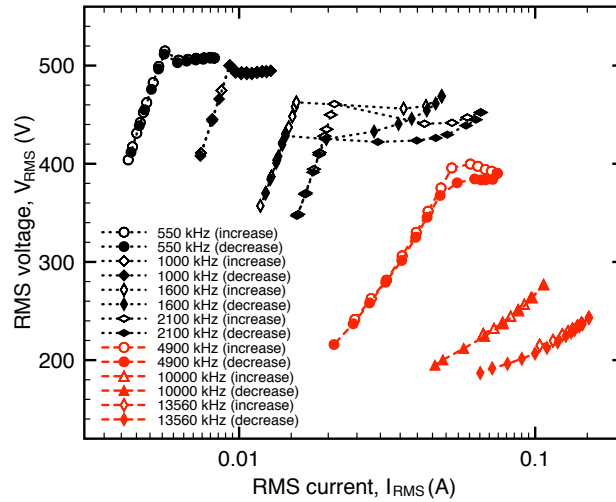


Figure 3.12 –  $I_{RMS} - V_{RMS}$  characteristic curves for different frequencies. Black dotted lines indicate frequencies in the MF range and red dashed lines indicate frequencies in the HF range. Increase of the applied voltage is in open symbols while decrease is in filled symbols.

### 3.2.4.3 Boundaries of the discharge modes

Based on the fast imaging pictures presented above along with the  $I_{RMS} - V_{RMS}$  curves of figure 3.2, it is possible to extrapolate the boundaries of the discharge modes. Using the power density calculated from equation 3.1, these modes are illustrated in figure 3.13 as a function of the frequency.

Even though the power density in the LF range remains always lower than in the HF range, it is still convenient to separate the discharge modes in low and high power for each frequency. For the high-power discharge, we can see that the APGD is obtained up to 100 kHz. Between 100 and 200 kHz, the APGD behavior is harder to identify and the frequency range is thus better referred as transition region, which is associated with a change in the memory time scale. Up to 100 kHz, the memory effect impacts the discharge one half-cycle later, while the effect last for (at least) one complete cycle above 200 kHz. Then, the hybrid mode is observed until another transition region occurs at 3.7 MHz where the discharge exhibits instabilities. Only a few data were acquired between 5 and 10 MHz. Nonetheless, the instability region appears very narrow (between 3.5 and 5 MHz) and occurs at high applied voltage



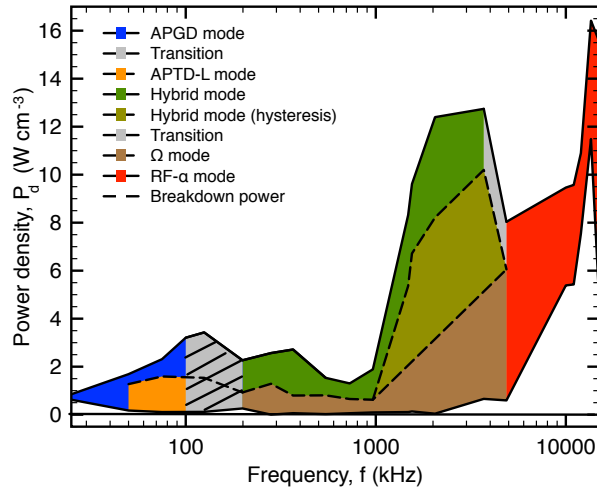


Figure 3.13 – Power density of the different observed modes as a function of the frequency. Only data acquired during the increase of the applied voltage are considered (the  $\Omega$  mode is not displayed in the HF range). Considering the power density jump when the frequency lies between 1.5 and 2.7 MHz, the zone delimited by the dashed lines represents the hybrid mode below the transition voltage level (during the hysteresis).

only.

For the low-power discharge, the APTD-L mode is observed in a narrow range from 50 to 100 kHz. Beyond 200 kHz, the  $\Omega$  mode is already present with only a narrow region of transition between 100 and 200 kHz. The  $\Omega$  mode was observed up to 2.7 MHz. However, due to the similar nature of the  $\Omega$  and the  $\alpha$  modes, it is expected that the  $\Omega$  smoothly converts to the  $\alpha$  mode as the frequency increases. This is in agreement with the conversion of the  $\alpha$  mode the  $\Omega$  mode when the applied voltage is decreased below the ignition level at frequencies above 10 MHz.

### 3.2.5 Conclusion

When the frequency of a helium DBD at atmospheric pressure lies in the range from 25 kHz to 15 MHz, several diffuse discharge modes are achieved. Fast imaging allowed us to identify that the discharge is sustained in five different modes : APTD-L,  $\Omega$ , APGD, hybrid and  $\alpha$  modes. As expected, the APGD and the RF- $\alpha$  mode

are achieved in the LF and the HF range respectively. However, we found out that the APGD switches to the hybrid mode when the frequency is increased above 200 kHz. The hybrid mode is very different from both APGD and RF- $\alpha$  modes and is sustained up to 2.7 MHz. Above 5 MHz, the more common RF- $\alpha$  mode arises.

Characterized by ohmic heating, the  $\alpha$  mode converts to the  $\Omega$  mode when the applied voltage is reduced below the ignition level. However, when the frequency is decreased below 5 MHz, the  $\alpha$  mode is no longer sustained. On the other hand, for low applied voltage, the  $\Omega$  mode is sustained down to 200 kHz. Below this frequency, fast imaging shows that light emission is no longer concentrated in the bulk but rather on the anode side. This is the APTD-L mode. The transition range spreads from 100 to 200 kHz. It is defined by the memory effect that last either half a cycle or a complete cycle. Finally, the overall effect of the frequency is to increase both RMS current and power while decreasing the RMS voltage. The frequency also tends to increase the efficiency of the discharge since less power is converted into rotational temperature.

### **Acknowledgements**

The authors would like to acknowledge the French "Agence Nationale de la Recherche" (ANR), the Natural Sciences and Engineering Research Council (NSERC) of Canada and the "Fonds de Recherche du Québec Nature et Technologies" for their financial support. One of the authors (JSB) would like to thank the Bourses Frontenac program of the Ministère des Relations Internationales of Quebec Government for cotutelle scholarship.

## CHAPITRE 4

### CARACTÉRISATION DES RÉGIMES DE DÉCHARGE

Jusqu'à maintenant, nous avons vu que la DBD homogène peut être générée sur toute la gamme de fréquences à partir des très basses fréquences jusqu'aux hautes fréquences. Selon la fréquence et la tension appliquée, la décharge possède des caractéristiques très différentes. Cette diversité est liée à la possibilité de générer plusieurs régimes de décharge. Ceux-ci étant les régimes APGD, hybride et RF- $\alpha$  obtenus lorsque la tension appliquée est grandement élevée par rapport à la tension d'amorçage, et les régimes quasi-Townsend et  $\Omega$  lorsque la tension appliquée est près de la tension d'amorçage. À partir de maintenant, nous allons étudier plus en profondeur chacun de ces régimes de décharges. Les deux prochains articles se concentrent donc plus précisément au déploiement de méthodes diagnostiques.

#### 4.1 Présentation de l'article 3

Le troisième article est consacré à la mesure de la densité des atomes d'hélium dans un état métastable. Ces espèces à longue durée de vie jouent habituellement un rôle primordial dans les décharges d'hélium à la pression atmosphérique. Ils peuvent, entre autres, contribuer à l'ionisation par étape ou transférer leur énergie à d'autres espèces moins énergétiques. C'est pourquoi la connaissance de la densité de ces espèces peut fournir des informations sur la nature des régimes de décharge. Afin de déterminer la densité des atomes dans un état métastable, deux méthodes diagnostiques ont été déployées en parallèle. La première permet d'obtenir les valeurs moyennes des deux états métastables de l'hélium ( $\text{He}(2^1\text{S})$  et  $\text{He}(2^3\text{S})$ ), tandis que la deuxième permet de résoudre temporellement l'état  $\text{He}(2^3\text{S})$ .

La prochaine section de ce chapitre est constituée entièrement de l'article intitulé : *Influence of the Excitation Frequency on the Density of Helium Metastable Atoms in an Atmospheric Pressure Dielectric Barrier Discharge* [125] publié dans

*Journal of Applied Physics*. Les manipulations expérimentales ont été conduites sur le même réacteur DBD que pour les deux articles précédents. De la même manière que pour les précédents articles, j'ai effectué toutes les mesures expérimentales lors de mes séjours en France. Par contre, le montage expérimental concernant les mesures d'absorption à l'aide du laser à diode a été installé par le professeur Nader Sadeghi. Par la suite, j'ai effectué l'analyse des données ainsi que l'interprétation des résultats. Finalement, j'ai rédigé une version préliminaire de l'article qui fut ensuite amélioré sous la supervision de Joëlle Margot, Françoise Massines et Nader Sadeghi.

Il est à noter que, puisque le format de l'article est en deux colonnes, certaines figures ont été reformatées, facilitant ainsi la lecture. Par ailleurs, les références ont été retirées, évitant ainsi les redondances entre les différents articles. La liste complète des références est donc à la fin de la thèse.

## 4.2 Influence of the Excitation Frequency on the Density of Helium Metastable Atoms in an Atmospheric Pressure Dielectric Barrier Discharge

Jean-Sébastien Boisvert<sup>1,2</sup>, Nader Sadeghi<sup>3</sup>, Joëlle Margot<sup>2</sup> and Françoise Massines<sup>1</sup>

<sup>1</sup> *Laboratoire PROMES-CNRS, Rambla de la Thermodynamique, 66100, Perpignan, France*

<sup>2</sup> *Département de physique, Université de Montréal, 2900 Blvd Édouard-Montpetit, H3T 1J4, Montréal (Qc), Canada*

<sup>3</sup> *LIPhy, CNRS, Université de Grenoble, F-38041 Grenoble, France*

**Abstract.** Diffuse dielectric barrier discharges in atmospheric-pressure helium can be sustained over a wide range of excitation frequencies (from, but not restricted to, 25 kHz to 15 MHz). The aim of the present paper is to identify the specific characteristics of the discharge modes that can be sustained in this frequency range, namely the atmospheric-pressure Townsend-like discharge (APTD-L) mode, the atmospheric-pressure glow discharge (APGD) mode, the  $\Omega$  mode, the hybrid mode and the RF- $\alpha$  mode. This is achieved experimentally by measuring the density of helium metastable atoms, which are known to play a driving role on the discharge kinetics. This density is measured by means of two absorption spectroscopy methods, one using a spectral lamp and the other one using a diode laser as a light source. The first one provides the time-averaged atom densities in the singlet He( $2^1S$ ) and triplet He( $2^3S$ ) metastable states, while with the second one we access the time-resolved density of He( $2^3S$ ) atoms. Time-averaged measurements indicate that the He( $2^3S$ ) density is relatively low in the APTD-L, the  $\Omega$  and the RF- $\alpha$  modes ( $< 4 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$ ) slightly higher in the APGD mode ( $2\text{-}7 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$ ) and still higher ( $> 1 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$ ) in the hybrid mode. The hybrid mode is exclusively observed for frequencies from 0.2 to 3 MHz. However, time-resolved density measurement shows that at 1 MHz and below, the hybrid mode is not continuously sustained. Instead, the discharge oscillates between the  $\Omega$  and the hybrid mode with a switching frequency about the kilohertz. This explains the significantly lower power required to sustain the plasma as compared to above 1 MHz.

### 4.2.1 Introduction

Since the 1980s, diffuse dielectric barrier discharge (DBD) generated by excitation waveforms in or below the low-frequency range (LF : 30 to 300 kHz) have been widely studied [5, 13, 37, 38, 112]. When the feed gas is helium and the excitation frequency is 50 kHz, the discharge is similar to a low pressure DC glow discharge [20] with a 50 kHz repetition rate. It is usually referred as the atmospheric pressure glow discharge (APGD) [37]. In this case, the ion density is maximum close to the cathode (so is the light intensity) and a discharge is sustained for a short period of time during the cycle. On the other hand, when the frequency is in the high-frequency range (HF : 3 to 30 MHz), the discharge is continuously on and a plasma is always sustained. The discharge can be in the  $\Omega$  mode, where the ionization occurs mainly in the bulk and where the electric field is rather uniform [71, 72], in the  $\alpha$  mode, where both ionization and emission occur mainly in the sheath regions (close to the dielectrics) or in the  $\gamma$  mode, where the secondary emission is quite significant [15, 69, 74, 126]. Recent studies showed that diffuse DBDs are also obtained in the medium frequency range (MF : 0.3 to 3 MHz) [87, 90]. In helium, using intermediate frequencies for the excitation waveform gives rise to three distinct discharge modes. The first one is similar to the atmospheric-pressure Townsend discharge and is referred to as the APTD-L mode. The second one is the  $\Omega$  mode (defined above) and the last one is the hybrid mode, named after its similarities with both the LF APGD and the RF- $\alpha$  modes [111].

The aim of the present paper is to better understand the characteristics of the discharge modes that are sustained from the LF to the HF range. As metastable atoms can contribute to stepwise ionization, secondary emission and plasma chemistry, a precise knowledge of their density would help developing applications (e.g. thin film coating and medical applications [6, 10]). Therefore, the densities of helium atoms in metastable states were determined experimentally over a broad range of atmospheric pressure helium discharge modes. Two absorption spectroscopy methods are used for this purpose, one using a spectral lamp (SL) and the

other a diode laser (DL) as a light source. In the next section of this paper, we describe the experimental setup while in section 4.2.3, we briefly introduce the calculation methods used to obtain the metastable atom densities from absorption measurements. The time-averaged and the time-resolved measurements are detailed in section 4.2.4 and 4.2.5 respectively. These results are discussed with respect to the different discharge modes in section 4.2.6.

### 4.2.2 Experimental setup

The plasma reactor consists of a plane parallel DBD with solid dielectrics on each electrode. The discharge cell is placed in a chamber connected to a mechanical pump aiming to minimize the amount of impurities. Experiments are thus performed in a well-controlled atmospheric environment at a pressure of 101.3 kPa with a constant helium flow (99.999% purity) of  $8.3 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  through a 2 mm gap between the alumina solid dielectric surfaces. The electrodes cover a symmetric area of  $10 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$  on each dielectric. The discharge length along the absorption axis is  $l = 5 \text{ cm}$ . In order to achieve frequencies ranging from 25 kHz to 15 MHz, three distinct power systems are employed. In each case, the waveform generator (Agilent 33220A) delivers the corresponding sinusoidal voltage to a power amplifier that depends on the targeted frequency together with its corresponding matching circuit. Crest Audio (CC4000) or Prâna (GN 500) amplifiers are matched by sets of transformers or by an Advanced Energy (Navio) digital matching network (details on the power system are provided in [87, 111]). Current measurements are performed with a Rogowski coil (Lilco 13W5000) located on the grounded electrode while voltage measurements are achieved with a probe (Tektronix P6015) placed on the high-voltage electrode. The electrical measurements are recorded via a 100 MHz bandwidth oscilloscope (Tektronix TDS 2014). Let us note that the power measurements were achieved by integrating the measured voltage and current over a full cycle (see details in [87]).

The absolute density of metastable atoms in a plasma can be measured by illuminating the plasma with a light source emitting at wavelengths that can be

absorbed by these metastable atoms and by quantifying the degree of absorption. In the present study, these measurements were carried out by using two light sources, namely a narrow linewidth diode laser (DL) previously employed in atmospheric pressure helium discharge [77, 128, 129] and a classical low-pressure spectral lamp (SL) [130]. In the latter case, the data analysis was recently adapted to atmospheric-pressure plasmas [131]. Let us note that both methods were performed on the same reactor in the same conditions of frequency and power.

#### 4.2.2.1 Diode laser method (DL method)

In the DL setup, a Toptica DL 100 DFB 1080 (linewidth  $< 40$  fm) tuned at the  $\text{He}(2^3\text{P} \rightarrow 2^3\text{S})$  transition ( $\lambda = 1083$  nm) is used. Figure 4.1 shows the discharge cell together with the laser absorption setup. The laser beam from the DL passes

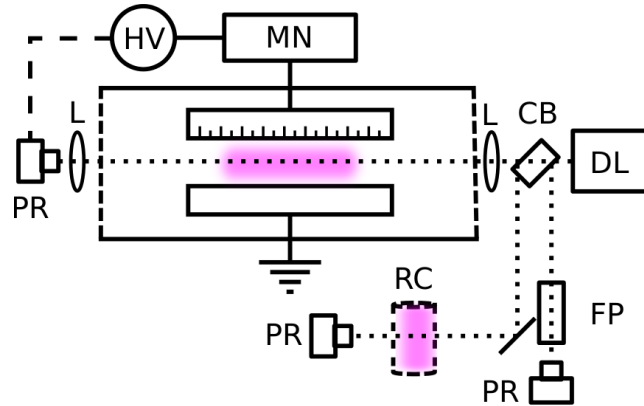


Figure 4.1 – Diode laser absorption setup. CB : cube beamsplitter ; FP : Fabry-Perot interferometer ; HV : high voltage ; DL : diode laser ; L : lens ; MN : matching network ; PR : photoreceiver ; RC : reference cell.

through a cube beamsplitter (CB) which provides two secondary beams. One of them crosses a Fabry-Perot (FP) interferometer to control the single mode operation and the mode-hop-free scan of the wavelength. The absolute wavelength calibration of the laser frequency is achieved by passing the second laser beam through a low-pressure helium discharge reference cell (RC). The main part of the beam is sent through the DBD via lenses (L) and is then focused on an InGaAs



photoreceiver (PR) (New focus 1811). Time-resolved measurements are obtained by synchronizing the digital oscilloscope (LeCroy Waverunner 44Xi-A), which records and processes the signals from photoreceivers, with the HV source.

#### 4.2.2.2 Spectral lamp method (SL Method)

The resonance absorption measurements are performed using a spectral lamp (Electro-Technic Products helium tube (20402)) as a light source. The lamp spectrum contains both  $\text{He}(3^3\text{P} \rightarrow 2^3\text{S})$  and  $\text{He}(3^1\text{P} \rightarrow 2^1\text{S})$  transitions at 388.9 and 501.6 nm respectively. Therefore, both singlet and triplet metastable states of helium could be investigated. Figure 4.2 shows the spectral lamp absorption setup together with the discharge cell. The spectral lamp (SL) illuminates an obturator (O) in order

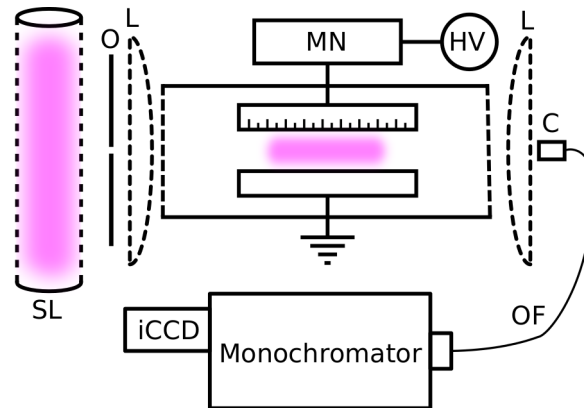


Figure 4.2 – Spectral lamp absorption setup. C : collimator ; HV : high voltage ; L : plano-convex lens ; MN : matching network ; O : Obturator ; OF : Optical fiber ; SL : spectral lamp.

to approximate a point source. The light, parallelized by a plano-convex lens (L), passes through the discharge before being focused (L) and collimated (C) on the tip of an optical fiber (OF). The monochromator (Princeton instrument Acton SP2500) then selects the appropriate wavelength that is recorded by the iCCD camera (PI-max 2). The spectral lamp being powered by an AC circuit, the emitted light is slightly modulated at 100 Hz and hence only time-averaged measurements are considered for this setup.

### 4.2.3 Calculations of the metastable atoms densities

To obtain the density of metastable atoms, its relationship with the absorption signal has to be established. It depends on the line profiles of both the absorbing medium and the emitting medium. Therefore, absorption using DL or SL methods will yield different expressions.

#### 4.2.3.1 Diode laser method

The experimentally recorded 1083 nm absorption line profile is identical to the one in [129], obtained in an atmospheric helium plasma jet. The time-resolved He( $2^3S$ ) density was recorded by setting the wavelength of the DL on the absorption peak of the line by adjusting both the DL temperature and current. The two strongest components of its three fine-structure lines, namely to  $2^3P_2$  and  $2^3P_1$  upper states, which are closely mixed, can be considered as a single line and has been considered for deducing the density of atoms in the metastable He( $2^3S$ ) state. In DBDs, because the low electron density at atmospheric pressure and room temperature, the Stark and Doppler broadenings are much smaller than the Van der Waals broadening. Thus the considered absorption profile can be approximated by a Lorentzian profile [129, 132] :

$$A(\nu - \nu_c) = A_p \left( \frac{4(\nu - \nu_c)^2}{\Delta\nu_L^2} + 1 \right)^{-1}, \quad (4.1)$$

where  $\Delta\nu_L$  is its full width at half maximum (FWHM) and  $A_p$ , its peak value, is related to the density of atoms in the absorbing He( $2^3S$ ) state,  $n_i$ , by the means of the integral of this profile [132] :

$$S = \int_0^\infty A(\nu - \nu_0) d\nu = \frac{\pi\Delta\nu_L}{2} A_p = \frac{e^2 f_{ikl}}{4\epsilon_0 m_e c} n_i, \quad (4.2)$$

leading finally to

$$n_i = \frac{2\pi\epsilon_0 m_e c \Delta\nu_L}{e^2 f_{ikl}} A_p. \quad (4.3)$$

In this equation,  $f_{ik} = 0.48$  and include the two combined lines to  $J = 2$  and  $J = 1$ ,  $l = 0.05$  m and the other symbols have their usual meanings. The peak absorption coefficient  $A_p$  is determined from measured intensities when the DL is set at the central frequency  $\nu_0$ , where the absorption is maximum, after eliminating the contribution of the plasma emission according to

$$A_p = \ln \left( \frac{I_{01} - I_{00}}{I_{11} - I_{10}} \right), \quad (4.4)$$

where  $I_{xy}$  stands for the intensity recorded when the discharge ( $x$ ) and the diode laser ( $y$ ) are either on (1) or off (0). An example of absorption measurement for a plasma produced at an excitation frequency of 13.56 MHz and a power of 11.4 W is shown in figure 4.3. We observe that  $A_p$  is zero when the discharge is off and

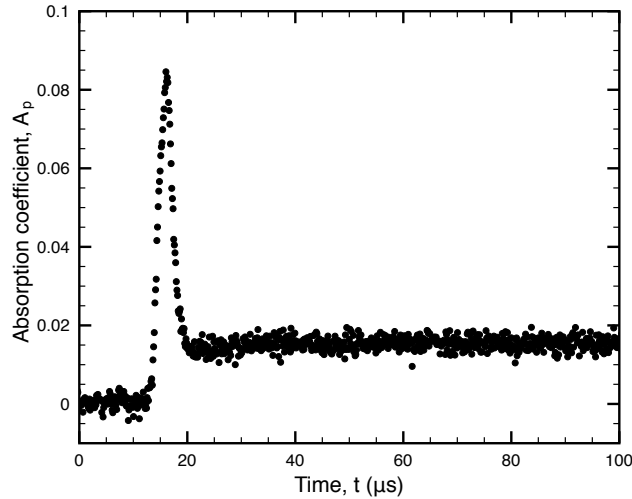


Figure 4.3 – Example of the time-dependence of the absorption coefficient at the peak wavelength (1083 nm). The absorbers are helium  $2^3S$  metastable atoms. The excitation frequency of the DBD is 13.56 MHz and the power is 11.4 W.

increases to about 0.09 during the ignition phase before decreasing and finally stabilizing at about 0.018 after 20  $\mu$ s. Let us note that in order to record the time evolution from ignition, the discharge is modulated at a repetition rate of 100 Hz and a duty cycle of 50%. While the intensity of the DL is constant in time, the acquisition of the photodetector signal by the digital oscilloscope is synchronized with

the discharge modulation. The recorded signals are averaged over 500 repetition cycles.

#### 4.2.3.2 Spectral lamp method

Unlike the DL, the widths of the SL lines are comparable to the absorption linewidths. Therefore, the relation between the absorber density and the absorption measurement must account for this linewidth. This relation depends on both absorption and emission linewidths. For the low-pressure SL, the emission line is Doppler Broadened, while at atmospheric pressure, the absorption line is considered to have a Voigt profile (combination of Doppler and Lorentzian broadenings) [131]. The latter is confirmed by examining the main causes of broadening for both He( $3^1\text{P}\rightarrow 2^1\text{S}$ ) and He( $3^3\text{P}\rightarrow 2^3\text{S}$ ) in the DBD. For this purpose, we used appropriate formulae for natural  $\Delta\lambda_n$  [133], Doppler  $\Delta\lambda_D$  [134], resonance  $\Delta\lambda_r$  [135], van der Waals  $\Delta\lambda_v$  [136] and Stark  $\Delta\lambda_S$  [137] broadenings, deduced from estimated values of electron density, gas temperature and neutral density in the discharge. The results are reported in table 4.I. Clearly, only Doppler, resonance and van der

Tableau 4.I – Contributions of different broadening mechanisms for the transitions He( $3^1\text{P}\rightarrow 2^1\text{S}$ ) and He( $3^3\text{P}\rightarrow 2^3\text{S}$ ). Stark broadening was calculated assuming a maximum electron density of  $10^{17}\text{ m}^{-3}$ . The gas temperature was assumed to be  $T_g = 300\text{ K}$  and the helium neutral density is  $2.4 \times 10^{25}\text{ m}^{-3}$ .

	$3^1\text{P}\rightarrow 2^1\text{S}$	$3^3\text{P}\rightarrow 2^3\text{S}$
$\Delta\lambda_n$ (nm)	$7.5 \times 10^{-5}$	$7.5 \times 10^{-7}$
$\Delta\lambda_D$ (nm)	0.0031	0.0024
$\Delta\lambda_r$ (nm)	0.012	-
$\Delta\lambda_v$ (nm)	0.023	0.013
$\Delta\lambda_S$ (nm)	$1.4 \times 10^{-4}$	$4.7 \times 10^{-5}$

Waals broadenings contribute significantly to the total linewidth. Doppler broadening yields a Gaussian profile while resonance and Van der Waals broadenings give rise to a Lorentzian profile.

In the case of a purely Gaussian profile, typical for low pressure cold plasmas [138–141], the density of atoms in a metastable state is related to the absorption coefficient by a relatively simple equation [130]. However, according to table 4.I, in the present case, a Voigt profile should be used [131]. The corresponding density of absorbers is given by [131]

$$n_i = \frac{2\epsilon_0 m_e c}{\pi e^2 \sqrt{\ln 2}} \frac{\Delta\nu_D}{f_{ik}} \frac{k_0 l}{l} \beta \int_0^\infty \int_{-\infty}^\infty \frac{e^{-y^2} dy}{\beta^2 + (\omega - y)^2} d\omega \quad (4.5)$$

where  $\Delta\nu_D$  is the FWHM of the Doppler broadening,  $k_0$  is the absorption coefficient at the central frequency  $\nu_0$  and

$$\beta = \frac{\Delta\nu_L}{\Delta\nu_D} \sqrt{\ln 2}, \quad y = \frac{2\delta}{\Delta\nu_D} \sqrt{\ln 2}, \quad \omega = \frac{2(\nu - \nu_0)}{\Delta\nu_D} \sqrt{\ln 2}.$$

Here,  $\delta$  represents the integration variable swept from minus to plus infinity for a given frequency interval  $\nu - \nu_0$ . The oscillator strength  $f_{ik}$  for both transition were taken from the NIST database [142] and are displayed in table I.I. The absorption Tableau 4.II – Data used for the calculation of the densities. Fine-structures of helium lines at 388.87 and 1083.03 nm are not sufficiently resolved so  $f_{ik}$  include the lines with  $J = 0$  to  $J = 2$  for the former and  $J = 1$  and  $J = 2$  for the latter.

	$3^1P \rightarrow 2^1S$	$3^3P \rightarrow 2^3S$	$2^3P \rightarrow 2^3S$
$\lambda_{ki}$ (nm)	501.57	388.87	1083.03
$f_{ik}$	0.15	0.064	0.48

coefficient  $k_0$  is related to the absorption rate  $A_L$  by the relation

$$A_L = \frac{\int_0^\infty e^{-(\omega/\alpha)^2} \left( 1 - e^{-k_0 l \frac{\beta}{\pi} \int_{-\infty}^\infty \frac{e^{-y^2}}{\beta^2 + (\omega - y)^2} dy} \right) d\omega}{\int_0^\infty e^{-(\omega/\alpha)^2} d\omega} \quad (4.6)$$

where  $\alpha$  is the ratio of the spectral lamp broadening (determined by the Doppler broadening at  $T_g \approx 600$  K) over the absorption line broadening (Voigt shape). The

latter can be given with the necessary accuracy (this formula yields an error smaller than 1%) by [143]

$$\Delta\nu_V = \Delta\nu_L/2 + \sqrt{(\Delta\nu_L/2)^2 + \Delta\nu_D^2}, \quad (4.7)$$

where  $\Delta\nu_L \approx \Delta\nu_v$  (value taken from table 4.I) for the He( $3^3\text{P} \rightarrow 2^3\text{S}$ ) transition. For the He( $3^1\text{P} \rightarrow 2^1\text{S}$ ) transition, as it is not clear how resonance and van der Waals broadenings convolute, an experimental value of  $\lambda_L = 0.033 \text{ nm}$  is used. (The Lorentzian width of the 501.6 nm line was deduced from the spectral profile of the emission intensity of an atmospheric pressure helium DBD analyzed with a 3.7 pm resolution spectrograph.)

Figure 4.4 illustrates the result of the integration of equation 4.6. A curve was calculated for each absorber, namely helium atoms in the metastable states  $2^1\text{S}$  and  $2^3\text{S}$ , associated to the transitions at wavelengths 501.6 and 388.9 nm, respectively. Let us note that since the Van der Waals and resonance contributions dominate the line broadening, we assume that the calculated curves remain valid over the whole range of conditions investigated.

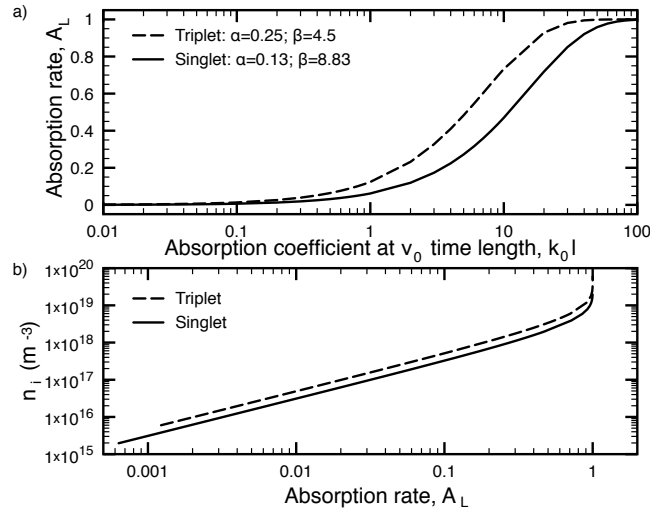


Figure 4.4 – a) Global absorption rate  $A_L$  as a function of the absorption coefficient at the central frequency times the absorption length. The dashed line represents the relation for the triplet state  $2^3\text{S}$  and the solid line that for the singlet state  $2^1\text{S}$ . b) Corresponding range of density calculated with equation (4.5) using theoretical values of absorption rate.

Finally, knowing the relations between  $n_i$  and  $k_{0l}$  as well as the relation between  $k_{0l}$  and  $A_L$ , only the measurement of  $A_L$  is required to obtain  $n_i$ . Similarly to the DL method, the  $A_L$  coefficient is given by a combination of four intensity measurements that allow to remove the contribution of plasma emission. Accordingly, the global absorption rate is

$$A_L = 1 - \frac{I_{11} - I_{10}}{I_{01} - I_{00}} \quad (4.8)$$

where  $I_{xy}$  stands for intensity recorded when the discharge ( $x$ ) and the spectral lamp ( $y$ ) are either on (1) or off (0). Figure 4.5 provides examples of absorption rates as a function of the power for the singlet and triplet metastable states of helium in the DBD generated at an excitation frequency of 1.6 MHz. The absorption rate

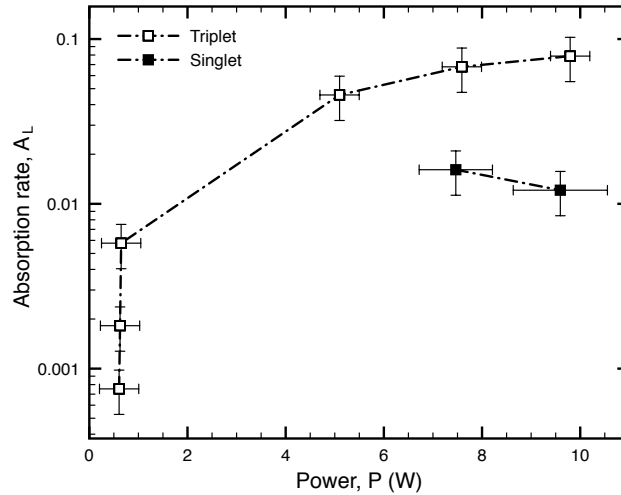


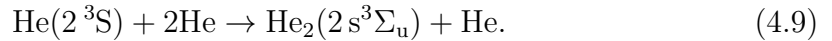
Figure 4.5 – Absorption rate  $A_L$  as a function of the power. Both the singlet and triplet states are illustrated. The corresponding excitation frequency of the DBD is 1.6 MHz. The uncertainties are estimated to be about 10% based on the reproducibility of measurements.

ranges between 0% and 10%. The detection limit is about 0.05%, which means that we were not able to measure the density of metastable atoms in every condition.

#### 4.2.4 Average metastable densities

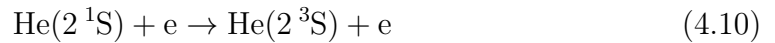
In this section, we investigate the time-averaged value of the density of atoms in a metastable state. Both  $\text{He}(2^1S)$  and  $\text{He}(2^3S)$  densities were measured by the SL method.

First, in atmospheric pressure non-thermal helium discharges, the dominant production mechanism of both helium metastable atoms is the direct electron impact collision with ground state atoms, i.e. the production rate should strongly depend on electron temperature. On the other hand, the loss mechanisms can be multiple. However, we note that at atmospheric pressure, the main loss mechanism should be the three body collision with two ground state atoms, producing metastable molecule :



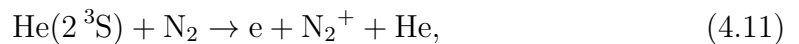
which usually populates highly vibrationally excited levels ( $k_2 = 1.9 \times 10^{-46} \text{ m}^6 \text{ s}^{-1}$ ) [144, 145].

In addition, the density of  $\text{He}(2^1S)$  is typically lower than that of  $\text{He}(2^3S)$  [146]. This is usually attributed to the singlet to the triplet metastable conversion



yielding 0.8 eV to the electron ( $k_1 = 3.5 \times 10^{-13} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ ) [147]. When the electron density increases above  $10 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$ , reaction (4.10) becomes very efficient.

According to the three-body quenching mechanism, the upper limit of the  $\text{He}(2^3S)$  lifetime is estimated to be 9  $\mu\text{s}$ . In addition, energy transfer to impurities might become important in helium at atmospheric pressure. If air impurity becomes important, reaction





(with reaction rate  $k_{N_2} = 7 \times 10^{-17} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  [148]) and the quenching by oxygen (with reaction rate  $k_{O_2} = 23 \times 10^{-17} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  [132]) must be considered. Another possible quenching mechanism is the water desorbed by the dielectric surfaces, with the reaction rate  $k_{H_2O} = 8.5 \times 10^{-16} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  [149]. As an example, the effective lifetime of the metastable atoms would drop from 9 to 1  $\mu\text{s}$  with a concentration of 350 ppm of air or 40 ppm of water. In any case, together with the electron temperature, these loss mechanisms play an important role in the value of the metastable atoms density.

Figure 4.6 shows the  $\text{He}(2^1S)$  density (filled symbols) and  $\text{He}(2^3S)$  density (open symbols) as a function of the power for frequencies ranging from 50 kHz to 15 MHz. In some power and frequency conditions, the absorption rate falls below the detec-

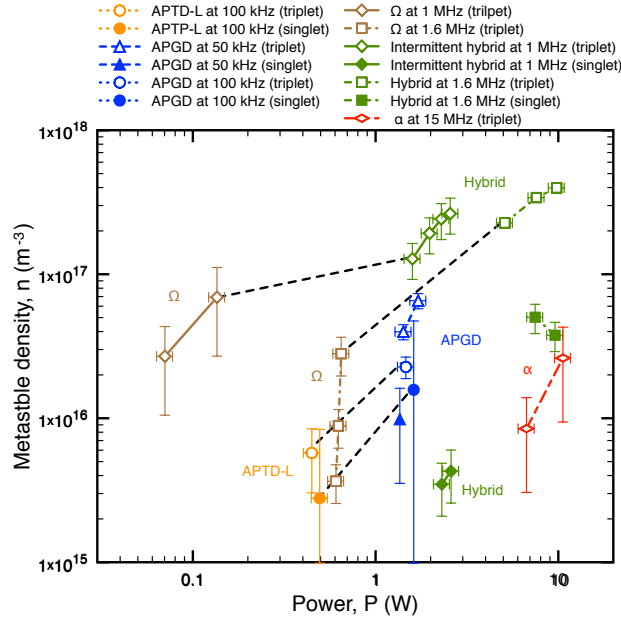


Figure 4.6 – Time-averaged density of  $\text{He}(2^1S)$  (filled symbols) and  $\text{He}(2^3S)$  (open symbols) measured by the SL method as a function of the power for different frequencies. Error bars indicate the standard deviation over two measurements. Black lines represent data acquired in the same experiment during the increase of the applied voltage (transition between discharge modes at the same frequency).

tion level ( $2 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$ ) as indicated in table 4.III. This occurs more often for the  $\text{He}(2^1S)$  state than for the  $\text{He}(2^3S)$  state, suggesting a generally lower density of

the He( $2^1S$ ) state, which is coherent with the three times lower degeneracy of the singlet state and the conversion reaction (4.10).

Tableau 4.III – Conditions at which absorption measurement were quantifiable (✓) or unquantifiable (X).

$f$ (kHz)	He( $2^1S$ )	He( $2^3S$ )
50	✓	✓
100	✓	✓
1 000	✓ $> 2 W$	✓
1 600	✓ $> 6 W$	✓
15 000	X	✓ $> 6 W$

From figure 4.6, it can be seen that the metastable density varies over almost three orders of magnitude over the whole range of power and frequency investigated. At a given frequency, the metastable density tends to increase with the power as far as the discharge mode doesn't change. In addition, the variations of the metastable density with the discharge mode are very large. More specifically, the metastable densities behave according to different discharge modes.

1. At 15 MHz, the discharge is in the RF- $\alpha$  mode. The power is high but the density of He( $2^3S$ ) is low, about  $1 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$ . This value is of the same order as that previously reported for a 13.56 MHz helium atmospheric pressure discharges [128, 150]. The low value of the density is associated with the relatively low electron temperature expected at such a frequency. Moreover, the density of He( $2^1S$ ) atoms could not be measured. This is in agreement with the high electron density [65] expected in such conditions, hence conversion equation (4.10) being very efficient. In any case, these low measured values of densities are in agreement with the usual conclusion that the metastable atoms should not play a major role in sustaining the discharge in the RF- $\alpha$  mode [150].
2. At 1.6 MHz, the discharge is either in the  $\Omega$  mode or in the hybrid mode.

Accordingly, we observe two distinctive behaviors. In the  $\Omega$  mode, the density of He( $2^3S$ ) increases very steeply as a function of the power ( $< 3 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$ ). This could be related to the increase of the electron temperature in this mode, for which Ohmic heating is the main heating mechanism. On the other hand, the density of the singlet state is below the detection level in this mode ( $< 2 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$ ). In the hybrid mode, the He( $2^3S$ ) density increases slightly as a function of the power from  $2.2$  to  $4.0 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$  while the He( $2^1S$ ) density appears to slightly decrease. Assuming a sufficiently high electron density that increases with power, the decrease of the singlet state density could be due to the conversion to triplet state via reaction (4.10).

At 1 MHz, the discharge exhibits a behavior very similar to 1.6 MHz with the difference that the power at which it switches to the hybrid mode is significantly lower than at 1.6 MHz. The density of metastable is of the same order of magnitude for a 2 W discharge at 1 MHz and 6 W at 1.6 MHz, it also increases with the power density in both cases. However, the singlet state density is one order of magnitude lower than the triplet density. The reasons of the differences observed between 1 and 1.6 MHz is that the hybrid mode is not sustained continuously below 1.6 MHz (intermittent hybrid mode). This specificity will be further investigated in the next section when examining time-resolved measurements.

3. At 100 kHz, the discharge can be in the APTD-L or in the APGD mode, for low and high power respectively. When the discharge switches from the APTD-L to the APGD, the triplet state density increases from  $0.6$  to  $2 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$  while the singlet state density increases from  $0.2$  to  $1.6 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$ . The electron density is expected to be less than one order of magnitude lower in the APTD-L mode so that the ratio  $n(\text{metastable})/n_e$  should be more important in the APTD-L mode than in the APGD mode, enhancing the relative importance of the metastable in the discharge dynamics [13]. The difference between the densities of triplet and singlet metastable states is lower than

for higher frequencies. In fact, the factor of three in densities corresponds to their degeneracy. A possible explanation could be that at such a frequency the discharge is always undergoing the ignition phase for which the electron temperature is high enough to populate both metastable states according to their statistical weights. This is the case for both APGD and the APTD where the metastable atoms play an important role during the ignition of a diffuse discharge in order to slow down ionization. Let us note that the same behavior occurs at 50 kHz, with the exception that only the APGD mode was observed during this set of experiments.

#### 4.2.5 Time-resolved evolution

The present section is focused on time-resolved measurements performed by the diode laser. The time evolution of the discharge is very different according to the excitation frequency. Once again, the main effect of the frequency being to give rise to different discharge modes, we separate the frequency range in terms of the observed modes : HF (RF- $\alpha$ ), MF ( $\Omega$  and hybrid) and LF (APGD).

##### 4.2.5.1 HF range

We begin our analysis with the case of the discharge in the RF- $\alpha$  mode, at 13.56 MHz. At this frequency, the discharge is a continuous plasma (always on), hence to record the time evolution, the waveform generator (the RF power) is pulsed at a repetition rate of 100 Hz with a duty cycle of 50%. Measurements are performed from the beginning of the time on ( $t = 0$  corresponds to the beginning of the voltage waveform). Figure 4.7 shows the evolution of the He( $2^3S$ ) density during the ignition of the discharge. The different curves correspond to different powers, each calculated from  $I - V$  measurement once the steady state is reached. Metastable density measurements are performed at powers from 7.2 to 11.4 W.

First, we observe that no density fluctuation occurs over the 13.56 MHz excitation wave period scale (73.7 ns). According to the expected metastable lifetime (of

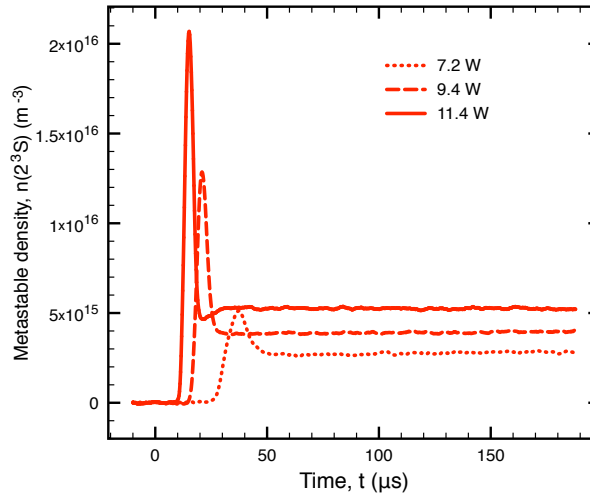


Figure 4.7 – Density of  $\text{He}(2^3S)$  measured by the DL method as a function of time at different powers. The excitation frequency of the DBD is 13.56 MHz and the repetition frequency is 100 Hz with a duty-cycle of 50%. The time resolution is 20 ns. Every metastable measurement was performed twice, the average value is displayed.

the order of 1  $\mu\text{s}$ ), the  $\text{He}(2^3S)$  density should indeed remain constant during this time period. It can also be seen that the metastable density exhibits an overshoot during the discharge ignition before stabilizing to a steady-state value. The higher is the power, the higher is this peak. After the overshoot, the steady-state metastable density varies from 3 to  $5 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$  for a power variation factor of 1.6. We note that the steady-state value is about 5 times lower than the time-averaged value measured by the SL method. However, since the laser beam diameter is smaller than the interdielectric distance and was focused in the middle of the gas gap, it is likely that the sheaths (that enclose most of the metastable atoms [150]) were only partially probed by the DL method.

To further understand the density maximum occurring during ignition, let us analyze in more details the case at 11.4 W. Figure 4.8 shows the time dependence of the RMS current and voltage together with the  $\text{He}(2^3S)$  density during the ignition (left figure) and decay (right figure) phases. During the ignition phase, it can be observed that the maximum metastable density is synchronized with an increase in

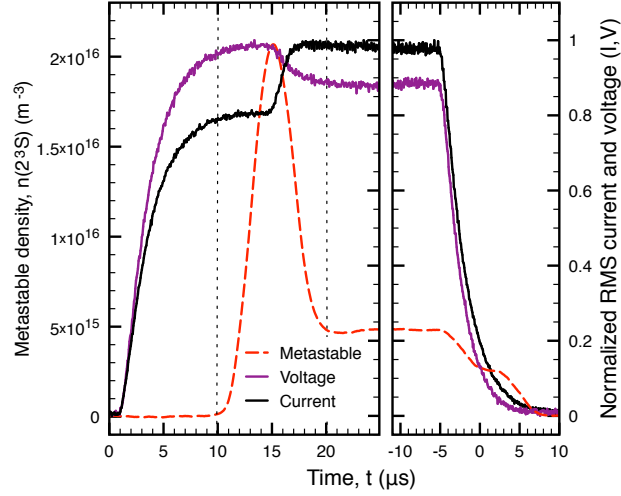


Figure 4.8 – RMS voltage, RMS current and density of  $\text{He}(2^3S)$  as a function of time for 11.4 W at 13.56 MHz. The RMS voltage and current are normalized to their maximum values.

the discharge current and a voltage drop. While the magnitude of the ignition voltage overshoot is usually related to the value of the series capacitor of the matching network [151], its origin might be related to the discharge itself. As the discharge is not self-sustained during the ignition, the electron temperature should be significantly higher than during the steady state. This could give rise to the observed rapid growth of the metastable density. Once the plasma density is high enough, stepwise ionization from metastable states and/or Penning ionization should generate extra electrons explaining the current rise. Simultaneously, the voltage needed to maintain the ionization balance should be reduced and the electron temperature would decrease, yielding a fall of the metastable density. As for the decay, figure 4.8 indicates that the decrease of both RMS current and voltage occurs at a faster rate than for the metastable density. For example, the RMS current decreases by half its value over about  $2.5 \mu\text{s}$  while it takes  $7.3 \mu\text{s}$  to the metastable density. This observation is in agreement with the fact that metastable atoms continue to be produced during the voltage decay phase, but at a lower rate than before. We also note that two inflections occur during the decay of the metastable density. This could be explained by the conversion reaction (4.10) becoming significant and then

stopping its contribution to the population of  $\text{He}(2^3S)$  when the electron density decreases during the afterglow.

#### 4.2.5.2 MF range

In the MF range, the discharge is in the  $\Omega$  or in the hybrid mode. These modes are illustrated in figure 4.9 where the evolution of the  $\text{He}(2^3S)$  density at the ignition of the discharge is shown for different powers. The waveform generator was again pulsed at a repetition rate of 100 Hz with a duty cycle of 50% and the power was calculated from I-V measurements recorded during the steady-state. Like the HF range (i.e. 13.56 MHz), no fluctuations of the density are observed

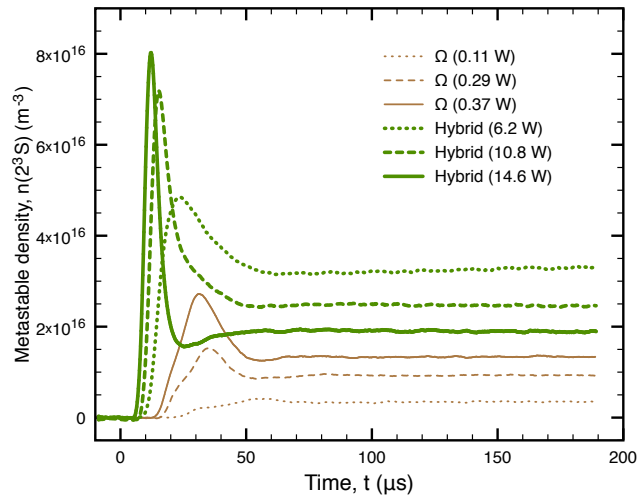


Figure 4.9 – Density of  $\text{He}(2^3S)$  measured by the DL method as a function of time for different powers. The excitation frequency of the DBD is 2.7 MHz and the repetition frequency is 100 Hz with a duty-cycle of 50%. The time resolution is 20 ns. Every metastable measurement was performed twice, the average value is displayed.

over the 2.7 MHz time period (370 ns). The transition from  $\Omega$  to hybrid mode occurs between 0.37 and 6.2 W. For each case (whatever the discharge mode), the  $\text{He}(2^3S)$  density reaches a peak value before decreasing and stabilizing to a steady-state value. The density of metastable is only slightly higher in the hybrid mode than in the  $\Omega$  mode. In fact, in the  $\Omega$  mode the  $\text{He}(2^3S)$  steady-state density

increases with the power while in the hybrid mode, it decreases when the power increases. A possible explanation is the gas heating (that increases with power) that amplifies the desorption of impurities from the dielectric surfaces. Quenching of He( $2^3S$ ) atoms by impurities can be very efficient. For instance, reaction (4.11) can become important when the N<sub>2</sub> concentration exceeds 10 ppm. In fact, the emission from N<sub>2</sub><sup>+</sup>(B<sup>2</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup> → X<sup>2</sup>Σ<sub>g</sub><sup>+</sup>) (λ = 391.4 nm) molecular band is much stronger in the hybrid mode than in the Ω mode in comparison to emissions from other impurities (OH or for N<sub>2</sub>) [87]. Another possible source of quenching is the water desorbing from the dielectrics (quenching rate coefficient of  $8.4 \times 10^{-16} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  [129]) that can significantly reduce the metastable density. Let us note that the discrepancy between the density of the hybrid mode measured by the SL method and the DL method are likely due to the smaller size of the laser beam that is not sufficient to completely probe the sheath (as in the HF range).

Figure 4.10 shows the time-dependence of the RMS current and voltage along the He( $2^3S$ ) density for both Ω (0.37 W) and hybrid modes (14.6 W). We observe

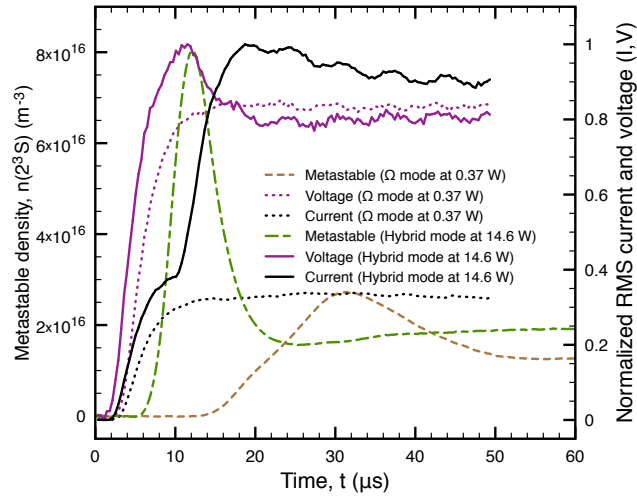


Figure 4.10 – RMS voltage, RMS current and density of He( $2^3S$ ) as a function of time for 0.37 W and 14.6 W at 2.7 MHz. The RMS voltage and current are normalized to their maximum values. Oscillations of the RMS voltage and current come from the RMS calculation that does not include an integer number of data point per cycle.



that the steady-state RMS voltages are about the same in both modes. The steady-state metastable densities are also very close for the  $\Omega$  and hybrid modes, namely  $1.5$  and  $2.0 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$  respectively. However, the RMS currents differ drastically. Similar to the results obtained at  $13.56 \text{ MHz}$ , the overshoot of the metastable density occurring during the ignition phase of the hybrid mode is accompanied by an inflection of the current and by a voltage drop. This feature is not observed for the  $\Omega$  mode. The difference is that in the hybrid mode, ion accumulation is insufficient to produce a significant localized electric field. When the density of ions increases enough to form a cathode fall, the localized electrical field gets higher for the same voltage together with the ionization rate (but the electron energy is high only in the cathode fall). When the ion density remains low, the electrical field is uniform over the entire gap, the electrons have the same energy everywhere and a large voltage is required to ionize the gas. Therefore, the formation of a cathode fall explains the higher current (and power) of the hybrid mode without a large difference in the metastable density (together with the incomplete probing of the sheaths). On the other hand, the small metastable density overshoot in the  $\Omega$  mode is likely due to the electron temperature that is usually higher during the ignition phase.

#### 4.2.5.3 Intermittent hybrid mode in the MF range

In a previous paper [111], we suggested that the hybrid mode is achieved between  $200 \text{ kHz}$  and  $3 \text{ MHz}$ . At  $1 \text{ MHz}$  and below, the power to maintain the hybrid mode is about 5 times lower than above  $1 \text{ MHz}$ . This power reduction was associated with a contraction of the discharge. However, the nature of the contraction (only observed in this subrange of the MF range) is likely to emerge from oscillating ion trapping. Figure 4.11 shows the evolution of the  $\text{He}(2^3S)$  density during the ignition phase of the discharge when the excitation frequency is  $540 \text{ kHz}$ . The waveform generator was again pulsed at a repetition rate of  $100 \text{ Hz}$  with a duty cycle of  $50\%$  and the power was calculated from I-V measurement recorded during the steady state.

Like at  $2.7 \text{ MHz}$  and  $13.56 \text{ MHz}$ , no density fluctuations are measurable over a

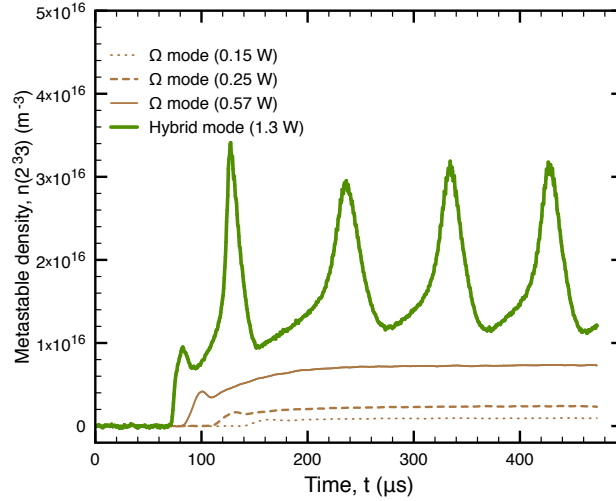


Figure 4.11 – Time dependence of the density of  $\text{He}(2^3S)$  measured by the DL method for different powers. The excitation frequency of the DBD is 540 kHz and the repetition frequency is 100 Hz with a duty-cycle of 50%. The time resolution is 20 ns. Every metastable measurement was performed twice, the average value is displayed (except for 1.3 W).

540 kHz time scale ( $1.8 \mu\text{s}$ ). However, in contrast with 2.7 MHz, the ignition overshoot reaches a value lower than at the steady state. This is likely due to a slower ignition as the wave period is close to the metastable lifetime. In addition, at the largest power value (1.3 W), instead of stabilizing to a steady-state value, the metastable density exhibits a significant time modulation with a frequency of about 10 kHz. The maximum density of metastable is between  $3$  and  $4 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$  which is in the typical range of the hybrid mode (see figure 4.9, for example). The minimum value is about  $1 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$ , which is in the typical range of the  $\Omega$  mode. Consequently, this oscillating behavior is referred as the intermittent hybrid mode.

Figure 4.12 shows the RMS current and voltage along with the  $\text{He}(2^3S)$  density for both  $\Omega$  (0.57 W) and hybrid (1.3 W) modes. For the hybrid mode, a modulation pattern is also visible on the RMS current. The fact that the minimum RMS current coincides with the steady-state RMS current of the  $\Omega$  mode suggests that the intermittent hybrid mode is a hybrid mode that is not continuously sustained but it rather oscillates between hybrid and  $\Omega$  modes. This would explain the contrac-

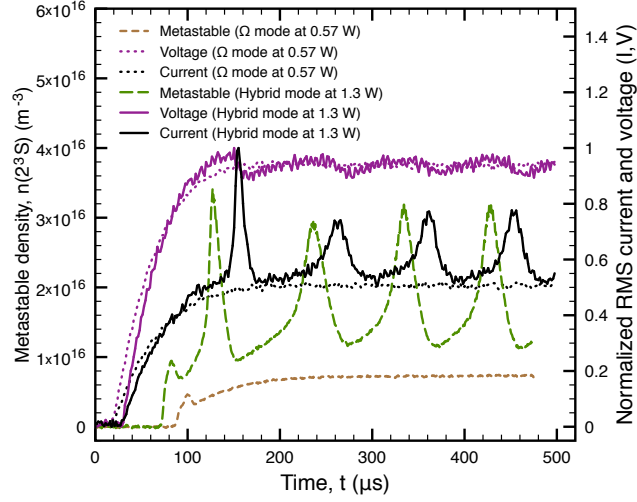


Figure 4.12 – RMS voltage, RMS current and density of  $\text{He}(2^3S)$  as a function of time for 0.57 W and 1.3 W at 540 kHz. The RMS current and the RMS voltage are normalized to one and are presented on the same axis.

tion of the discharge observed at 540 kHz. In this frequency range, ions trapping in the gas begins. It depends on the electrical field. When the field is uniform, ions are trapped and they accumulate until the space charge field becomes high enough to drive them to the cathode, increasing cathode secondary emission and current. These electrons create metastable atoms but only close to the cathode. When the positive space charge decreases, the current decreases but the electrical field becomes more and more uniform enhancing the metastable creation all over the gap. Thus, the current and the metastable density do not increase at the same time (see figure 4.12). Since at this frequency the ions are barely trapped, only a very small increase of the electric field allows them to escape. Therefore, as the dielectric surfaces are not perfectly parallel, a very small variation of the local interdielectric distance allows ions to escape the gap locally. At last, we note that the considerable difference between the  $\text{He}(2^3S)$  and  $\text{He}(2^1S)$  densities in figure 4.6 is likely due to this oscillation between the  $\Omega$  and the hybrid mode that allows the electron density to be high during a sufficient amount of time to make reaction (4.10) efficient.

#### 4.2.5.4 LF range

Above 200 kHz, the memory effect occurs over the whole time period, so that the discharge is continuous. However, for frequencies of 100 kHz and below, the memory effects is experienced only over the half-cycle, the discharge is pulsed [125]. In this situation, figure 4.13 shows the instantaneous current and voltage as well as the He( $2^3S$ ) density for the APGD mode at 50 kHz. Data were recorded over a full cycle (20  $\mu$ s) at a power of 1.1 W.

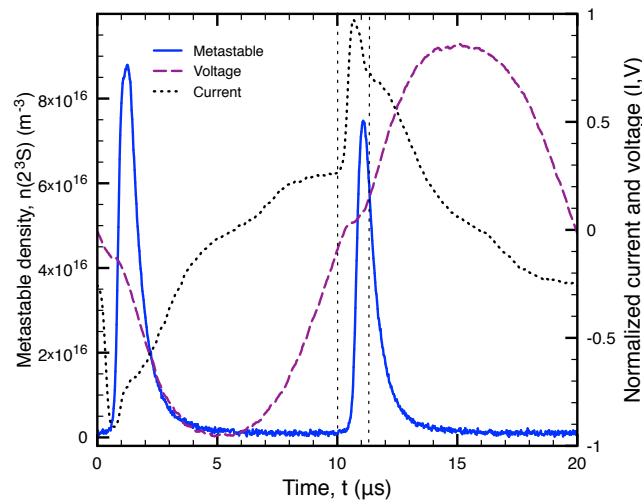


Figure 4.13 – Voltage, current and density of He( $2^3S$ ) as a function of time for 1.1 W at 50 kHz. The RMS current and the RMS voltage are normalized to one and are presented on the same axis.

The instantaneous current and voltage waveform are typical of an APGD. The discharge current is superimposed on a capacitive current and the voltage displays a small inflection at the start of the discharge current. The density of metastable takes about 1  $\mu$ s to rise to its maximum value (about  $8 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$ ) and it drops below the detection level during about half a cycle. More precisely, the metastable density rise continues after the current peak and its maximum is slightly retarded with respect to the current. At the time of the maximum metastable density (about 11  $\mu$ s), an inflection on the current curve is also observed. The time delay between the current rise and its inflection corresponds to the delay required for Penning

ionization to become more important than direct ionization [113]. From the current inflection time, the metastable density decreases exponentially with a time constant of about  $2.3\ \mu\text{s}$ . This corresponds to about 15 ppm of water impurity or 130 ppm of air impurities should the impurities come solely from air contamination or water desorption from the dielectric surfaces respectively. As reported in our previous papers [87, 111], OH and  $\text{N}_2$  are always present in the emission spectrum. Accordingly, contamination is likely to be a combined effect of air micro leaks in the chamber and of desorption from the dielectric surfaces. In any case, the effective lifetime of about  $2.3\ \mu\text{s}$  indicates that above 100 kHz, i.e. for cycle shorter than  $10\ \mu\text{s}$ , the metastable density remains above the detection level over the half wave period. We note that a similar behavior occurs at other powers for both 50 kHz and 100 kHz.

#### 4.2.6 Discussion and conclusion

One of the aims of the present paper was to seize the role of metastable atoms in helium DBDs as a function of the excitation frequency. Since the excitation frequency deeply modifies the nature of the discharge, the latter can operate in different modes depending on both frequency and applied voltage. Accordingly, the power of the discharge significantly differs from one mode to the other and plasma characteristics can hardly be compared without referring to the discharge mode. In order to compare the discharge modes, the time-averaged densities of atoms in the  $\text{He}(2^1\text{S})$  and the  $\text{He}(2^3\text{S})$  states were measured using resonance absorption spectroscopy with a spectral lamp. The metastable densities behave according to the discharge mode in which the DBD is running. Typical values for the  $\text{He}(2^3\text{S})$  are below  $7 \times 10^{15}\ \text{m}^{-3}$  in the APTD-L and  $\Omega$  modes (modes associated with a quasi-uniform electric field), between  $0.8$  and  $7 \times 10^{16}\ \text{m}^{-3}$  in the APGD and the RF- $\alpha$  modes and up to  $4 \times 10^{17}\ \text{m}^{-3}$  in the hybrid mode (modes associated with an electrical field strongly modified by the sheath formation). Typical features of the metastable density that occur in different discharge modes are illustrated in table 4.IV.

Tableau 4.IV – Typical time-averaged values of the metastable densities in the observed discharge modes.

Mode	$f$ (kHz)	$P$ (W)	$n(2^1S)$ ( $\text{m}^{-3}$ )	$n(2^3S)$ ( $\text{m}^{-3}$ )
APTD-L	$< 100$	$< 1$	$< 3 \times 10^{15}$	$< 8 \times 10^{15}$
APGD	$< 100$	$> 1$	$8 - 20 \times 10^{15}$	$2 - 7 \times 10^{16}$
$\Omega$	$> 200$	$< 1$	$< 2 \times 10^{15}$	$3 - 70 \times 10^{15}$
Hybrid	200-3000	$> 1$	$3 - 50 \times 10^{15}$	$1 - 4 \times 10^{17}$
RF- $\alpha$	$> 5000$	$> 1$	$< 2 \times 10^{15}$	$8 - 30 \times 10^{15}$

Time-resolved He( $2^3S$ ) density measurements were performed with a diode laser. We observed that from 540 kHz and above, the metastable density does not vary over the excitation period. However, during ignition, an overshoot of the metastable density is observed whatever the discharge mode. The nature of this overshoot differs whether the discharge is in  $\Omega$  or the hybrid and RF- $\alpha$  modes. In the former, the small ignition overshoot is uniquely due to the higher electron temperature needed during the ignition phase. However, in the latter, the initial overshoot of metastable atoms is synchronized with an enhancement in the discharge current (which induces a voltage drop). This means that Penning ionization of impurities by metastable atoms produces electrons that contribute to the current during the discharge stabilization. On the other hand, at 100 kHz and below, the metastable atoms density follows the oscillation of the excitation wave, i.e. the metastable density does not reach a steady state. At 50 kHz, the metastable atoms effective lifetime is about 2.3  $\mu\text{s}$ . Accordingly, the density should be above the detection level during the whole time-period for excitation frequency higher than 100 kHz.

Finally, while the density of atoms in metastable states was found to be proportional to the power in almost every condition, quenching from water impurities can become important when the gas heating is sufficient to allow water to be desorbed from the solid dielectrics. This was observed in the hybrid mode. In addition, the hybrid mode was found to be intermittent for the frequency of 540 kHz. At such

a frequency, small variations of the electric field intensity have a major impact on ion trapping in the gas. This intermittent hybrid mode could explain some discrepancies previously observed between the hybrid modes sustained from each side of 1 MHz [111].

### **Acknowledgements**

The authors would like to acknowledge the French “Agence Nationale de la Recherche” (ANR), the Natural Sciences and Engineering Research Council (NSERC) of Canada and the “Fonds de Recherche du Québec Nature et Technologies” for their financial support. The authors also acknowledge the French “Réseau des Plasmas Froids” for their mobility support via the “Incitation au Partage de Moyens et de Compétences” program and for the loan of the diode laser. One of the authors (JSB) would like to thank the Bourses Frontenac program of the Ministère des Relations Internationales of Quebec Government for cotutelle scholarship.

### 4.3 Présentation de l'article 4

Poursuivant l'étude diagnostique des différents régimes de décharge obtenue des basses fréquences aux hautes fréquences, le prochain article est consacré à la détermination des paramètres plasma fondamentaux, soit la densité et de la température des électrons. La densité électronique est évaluée grâce à un diagnostic électrique précis du circuit électrique de la DBD, ce qui permet de déterminer la densité électronique moyenne (temporellement et spatialement). Ensuite, la température électronique moyenne (temporellement et spatialement) est obtenue à partir de spectroscopie d'émission optique de différentes transitions de l'hélium combiné à l'emploi d'un modèle collisionnel-radiatif de la DBD dans les mêmes conditions. Cet article offre une approche différente afin de caractériser les régimes de décharge. De plus, la détermination des paramètres plasma permet une comparaison quantitative des différents régimes précédemment observés.

La prochaine section de ce chapitre est constituée entièrement de l'article intitulé : *Electron Density and Temperature in an Atmospheric-Pressure Helium Diffuse Dielectric Barrier Discharge from kHz to MHz* [152]. Cet article a été soumis pour publication dans le journal *Plasma Sources Science and Technology*. Les manipulations expérimentales ont été conduites sur le même réacteur DBD que pour les trois articles précédents. Ainsi, j'ai effectué toutes les mesures expérimentales lors de mes séjours en France. Par contre, la caractérisation électrique des diélectriques et du circuit électrique de la DBD a été effectuée par le maître de conférence Nicolas Naudé, et le modèle collisionnel-radiatif utilisé pour les mesures de température électronique a été développé par le groupe de recherche du professeur Luc Stafford. De la même manière que pour les articles précédents, j'ai effectué l'analyse des données ainsi que l'interprétation des résultats. Finalement j'ai rédigé une version préliminaire de l'article qui a été amélioré sous la supervision de Joëlle Margot, Françoise Massines, Nicola Naudé et Luc Stafford.

Il est à noter que, puisque le format de l'article est en deux colonnes, certaines figures ont été reformatées, facilitant ainsi la lecture. Par ailleurs, les références



ont été retirées, évitant ainsi les redondances entre les différents articles. La liste complète des références est donc à la fin de la thèse.

#### 4.4 Electron Density and Temperature in an Atmospheric-Pressure Helium Diffuse Dielectric Barrier Discharge from kHz to MHz

Jean-Sébastien Boisvert<sup>1,2</sup>, Nicola Naudé<sup>3</sup>, Luc Stafford<sup>2</sup>, Joëlle Margot<sup>2</sup> and  
Françoise Massines<sup>1</sup>

<sup>1</sup> *Laboratoire PROMES-CNRS, Rambla de la Thermodynamique, 66100, Perpignan, France*

<sup>2</sup> *Département de physique, Université de Montréal, 2900 Blvd Édouard-Montpetit, H3T 1J4, Montréal (Qc), Canada*

<sup>3</sup> *Université de Toulouse, UPS, INPT, LAPLACE, F-31062 Toulouse Cedex 9, France*

**Abstract.** Diffuse dielectric barrier discharges are generated over a very wide range of frequency. According to the targeted frequency, the glow, Townsend-like, hybrid,  $\Omega$  and RF- $\alpha$  modes are sustained. In this paper, the electrical characterization of the discharge cell together with an electrical model are used to estimate the electron density from current and voltage measurements for excitation frequencies ranging from 50 kHz to 15 MHz. The electron density is found to vary from  $10^{14}$  to  $10^{17}$  m<sup>-3</sup> over this frequency range. In addition, a collisional-radiative model coupled with optical emission spectroscopy is used to evaluate the electron temperature (assuming Maxwellian electron energy distribution function) in the same conditions. The time and space-averaged electron temperature is found to be about 0.3 eV in both low-frequency and high-frequency ranges. However, in the medium-frequency range, it reaches almost twice this value as the discharge is in the hybrid mode. The hybrid mode is similar to the atmospheric-pressure glow discharge usually observed in helium DBDs at low frequency with the major difference being that the plasma is continuously sustained and is characterized by a higher power density.

#### 4.4.1 Introduction

Diffuse dielectric barrier discharges at atmospheric-pressure can be generated over a wide range of frequency (from kHz to MHz) [90, 111]. When the frequency increases, the discharge modes are numerous. In helium, up to 100 kHz, in the low-frequency range (LF : 30 to 300 kHz), the discharge can be sustained as an atmospheric-pressure glow discharge (APGD) or in a mode similar to the atmospheric-pressure Townsend discharge (APTD-L). The APGD mode is typical of He DBDs in the LF range ; it is characterized by a cathode fall that localizes the electric field, hence the light emission and the space charge, near the cathode [127]. The APTD-L mode was identified as a Townsend-like discharge because its light emission is close to the anode (similarly to the APTD usually observed in nitrogen) that is attributed to a uniform field over the gap [39]. Above 200 kHz, mostly in the medium-frequency range (MF : 0.3 to 3 MHz), two other discharge modes are sustained, namely the  $\Omega$  mode and the hybrid mode. The  $\Omega$  mode is characterized by its uniform electric field, its rather low charge species density and its light emission localized in the middle of the gas gap [71, 111]. In contrast, the light emission of the hybrid mode is focused near the cathode because its ion space charge is high enough to modify the electric field distribution [152]. Unlike the APGD, its light emission is continuous and its power density is significant. In addition, the hybrid mode yields a very different discharge behavior whether the frequency is above or below 1 MHz. Above 1 MHz, the hybrid mode is continuously sustained. However, at 1 MHz and below, the discharge is slightly contracted and the hybrid mode is periodically interrupted at a frequency of some kHz [125]. Finally, once the frequency reaches 5 MHz, the RF- $\alpha$  mode is achieved. The transition from hybrid to RF- $\alpha$  roughly occurs at the lower boundary of the high-frequency range (HF : 3 to 30 MHz). The RF- $\alpha$  mode is characterized by its light emission and its ion density localized in the sheaths regions [72]. In the HF range, the  $\Omega$  mode is also sustained. However, it is usually achieved by reducing the applied voltage below the ignition level.

At each frequency from 50 kHz to 15 MHz, at least two discharge modes coexist with the transition from one to the other controlled by the applied voltage (or the power). The aims of the present paper are to compare these modes and to uncover the nature of the mechanism that yields the transition. This is carried out using electrical and optical diagnostics. More specifically, determining the gas voltage and the discharge current from the measured voltage and current allows us to estimate the electron density as well as other discharge parameters while a collisional-radiative (CR) model coupled with optical emission spectroscopy (OES) measurements is used to estimate the electron temperature. In section 4.4.2, the experimental setup is presented while the electrical model and the CR model are briefly described in section 4.4.3. Section 4.4.4 is dedicated to the experimental results. Finally, in section 4.4.5, the results are explained in terms of electrons and ions oscillation amplitudes as a function of the frequency.

#### 4.4.2 Experimental setup

The experimental setup is schematically shown in figure 4.14. The plasma reactor consists of a plane parallel DBD with solid dielectrics on each electrode. The discharge cell is placed in a chamber connected to a mechanical pump aiming to minimize the amount of impurities. Experiments are thus performed in a well-controlled atmospheric environment at a pressure of 760 Torr with a constant helium flow (99.999% purity) of  $8.3 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  through a  $d = 2 \text{ mm}$  gap between the alumina solid dielectric surfaces. The electrodes cover a symmetric area of  $10 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$  on each dielectric. The gas is flowing along the axis perpendicular to the light measurement detector. Light measurements are thus integrated over 50 mm. In order to achieve frequencies ranging from 50 kHz to 15 MHz, three distinct power supply systems are employed as used in [111] and initially described in [90]. Whatever the frequency is, the waveform generator (Agilent 33220A) delivers the corresponding sinusoidal voltage to a power amplifier (Crest Audio CC4000 up to 125 kHz or Prâna GN 500 above). Impedance matching is achieved using different sets of transformers (up to 5 MHz) or an Advanced Energy (Navio) digital

matching network (above 10 MHz).

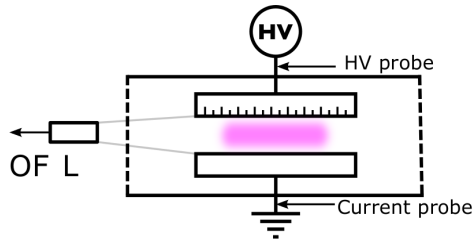


Figure 4.14 – Experimental setup for the OES measurements used in the estimation of the electron temperature. The discharge light emission is collected by a lens (L) and sent to the Maya Pro spectrometer via an optical fiber (OF). The gas flow is perpendicular to the optical measurement line of sight.

In order to obtain the gas voltage and the discharge current, the instantaneous voltage and current are measured. At any frequency, the current measurements are performed with a current transformer (Lilco 13W5000) located as close as possible to the grounded electrode while voltage measurements are achieved with a probe (Tektronix P6015) placed on the high-voltage electrode. The electrical measurements are recorded via an oscilloscope of 1 GHz bandwidth (Tektronix DPO 4104). Let us note that a PI-max 2 iCCD camera is also used to record the light distribution along the gas gap while the volume ( $\mathcal{V}$ ) and the effective section ( $S_{\text{eff}}$ ) of the discharge are measured with rulers inserted in the discharge chamber (details in [87]).

The electron temperature is estimated using the ratios of helium  $n = 3$  lines measured with a Maya 2000-Pro spectrometer system (165 to 1100 nm) equipped with a Hamamatsu S10420 detector. All optical emission measurements are corrected by the response curve of the whole optical system (including the optical port, the optical fiber, the lens, the spectrometer and the detector). The discharge cell and the OES setup are schematically illustrated in figure 4.14 and an example of spectrum (from 580 to 740 nm) is provided in figure 4.15.

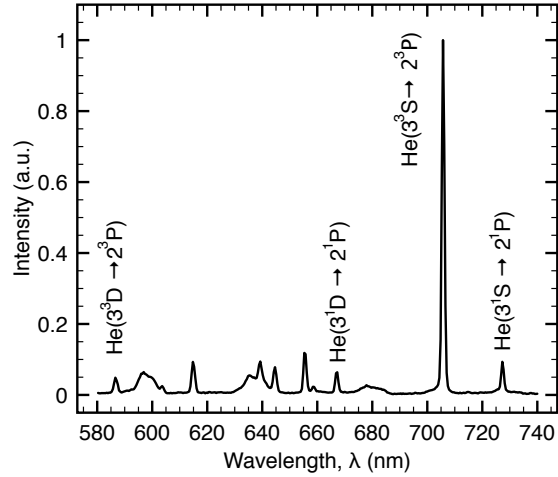


Figure 4.15 – Typical optical spectrum recorded with a Maya-Pro spectrometer corrected by the response curve of the whole optical system. The discharge is operated at 100 kHz with a power of 1.6 W.

### 4.4.3 Models

This section is first dedicated to a brief description of the electrical model used for the calculation of the gas voltage and the discharge current. The collisional-radiative model used to estimate the electron temperature is then briefly introduced.

#### 4.4.3.1 Electrical model

The gas voltage and the discharge current were obtained using the equivalent circuit model designed for DBDs in the very-low frequency range [37]. The equivalent circuit of the discharge cell is shown in figure 4.16. The circuit losses are accounted via a stray capacitance ( $C_p$ ) and a leak resistance ( $R_p$ ). Measurements of the gas and solid alumina dielectrics capacitance ( $C_g = 2.78$  pF and  $C_{sd}(S) = 24.6$  pF, where  $S$  is the electrode cross section) were achieved as a function of the frequency (from low to high frequency) together with the stray capacitance ( $C_p(f)$ ) and the leak resistance ( $R_p(f)$ ).

Assuming that the whole electrode area of the solid dielectric surfaces is covered by a diffuse discharge, the voltage across the gas gap  $V_g(t)$  and the discharge current

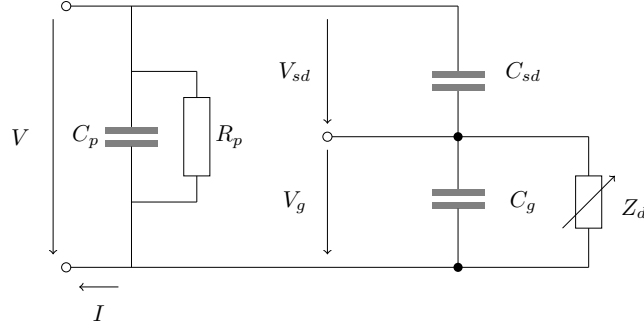


Figure 4.16 – Equivalent circuit of the DBD where  $C_{sd}$  is the capacitance of both solid dielectrics,  $C_g$  is the capacitance of the gas,  $C_p$  is the stray capacitance,  $R_p$  is the leak resistance,  $Z_d$  is the discharge impedance,  $V$  is the measured voltage and  $I$  is the measured current.

$I_g(t)$  can be calculated with the usual DBD formulas [114] :

$$V_g(t) = V(t) - V_{sd}(t) \quad (4.12)$$

with

$$V_{sd}(t) = \frac{1}{C_{sd}} \int_{t_0}^t I(t') dt' + V_{sd}(t_0),$$

and

$$I_d(t) = I(t) - I_{C_g}(t) \quad (4.13)$$

with

$$I_{C_g}(t) = C_g \frac{dV_g(t)}{dt},$$

where  $V_{sd}(t)$  is the voltage across the solid dielectrics,  $I_{C_g}(t)$  is the displacement current in the gas gap and  $I(t)$  and  $V(t)$  are the measured current and voltage taking into account the stray capacitance and the leak resistance.

#### 4.4.3.2 Collisional-radiative model

The electron temperature is deduced from OES measurements coupled with a CR model. In our experimental conditions, four helium  $n = 3$  lines are always observed in the discharge spectrum. The corresponding transitions are He( $3^3D \rightarrow 2^3P$ )

( $\lambda = 587.5$  nm), He( $3^1D \rightarrow 2^1P$ ) ( $\lambda = 667.8$  nm), He( $3^3S \rightarrow 2^3P$ ) ( $\lambda = 706.5$  nm) and He( $3^1S \rightarrow 2^1P$ ) ( $\lambda = 728.1$  nm). These spectral lines are identified in figure 4.15 where an example of discharge spectrum (from 580 to 740 nm) is displayed at an excitation frequency of 100 kHz and a power of 1.6 W. The other emission features present in the spectrum are mostly associated with He<sub>2</sub>, O and H. Their presence (helium excimer and impurities) is common in helium atmospheric pressure discharges as discussed in a previous paper [87].

The CR model (details of the model are provided in [78]) includes all the processes contributing significantly to the production or the destruction of the upper level of the four observed helium transitions. These include electron impact on the ground state, electron impact on both helium metastable states as well as excitation transfer between  $n = 3$  states. Quenching reactions and other radiative decay reactions are also taken into account. The CR model assumes a Maxwellian electron energy distribution function (EEDF) and uses the total metastable atom density (reported in another article [125]), the neutral density ( $n = 2.4 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ ) and the gas temperature ( $T_g = 300$  K) as input parameters. Both singlet ( $[\text{He}(3^1D \rightarrow 2^1P)]/[\text{He}(3^1S \rightarrow 2^1P)]$ ) and triplet ( $[\text{He}(3^3D \rightarrow 2^3P)]/[\text{He}(3^3S \rightarrow 2^3P)]$ ) line ratios can thus be fitted to those predicted by the CR model using the electron temperature ( $T_e$ ) as the only adjustable parameter. Let us note that since the electron density appears in each creation term for the  $n = 3$  states considered,  $n_e$  disappears in the ratio. Accordingly, no assumption is required on the electron density.

#### 4.4.4 Results

In this section, the models briefly described in section 4.4.3 are used to estimate useful discharge parameters. We first use RMS values of  $V_g$  and  $I_d$  to compare the RMS parameters over different discharge modes. Then the discharge differential resistance is used to evaluate the effect of the frequency over the whole frequency range under investigation. Finally, the RMS length of the sheath, the time and space-averaged electron density and temperature are presented and discussed.



#### 4.4.4.1 Gas voltage and discharge current

The RMS gas voltage and the RMS discharge current density ( $j_d$ ) were calculated from equations (4.12) and (4.13) together with the measured effective section of the discharge for each set of experimental conditions. Examples are presented in figure 4.17 where the RMS gas voltage is shown as a function of RMS discharge current density for different discharge modes. These modes are described below.

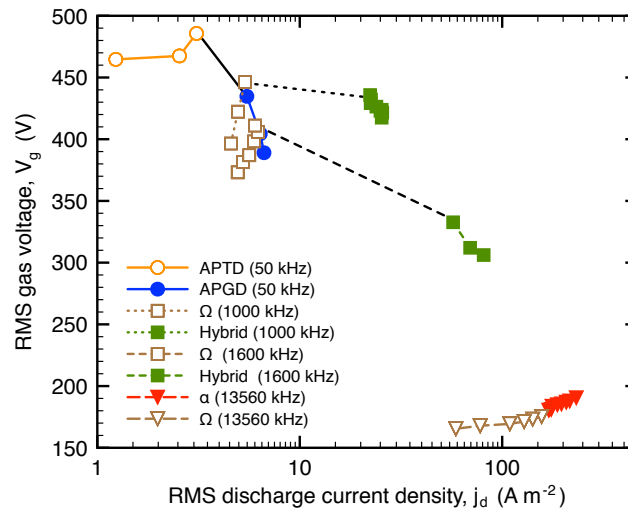


Figure 4.17 – RMS gas voltage as a function of the RMS discharge current density for different frequencies (from equations (4.12) and (4.13)). Discharge modes are identified by different colors. The transition from APTD-L to APGD modes and from  $\Omega$  to hybrid modes are illustrated by black lines.

At 50 kHz, the discharge is ignited in the APTD-L mode and switches to the APGD mode when the applied voltage is increased and the RMS gas voltage decreases.

1. APTD-L mode. In this mode, the RMS gas voltage is almost constant while the RMS discharge current significantly increases with increasing applied voltage. This is similar to the Townsend discharge for which the gas voltage is constant during the current increase [20]. In this discharge, space charge effects are very weak.
2. APGD mode. Once the space charge gets sufficiently high, the RMS gas

voltage starts to decrease. The discharge then undergoes a transition from the APTD-L mode to the APGD mode. In comparison to the low-pressure glow discharge, the RMS gas voltage drop is not very large because of the transient nature of the discharge. In the APGD mode, the RMS gas voltage decreases with increasing RMS discharge current. This decrease suggests that the discharge has not reached the normal glow mode yet. As reported in similar conditions, the discharge is rather in the subnormal glow mode for which the cathode fall is developing [113, 153].

In the MF range, at both 1 and 1.6 MHz, the discharge ignites in the  $\Omega$  mode and switches to the hybrid mode when the applied voltage is increased.

1.  $\Omega$  mode. This mode differs from the APTD-L mode in terms of RMS gas voltage as the latter increases steeply with the RMS discharge current density (as opposed fairly constant behaviour in the APTD-L mode). The discharge should be highly resistive in this mode as a small increase of the RMS discharge current density is accompanied by a large increase of the RMS gas voltage. This low conductivity is consistent with the charge particle density (and space charge) that should be relatively low for this mode.
2. Hybrid mode. Once the space charge is high enough, the electric field becomes localized in the sheaths and the discharge switches to the hybrid mode. This transition exhibits a similar feature to that occurring between the APTD-L and the APGD, i.e. they are associated to an RMS discharge current density increase and an RMS gas voltage decrease. This indicates that the space charge is high enough to modify the spatial distribution of the applied electric field and thus to enhance ionization in high-fields regions. After the transition, the RMS gas voltage decreases with the rise of the RMS discharge current density suggesting a build-up of the space charge. Let us note that a very similar behavior occurs at both 1 and 1.6 MHz. However, at 1 MHz, the RMS discharge current density is considerably lower while the RMS gas voltage is significantly larger than at 1.6 MHz.

At 13.56 MHz, the discharge ignites in the RF- $\alpha$  mode and remains in this mode when the applied voltage is increased. In contrast to frequencies below 5 MHz, once the discharge established, the voltage can be significantly decreased below the ignition value, thus leading to the  $\Omega$  mode.

1. RF- $\alpha$  mode. In this mode, the RMS gas voltage increases monotonically with the RMS discharge current (as expected from the literature [61, 62, 154]). This behavior is the opposite of the hybrid mode even if the RMS discharge current density is much higher. Let us note that at such frequency, the transition from and to the  $\Omega$  mode is rather smooth.
2.  $\Omega$  mode. The behavior of the RMS gas voltage with the RMS discharge current density is similar to that of the  $\alpha$  mode, i.e. it increases monotonically. This is due to their similar nature as they are both characterized by ionization in the bulk [71]. On the other hand, the  $\Omega$  mode can be sustained at relatively low RMS discharge current density.

#### 4.4.4.2 Differential resistance of the discharge

In order to evaluate the influence of the frequency over the whole range from LF to HF, the dependence of the RMS gas voltage on the RMS discharge current is examined. As discussed in section 4.4.4.1, each discharge mode is associated to a different slope ( $dV/dI \approx \text{constant}$ ), for each RMS characteristic curve. Similar to the slope of the IV characteristic curve of the DC discharge [20], the slopes of RMS characteristic curves are in units of  $\Omega$  and represent the differential resistance of the discharge. The differential resistance is shown in figure 4.18 as a function of the excitation frequency. From 50 kHz to 3 MHz, two  $dV/dI$  are observed at each frequency (above 3 MHz, only one  $dV/dI$  is observed). At a given frequency, figure 4.18 indicates that  $dV/dI$  strongly differs according to the discharge mode but also changes significantly when the frequency increases. Let us consider the effect of the frequency when the discharge is in the low applied-voltage case (APTD-L and  $\Omega$ ) and the high applied-voltage case (APGD, hybrid and RF- $\alpha$ ) separately.

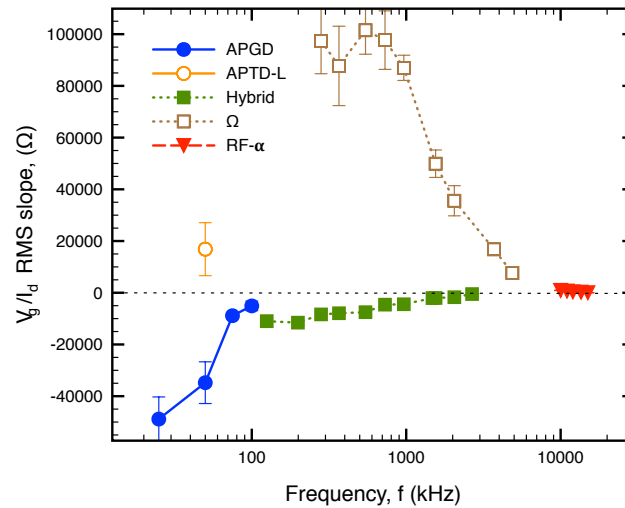


Figure 4.18 –  $dV/dI$  of the RMS characteristic curves as a function of the frequency. Discharge modes are indicated by different symbols. The error bars represent the error on the linear fit.

In the low applied-voltage case, the  $dV/dI$  is positive.

1. APTD-L mode from 50 to 100 kHz.  $dV/dI$  is slightly positive in this mode, i.e. the gas voltage slightly increases with the discharge current. Unlike the Townsend DC discharge, the  $dV/dI$  is rather high suggesting that the RMS gas voltage has not reached a plateau. Let us note that a few data points were recorded in the APTD-L mode so that  $dV/dI$  could only be obtained at 50 kHz .
2.  $\Omega$  mode above 200 kHz. The large increase of  $dV/dI$  between 50 and 300 kHz indicates the transition from APTD-L to  $\Omega$  mode. This occurs when the memory effect is effective over the complete cycle, which allows the discharge to be continuous [111]. Accordingly, the differential resistance is very high up to 1 MHz. In other words, the RMS gas voltage steeply increases with the RMS discharge current. This suggests that the discharge secondary emission is not important in this mode since the current only increases with the voltage. Then, above 1 MHz the  $dV/dI$  decreases to reach the value of the  $\alpha$  mode (at 10 MHz and above) as the discharge becomes less and less resistive.

On the other hand, in the high applied-voltage case,  $dV/dI$  is mostly negative.

1. APGD mode below 125 kHz. As for the DC discharge in the subnormal glow mode the gas voltage decreases with the discharge current. This is the usual behavior of the APGD mode [39] since the growth of discharge current increases the space charge, which reduces the length across which the voltage is applied [153]. From 50 to 125 kHz,  $dV/dI$  tends to zero due to enhanced memory effect and thus enhanced ionization at higher frequencies.
2. Hybrid mode from 200 to 3 MHz. Between 100 and 125 kHz,  $dV/dI$  of the APGD drops by 50%. This is most likely associated with the transition from the APGD to the hybrid mode, when the memory effect becomes effective over the complete cycle. In the hybrid mode,  $dV/dI$  increases monotonically and smoothly. Its absolute value is still negative, hence illustrating its similarity with the APGD mode. Nonetheless, the reduction of the absolute value of  $dV/dI$  suggests that the discharge becomes more conductive with the frequency.
3. RF- $\alpha$  mode above 5 MHz. In this mode,  $dV/dI$  is positive and very low, i.e. ionization in the bulk should be dominant and the charge particle density should be relatively high. Similarly to the  $\Omega$  mode above 1 MHz,  $dV/dI$  also decreases monotonically with the frequency. This is consistent with the fact that the charge particle density should increase with the frequency.

#### 4.4.4.3 Sheath thickness

Above 200 kHz, over the range of conditions investigated, the memory effect lasts over a complete cycle such that the discharge becomes continuous [111]. At such frequencies, we can assume that a quasi-neutral region is sustained in the middle of the gas gap during the complete period of the applied voltage. Accordingly, this plasma should necessarily be surrounded by sheaths on both sides. With such a small gas gap length, the sheath thickness can become very important.

While the sheath model developed in [155] works well for the RF- $\alpha$  mode, it is not suitable for the discharge in the  $\Omega$  mode. To estimate and compare the sheath thickness in both discharge modes, we chose to use the Child law in the high pressure collisional limit [47]. Using the RMS gas voltage ( $V_{gRMS}$ ) and the RMS discharge current density ( $j_{dRMS}$ ), the RMS sheath thickness  $s$  is given by

$$s \approx \left( \frac{9\mu_i\epsilon_0 V_{gRMS}^2}{8j_{dRMS}} \right)^{1/3}, \quad (4.14)$$

where  $\epsilon_0$  is the vacuum permittivity and  $\mu_i = 20 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  is the  $\text{He}_2^+$  ion mobility [20] ( $\text{He}_2^+$  is expected to be the dominant ion when the level of impurities is sufficiently low [95]). At 13.56 MHz, the sheath thickness is about 200  $\mu\text{m}$ , which lies between the values reported by [155] and [69] in helium capacitive discharges at atmospheric pressure.

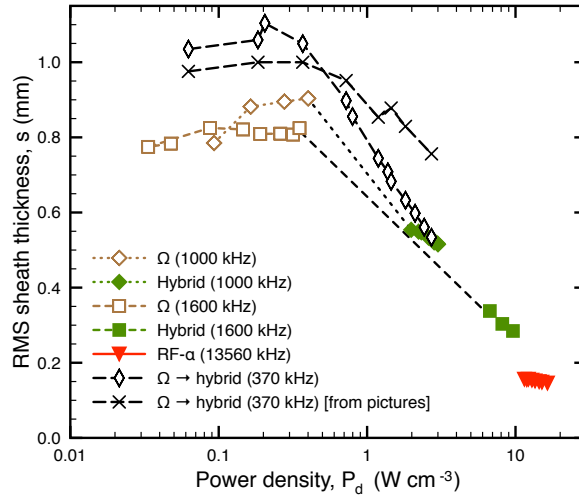


Figure 4.19 – RMS sheath thickness as a function of the power density at different frequencies. The sheath thickness is calculated from equation (4.14) with the RMS gas voltage and the RMS discharge current density. The  $\times$  symbols represent the sheath thickness evaluated from imaging. This was recorded with the iCCD camera with exposure of 100 ms.

The evolution of the sheath thickness with the power density is illustrated in figure 4.19. The sheath thickness decreases from about 1 to 0.15 mm with increasing

frequency. This agrees with the fact that the sheath thickness should be inversely proportional to the frequency at atmospheric pressure [70]. In addition, with respect to the discharge mode, two behaviors are observed, the sheath thickness being either roughly constant or decreasing with the power density.

1.  $\Omega$  mode :  $s > 0.7$  mm. In the  $\Omega$  mode (excluding the HF range), the sheath is about constant and is almost half of the gas gap distance. This is consistent with the high resistivity of this mode from 200 kHz to 3 MHz (see figure 4.18). As reported in [111], the transition from  $\Omega$  to hybrid mode does not occur in the same manner whether the frequency is above or below 1 MHz. More precisely, at 367 kHz the transition is smooth when the applied voltage is increased so that the formation of two maxima of light emission can be seen with the naked eye. Consequently, the sheath thickness can be estimated from the distance between the light maximum and the dielectric surface as determined with the iCCD camera. Figure 4.19 shows that the sheath thicknesses obtained from camera and electric measurements are in good agreement.
2. Hybrid mode :  $s < 0.9$  mm. At 0.37, 1 and 1.6 MHz, the sheath thickness decreases as the power density increases. This decrease should result from the space charge that enhances the localized electric field when the power density grows. In addition, the sheath thickness decreases with increasing frequency, in good agreement with the differential resistance that tends towards zero in figure 4.18.
3. RF- $\alpha$  mode :  $s < 0.2$  mm. In agreement with the literature, at 13.56 MHz the sheath thickness decreases with increasing power density [154]. Let us note that the same behavior is observed for the  $\Omega$  mode at this frequency (achieved by decreasing the applied voltage after ignition). The small value of  $s$  at 13.56 MHz as compared to the MF range (more than twice the value) underlines the important influence of the frequency on the sheath thickness. As we will discuss in the next section, this dependence relies on the charged particles density.

#### 4.4.4.4 Electron density

Another parameter that can be deduced from the electrical measurements is the electron density. From the RMS discharge current density and the RMS gas voltage, the time and space-integrated electron density was estimated with the help of [63, 156]

$$j_{d_{RMS}} = n_e e \mu_e E_{g_{RMS}} \quad (4.15)$$

where  $e$  is the elementary charge,  $E_{g_{RMS}} = V_{g_{RMS}}/0.002 \text{ m}$  is the spatially-averaged RMS electric field and  $\mu_e = 0.11 \text{ m}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$  is the electron mobility in the helium gas at atmospheric pressure. The time and space-averaged electron density obtained from the RMS discharge current density and the RMS gas voltage via equation 4.15 is shown in figure 4.20 as a function of the power density.

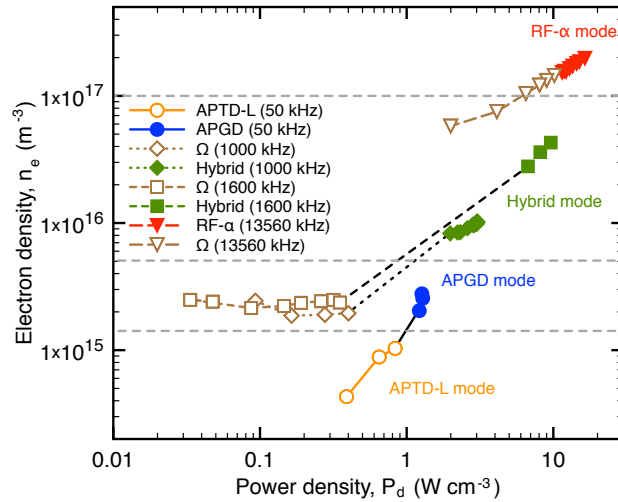


Figure 4.20 – Electron density calculated from equation (4.15) as a function of the power density at different frequencies. The approximated electron density range of the discharge modes are represented by the gray dashed lines. Transition from APTD-L to APGD and from  $\Omega$  to hybrid modes are illustrated by black dashed lines.

At the exception of the  $\Omega$  mode in the MF range, one observes that the electron density increases monotonically with the power density. Depending on the discharge mode, the value of the electron density can vary from  $10^{14}$  to  $10^{17} \text{ m}^{-3}$ .



1. APTD-L mode :  $n_e \leq 10^{15} \text{ m}^{-3}$ . At 50 kHz, the electron density increases with the power density but remains very low. It is about of the same order of magnitude as in the APTD [13] for which the space charge is below the density required to form the cathode fall.
2. APGD mode :  $10^{15} \text{ m}^{-3} < n_e < 10^{16} \text{ m}^{-3}$ . In this mode, the electron density increases with the power density in agreement with the behavior of the discharge current in a glow discharge [20]. Assuming  $n_i \approx n_e$ , the value of  $n_e$  is in the range of values required for the space charge to initiate the formation of the cathode fall [13].
3.  $\Omega$  mode :  $n_e > 10^{15} \text{ m}^{-3}$ . In this mode,  $n_e$  is almost independent of the power density (except in the HF range). Let us note that, even if  $n_e$  is power independent at a given frequency, it increases with the frequency. Actually, in the MF range,  $n_e \propto f^2$  (see figure 4.21). This relation is similar to that occurring in low pressure capacitive discharges when ohmic heating dominates the electron kinetics [157]. Let us note that, as reported in [121],  $n_e$  also

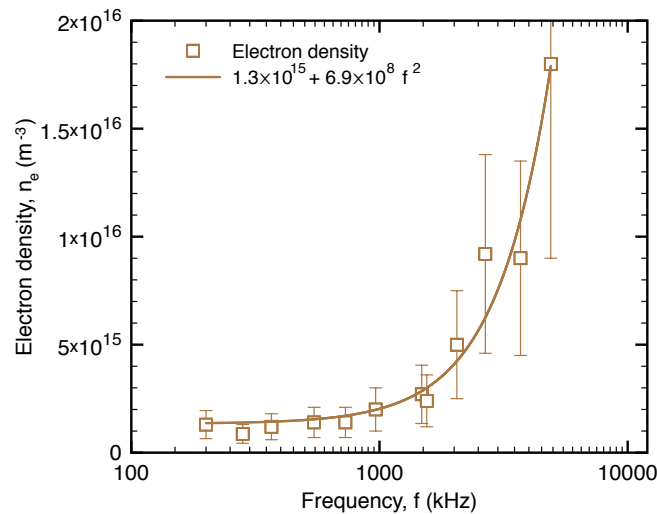


Figure 4.21 – Average electron density in the  $\Omega$  mode as a function of the frequency. The error bar is the standard deviation on the average over different power densities.

increases with  $f$  in the HF range. However, as  $n_e$  also depends on the applied voltage, its relation with  $f$  over the HF range is more complex.

4. Hybrid mode :  $10^{15} \text{ m}^{-3} < n_e < 10^{17} \text{ m}^{-3}$ . In the hybrid mode,  $n_e$  strongly increases with the power density. Unlike the transition from APTD-L mode to APGD mode, the transition from  $\Omega$  to hybrid mode occurs at a much higher value of  $n_e$  (the transition value of  $n_e$  is proportional to  $f^2$ ).
5. RF- $\alpha$  mode :  $n_e > 10^{17} \text{ m}^{-3}$ . At 13.56 MHz, the electron density is the highest recorded. The values are in agreement with those reported in helium capacitive discharges at atmospheric pressure [61, 63, 121]. As expected [65], it also increases as a function of the power density. Once again, the transition from  $\Omega$  mode to RF- $\alpha$  mode is rather smooth in comparison with transitions occurring in the MF and LF ranges.

When the discharge is dominated by ohmic heating (in both bulk and sheaths), the electron density becomes proportional to the gas gap voltage ( $n_e \propto V_g$ ) [47]. To test this assumption, figure 4.22 shows the electron density as a function of the RMS gas voltage for the different discharge modes.

In the case of the  $\Omega$  and RF- $\alpha$  modes shown in figure 4.22a and 4.22b, a linear dependence of the electron density on the RMS gas voltage is observed. This behavior is in good agreement with that expected from the literature. In addition, for these modes only, the electron density is strictly proportional to the RMS gas voltage. In the hybrid and APGD modes (figure 4.22c) the electron density decreases with increasing RMS gas voltage, which supports the importance of the electron secondary emission in these cases. Let us note that only a few data points were recorded in the APTD-L mode such that it is difficult to conclude. Nonetheless, the evolution is likely to be non-linear due to electron secondary emission that can be significant for this mode too.

#### 4.4.4.5 Electron temperature

We now estimate the electron temperature with the help of OES coupled with the CR model overviewed in section 4.4.3.2. The time and space-averaged electron temperature is shown in figure 4.23 as a function of the power density.

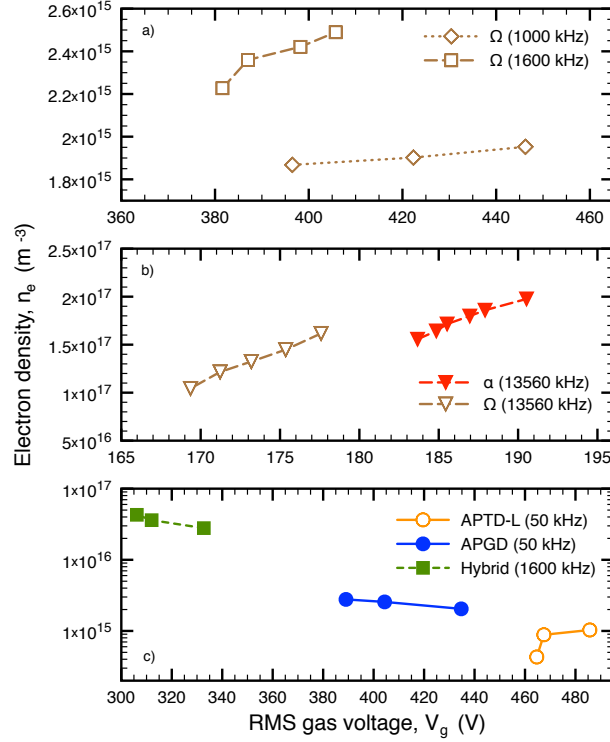


Figure 4.22 – Electron density as a function of the RMS gas voltage for the different modes. Subfigures illustrate different ranges of  $n_e$  and RMS gas voltages. a)  $n_e$  in the  $\Omega$  mode. b)  $n_e$  in the  $\Omega$  and the RF- $\alpha$  modes. c)  $n_e$  in the APTD-L, APGD and hybrid modes.

It can be seen that  $T_e$  always lies between 0.25 and 0.5 eV. It does not follow a monotonic dependence on the frequency and it behaves differently with the power density according to the discharge mode.

1. APTD-L mode :  $T_e \approx 0.3$  eV. At 50 kHz, when the discharge is in the APTD-L mode, the electron temperature is about 0.3 eV. In contrast with the electron density, the electron temperature does not increase with the power density. This suggests that the power is mostly used to increase the charged particles multiplication rather than the average electron energy (see  $n_e$  in figure 4.20).
2. APGD mode :  $T_e \approx 0.3$  eV. When the discharge is in the APGD mode,  $T_e$  is also about 0.3 eV for all power densities investigated, in good agreement with the time-averaged electron temperature reported in the LF range [78]. The

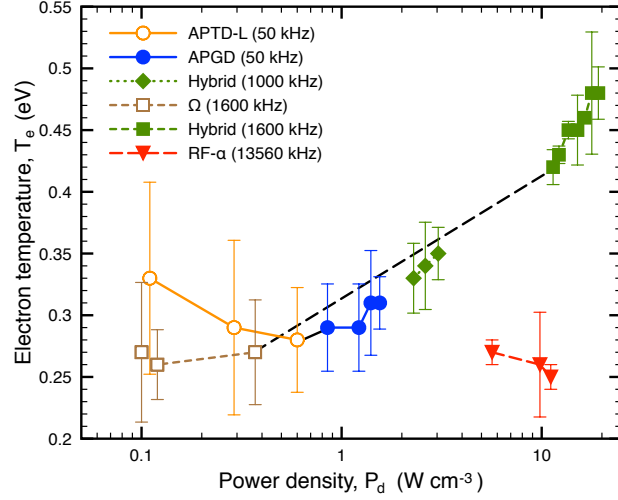


Figure 4.23 – Electron temperature as a function of the power density at different frequencies. The electron temperature is obtained from OES coupled with the CR model overviewed in section 4.4.3.2. Transitions from APTD-L to APGD and from  $\Omega$  to hybrid modes are illustrated by black lines. The error bars represent the signal-to-noise ratio.

energy of electrons was reported to vary significantly over the half-period of oscillation. It should be high during ignition and should decrease after the reduction of the voltage across the gas gap, i.e. the mean value should be lower than its maximum value. Again, as in the APTD-L mode, the rise in the power density mostly modifies the population of charge species but not so much the average electron energy.

3.  $\Omega$  mode :  $T_e \approx 0.27\text{ eV}$ . At 1.6 MHz, in the  $\Omega$  mode, the electron temperature is about 0.27 eV and remains almost independent of the power density. This low electron temperature is consistent with the continuous nature of the discharge, i.e. contrary to the APTD-L and the APGD it is not ignited twice over a cycle. In such cases, time-resolved and time-averaged electron temperatures should be similar.
4. Hybrid mode :  $T_e > 0.32\text{ eV}$ . The transition from  $\Omega$  mode to hybrid mode is accompanied by a significant increase of the electron temperature. Once the discharge is in the hybrid mode,  $T_e$  is higher than 0.32 eV and monotonically

increases with the power density. In line with the light emission being mainly emitted from the sheaths [87], this high value of  $T_e$  suggests that the average electron energy is high in the sheaths where electron secondary emission should be substantial. This is consistent with the high power density, and the high density of atoms in a metastable state in the hybrid mode [125]. Let us note that the electron temperature at 1 MHz is at the intermediate value of 0.34 eV. This corresponds to the intermittent hybrid mode and supports the previous observation of oscillations between the  $\Omega$  and the hybrid mode that should lead to reduced value of time-averaged electron temperature [125].

5. RF- $\alpha$  mode :  $T_e \approx 0.26$  eV. At 13.56 MHz, the electron temperature is about 0.26 eV. This value is relatively low in comparison to the  $\sim 2$  eV values usually obtained by simulations or by measurements of the neutral bremsstrahlung continuum [65, 103]. Although it is not strictly the case in atmospheric-pressure non-equilibrium plasmas, all these methods assume a Maxwellian EEDF. However, using the natural bremsstrahlung continuum rather than our helium line ratio allows to sample electrons of different energy, a possible explanation for the temperature discrepancy. Nonetheless, in our conditions, the estimated electron temperature clearly shows how different the hybrid mode is from the RF- $\alpha$ .

#### 4.4.5 Discussion

From the set of data presented in figure 4.20, it is possible to determine the power absorbed per electron from the oscillating field ( $\theta_e$ ) [158]. Assuming that only electrons acquire power from the electric field, this parameter is simply given by  $\theta_e = P_d/n_e$  and is shown in figure 4.24 as a function of the power density. Notwithstanding the power density and the discharge mode,  $\theta_e$  always lies between  $10^{-11}$  and  $10^{-9}$  W per electron. In addition, for each APTD-L, APGD, hybrid and RF- $\alpha$  modes,  $\theta_e$  is almost constant within the same mode. This result is in good agreement with  $\theta_e$  being independent of the discharge power level in high frequency

discharges [159]. As a consequence,  $n_e$  should vary in the same way as the power density (as discussed in section 4.4.4). On the other hand, regardless of the discharge mode (except the  $\Omega$  mode),  $\theta_e$  decreases with increasing frequency. In fact, for a constant power density,  $T_e$  also tends to decrease with the rise of the frequency. In order to better understand the influence of the frequency on  $\theta_e$  and  $T_e$ , let us consider the displacement of charged particles in an oscillating field of varying frequency.

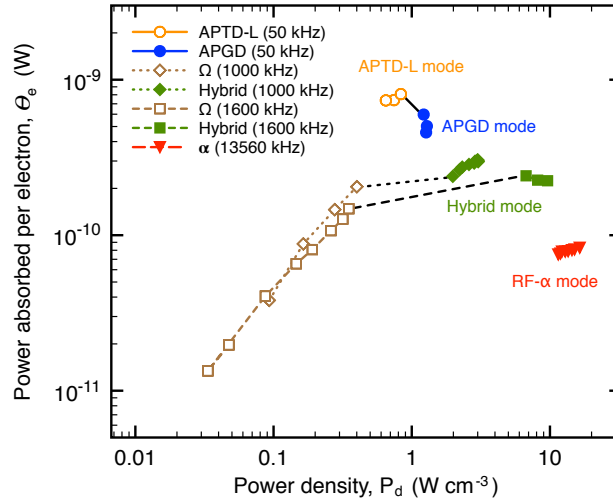


Figure 4.24 – Absorbed power per electron ( $\theta_e = P_d/n_e$ ) as a function of the power density for different discharge modes.

Using the mobility values ( $\mu_x$ ) of electrons and helium ions ( $\text{He}_2^+$ ) in a helium plasma of length  $d$  produced by an oscillating field of frequency  $f$  [20], the formula

$$A = \frac{\mu_x V_{gRMS}}{2df} \quad (4.16)$$

provides the distance a particle can travel during half a cycle. Let us note that a similar formula can be obtained for particles during the breakdown, using a drift-diffusion model [121, 126].

In order to estimate the actual range of amplitude of oscillation of ions, the maximum and minimum amplitude were calculated at each frequency according to the voltage amplitude variation. The minimum value was determined by using

the lowest value of the RMS gas voltage together with the interdielectric distance  $d = 2$  mm in the formula (estimation in APTD-L and  $\Omega$  mode limits). The maximum value was calculated by considering the highest RMS gas voltage together with the sheath thickness (estimation in APGD, hybrid and  $\alpha$  modes limits). Figure 4.25 shows  $\text{He}_2^+$  amplitude of oscillation together with the estimated range of sheath thickness as a function of the frequency. From this figure we propose an interpretation of the discharges behavior with respect to the frequency.

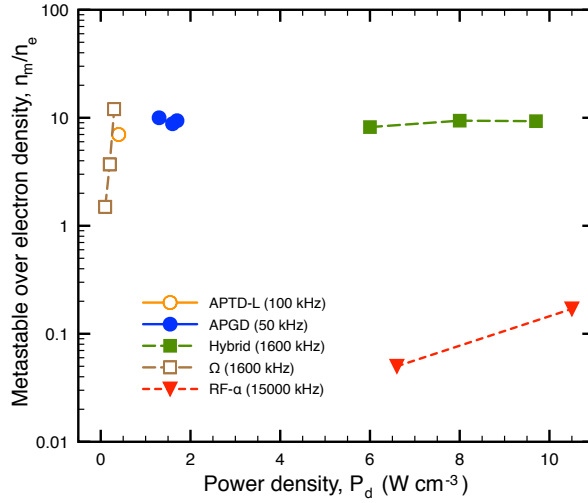


Figure 4.25 – Minimum and maximum values of the amplitude of oscillation of electron and  $\text{He}_2^+$ . Calculations are based on equation (4.16). The minimum and the maximum sheath thickness  $s$  are also displayed for reference.

1. Below 100 kHz, in the APGD and the APTD-L modes, both the ion and electron amplitude of oscillations are larger than the gas gap. Charged species interact freely with the dielectric surfaces, hence the usual behavior of a DBD in the low-frequency range. The transition from APTD-L to APGD results from the accumulation of the space charge in the gas gap and occurs rather smoothly due to the electron secondary emission that is important in both modes.
2. From 100 to 200 kHz, the ions begin to be trapped in the gas gap when the applied voltage is very low. This occurs as the APTD-L smoothly turns into

the  $\Omega$  mode.

3. Between 200 and 500 kHz, the ions are still mostly trapped in the gas gap at low applied voltage. However, the ion amplitude of oscillation is always larger than the sheath length so that electron secondary emission becomes important before the space charge threshold for the hybrid mode is reached. Therefore, the transition from  $\Omega$  to hybrid mode is smooth in this frequency range (see figure 4.19). On the other hand, once the hybrid mode is reached, the ions easily travel across the gas gap.
4. From 500 to 1000 kHz, in the  $\Omega$  mode, the ions are trapped and electron secondary emission should be negligible. Only bulk ionization can contribute to the accumulation of space charge no matter the applied voltage. This explains the gradual increase of  $n_e$  with increasing frequency in the  $\Omega$  mode (see figure 4.21). In addition, in this mode figure 4.24 indicates that  $\theta_e$  increases with  $P_d$ . This can probably be ascribed to the contribution of inelastic collisions in the electron energy balance equation, in particular to stepwise excitation and ionization processes involving metastable helium atoms as will be shown later (figure 4.26). Once the space charge is high enough, the high electric field close to the dielectric surfaces allows the ions to travel across the sheath and produces a large amount of secondary electrons, hence the abrupt transition to the hybrid mode. However, at 1000 kHz and below, ion trapping is not efficient enough in the hybrid mode so that the ions are rapidly lost to the wall and the cathode fall vanishes. This is the intermittent hybrid mode [125].
5. Above 1 MHz, the same phenomenon occurs. However, in the hybrid mode, the ions are sufficiently trapped to continuously maintain a space charge, i.e. the ions amplitude of oscillation is larger than the sheath thickness but smaller than the gas gap.
6. Finally, above 3 MHz, in addition to the ions, the electrons also stop their



interaction with the solid dielectrics. The electron secondary emission from dielectric surfaces thus becomes much harder to produce, hence the upper frequency limit of the hybrid mode, about 3 MHz. The RF- $\alpha$  mode is thus comparable to the  $\Omega$  mode, as recently asserted by numerical modelling [71]. However, the highest power densities and thus the highest electron densities recorded in the RF- $\alpha$  mode are consistent with the fact that the electrons get trapped in the gas gap (smaller losses at the surfaces) at higher frequency.

While the APGD,  $\Omega$  and RF- $\alpha$  modes are rather well understood, the APTD-L and the hybrid modes still need to be investigated. In particular, the APTD-L mode is more akin to a glow discharge that is stopped during its ignition phase (it cannot reach the cathode fall formation) rather than an actual Townsend discharge. In fact, the transition from APTD-L mode to APGD mode is rather smooth in terms of electron density, power density and electron temperature. In addition, these observations are in agreement with the behavior of helium DBDs during the ignition phase [79]. In contrast to the APTD-L, the main mechanism controlling atmospheric pressure Townsend discharges is the memory effect due to the metastable atoms [39]. In order to compare the role of the metastable atoms in the discharge, figure 4.26 summarizes the ratio of average value of He( $2^3S$ ) density over the average electron density,  $n_m/n_e$ , as a function of the power density for different discharge modes. The metastable densities were obtained in [125].

The  $n_m/n_e$  ratio is about the same in the APTD-L and APGD modes, which means that the role of the metastable atoms should be similar for both modes. Figure 4.26 also shows that the metastable atoms density is about ten times the electron density for any discharge mode except the RF- $\alpha$  mode where  $n_m$  becomes 10 times lower than  $n_e$ . Therefore, we can conclude that the hybrid mode strongly differs from the RF- $\alpha$  mode. Another interesting feature of figure 4.26 is that it is only with the  $\Omega$  and the RF- $\alpha$  modes that the  $n_m/n_e$  ratio increases with the power density. This illustrates how similar the  $\Omega$  and the RF- $\alpha$  modes are, except that the metastable density of the  $\Omega$  mode (at least, in the MF range) increases up to a value at which the hybrid mode is triggered. In the  $\Omega$  and RF- $\alpha$  modes in

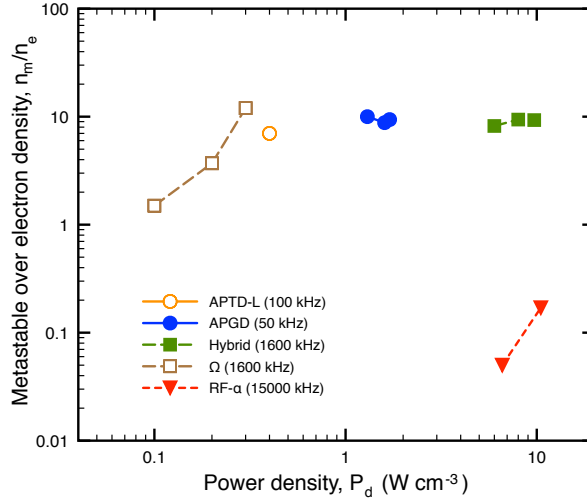


Figure 4.26 – Ratio of metastable density over electron density as a function of the power density for different discharge modes

which the contribution from secondary electron emission is negligible, the rise of the metastable to electron number density ratio with the power density is expected to play an important role in the electron energy balance equation. In particular, the power absorbed per electron (which is linked to the power lost per electron through elastic and inelastic collisions) is expected to increase with  $n_m/n_e$  due to the contribution of stepwise excitation and ionization processes involving metastable helium atoms [160], as already observed in figure 4.24.

#### 4.4.6 Conclusion

In this paper,  $n_e$  and  $T_e$  were determined in helium diffuse DBDs when the frequency varies from 50 kHz to 15 MHz. Using an electrical model to obtain the gas voltage and the discharge current, the electron density was estimated to remain below  $10^{15} \text{ m}^{-3}$  in the APTD-L mode and to increase up to  $10^{17} \text{ m}^{-3}$  when the frequency is raised to achieve the RF- $\alpha$  mode. The  $\Omega$ , APGD and hybrid modes yield intermediate values. In addition, OES coupled with a CR model allowed to evaluate the mean electron temperature in all these modes. These measurements showed that  $T_e$  is about 0.3 eV in the APTD-L, the APGD, the  $\Omega$  and the RF- $\alpha$

modes. However, the electron temperature reaches twice this value in the hybrid mode.

According to the ions oscillation amplitude, the hybrid mode can be splitted in three subranges. The first one displays a smooth transition with the  $\Omega$  mode due to the large amplitude of oscillation of the ions that can always provide an important amount of secondary emission. The second one is the intermittent hybrid mode for which the ions are not efficiently trapped when the electric field is localized so that the ions are rapidly lost once the hybrid mode is reached. The last one is the most stable one for which the ions are sufficiently trapped so that it can be continuously sustained, but not enough so that they can still significantly contribute to electron secondary emission at the dielectric surface.

Finally, even if the physics driving the discharge modes is very different between the LF and HF range, a striking similarity emerges with respect to the transition from low to high applied voltage (APTD-L to APGD,  $\Omega$  to hybrid and  $\Omega$  to  $\alpha$ ). Whatever the frequency is, the transition occurs when the ion density reaches a threshold to form a significant space charge, thereby leading to a modification of the spatial distribution of the electric field. This occurs in the LF range when the APTD-L mode switches to the APGD mode, in the MF range when the  $\Omega$  mode switches to the hybrid mode and in the HF range when the  $\Omega$  mode switches to the  $\alpha$  mode. However, one should note that since ion trapping is always efficient in the HF range, the transition from  $\Omega$  to  $\alpha$  mode occurs smoothly in comparison with the drastic transition from  $\Omega$  to hybrid modes.

## Acknowledgements

The authors would like to acknowledge the French "Agence Nationale de la Recherche" (ANR) and the Natural Sciences and Engineering Research Council (NSERC) of Canada for their financial support.

## CONCLUSION GÉNÉRALE

Les décharges homogènes à la pression atmosphérique dans l'hélium, en essor depuis une vingtaine d'années, sont habituellement étudiées de manière intimement liée à la spécificité de leur dispositif expérimental. C'est pourquoi les décharges en BF et les décharges en HF ont évolué de façon relativement indépendante pendant cette période. L'intérêt de la présente étude était donc de faire le pont entre ces deux domaines de recherche. Comme nous avons pu le voir au chapitre 3, une décharge homogène a pu être générée sur toute la plage de fréquence examinée (de 25 kHz à 15 MHz). C'est d'ailleurs une conclusion importante de l'étude qui, par surcroît, confirme la robustesse de la configuration employée dans l'étude : la DBD avec deux barrières diélectriques d'alumine d'un millimètre d'épaisseur séparant un espace gazeux d'hélium de 2 mm.

Une conclusion importante de l'étude est la variété des régimes de décharge observés en fonction de la fréquence d'excitation employée. Bien que les régimes soient très différents les uns des autres, sur la plage de fréquence étudiée, on peut remarquer deux tendances lorsque la fréquence augmente des BF aux HF : la densité électronique moyenne (intégrée spatialement et temporellement) varie de  $10^{14}$  à  $10^{17} \text{ m}^{-3}$  tandis que la température électronique moyenne (intégrée spatialement et temporellement) se situe toujours entre 0,3 et 0,5 eV. Par contre, afin d'obtenir un portrait plus précis de l'influence de la fréquence sur la DBD, il est nécessaire de regrouper les fréquences en régimes de fonctionnement. La variété de ces régimes (APGD, APTD-L,  $\Omega$ , hybride et RF- $\alpha$ ) est d'ailleurs probablement la plus grande conclusion du travail. Les valeurs typiques des paramètres obtenues expérimentalement sont illustrées au tableau ci-dessous.

Le régime APTD-L est obtenu pour des fréquences entre 50 et 100 kHz et des tensions appliquées faibles. Il se distingue par sa luminosité qui est maximum du côté de l'anode, ce qui lui donne un aspect similaire à la décharge de Townsend. Sa densité électronique est typiquement inférieure à  $10^{15} \text{ m}^{-3}$ . La densité d'ion est donc probablement trop faible pour former une charge d'espace importante, ce qui per-

Tableau 5.V – Comparaison des régimes selon les valeurs des paramètres obtenus expérimentalement.

Régime	$f$ (kHz)	$P_d$ ( $\text{W cm}^{-3}$ )	$n_e$ ( $\text{m}^{-3}$ )	$T_e$ (eV)	$n(2^3S)$ ( $\text{m}^{-3}$ )
APTD-L	$< 100$	$< 1.6$	$\leq 10^{15}$	0.3	$5 \times 10^{15}$
APGD	$< 100$	$> 1.6$	$2-10 \times 10^{15}$	0.3	$2 - 7 \times 10^{16}$
$\Omega$	$> 200$	$< 2.5$	$1-10 \times 10^{15}$	0.3	$3 - 70 \times 10^{15}$
Hybrid	200-3000	$> 1.3$	$2-80 \times 10^{15}$	0.3-0.5	$1 - 4 \times 10^{17}$
RF- $\alpha$	$> 5000$	$> 4$	$> 10^{17}$	0.3	$1 - 3 \times 10^{16}$

met au champ électrique de rester uniforme le long de l'espace interdiélectrique. La faible densité des métastables ( $< 10^{15} \text{ m}^{-3}$ ) suggère que la température électronique reste relativement faible (0,3 eV) pendant toute la période d'excitation. Contrairement à la décharge de Townsend dans l'azote, le régime APTD-L est obtenu pour des fréquences relativement élevées. L'effet mémoire est donc considérable et réduit donc l'importance de l'allumage à chaque demi-période. Lorsque la tension appliquée est suffisamment élevée, une charge d'espace intense permet de localiser le champ électrique, ce qui donne lieu au régime bien connu qu'est l'APGD.

Lorsque la fréquence excède 200 kHz et que la tension appliquée est faible, le régime APTD-L fait place au régime  $\Omega$ . Cette transition a lieu lorsque les ions deviennent piégés dans l'espace interdiélectrique. Dans ce régime, la densité des électrons est relativement faible, mais augmente avec la fréquence ( $10^{15} - 10^{16} \text{ m}^{-3}$ ). Pour une fréquence fixe, le comportement est typiquement ohmique : la température électronique (0,3 eV) ainsi que la température du gaz est relativement faible dans ce régime, mais tend à augmenter avec la densité de puissance. Lorsque la tension appliquée est suffisamment élevée, le régime hybride est obtenu. Comme en basses fréquences, ce phénomène survient lorsque la charge d'espace devient assez grande pour localiser le champ électrique (formation de la chute cathodique). Par contre, la transition entre les régimes  $\Omega$  et hybride est brusque puisque c'est la formation de la chute cathodique qui permet le passage d'un état où les ions sont piégés à un état où les ions contribuent fortement à l'émission secondaire. Dans le cas où la fréquence est égale ou plus basse que 1 MHz, les ions ne sont pas suffisamment piégés dans les

gaines (où le champ électrique est intense), ce qui entraîne une perte rapide de ceux-ci. Dans une telle situation, le régime hybride est intermittent. Dans le cas où la fréquence est supérieure à 1 MHz, les ions sont piégés efficacement dans les gaines, mais fournissent tout de même une quantité importante d'électrons secondaires. Dans une telle situation, le régime hybride est maintenu en continu et peut être obtenu pour des tensions appliquées plus faibles que la valeur de transition, ce qui donne lieu à une hystérèse. Dans tous les cas, le régime hybride possède une densité électronique moyenne pouvant atteindre  $8 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$ . Qui plus est, la température électronique ainsi que la densité des atomes métastables est la plus élevée de tous les régimes observés. Elles peuvent atteindre des valeurs de 0,5 eV et  $4 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$  respectivement.

À partir de 5 MHz, le régime RF- $\alpha$  est obtenu. Dans ce régime, les ions sont toujours piégés. L'amorçage se fait habituellement à une tension appliquée suffisamment élevée pour que la charge d'espace concentre le champ électrique dans les gaines dès que la décharge est allumée. Par contre, si la tension appliquée est réduite sous la tension d'amorçage, la charge d'espace peu diminuée de façon à ce que le champ électrique redevienne uniforme et que le régime  $\Omega$  soit maintenu. Cette transition se fait de manière graduelle puisque les ions sont toujours piégés. En fait, le régime  $\Omega$  est fondamentalement très similaire au régime  $\alpha$ , puisqu'ils sont tous deux dépendant de l'ionisation en volume (émission secondaire négligeable). Notons qu'à la pression atmosphérique, le régime  $\Omega$  (où le champ électrique est uniforme entre les diélectriques) est peu commun dans la littérature, ce qui rend sa caractérisation expérimentale d'autant plus pertinente.

Finalement, soulignons que les diagnostics quantitatifs utilisés au chapitre 4 ont permis d'accomplir une première caractérisation de certains régimes de décharge encore méconnus (APTD-L,  $\Omega$  et hybride). Bien que les mesures effectuées aient permis d'identifier et de comparer les différents régimes de décharge, elles restent des mesures intégrées temporellement et spatialement. Une caractérisation temporelle et spatiale de la décharge serait fort utile afin de mieux apprécier le fonctionnement de ces régimes. En particulier, il serait très intéressant de mesu-

rer la densité et la température électronique avec une résolution spatiale entre les diélectriques. Une caractérisation résolue temporellement du régime hybride intermittent serait aussi fort pertinent considérant que ce régime fluctue énormément à l'échelle des microsecondes. La mise en oeuvre d'un modèle numérique permettant de simuler des décharges dans la plage des MF serait aussi une avenue intéressante à explorer. Un modèle pourrait non seulement supporter les connaissances acquises expérimentalement, mais aussi donner de nouvelles informations inaccessibles par voie expérimentale. Bref, soulignons que l'utilisation d'une fréquence dans la plage des moyennes fréquences semble prometteuse pour les applications des décharges homogènes à la pression atmosphérique. C'est en sélectionnant une fréquence dans cette plage qu'il est possible d'obtenir le plus grand spectre de paramètre plasma ainsi que la plus grande variabilité de densité de puissance.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] S. SAMUKAWA, M. HORI, S. RAUF, K. TACHIBANA, P. BRUGGEMAN, G. KROESEN, J. C. WHITEHEAD, A. B. MURPHY, A. F. GUTSOL, S. STARIKOVSKAIA *et al.*, « The 2012 plasma roadmap », *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 45, no. 25, p. 253001, 2012.
- [2] T. MAKABE et Z. PETROVIC, *Plasma Electronics : Applications in Microelectronic Device Fabrication*. Series in Plasma Physics, CRC Press, 2006.
- [3] L. BÁRDOS et H. BARÁNKOVÁ, « Cold atmospheric plasma : Sources, processes, and applications », *Thin Solid Films*, vol. 518, no. 23, p. 6705–6713, 2010.
- [4] J. VENABLES, *Introduction to Surface and Thin Film Processes*. Cambridge University Press, 2000.
- [5] H.-E. WAGNER, R. BRANDENBURG, K. KOZLOV, A. SONNENFELD, P. MICHEL et J. BEHNKE, « The barrier discharge : basic properties and applications to surface treatment », *Vacuum*, vol. 71, no. 3, p. 417 – 436, 2003.
- [6] F. MASSINES, C. SARRA-BOURNET, F. FANELLI, N. NAUDÉ et N. GHERARDI, « Atmospheric pressure low temperature direct plasma technology : Status and challenges for thin film deposition », *Plasma Processes and Polymers*, vol. 9, no. 11-12, p. 1041–1073, 2012.
- [7] J. VALLADE, R. BAZINETTE, L. GAUDY et F. MASSINES, « Effect of glow dbd modulation on gas and thin film chemical composition : Case of ar/sih<sub>4</sub>/nh<sub>3</sub> mixture », *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 47, 2014.
- [8] O. LEVASSEUR, L. STAFFORD, N. GHERARDI, N. NAUDÉ, V. BLANCHARD, P. BLANCHET, B. RIEDL et A. SARKISSIAN, « Deposition of hydrophobic functional groups on wood surfaces using atmospheric-pressure dielectric bar-



- rier discharge in helium-hexamethyldisiloxane gas mixtures », *Plasma Processes and Polymers*, vol. 9, no. 11-12, p. 1168–1175, 2012.
- [9] P. FLESCH, *Light and Light Sources : High-Intensity Discharge Lamps*. Springer Berlin Heidelberg, 2007.
- [10] K.-D. WELTMANN et T. VON WOEDTKE, « Basic requirements for plasma sources in medicine », *The European Physical Journal Applied Physics*, vol. 55, no. 01, p. 13807, 2011.
- [11] T. von WOEDTKE, H.-R. METELMANN et K.-D. WELTMANN, « Clinical plasma medicine : State and perspectives of in vivo application of cold atmospheric plasma », *Contributions to Plasma Physics*, vol. 54, no. 2, p. 104–117, 2014.
- [12] U. KOGELSCHATZ, B. ELIASSON et W. EGLIS, « Dielectric-barrier discharges. principle and applications », *Supplément au Journal de Physique*, vol. 1155-4339, no. 4, p. C4.47–C4.66, 1997.
- [13] F. MASSINES, N. GHERARDI, N. NAUDÉ et P. SÉGUR, « Recent advances in the understanding of homogeneous dielectric barrier discharges », *The European Physical Journal-Applied Physics*, vol. 47, no. 02, p. 22805, 2009.
- [14] J. PARK, I. HENINS, H. W. HERRMANN, G. S. SELWYN, J. Y. JEONG, R. F. HICKS, D. SHIM et C. S. CHANG, « An atmospheric pressure plasma source », *Applied Physics Letters*, vol. 76, p. 288 –290, jan 2000.
- [15] J. SHI, D. LIU et M. G. KONG, « Plasma stability control using dielectric barriers in radio-frequency atmospheric pressure glow discharges », *Applied physics letters*, vol. 89, no. 8, p. 081502–081502, 2006.
- [16] J.-S. BOISVERT, J. MARGOT et F. MASSINES, « Discharge physics and influence of the modulation on helium dbd modes in the medium-frequency range at atmospheric pressure », *The European Physical Journal Applied Physics*, vol. 77, no. 3, p. 30801, 2017.

- [17] R. FEYNMAN, R. LEIGHTON et M. SANDS, *The Feynman Lectures on Physics : The New Millennium Edition*. Basic Books, Perseus Distribution, 2011.
- [18] A. von MEIER, *Electric Power Systems : A Conceptual Introduction*. Wiley survival guides in engineering and science, Wiley, 2006.
- [19] P. LORRAIN et D. CORSON, *Electromagnetic Fields and Waves*. W.H. Freeman, 1970.
- [20] Y. P. RAIZER, V. I. KISIN et J. E. ALLEN, *Gas discharge physics*, vol. 1. Springer-Verlag Berlin, 1991.
- [21] P. DECOMPS, *Etude d'une décharge luminescente à la pression atmosphérique. Application au traitement de surfaces isolantes*. Thèse doctorat, Université de Toulouse 3, 1996.
- [22] A. PIEL, *Plasma Physics : An Introduction to Laboratory, Space, and Fusion Plasmas*. Springer, 2010.
- [23] M. DRUYVESTYEN et F. M. PENNING, « The mechanism of electrical discharges in gases of low pressure », *Reviews of Modern Physics*, vol. 12, no. 2, p. 87, 1940.
- [24] G. FRANCIS, « The glow discharge at low pressure », *Handbuch der physik*, vol. 22, p. 53–208, 1956.
- [25] U. KORTSHAGEN et L. TSENDIN, *Electron Kinetics and Applications of Glow Discharges*. Nato Science Series B :, Springer US, 1998.
- [26] J. ROTH, *Industrial Plasma Engineering : Volume 1 : Principles*. Industrial Plasma Engineering : Principles, Taylor & Francis, 2002.
- [27] F. PASCHEN, « Ueber die zum funkenübergang in luft, wasserstoff und kohlenäure bei verschiedenen drucken erforderliche potentialdifferenz », *Annalen der Physik*, vol. 273, no. 5, p. 69–96, 1889.

- [28] A. FRIDMAN et L. KENNEDY, *Plasma Physics and Engineering*. Taylor & Francis, 2004.
- [29] A. FRIDMAN, *Plasma Chemistry*. Cambridge University Press, 2008.
- [30] M. LAROUSSE et T. AKAN, « Arc-free atmospheric pressure cold plasma jets : A review », *Plasma Processes and Polymers*, vol. 4, no. 9, p. 777–788, 2007.
- [31] B. ELIASSON et U. KOGELSCHATZ, « Modeling and applications of silent discharge plasmas », *Plasma Science, IEEE Transactions on*, vol. 19, no. 2, p. 309–323, 1991.
- [32] G. FRIDMAN, M. PEDDINGHAUS, M. BALASUBRAMANIAN, H. AYAN, A. FRIDMAN, A. GUTSOL et A. BROOKS, « Blood coagulation and living tissue sterilization by floating-electrode dielectric barrier discharge in air », *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, vol. 26, no. 4, p. 425–442, 2006.
- [33] S. POULIQUEN, *Etude d'une nouvelle décharge à barrière diélectrique homogène en mélange Ar/NH<sub>3</sub>/SiH<sub>4</sub> à la pression atmosphérique pour le dépôt en continu de SiNx : H sur cellule photovoltaïque silicium*. Thèse doctorat, Université de Perpignan Via Domitia, 2010.
- [34] V. Schulz-von der GATHEN, V. BUCK, T. GANS, N. KNAKE, K. NIEMI, S. REUTER, L. SCHAPER et J. WINTER, « Optical diagnostics of micro discharge jets », *Contributions to Plasma Physics*, vol. 47, no. 7, p. 510–519, 2007.
- [35] X. BONNIN, H. PIQUET, N. NAUDÉ, M. CHÉRIF BOUZIDI, N. GHERARDI et J.-M. BLAQUIÈRE, « Design of a current converter to maximize the power into homogeneous dielectric barrier discharge (dbd) devices », *The European Physical Journal Applied Physics*, vol. 64, no. 01, p. 10901, 2013.
- [36] N. NAUDE, *Étude électrique de la physique d'une décharge de Townsend à la pression atmosphérique et de son interaction avec un générateur : modèle et expérience*. Thèse doctorat, Université de Toulouse, 2005.

- [37] F. MASSINES, A. RABEHI, P. DECOMPS, R. GADRI, P. SÉGUR et C. MAYOUX, « Experimental and theoretical study of a glow discharge at atmospheric pressure controlled by dielectric barrier », *Journal of Applied Physics*, vol. 83, no. 6, p. 2950–2957, 1998.
- [38] S. KANAZAWA, M. KOGOMA, T. MORIWAKI et S. OKAZAKI, « Stable glow plasma at atmospheric pressure », *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 21, no. 5, p. 838, 1988.
- [39] F. MASSINES, N. GHERARDI, N. NAUDÉ et P. SÉGUR, « Glow and Townsend dielectric barrier discharge in various atmosphere », *Plasma Physics and Controlled Fusion*, vol. 47, no. 12B, p. B577–B588, 2005.
- [40] C. SARRA-BOURNET, *Fonctionnalisation de surface de polymères par plasma à la pression atmosphérique*. Thèse doctorat, Université de Toulouse, 2009.
- [41] A. ISAACS, *Oxford Dictionary of Physics*. Oxford Paperback Reference Series, Oxford University Press, Incorporated, 2003.
- [42] M. M. TURNER, « Collisionless heating in radio-frequency discharges : a review », *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 42, no. 19, p. 194008, 2009.
- [43] ITU, « Radio regulation articles », rap. tech., International Telecommunication Union, 2012.
- [44] M. A. LIEBERMAN et V. A. GODYAK, « From fermi acceleration to collisionless discharge heating », *Plasma Science, IEEE Transactions on*, vol. 26, no. 3, p. 955–986, 1998.
- [45] G. MISIUM, A. LICHTENBERG et M. LIEBERMAN, « Macroscopic modeling of radio-frequency plasma discharges », *Journal of Vacuum Science & Technology A*, vol. 7, no. 3, p. 1007–1013, 1989.

- [46] M. A. LIEBERMAN, « Dynamics of a collisional, capacitive rf sheath », *Plasma Science, IEEE Transactions on*, vol. 17, no. 2, p. 338–341, 1989.
- [47] M. LIEBERMAN et A. LICHTENBERG, *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing*. Wiley, 2005.
- [48] P. BELENGUER et J. BOEUF, « Transition between different regimes of rf glow discharges », *Physical Review A*, vol. 41, no. 8, p. 4447, 1990.
- [49] V. LISOVSKII, « Features of the  $\alpha$ - $\gamma$  transition in a low-pressure rf argon discharge », *Technical Physics*, vol. 43, no. 5, p. 526–534, 1998.
- [50] O. POPOV et V. GODYAK, « Power dissipated in low-pressure radio-frequency discharge plasmas », *Journal of applied physics*, vol. 57, no. 1, p. 53–58, 1985.
- [51] C. G. GOEDDE, A. J. LICHTENBERG et M. A. LIEBERMAN, « Self-consistent stochastic electron heating in radio frequency discharges », *Journal of Applied Physics*, vol. 64, no. 9, p. 4375–4383, 1988.
- [52] G. BELMONT, R. GRAPPIN, F. MOTTEZ, F. PANTELLINI et G. PELLETIER, *Collisionless Plasmas in Astrophysics*. Wiley, 2013.
- [53] J. JEONG, S. BABAYAN, V. TU, J. PARK, I. HENINS, R. HICKS et G. SELWYN, « Etching materials with an atmospheric-pressure plasma jet », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 7, no. 3, p. 282, 1998.
- [54] A. SCHUTZE, J. Y. JEONG, S. E. BABAYAN, J. PARK, G. S. SELWYN et R. F. HICKS, « The atmospheric-pressure plasma jet : A review and comparison to other plasma sources », *Plasma Science, IEEE Transactions on*, vol. 26, no. 6, p. 1685–1694, 1998.
- [55] X. YUAN et L. L. RAJA, « Computational study of capacitively coupled high-pressure glow discharges in helium », *Plasma Science, IEEE Transactions on*, vol. 31, no. 4, p. 495–503, 2003.

- [56] H. KAKIUCHI, H. OHMI, T. YAMADA, K. YOKOYAMA, K. OKAMURA et K. YASUTAKE, « Silicon oxide coatings with very high rates ( $> 10$  nm/s) by hexamethyldisiloxane-oxygen fed atmospheric-pressure vhf plasma : Film-forming behavior using cylindrical rotary electrode », *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, p. 1–13, 2012.
- [57] K. YASUTAKE, H. KAKIUCHI, H. OHMI, K. INAGAKI, Y. OSHIKANE et M. NAKANO, « An atomically controlled si film formation process at low temperatures using atmospheric-pressure vhf plasma », *Journal of Physics : Condensed Matter*, vol. 23, no. 39, p. 394205, 2011.
- [58] Y. MORI, K. YOSHII, H. KAKIUCHI et K. YASUTAKE, « Atmospheric pressure plasma chemical vapor deposition system for high-rate deposition of functional materials », *Review of Scientific Instruments*, vol. 71, p. 3173–3177, aug 2000.
- [59] Y. MORI, K. YAMAMURA, K. ENDO, K. YAMAUCHI, K. YASUTAKE, H. GOTO, H. KAKIUCHI, Y. SANO et H. MIMURA, « Creation of perfect surfaces », *Journal of crystal growth*, vol. 275, no. 1, p. 39–50, 2005.
- [60] Y. MORI, K. YAMAMURA, K. YAMAUCHI, K. YOSHII, T. KATAOKA, K. ENDO, K. INAGAKI et H. KAKIUCHI, « Plasma cvm (chemical vaporization machining) : an ultra precision machining technique using high-pressure reactive plasma », *Nanotechnology*, vol. 4, no. 4, p. 225, 1993.
- [61] J. PARK, I. HENINS, H. HERRMANN, G. SELWYN et R. HICKS, « Discharge phenomena of an atmospheric pressure radio-frequency capacitive plasma source », *Journal of Applied Physics*, vol. 89, no. 1, p. 20–28, 2001.
- [62] S. Y. MOON, W. CHOE et B. KANG, « A uniform glow discharge plasma source at atmospheric pressure », *Applied physics letters*, vol. 84, no. 2, p. 188–190, 2004.

- [63] M. MORAVEJ, X. YANG, G. NOWLING, J. CHANG, R. HICKS et S. BABAYAN, « Physics of high-pressure helium and argon radio-frequency plasmas », *Journal of applied physics*, vol. 96, no. 12, p. 7011–7017, 2004.
- [64] M. MORAVEJ, X. YANG, M. BARANKIN, J. PENELON, S. BABAYAN et R. HICKS, « Properties of an atmospheric pressure radio-frequency argon and nitrogen plasma », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 15, no. 2, p. 204, 2006.
- [65] J. SHI et M. G. KONG, « Mechanisms of the  $\alpha$  and  $\gamma$  modes in radio-frequency atmospheric glow discharges », *Journal of applied physics*, vol. 97, no. 2, p. 023306, 2004.
- [66] S. Y. MOON, J. RHEE, D. KIM, B. GWEON et W. CHOE, « Capacitive discharge mode transition in moderate and atmospheric pressure », *Current Applied Physics*, vol. 9, no. 1, p. 274–277, 2009.
- [67] D. W. LIU, F. IZA et M. G. KONG, « Electron heating in radio-frequency capacitively coupled atmospheric-pressure plasmas », *Applied Physics Letters*, vol. 93, no. 26, p. 261503, 2008.
- [68] S. WAN-LI, W. DE-ZHEN et M. G. KONG, « Simulation of radio-frequency atmospheric pressure glow discharge in  $\gamma$  mode », *Chinese Physics*, vol. 16, no. 2, p. 485, 2007.
- [69] S. Y. MOON, J. RHEE, D. B. KIM et W. CHOE, «  $\alpha$ ,  $\gamma$ , and normal, abnormal glow discharge modes in radio-frequency capacitively coupled discharges at atmospheric pressure », *Physics of plasmas*, vol. 13, p. 033502, 2006.
- [70] M. A. LIEBERMAN, « Analytical model of atmospheric pressure, helium/trace gas radio-frequency capacitive penning discharges », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 24, no. 2, p. 025009, 2015.

- [71] T. HEMKE, D. EREMIN, T. MUSSENBROCK, A. DERZSI, Z. DONKÓ, K. DITTMANN, J. MEICHSNER et J. SCHULZE, « Ionization by bulk heating of electrons in capacitive radio frequency atmospheric pressure microplasmas », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 22, no. 1, p. 015012, 2013.
- [72] D. EREMIN, T. HEMKE et T. MUSSENBROCK, « Nonlocal behavior of the excitation rate in highly collisional rf discharges », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 24, no. 4, p. 044004, 2015.
- [73] J. SHI et M. G. KONG, « Large-volume and low-frequency atmospheric glow discharges without dielectric barrier », *Applied Physics Letters*, vol. 86, no. 9, p. 091502–091502, 2005.
- [74] N. BALCON, A. AANESLAND et R. BOSWELL, « Pulsed rf discharges, glow and filamentary mode at atmospheric pressure in argon », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 16, no. 2, p. 217, 2007.
- [75] N. BALCON, L. BOUFENDI, O. GREMI, J.-P. BOEUF, É. MOREAU, P. LEA, A. ROUSSEAU, P. G. HAGELAAR et S. P. POWER, *Atmospheric pressure Radio Frequency discharges, diagnostic and numerical modeling*. Thèse doctorat, Australian National University, 2007.
- [76] N. BALCON, G. HAGELAAR et J. BOEUF, « Numerical model of an argon atmospheric pressure rf discharge », *Plasma Science, IEEE Transactions on*, vol. 36, no. 5, p. 2782–2787, 2008.
- [77] K. TACHIBANA, Y. KISHIMOTO et O. SAKAI, « Measurement of metastable  $he\{sup*\}(2\{sup\}3\}s\{sub\}1)$  density in dielectric barrier discharges with two different configurations operating at around atmospheric pressure », *Journal of Applied Physics*, vol. 97, no. 12, p. 123301, 2005.
- [78] R. K. GANGWAR, O. LEVASSEUR, N. NAUDÉ, N. GHERARDI, F. MASSINES, J. MARGOT et L. STAFFORD, « Determination of the electron temperature



- in plane-to-plane dielectric barrier discharge at atmospheric pressure », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 25, no. 1, p. 015011, 2016.
- [79] T. MARTENS, W. J. M. BROK, J. van DIJK et A. BOGAERTS, « On the regime transitions during the formation of an atmospheric pressure dielectric barrier glow discharge », *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 42, no. 12, p. 122002, 2009.
- [80] L. XUE-CHEN, N. DONG-YING, X. LONG-FEI, J. PENG-YING et C. YUAN-YUAN, « Simulation of transition from townsend mode to glow discharge mode in a helium dielectric barrier discharge at atmospheric pressure », *Chinese Physics B*, vol. 21, no. 7, p. 075204, 2012.
- [81] Y. ÇENGEL et M. BOLES, *Thermodynamics : An Engineering Approach*. McGraw-Hill series in mechanical engineering, McGraw-Hill, 2006.
- [82] R. AGRAWAL, *Kinetic Theory and Thermodynamics*. Krishna Prakashan, 2006.
- [83] M. MOISAN et J. PELLETIER, *Physique des plasmas collisionnels : Application aux décharges haute fréquence*. Collection Grenoble sciences, EDP Sciences, 2006.
- [84] G. HERZBERG et J. SPINKS, *Atomic Spectra and Atomic Structure*. A Dover paperback, Dover publications, 1944.
- [85] H. KUHN, *Atomic Spectra*. Academic Press, 1969.
- [86] A. PHELPS et J. MOLNAR, « Lifetimes of metastable states of noble gases », *Physical Review*, vol. 89, no. 6, p. 1202, 1953.
- [87] J.-S. BOISVERT, J. MARGOT et F. MASSINES, « Transitions between various diffuse discharge modes in atmospheric-pressure helium in the medium-frequency range », *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 49, no. 32, p. 325201, 2016.

- [88] M. BOGACZYK, G. B. SRETENović et H.-E. WAGNER, « Influence of the applied voltage shape on the barrier discharge operation modes in helium », *The European Physical Journal D*, vol. 67, no. 10, p. 1–11, 2013.
- [89] H. LUO, Z. LIANG, B. LV, X. WANG, Z. GUAN et L. WANG, « Observation of the transition from a townsend discharge to a glow discharge in helium at atmospheric pressure », *Applied Physics Letters*, vol. 91, no. 22, p. –, 2007.
- [90] R. BAZINETTE, R. SUBILEAU, J. PAILLOL et F. MASSINES, « Identification of the different diffuse dielectric barrier discharges obtained between 50 khz to 9 mhz in ar/nh<sub>3</sub> at atmospheric pressure », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 23, no. 3, p. 035008, 2014.
- [91] S. ANGHEL, « Generation and investigation of a parallel-plate dbd driven at 1.6 mhz with flowing helium », *Journal of Electrostatics*, vol. 69, no. 3, p. 261–264, 2011.
- [92] A. SIMON, O. DINU, M. PAPIU, C. TUDORAN, J. PAPP et S. ANGHEL, « A study of 1.74 mhz atmospheric pressure dielectric barrier discharge for non-conventional treatments », *Journal of Electrostatics*, vol. 70, p. 235–240, June 2012.
- [93] G. PETROV, J. MATTE, I. PÉRÈS, J. MARGOT, T. SADI, J. HUBERT, K. TRAN, L. ALVES, J. LOUREIRO, C. FERREIRA *et al.*, « Numerical modeling of a he–n<sub>2</sub> capillary surface wave discharge at atmospheric pressure », *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, vol. 20, no. 2, p. 183–207, 2000.
- [94] X. YUAN et L. L. RAJA, « Role of trace impurities in large-volume noble gas atmospheric-pressure glow discharges », *Applied physics letters*, vol. 81, no. 5, p. 814–816, 2002.
- [95] T. MARTENS, A. BOGAERTS, W. BROK et J. DIJK, « The dominant role of impurities in the composition of high pressure noble gas plasmas », *Applied Physics Letters*, vol. 92, no. 4, p. 041504, 2008.

- [96] X. Y. LIU, M. B. HE et D. W. LIU, « The effect of working gas impurities on plasma jets », *Physics of Plasmas (1994-present)*, vol. 22, no. 4, p. –, 2015.
- [97] N. GHERARDI, G. GOUDA, E. GAT, A. RICARD et F. MASSINES, « Transition from glow silent discharge to micro-discharges in nitrogen gas », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 9, no. 3, p. 340, 2000.
- [98] A. RICARD, P. DÉCOMPS et F. MASSINES, « Kinetics of radiative species in helium pulsed discharge at atmospheric pressure », *Surface and Coatings Technology*, vol. 112, no. 1, p. 1–4, 1999.
- [99] B. ELIASSON, M. HIRTH et U. KOGELSCHATZ, « Ozone synthesis from oxygen in dielectric barrier discharges », *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 20, no. 11, p. 1421, 1987.
- [100] G. NERSISYAN et W. G. GRAHAM, « Characterization of a dielectric barrier discharge operating in an open reactor with flowing helium », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 13, no. 4, p. 582, 2004.
- [101] G. NERSISYAN, T. MORROW et W. GRAHAM, « Measurements of helium metastable density in an atmospheric pressure glow discharge », *Applied physics letters*, vol. 85, no. 9, p. 1487–1489, 2004.
- [102] M. N. DUMONT et F. REMY, « The radiative lifetime of the  $c^3\pi_u$  state of  $n_2$  », *The Journal of Chemical Physics*, vol. 76, no. 2, p. 1175–1176, 1982.
- [103] J. PARK, I. HENINS, H. W. HERRMANN et G. S. SELWYN, « Neutral bremsstrahlung measurement in an atmospheric-pressure radio frequency discharge », *Physics of Plasmas (1994-present)*, vol. 7, no. 8, p. 3141–3144, 2000.
- [104] A. KRAMIDA, Y. RALCHENKO, J. READER et NIST ASD TEAM (2015), « Nist atomic spectra database (ver. 5.3), [online] ». Available : <http://physics.nist.gov/asd> [2016, February 18]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD., February 2016.

- [105] J. JONKERS et J. V. D. MULLEN, « The excitation temperature in helium plasmas », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 61, no. 5, p. 703 – 709, 1999.
- [106] C. LAUX, « Radiation and nonequilibrium collisional-radiative models », in *Physico-Chemical Modeling of High Enthalpy and Plasma Flows* (D. FLETCHER, J.-M. CHARBONNIER, G. SARMA et T. MAGIN, édés), vol. 7 in *von Karman Institute Lecture Series 2002-07*, (Rhode-Saint-Genèse, Belgium), 2002.
- [107] P. BRUGGEMAN, N. SADEGHI, D. SCHRAM et V. LINSS, « Gas temperature determination from rotational lines in non-equilibrium plasmas : a review », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 23, no. 2, p. 023001, 2014.
- [108] N. BIBINOV, A. FATEEV et K. WIESEMANN, « On the influence of metastable reactions on rotational temperatures in dielectric barrier discharges in he-n2 mixtures », *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 34, no. 12, p. 1819, 2001.
- [109] A. BERCHTIKOU, J. LAVOIE, V. POENARIU, B. SAOUDI, R. KASHYAP et M. R. WERTHEIMER, « Thermometry in noble gas dielectric barrier discharges at atmospheric pressure using optical emission spectroscopy », *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 18, no. 1, p. 24–33, 2011.
- [110] M. R. WERTHEIMER, M. AHLAWAT, B. SAOUDI et R. KASHYAP, « Accurate in-situ gas temperature measurements in dielectric barrier discharges at atmospheric pressure », *Applied Physics Letters*, vol. 100, no. 20, p. 201112, 2012.
- [111] J.-S. BOISVERT, J. MARGOT et F. MASSINES, « Transitions of an atmospheric-pressure diffuse dielectric barrier discharge in helium for frequen-

- cies increasing from khz to mhz », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 26, no. 3, p. 035004, 2017.
- [112] J. R. ROTH, J. RAHEL, X. DAI et D. M. SHERMAN, « The physics and phenomenology of one atmosphere uniform glow discharge plasma (oaugd<sup>TM</sup>) reactors for surface treatment applications », *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 38, no. 4, p. 555, 2005.
- [113] F. MASSINES, P. SÉGUR, N. GHERARDI, C. KHAMPHAN et A. RICARD, « Physics and chemistry in a glow dielectric barrier discharge at atmospheric pressure : diagnostics and modelling », *Surface and Coatings Technology*, vol. 174–175, no. 0, p. 8 – 14, 2003.
- [114] N. NAUDÉ, J. CAMBRONNE, N. GHERARDI et F. MASSINES, « Electrical model of an atmospheric pressure townsend-like discharge (aptd) », *The European Physical Journal Applied Physics*, vol. 29, no. 02, p. 173–180, 2005.
- [115] J. SHI et M. G. KONG, « Mode characteristics of radio-frequency atmospheric glow discharges », *Plasma Science, IEEE Transactions on*, vol. 33, no. 2, p. 624–630, 2005.
- [116] D. LIU, F. IZA et M. G. KONG, « Electron avalanches and diffused  $\gamma$ -mode in radio-frequency capacitively coupled atmospheric-pressure microplasmas », *Applied Physics Letters*, vol. 95, no. 3, p. 031501, 2009.
- [117] J. HUBA, *NRL Plasma Formulary*. Naval Research Laboratory, 2013.
- [118] N. OSAWA et Y. YOSHIOKA, « Generation of low-frequency homogeneous dielectric barrier discharge at atmospheric pressure », *Plasma Science, IEEE Transactions on*, vol. 40, no. 1, p. 2–8, 2012.
- [119] X. T. DENG et M. G. KONG, « Frequency range of stable dielectric-barrier discharges in atmospheric he and n 2 », *Plasma Science, IEEE Transactions on*, vol. 32, no. 4, p. 1709–1715, 2004.

- [120] I. RADU, R. BARTNIKAS et M. R. WERTHEIMER, « Frequency and voltage dependence of glow and pseudoglow discharges in helium under atmospheric pressure », *Plasma Science, IEEE Transactions on*, vol. 31, no. 6, p. 1363–1378, 2003.
- [121] S. Y. MOON, D. KIM, B. GWEON et W. CHOE, « Driving frequency effects on the characteristics of atmospheric pressure capacitive helium discharge », *Applied Physics Letters*, vol. 93, no. 22, p. 221506–221506, 2008.
- [122] D. W. LIU, F. IZA et M. G. KONG, « Evolution of atmospheric-pressure rf plasmas as the excitation frequency increases », *Plasma Processes and Polymers*, vol. 6, no. 6-7, p. 446–450, 2009.
- [123] R. BAZINETTE, J. VALLADE, S. POULIQUEN, R. SUBILEAU et F. MASSINES, « Effect of frequency excitation on a homogeneous dielectric barrier discharge in ar/nh<sub>3</sub> at atmospheric pressure », in *ISPC-20 Proceedings*, (Philadelphia, USA), International Plasma Chemistry Society, 2011.
- [124] R. BAZINETTE, J. PAILLOL et F. MASSINES, « Optical emission spectroscopy of glow, townsend-like and radiofrequency dbds in an ar/nh<sub>3</sub> mixture », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 24, no. 5, p. 055021, 2015.
- [125] J.-S. BOISVERT, N. SADEGHI, J. MARGOT et F. MASSINES, « Influence of the excitation frequency on the density of helium metastable atoms in an atmospheric pressure dielectric barrier discharge », *Journal of Applied Physics*, vol. 121, p. 043302, 2017.
- [126] J. PARK, I. HENINS, H. HERRMANN et G. SELWYN, « Gas breakdown in an atmospheric pressure radio-frequency capacitive plasma source », *Journal of Applied Physics*, vol. 89, no. 1, p. 15–19, 2001.
- [127] F. MASSINES et G. GOUDA, « A comparison of polypropylene-surface treatment by filamentary, homogeneous and glow discharges in helium at atmos-

- pheric pressure », *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 31, no. 24, p. 3411, 1998.
- [128] B. NIERMANN, M. BÖKE, N. SADEGHI et J. WINTER, « Space resolved density measurements of argon and helium metastable atoms in radio-frequency generated he-ar micro-plasmas », *The European Physical Journal D*, vol. 60, no. 3, p. 489–495, 2010.
- [129] C. DOUAT, I. KACEM, N. SADEGHI, G. BAUVILLE, M. FLEURY et V. PUECH, « Space-time resolved density of helium metastable atoms in a nanosecond pulsed plasma jet : influence of high voltage and pulse frequency », *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 49, no. 28, p. 285204, 2016.
- [130] A. MITCHELL et M. ZEMANSKY, *Resonance Radiation and Excited Atoms*. The Cambridge series of physical chemistry, University Press, 1961.
- [131] E. CASTAÑOS-MARTÍNEZ et M. MOISAN, « Absorption spectroscopy measurements of resonant and metastable atom densities in atmospheric-pressure discharges using a low-pressure lamp as a spectral-line source and comparison with a collisional-radiative model », *Spectrochimica Acta Part B : Atomic Spectroscopy*, vol. 65, no. 3, p. 199–209, 2010.
- [132] N. SADEGHI, « Molecular spectroscopy techniques applied for processing plasma diagnostics », *Journal of Plasma and Fusion Research*, vol. 80, no. 9, p. 767–776, 2004.
- [133] L. MARCHILDON, *Mécanique Quantique*. De Boeck Supérieur, 2000.
- [134] S. SVANBERG, *Atomic and Molecular Spectroscopy : Basic Aspects and Practical Applications ; with 14 Tables*. Advanced Texts in Physics, Springer Berlin Heidelberg, 2004.
- [135] G. DRAKE, *Springer Handbook of Atomic, Molecular, and Optical Physics*. Springer Handbook of Atomic, Molecular, and Optical Physics, Springer, 2006.

- [136] K. BECKER, U. KOGELSCHATZ, K. SCHOENBACH et R. BARKER, *Non-Equilibrium Air Plasmas at Atmospheric Pressure*. Series in Plasma Physics and Fluid Dynamics, Taylor & Francis, 2004.
- [137] H. KUNZE, *Introduction to plasma spectroscopy*. Springer Series on Atomic, Optical, and Plasma Physics, 56, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2009.
- [138] A. RICARD, C. BARBEAU, A. BESNER, J. HUBERT, J. MARGOT-CHAKER, M. MOISAN et G. SAUVÉ, « Production of metastable and resonant atoms in rare-gas (he, ne, ar) radio-frequency and microwave-sustained discharges », *Canadian journal of physics*, vol. 66, no. 8, p. 740–748, 1988.
- [139] T. KUBOTA, Y. MORISAKI, A. OHSAWA et M. OHUCHI, « The axial distributions of optical emission and metastable density : comparison between experiments with dc and rf helium glow discharges », *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 25, no. 4, p. 613, 1992.
- [140] Y. LI, Z. CHEN et Y.-K. PU, « Density measurement of helium metastable states by absorption spectroscopy in an inductively coupled plasma », *Plasma Processes and Polymers*, vol. 2, no. 7, p. 581–585, 2005.
- [141] A. HAMDAN, J. MARGOT, F. VIDAL et J.-P. MATTE, « Characterization of helium surface-wave plasmas at intermediate pressures (5–50 torr) : temperatures and density of metastable atoms in the 2 3 s level », *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 48, no. 3, p. 035202, 2015.
- [142] A. KRAMIDA, YU. RALCHENKO, J. READER et AND NIST ASD TEAM. NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.2), [Online]. Available : <http://physics.nist.gov/asd> [2015, February 13]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD., 2014.
- [143] J. OLIVERO et R. LONGBOTHUM, « Empirical fits to the voigt line width : A brief review », *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 17, no. 2, p. 233 – 236, 1977.



- [144] R. DELOCHE, P. MONCHICOURT, M. CHERET et F. LAMBERT, « High-pressure helium afterglow at room temperature », *Physical Review A*, vol. 13, no. 3, p. 1140, 1976.
- [145] J. STEVEFELT, J. POUVESLE et A. BOUCHOULE, « Reaction kinetics of a high pressure helium fast discharge afterglow », *The Journal of Chemical Physics*, vol. 76, no. 8, p. 4006–4015, 1982.
- [146] K. KUTASI, P. HARTMANN et Z. DONKÓ, « Self-consistent modelling of helium discharges : investigation of the role of  $he\ 2 +$  ions », *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 34, no. 23, p. 3368, 2001.
- [147] A.-V. PHELPS, « Absorption studies of helium metastable atoms and molecules », *Physical Review*, vol. 99, no. 4, p. 1307, 1955.
- [148] K.-M. LIN, C.-T. HUNG, F.-N. HWANG, M. R. SMITH, Y.-W. YANG et J.-S. WU, « Development of a parallel semi-implicit two-dimensional plasma fluid modeling code using finite-volume method », *Computer Physics Communications*, vol. 183, no. 6, p. 1225–1236, 2012.
- [149] D. X. LIU, P. BRUGGEMAN, F. IZA, M. Z. RONG et M. G. KONG, « Global model of low-temperature atmospheric-pressure  $he + h\ 2\ o$  plasmas », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 19, no. 2, p. 025018, 2010.
- [150] K. NIEMI, J. WASKOENIG, N. SADEGHI, T. GANS et D. O'CONNELL, « The role of helium metastable states in radio-frequency driven helium–oxygen atmospheric pressure plasma jets : measurement and numerical simulation », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 20, no. 5, p. 055005, 2011.
- [151] W. G. HUO, R. M. LI, J. J. SHI et Z. F. DING, « Experimental studies of the overshoot and undershoot in pulse-modulated radio-frequency atmospheric discharge », *Physics of Plasmas*, vol. 23, no. 8, 2016.

- [152] J.-S. BOISVERT, N. NAUDÉ, L. STAFFORD, J. MARGOT et F. MASSINES-SINES, « Electron density and temperature in an atmospheric-pressure helium diffuse dielectric barrier discharge from khz to mhz ». To be published.
- [153] S. S. IVKOVIĆ, G. B. SRETENOVIĆ, B. M. OBRADOVIĆ, N. CVETANOVIĆ et M. M. KURAICA, « On the use of the intensity ratio of he lines for electric field measurements in atmospheric pressure dielectric barrier discharge », *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 47, no. 5, p. 055204, 2014.
- [154] K. DING, M. LIEBERMAN, A. LICHTENBERG, J. J. SHI et J. ZHANG, « Comparison of a hybrid model with experiments in atmospheric pressure helium and argon capacitive rf discharges », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 23, no. 6, p. 065048, 2014.
- [155] J. SHI, X. DENG, R. HALL, J. PUNNETT et M. G. KONG, « Three modes in a radio frequency atmospheric pressure glow discharge », *Journal of applied physics*, vol. 94, no. 10, p. 6303–6310, 2003.
- [156] A. Y. NIKIFOROV, C. LEYS, M. A. GONZALEZ et J. L. WALSH, « Electron density measurement in atmospheric pressure plasma jets : Stark broadening of hydrogenated and non-hydrogenated lines », *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 24, no. 3, p. 034001, 2015.
- [157] P. CHABERT, N. BRAITHWAITE et N. BRAITHWAITE, *Physics of Radio-Frequency Plasmas*. Physics of Radio-frequency Plasmas, Cambridge University Press, 2011.
- [158] M. MOISAN et J. PELLETIER, *Physics of Collisional Plasmas : Introduction to High-Frequency Discharges*. Springer, 2012.
- [159] C. FERREIRA et M. MOISAN, « The similarity laws for the maintenance field and the absorbed power per electron in low-pressure surface wave produced plasmas and their extension to hf plasmas in general », *Physica Scripta*, vol. 38, no. 3, p. 382, 1988.

- [160] I. PÉRÈS, L. ALVES, J. MARGOT, T. SADI, C. FERREIRA, K. TRAN et J. HUBERT, « Calculated plasma parameters and excitation spectra of high-pressure helium discharges », *Plasma chemistry and plasma processing*, vol. 19, no. 4, p. 467–486, 1999.
- [161] U. FANTZ, « Basics of plasma spectroscopy », *Plasma sources science and technology*, vol. 15, no. 4, p. S137, 2006.
- [162] E. HUGGINS, *Physics 2000*. Moose Mountain Digital Press, 1999.
- [163] V. N. OCHKIN, *Spectroscopy of low temperature plasma*. Wiley. com, 2009.
- [164] A. ALI et H. GRIEM, « Theory of resonance broadening of spectral lines by atom-atom impacts », *Physical Review*, vol. 140, no. 4A, p. A1044, 1965.
- [165] H. GRIEM, *Principles of Plasma Spectroscopy*. Cambridge Monographs on Plasma Physics, Cambridge University Press, 2005.
- [166] R. S. MANGINA, J. M. AJELLO, R. A. WEST et D. DZICZEK, « High-resolution electron-impact emission spectra and vibrational emission cross sections from 330-1100 nm for n2 », *The Astrophysical Journal Supplement Series*, vol. 196, no. 1, p. 13, 2011.
- [167] I. HUTCHINSON, *Principles of Plasma Diagnostics*. Cambridge University Press, 2005.
- [168] H. GRIEM, M. BARANGER, A. KOLB et G. OERTEL, « Stark broadening of neutral helium lines in a plasma », *Physical Review*, vol. 125, no. 1, p. 177, 1962.
- [169] H. GRIEM, *Spectral line broadening by plasmas*. Pure and Applied Physics Series, New York ; London : Academic Press, 1974.
- [170] N. KONJEVIĆ, « Plasma broadening and shifting of non-hydrogenic spectral lines : present status and applications », *Physics reports*, vol. 316, no. 6, p. 339–401, 1999.

## ANNEXE I

### ÉLARGISSEMENT DE RAIES ATOMIQUES À LA PRESSION ATMOSPHERIQUE

Lors que nous avons mesuré la densité des atomes dans un état métastable au chapitre 4, nous avons supposé certaines hypothèses sur l'élargissement des raies atomiques. Afin d'identifier l'importance des différents mécanismes d'élargissement, nous allons évaluer l'apport de chaque composante de l'élargissement sur les raies d'hélium à 501,6 et 388,9 nm dans la décharge à la pression atmosphérique. Les valeurs des constantes atomiques des transitions  $\text{He}(3^3P \rightarrow 2^3S)$  et  $\text{He}(3^1P \rightarrow 2^1S)$  sont données au tableau I.I. Les mécanismes d'élargissements considérés ici sont les plus communs, soit : l'élargissement naturel, l'élargissement Doppler, l'élargissement de résonance, l'élargissement de et van der Waals ainsi que l'élargissement Stark [161].

	$3^1P \rightarrow 2^1S$	$3^3P \rightarrow 2^3S$
$\lambda_{ul}$ (nm)	501.568	388.865
$A_{ul}$ ( $\times 10^6 \text{ s}^{-1}$ )	13.372	9.475
$g_l$	1	3 (3)
$g_u$	3	3 (5)
$E_l$ (eV)	20,6158	19,8196
$E_u$ (eV)	23,0870	23,0071

Tableau I.I – Données atomiques pour les transitions vers les états métastables de l'hélium dans le visible [142].

#### I.1 Élargissement naturel

Puisque l'énergie d'un photon émis lors d'une transition entre les niveaux  $u$  et  $l$  d'un atome est définie par la différence  $E_u - E_l$ , on peut s'attendre à ce que la

longueur d'onde respecte exactement la relation

$$\lambda_{ul} = \frac{hc}{E_u - E_l}. \quad (\text{I.1})$$

Par contre, la durée de vie de l'état excité  $u$  est finie et la probabilité que l'atome dans l'état  $u$  passe à l'état  $l$  est de nature quantique donc indéterminée. Cette probabilité correspond à une distribution de Lorentz en fonction de la fréquence du photon. Autrement dit, on peut voir l'énergie du niveau supérieur comme

$$E_u \pm \frac{\hbar}{\tau}, \quad (\text{I.2})$$

où  $\tau$  est le duré de vie de l'état  $u$  [133]. Ainsi, connaissant la distribution en énergie, il est possible d'obtenir l'élargissement naturel en longueur d'onde à l'aide de [137]

$$\Delta\lambda_n = \frac{\lambda_{ul}^2}{2\pi c} (\Sigma A_u + \Sigma A_l), \quad (\text{I.3})$$

où  $A_u$  et  $A_l$  sont les coefficients d'Einstein pour les transitions de  $u$  et  $l$  vers n'importe quel niveau inférieur. Ainsi, en utilisant la somme des coefficients d'Einstein pour  $3^1P$  et  $3^3P$  vers tous leurs états inférieurs (aucun pour  $A_l$  puisque  $l$  est un niveau métastable), on obtient

$$\Delta\lambda_n = 7,8 \times 10^{-5} \text{ nm} \quad \text{et} \quad \Delta\lambda_n = 7,6 \times 10^{-7} \text{ nm} \quad (\text{I.4})$$

pour les transitions  $\text{He}(3^1P \rightarrow 2^1S)$  et  $\text{He}(3^3P \rightarrow 2^3S)$  respectivement.

## I.2 Élargissement Doppler

De la nature du plasma, les atomes possèdent une importante vitesse aléatoire associée à la température. Ainsi, un atome dans un état excité émettant un photon

de longueur d'onde  $\lambda_{ul}$  sera plutôt émis avec une longueur d'onde de [162, 163]

$$\lambda'_{ul} = \lambda_{ul} \left(1 - \frac{v}{c}\right), \quad (\text{I.5})$$

où  $v$  est la vitesse de l'atome émetteur par rapport au détecteur. En supposant que les niveaux émetteurs ont une fonction de distribution en vitesse de Maxwell-Boltzmann, l'élargissement Doppler est donné par [134, 163]

$$\Delta\nu_D = 2\sqrt{2(\ln 2)k_B} \frac{\nu_{ul}}{c} \sqrt{\frac{T_g}{m}}, \quad (\text{I.6})$$

où  $T_g$  est la température du niveau émetteur (température du gaz) en Kelvin et  $m$  est la masse de la particule. Afin d'obtenir cette expression en termes de la longueur d'onde, on doit utiliser la relation nous donnant la fréquence en fonction de la longueur d'onde

$$\nu(\lambda) = \frac{c}{\lambda} \quad \Rightarrow \quad \frac{d\nu(\lambda)}{d\lambda} = -\frac{c}{\lambda^2}.$$

Ainsi, pour un petit élargissement arbitraire  $d\lambda \rightarrow \Delta\lambda$ , négligeant le signe de la variation de longueur d'onde, il est possible d'écrire

$$\Delta\lambda \approx \Delta\nu \frac{\lambda^2}{c}. \quad (\text{I.7})$$

Cette expression est valide lorsque  $|\Delta\lambda| \ll |\lambda|$ , comme dans le cas de tous les mécanismes d'élargissement importants dans la décharge d'hélium à la pression atmosphérique. Utilisant cette dernière expression avec l'élargissement Doppler  $\Delta\nu_D$ , on obtient

$$\Delta\lambda_D = 2\sqrt{2(\ln 2)k_B} \frac{\lambda_{ul}}{c} \sqrt{\frac{T_g}{m}}, \quad (\text{I.8})$$

qui est finalement identique à l'expression (I.6). Ainsi, pour une décharge d'hélium ( $m = 6,646 \times 10^{-27}$  kg) à température ambiante (300 K), on peut calculer

l'élargissement Doppler comme

$$\Delta\lambda_D = 0,0031 \text{ nm} \quad \text{et} \quad \Delta\lambda_D = 0,0024 \text{ nm} \quad (\text{I.9})$$

pour les transitions  $\text{He}(3^1P \rightarrow 2^1S)$  et  $\text{He}(3^3P \rightarrow 2^3S)$  respectivement.

### I.3 Élargissement de résonance

L'élargissement de résonance est un des types d'élargissement liés à la pression du gaz. Il est causé par l'interaction de l'émetteur avec des particules de la même nature et est souvent désigné par l'autoélargissement [164]. Il survient lorsque le niveau inférieur ou le niveau supérieur de la transition est lié à l'état fondamental par une transition de résonance. Dans une telle situation, il est de bonne approximation de considérer l'émetteur et l'atome neutre comme interagissant par un potentiel dipolaire environ proportionnel à l'inverse de la distance au cube. L'élargissement est alors donné par [165]

$$\Delta\nu_r \approx \frac{nc^3}{4\pi\nu_{ig}^2} A_{ig} \sqrt{\frac{g_i}{g_g}}, \quad (\text{I.10})$$

où l'indice  $g$  représente l'état fondamental et l'indice  $i$  représente l'état inférieur ou l'état supérieur de la transition élargie. Ainsi,  $A_{ig}$  et  $\nu_{ig}$  sont le coefficient d'Einstein pour l'émission spontanée et la fréquence de la transition entre l'état  $i$  vers l'état fondamental. De la même manière que pour l'élargissement Doppler, on utilise l'expression (I.7) afin d'obtenir l'élargissement en termes de la longueur d'onde comme

$$\Delta\lambda_r \approx \frac{n}{16\pi c} \lambda_{ul}^2 \lambda_{ig}^3 A_{ig} \sqrt{\frac{g_i}{g_g}}. \quad (\text{I.11})$$

Bref, pour une décharge d'hélium à la pression atmosphérique, on peut calculer l'élargissement de résonance comme

$$\Delta\lambda_r \approx 0,060 \text{ nm}, \quad (\text{I.12})$$

pour la raie  $\lambda_{ul} = 501,6 \text{ nm}$  en utilisant  $\lambda_{ig} = 53,71 \text{ nm}$ ,  $g_i = 3$ ,  $g_g = 1$  et  $A_{ig} = 5,6634 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ . De la même manière, on obtient

$$\Delta\lambda_r \approx 1,0 \times 10^{-11} \text{ nm}, \quad (\text{I.13})$$

pour la raie  $\lambda_{ul} = 388,9 \text{ nm}$  puisque  $A_{ig} = 1,21 \times 10^{-1} \text{ s}^{-1}$  pour  $\lambda_{ig} = 53,89 \text{ nm}$ . Dans ce cas, l'élargissement est extrêmement faible puisque la transition est interdite. On remarque que différents niveaux d'approximations peuvent être utilisés lors de la dérivation de l'équation (I.11). On peut donc obtenir un élargissement légèrement différent en utilisant une formule moins approximée (dans le même ordre de grandeur) [136, 137].

#### I.4 Élargissement van der Waals

L'élargissement de van der Waals survient lorsque l'émetteur interagit avec des atomes et des molécules avec lesquels il ne possède pas de transition de résonance. L'élargissement est donc produit par interaction dipolaire entre l'émetteur et le dipôle induit du perturbateur. L'interaction est typiquement de nature  $1/r^6$  (d'où le nom van der Waals) et l'élargissement peut être évalué par l'équation [136]

$$\Delta\lambda_v \approx \frac{\lambda_{ul}^2}{2c} \left( \frac{9\pi\hbar^5 \overline{R_\alpha^2}}{16m_e^3 E_p^2} \right)^{2/5} \frac{1}{v_r^{3/5} n_p} \quad (\text{I.14})$$



avec  $E_p$ , le premier niveau excité du perturbateur,  $v_r$ , la vitesse relative entre le perturbateur et l'émetteur et  $n_p$ , la densité de perturbateur. De plus, on estime

$$\overline{R_\alpha^2} = \frac{1}{2} \frac{E_H}{E_\infty - E_u} \left( 5 \frac{z^2 E_H}{E_\infty - E_u} + 1 - 3\ell_u(\ell_u + 1) \right)$$

où  $E_H$  est l'énergie d'ionisation de l'atome hydrogène,  $E_\infty$  est l'énergie d'ionisation de l'émetteur,  $E_\alpha$  est l'énergie du niveau supérieur de la transition,  $z$  est le nombre de charges effectives de l'émetteur ( $z = 1$  pour un émetteur neutre) et  $\ell_\alpha$  est le nombre quantique azimutal. La vitesse relative entre l'émetteur et le perturbateur peut être estimée à partir de la vitesse relative entre deux particules dont la fonction de distribution des vitesses de Maxwell-Boltzmann. Celle-ci est

$$v_r = \sqrt{\frac{16k_B T_g}{4\pi}} \left( \frac{1}{\sqrt{m_p}} + \frac{1}{\sqrt{m_e}} \right), \quad (\text{I.15})$$

avec  $m_p$  et  $m_e$ , la masse du perturbateur et de l'émetteur respectivement. Pour les transitions  $\lambda_{ul} = 501,6$  et  $\lambda_{ul} = 389,9$  nm de l'hélium dans une décharge à la pression atmosphérique contenant 10 ppm de diazote, on peut calculer l'élargissement de van der Waals due à la présence d'impureté d'azote. On a que  $E_p = 6$  eV [166],  $E_H = 13,6$  eV,  $E_\infty = 24,59$  eV,  $n_p = 2,4 \times 10^{20} \text{ m}^{-3}$ ,  $z = 1$ ,  $\ell_u = P = 1$ , et  $m_p = 4,65 \times 10^{-26}$  kg. Ainsi,

$$\Delta\lambda_v \approx 2,1 \times 10^{-7} \text{ nm} \quad \text{et} \quad \Delta\lambda_v \approx 1,2 \times 10^{-7} \text{ nm} \quad (\text{I.16})$$

pour les transitions  $\text{He}(3^1P \rightarrow 2^1S)$  et  $\text{He}(3^3P \rightarrow 2^3S)$ . Dans le cas où l'atome perturbateur est l'hélium,  $m_p = m_e$ ,  $n_p = 2,4 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ ,  $\ell_u = P = 1$ ,  $E_p = 19,8$  eV, ainsi

$$\Delta\lambda_v \approx 0,023 \text{ nm} \quad \text{et} \quad \Delta\lambda_v \approx 0,013 \text{ nm} \quad (\text{I.17})$$

pour les transitions  $\text{He}(3^1P \rightarrow 2^1S)$  et  $\text{He}(3^3P \rightarrow 2^3S)$ . On voit donc que la contribution à l'élargissement de van der Waals par les impuretés est négligeable

en comparaison avec ceux de l'hélium neutre.

## I.5 Élargissement Stark

Lorsqu'un atome est soumis à un champ électrique, la dégénérescence des niveaux d'énergie de l'atome est partiellement éliminée, ce qui a pour effet de diviser les raies spectrales [133]. Cet effet est connu comme l'effet Stark et survient dans les plasmas lorsque la densité de charge est suffisamment élevée pour créer un champ de charge d'espace important [167]. Si l'on néglige la structure fine de l'atome, ce phénomène se manifeste alors par un élargissement de raies. Pour l'atome d'hydrogène et les hydrogénoïdes, l'élargissement varie linéairement en fonction du champ électrique, tandis que pour les autres atomes, il varie quadratiquement en fonction du champ électrique. Notons que lorsque la perturbation est significative, il est alors possible de déduire la densité des particules chargées dans le plasma grâce à la mesure de ce type d'élargissement [156, 168].

L'élargissement Stark quadratique provient de la collision de l'émetteur avec les particules chargées ainsi que du champ de charge d'espace créé par les ions. L'élargissement théorique peut alors être donné en fonction de la densité et de la température des électrons par [137]

$$\Delta\lambda_s \approx 4 \times 10^{-22} w_e(T_e) n_e (1 + 5,53 \times 10^{-6} A(T_e) n_e^{1/4} (1 - 0,75R)) \quad (\text{I.18})$$

avec  $w_e(T_e)$ , l'élargissement d'impacte électronique théorique (en mètres),  $A(T_e)$ , le paramètre d'élargissement ionique et  $R$  le paramètre d'écrantage de Debye. Les valeurs de  $w_e(T_e)$  et  $A(T_e)$  peuvent s'obtenir de tables [169], tandis que le paramètre d'écrantage de Debye est donné par

$$R = (36\pi)^{1/6} \sqrt{\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 k_B T_e}} n_6^{1/6}. \quad (\text{I.19})$$

L'équation (I.18) pour l'élargissement Stark est valide dans le cas où

$$R \leq 0,8 \quad \text{et} \quad 0,05 \leq 3,16 \times 10^{-6} A(T_e) n_e^{1/4} \leq 0,5. \quad (\text{I.20})$$

Pour la transition  $\text{He}(3^1P \rightarrow 2^1S)$  dans un plasma d'hélium à la pression atmosphérique dont la température électronique est de 20 000 K<sup>1</sup> et la densité est de  $10^{17} \text{ m}^{-3}$ , on obtient  $w_e(T_e) = 3,34 \text{ nm}$ ,  $A(T_e) = 0,169$  [169]. Ainsi, on calcule  $R = 0,043$  et

$$\Delta\lambda_s \approx 1,4 \times 10^{-4} \text{ nm}. \quad (\text{I.21})$$

Bien que la condition sur  $R$  soit respectée, on remarque que celle sur  $A(T_e)$  n'est pas strictement observée :  $3,16 \times 10^{-6} \cdot 0,169 \cdot n_e^{1/4} < 0,05$ . Typiquement, lorsque  $A(T_e) > 0,5$ , les composantes interdites de l'élargissement ionique deviennent importantes et l'effet Stark devient linéaire. Ainsi, lorsque  $A(T_e) < 0,05$  la composante ionique devient simplement négligeable ; le calcul est tout aussi valide puisque lorsque  $A(T_e) \rightarrow 0$ , le deuxième terme de l'équation (I.18) devient nul et seul le terme électronique subsiste.

De façon similaire, pour la transition  $\text{He}(3^3P \rightarrow 2^3S)$ , toujours dans un plasma d'hélium à la pression atmosphérique dont la température électronique est de 20 000 K et la densité est de  $10^{17} \text{ m}^{-3}$ , on obtient  $w_e(T_e) = 1,17 \text{ nm}$ ,  $A(T_e) = 0,067$  [169]. Ainsi, on calcule  $R = 0,043$  et

$$\Delta\lambda_s \approx 4,7 \times 10^{-5} \text{ nm}. \quad (\text{I.22})$$

## I.6 Élargissement instrumental

Pour la plupart des mesures expérimentales, l'élargissement le plus important n'est pas dû à la source de l'émission lumineuse, mais plutôt au système optique qui effectue la mesure spectroscopique. C'est l'élargissement instrumental. Selon le

---

<sup>1</sup>Notons que la valeur fluctue de moins de 10% lorsque l'on utilise une température de 5000 K.

type de spectromètre utilisé et du montage expérimental, cet élargissement peut être causé par plusieurs éléments. Par exemple, le collimateur, la fibre optique ou le réseau de diffraction peuvent entrer en cause. Ainsi, une façon simple de déterminer cet élargissement est de procéder à une mesure sur une source dont on connaît l'élargissement. Lorsque l'élargissement dû à la source est beaucoup plus faible que l'élargissement instrumental, l'élargissement mesuré correspond nécessairement à ce dernier [170]. Par exemple, en utilisant une lampe à basse pression d'hélium, c'est l'élargissement Doppler qui domine. L'élargissement de la lampe est donc typiquement de 0,003 nm [131]. Tout élargissement supérieur mesuré par le système correspond alors à l'élargissement instrumental.

## I.7 Élargissement total

À la lumière des calculs d'élargissement précédemment effectués, il est possible de constater que l'élargissement de résonance domine la raie d'émission  $\text{He}(3^1\text{P}\rightarrow 2^1\text{S})$  tandis que l'élargissement de van der Waals domine la raie d'émission  $\text{He}(3^3\text{P}\rightarrow 2^3\text{S})$ . Les élargissements sont résumés au tableau I.II<sup>2</sup>.

	$\text{He}(3^1\text{P}\rightarrow 2^1\text{S})$	$\text{He}(3^3\text{P}\rightarrow 2^3\text{S})$
$\Delta\lambda_n$ (nm)	$7,5 \times 10^{-5}$	$7,5 \times 10^{-7}$
$\Delta\lambda_G$ (nm)	0,0031	0,0024
$\Delta\lambda_r$ (nm)	0,060	$1,0 \times 10^{-11}$
$\Delta\lambda_v$ (nm)	0,023	0,013
$\Delta\lambda_S$ (nm)	$1,4 \times 10^{-4}$	$4,7 \times 10^{-5}$
$\Delta\lambda_G$ (nm)	0,0031	0,0024
$\Delta\lambda_L$ (nm)	0,083	0,013

Tableau I.II – Résumé des élargissements pour la décharge d'hélium à la pression atmosphérique. Toutes les valeurs sont en nanomètre.

Puisque les élargissements naturel, de résonance, de van der Waals et de Stark

<sup>2</sup>On remarque que la valeur de l'élargissement de résonance pour  $\text{He}(3^1\text{P}\rightarrow 2^1\text{S})$  rapportée dans le chapitre 4 diffère d'un facteur 5 avec la valeur calculée ici. En fait, la valeur rapportée au chapitre 4 devrait être plus juste puisqu'elle a été mesurée dans des conditions similaires à notre décharge. En fait, l'élargissement de résonance est encore un phénomène plutôt mal compris.

mènent à un profil de Lorentz, on note que  $\Delta\lambda_L$  est la somme de ces quatre mécanismes d'élargissement. Dans le cas de l'élargissement Doppler, il est le seul à mener à un profil de Gauss et donc le seul à contribuer à  $\Delta\lambda_G$ .