

Université de Montréal

# **Étude spectroscopique des phénomènes de résonance dans les plasmas micro-ondes**

Par  
Simon Boivin

Groupe de physique des plasmas  
Département de physique  
Faculté des arts et des sciences

Mémoire présenté à la faculté des études supérieures  
en vue de l'obtention du grade de  
Maître en physique

Juin 2018

© Simon Boivin

## Résumé

Dans les plasmas produits par des champs électromagnétiques de haute fréquence, le chauffage des électrons peut provenir du chauffage ohmique (collisionnel) ou encore de processus non collisionnels. Dans ce régime, la production d'électrons suprathermiques peut résulter de la conversion de l'onde électromagnétique en ondes électrostatiques au point de résonance (lorsque la permittivité du plasma  $\epsilon_p \rightarrow 0$ ) et leur amortissement par effet Landau. L'objectif de ce mémoire de maîtrise est de caractériser expérimentalement l'effet de processus non collisionnels associés à la présence d'une résonance sur la fonction de distribution en énergie des électrons (FDEE). L'étude a été effectuée par spectroscopie optique d'émission de gaz rares dans divers plasmas susceptibles de présenter des phénomènes de résonance. Pour des plasmas tubulaires à basse pression (<50 mTorr) produits par des ondes électromagnétiques de surface à 600MHz, la FDEE est caractérisée par deux températures :  $T_e^{All}$  décrit l'énergie moyenne et  $T_e^{Tail}$  représente les électrons de la queue de la distribution. Une étude paramétrique de ces températures en fonction de la position axiale le long de la colonne de plasma et de la pression du gaz a permis de corréler l'augmentation du rapport  $T_e^{Tail} / T_e^{All}$  avec la longueur caractéristique du gradient de densité électronique dans le plasma  $L$ . Des mesures et analyses similaires ont aussi été réalisées dans une source à plasma micro-onde magnétisée entretenue à la résonance cyclotronique électronique. Dans ces conditions, la production d'électrons suprathermiques provient non seulement des phénomènes de résonance et des interactions ondes-particules évoqués plus haut mais aussi de la résonance cyclotronique électronique.

**Mots-clés:** Plasma produits par des champs micro-onde, spectroscopie optique d'émission, interactions ondes-particules, phénomène de résonance

## Abstract

In plasmas produced by high-frequency electromagnetic fields, electron heating can result from ohmic heating (collisional) or from collisionless processes. In this regime, the production of suprathermal electrons can result from the conversion at the resonant point (when the plasma permittivity  $\varepsilon_p \rightarrow 0$ ) of the propagating electromagnetic wave into electrostatic waves and their absorption by Landau damping. The objective of this Master's thesis is to experimentally characterize the effect of collisionless processes associated with the presence of resonance phenomena on the electron energy distribution function (EEDF). The study was carried out by trace-rare-gases optical emission spectroscopy (TRG-OES) in various plasmas capable of exhibiting resonance phenomena. For low-pressure tubular plasmas ( $< 50$  mTorr) produced by an electromagnetic surface wave at 600 MHz, EEDF is characterized by two temperatures:  $T_e^{All}$  describes the mean energy and  $T_e^{Tail}$  represents the high-energy tail of the distribution. A parametrical study of these temperatures as a function of the axial distance and the gas pressure revealed that the ratio  $T_e^{Tail}/T_e^{All}$  increases with the characteristic length of the electron density gradient  $L$ . Similar measurements and analyses were also performed in a magnetized microwave plasma source sustained at the electron cyclotron resonance. In such conditions, the production of suprathermal electrons results not only from the resonance phenomena and wave-particle interactions mentioned above but also from the electron cyclotron resonance.

**Keywords:** Plasma produced by microwave fields, optical emission spectroscopy, wave-particle interactions, resonance phenomenon

# Table des matières

<b>Introduction générale .....</b>	<b>1</b>
<b>Chapitre 1 Description de la résonance .....</b>	<b>6</b>
<b>1.1. Solution des équations de Maxwell pour la propagation d'onde de surface dans le modèle de permittivité de Drude .....</b>	<b>7</b>
1.1.1. Plasma uniforme sans collisions.....	7
1.1.2. Plasma non uniforme avec collisions.....	13
<b>1.2. Application des équations de Maxwell en forme de potentiels vecteur et scalaire à la propagation d'ondes électromagnétiques de surface.....</b>	<b>17</b>
<b>1.3. Description cinétique de l'absorption d'énergie sans collision dans les plasmas d'onde de surface .....</b>	<b>21</b>
<b>1.4. Génération d'électrons suprathermiques .....</b>	<b>25</b>
1.4.1. Mesures expérimentales .....	25
1.4.2. Simulations PIC-MCC .....	29
<b>1.5. Conclusion .....</b>	<b>35</b>
<b>Chapitre 2 Montage expérimental et méthode de caractérisation.....</b>	<b>36</b>
<b>2.1. Montage expérimental et méthodes de mesure .....</b>	<b>36</b>
<b>2.2. Modèle collisionnel-radiatif .....</b>	<b>39</b>
2.2.1. Généralités.....	39
2.2.2. Modèle collisionnel-radiatif appliqué à la TRG-OES.....	44
<b>2.3. Conclusion .....</b>	<b>60</b>
<b>Chapitre 3 Phénomènes de résonance dans les plasmas d'onde de surface .....</b>	<b>62</b>
<b>Chapitre 4 Phénomènes de résonance dans les plasmas à la résonance cyclotronique électronique .....</b>	<b>85</b>
<b>Conclusion et perspectives .....</b>	<b>108</b>
<b>Bibliographie .....</b>	<b>i</b>



## Liste des figures

Figure 1 : Schéma d'un réacteur à couplage capacitif, où R est une résistance (Ballast).....	2
Figure 2 : Schéma d'un réacteur à couplage inductif. Dans ce type de plasma, l'énergie est absorbée par le milieu sur une longueur de pénétration $\delta$ généralement inférieure aux dimensions du réacteur.....	2
Figure 3 : Densité ionique en fonction de la puissance injectée dans le plasma. En dessous de 100W, la décharge est opérée en régime capacitif et $n_e$ est faible. Au-dessus de 100 W, la décharge devient inductive et $n_e \propto P_{abs}$ [1, p. 481].....	3
Figure 4 : Schéma d'un réacteur à plasma d'onde de surface.....	4
Figure 5: Géométrie plane. Le plasma est produit entre deux diélectriques à $x = \pm d$ . L'onde de surface se propage dans la direction y. Les composantes du champ électrique sont $E_y$ , parallèle à la direction de propagation et $E_x$ , transverse à la direction de propagation. ....	8
Figure 6 : Solution des équations de Maxwell pour les composantes transverses et parallèles du champ électrique à travers une tranche de plasma de 1 cm. La fréquence de l'onde est de 2.45 GHz, le rapport entre la fréquence de collision et la fréquence angulaire de l'onde est fixé à 0.1. Les composantes du champ sont tracées pour trois valeurs du rapport entre la fréquence angulaire de l'onde et la fréquence plasma électronique au centre: $\omega/\omega_{pe} = 0.2, 0.5$ et $0.7$ . Les constantes de propagation calculées dans ces trois cas sont telles que $(\alpha d, \beta d)$ sont respectivement $2.5 \times 10^{-3}, 0.27, 0.27, 0.54$ et $0.69, 0.74$ . Le profil de densité est un cosinus donné par l'équation 22 avec $\mu = 0.9$ . ....	14
Figure 7: Profil du champ électrique transverse $E_x$ sur une demi-tranche ( $0 < x < d$ ) de plasma dans les conditions de Figure 6, mais pour $\omega/\omega_{pe} = 0.5$ et $\nu/\omega = 0.1, 0.05$ et $0.001$ .....	16
Figure 8 : Composantes transverse (a) et parallèle (b) du potentiel vecteur modifié $A^0 = -i\omega A$ obtenus des équations de Maxwell (29). Les conditions sont les mêmes qu'à la Figure 6 et seulement une demi-tranche du plasma est tracée ( $0 < x < d$ ). ....	19
Figure 9 : Distribution axiale de la fonction de distribution en énergie des électrons mesurée par sonde électrostatique dans un réacteur planaire.....	26

Figure 10 : Variation du potentiel plasma par rapport au potentiel flottant ( $V_{pf} = V_p - V_f$ ) en fonction de la distance radiale par rapport au tube de quartz pour des pressions de 30 mTorr (plein), 60 mTorr (tiret), et 100 mTorr (pointillé).....	27
Figure 11 : Variation de la température des électrons d'énergie intermédiaires ( $T_e$ -high $\sim 10$ eV) et de la température des électrons très chauds de la queue de la distribution en énergie des électrons ( $T_e$ -tail) en fonction de la fréquence d'excitation de l'onde électromagnétique de surface pour un plasma d'argon dans un tube.....	28
Figure 12 : Espace des phases ( $x, v_x$ ) des électrons en régime transitoire à $t = 0.3 \mu s$ (l'état stationnaire est atteint après quelques dizaines de $\mu s$ ). Les conditions sont : Argon 10 mTorr, $2d = 2$ cm, $f = 2.45$ GHz, $E_0 = 4000$ V/m, $\epsilon_d = 1$ et la densité électronique initiale est un cosinus avec $\langle n_e \rangle = 10^{17} m^{-3}$ .....	30
Figure 13 : Espace des phases pour une tranche de plasma de 1 cm (et uniforme dans la direction axiale) à 2,45 GHz dans l'Argon, et pour (a) $p = 20$ mTorr, $E_0 = 3000$ V/m (b), $p = 100$ mTorr, $E_0 = 3000$ V/m et (c), $p = 100$ mTorr, $E_0 = 6500$ V/m. La légende de couleur est la même que sur la Figure 12. La distribution est normalisée à sa valeur maximale et les 4 lignes de contour correspondent à : 0.5, $10^{-1}$ , $10^{-2}$ et $10^{-4}$ du maximum de densité.....	32
Figure 14 : Densité électronique et ionique moyenné sur le temps pour les trois cas de la Figure 13. (a) sur l'ensemble de la tranche de plasma et (b) dans la région de la gaine au diélectrique gauche. La densité critique est tracée en tiret et les cas 1, 2, 3 correspondent aux cas (a), (b), (c) de la Figure 13. ....	34
Figure 15 : Schéma du montage expérimental comprenant le réacteur (tube et surfatron) et les diagnostics (TRG-OES et interférométrie micro-onde.).....	37
Figure 16 : Spectre d'émission optique de $\sim 585$ nm à $\sim 910$ nm pour un plasma RCE d'argon à 2450 MHz, 1.6 mTorr et avec 10% de TRG. Les symboles représentent les raies observables des transitions $2p \rightarrow 1s$ : orange, vert, rouge et cyan pour Ne, Ar, Kr et Xe. ....	38
Figure 17 : Schéma des niveaux d'énergie $2p_x$ et $1s_i$ du Ne, Ar, Kr et Xe avec les longueurs d'onde des photons émis pour chaque transition $2p \rightarrow 1s$ .....	39

Figure 18 : Rapport des taux de réaction $k_{0,i}$ en fonction de la température électronique pour différentes raies du néon, argon et xénon. ....	42
Figure 19 : Sections efficaces pour l'excitation à partir du $1s_5$ pour la 823 nm du Xénon et à partir du fondamental pour la 750 nm de l'Argon et la 585 nm du Néon pour une fonction de distribution en énergie des électrons Maxwellienne des électrons à 3 eV. Les régions hachurées correspondent à la portion des électrons ayant une énergie suffisante pour peupler le niveau excité de chaque raie. ....	43
Figure 20 : Schéma de la distribution des niveaux selon l'énergie. ....	45
Figure 21 : Diagramme des gains des niveaux $2p_x$ et $1s_i$ traité en bloc pour un gaz rare. Les excitations électroniques sont représentées par des flèches noir (1, 2, 3, 5, 6, 8), l'auto absorption en bleu (4, 7) et les désexcitations radiatives en rouge (2, 5). (1) Excitation électronique directe sur le fondamental vers les $2p_x$ . (2) Cascade radiative vers les $2p_x$ à partir du fondamental. (3) Excitation électronique directe des $1s_i$ vers les $2p_x$ . (4) Auto absorption des photons des $2p_x$ par les $1s_i$ . (5) Excitation électronique sur le fondamental et cascade radiative vers les $1s_i$ . (6) Transfert d'excitation. (7) Auto absorption des photons des résonnants par le fondamental. (8) Ionisation. (9) Collision superélastique. (10) Quenching. Le quenching n'implique pas de collision avec un électron, mais est schématisé par une flèche noire pour simplifier. ....	46
Figure 22 : Pourcentage des gains sur les niveaux $2p_x$ provenant de l'excitation par impact électronique sur le fondamental. Résultats du modèle pour tous les niveaux $2p_x$ du Ne, Ar, Kr, Xe pour un plasma d'Argon 5 mTorr avec 10% de TRG et $T_e = 4.6$ eV. ....	49
Figure 23 : Facteur d'échappement calculé à partir de l'équation 63 en fonction de la densité de centre absorbeur sur la demie longueur d'absorption ( $n_j L$ ). ....	51
Figure 24 : Diagramme de l'excitation à partir du $1s_5$ vers les $2p_x$ ( $\rightarrow$ ) résultant en une population du $1s_3$ par l'émission d'un photon ( $\rightarrow$ ) pour l'Argon. $k_{s5,px}$ et $b_{px,s3}$ sont les taux de réaction et les facteur d'embranchement associés à ces réactions. Les réaction $1s_5 \rightarrow 2p_1$ et $1s_5 \rightarrow 2p_5$ sont représentés en pointillé puisque leurs taux de réaction sont très faibles à comparer aux autres (voir Figure 22). Les niveaux résonnants $1s_2$ et $1s_4$ ne sont pas représentés. ....	53

Figure 25 : Comparaison entre les intensités mesurées expérimentalement et calculées par le modèle pour le minimum de la déviation standard. Plasma d'onde de surface d'argon avec 10% de trace de gaz rare (40% de Ne et 20% de Ar, Kr, Xe) à 5 mTorr, 600 MHz et dans un tube de 26 mm de diamètre interne. ....	57
Figure 26 : Température électronique moyenne $T_e$ trouvée par le modèle pour 31 raies d'émission de l'Ar, Kr, Xe dans un plasma d'onde de surface d'argon avec 10% de TRG dans un tube de 13mm de rayon interne à 600 MHz en fonction de la pression à 30 cm de la fin de la décharge. La courbe pointillée représente une estimation de la température électronique par le modèle global. ....	60
Figure 27: Nombre d'onde axial de l'onde électromagnétique de surface $\beta$ en fonction de du champ magnétique ( $\omega_c/\omega$ ) pour $\omega/\omega_{pe} = 0.1$ [89]. ....	111
Figure 28 : Fonction de probabilité en énergie des électrons (EEPF) généralisé et normalisé pour $x = 1$ (Maxwellienne), $x = 2$ (Druyvesteyn) et $x = 0.5$ . ....	112

## Liste des symboles

$A$	Potentiel vecteur; coefficient d'Einstein
$A^0$	Potentiel vecteur modifié
$B$	Intensité du champ magnétique
$B_{ij}$	Facteur d'embranchement
$B_1$	Coefficient défini par l'équation 85
$B_2$	Coefficient défini par l'équation 85
$c$	Vitesse de la lumière
$D$	Coefficient de diffusion
$d$	Position des plans diélectriques
$d_{eff}$	Distance effective pour la diffusion
$E$	Intensité du champ électrique; énergie
$E_0$	Valeur du champ électrique au centre du plasma
$E_d$	Champ de pompage
$e$	Charge élémentaire
$F$	Fonction de réponse du spectromètre
$f$	Nombre de degrés de liberté; fréquence de l'onde électromagnétique
$f_p$	Fonction de probabilité en énergie des électrons généralisé
$G$	Gains d'un niveau excité dans le plasma
$g$	Dégénérescence d'un niveau
$h$	Constante de Planck
$h_l$	Coefficient défini par l'équation 83
$h_R$	Coefficient défini par l'équation 83
$I$	Intensité d'une raie d'émission optique
$J_e$	Densité de courant électronique
$J_T$	Densité de courant électronique total
$k$	Nombre d'onde; taux de réaction
$k_0$	Nombre d'onde dans le vide; coefficient d'absorption au centre de la raie
$k_B$	Constante de Boltzmann

$L$	Longueur caractéristique du gradient de densité électronique; longueur du réacteur
$l$	Demi-longueur d'absorption
$M$	Masse d'un atome du gaz
$M_i$	Masse d'un l'ion
$m_e$	Masse de l'électron
$N$	Nombre de raies; indice de réfraction
$N'$	Nombre de poids $w$ non nuls
$n_0$	Densité électronique au centre du plasma; densité du niveau fondamental
$n_e^0$	Valeur moyenne de la densité électronique
$n_e^1$	Faible oscillation de la densité électronique
$n_c$	Densité critique pour la propagation de l'onde de surface
$n_e$	Densité électronique
$n_g$	Densité des atomes du gaz
$n_i$	Densité d'un niveau excité $i$
$P$	Polarisation; pertes d'un niveau excité dans le plasma; puissance
$P_{abs}$	Puissance absorbée par le plasma
$p$	Pression du gaz
$p_e$	Pression électronique
$R$	Rayon du réacteur; résistance
$T_e$	Température électronique
$T_e^{All}$	Température électronique moyenne des électrons
$T_e^{high}$	Température électronique des électrons d'énergie intermédiaire
$T_e^{Tail}$	Température électronique des électrons de la queue de la distribution
$T_g$	Température du gaz
$u_B$	Vitesse de Bohm
$u_e$	Vitesse de dérive des électrons
$v_d$	Vitesse d'oscillation des électrons dans le champ de pompage $E_d$
$v_{th}$	Vitesse thermique des électrons
$V_f$	Potentiel flottant

$V_p$	Potentiel plasma
$w$	Poids statistique
$x$	Rapport de raie théorique sur expérimental; exposant de la fonction de probabilité en énergie des électrons généralisé
$x_r$	Position de la résonance
$\bar{x}_w$	Moyenne pondérée
$\%ESR$	Erreur standard relative pondérée en pourcentage
$\alpha$	Composante imaginaire du coefficient de propagation $\gamma$ (absorption)
$\beta$	Composante réelle du coefficient de propagation $\gamma$ (propagation)
$\gamma$	Coefficient de propagation
$\gamma^*$	Indice adiabatique
$\Gamma$	Fonction Gamma
$\delta$	Longueur de pénétration
$\epsilon_0$	Permittivité du vide
$\epsilon_d$	Permittivité du diélectrique
$\epsilon_p$	Permittivité du plasma
$\epsilon_p^R$	Partie réelle de la permittivité du plasma
$\theta_{ij}$	Facteur d'échappement
$\kappa$	Valeur propre des équations 11 et 17
$\kappa_d$	Valeur propre des équations 12 et 18
$\lambda$	Longueur d'onde
$\lambda_D$	Longueur de Debye
$\lambda_i$	Libre parcours moyen des ions
$\Delta\lambda_D$	Élargissement Doppler
$\mu_0$	Perméabilité du vide
$\mu$	Paramètre ajustable de l'équation 22
$\nu$	Fréquence de collision; fréquence d'un photon d'énergie $h\nu$
$\nu_{br}$	Fréquence de collision effective lorsqu'il y a rupture d'onde
$\nu_{eff}$	Fréquence de collision effective

$\rho_b$	Densité de charge liée
$\sigma$	Section efficace; erreur absolue
$\Phi$	Potentiel scalaire
$\omega$	Fréquence angulaire de l'onde
$\omega_{pe}$	Fréquence plasma électronique

## Introduction générale

Les plasmas hors équilibre thermodynamique produits en laboratoire sont très utilisés pour la modification et la fonctionnalisation de matériaux et de nanomatériaux, incluant ceux sensibles à la chaleur comme les polymères. Formés d'électrons, d'ions, de neutres excités (métastables) et de photons, ces plasmas représentent un milieu très « réactif » envers la matière organique et inorganique. Par exemple, on peut graver une surface avec les ions accélérés dans la gaine du plasma (pulvérisation physique) ou déposer des couches minces en injectant des molécules appelées précurseurs dans le plasma qui y seront dissociées, ionisées, recombinaison puis déposées (dépôt chimique en phase vapeur assistée par plasma) [1].

Plusieurs sources de plasma hors équilibre thermodynamique ont été développées au cours des années, chacune avec des caractéristiques différentes dans le but d'optimiser ou de créer de nouveaux procédés. Le cas le plus simple est celui de la décharge capacitive. En appliquant une différence de potentiel entre deux électrodes dans un enceinte remplie d'un gaz à pression réduite, un électron primaire (créé, par exemple, par le rayonnement cosmique) sera accéléré et, par collision inélastique avec les atomes du gaz, pourra les ioniser et produire un ion et un autre électron (voir Figure 1). Ce processus répété pourra donner lieu à un phénomène d'avalanche électronique et à un plasma macroscopiquement neutre dans lequel la température des électrons est largement supérieure à celle des ions et des atomes. En dépit de leur simplicité, ce type de plasma possède par contre plusieurs désavantages. En particulier, une grande partie de la puissance injectée ne va pas directement au plasma, mais s'avère plutôt perdue dans les gaines (milieux non-neutres) à proximité des électrodes [1, p. 165]. En conséquence, les densités de particules chargées demeurent assez faibles ( $\sim 10^8 - 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ ) [2, p. 15].

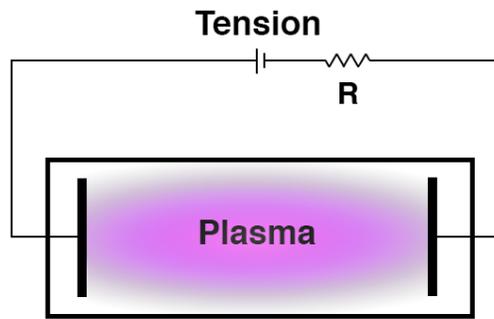


Figure 1 : Schéma d'un réacteur à couplage capacitif, où R est une résistance (Ballast).

Dans l'optique d'obtenir des plasmas de plus hautes densités, plusieurs approches ont été proposées. L'une d'entre elles repose sur l'induction, donnant lieu à des plasmas à couplage inductif. Dans ce type de plasma, une bobine alimentée par un générateur de haute fréquence (généralement à 13.56 MHz) est enroulée autour d'un tube diélectrique contenant le gaz (voir Figure 2). Selon la loi de Faraday, le courant oscillant dans la bobine induit un champ électrique de même fréquence dans le tube : c'est ce champ électrique induit qui sert à créer et entretenir le plasma.

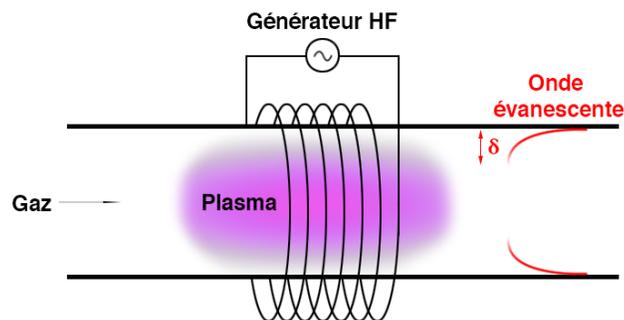


Figure 2 : Schéma d'un réacteur à couplage inductif. Dans ce type de plasma, l'énergie est absorbée par le milieu sur une longueur de pénétration  $\delta$  généralement inférieure aux dimensions du réacteur.

Dans ce régime de fréquence, les ions, à cause de leur faible mobilité, ne voient que la valeur moyenne du champ électrique oscillant alors que les électrons, du fait de leur faible masse, répondent au champ électrique instantané. Les électrons peuvent donc être déplacés de leur position d'équilibre et ainsi osciller autour des ions à une fréquence caractéristique appelée fréquence plasma électronique  $\omega_{pe}$  ( $\omega_{pe}^2 = e^2 n_e / m_e \epsilon_0$ , où  $n_e$  est la densité électronique,  $m_e$  la masse de l'électron,  $e$  la charge élémentaire et  $\epsilon_0$  la permittivité du vide). Cette fréquence  $\omega_{pe}$  agit aussi comme fréquence de coupure pour les ondes électromagnétiques. En effet, pour un plasma d'indice de réfraction  $N^2 \approx 1 - \omega_{pe}^2 / \omega^2$ , une onde électromagnétique ne pourra se propager dans le milieu que si sa fréquence angulaire  $\omega$  est supérieure à  $\omega_{pe}$ . À 13.56 MHz, avec des valeurs de  $\omega_{pe}$  de l'ordre du GHz pour les plasmas de laboratoire à pression réduite, l'onde ne peut se propager de sorte que l'énergie électromagnétique est entièrement absorbée par le plasma sur une certaine longueur de pénétration  $\delta$  généralement inférieure aux dimensions du réacteur. Comme le montre la Figure 3, il en résulte un plasma avec une densité de particules chargées beaucoup plus grande que celles pouvant être atteintes avec des électrodes internes en régime capacitif.

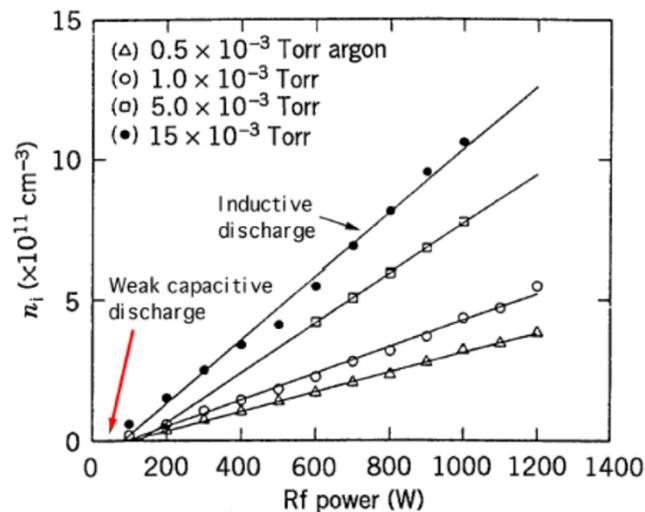


Figure 3 : Densité ionique en fonction de la puissance injectée dans le plasma. En dessous de 100W, la décharge est opérée en régime capacitif et  $n_e$  est faible. Au-dessus de 100 W, la décharge devient inductive et  $n_e \propto P_{abs}$  [1, p. 481]

Comme les plasmas à couplage inductif, les plasmas produits par des ondes électromagnétiques de surface n'ont pas d'électrodes internes. Ils sont créés à l'aide d'un dispositif nommé excitateur qui couple une onde électromagnétique à un diélectrique et un plasma contenu dans le tube diélectrique (voir Figure 4). L'intensité du champ électrique est souvent maximale à l'interface plasma-diélectrique, d'où le nom onde de surface. Ce type de plasma est typiquement créé dans des tubes mais peut aussi exister en configuration planaire [3], [4]. Il existe plusieurs types d'excitateurs selon la géométrie du système et la fréquence de l'onde [4], [5]. À ce sujet, l'une des propriétés fondamentales des plasmas produits par des ondes électromagnétiques de surface est leur grande souplesse en termes de paramètres opératoires. En effet, une pression de gaz allant de quelques mTorr jusqu'à la pression atmosphérique ainsi qu'une fréquence de quelques kHz jusqu'à la dizaine de GHz est aisément possible. Au fil des années, ces plasmas ont donné lieu à un grand nombre d'applications dont la synthèse et la gravure de matériaux [6]–[8], le traitement d'effluents gazeux [9] et la stérilisation d'objets médicaux [10].

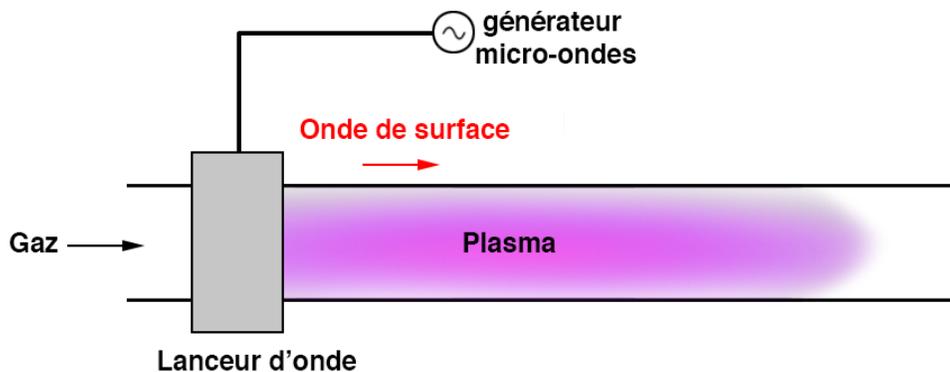


Figure 4 : Schéma d'un réacteur à plasma d'onde de surface.

Dans des plasmas produits par des champs électriques oscillants, autant en régime capacitif qu'inductif, le chauffage des électrons provient du chauffage ohmique si la fréquence d'oscillation du champ  $\omega$  est inférieure ou de l'ordre de la fréquence de collision électrons-neutres  $\nu$  (régime collisionnel). Lorsque  $\nu \ll \omega$ , le chauffage des électrons peut aussi résulter

de processus non collisionnels. Par exemple, dans les plasmas tubulaires produits par des ondes électromagnétiques de surface, l'interaction entre l'onde et le plasma résulte en un plasma surdense ( $\omega_{pe} > \omega$ ) donnant lieu à proximité des parois diélectriques, où  $\omega_{pe} \approx \omega$  (la permittivité du plasma  $\epsilon_p \rightarrow 0$ ), à la présence d'une résonance (l'intensité du champ électrique radial tend vers l'infini). Plusieurs travaux théoriques [11]–[17] et expérimentaux [18]–[23] ont étudié ces phénomènes de résonance. Dans certains cas, certains auteurs ont proposé que cette résonance pouvait conduire à la génération d'électrons suprathermiques via des mécanismes de chauffage non collisionnels. En dépit de ces travaux, il demeure toutefois incertain quelles sont les conditions requises pour l'observation d'électrons chauds et de l'importance de ces processus dans le bilan énergétique des électrons. Ces aspects sont encore moins documentés dans les plasmas magnétisés pour lesquels, en plus de ces phénomènes de résonance, il peut aussi y avoir chauffage des électrons lorsque  $\omega$  s'approche de la résonance cyclotronique électronique (plasma RCE [1, p. 491]).

Dans ce mémoire de maîtrise, une étude expérimentale détaillée de la résonance dans les plasmas produits par des ondes électromagnétiques de surface est effectuée. Plus particulièrement, nous désirons caractériser le chauffage non collisionnel des électrons associé à la présence de la résonance par spectroscopie optique d'émission de gaz rares (TRG-OES de l'anglais *trace-rare-gases-optical-emission-spectroscopy* [24]). Pour ce faire, nous avons décidé de capitaliser sur la décroissance quasi-linéaire de la densité électronique du plasma par rapport à l'excitateur dans les plasmas tubulaires produits par des ondes électromagnétiques de surface pour étudier l'effet du changement de la position et de l'intensité de la résonance.

Dans ce contexte, nous décrivons au chapitre 1 la théorie derrière la résonance avec des résultats de simulations récemment obtenus par Boeuf *et al* [25]. Au chapitre 2, le montage expérimental ainsi que le modèle TRG-OES que nous avons modifié pour l'analyse détaillée des spectres d'émission optique des plasmas d'argon sont présentés. Finalement aux chapitre 3 et 4, nous présentons les résultats expérimentaux obtenus pour un plasma d'onde de surface à 600 MHz ainsi qu'un plasma RCE à 2450 MHz.

# Chapitre 1

## Description de la résonance

Dans un plasma faiblement collisionnel ( $\nu \ll \omega$ ) interagissant avec une onde électromagnétique (EM), l'absorption résonnante se produit à l'endroit où la densité électronique du plasma atteint la densité critique  $n_{cr}$ , c.-à-d. à l'endroit où la fréquence plasma électronique  $\omega_{pe}$  est égale à la fréquence angulaire de l'onde EM  $\omega$  ( $\omega = \omega_{pe} = \sqrt{n_{cr}e^2/m_e\epsilon_0}$ ) de sorte que la permittivité du plasma  $\epsilon_p$  tend vers 0. De plus, l'onde électromagnétique doit avoir une composante de son champ électrique parallèle au gradient de densité du plasma [25]. Dans de telles conditions, cette composante peut exciter des oscillations de charge d'espace au point de résonance (conversion de l'onde électromagnétique en ondes électrostatiques). Les oscillations de charge d'espace (ou ondes de Langmuir, ou plasmons) peuvent se propager à partir du point de résonance le long du gradient de densité vers les densités électroniques plus faibles. L'absorption résonnante a été étudiée en profondeur dans le domaine de l'interaction laser-plasma. [26]–[42].

Dans les plasmas produits par des ondes électromagnétiques de surface, l'onde de surface peut se propager dans une structure diélectrique et un plasma dont la densité électronique est supérieure à la densité critique. Ce type de plasmas représente un très bon exemple de système physique où la résonance et l'excitation d'ondes de Langmuir peuvent être présentes puisque 1) il y a nécessairement un endroit dans le plasma où la densité du plasma est égale à la densité critique puisque la densité électronique passe de zéro à la surface du diélectrique jusqu'à une valeur supérieure à la densité critique au centre du plasma, et 2) le champ électrique de l'onde de surface possède une composante perpendiculaire à la direction de propagation (transversale), c.-à-d. parallèle au gradient de densité du plasma. L'absorption résonnante dans les plasmas produits par des ondes de surfaces a été étudiée théoriquement [17], [38], [43]–[48], numériquement [49], [50], et aussi expérimentalement [20], [23], [51]–[54]. Tel que mentionné dans l'introduction, il est néanmoins nécessaire de tirer des conclusions plus quantitatives sur la contribution de l'absorption résonnante sur le bilan d'énergie des électrons dans des conditions typiques de plasmas produits par des ondes de surface. Si la densité électronique du plasma est suffisamment grande, le point de résonance

sera localisé très près des gaines ioniques, à proximité des parois diélectriques [55]. Dans ces conditions, l'onde de Langmuir ne pourra pas se propager le long du gradient de densité et il deviendra peu probable que l'absorption résonnante puisse chauffer efficacement les électrons. Dans le cas contraire (une densité électronique moyenne plus faible), les points de résonance deviennent éloignés des parois de sorte que l'absorption résonnante devrait être plus efficace. Il n'y a néanmoins pas de résultats quantitatifs dans la littérature sur ce point.

Dans ce chapitre, nous exposons les bases physiques des phénomènes de résonance dans les plasmas d'onde de surface. Nous décrivons aussi comment ces phénomènes peuvent conduire à un chauffage non collisionnel des électrons. Finalement, nous décrivons l'état des connaissances sur ces phénomènes d'un point de vue expérimental.

## **1.1. Solution des équations de Maxwell pour la propagation d'onde de surface dans le modèle de permittivité de Drude**

Dans cette section, nous représentons le plasma comme un milieu avec une permittivité complexe définie par le modèle de Drude. Tout d'abord, dans la section 1.1.1, les principes de propagation d'une onde de surface dans le cas trivial d'un plasma uniforme et sans collisions sont démontrés. Dans ce cas particulier, la partie imaginaire de la permittivité sera strictement nulle et la densité électronique sera constante sur l'ensemble du plasma. Il y sera démontré que la densité électronique du plasma doit être plus grande que la densité critique pour assurer la propagation de l'onde de surface. Il n'y aura ainsi pas de résonance pour un plasma théoriquement uniforme. Dans la section 1.1.2, la propagation des ondes de surface dans le cas plus réaliste d'un plasma collisionnel non uniforme entre deux diélectriques est considérée et des solutions numériques typiques des équations de Maxwell dans ces conditions sont présentées. Nous montrons ainsi comment le gradient de densité crée une résonance dans la composante transverse du champ électrique de l'onde de surface.

### **1.1.1. Plasma uniforme sans collisions**

Tout d'abord, nous écrivons les équations caractérisant la propagation des ondes de surface en coordonnées cartésiennes. Par simplicité, nous considérons d'abord la propagation à une interface simple entre un diélectrique et un plasma puis, comme à la Figure 5, pour une section

de plasma entre deux plans diélectriques. L'onde se propage dans la direction  $y$ , les composantes du champ électromagnétique sont :  $E_x$ ,  $E_y$  et  $B_z$ .  $E_x$  est la composante transversale du champ électrique et  $E_y$  est la composante axiale, c.-à-d. parallèle à la direction de propagation. Les équations de Maxwell sont couplées au plasma par la densité de courant électronique  $\mathbf{J}_e$  (où on néglige le courant ionique):

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \quad (1)$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \left( \mathbf{J}_e + \varepsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \right). \quad (2)$$

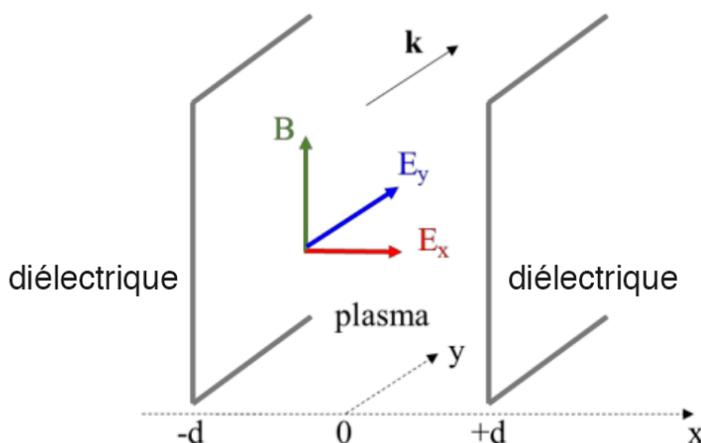


Figure 5: Géométrie plane. Le plasma est produit entre deux diélectriques à  $x = \pm d$ . L'onde de surface se propage dans la direction  $y$ . Les composantes du champ électrique sont  $E_y$ , parallèle à la direction de propagation et  $E_x$ , transversale à la direction de propagation.

La densité de courant électronique est définie par  $\mathbf{J}_e = -en_e \mathbf{u}_e$ , où  $n_e$  est la densité électronique et  $\mathbf{u}_e$  est la vitesse de dérive des électrons. Cette dernière est obtenue par une version simplifiée de l'équation du mouvement :

$$\frac{\partial \mathbf{u}_e}{\partial t} = -\frac{e\mathbf{E}}{m_e} - \nu \mathbf{u}_e, \quad (3)$$

où  $\nu$  est la fréquence de collision totale pour le transfert de la quantité de mouvement. Puisque le plasma est homogène et le système symétrique dans la direction axiale, les composantes du champ EM sont indépendantes de  $y$ . Premièrement, on regarde des solutions harmoniques des équations 1 et 2 de la forme :

$$E_x(x)e^{i(\omega t + \gamma y)}, \quad E_y(x)e^{i(\omega t + \gamma y)}, \quad B_z(x)e^{i(\omega t + \gamma y)}, \quad (4)$$

où  $\gamma = \beta + i\alpha$ , est le coefficient de propagation comprenant une composante réelle  $\beta$  (propagation) et imaginaire  $\alpha$  (absorption). Dans ce cas, l'opérateur nabla  $\nabla = (\partial/\partial x, \partial/\partial y, \partial/\partial z)$  devient simplement  $(\partial/\partial x, i\gamma, 0)$  tandis que la dérivée temporelle devient  $\partial/\partial t = i\omega$ . On peut alors réécrire l'équation 3 :

$$\mathbf{u}_e = -\frac{e\mathbf{E}}{m_e} \frac{1}{\nu + i\omega}. \quad (5)$$

Par conséquent, le côté droit de l'équation 2, représentant le courant total  $\mathbf{J}_T = \mathbf{J}_e + \varepsilon_0 \partial \mathbf{E} / \partial t$  s'écrit :

$$\mathbf{J}_T = \mathbf{J}_e + i\omega \varepsilon_0 \mathbf{E} = i\omega \varepsilon_0 \left( 1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega(\omega - i\nu)} \right) \mathbf{E}, \quad (6)$$

où  $\omega_{pe}^2 = \frac{n_e e^2}{m_e \varepsilon_0}$  est la fréquence plasma électronique et le terme entre parenthèses est la permittivité relative de Drude :

$$\varepsilon_p = 1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega(\omega - i\nu)} = 1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\nu^2 + \omega^2} - i \frac{\nu}{\omega} \frac{\omega_{pe}^2}{\nu^2 + \omega^2} \quad (7)$$

Dans un plasma non collisionnel ( $\nu \ll \omega$ ) et uniforme spatialement, la permittivité relative de Drude est constante et purement réelle :

$$\varepsilon_p = 1 - \omega_{pe}^2/\omega^2. \quad (8)$$

Insérant la permittivité de Drude dans l'équation de Maxwell (2) et en explicitant les rotationnel, les équations de Maxwell 1 et 2 s'écrivent alors:

$$\begin{cases} \frac{\partial E_y}{\partial x} - \frac{\partial E_x}{\partial y} = -\frac{\partial B_z}{\partial t} \\ \frac{\partial B_z}{\partial y} \hat{x} - \frac{\partial B_z}{\partial x} \hat{y} = i\omega\mu_0\varepsilon_0\varepsilon_p (E_x \hat{x} + E_y \hat{y}). \end{cases} \quad (9)$$

Insérant la première équation dans la seconde, on peut montrer, après quelques manipulations algébriques, que les équations de Maxwell se réécrivent :

$$\frac{\partial^2 E_y}{\partial x^2} - (\gamma^2 - k_0^2 \varepsilon_p) E_y = 0, \quad \frac{\partial E_x}{\partial x} = -i\gamma E_y, \quad (10)$$

où  $k_0 = \omega/c$  est le nombre d'onde dans le vide et  $c$  est la vitesse de la lumière. On peut maintenant résoudre ces équations dans le cas d'une interface simple entre un diélectrique et un plasma et ensuite pour une section de plasma entre deux plans diélectriques. Tout d'abord, considérant une interface simple entre le plasma et un diélectrique de permittivité  $\varepsilon_d$  à  $x = 0$ , la solution des équations 10 pour un champ  $E_y = E_0$  à l'interface ( $x = 0$ ) est:

dans le plasma ( $x > 0$ )

$$\begin{cases} E_y = E_0 e^{-\kappa x} \\ E_x = i \frac{\gamma}{\kappa} E_y \\ \kappa = \sqrt{\gamma^2 - k_0^2 \varepsilon_p} \end{cases} \quad (11)$$

dans le diélectrique ( $x < 0$ )

$$\begin{cases} E_y = E_0 e^{\kappa_d x} \\ E_x = -i \frac{\gamma}{\kappa_d} E_y \\ \kappa_d = \sqrt{\gamma^2 - k_0^2 \varepsilon_d} . \end{cases} \quad (12)$$

Considérant la condition de continuité de  $E_y$  et  $\varepsilon_p E_x$  à l'interface plasma-diélectrique ( $x = 0$ ), on obtient la relation de dispersion suivante :

$$\frac{\varepsilon_p}{\kappa} + \frac{\varepsilon_d}{\kappa_d} = 0 . \quad (13)$$

Comme  $\kappa$ ,  $\kappa_d$  et  $\varepsilon_d$  sont nécessairement positifs, cette relation de dispersion implique que pour assurer la condition de propagation, la permittivité du plasma  $\varepsilon_p$  doit inévitablement être négative. À l'aide des équations 11 et 12, l'équation 13 se réécrit :

$$\gamma = k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon_p \varepsilon_d}{\varepsilon_p + \varepsilon_d}} . \quad (14)$$

Puisque le coefficient de propagation  $\gamma$  doit nécessairement être positif pour avoir propagation et que  $\varepsilon_p < 0$ , on doit avoir  $-|\varepsilon_p| > \varepsilon_d$ . On peut donc finalement réécrire l'équation 8 comme:

$$\frac{\omega_{pe}^2}{\omega^2} > 1 + \varepsilon_d . \quad (15)$$

Cette dernière équation implique un plasma surdense pour la propagation, c.-à-d. une densité électronique plus grande qu'une certaine densité critique qui correspond, en réécrivant  $\omega_{pe}^2 = \frac{n_e e^2}{m_e \varepsilon_0}$ , au cas limite de l'équation 15:

$$n_c = (1 + \varepsilon_d) \frac{m_e \varepsilon_0}{e^2} \omega^2 . \quad (16)$$

On peut maintenant résoudre les équations 10 pour une section de plasma uniforme, sans collision, entre deux plans diélectriques situés à  $x = \pm d$  (Figure 5). Les solutions deviennent alors :

dans le plasma ( $-d < x < d$ )

$$\begin{cases} E_y = E_0 \cosh(\kappa x) \\ E_x = -i \frac{\gamma}{\kappa} E_0 \sinh(\kappa x) \\ \kappa = \sqrt{\gamma^2 - k_0^2 \varepsilon_p} , \end{cases} \quad (17)$$

hors plasma ( $-x > d, \quad x < -d$ )

$$\begin{cases} E_y = E_0 \cosh(\kappa d) \exp[\mp \kappa_d(x \mp d)] \\ E_x = \pm i \frac{\gamma}{\kappa_d} E_0 \cosh(\kappa d) \exp[\mp \kappa_d(x \mp d)] \\ \kappa_d = \sqrt{\gamma^2 - k_0^2 \varepsilon_d} . \end{cases} \quad (18)$$

Cette fois,  $E_0$  est la valeur de  $E_y$  au centre du plasma ( $x = 0$ ). La continuité des composantes  $E_x$  et  $E_y$  à l'interface plasma-diélectrique donne maintenant :

$$\frac{\varepsilon_d}{\kappa_d} \cosh(\kappa d) + \frac{\varepsilon_p}{\kappa} \sinh(\kappa d) = 0 . \quad (19)$$

Notons ici qu'il y a en fait deux modes de propagations possibles pour un plasma confiné entre deux plans diélectriques, les modes symétrique et antisymétrique [45]. La solution présentée ci-dessus est le mode symétrique pour lequel :  $E_y(d) = E_y(-d)$  et  $E_x(d) = -E_x(-d)$ . Notons finalement que dans la limite d'une tranche de plasma mince  $|\kappa|d \ll 1$ , les solutions pour  $E_x$  et  $E_y$  se simplifient :

$$E_y \approx E_0, \quad E_x \approx -i\gamma E_0 x . \quad (20)$$

Ainsi, le champ axial ( $E_y$ , parallèle à la direction de propagation) est constant sur tout le plasma tandis que la partie transversale du champ ( $E_x$ ) est nulle au centre et augmente

linéairement vers les parois diélectriques. Dans ce cas, le ratio des champs transverse et axial aux parois diélectriques vaut :

$$\frac{|E_x(d)|}{|E_y(d)|} = |\gamma|d = \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} d \approx |\beta|d. \quad (21)$$

### 1.1.2. Plasma non uniforme avec collisions

Dans l'exemple simple de la sous-section précédente, le plasma était uniforme et sa densité toujours plus grande que la densité critique (équation 16). Pour que l'onde EM puisse exciter des ondes de Langmuir à la résonance, la densité électronique du plasma doit être égale à la densité critique à un endroit. Il n'y avait donc aucun endroit dans le plasma de l'exemple précédent où la génération d'onde de Langmuir était possible. Dans cette section, nous considérons le cas plus réaliste d'une tranche de plasma non uniforme où la densité électronique passe de zéro aux parois à une valeur maximum au centre. Par simplicité, nous supposons que le profil de densité obéit à la solution de l'équation de diffusion [1, p. 141], i.e. un cosinus de la forme :

$$n_e(x) = n_0 \cos\left(\mu \frac{\pi x}{2d}\right), \quad (22)$$

où  $\mu$ , généralement proche de 1, est un paramètre ajustable pour varier la forme du profil. Les collisions sont cette fois prises en compte ( $\nu \neq 0$ ) de sorte que la permittivité du plasma devient complexe. Le profil de densité axial (en direction  $\hat{y}$ ) est encore considéré constant tout le long du plasma. Cette dernière approximation est justifiable puisqu'en général, le dépôt de puissance est local le long de l'axe et la variation de densité est beaucoup plus faible dans cette direction [4], [23]. Puisque la permittivité du plasma n'est plus constante dans la direction  $\hat{x}$ , l'équation d'onde devient (des équations de Maxwell 1 et 2) :

$$\begin{cases} \frac{\partial}{\partial x} \left[ \frac{1}{\varepsilon_p} \frac{\partial}{\partial x} (\varepsilon_p E_x) \right] - (\gamma^2 - k_0^2 \varepsilon_p) E_x = 0 \\ E_y = i \frac{1}{\gamma \varepsilon_p} \frac{\partial}{\partial x} (\varepsilon_p E_x). \end{cases} \quad (23)$$

En principe, il s'agit d'un simple problème à valeurs propre où les constantes  $\alpha$  et  $\beta$  sont obtenues par la condition de continuité des composantes  $E_y$  et  $\varepsilon_p E_x$  aux interfaces plasma-diélectrique comme dans les deux exemples de la sous-section précédente. Néanmoins, puisque la permittivité n'est plus une constante (équation 8 :  $\varepsilon_p \propto n_e$ ), on doit résoudre l'équation d'onde numériquement. La solution obtenue numériquement par Boeuf *et al* [25] dans les mêmes conditions que Alves *et al* [56, p. 95] est présentée avec :

- Épaisseur de la tranche de plasma  $2d = 1$  cm
- Permittivité du diélectrique  $\varepsilon_d = 1$
- Fréquence de l'onde EM  $f = 2.45$  GHz
- Distribution en cosinus (eq 22) avec  $\mu = 0.9$
- Collisionnalité  $\nu/\omega = 0.1$
- Trois valeurs différentes de  $n_0$ , la densité électronique au centre du plasma tel que  $\omega/\omega_{pe} = 0.2, 0.5$  et  $0.7$  au centre du plasma.

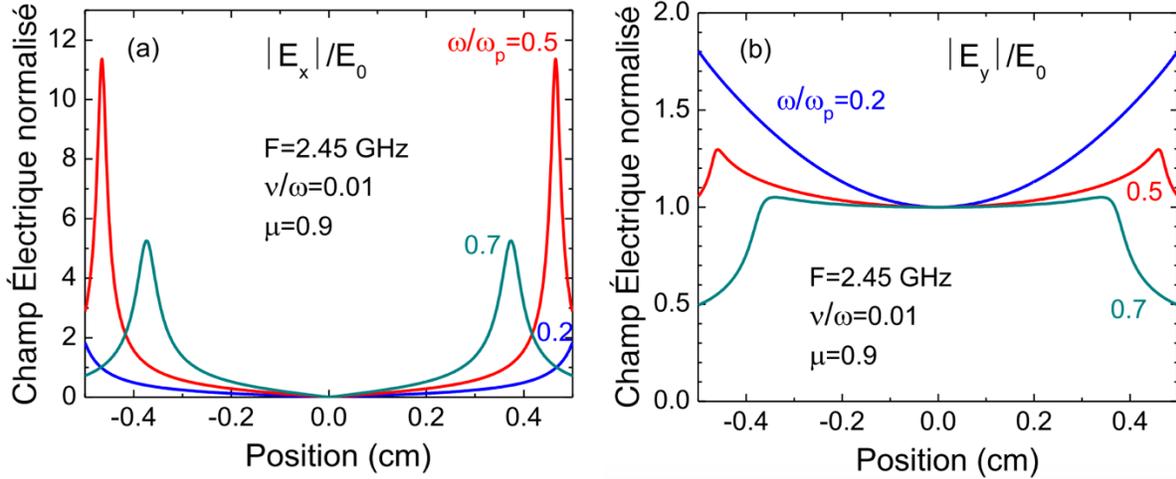


Figure 6 : Solution des équations de Maxwell pour les composantes transverses et parallèles du champ électrique à travers une tranche de plasma de 1 cm. La fréquence de l'onde est de

2.45 GHz, le rapport entre la fréquence de collision et la fréquence angulaire de l'onde est fixé à 0.1. Les composantes du champ sont tracées pour trois valeurs du rapport entre la fréquence angulaire de l'onde et la fréquence plasma électronique au centre:  $\omega/\omega_{pe} = 0.2, 0.5$  et  $0.7$ . Les constantes de propagation calculées dans ces trois cas sont telles que  $(\alpha d, \beta d)$  sont respectivement  $(2.5 \times 10^{-3}, 0.27), (0.27, 0.54)$  et  $(0.69, 0.74)$ . Le profil de densité est un cosinus donné par l'équation 22 avec  $\mu = 0.9$ .

On voit sur la Figure 6 que le champ transverse est maintenant complètement différent de celui obtenu pour un plasma homogène (variation linéaire et faible amplitude). À cause du profil de densité inhomogène, on a maintenant une résonance caractérisée par un pic étroit et intense du champ électrique qui se déplace vers le centre du plasma, et s'élargit, lorsque le rapport  $\omega/\omega_{pe}$  augmente. Le champ parallèle à la direction de propagation lui, est beaucoup moins affecté par la résonance et ses variations dans la direction  $x$  sont relativement faibles. En effet, ces conditions correspondent à la limite d'une tranche de plasma mince ( $\kappa d \ll 1$ ), comme dans le cas simplifié de la section précédente (équation 20) où la composante parallèle du champ était constante spatialement.

La Figure 7 montre le profil du champ transverse dans les mêmes conditions ( $\omega/\omega_{pe} = 0.5$ ), mais pour différentes valeurs de collisionnalité :  $\nu/\omega = 0.1, 0.05$  et  $0.001$ .

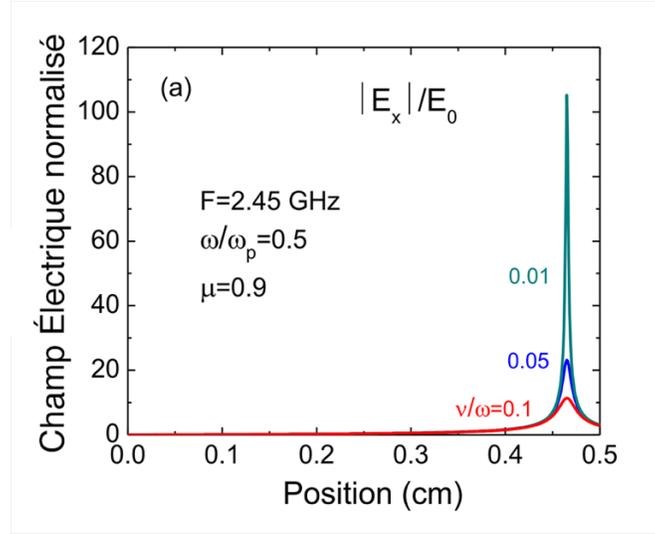


Figure 7: Profil du champ électrique transverse  $E_x$  sur une demi-tranche ( $0 < x < d$ ) de plasma dans les conditions de Figure 6, mais pour  $\omega/\omega_{pe} = 0.5$  et  $\nu/\omega = 0.1, 0.05$  et  $0.001$ .

On note sur que le champ électrique transverse à la résonance augmente approximativement comme  $(\nu/\omega)^{-1}$ . Ce comportement peut s'expliquer en regardant la divergence de l'équation 2 qui prend la forme de l'équation de continuité électromagnétique à l'état stationnaire ( $\partial\rho/\partial t = 0$ , ou  $\rho$  est la densité de charges) et s'écrit, en utilisant le courant total  $\mathbf{J}_T$  (6) :

$$\nabla \cdot (\varepsilon_p \mathbf{E}) = 0. \quad (24)$$

Dans un régime sans collision, cette équation admet une singularité lorsque la permittivité du plasma passe par zéro, c'est-à-dire au point de résonance pour lequel  $\omega = \omega_{pe}$ . Dans un régime collisionnel, au point de résonance, la permittivité est purement imaginaire et est de l'ordre de  $\varepsilon_p \approx i\nu/\omega$ , ce qui explique les tendances observées à la figure 3 :

$$|E_x| \propto (\nu/\omega)^{-1}. \quad (25)$$

Plusieurs études théoriques ont révélé que l'intense champ électrique à la résonance peut induire une conversion de l'onde électromagnétique en oscillations électrostatiques. Cependant, le modèle de Drude est local et ne peut donc pas décrire des oscillations de charge d'espace. Toutefois, en couplant les équations de Maxwell au courant, le modèle pourra

prendre en compte l'effet combiné du champ EM et des oscillations de charge d'espace résultant de l'oscillation des électrons dans le champ EM [57]. Ainsi, le modèle consiste en un « plasma diélectrique » (d'où la permittivité du plasma  $\varepsilon_p$ ) où le champ électrostatique résultant de charges liées et de leurs oscillations est pris en compte. En effet, en développant la divergence de l'équation 24 et en utilisant la loi de Gauss ( $\varepsilon_0 \nabla \cdot \mathbf{E} = \rho_b$ ), il devient apparent que le champ électrostatique est soit associé à la polarisation ou à un gradient de permittivité :

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = -\mathbf{E} \frac{\nabla \varepsilon_p}{\varepsilon_p} = \frac{\rho_b}{\varepsilon_0}, \quad (26)$$

où  $\rho_b \equiv -\nabla \cdot \mathbf{P}$  est la densité de charge liée et  $\mathbf{P}$  est la polarisation. Le modèle de Drude peut donc être considéré comme une bonne approximation pour des oscillations de charge d'espace de très faibles amplitudes. Une approche plus précise doit être développée pour prendre en compte les gradients de densité dans l'équation du mouvement des électrons (équation 3). Nous verrons à la section 1.3 que l'absorption d'énergie non collisionnelle liée à la présence de la résonance conduit à une fréquence de collision effective qui limite l'amplitude du champ électrique.

Pour résumer cette section, le modèle de Drude a permis de prédire une résonance et une intensité du champ électrique à la résonance qui augmente comme  $(\nu/\omega)^{-1}$ . Les effets non locaux et le chauffage non collisionnel des électrons ne peuvent pas être décrits par le modèle de Drude présenté ci-dessus. Dans la prochaine section, inspirés par les travaux de Bœuf *et al* [25], nous approcherons les équations de Maxwell avec le formalisme des potentiels vecteur et scalaire, une méthode bien adaptée pour décrire la résonance dans les plasmas d'onde de surface, pour ultimement améliorer le modèle de Drude.

## **1.2. Application des équations de Maxwell en forme de potentiels vecteur et scalaire à la propagation d'ondes électromagnétiques de surface**

Puisque la résonance est associée à la conversion d'énergie électromagnétique en énergie électrostatique, il semble naturel de réécrire les équations de Maxwell en forme de potentiels

vecteur et scalaire. Dans ce formalisme, en utilisant la jauge de Coulomb ( $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$ ), le champ électrique prend la forme:

$$\mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} - \nabla \Phi . \quad (27)$$

Dans le régime harmonique défini à la section 1.1.1, on obtient pour les champs  $E_x$ ,  $E_y$  et pour le potentiel vecteur dans la jauge de Coulomb ( $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$ ) :

$$E_x = -i\omega A_x - \frac{\partial \Phi}{\partial x}, \quad E_y = -i\omega A_y - i\gamma \Phi, \quad \frac{\partial A_x}{\partial x} + i\gamma A_y = 0 . \quad (28)$$

Pour simplifier, on peut substituer le potentiel vecteur  $\mathbf{A}$  par le potentiel vecteur modifié  $\mathbf{A}^0 = -i\omega \mathbf{A}$ , et en utilisant les nouvelles définitions de  $E_x$  et  $E_y$  en potentiels, l'équation d'onde (23) pour notre problème prend la forme :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \Phi}{\partial x^2} + \frac{1}{\varepsilon_p} \frac{\partial \varepsilon_p}{\partial x} \frac{\partial \Phi}{\partial x} - \gamma^2 \Phi = A_x^0 \frac{1}{\varepsilon_p} \frac{\partial \varepsilon_p}{\partial x} \\ \frac{\partial^2 A_y^0}{\partial x^2} - (\gamma^2 - k_0^2 \varepsilon_p) A_y^0 = ik_0^2 \varepsilon_p \gamma \Phi \\ \frac{\partial A_x^0}{\partial x} = -i\gamma A_y^0 \end{array} \right. \quad (29)$$

Les conditions frontières sont comme avant, la continuité de  $E_y$  et  $\varepsilon_p E_x$  à l'interface plasma-diélectrique et on prend  $\Phi(0) = 0$ . À nouveau, ces équations n'ont pas de solution analytique et doivent être résolues numériquement. Les solutions obtenues par Bœuf *et al* [25] sont présentées à la Figure 8 pour les mêmes conditions qu'à la Figure 6.

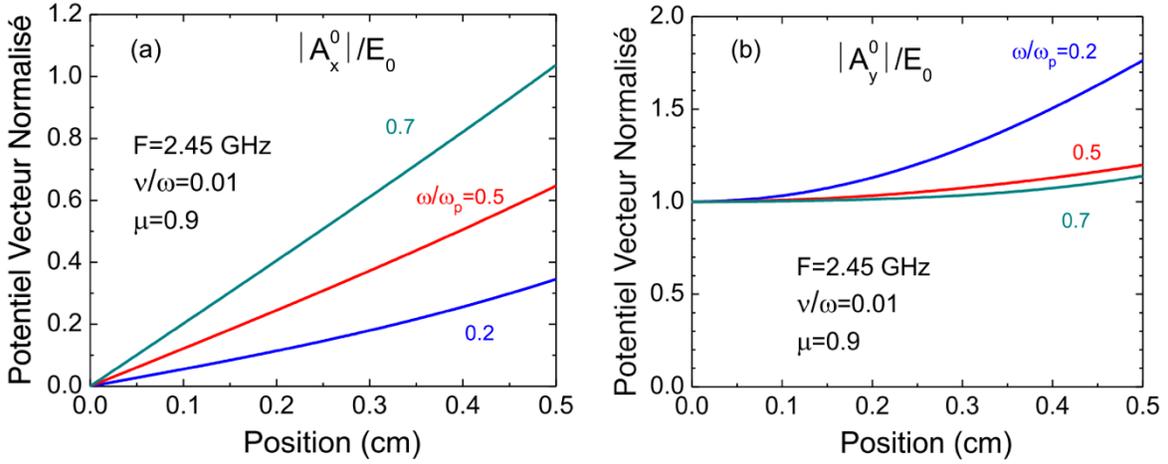


Figure 8 : Composantes transverse (a) et parallèle (b) du potentiel vecteur modifié  $\mathbf{A}^0 = -i\omega\mathbf{A}$  obtenus des équations de Maxwell (29). Les conditions sont les mêmes qu'à la Figure 6 et seulement une demi-tranche du plasma est tracée ( $0 < x < d$ ).

On observe premièrement que les composantes  $|A_x^0|$  et  $|A_y^0|$  varient très peu dans la direction  $\hat{x}$ . Notamment,  $|A_y^0|$  est pratiquement constant en condition de résonance ( $\omega/\omega_{pe} > 0.5$ ) et augmente légèrement au diélectrique pour  $\omega/\omega_{pe} = 0.2$ .  $|A_x^0|$  lui, est pratiquement linéaire pour  $\omega/\omega_{pe} > 0.5$ . Ces observations signifient que 1), on est dans la limite d'une tranche de plasma mince (section 1.1.1 équation 20), et que 2), dans ces conditions, la partie électrostatique du champ électrique n'a pas d'effet sur le potentiel vecteur. Le potentiel vecteur est ainsi découplé du potentiel scalaire et *a fortiori*, les phénomènes de résonance sont complètement inclus dans le potentiel scalaire  $\Phi$ . En d'autres mots, les équations pour le potentiel vecteur dans l'équation 29 sont pratiquement indépendantes du potentiel électrostatique  $\Phi$  et possèdent des formes très simples tout comme les équations des champs  $E_x$  et  $E_y$  quand la permittivité du plasma  $\epsilon_p$  est constante (section 1.1.1 équations 8).

Ces conclusions signifient que le potentiel vecteur agit comme un *champ de pompage* sur le potentiel électrostatique qui génère les ondes de Langmuir. Le terme « champ de pompage » (de l'anglais : *pump field*) vient des travaux dans le domaine de l'interaction laser-plasma [29], [37], [40], [41]. En bref, un laser produit, à la densité critique d'un plasma, une résonance qui

entraîne des oscillations électrostatiques. Le champ de pompage est, dans ce cas, proportionnel à la composante magnétique du laser  $\mathbf{B}$ , l'angle d'incidence et le profil de densité. Ce cadre théorique peut significativement simplifier la description cinétique des oscillations électrostatiques produites à la résonance comme on le verra à la prochaine section. Dans ce contexte, la composante  $x$  de l'équation de Faraday (2) avec le courant total  $\mathbf{J}_T$  (6) s'écrit :

$$\varepsilon_p E_x = \frac{\gamma\omega}{k_0^2} B_z . \quad (30)$$

En utilisant la définition du potentiel vecteur  $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$ , la composante  $z$  du champ magnétique s'écrit :  $B_z = \frac{\partial A_y}{\partial x} - i\gamma A_x$ . Dans la limite d'une tranche mince,  $A_y$  est approximativement constant, de sorte que  $\partial A_y / \partial x = 0$ . L'équation 30 se réécrit donc :

$$\varepsilon_p E_x \approx \frac{\gamma^2}{k_0^2} A_x^0 . \quad (31)$$

En appliquant la divergence, cette équation ressemble en tout point à l'équation de conservation (24)  $\nabla \cdot (\varepsilon_p \mathbf{E}) = 0$  ( $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$  dans la jauge de Coulomb). On peut donc écrire :

$$\varepsilon_p E_x = E_d , \quad (32)$$

où  $E_d$  est le champ de pompage :

$$E_d = \frac{\gamma^2}{k_0^2} A_x^0 . \quad (33)$$

### 1.3. Description cinétique de l'absorption d'énergie sans collision dans les plasmas d'onde de surface

En utilisant le concept de champ de pompage défini à la section précédente, on peut écrire la solution de  $\varepsilon_p E_x = E_d$  autour de la résonance en linéarisant la permittivité du plasma autour de  $x_r$ , la position de la résonance :

$$E_x \approx \frac{E_d}{(d\varepsilon_p^R/dx)_{x_r} (x - x_r) + i\nu/\omega} , \quad (34)$$

où  $\varepsilon_p^R$  est la partie réelle de la permittivité du plasma (équation 7). À  $x = x_r$ , l'amplitude du champ est évidemment maximale et varie comme :

$$|E_x|_{max} = |E_d|(\nu/\omega)^{-1}. \quad (35)$$

Cette expression est cohérente avec les valeurs de champ électrique de la Figure 7 et comme avant (équation 25), tend vers l'infini pour un plasma sans collisions.

Le modèle de Drude classique peut être amélioré en prenant en compte les effets thermiques, c.-à-d. en considérant la pression électronique dans l'équation du mouvement des électrons (équation 3). Dans ce cas, le champ électrique ne divergera plus vers l'infini pour un plasma sans collision et une « fréquence de collision effective » pour l'absorption d'énergie par les processus non collisionnels pourra être définie.

Le modèle de Drude classique de la section 1.1 est basé sur une équation du mouvement locale des électrons où les gradients de densité sont négligés (équation 3). Le modèle de Drude peut donc être considérablement amélioré en considérant le gradient de densité dans l'équation du mouvement des électrons et en assumant une compression adiabatique pour la pression électronique ( $p_e n_e^{-\gamma^*} = cst$ ) [1, p. 101]:

$$\frac{\partial \mathbf{u}_e}{\partial t} = -\frac{e\mathbf{E}}{m_e} - \nu \mathbf{u}_e - \frac{eT_e}{m_e} \gamma^* \frac{1}{n_e} \frac{dn_e}{dx} , \quad (36)$$

où  $\gamma^* = \frac{f+2}{f}$  est l'indice adiabatique,  $f$  est le nombre de degrés de liberté et  $T_e$  est la température électronique en eV. Pour le régime harmonique ( $\partial_t = i\omega$ ), l'équation du mouvement peut être linéarisée en considérant des faibles oscillations  $n_e^1$  de la densité électronique  $n_e$  autour de la valeur moyenne  $n_e^0$  tel que:  $n_e = n_e^0 + n_e^1$ . On obtient ainsi :

$$(i\omega + \nu)\mathbf{u}_e = -\frac{e\mathbf{E}}{m_e} - \frac{eT_e}{m_e}\gamma^* \left( \frac{1}{n_e^0} \frac{dn_e^1}{dx} - \frac{n_e^1}{(n_e^0)^2} \frac{dn_e^0}{dx} \right). \quad (37)$$

Les oscillations électrostatiques du champ sont reliées à l'oscillation de la densité électronique  $n_e^1$  par l'équation de Poisson :

$$\frac{\partial \mathbf{E}}{\partial x} = -\frac{e}{\varepsilon_0} n_e^1. \quad (38)$$

Le courant total  $\mathbf{J}_T = -en_e\mathbf{u}_e + i\omega\varepsilon_0\mathbf{E}$  peut ainsi être écrit en remplaçant  $n_e^1$  par l'expression ci-dessus, en définissant la longueur caractéristique du gradient de densité de particules chargées  $L = \left( \frac{\partial n_e^0}{\partial x} \frac{1}{n_e^0} \right)^{-1}$  et en considérant de faibles oscillations ( $n_e/n_e^0 \approx 1$ ) :

$$\mathbf{J}_T = i\omega\varepsilon_0 \left[ 1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega(\omega - i\nu)} + \frac{eT_e\gamma^*}{\omega(\omega - i\nu)} \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{1}{L} \frac{\partial}{\partial x} \right) \right] \mathbf{E}. \quad (39)$$

Le terme en température électronique se simplifie aux environs du point de résonance ( $\omega_{pe} \approx \omega$ ) pour un plasma très peu collisionnel ( $\nu \ll \omega$ ). En admettant un champs  $\mathbf{E}$  symétrique, on peut aussi supposer que la dérivée première est négligeable [29]. Ainsi, avec  $\gamma^* = 3$  (mouvement unidimensionnel), le courant total s'écrit :

$$\mathbf{J}_T = i\omega\varepsilon_0 \left[ 3\lambda_D^2 \frac{\partial^2}{\partial x^2} + 1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega(\omega - i\nu)} \right] \mathbf{E} = i\omega\varepsilon_0\varepsilon_p \mathbf{E}, \quad (40)$$

où  $\lambda_D = \sqrt{\varepsilon_0 k_B T_e / n_e e^2}$  est la longueur de Debye au point de résonance et  $k_B$  est la constante de Boltzmann. La permittivité est maintenant un opérateur et tend vers la permittivité de Drude classique (équation 7) lorsque la longueur de Debye est très petite, c.-à-d. en négligeant

le terme de gradient de densité dans l'équation du mouvement (lorsque  $T_e \rightarrow 0$ ). On obtient ainsi :

$$\varepsilon_p = 3\lambda_D^2 \frac{\partial^2}{\partial x^2} + 1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega(\omega - i\nu)}. \quad (41)$$

En utilisant le concept de *champ de pompage* défini à la section 1.2, le champ électrique  $\varepsilon_p E_x = E_d$  (équation 32) s'écrit alors :

$$\left( 3\lambda_D^2 \frac{\partial^2}{\partial x^2} + 1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega(\omega - i\nu)} \right) E_x = E_d. \quad (42)$$

Cette équation peut être résolue numériquement autour de la résonance ( $\omega_{pe} \approx \omega$ ) dans le régime harmonique pour  $\nu/\omega \ll 1$  en assumant un profil de densité localement linéaire de pente  $L^{-1}$  autour de la résonance telle que :  $\omega_{pe}^2 = \omega_0^2 \left(1 - \frac{x}{L}\right)$ . La solution numérique du champ maximum à la résonance est donnée par Estabrook *et al.*[37] et vaut :

$$|E_x|_{max} \approx 1.2 \left( \frac{\lambda_D}{L} \right)^{-2/3} |E_d|. \quad (43)$$

En comparant l'équation 43 avec l'équation 35, on peut alors définir une fréquence de collision effective qui limite l'amplitude du champ électrique :

$$|E_x|_{max} \approx \left( \frac{\nu_{eff}}{\omega} \right)^{-1} |E_d|, \quad \text{avec} \quad \nu_{eff} = \omega \left( \frac{\lambda_D}{L} \right)^{2/3}. \quad (44)$$

Le cadre théorique présenté ici met en évidence le rôle essentiel que jouent la longueur caractéristique du gradient de densité et la longueur de Debye au point de résonance dans le chauffage non collisionnel des électrons. Le champ maximal à la résonance obtenu dans l'équation 43 est valide lorsque l'amplitude de l'onde électrostatique est limitée par la convection thermique, c.-à-d. si le terme de gradient de densité dans l'équation du mouvement des électrons (équation 36) est suffisamment important. À l'inverse, s'il est petit ( $\lambda_D/L \ll 1$ ), le piégeage d'électrons peut limiter l'amplitude de l'onde en-dessous de la valeur fixée par la convection thermique [37], [40]. Ceci correspond à une rupture d'onde (de l'anglais : *wave-*

*breaking*). Dans ce cas, la nature cohérente des oscillations électrostatiques est perdue en turbulence, c.-à-d. en un ensemble d'ondes électrostatiques non linéaires fortement amorties en transmettant leur énergie aux électrons par amortissement Landau [36], [40], [58]. Ces auteurs montrent que la rupture d'onde se produit lorsque la vitesse d'oscillation des électrons  $v_d$  dans le champ de pompage  $E_d$  est suffisamment grande :

$$v_d = \frac{eE_d}{m_e\omega} > \left(\frac{\lambda_D}{L}\right)^{1/3} v_{th}, \quad (45)$$

où  $v_{th} = \sqrt{2k_B T_e/m_e}$  est la vitesse thermique des électrons. Dans ce cas, l'amplitude maximale du champ à la résonance est donnée par :

$$|E_x|_{max} \approx 1.4 \left(\frac{v_{br}}{\omega}\right)^{-1} |E_d|, \quad (46)$$

avec

$$v_{br} = \omega \sqrt{\frac{v_d}{\omega L}} = \sqrt{\frac{eE_d}{m_e L}}. \quad (47)$$

L'équation 47 fournit une estimation de la fréquence de collision effective lorsque les effets de rupture d'onde contrôlent l'absorption de l'énergie à la résonance.

Les résultats analytiques décrits ci-dessus, qui sont les bases de la théorie de l'absorption résonnante, fournissent des lois d'échelle utiles et montrent le rôle important de la longueur de Debye et du gradient de densité du plasma. Cette approche fournit ainsi une description cohérente des oscillations électrostatiques (ondes de Langmuir) et de l'absorption d'énergie du champ électrique dans les conditions d'un plasma produit par une onde électromagnétique de surface.

## 1.4. Génération d'électrons suprathermiques

### 1.4.1. Mesures expérimentales

L'une des manifestations les plus remarquables du chauffage non collisionnel des électrons associés à la présence de la résonance et de la conversion de l'onde électromagnétique en onde électrostatique est la production d'électrons suprathermiques. i.e. une concentration d'électrons chauds supérieurs à ceux prédits par une distribution de Maxwell-Boltzmann en absence de phénomènes de résonance. D'abord prédit théoriquement par Aliev *et al.* à partir de modèles cinétiques (résolution de l'équation de Boltzmann) dans les plasmas produits par des ondes de surface [11], les premières démonstrations expérimentales sur une gamme limitée de conditions opératoires sont venues beaucoup plus tard.

Par exemple, à l'aide d'une sonde électrostatique dans un plasma micro-ondes de grand volume en configuration planaire, Nagatsu *et al.* [54] ont observé, à l'endroit où la résonance se situe à proximité des parois diélectriques, la présence d'électrons chauds caractérisés par une bosse dans la fonction de distributions en énergie des électrons (voir Figure 9). À mesure qu'on s'éloigne des parois et donc de la condition de résonance, la valeur maximale de la bosse diminue jusqu'à disparaître à  $z = 1.4$  cm où la fonction de distribution en énergie des électrons devient Maxwellienne. Par contre, la validité de ces distributions est questionnable puisque ce genre de distribution à deux bosses donnent généralement lieu à des phénomènes d'instabilité, par exemple les « two-streams instability » [59, p. 458].

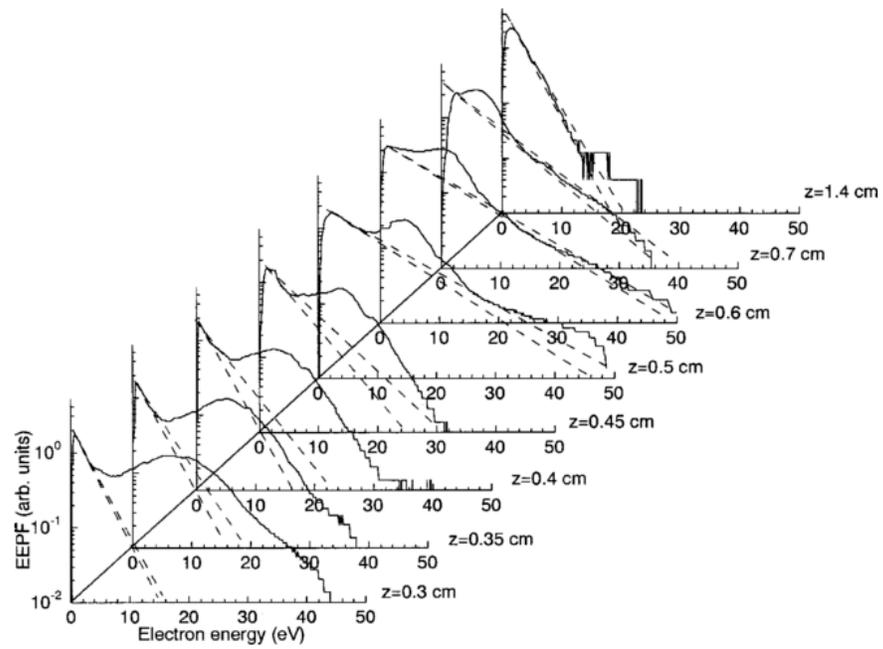


Figure 9 : Distribution axiale de la fonction de distribution en énergie des électrons mesurée par sonde électrostatique dans un réacteur planaire.

Des résultats similaires ont été observés par Letout *et al.*[18] avec une sonde électrostatique dans un plasma d'onde de surface en configuration coaxiale. Comme le montre la Figure 10, la présence d'électrons chauds est observée sur la signature du potentiel du plasma par rapport au potentiel flottant à proximité des parois diélectriques ( $V_{pf} = V_p - V_f \approx 5T_e$  [1, p. 187], où  $V_p$  et  $V_f$  sont les potentiels plasma et flottant). Ils ont aussi noté que l'intensité du pic diminuait et se rapprochait des parois lorsque la pression du gaz augmentait de 30 mTorr à 100 mTorr (du trait plein à pointillé).

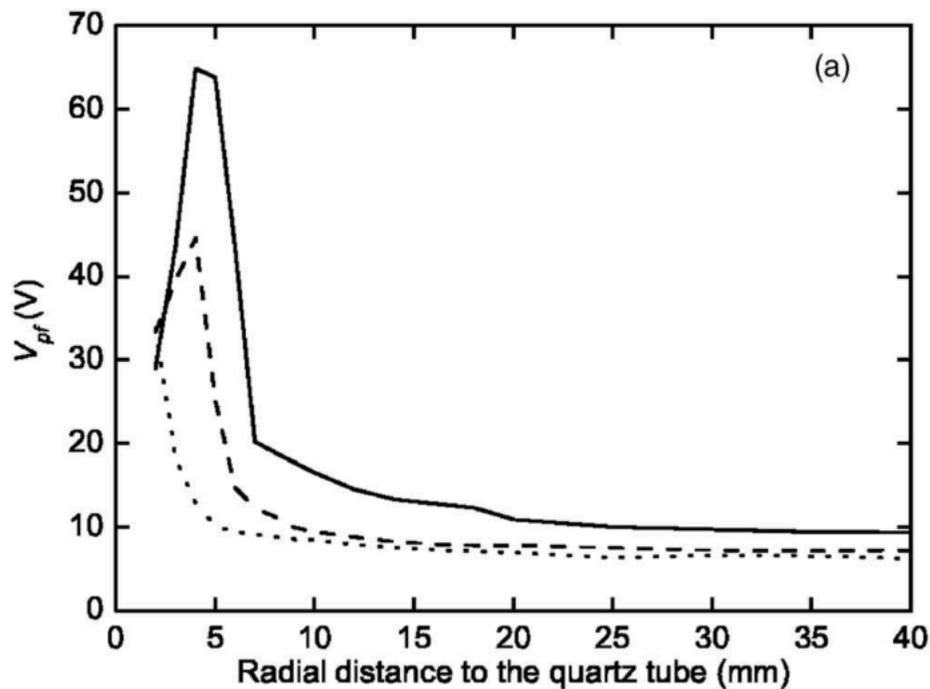


Figure 10 : Variation du potentiel plasma par rapport au potentiel flottant ( $V_{pf} = V_p - V_f$ ) en fonction de la distance radiale par rapport au tube de quartz pour des pressions de 30 mTorr (plein), 60 mTorr (tiret), et 100 mTorr (pointillé).

Finalement, une étude récente de Boudreault *et al.*[23] par spectroscopie d'émission optique dans un plasma tubulaire entretenue par une onde électromagnétique de surface rapporte aussi la présence d'électrons chauds. De plus, les auteurs rapportent que la population d'électrons chauds diminue lorsque la fréquence de l'onde augmente.

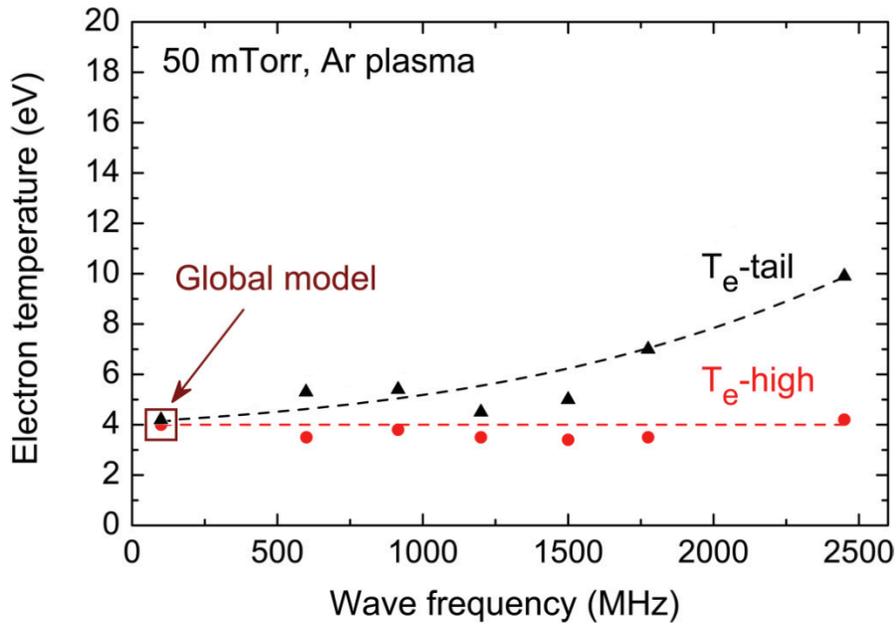


Figure 11 : Variation de la température des électrons d'énergie intermédiaires ( $T_e$ -high  $\sim 10$  eV) et de la température des électrons très chauds de la queue de la distribution en énergie des électrons ( $T_e$ -tail) en fonction de la fréquence d'excitation de l'onde électromagnétique de surface pour un plasma d'argon dans un tube.

Dans les deux cas, les résultats de Letout *et al.* à la Figure 10 et ceux de Boudreault *et al.* à la Figure 11, la disparition des phénomènes de résonance liés à la présence d'électrons chauds survient lorsque la collisionnalité du plasma, caractérisée par le rapport  $\nu/\omega$ , augmente. Pour Letout *et al.*,  $\nu/\omega$  augmente puisque la pression du gaz augmente tandis que pour Boudreault *et al.*,  $\nu/\omega$  augmente lorsque  $\omega$  diminue. Cette disparition des phénomènes de résonance est en parfait accord avec la diminution de l'intensité du champ électrique à la résonance lorsque  $\nu/\omega$  augmente comme nous l'avons exposé dans le formalisme théorique de la section précédente.

## 1.4.2. Simulations PIC-MCC

En support avec les résultats expérimentaux, nous présentons dans cette section les résultats d'une simulation PIC-MCC (de l'anglais : *particle-in-cell Monte Carlo collision*) où les principes sont ceux développés précédemment [25]. On considère aussi que le potentiel vecteur agit comme un champ de pompage avec  $A_y^0$  constant, et  $A_x^0$  linéaire (Figure 8):

$$A_y^0(x) = E_0, \quad A_x^0(x) = E_0 \left| \frac{x}{d} \right|. \quad (48)$$

Ainsi, le modèle consiste à étudier la réponse du champ électrostatique  $\Phi$  pour un potentiel vecteur donné par  $E_0$ .  $E_0$  contrôle ainsi l'énergie moyenne des électrons et doit être ajusté pour balancer les gains et les pertes des électrons à l'état stationnaire [60], [61, p. 3]. Notons que seulement les processus d'ionisation directe et de recombinaison aux parois sont considérés dans la simulation. Les composantes du champ électrique sont obtenues en développant l'équation 27 pour un potentiel vecteur oscillant à la fréquence de l'onde de surface  $\omega$  :

$$\begin{cases} E_x = A_x^0(x) \cos(\omega t) - \frac{\partial \Phi}{\partial t} = E_0 \cos(\omega t) \cdot \frac{x}{d} - \frac{\partial \Phi}{\partial t} \\ E_y = A_y^0(x) \cos(\omega t + \phi) = E_0 \cos(\omega t), \end{cases} \quad (49)$$

où la phase  $\phi$  entre  $E_x$  et  $E_y$  dépend des constantes de propagation  $\alpha$  et  $\beta$ . Puisqu'elle n'a pas beaucoup d'importance dans le transport des électrons, les auteurs assument  $\phi = 0$ .

### Simulations en régime transitoire

On considère premièrement un régime transitoire du plasma, avant l'atteinte de l'équilibre. La simulation commence avec un profil de densité électronique en cosinus (équation 22 avec  $\mu = 1$ ), le plasma fait  $2d = 2$  cm, le gaz est de l'argon à 10 mTorr, la fréquence de l'onde est de 2.45 GHz,  $E_0 = 4000$  V/m,  $\epsilon_d = 1$  et la densité moyenne d'électrons est posée à  $\langle n_e \rangle = 10^{17} \text{ m}^{-3}$  ( $n_0 = \frac{\pi}{2} \langle n_e \rangle$  est la densité au centre du plasma). Ainsi, les points de résonance pour ce profil spécifique de densité électronique se trouvent à la position  $x_r$ , où  $\omega_{pe} = \omega$  :

$$\frac{e^2}{m_e \epsilon_0} n_0 \cos\left(\frac{\pi x_r}{2d}\right) = \omega^2, \quad (50)$$

ce qui donne  $x_r \approx \pm 0.6$  mm. La résonance se trouve alors à environ 4 mm des parois.

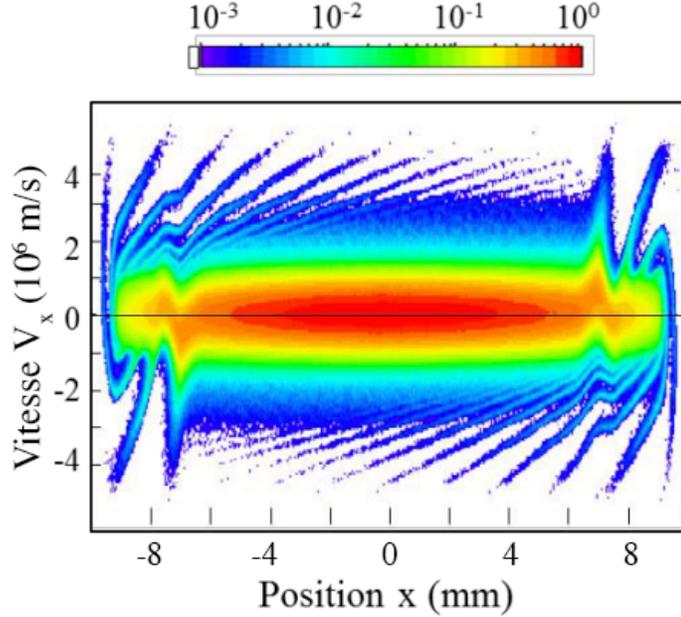


Figure 12 : Espace des phases  $(x, v_x)$  des électrons en régime transitoire à  $t = 0.3 \mu\text{s}$  (l'état stationnaire est atteint après quelques dizaines de  $\mu\text{s}$ ). Les conditions sont : Argon 10 mTorr,  $2d = 2$  cm,  $f = 2.45$  GHz,  $E_0 = 4000$  V/m,  $\epsilon_d = 1$  et la densité électronique initiale est un cosinus avec  $\langle n_e \rangle = 10^{17} \text{ m}^{-3}$ .

La Figure 12 montre l'espace des phases des électrons  $(x, v_x)$   $0.3 \mu\text{s}$  après le début de la simulation. Aux points de résonance  $x_r \approx \pm 0.6$  mm, des ondes de Langmuir sont périodiquement excitées et se propagent vers les parois puisque leur relation de dispersion interdit la propagation dans un plasma surdense ( $\omega^2 = \omega_{pe}^2 + \frac{3eT_e}{m_e} k$ , [1, p. 102]). Un électron peut ainsi gagner de l'énergie de l'onde électrostatique par amortissement Landau si sa vitesse est comparable à la vitesse de phase de l'onde et s'il se dirige vers les parois. Il peut ensuite être réfléchi par les gaines aux parois vers le plasma et distribuer son énergie aux autres espèces du plasma.

On voit clairement sur la Figure 12 qu'une grande quantité d'électrons sont chauffés par l'onde électrostatique aux points de résonance et sont réfléchis vers le plasma où ils dissipent leur énergie à mesure qu'ils progressent à travers le plasma. En d'autres mots, sur la Figure 12 à  $x \approx 6$  mm, on observe une grande population locale d'électrons très chauds se propageant vers la paroi à  $x = 10$  mm ( $v_x > 0$ ). Ces électrons sont ensuite réfléchis à la paroi et leur vitesse change ( $v_x \rightarrow -v_x$ ). Ils continuent ensuite leur trajectoire vers l'autre paroi à  $x = -10$  mm en dissipant progressivement leur énergie. Le même processus se produit symétriquement à  $x \approx -6$  mm. Aussi, il est apparent que l'amplitude de l'onde est limitée par la convection thermique et non pas par la rupture d'onde. En effet, les ondes sont périodiques et non turbulentes [62].

Dans le contexte du chauffage non collisionnel présenté dans ce travail, un électron peut gagner de l'énergie de l'onde de Langmuir par amortissement Landau si sa vitesse est légèrement inférieure à celle de l'onde de Langmuir. Inversement, s'il est légèrement plus rapide, il perdra de l'énergie au profit de l'onde. S'il a une vitesse identique, il sera piégé dans le potentiel oscillant sans gagner ou perdre de l'énergie. Un chauffage global des électrons est donc attendu s'il y a plus d'électrons froids que chauds, ce qui est le cas pour une distribution en énergie des électrons de type Maxwell-Boltzmann.

En résumé, l'onde de Langmuir est associée à la formation successive de bosses et de creux dans le potentiel scalaire qui piège certains électrons et en éjecte d'autres vers de très hautes énergies. Il en résulte un chauffage global non collisionnel des électrons caractérisé par une augmentation de la population des électrons de très haute énergie.

### **Simulation en régime stationnaire**

Dans cette section, nous présentons les résultats de simulations PIC-MCC récentes une fois l'état stationnaire atteint pour des régimes de basses et de hautes densités électroniques [25]. Dans le premier cas, les points de résonance seront, comme à la section précédente, suffisamment éloignés des parois pour que l'onde de Langmuir puisse se propager sur quelques périodes et mener à du chauffage non collisionnel. Dans l'autre cas, les points de résonance seront très proches des parois en vertu de la grande densité électronique. Dans ce

cas, le chauffage collisionnel par le champ axial, c.-à-d. le mécanisme classique de chauffage ohmique, dominera sur le chauffage non collisionnel associé à la résonance.

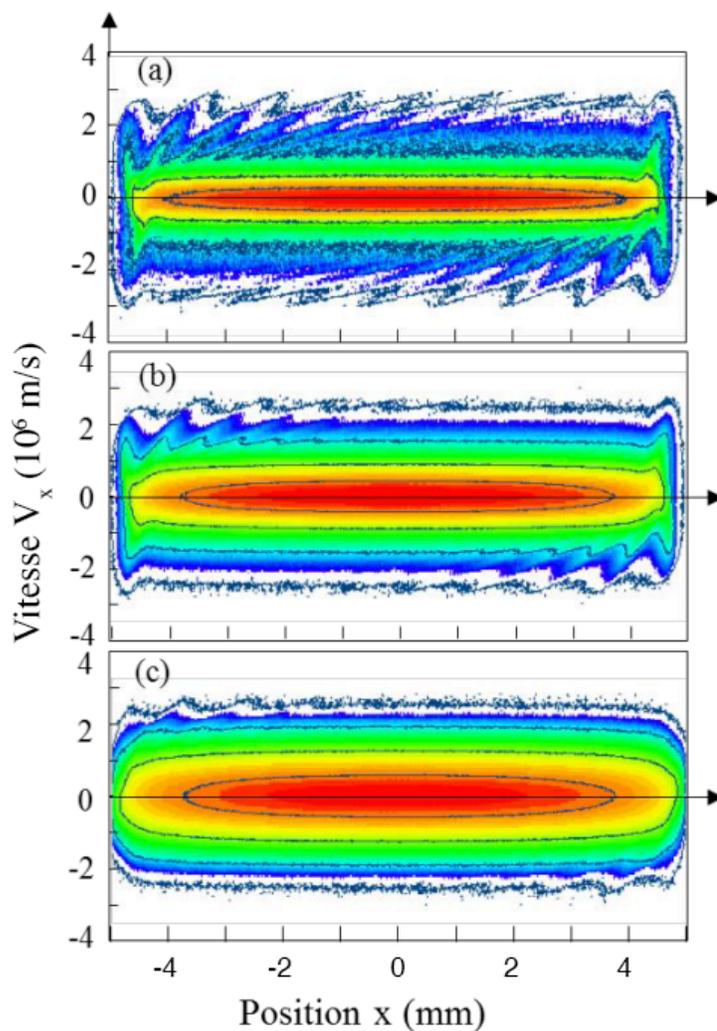


Figure 13 : Espace des phases pour une tranche de plasma de 1 cm (et uniforme dans la direction axiale) à 2,45 GHz dans l'Argon, et pour (a)  $p = 20$  mTorr,  $E_0 = 3000$  V/m (b),  $p = 100$  mTorr,  $E_0 = 3000$  V/m et (c),  $p = 100$  mTorr,  $E_0 = 6500$  V/m. La légende de couleur est la même que sur la Figure 12. La distribution est normalisée à sa valeur maximale et les 4 lignes de contour correspondent à :  $0.5$ ,  $10^{-1}$ ,  $10^{-2}$  et  $10^{-4}$  du maximum de densité.

Les simulations présentées à la Figure 13 sont comme à la sous-section précédente, mais une fois l'état stationnaire atteint (après quelques dizaines de  $\mu s$ ) et pour (a)  $p = 20$  mTorr,  $E_0 = 3000$  V/m (b),  $p = 100$  mTorr,  $E_0 = 3000$  V/m et (c),  $p = 100$  mTorr,  $E_0 = 6500$  V/m. Dans les deux premiers cas, on note les caractéristiques de l'onde de Langmuir sur l'espace des phases, comme à la Figure 12. Par contre, cet effet devient beaucoup moins visible pour le troisième cas. En effet, dans les deux premiers cas,  $E_0$ , proportionnelle à la densité électronique, vaut 3000 V/m, alors la densité électronique est faible. Dans le troisième cas,  $E_0 = 6500$  V/m donnant une grande densité électronique et des points de résonance très proches des parois. L'onde de Langmuir n'a donc pas suffisamment d'espace pour se développer et chauffer des électrons par amortissement Landau. Dans les deux autres cas, les points de résonances sont à quelques centaines de microns des parois, ce qui est suffisant pour que l'onde de Langmuir se propage et chauffe des électrons par amortissement Landau. La moyenne temporelle de la densité électronique est présentée à la Figure 14 à titre d'exemple. On voit pour le cas à 100 mTorr 6500 V/m que la densité électronique est beaucoup plus grande et que les points de résonance sont beaucoup plus proche des parois.

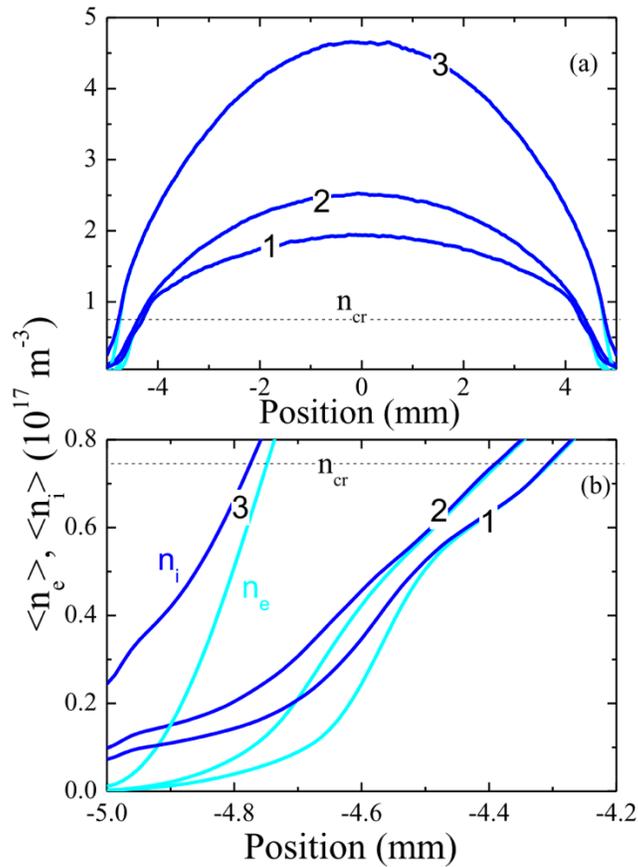


Figure 14 : Densité électronique et ionique moyenné sur le temps pour les trois cas de la Figure 13. (a) sur l'ensemble de la tranche de plasma et (b) dans la région de la gaine au diélectrique gauche. La densité critique est tracée en tiret et les cas 1, 2, 3 correspondent aux cas (a), (b), (c) de la Figure 13.

Finalement, notons que pour un plasma à géométrie cylindrique, le formalisme présenté dans ce chapitre s'applique toujours. L'onde a une composante axial  $z$  parallèle à son vecteur d'onde et une composante transversal  $r$  perpendiculaire à son vecteur d'onde.

## 1.5. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons commencé par jeter les bases théoriques de la propagation d'ondes électromagnétiques de surface dans le cas trivial d'un plasma uniforme et sans collision dans le modèle de la permittivité de Drude. Nous en avons déduit que l'onde de surface pouvait seulement se propager pour un plasma surdense, c.-à-d. pour une densité électronique moyenne plus grande que la densité critique. Nous avons ensuite raffiné le problème en abordant le cas plus réaliste d'un profil de densité électronique en cosinus. Cette dernière ne permettait plus de solution analytique aux équations de Maxwell et une solution numérique a été présentée. Dans ce cas, une résonance se développait dans la composante transverse du champ électrique à la densité critique et devenait singulière lorsque la fréquence de collision tendait vers zéro. Nous avons montré que cette résonance donnait lieu à l'excitation d'oscillations électrostatiques et que le modèle de Drude ne pouvait que décrire ces oscillations dans la limite où elles étaient de très faibles amplitudes. Inspiré de travaux récents [25], nous avons ensuite réécrit les équations de Maxwell dans un formalisme en potentiels vecteur et scalaire. Cette dernière approche a permis de démontrer que le potentiel vecteur est pratiquement indépendant du potentiel électrostatique, responsable de la résonance et du développement d'onde électrostatique. On a ainsi posé le potentiel vecteur comme un champ de pompage qui génère les ondes électrostatiques. Le modèle de Drude a ensuite été amélioré en y incluant les effets thermiques. En utilisant la nouvelle permittivité de Drude et la définition du champ de pompage, une fréquence de collision effective caractérisant l'absorption d'énergie non collisionnelle par l'onde électrostatique a été définie. Des résultats expérimentaux ainsi que les résultats récents de simulations PIC-MCC ont ensuite été discutés. Ceux-ci ont permis de mettre en évidence le développement d'ondes de Langmuir qui se propagent en partant des points de résonance vers les parois en chauffant des électrons vers de très hautes énergies par amortissement Landau. Ce chauffage non collisionnel s'est montré plus efficace lorsque la densité électronique du plasma est faible et que les points de résonance sont suffisamment éloignés des parois pour permettre la propagation des ondes de Langmuir. Dans les prochains chapitres nous tenterons de valider ces prédictions à partir de mesures expérimentales de spectroscopie dans des plasmas tubulaires produits par des ondes de surface.

## Chapitre 2

### Montage expérimental et méthode de caractérisation

Au fil des années, plusieurs auteurs se sont intéressés aux phénomènes de résonance dans les plasmas micro-onde. Par exemple, au moyen de sondes électrostatiques, Sugai *et al* [20], [52], [54], [63] ont noté la présence d'électrons chauds dans la fonction de distributions en énergie des électrons dans des plasmas micro-ondes sujets à des phénomènes de résonance. Par contre, la sonde est une méthode intrusive qui perturbe la nature auto-cohérente de l'interaction entre les électrons du plasma et l'onde de surface (le champ électrique dépend de la densité électronique et vice-versa). De plus, la mesure des électrons de très haute énergie est difficile dû à leur faible densité et la présence d'un grand courant ionique qui doit être soustrait du courant de sonde mesuré. Boudreault *et al.* [23] ont aussi noté la présence d'électrons chauds dans ce type de plasmas par spectroscopie optique d'émission de gaz rares (TRG-OES). Cette méthode possède l'avantage d'être non intrusive et d'être particulièrement sensible aux électrons de très haute énergie.

Dans ce chapitre, nous décrivons le montage expérimental que nous avons utilisé pour la production d'un plasma d'onde de surface. Nous présentons ensuite la méthode de caractérisation utilisées, en l'occurrence la TRG-OES avec les détails derrière le modèle collisionnel-radiatif nécessaire à l'interprétation des spectres mesurés ainsi que les améliorations ajoutées.

#### 2.1. Montage expérimental et méthodes de mesure

La Figure 15 montre un schéma de l'appareil utilisé pour la majorité des mesures présentées dans ce mémoire. Les expériences ont été réalisées dans un tube en silice fondue de 26 mm de diamètre intérieur, évacué par une pompe rotative et une pompe turbomoléculaire conduisant à un vide résiduel d'environ  $5 \times 10^{-6}$  Torr. L'onde de surface est excitée à l'aide d'un surfatron

[64] avec 40 à 50 W de puissance micro-onde à 600 MHz (afin de maintenir une longueur de plasma constante sur une gamme étendue de conditions opératoires). Le produit de la fréquence du générateur  $f$  fois le rayon intérieur du tube  $R$  était toujours inférieur à  $2 \text{ GHz} \cdot \text{cm}$  afin d'assurer que seul le mode azimutalement symétrique de l'onde pouvait être excité le long de l'axe du tube [65].

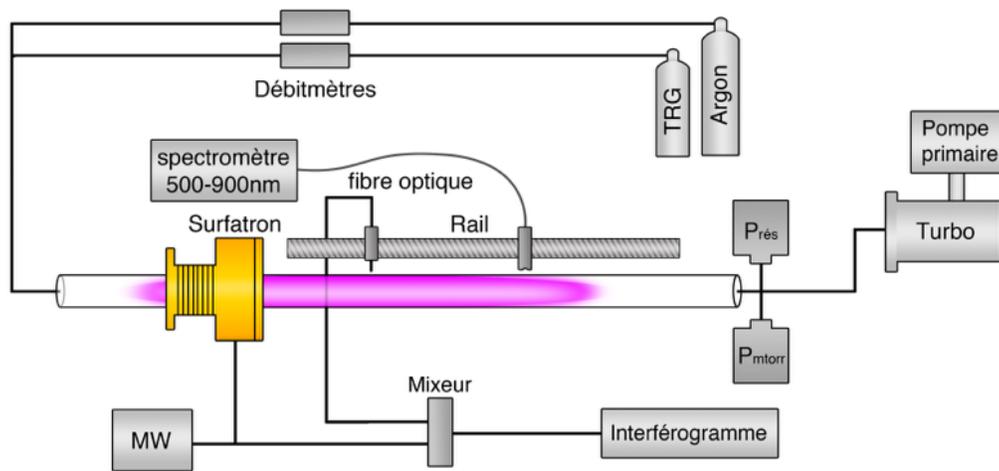


Figure 15 : Schéma du montage expérimental comprenant le réacteur (tube et surfatron) et les diagnostics (TRG-OES et interférométrie micro-onde.)

Pour les mesures de TRG-OES, un débit de 1 à 10 sccm (*standard cubic centimeter per minute*) d'argon était mélangé à 10% de gaz rares provenant d'une bouteille de gaz pré mélangé (40% Ne, 20% Ar, 20% Kr et 20% Xe). L'émission optique a été recueillie à l'aide d'une fibre optique montée sur un rail motorisé équipé d'un collimateur dirigé perpendiculairement à l'axe du tube de décharge et analysé à l'aide d'un spectromètre optique calibré en intensité (Avantes 500 - 900 nm). L'interférométrie micro-onde a aussi été utilisée pour estimer la valeur de la densité électronique moyenne sur une tranche le long de la colonne de plasma [66]. Aussi, la distribution totale de l'intensité lumineuse à travers la section transversale du plasma a été mesurée avec un spectromètre optique de 300 - 800 nm (Avantes) avec une résolution spatiale d'environ 1 mm. Ces données résolues latéralement ont

été converties en intensités d'émission résolues radialement par inversion d'Abel [67]. La Figure 16 présente un exemple de spectre mesuré. Tel qu'attendu, les raies obtenues correspondent aux transitions  $2p \rightarrow 1s$  (notation de Paschen) du Ne, de l'Ar, du Kr et du Xe (voir Figure 17). Pour interpréter ces spectres, il est nécessaire de recourir à un modèle collisionnel-radiatif décrit à la section suivante.

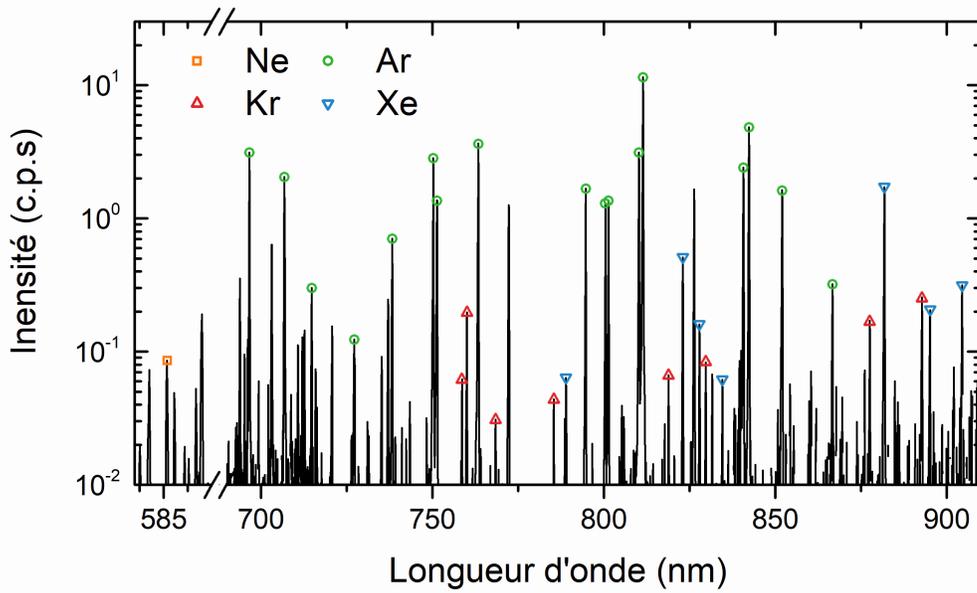


Figure 16 : Spectre d'émission optique de  $\sim 585$  nm à  $\sim 910$  nm pour un plasma RCE d'argon à 2450 MHz, 1.6 mTorr et avec 10% de TRG. Les symboles représentent les raies observables des transitions  $2p \rightarrow 1s$  : orange, vert, rouge et cyan pour Ne, Ar, Kr et Xe.

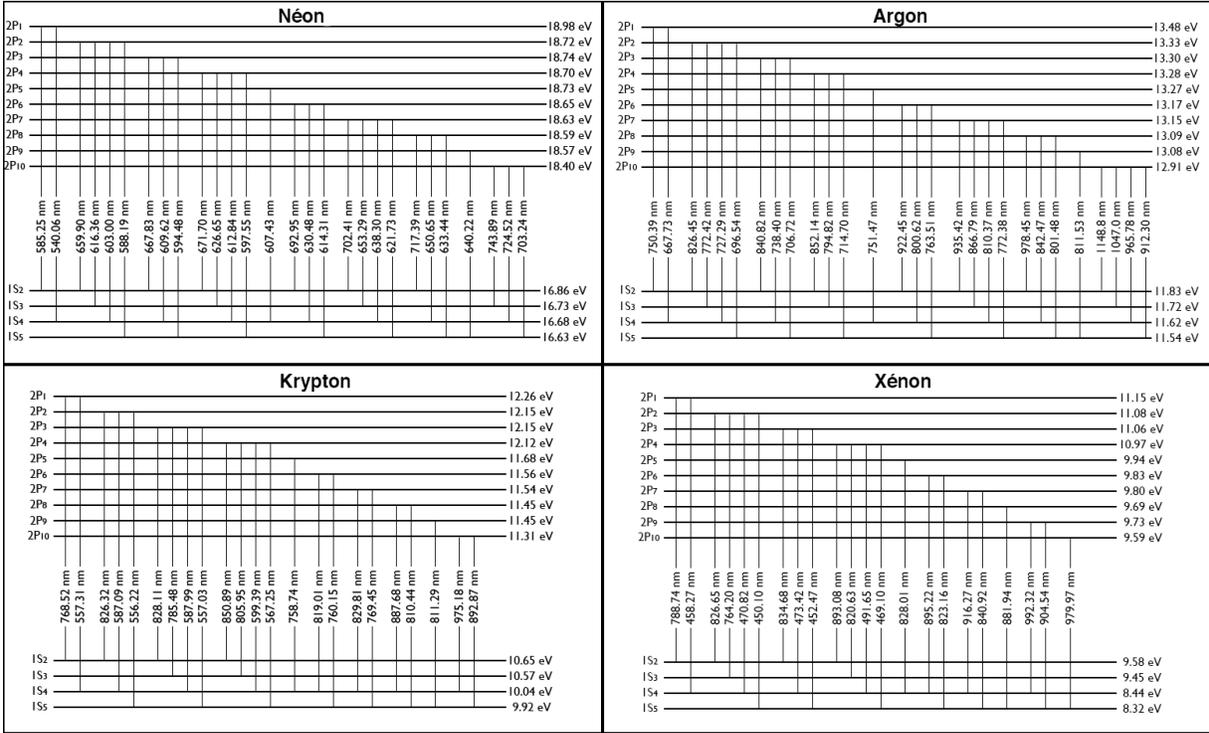


Figure 17 : Schémas des niveaux d'énergie  $2p_x$  et  $1s_i$  du Ne, Ar, Kr et Xe avec les longueurs d'onde des photons émis pour chaque transition  $2p \rightarrow 1s$ .

## 2.2. Modèle collisionnel-radiatif

### 2.2.1. Généralités

De façon générale, l'intensité d'une raie d'émission dans un plasma est donnée par la population du niveau émetteur  $n_i$  multiplié par le coefficient d'Einstein pour l'émission spontanée  $A_{ij}$ . Puisque les mesures sont effectuées à l'aide d'un spectromètre, à cela s'ajoute la fonction de réponse du spectromètre  $F_{ij}$ . Finalement, des photons peuvent aussi être réabsorbés par le plasma dans la ligne de visé de la fibre optique, de sorte que le tout est généralement multiplié par un facteur d'échappement  $\theta_{ij}$  [68]

$$I_{i \rightarrow j} = F_{ij} A_{ij} n_i \theta_{ij}. \quad (51)$$

Dans la plupart des cas, ce n'est pas la densité du niveau émetteur qui nous intéresse, mais la cinétique des mécanismes de création et de perte qui ont mené à cette densité. Pour un niveau peuplé exclusivement par l'excitation électronique sur le niveau fondamental et se désexcitant radiativement (par l'émission d'un photon d'énergie  $h\nu$ ), c.-à-d.



la densité du niveau excité  $n_i$  à l'état stationnaire est donné par :

$$n_i = \frac{k_{0,i} n_e n_0}{\sum_j A_{ij}}, \quad (53)$$

où  $n_e$  et  $n_0$  sont respectivement la densité électronique et la densité des atomes du gaz, la somme sur  $A_{ij}$  représente la somme de toutes les voix de désexcitations radiatives possibles du niveau  $i$  et  $k_{0,i}$  est le taux de réaction pour l'excitation. Pour une distribution en énergie des électrons de type Maxwell-Boltzmann, l'expression pour  $k_{0,i}$  peut s'écrire:

$$k_{0,i}(T_e) = \frac{\int \sigma_{0,i} E^{3/2} e^{-E/T_e} dE}{\int E^{1/2} e^{-E/T_e} dE}, \quad (54)$$

où  $\sigma_{0,i}$  (en  $m^{-3}$ ) est la section efficace en fonction de l'énergie des électrons  $E$  pour la réaction d'excitation. Pour une transition donnée, le taux de réaction pour l'excitation dépend donc seulement de la température électronique. Dans le cas d'un milieu optiquement mince ( $\theta_{ij} = 1$ ) et pour un niveau excité provenant uniquement de l'excitation électronique à partir du fondamental, l'intensité d'une raie s'écrit alors :

$$I_{i \rightarrow j} = F_{ij} B_{ij} n_e n_0 k_{0,i}(T_e), \quad (55)$$

où  $B_{i,j} = A_{ij} / \sum_k A_{ik}$  est le facteur d'embranchement, c.-à-d. la probabilité que le niveau  $i$  se désexcite vers le niveau  $j$  par rapport à l'ensemble des transitions possibles.

Une approche couramment utilisée en spectroscopie optique d'émission est l'actinométrie, c.-à-d. l'analyse de rapports de raies. Par exemple, pour deux raies provenant des niveaux excités

$i$  et  $k$  des gaz 1 et 2 et pour lesquels l'excitation s'effectue par impact électronique sur le niveau fondamental et la désexcitation radiative s'effectue vers les niveaux  $j$  et  $l$ , on a :

$$\frac{I_{i \rightarrow j}}{I_{k \rightarrow l}} = \frac{F_{ij} B_{ij}}{F_{kl} B_{kl}} \times \frac{k_{0,i}(T_e)}{k_{0,k}(T_e)} \times \frac{n_1}{n_2}. \quad (56)$$

Puisque les valeurs de  $F_{ij}$ ,  $A_{ij}$ ,  $k_{0,i}$  et  $k_{0,k}$  sont généralement connues, on peut déterminer à partir d'une simple mesure de rapport de raies la densité relative des deux gaz. En effet, lorsque les énergies-seuil pour les processus d'excitation sont très proches, le rapport des taux de réaction est généralement constant sur une large bande de température électronique (voir Ar 750.4 nm / 751.5 nm à la Figure 18). Ainsi, en ajoutant une quantité connue de Xe dans un plasma de Cl<sub>2</sub>, le rapport de la bande moléculaire du Cl<sub>2</sub> à 306 nm avec la raie du Xe à 828.0 nm permet de déterminer le degré de fragmentation du Cl<sub>2</sub> [69].

L'analyse détaillée de rapports de raies permet aussi de déterminer  $T_e$  lorsque la densité des gaz est connue (par exemple : deux raies d'Ar). Dans ce cas, il est important de recourir à des raies et donc des taux de réaction avec des énergies seuils suffisamment distinctes pour obtenir une forte dépendance sur  $T_e$ . La Figure 18 montre la dépendance sur  $T_e$  de différents rapports de taux de réaction. Pour des raies provenant de niveaux très proches en énergie (13.5 eV et 13.3 eV pour Ar 750.4 nm et Ar 741.5 nm), le rapport est pratiquement constant. À l'inverse, pour des raies provenant de niveaux très éloignés (19 eV et 10 eV pour Ne 585.2 nm et Xe 828.0 nm), le rapport des taux de réaction dépend fortement de  $T_e$ . Ainsi, en présence de mélanges de gaz connus, la mesure du rapport d'intensité de raies permet *a priori* de déterminer avec grande précision la température électronique du plasma.

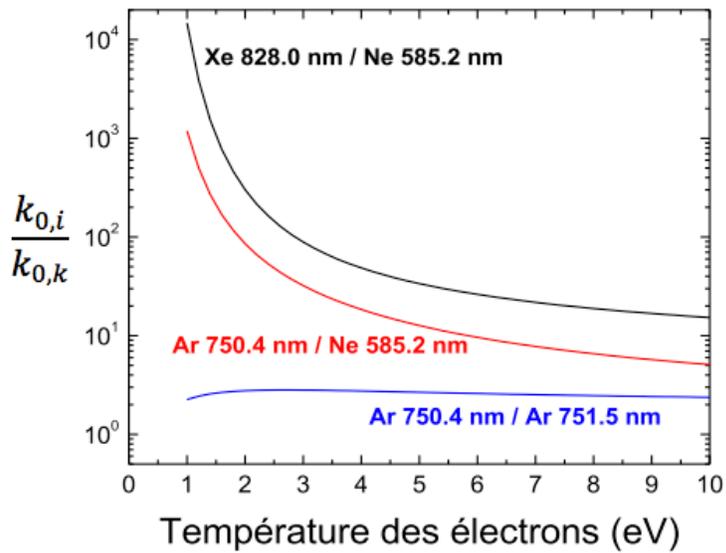


Figure 18 : Rapport des taux de réaction  $k_{0,i}$  en fonction de la température électronique pour différentes raies du néon, argon et xénon.

Cependant, il est pertinent de mentionner que les mesures de sections efficaces présentées dans la littérature peuvent grandement varier d'une publication à l'autre. De plus, dans bien des cas, les incertitudes varient de 15 à 45 % selon la réaction [24]. En ajoutant les erreurs associées à la mesure des intensités, il devient donc difficile de déterminer avec précision la valeur de  $T_e$  avec uniquement deux raies.

Pour contourner ce type de problème, l'approche proposée par Donnelly [24] consiste à introduire une trace de gaz rares (Ne, Ar, Kr, Xe) dans le plasma pour avoir accès à une grande variété de raies d'émission des niveaux  $2p_x$  (notation de Paschen). De plus, comme les énergies seuils sont très différentes d'un gaz à l'autre (de 9.6 eV pour le Xe  $2p_{10}$  à 19 eV pour le Ne  $2p_1$ ), il devient possible de considérablement diminuer l'erreur en moyennant sur toutes ces raies. Les gaz rares n'étant pas réactifs et insérés en quantité de traces dans le plasma, ils ne perturbent pas les propriétés des plasmas à basse pression [70].

En plus des processus d'excitation directe sur le niveau fondamental, certains niveaux  $2p_x$  des gaz rares peuvent également être créés par impact électronique sur des niveaux de longues durées de vie comme les métastables. Dans ce cas, les énergies seuil pour l'excitation deviennent beaucoup plus basses, soit de l'ordre de 1.4 - 1.8 eV ( $Xe\ 1s_5 \rightarrow 2p_6$  sur la Figure 19). Ainsi, en utilisant des raies provenant de l'excitation par étape et d'autres raies provenant de l'excitation direct sur le niveau fondamental, il est possible de sonder la majorité des électrons et donc d'obtenir une température caractéristique de la majorité de la fonction de distribution en énergie des électrons ( $T_e^{All}$  sur la Figure 19). À l'inverse, en utilisant seulement des raies provenant majoritairement de l'excitation directe sur le niveau fondamental de l'argon et du néon, il est possible de caractériser principalement les électrons de très haute énergie de la queue de la distribution ( $T_e^{Tail}$  sur la Figure 19)

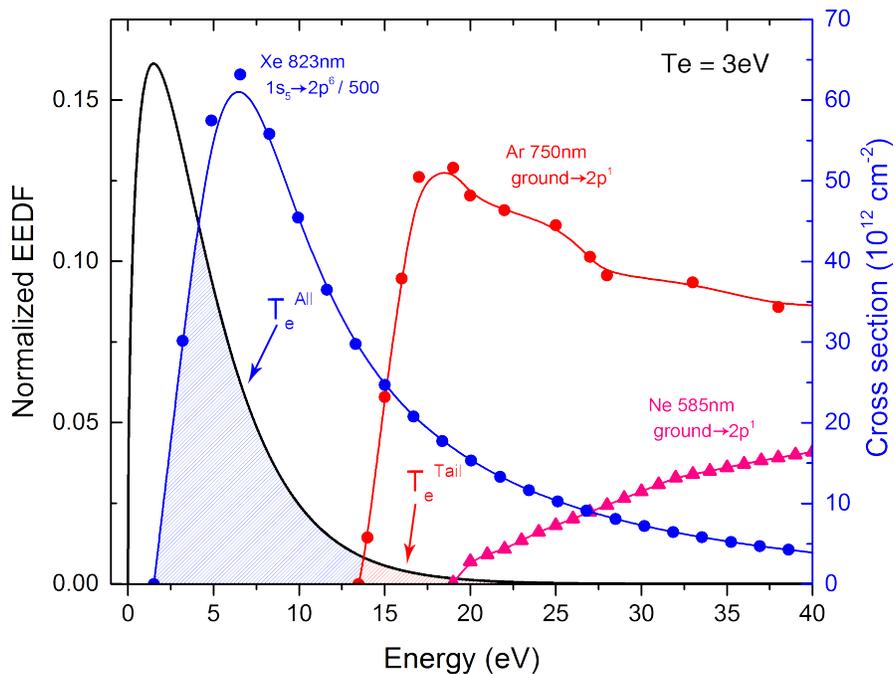


Figure 19 : Sections efficaces pour l'excitation à partir du  $1s_5$  pour la 823 nm du Xénon et à partir du fondamental pour la 750 nm de l'Argon et la 585 nm du Néon pour une fonction de distribution en énergie des électrons Maxwellienne des électrons à 3 eV. Les régions

hachurées correspondent à la portion des électrons ayant une énergie suffisante pour peupler le niveau excité de chaque raie.

Cette méthode, dite TRG-OES, s'est démontrée très efficace pour déterminer la température des électrons dans les plasmas moléculaires comme le  $\text{Cl}_2$  [71], [72] et l' $\text{O}_2$  [73], [74]. Comme elle est particulièrement sensible aux électrons de très haute énergie (rappelons que seuls les électrons avec au moins l'énergie seuil peuvent contribuer à l'excitation et donc à l'émission), elle s'avère particulièrement séduisante pour l'étude des interactions ondes-particules et la production d'électrons chauds dans les plasmas micro-ondes. Cependant, le modèle actuel développé par Donnelly est incomplet et pourrait être inappropriée pour l'analyse de certains types de plasma. En particulier, il néglige l'auto absorption des raies ( $\theta_{ij}$  de l'équation 51) et la contribution des niveaux résonnants  $1s_2$  et  $1s_4$  dans la cinétique de création des niveaux  $2p_x$ . Pour élargir la gamme d'applicabilité de la technique, il est évidemment nécessaire de considérer ces mécanismes; plus de détails sont fournis à la section suivante.

### 2.2.2. Modèle collisionnel-radiatif appliqué à la TRG-OES

Le modèle collisionnel-radiatif utilisé dans l'analyse des spectres d'émission des gaz rares repose sur l'équation de continuité de chacun des niveaux émetteurs:

$$\frac{\partial n}{\partial t} - D\nabla^2 n = G - P, \quad (57)$$

où  $D$  est le coefficient de diffusion et  $G$  et  $P$  sont respectivement les gains et les pertes de l'espèce  $n$  par collisions et radiations dans le plasma. À l'état stationnaire, en négligeant les processus de diffusion, l'équation se réécrit :

$$G = P, \quad (58)$$

où les gains et les pertes sont des processus collisionnels et radiatifs. Par exemple, la première portion de l'équation 52 constitue un gain pour  $n_i$ , mais une perte pour  $n_0$ . Le but ici est de

calculer la population des niveaux  $2p_x$  de tous les gaz rares pour ainsi calculer l'intensité relative théorique des raies et les comparer avec les mesures expérimentales pour déterminer  $T_e$ . Chaque gaz possède 10 niveaux  $2p_x$  et 4 niveaux  $1s_i$  qui devront être résolus. Les énergies seuil de ces niveaux sont représentées à la Figure 20. Notons que les interactions entre les niveaux excités des différents gaz rares peuvent être négligées dues à leur faibles densités (ex :  $Ar(1s_i) + Ar(2p_x)$  ou  $Kr(2p_x) + Xe(2p_x)$ ). Ainsi, chaque gaz peut être traité indépendamment dans la modélisation. Aussi, les pressions partielles de chaque gaz ne peuvent pas nécessairement être déterminées par les flux injectés. Due aux différentes vitesses de pompage des différentes espèces, une correction décrite par Malyshev *et al.* [71] prenant en compte la nature des gaz, les flux, la pression, les dimensions du réacteur et la vitesse de pompage est apportée aux pressions partielles des gaz rares.

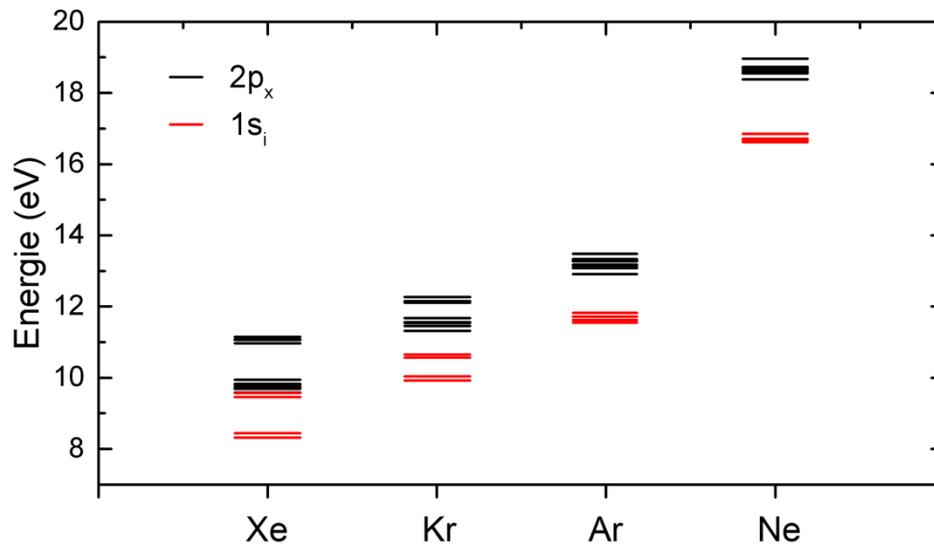


Figure 20 : Schéma de la distribution des niveaux selon l'énergie.

### **Excitation sur le niveau fondamental**

Comme mentionné auparavant, un niveau  $2p_x$  d'un gaz rare  $A$  peut être peuplé par impact électronique sur le niveau fondamental ((1) sur la Figure 21).



où  $k_{0,p_x}^d$  est le taux de réaction obtenu de l'équation 54 avec la section efficace  $\sigma_{0,p_x}^d$  d'excitation directe ( $d$ ) du niveau fondamental ( $0$ ) vers le niveau  $2p_x$  ( $p_x$ ). Par contre, l'excitation du niveau fondamental par un électron plus énergétique que l'énergie seuil d'excitation vers le  $2p_x$  peut aussi mener à un gain du  $2p_x$  par cascade radiative, c.-à-d.



où  $A^*$  représente la somme de tous les niveaux supérieurs au  $2p_x$  qui peuvent se désexciter radiativement par une ou plusieurs étapes vers le  $2p_x$ . Cette dernière contribution est représentée sur la Figure 21 par les flèches (2).

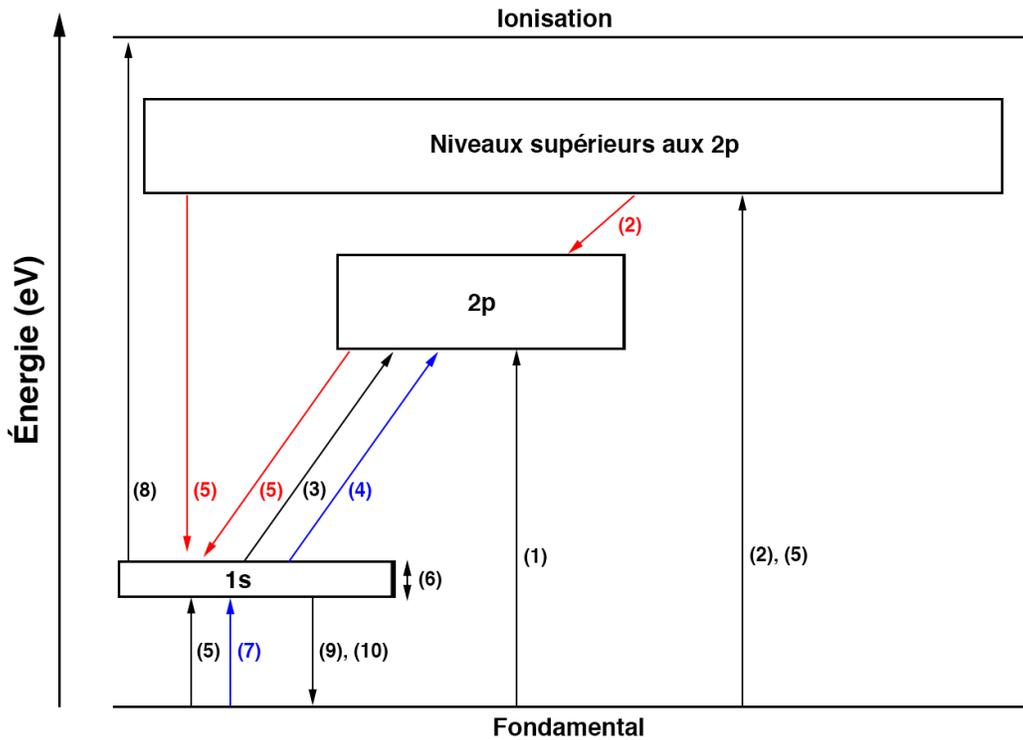


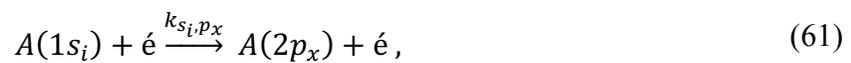
Figure 21 : Diagramme des gains des niveaux  $2p_x$  et  $1s_i$  traité en bloc pour un gaz rare. Les excitations électroniques sont représentées par des flèches noir (1, 2, 3, 5, 6, 8), l'auto

absorption en bleu (4, 7) et les désexcitations radiatives en rouge (2, 5). (1) Excitation électronique directe sur le fondamental vers les  $2p_x$ . (2) Cascade radiative vers les  $2p_x$  à partir du fondamental. (3) Excitation électronique directe des  $1s_i$  vers les  $2p_x$ . (4) Auto absorption des photons des  $2p_x$  par les  $1s_i$ . (5) Excitation électronique sur le fondamental et cascade radiative vers les  $1s_i$ . (6) Transfert d'excitation. (7) Auto absorption des photons des résonnants par le fondamental. (8) Ionisation. (9) Collision superélastique. (10) Quenching. Le quenching n'implique pas de collision avec un électron, mais est schématisé par une flèche noire pour simplifier.

On peut additionner les deux mécanismes (59 et 60) en une seule réaction en utilisant des mesures de sections efficaces apparentes  $\sigma_{0,p_x}$  [24]. Pour toutes les réactions menant à un niveau supérieur, nous utilisons ainsi les sections efficaces apparentes mesurées par Lin *et al.* [75]–[78]. De plus, lorsque les pressions partielles deviennent importantes ( $>10$  mTorr dans nos conditions), une correction à ces sections efficaces est effectuée pour prendre en compte la présence d'un niveau résonnant supérieur aux  $2p_x$  qui peut peupler les  $2p_x$  par cascade radiative [79]. Cette correction est seulement appliquée à l'argon pour un plasma majoritairement composé d'argon.

### **Excitation par étape**

En plus de l'excitation directe sur le fondamental, les niveaux  $2p_x$  peuvent aussi être peuplés par étape sur les niveaux métastables  $1s_3$ ,  $1s_5$  et sur les niveaux résonnants  $1s_2, 1s_4$ . L'excitation des niveaux  $1s_i$  vers la plupart des  $2p_x$  est permise ( $3p^5 4s \rightarrow 3p^5 4p$ ) alors que les transitions des  $1s_i$  vers les niveaux supérieurs qui cascaded vers les  $2p_x$  ne sont pas permises [80]. Ainsi, la section efficace pour l'excitation directe est appropriée pour représenter l'excitation des niveaux  $1s_i$  vers les  $2p_x$  ((3) sur la Figure 21)



où  $i = 1$  à 4 et les taux de réaction sont calculés à partir de l'équation 54 avec les sections efficaces décrites par Donnelly [24] pour les métastables et par Khakoo *et al.*[81] pour les résonnants. Il est pertinent de mentionner que les niveaux métastables  $1s_3$  et  $1s_5$  possèdent généralement des densités importantes puisqu'ils ont des temps de vie d'au moins quelques secondes dans les plasmas à pression réduite [82]. Les deux autres niveaux,  $1s_2$  et  $1s_4$ , sont dits résonnants puisqu'ils se désexcitent radiativement vers le fondamental en quelques  $ns$ . Ces niveaux sont généralement négligés pour de faibles pressions partielles. Par contre, pour un plasma majoritairement composé d'argon, la pression partielle d'argon peut être suffisante pour atteindre des niveaux d'auto absorption élevés. Il en résulte alors une densité non négligeable de niveaux résonnants qui peuvent peupler les  $2p_x$  par excitation par étape mais aussi les métastables par transfert d'excitation.

Pour illustrer l'importance des processus par étapes dans la cinétique de création des niveaux  $2p_x$ , la Figure 22 montre le pourcentage de l'excitation par impact électronique sur le fondamental en fonction de la densité d'électrons. On voit que lorsque  $n_e$  est faible, tous les niveaux proviennent exclusivement de l'excitation à partir du fondamental. L'excitation par étape devient uniquement dominante pour certains niveaux lorsque  $n_e$  devient important. Par exemple, plusieurs niveaux du xénon sont peuplés à plus de 70% par l'excitation par étape lorsque  $n_e > 10^{13}m^{-3}$ . Dans nos conditions, la densité électronique est d'environ  $3 \times 10^{16}m^{-3}$ . Dans ce cas, certains niveaux sont majoritairement peuplés par le fondamental ( $2p_1$  et  $2p_5$  pour tous les gaz) et d'autres sont majoritairement peuplés par l'excitation par étape (Ar( $2p_{6,9,10}$ ), Kr( $2p_{4,6,9,10}$ ), et Xe( $2p_{6,8,9,10}$ )).

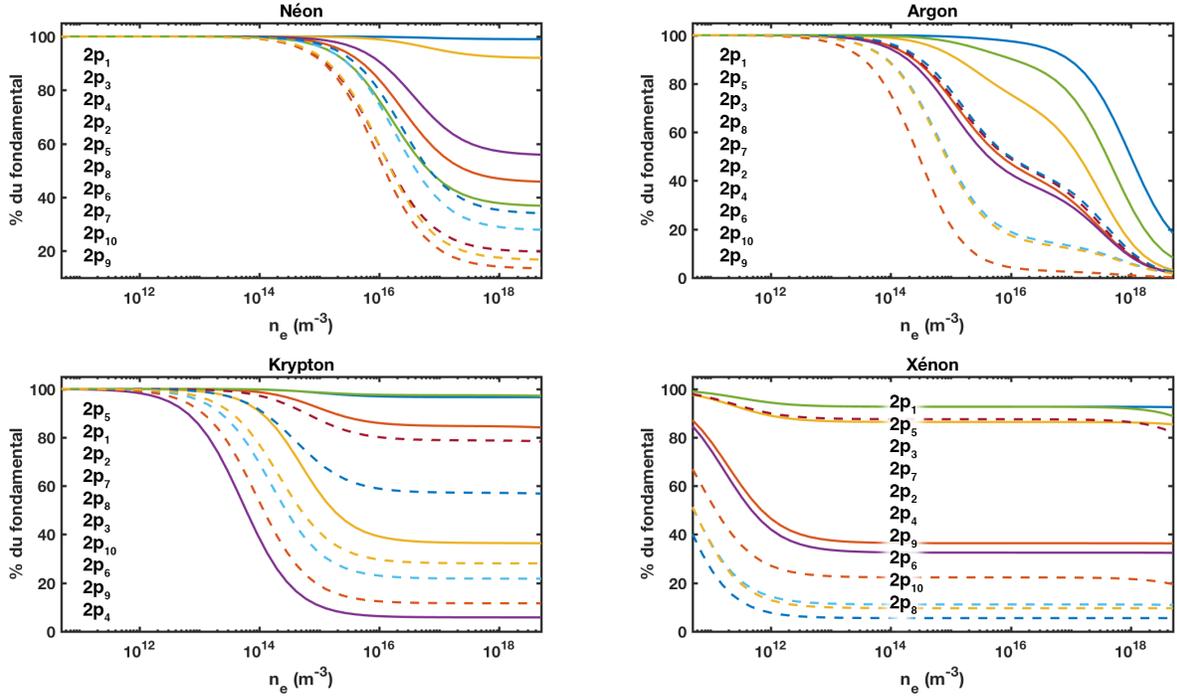


Figure 22 : Pourcentage des gains sur les niveaux  $2p_x$  provenant de l'excitation par impact électronique sur le fondamental. Résultats du modèle pour tous les niveaux  $2p_x$  du Ne, Ar, Kr, Xe pour un plasma d'Argon 5 mTorr avec 10% de TRG et  $T_e = 4.6$  eV.

### Auto absorption

Un niveau  $2p_x$  peut aussi être peuplé par l'absorption d'un photon émis du  $2p_x$  par un niveau  $1s_i$  ((4) sur la Figure 21)

$$A(1s_i) + h\nu \xrightarrow{1-\theta_{ix}} A(2p_x), \quad (62)$$

où  $\theta_{xi}$  est le facteur d'échappement, c.-à-d. le pourcentage des photons provenant de la transition  $2p_x \rightarrow 1s_i$  qui sortent du plasma. Dans ce travail, le facteur d'échappement est calculé à partir de la formule empirique de Mewe [68]

$$\theta_{ij} = \frac{2 - \exp(10^{-3}k_0l)}{1 + k_0l}, \quad (63)$$

où  $l$  est la demi-longueur d'absorption (le rayon du tube pour un plasma contenu dans un tube) et  $k_0$  est le coefficient d'absorption au centre de la raie. Dans le cas d'un plasma de basse pression, l'élargissement des raies est essentiellement dû à l'effet Doppler et  $k_0$  est donné par [83] :

$$k_0 = \frac{\sqrt{\log 2}}{4\pi^{3/2}c} \frac{g_i}{g_j} \frac{n_j}{\Delta\lambda_D} \lambda^4 A_{ij}, \quad (64)$$

où  $n_j$  est la densité du niveau absorbeur,  $g_i$  et  $g_j$  sont les dégénérescences du niveau émetteur et absorbeur ( $2J + 1$ , avec  $J$  le moment angulaire total),  $c$  est la vitesse de la lumière,  $A_{ij}$  est le coefficient d'Einstein pour l'émission spontanée pour la transition  $i \rightarrow j$  émettant un photon de longueur d'onde  $\lambda$  et, l'élargissement Doppler  $\Delta\lambda_D$ , est donné par :

$$\Delta\lambda_D = 2 \sqrt{\frac{2k_B T_g \ln 2}{Mc^2} \frac{c}{\lambda}}, \quad (65)$$

où  $T_g$  est la température du gaz (en kelvin),  $k_B$  et  $c$  sont respectivement la constante de Boltzmann et la vitesse de la lumière,  $M$  est la masse du gaz (en u.m.a) et  $\lambda$  est la longueur d'onde au centre de la raie. Pour une raie ayant comme niveau absorbeur le métastable le plus peuplé ( $1s_5$ ), l'auto absorption peut devenir très importante. À titre d'exemple, la Figure 23 montre le facteur d'échappement pour la 811.53 nm ( $2p_9 \rightarrow 1s_5$ ) et la 750.39 nm ( $2p_1 \rightarrow 1s_2$ ) de l'argon. Dans un plasma d'argon 5 mTorr avec 10% de TRG,  $l = 0.013$  m et  $T_e = 4.6$  eV, la densité de l' $Ar(1s_5)$  obtenu du modèle (voir les détails plus bas) est d'environ  $10^{17} \text{m}^{-3}$  alors que celle de l' $Ar(1s_2)$  est d'environ  $5 \times 10^{13} \text{m}^{-3}$ . La 811.53 nm devrait ainsi être absorbé à près de 80% alors que la 750.39 nm devrait être  $\sim 0\%$  absorbée.

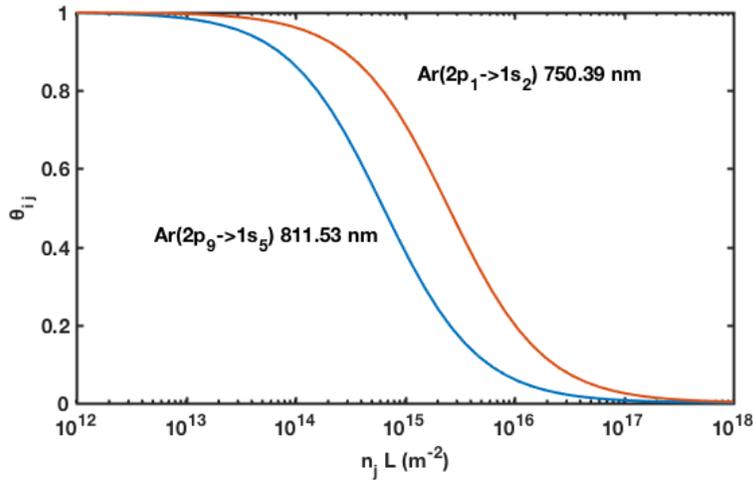


Figure 23 : Facteur d'échappement calculé à partir de l'équation 63 en fonction de la densité de centre absorbeur sur la demie longueur d'absorption ( $n_j L$ ).

### **Densité des niveaux $1s_i$**

Pour calculer l'excitation par étape vers les  $2p_x$  et l'auto absorption, il faut *a priori* calculer la densité des niveaux  $1s_i$  par le bilan de gain et de perte ( $G = P$ , ici, les pertes par diffusion sont négligées puisqu'elles sont inférieures par plusieurs ordres de grandeur aux autres pertes) de ces niveaux. Comme les  $2p_x$ , ceux-ci peuvent être créés par impact électronique sur le fondamental avec cascade radiative ((5) sur la Figure 21) :



Les sections efficaces utilisées pour les deux métastables des 4 gaz sont celles décrites par Donnelly [24]. Pour les deux niveaux résonnants de l'argon, les sections efficaces proviennent de J. Ajello *et al.*[84].

Les  $1s_i$  peuvent aussi être créés par des transferts d'excitation ((6) sur la Figure 21), c.-à-d. par impact électronique sur un autre  $1s_j$ . Ayant 3 autres niveaux qui peuvent peupler le  $1s_i$ , l'équation deviendra alors une somme sur ces trois réactions :

$$\sum_{\substack{j=2 \\ j \neq i}}^5 A(1s_j) + \text{é} \xrightarrow{k_{s_j, s_i}} A(1s_i) + \text{é} . \quad (67)$$

Par contre, les sections efficaces dans la littérature sont seulement pour des transitions qui augmentent l'énergie du niveau (ex:  $1s_3 \rightarrow 1s_5$  existe, mais  $1s_5 \rightarrow 1s_3$  n'existe pas). Ainsi, les réactions inverses ont été calculées par le principe de micro-réversibilité [1, p. 267]. Par exemple, à partir du taux de réaction de  $1s_3 \rightarrow 1s_5$ , le taux de réaction de  $1s_5 \rightarrow 1s_3$  peut être obtenu. Les sections efficaces directes calculées par Bartschat *et Zeman* [85] et Dasgupta *et al.*[86] sont utilisées ici pour les métastables alors que celles pour les deux niveaux résonnants de l'argon sont de Gangwar *et al.*[87].

Puisque les dernières sections efficaces n'incluent pas la cascade radiative, elle est ajoutée en considérant l'excitation des  $1s_j$  vers tous les  $2p_x$  qui se désexcitent radiativement vers le  $1s_i$ . Pour ces processus, le facteur d'embranchement  $B_{i,j}$  est utilisé ( $B_{i,j} = A_{ij} / \sum_k A_{ik}$ ). Ainsi, le gain sera la somme sur tous les  $2p_x$  et sur tous les  $1s_j$  avec les rapports de branchement appropriés :

$$\sum_{j=2}^5 \sum_{x=1}^{10} A(1s_j) + \text{é} \xrightarrow{B_{x,i} k_{s_j, p_x}} A(1s_i) + \text{é} + h\nu . \quad (68)$$

Puisque les sections efficaces  $k_{s_j, p_x}$  incluent la cascade radiative, cette méthode considère aussi l'excitation vers les niveaux supérieurs au  $2p_x$ . L'excitation du  $1s_5$  vers le  $1s_3$  pour l'argon est représenté comme exemple à la Figure 14 pour ce processus.

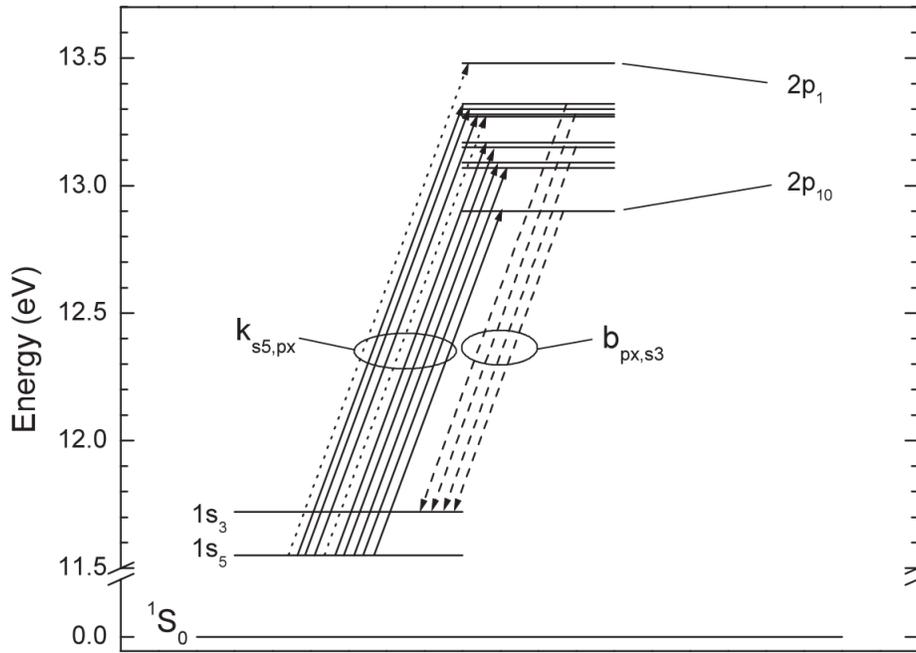


Figure 24 : Diagramme de l'excitation à partir du  $1s_5$  vers les  $2p_x$  ( $\rightarrow$ ) résultant en une population du  $1s_3$  par l'émission d'un photon ( $\rightarrow$ ) pour l'Argon.  $k_{s5,px}$  et  $b_{px,s3}$  sont les taux de réaction et les facteur d'embranchement associés à ces réactions. Les réaction  $1s_5 \rightarrow 2p_1$  et  $1s_5 \rightarrow 2p_5$  sont représentés en pointillé puisque leurs taux de réaction sont très faibles à comparer aux autres (voir Figure 22). Les niveaux résonnants  $1s_2$  et  $1s_4$  ne sont pas représentés.

Finalement, les niveaux résonnants peuvent être créés par auto absorption avec le facteur d'échappement calculé à partir de l'équation 63 ((7) sur la Figure 21)

$$A + hv \xrightarrow{1-\theta_{i0}} A(1s_i) \quad \text{pour } i = 2, 4. \quad (69)$$

Ainsi, les gains pour un niveau  $1s_i$  sont donnés par la somme des gains 1) par le fondamental, 2) par transfert d'excitation entre les  $1s_j$  avec la cascade radiative et 3) par auto absorption :

$$G(1s_i) = n_e n_0 k_{0,s_i} + \sum_{\substack{j=2 \\ j \neq i}}^5 n_e n_{1s_j} k_{s_j, s_i} + \sum_{j=2}^5 \sum_{x=1}^{10} n_e n_{1s_j} k_{s_j, p_x} B_{x,i} + (1 - \theta_{i0}) A_{i0}. \quad (70)$$

Les niveaux  $1s_i$  peuvent aussi être perdus par une multitude de réactions. Premièrement, l'impact électronique vers un  $2p_x$  constituera une perte si le niveau  $2p_x$  peuplé se désexcite radiativement vers un autre niveau ((3) sur la Figure 21) :

$$\begin{aligned} \sum_{x=1}^{10} A(1s_i) + e \xrightarrow{k_{s_i, p_x}} A(2p_x) + e, \\ \sum_{x=1}^{10} A(2p_x) \xrightarrow{1-B_{x,i}} A(\neq 1s_i). \end{aligned} \quad (71)$$

De plus, tous les transferts d'excitation (équation 68 et (6) sur la Figure 21) par impact électronique vers un  $1s_i$  constituent des pertes pour  $1s_j$ . Il y a ensuite les collisions superélastiques avec un électron, et l'ionisation par impact électronique ((8) et (9) sur la Figure 21) :

$$\begin{aligned} A(1s_i) + e \xrightarrow{k_{s_i e}} A + e, \\ A(1s_i) + e \xrightarrow{k_{iz}} A^+ + 2e. \end{aligned} \quad (72)$$

Les sections efficaces pour les collisions superélastiques sont calculées à partir du principe de micro-réversibilité [1, p. 267] alors que celles pour l'ionisation proviennent de McGuire [88] et sont considérées les mêmes pour tous les  $1s_i$  de tous les gaz.

Aussi, un niveau  $1s_i$  peut être perdu par désexcitation collisionnelle ou « quenching » lorsqu'il entre en collision avec un atome neutre ((10) sur la Figure 21). La somme sur toutes les espèces présentes dans le mélange gazeux sera effectuée avec les sections efficaces appropriées  $k_{Y, s_i}$ , où  $Y$  représente le gaz et  $Y^*$  un niveau excité du gaz. Les taux de réaction utilisés proviennent de Velazco *et al.*[89] :

$$\sum_Y A(1s_i) + Y \xrightarrow{k_{Y, s_i}} A + Y^*. \quad (73)$$

Finalement, les résonnants peuvent être perdus radiativement :

$$A(1s_i) \xrightarrow{A_{i0}} A + h\nu . \quad (74)$$

On peut ainsi écrire l'ensemble des pertes comme :

$$P(n_{1s_i}) = \sum_{x=1}^{10} n_{1s_i} n_e k_{s_i, p_x} (1 - B_{x,i}) + \sum_{\substack{j=2 \\ j \neq i}}^5 n_e n_{1s_j} k_{s_i, s_j} + n_{1s_i} n_e k_{s_i} + n_{1s_i} n_e k_{iz} \\ + n_{1s_i} \sum_Y n_Y k_{Y, 1s_i} + n_{1s_i} A_{i0} . \quad (75)$$

La densité des niveaux  $1s_i$  à l'équilibre peut alors être calculée en résolvant l'équation suivante pour toutes valeurs de  $T_e$  et  $n_e$  :

$$n_{1s_i} = \frac{n_0 k_{0, s_i} + \sum_{\substack{j=2 \\ j \neq i}}^5 (n_{1s_j} k_{s_j, s_i} + \sum_{x=1}^{10} n_{1s_j} k_{s_j, p_x} B_{x,i}) + \frac{1}{n_e} (1 - \theta_{i0}) A_{i0}}{\sum_{x=1}^{10} k_{s_i, p_x} (1 - B_{x,i}) + \sum_{\substack{j=2 \\ j \neq i}}^5 k_{s_i, s_j} + k_{s_i} + k_{iz} + \frac{1}{n_e} (\sum_Y n_Y k_{Y, 1s_i} + A_{i0})} . \quad (76)$$

## **Comparaison des spectres théoriques et expérimentaux**

L'intensité théorique d'une raie est donnée par l'équation 51 (avec  $F_{ij}=1$ ). Pour une raie provenant d'une transition  $2p_x \rightarrow 1s_i$  d'un gaz rare, la densité du niveau émetteur  $2p_x$  est calculée à partir de l'équation 58 ( $G = P$ ), où les gains sont 1) l'excitation par impact électronique sur le fondamental, 2) l'excitation par impact électronique sur les  $1s_i$  et 3) l'auto absorption. Les pertes proviennent uniquement de la désexcitation radiative à basse pression. On obtient alors en isolant la densité du niveau  $2p_x$  :

$$n_{2p_x} = \frac{n_e n_0 k_{0, p_x} + \sum_{j=2}^5 (n_e n_{1s_j} k_{s_j, p_x} + (1 - \theta_{x,j}) A_{x,j})}{\sum_{j=2}^5 A_{x,j}} , \quad (77)$$

où  $n_e$  est la densité électronique,  $n_0$  est la densité des atomes du gaz,  $A_{x,i}$  et  $\theta_{x,i}$  sont respectivement le coefficient d'Einstein pour l'émission spontanée pour la transition  $x \rightarrow i$  et l'auto absorption calculée à partir de l'équation 63. On peut ainsi calculer l'intensité relative de l'ensemble des raies du Ne, Ar, Kr et Xe pour toutes valeurs de  $T_e$  et  $n_e$ . Il faut maintenant comparer les intensités relatives aux intensités mesurées expérimentalement afin de trouver les paramètres  $T_e$  et  $n_e$  qui ajustent ou lissent le mieux les données expérimentales.

Premièrement, les intensités expérimentales des raies sont extraites en ajustant des gaussiennes aux raies mesurées dans le spectre et en prenant ensuite le maximum. Cette méthode est justifiable puisque l'élargissement dominant, l'élargissement instrumental, est gaussien. Une incertitude expérimentale est définie avec la déviation standard de l'ajustement gaussien et le ratio entre l'intensité de la raie et le bruit de fond. L'incertitude expérimentale s'écrit alors :

$$\sigma I_{exp} = \sqrt{(\sigma I_{Gauss})^2 + (\bar{I}_{Bruit}/I_{Gauss})^2}, \quad (78)$$

où  $\sigma$  représente l'erreur absolue alors que  $I_{Gauss}$  et  $\bar{I}_{Bruit}$  sont respectivement l'intensité de la gaussienne ajustée et le bruit de fond moyen. Un exemple des intensités mesurées est représenté à la Figure 25 pour 31 raies d'émission. Bien que le modèle permette de modéliser 41 raies, certaines sont peu intenses, saturées ou convoluées. Par exemple, les 810.43 nm et 811.29 nm du Kr sont convolués avec les 810.37 nm et 811.53 nm de l'Ar. Aussi, une raie trop intense peut être sacrifiée pour plusieurs raies moins intenses en la saturant lors de la mesure.

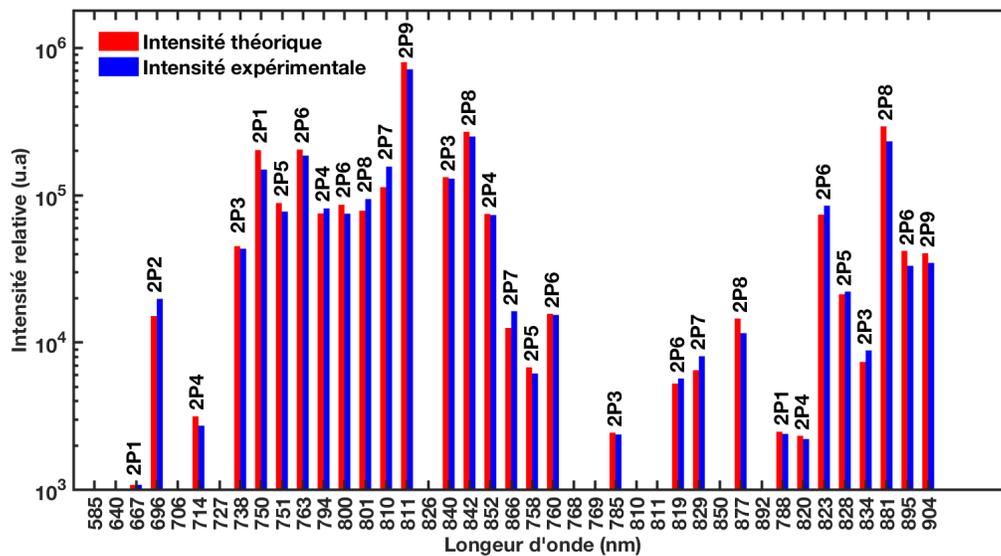


Figure 25 : Comparaison entre les intensités mesurées expérimentalement et calculées par le modèle pour le minimum de la déviation standard. Plasma d'onde de surface d'argon avec 10% de trace de gaz rare (40% de Ne et 20% de Ar, Kr, Xe) à 5 mTorr, 600 MHz et dans un tube de 26 mm de diamètre interne.

Aussi, une incertitude sur le calcul des intensités de raies est extraite par un calcul de propagation d'erreur. Les incertitudes considérées sont celles sur les sections efficaces évaluées par Donnelly [24] (voir Tableau 1) et la demi-longueur d'absorption (~15% dans nos conditions). Le calcul de propagation d'erreur a montré que les faibles incertitudes sur la pression et sur la température du gaz sont négligeables devant celles-ci.

Section efficace	Ne	Ar	Kr	Xe
$\sigma_{0,s_i}$	15%	15%	15%	30%
$\sigma_{0,p_x}$	15%	15%	15%	15%

$\sigma_{s_i, p_x}$	25%	25%	25%	45%
$\sigma_{s_i, s_j}$ et $\sigma_{s_e}$	40%	40%	40%	40%
$\sigma_{iz}$ et $\sigma_{Y, 1s_i}$	25%	25%	25%	25%

Tableau 1 : Erreurs relatives sur les différentes sections efficaces de chaque gaz [22].

Dans ce contexte, les valeurs de  $T_e$  et de  $n_e$  peuvent être obtenues en calculant l'erreur standard relative du ratio entre les valeurs expérimentales et théoriques pour toutes valeurs de  $T_e$  et  $n_e$  dans un intervalle prédéterminé. Une déviation de 5% au minimum de la déviation standard définit l'incertitude sur  $T_e$  et  $n_e$ . Afin de donner moins d'importance aux raies très petites ou moins bien modélisées, le calcul d'erreur standard est pondéré par des poids  $w$  entre 0 et 1 directement proportionnelle à l'incertitude sur les raies expérimentales et modélisées :

$$w = 1 - \sqrt{\left(\frac{\sigma I_{exp}}{I_{exp}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma I_{modèle}}{I_{modèle}}\right)^2}. \quad (79)$$

L'erreur standard relative pondérée en pourcentage s'écrit alors :

$$\%ESR_i = \frac{100}{\bar{x}_w} \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N w_i (x_i - \bar{x}_w)^2}{(N' - 1) \sum_{i=1}^N w_i}}, \quad \bar{x}_w = \frac{\sum_{i=1}^N w_i x_i}{\sum_{i=1}^N w_i}, \quad (80)$$

où  $x_i$  est le  $i$ -ième rapport de raie théorique sur expérimental,  $N$  est le nombre de raies,  $w_i$  est le poids du  $i$ -ième rapport,  $N'$  est le nombre de poids non nuls et  $\bar{x}_w$  est la moyenne pondérée. La Figure 25 présente un exemple des intensités calculées par rapport aux raies mesurées expérimentalement au minimum de la déviation standard ( $T_e = 4.7$  eV et  $n_e = 1.6 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$ ). On note qu'on modélise bien toutes les raies mesurées expérimentalement avec une déviation standard relative de seulement 16.7 % sur l'ensemble des ratios.

La Figure 26 présente un exemple de la température électronique obtenue en comparant les prédictions du modèle au spectre expérimental pour 31 raies d'émission de l'Ar, Kr, Xe dans un plasma d'argon produit par une onde de surface à 600 MHz avec 10% de TRG dans un tube de 13mm de rayon interne en fonction de la pression. Puisqu'on utilise 3 gaz et des raies venant autant du fondamental (9.6 à 13.5 eV) que de l'excitation par étape ( $\sim 1$  à 3 eV), cette température représente la température moyenne du plasma prise sur la majorité de la fonction de distribution en énergie des électrons. Comme le montre la figure, les résultats sont en excellent accord avec un modèle zéro-dimensionnel basé sur l'équation de conservation des particules chargées. Dans ce modèle, le gain d'ions s'effectue par impact électronique sur le niveau fondamental et la perte par diffusion ambipolaire vers les parois [1, p. 333] :

$$\frac{K_{iz}(T_e)}{u_B(T_e)} = \frac{1}{n_g d_{eff}}, \quad (81)$$

où  $K_{iz}$  est le taux de réaction pour l'ionisation par impact électronique sur le fondamental de l'argon,  $u_B = \sqrt{eT_e/M_i}$  est la vitesse de Bohm,  $M_i$  la masse de l'ion et  $d_{eff}$  est défini comme :

$$d_{eff} = \frac{1}{2} \frac{RL}{Rh_L + Lh_R}, \quad (82)$$

où  $R$  le rayon du tube,  $L$  sa longueur et les coefficients  $h_L$  et  $h_R$  sont définis comme :

$$\begin{aligned} h_L &\approx 0.86(3 + L/2\lambda_i)^{-1/2}, \\ h_R &\approx 0.80(4 + R/\lambda_i)^{-1/2}, \end{aligned} \quad (83)$$

où  $\lambda_i = 1/n_g\sigma_i$  est le libre parcours moyen des ions,  $n_g$  est la densité des atomes du gaz et  $\sigma_i \approx 10^{-14} \text{cm}^2$  [1, p. 330] est la section efficace de collision élastique entre les ions et les neutres. Par exemple, avec  $L = 1$  m et  $R = 13$  mm, on trouve  $d_{eff} = 16$  mm pour une pression de 5 mTorr.

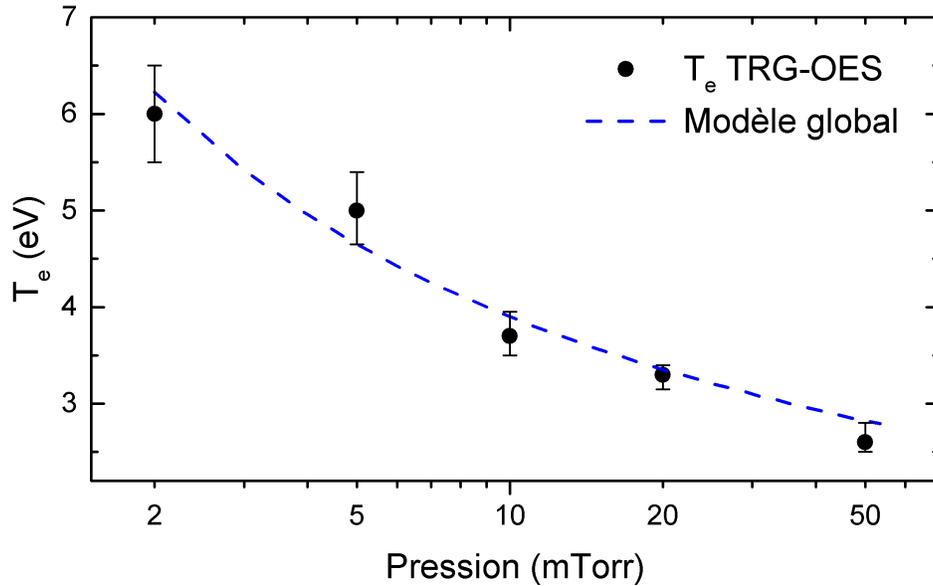


Figure 26 : Température électronique moyenne ( $T_e$ ) trouvée par le modèle pour 31 raies d'émission de l'Ar, Kr, Xe dans un plasma d'onde de surface d'argon avec 10% de TRG dans un tube de 13mm de rayon interne à 600 MHz en fonction de la pression à 30 cm de la fin de la décharge. La courbe pointillée représente une estimation de la température électronique par le modèle global.

Le modèle réussit donc bien à reproduire les spectres d'émission optiques mesurés expérimentalement (voir Figure 25) et permet de déterminer la température électronique de la majorité des électrons de la fonction de distribution en énergie des électrons des plasmas d'argon sur une gamme étendue de pression, de 2 à 50 mTorr.

### 2.3. Conclusion

Dans ce chapitre, le montage expérimental d'un plasma d'onde de surface d'argon à basse pression a été présenté ainsi que la TRG-OES. Les bases de la spectrométrie d'émission optique ont été présentées et les raisons d'utiliser la TRG-OES ont été démontrées. Tous les processus de population et de dépopulation des niveaux  $2p_x$  et  $1s_i$  des gaz rares ont été

développés en détail. L'ajout de l'auto absorption et des niveaux résonnants a été justifié pour un plasma constitué majoritairement d'argon. Les intensités de raies calculées par le modèle sont en très bons accords avec les spectres expérimentaux et les températures électroniques trouvées de 2 à 50 mTorr sont cohérentes avec les prédictions d'un modèle zéro-dimensionnel couramment utilisé pour la description des plasmas à pression réduite.

## Chapitre 3

# Phénomènes de résonance dans les plasmas d'onde de surface

Au chapitre 1, nous avons montré que les variations spatiales de la densité électronique du plasma pouvaient donner lieu à l'apparition d'une résonance caractérisée par un pic de l'intensité de la composante transverse du champ électrique lorsque la fréquence plasma électronique devient égale à la fréquence d'oscillation du champ électrique (la partie réelle de la permittivité du plasma tend vers 0). Des études théoriques et expérimentales ont ensuite révélé que cette résonance permettait le développement d'ondes de Langmuir qui pouvaient conduire à du chauffage non collisionnel par amortissement Landau.

Dans ce chapitre, nous explorons la production d'électrons chauds associée au chauffage non collisionnel reliée à la résonance dans les plasmas produits par des ondes de surface. À partir de mesures spectroscopiques TRG-OES, on montre que la production d'électrons chauds est plus importante lorsque les points de résonance sont suffisamment éloignés des parois pour permettre la propagation et l'atténuation des ondes de Langmuir. Les résultats obtenus sont présentés sous la forme d'un article récemment publié dans *Plasma Sources Science and Technology* (<https://doi.org/10.1088/1361-6595/aadb61>). Pour ce travail, S. Boivin a mis au point le montage et les diagnostics, pris l'ensemble des mesures, effectué la majorité de l'analyse et réalisé la rédaction du premier jet de l'article. Les coauteurs ont participé aux analyses des résultats ainsi qu'à la rédaction du manuscrit.

# **Analysis of the high-energy electron population in surface-wave plasma columns in presence of collisionless resonant absorption**

S. Boivin<sup>1</sup>, X. Glad<sup>1</sup>, J.P. Bœuf<sup>2</sup>, and L. Stafford<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Département de physique, Université de Montréal, Montréal, Québec, Canada

<sup>2</sup>LAPLACE, Université de Toulouse, CNRS, INPT, UPS, France

## **Abstract**

In surface-wave plasmas, the energy can be transferred to the plasma electrons through both ohmic (collisional) and collisionless heating mechanisms. At very low pressure, when the electron-neutral collision frequency is much lower than the wave frequency (collisionless regime), a resonance is excited close to the tube walls where the electron plasma frequency in the radially-inhomogeneous plasma column reaches the wave frequency. In such conditions, the sharp rise of the component of the surface-wave electric field perpendicular to the tube axis can induce transit-time heating. At the resonant point, the long-wavelength electromagnetic surface wave can also be converted into short-wavelength electrostatic Langmuir waves that propagate down the density gradient. In this work, spatially-resolved trace-rare-gases optical emission spectroscopy combined with collisional-radiative modeling is used to analyze the electron energy distribution function (EEDF) and wave-particle interactions in low-pressure argon plasma columns sustained by an electromagnetic surface wave at 600 MHz (over-dense plasma). The EEDF is found to depart from a Maxwellian with the presence of a high-energy tail. The relative population of high-energy electrons increases with the axial distance towards the end of the plasma column where the electron density decreases and the resonance point becomes closer to the discharge axis. Over the range of experimental conditions examined, the high-energy tail increases with the characteristic length of the plasma density gradient at the resonance point; a feature that can be linked to collisionless electron heating by Landau damping of Langmuir waves.

---

\* Luc.Stafford@umontreal.ca

## 1. Introduction

Surface-wave plasmas are widely used for their ability to create long and stable plasma columns from less than 1 MHz to 10 GHz over a wide range of pressures (from below the mTorr range to atmospheric pressure) [1][2]. Such plasmas have given rise to many applications including plasma deposition, etching, and sterilization [3], [4]. Surface-wave plasma columns excited in dielectric tubes by a wave launcher share specific properties [1]–[3], [5], [6]. Briefly, if the wave frequency  $f$  times the tube radius  $R$  is smaller than about 2 GHz·cm [7], the medium allows the propagation along the tube axis of an electromagnetic surface wave with an azimuthal symmetry. Indeed, in the absence of an external magnetic field and collisions (the frequency for electron-neutral collisions is much lower than the wave frequency), surface-wave propagation along the radial direction is forbidden such that the wave-energy flux (Poynting vector) is oriented along the axial direction. In conditions for which the electron energy relaxation length is much smaller than the tube length but larger than the tube radius, the plasma is said to be *local* in the axial direction and *non-local* in the radial direction. In such cases, as the axial distance from the wave launcher increases, the wave energy is locally absorbed along the tube axis resulting in a quasi-linear decrease of the number density of charged species down to the so-called critical number density  $n_c$  obtained from the condition  $\omega = \frac{1}{\sqrt{1+\epsilon_g}} \omega_{pe} = \frac{1}{\sqrt{1+\epsilon_g}} \sqrt{\frac{n_c e^2}{m_e \epsilon_0}}$ , where  $\omega$  is the wave angular frequency,  $\omega_{pe}$  is the electron plasma frequency,  $m_e$  is the electron mass,  $e$  is the electron charge,  $\epsilon_0$  is the free space permittivity, and  $\epsilon_g$  is the dielectric tube permittivity [1]–[3], [5], [6], [8]. In the absence of diffusion and convection effects along the tube axis, this condition marks the end of the plasma column [8].

In surface-wave plasmas, the energy is generally delivered to the plasma electrons by ohmic (collisional) heating. The electrons are accelerated by the electric field of the electromagnetic surface wave and dissipate their energy through both elastic and inelastic collisions with other species (mostly neutrals in weakly ionized plasmas). In low-pressure discharges, where the frequency for electron-neutral collisions  $\nu$  is much lower than the wave angular frequency  $\omega$ , ohmic heating is often insufficient to explain the electron power absorption; a collisionless electron heating mechanism must exist to sustain and maintain the discharge.

Among collisionless electron heating mechanisms, the so-called stochastic electron heating [9], [10] in capacitively- and inductively-coupled plasmas results from the momentum transfer from the high-voltage moving sheath to the plasma electrons. It is achieved principally in the RF range when the sheath edge velocity linked to the wave frequency is much lower than the electron plasma frequency. In wave-based plasmas such as electron cyclotron resonance (ECR), helicon, and surface-wave plasmas, resonant wave-particle interactions can play a significant role in the electron heating kinetics [11]. More specifically, in surface-wave plasma columns in the microwave regime, theoretical models have shown that the self-consistent interaction between the electromagnetic surface wave propagating along the axial direction and the plasma gives rise to a resonance near the discharge boundary where the electron plasma frequency in the radially-inhomogeneous plasma column reaches the wave frequency (when  $\omega \sim \omega_{pe}$ , the real part of the plasma permittivity goes through zero) [12]–[18]. This resonance is characterized by a sharp peak of the electric field component perpendicular to the plasma density gradient (perpendicular to the tube axis in surface-wave plasma columns) whose width and intensity are related to  $v$ ,  $\omega$ , and the plasma density gradient determined at the resonance position [15], [18].

Previous studies in surface-wave plasmas at low pressure have shown that electrons could gain energy via the resonant field if their transit time  $\tau$  is sufficiently shorter period of the surface wave  $T$  [15], [19], [20]. If  $\tau \gg T$ , electrons oscillate during their transit in the resonance region without gaining any energy. On the contrary, if it is too short ( $\tau \ll T$ ), electrons pass through the enhanced-field region without significantly interacting with it. The condition reaches a maximum at  $\tau = T/4\pi$ .

The presence of a resonance can also convert the long-wavelength electromagnetic surface wave into short-wavelength electrostatic Langmuir waves. In such conditions, collisionless electron heating occurs by Landau damping of Langmuir waves [10], [12], [21]. Enhanced ohmic (collisional) heating from the increase of the E-field intensity could also occur based on hydrodynamic and kinetic calculations [15].

Resonance phenomena in surface-wave plasmas have been indirectly observed in numerous experimental studies [19], [21], [22]. Using a 2.45 GHz test-wave in an inductively coupled

argon plasma at 10 mTorr, Ghanashev *et al* [22] have demonstrated that this resonance always occurs at the critical density corresponding to the condition  $\omega \sim \omega_{pe}$  (the real part of the plasma permittivity goes through zero). Moreover, probe measurements in large-area microwave discharges detected the presence of an enhanced electric field and the generation of fast electrons near the discharge boundary [23], [24]. However, measurements of the high-energy electrons by Langmuir probes are difficult due to their low density and the presence of an ion current that needs to be subtracted from the total measured current. This ion contribution is especially tricky to determine in low-pressure conditions (i.e. high electron temperature and strongly negative floating potential). Besides, in wave-based plasmas, the use of Langmuir probes is usually avoided since this intrusive method can disturb the self-consistent nature of the plasma.

In recent years, a non-intrusive trace-rare-gases-optical-emission-spectroscopy (TRG-OES) technique [25] was developed to analyze the electron energy distribution function (EEDF) in argon and oxygen containing plasmas sustained by microwave electromagnetic fields. This includes large-volume ECR plasmas [21], [26], but also long and narrow plasma columns sustained in discharge tubes by propagating electromagnetic surface waves [10], [27]. In selected conditions, an abnormal high-energy tail was observed in the EEDF and was linked to the presence of a resonance and the corresponding wave-particle interaction. In the surface-wave plasma case [10], the generation of fast electrons associated to the presence of a high-energy tail decreased with decreasing frequency; a feature ascribed to the enhanced contribution of collisions at lower frequencies which reduce resonance effects [28].

The aim of this work is to analyze the population of high-energy electrons in surface-wave plasma columns over a wide range of experimental conditions. This is realized by TRG-OES, which is particularly sensitive to the analysis of high-energy electrons [25]. This study further takes advantage of the axially-linear decrease of the electron number density to investigate the influence of a change of the resonance position, hence, the characteristic length of the plasma density gradient  $L = \frac{n_e}{dn_e/dr}$  at constant wave frequency. The results are discussed in nominally pure argon plasmas for different gas pressures. Based on this complete set of data, further insights into the electron heating kinetics and wave-particle interactions in surface-wave plasma columns are provided.

## 2. Experimental Details

Figure 1 shows a schematic of the apparatus used in this work. Experiments were carried out in a 26-mm inner diameter fused-silica discharge tube evacuated by turbomolecular and rotary pumps leading to a base pressure of about  $5 \times 10^{-6}$  Torr. The surface-wave was excited using a gap-type surfatron device [29] at 600 MHz. The product of the input frequency  $f$  times the tube inner radius  $R$  was always below 2 GHz-cm; this ensures that only the azimuthally symmetric mode of the wave could be excited along the tube axis [7]. The argon pressure was varied between 2 and 50 mTorr using a throttle valve located at the entrance of the pumping system. The absorbed power (incident minus reflected power) was adjusted between 40 and 50 W to achieve the same plasma length for all pressures investigated.

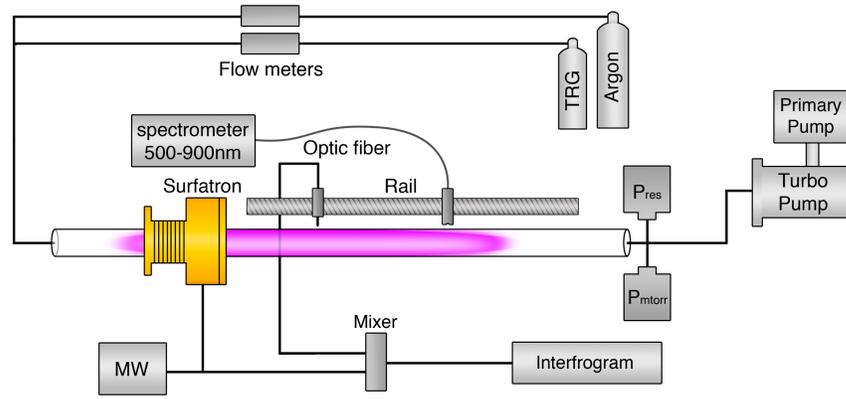


Figure 1 .Schematics of the experimental setup comprising the reactor (discharge tube and surfatron) as well as the diagnostics (TRG-OES and phase-sensitive microwave interferometry).

For TRG-OES measurements, a flow rate of 1-10 standard cubic centimeters per minute (scm) of Ar was mixed with 10% of rare gases from a premixed-gas bottle (40% Ne and 20% each for Ar, Kr, and Xe). Plasma emission was collected by an optical fiber mounted on a motorized rail equipped with a collimator directed perpendicularly to the discharge tube axis and monitored using a wavelength- and intensity-calibrated optical emission spectrometer. Phase-

sensitive microwave interferometry was used to estimate the cross-sectional average value of the electron number density along the microwave plasma column [30]. Furthermore, the total light intensity distribution across the discharge cross section was measured with a photodiode with a spatial resolution of about 1 mm. These measurements were carried out as a function of the lateral position. Then, laterally-resolved data were converted into radially-resolved emission intensities by Abel inversion [31].

### 3. Experimental results

#### 3.1. Electron number density profile

In order to assess resonance effects in surface-wave plasma columns, the electron number density  $n_e$  has to be determined throughout the whole discharge volume. Figure 2 shows the cross-sectional average values of  $n_e$  obtained by phase sensitive microwave interferometry as a function of position along the plasma column for different conditions: 2, 5, 10, and 50 mTorr in nominally pure argon. The axial profile of  $n_e$  reveals a linear trend with a slope proportional to the pressure, which is to be expected in microwave plasma columns sustained by propagating electromagnetic surface waves [5]. In addition,  $n_e$  abruptly drops to zero near the critical plasma density obtained from the condition  $\omega = \frac{1}{\sqrt{1+\epsilon_g}} \omega_{pe} = \frac{1}{\sqrt{1+\epsilon_g}} \sqrt{\frac{n_c e^2}{m_e \epsilon_0}}$ , ( $n_c = 2.1 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$  for a fused silica discharge tube at 600 MHz) [6], [32]; this marks the end of the plasma column and defines the position 0.

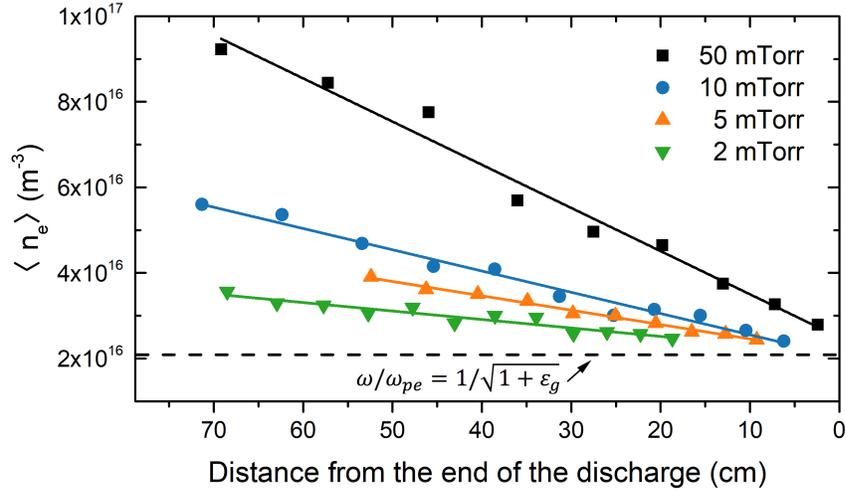


Figure 2 . Cross-sectional average values of the electron number density for 2, 5, 10 and 50 mTorr argon plasmas as a function of the axial position. The origin matches the end of the plasma column.

Over the range of experimental conditions examined in this study, the electron energy transport length is much larger than the discharge diameter (non-local electron kinetics in the radial direction), such that the electron temperature  $T_e$  can be assumed constant over the whole discharge diameter. This aspect has been previously confirmed for surface-wave plasma columns [10]. As a consequence, the radial distribution of the light emission intensity (obtained after Abel inversion) [31] recorded at each position along the plasma column becomes directly proportional to the radial profile of the electron number density at this specific axial position. Lateral profiles of the light emission intensity directly obtained from the measurements are shown in Figure 3 for different pressures. By normalizing the profiles, one notices similar behaviours: curves are closely matching with only a slight increase of the width as the cross-sectional average value of the electron number density decreases. Consequently, at fixed position for lowest pressures as well as at fixed pressure for greater distance from the surfatron (not presented here), the widths of the number density profile increase. Those profiles were then converted into radial coordinates

using Abel inversion. Results are presented in Figure 4. Due to the very small difference in the light emission intensity profiles and the increasing noise as  $n_e$  diminishes towards the end of the plasma column, only the fit of the mean value of all radial distributions was taken into account and used for the calculations needed later in this paper. These profiles are very similar to the ones obtained numerically by Alves *et. al.* [15]; slight discrepancies are nonetheless observed close to the walls possibly due to the low optical signals and the limited spatial resolution of the measurements. Alves *et. al.* [15] also observed near identical normalized profiles for different values of the cross-sectional average electron number density, which validates our approximations and measurements.

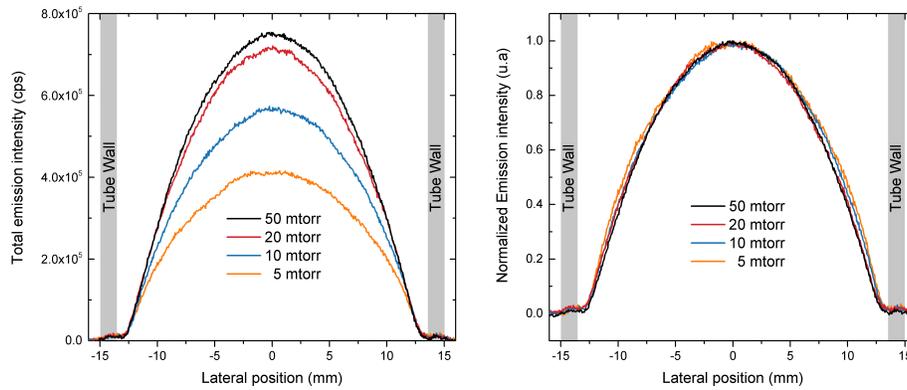


Figure 3. Cross-sectional light emission intensity at 30 cm from the end of the column for an argon plasma at different pressures. a) shows the total intensity recorded by the spectrometer over the range 320 to 860 nm. b) reports the normalized light emission intensity in the same conditions.

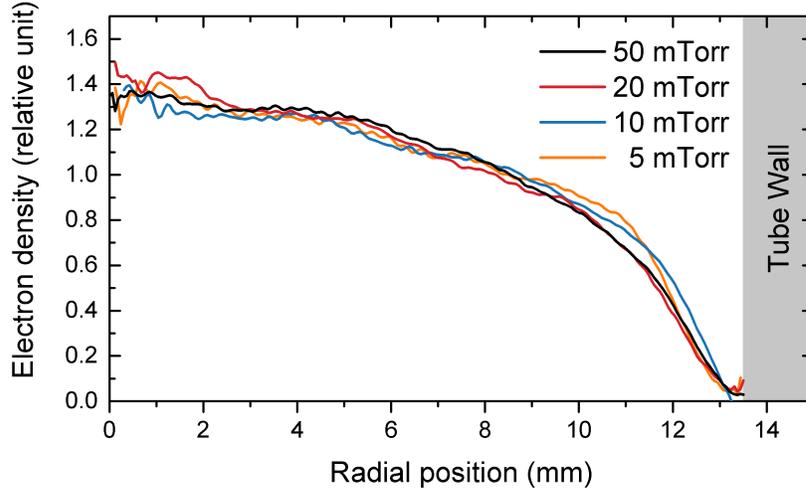


Figure 4. Cross-sectional average radial profiles of the electron number density obtained after Abel inversion for the different pressures shown in Figure 3 (relative values).

The data presented in Figure 4 were converted into absolute values using the cross-sectional average values of the electron number density displayed in Figure 2. The complete radial and axial profiles of the electron number density are presented as a typical example in Figure 5 for a 5 mTorr Ar plasma. In order to represent the displacement of the resonance point along the surface wave plasma column, the electron density value  $n_{res} = 4.5 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$  (obtained from the condition  $\omega = \omega_{pe} = \sqrt{\frac{n_{res}e^2}{m_e\epsilon_0}}$  where the real part of the plasma permittivity goes through zero) is represented by a black plane. As one moves away from the wave launcher, the resonance point moves towards the discharge axis. For example, the distance between the resonance point and the wall is 0.5 mm at 70 cm and 0.8 mm at 5 cm from the end of the 5 mTorr, surface-wave plasma column. These values are much larger than the typical Debye lengths for such plasmas ( $\sim 0.02$  mm for an electron density of  $4.5 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$  and an electron temperature of 4 eV;  $\sim 0.01$  mm for an electron density of  $2.1 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$  and an electron temperature of 4 eV).

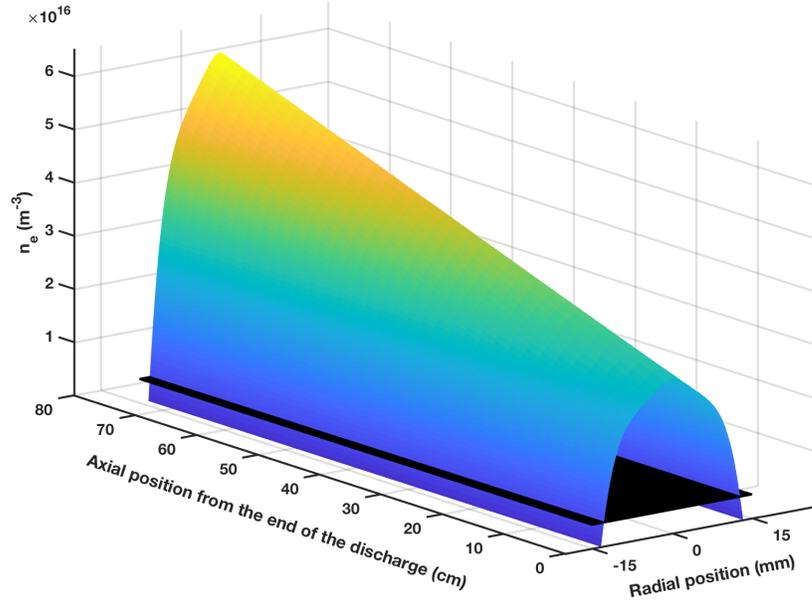


Figure 5. Axial and radial profiles of the electron number density for a 5 mTorr Ar plasma at a frequency of 600 MHz in the 26-mm inner diameter fused-silica tube. The black plane corresponds to the electron number density at the resonance  $n_{res}$  (obtained from the condition

$$\omega = \omega_{pe} = \sqrt{\frac{n_{res}e^2}{m_e\epsilon_0}} \text{ where the real part of the plasma permittivity goes through zero).}$$

### 3.2. Axial profile of the electron temperature

Relative intensities of rare gas emission lines were calculated from a TRG-OES model, using the appropriate electron-impact cross sections and branching ratios [11]. The computed intensities as a function of the electron temperature (assuming Maxwellian EEDF) were then compared with the experimental data to determine the best fit. We have determined two different electron temperatures. First,  $T_e$  was determined from 22 emission lines from Ar, Kr and Xe 2p<sub>x</sub> (Paschen notation) levels yielding a temperature  $T_e^{All}$  averaged over most of the EEDF. This includes the hot electrons (when the level is mainly populated by electron impact excitation from the ground state; 9.6-13.5 eV) and the cold ones (when the level is mainly populated by stepwise

excitation through the  $1s_x$  metastable and resonant levels;  $< 2$  eV). Additionally, a second method takes only into account Ar  $2p_1$ ,  $2p_5$  lines (750.4 and 751.5 nm) requiring energies of at least 12.9-13.5 eV and Ne  $2p_1$  line (585.2 nm) requiring energies of at least 19 eV. For gases with ionization potential below the energy of the Ne  $2p$  levels (such as Ar), Ne emission is usually either weak or not observable in discharges with near Maxwellian distributions. Therefore, its presence provides a measurement of the very-high-energy portion of the EEDF, here denoted as  $T_e^{Tail}$ . In the case of a perfectly Maxwellian EEDF,  $T_e^{Tail} \sim T_e^{All}$ .

The evolution of both electron temperatures has been assessed along the discharge axis for a 5 mTorr argon plasma sustained by propagating electromagnetic surface wave. As shown in Figure 6,  $T_e^{All}$  remains fairly constant axially (see additional details below). On the other hand,  $T_e^{Tail}$  exhibits first a slight increase with the axial position before peaking near the end of the plasma column. The EEDF thus has a distinct high-energy tail. In addition, the relative population of these high-energy electrons increases as the resonance point is shifted closer to the center of the plasma column (moving away from the surfatron). As shown by Alves *et al.* [15], resonance phenomena only appear for  $\nu/\omega < 1$  and should increase as the  $\nu/\omega$  ratio decreases. For 5 mTorr, Ar plasmas,  $\nu/\omega=0.006$ ; this means that collisionless electron heating and thus the presence of high-energy electrons linked to resonance effects is expected to be important, as seen in Figure 6. Moreover, the results presented in Figure 6 reveal that fast electron generation and collisionless electron heating due to resonance effects is important for low plasma density (near the end of the plasma column) and is negligible for highly overdense plasmas (close to the wave launcher).

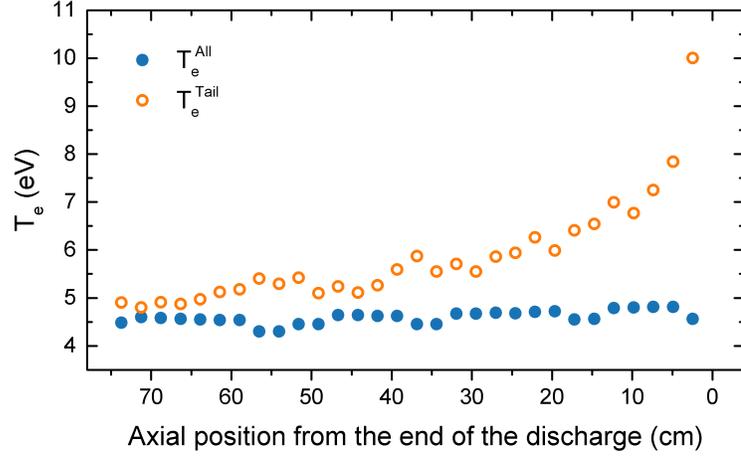


Figure 6. Axial profile of the electron temperatures  $T_e^{All}$  and  $T_e^{Tail}$  obtained by TRG-OES for a 5 mTorr Ar plasma column.

For low-pressure plasmas, an estimation of the electron temperature (assuming Maxwellian EEDF) can be obtained from the particle balance equation of charged species (electrons and ions) assuming that ionization only occurs by electron-impact on ground state argon atoms and losses by ambipolar diffusion and recombination on the reactor walls [11]. In zero-dimension, this condition can be written as

$$\frac{K_{iz}(T_e)}{u_B(T_e)} = \frac{1}{n_g d_{eff}} \quad (1)$$

where  $K_{iz}$  is the rate coefficient for electron-impact ionization on ground state argon atoms,  $u_B$  is the Bohm velocity,  $n_g$  is the number density of neutral argon atoms, and  $d_{eff}$  is an effective plasma size for particles losses. Over the range of experimental conditions examined in this study,  $L \gg R$  and  $R = 13 \text{ mm}$ , this yield  $d_{eff} \approx 16 \text{ mm}$  [11] and  $T_e = 4.6 \text{ eV}$  for an argon pressure of 5 mTorr. This result is consistent with the values of  $T_e^{All}$  presented in Figure 6.

From the measurements presented in Figure 6, the rise of  $T_e^{Tail}$  when moving towards the end of the plasma column suggests that the average electron energy also increases, which is

inconsistent with the predictions of Eq. (1) (the average electron energy must remain constant at fixed pressure and reactor dimensions). In this context, it is worth highlighting that fast electron generation in presence of resonance phenomena must absolutely be accompanied by a rise in the population of low-energy electrons with respect to a Maxwellian EEDF in order to maintain the balance between the creation of charged species by electron-impact ionization and their losses by ambipolar diffusion and recombination on the reactor walls. However, such rise is difficult to visualize (or detect) by optical emission spectroscopy measurements combined with collisional-radiative modeling since this approach is more sensitive to high-energy electrons [25]. Rise in the population of low-energy electrons in presence of resonance phenomena was nonetheless evidenced by kinetic simulations over comparable experimental conditions [33].

Figure 7 shows  $T_e^{All}$  and  $T_e^{Tail}$  as a function of the so-called collisionality  $\nu/\omega$  for argon plasmas ranging from 2 to 50 mTorr. As expected,  $T_e^{All}$  decreases with increasing pressure, in very good agreement with the prediction of Eq. (1). In addition, it can be seen in Figure 7 that the difference between  $T_e^{All}$  and  $T_e^{Tail}$  diminishes as  $\nu/\omega$  increases. Through simulations, many authors have reported that the resonance amplitude and width follow the same behaviours [12], [14], [15], [18]. Furthermore,  $T_e^{Tail} \sim T_e^{All}$  when  $\nu/\omega > 0.02$ , indicating that the abnormal high-energy tail of the EEDF linked to collisionless electron heating disappears as resonance effects diminish.

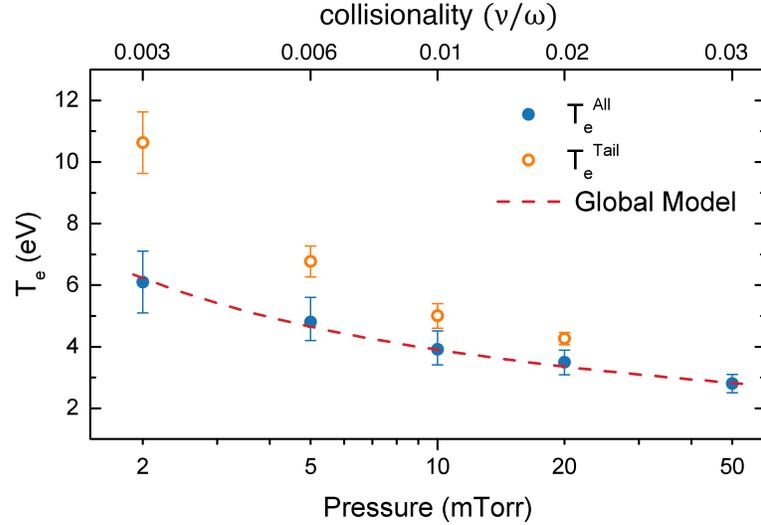


Figure 7. Influence of the ratio of the collision frequency over the wave frequency on  $T_e^{All}$  and  $T_e^{Tail}$  in an argon discharge at 10 cm from the end of the discharge. Note that  $T_e^{Tail}$  cannot be determined at 50 mTorr due to the very weak intensity of the Ne  $2p_1$  line emission at this condition. The dashed line corresponds to the predictions of the zero-dimensional (global) model.

#### 4. Discussion on electron heating mechanisms

As discussed in the introduction, several mechanisms could yield to the high-energy tail observed by TRG-OES measurements. Fast electron generation due to stochastic heating can only be significant if  $\omega_{pe}$  is much larger than  $\omega$  [9]. In argon discharges at 5 mTorr and 600MHz,  $\omega = 3.8 \times 10^9 \text{ rad s}^{-1}$  and  $\omega_{pe}$  ranges from  $1.4 \times 10^{10}$  to  $8.2 \times 10^9 \text{ rad s}^{-1}$  (at the critical density). Therefore,  $\omega_{pe}$  stays within an order of magnitude of  $\omega$ ; this rules out stochastic electron heating as the primary mechanism for fast electron generation in surface-wave plasma columns in the microwave regime.

Another heating mechanism is associated with the conversion, at the resonance point, of the electromagnetic surface wave into short-wavelength Langmuir waves that propagate down the density gradient (toward the reactor walls). The damping of these waves can then induce collisionless electron heating and fast electron generation by Landau damping [13], [33]–[35].

Aliev *et al.* [12] have demonstrated the generation of hot electrons by the above mechanism using a kinetic model based on the solution of the Boltzmann equation. In this model, the typical energy gain by an electron in presence of resonance phenomena  $\varepsilon_L$  can be written as  $\varepsilon_L \propto |eE_d| L$ , where  $E_d$  is the pump field that drives the formation dynamics of electrostatic oscillations at the resonance position [12], [33], [34], [36]–[38] and  $L = \frac{n_e}{dn_e/dr}$  is the characteristic length of the plasma density gradient [15], [20], [33], [36]. Assuming that the pump field is constant for all axial positions (this value must adjust so that the charged particle balance equation is satisfied, i.e. volume ionization balanced by losses to the walls), the effective hot electron temperature linked to collisionless electron heating becomes strictly proportional to  $L$ , i.e.  $T_e^{Tail} \propto L$  [12]. To verify this assumption, the contribution of resonance phenomena on the electron heating dynamics in surface-wave plasma columns was examined by comparing the ratio of the tail electron temperature ( $T_e^{Tail}$ ) over the average electron temperature ( $T_e^{All}$ ) as a function of the characteristic length of the plasma density gradient for different gas pressures. This has been calculated at the resonance position  $r_{res}$ , i.e. the intersection of the radially-inhomogeneous electron number density with  $n_{res}$ , the electron density corresponding to the resonance  $\omega = \omega_{pe}$  (see typical example in Figure 5 for a 5 mTorr Ar plasma). As one moves away from the surfatron, the radially averaged electron density decreases meaning that the resonance position  $r_{res}$  is shifted towards the tube axis, thus increasing  $L$ . The resulting data are presented in Figure 8. As can be seen, all curves add up to each other to follow a fairly straight line. For selected conditions at 10 and 20 mTorr (low  $L$ ), resonance effects disappear and  $T_e^{Tail} / T_e^{All} \sim 1$ . On the other hand, at lower pressures and higher  $L$  values, the resonance process becomes significant and  $T_e^{Tail} / T_e^{All}$  scales with  $L$  independently of the gas pressure, as suggested in [12].

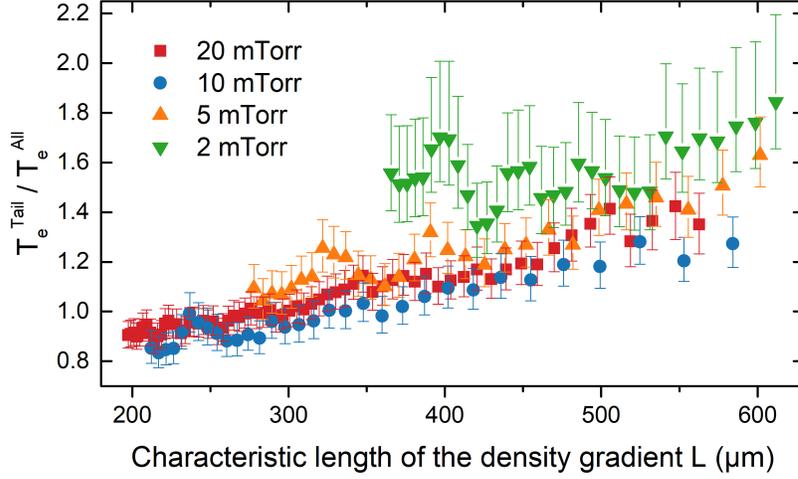


Figure 8 : Ratio of the tail electron temperature over the average electron temperature for 2, 5, 10 and 20 mTorr Ar plasmas as a function of the characteristic length of the density gradient  $L$ .

For Landau damping of Langmuir waves to be efficient, a sufficiently large number of electrons must have a velocity  $v_e = \sqrt{\frac{2eE}{m_e}}$  approximately equal to the phase velocity of the electrostatic wave  $v_\phi$ . To verify this criterion, the maximum phase velocity generated at the resonance can be calculated as  $v_\phi = f\Delta$  [35], where  $f = \omega/2\pi$  is the wave frequency and  $\Delta$  is the resonance width given by  $\Delta = 2\frac{v_{eff}(r_{res})}{\omega}L(r_{res})$  [12], [15], [20], with  $v_{eff}(r_{res})$  being an effective collision frequency accounting for collisionless electron heating. In the numerous theoretical and modeling studies related to electron heating by resonance phenomena, when the maximum field at resonance position is limited by thermal convection, the effective collision frequency can be written as  $v_{eff} = \omega\left(\frac{\lambda_D}{L}\right)^{2/3}$  [12], [33], [34], [36], where  $\lambda_D$  is the electron Debye length. If thermal effects are insufficient ( $\lambda_D/L \ll 1$ ), electron trapping maybe large enough for wave breaking to occur, thus limiting the resonance amplitude below the amplitude set by thermal convection. In such cases, the coherent nature of the electrostatic oscillations is

lost into turbulence, i.e. a set of non-linear waves highly damped by Landau damping [34], [39], [40]. In this study,  $\lambda_D/L$  ranges between 0.3 (2 mTorr) and 1 (20 mTorr); wave breaking thus seems unlikely.

At  $f = 600$  MHz, over the range of conditions of Figure 8, the calculated resonance width  $\Delta$  ranges from 0.4 to 0.7 mm. This corresponds to phase velocities of  $2 - 4 \times 10^7$  cm s<sup>-1</sup> and thus to electron energies between 0.16 and 0.5 eV. These low-energy electrons could therefore be accelerated to form the high-energy tail seen in the results presented in this study. In addition, Langmuir waves can propagate within the distance “ $d$ ” corresponding to the distance between the resonance point and the reactor walls. Assuming that  $\lambda = \Delta$  is the largest wavelength that could be generated by the resonance [35], it ensures that  $d/\lambda$  is of the order of 1. Therefore, in this study, Langmuir waves can propagate down the density gradient at least over one wavelength. Furthermore, the damping rate of Langmuir waves must be large enough for efficient transfer to plasma electrons. A numerical solution proposed by Thorne and Summers [41] provides an absorption length of less than 0.1 mm at the resonance position and over the range of conditions examined here. This absorption length is about 10 times smaller than the space available for Langmuir wave propagation, thus insuring highly efficient electron heating.

As mentioned above, collisionless electron heating in the microwave plasma column could *a priori* also be attributed to transit-time heating if the electron transit-time in the resonance region  $\tau = \frac{\Delta}{v_e}$  is smaller enough than the resonance period  $T = \frac{1}{f}$ . If the transit time is too long, electrons oscillate in the resonance without gaining any energy on average. If the transit time is too short, electrons pass through the resonance without any interaction with. Finally, if it is comparable, electron can be accelerated and then decelerated by the reversing field gaining no energy. L. Alves *et al* [15] provided an estimation of the energy gain by an electron by transit-time heating through the resonance  $\varepsilon_{tr} \approx \frac{eE_r(r_{res})}{2} \Delta$ , where  $E_r(r_{res})$  is the amplitude of the radial component of the electric field at the resonance position. Using  $|E_r|_{max} = \left(\frac{v_{eff}}{\omega}\right)^{-1} |E_d|$  [12], [33], [34], [36]–[38], this gives  $\varepsilon_{tr} \propto |eE_d| L$ . This behaviour is similar to the one provided above for  $\varepsilon_L$  due to Landau damping of Langmuir waves. It is also consistent with the results depicted in Figure 8. However, according to Y. Aliev & A. Maximov [20], transit-time heating is the most

efficient when  $\tau = \frac{T}{4\pi}$ . This condition is satisfied for electrons with velocities  $v_e = 4\pi f\Delta$ . With  $f = 600 \text{ MHz}$  and resonance widths in the range  $\Delta = 0.4 - 0.7 \text{ mm}$ , this leads to electron velocities ranging between  $3.0 \times 10^8 - 5.3 \times 10^8 \text{ cm/s}$ , meaning electron energies between 26 and 80 eV, respectively. Therefore, one may conclude that too few electrons would be heated by transit-time heating. As observed by other authors in microwave plasmas [10], [15], [23], [42], the transit time of the majority of electrons is not long enough such that heating should be efficient at higher pressure. Such trend is inconsistent with our results, thus ruling out significant contributions from transit-time heating over the range of experimental conditions examined in this study

## 5. Conclusions

In low pressure surface-wave plasmas, a resonance forms in the electric field component parallel to the radial density gradient and could lead to collisionless energy absorption by transit-time heating or by the excitation of Langmuir waves and their subsequent absorption by Landau damping. In order to investigate which of these two mechanisms is dominant, fast electron generation was observed in low-pressure argon 600 MHz surface-wave plasmas by trace rare gases optical emission spectroscopy. The electron population featured a high energy tail temperature ( $T_e^{Tail}$ ) that increased with respect to the average electron temperature ( $T_e^{All}$ ) as one moves away from the wave launcher, thus as the radially-averaged electron number density decreased and the resonance position moved away from the reactor walls. It has been found that, within the conditions of this study, transit-time heating could not explain the behavior of the observed high-energy tail. However, a significant number of electrons have their thermal velocity matching the phase velocity of the electrostatic wave and these waves have enough space to propagate and be absorbed. Moreover, fast electron generation rises as the characteristic length of the plasma density gradient calculated at the resonant position increases, in very good agreement with the predictions of theoretical and numerical simulations..

## REFERENCES

- [1] M. Moisan and Z. Zakrzewski, "New surface wave launchers for sustaining plasma

- columns at submicrowave frequencies (1-300 MHz),” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 58, no. 10, pp. 1895–1900, 1987.
- [2] M. Moisan and Z. L. B.-M. Zakrzewski, “Plasma sources based on the propagation of electromagnetic surface waves,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 24, no. 7, p. 1025, 1991.
- [3] C. M. Ferreira and M. Moisan, “Microwave Discharges Fundamentals and Applications,” in *Journal of Chemical Information and Modeling*, Nato Scien., vol. 302, 1993, p. 445.
- [4] L. Stafford, J. Margot, O. Langlois, and M. Chaker, “Barium–strontium–titanate etching characteristics in chlorinated discharges,” *J. Vac. Sci. Technol. A Vacuum, Surfaces, Film.*, vol. 21, no. 4, pp. 1247–1252, 2003.
- [5] V. M. M. Glaude, M. Moisan, R. Pantel, P. Leprince, and J. Marec, “Axial electron density and wave power distributions along a plasma column sustained by the propagation of a surface microwave,” *J. Appl. Phys.*, vol. 51, no. 11, pp. 5693–5698, 1980.
- [6] M. Moisan *et al.*, “Properties and applications of surface wave produced plasmas,” *Rev. Phys. Appl.*, vol. 17, pp. 707–727, 1982.
- [7] J. Margot-Chaker *et al.*, “Tube diameter and wave frequency limitations when using the electro magnetic surface wave in the  $m=1$  (dipolar) mode to sustain a plasma column,” *J. Appl. Phys.*, vol. 66, no. 9, pp. 4134–4148, 1989.
- [8] S. Mattei, O. Boudreault, R. Khare, L. Stafford, and V. M. Donnelly, “Characterization of a low-pressure chlorine plasma column sustained by propagating surface waves using phase-sensitive microwave interferometry and trace-rare-gas optical emission spectroscopy,” *J. Appl. Phys.*, vol. 109, no. 11, 2011.
- [9] P. Chabert and N. Braithwaite, *Physics of Radio-Frequency Plasmas*. 2011.
- [10] O. Boudreault *et al.*, “Nonlocal effect of plasma resonances on the electron energy-distribution function in microwave plasma columns,” *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear, Soft Matter Phys.*, vol. 86, no. 1, pp. 1–5, 2012.
- [11] M. A. Lieberman and A. J. Lichtenberg, *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing: Second Edition*. 2005.
- [12] Y. M. Aliev, V. Y. Bychenkov, A. V Maximov, and H. Schluter, “High energy electron generation in surface-wave-produced plasmas,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 1, no. 2, p. 126, 1992.
- [13] Y. M. Aliev and A. V. Maximov, “The influence of the plasma resonance heating on the

- maintenance of surface wave produced discharges,” vol. 464, 1993.
- [14] yu. M. Aliev, J. Berndt, H. Schluter, and A. Shivarova, “Numerical calculations on surface wave propagation in longitudinally non-uniform plasmas,” *Plasma Phys. Control. Fusion*, vol. 36, no. 6, p. 937, 1994.
  - [15] L. L. Alves, S. Letout, and C. Boisse-Laporte, “Modeling of surface-wave discharges with cylindrical symmetry,” *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear, Soft Matter Phys.*, vol. 79, no. 1, pp. 66–70, 2009.
  - [16] C. M. Ferreira, “Theory of a plasma column sustained by a surface wave,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 14, pp. 1811–1830, 1981.
  - [17] C. M. Ferreira and 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,” *Phys. Scr.*, vol. 38, pp. 382–399, 1988.
  - [18] K. Makasheva and A. Shivarova, “Surface-wave-produced plasmas in a diffusion-controlled regime,” *Phys. Plasmas*, vol. 8, no. 3, pp. 836–845, 2001.
  - [19] S. Letout, C. Boisse-Laporte, and L. L. Alves, “Electron-drift detection using directional planar probes in a low-pressure coaxial surface-wave discharge,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 89, no. 24, pp. 1–4, 2006.
  - [20] Y. M. Aliev and A. V. Maximov, “Modeling of microwave discharges in the presence of plasma resonances,” *Phys. Rev. E*, vol. 51, no. 6, p. 6091, 1995.
  - [21] A. Durocher-Jean, L. Stafford, S. Dap, K. Makasheva, and R. Clergereaux, “Evidence of local power deposition and electron heating by a standing electromagnetic wave in electron-cyclotron-resonance plasma,” *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear, Soft Matter Phys.*, vol. 90, no. 3, pp. 1–8, 2014.
  - [22] I. Ghanashev, H. Sugai, S. Morita, and N. Toyoda, “Local resonant excitation of plasma oscillations in a planar surface-wave plasma device,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 8, no. 3, p. 363, 1999.
  - [23] T. Terebessy, M. Kando, and J. Kudela, “Detection of localized hot electrons in low-pressure large-area microwave discharges,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 77, no. 18, pp. 2825–2827, 2000.
  - [24] J. Kudela, T. Terebessy, and M. Kando, “Hot-electron flux observation in large-area microwave sustained plasmas,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 76, no. 10, pp. 1249–1251, 2000.

- [25] V. M. Donnelly, "Plasma electron temperatures and electron energy distributions measured by trace rare gases optical emission spectroscopy," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 37, no. 19, pp. R217–R236, 2004.
- [26] A. Durocher-Jean, L. Stafford, M. Rojo, S. Dap, K. Makasheva, and R. Clergereaux, "Spatially modulated emission of ECR plasmas in helium," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, vol. 42, no. 10, pp. 2762–2763, 2014.
- [27] L. Stafford, R. Khare, V. M. Donnelly, J. Margot, and M. Moisan, "Electron energy distribution functions in low-pressure oxygen plasma columns sustained by propagating surface waves," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, no. 2, pp. 2007–2010, 2009.
- [28] J. Margot and M. Moisan, "Characteristics of surface-wave propagation in dissipative cylindrical plasma columns," *J. Plasma Phys.*, vol. 49, no. 3, pp. 357–374, 1993.
- [29] M. Moisan, Z. Zakrzewski, and R. Pantel, "The theory and characteristics of an efficient surface wave launcher (surfatron) producing long plasma columns," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 12, no. 2, pp. 219–237, 1979.
- [30] J. Margot-Chaker, M. Moisan, Z. Zakrzewski, V. M. Glaude, and G. Sauvé, "Phase sensitive methods to determine the wavelength of electromagnetic waves in lossy nonuniform media: The case of surface waves along plasma columns," *Radio Sci.*, vol. 23, no. 6, pp. 1120–1132, 1988.
- [31] G. Pretzier, "A New Method for Numerical Abel-Inversion," *Zeitschrift für Naturforsch. A*, vol. 46, no. 7, pp. 639–641, 1991.
- [32] S. Mattei, O. Boudreault, R. Khare, L. Stafford, and V. M. Donnelly, "Characterization of a low-pressure chlorine plasma column sustained by propagating surface waves using phase-sensitive microwave interferometry and trace-rare-gas optical emission spectroscopy," *J. Appl. Phys.*, vol. 109, no. 11, 2011.
- [33] J. . Boeuf, "Kinetic model of collisionless resonant absorption in a surface-wave plasma," pp. 3–7.
- [34] F. David, "Resonant absorption in a self-consistent density profile at moderate intensities," *Phys. Fluids*, vol. 26, no. 3, p. 747, 1983.
- [35] A. Bergmann and P. Mulser, "Breaking of resonantly excited electron plasma waves," *Phys. Rev. E*, vol. 47, no. 5, pp. 3585–3589, 1993.
- [36] K. G. Estabrook, E. J. Valeo, and W. L. Kruer, "Two-dimensional relativistic simulations

- of resonance absorption,” *Phys. Fluids*, vol. 18, no. 9, p. 1151, 1975.
- [37] A. G. Serveniere-heron and J. C. Adam, “Pseudosolitons formation in resonant absorption of electromagnetic waves,” vol. 2005, no. 1984, 2005.
- [38] M. Colunga, P. Mora, and R. Pellat, “Resonant absorption in a steep density profile,” *Phys. Fluids*, vol. 28, no. 1985, p. 854, 1985.
- [39] P. S. Verma, S. Sengupta, and P. Kaw, “Residual Bernstein-Greene-Kruskal-like waves after one-dimensional electron wave breaking in a cold plasma,” *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear, Soft Matter Phys.*, vol. 86, no. 1, pp. 1–6, 2012.
- [40] P. Koch and J. Albritton, “Electron and Ion Heating Through Resonant Plasma Oscillations,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 32, no. 2, pp. 1420–1423, 1974.
- [41] R. M. Thorne and D. Summers, “Landau damping in space plasmas,” *Phys. Fluids B Plasma Phys.*, vol. 3, no. 8, p. 2117, 1991.
- [42] I. P. Ganachev and H. Sugai, “Production and control of planar microwave plasmas for materials processing,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 11, pp. A178–A190, 2002.

## Chapitre 4

# Phénomènes de résonance dans les plasmas à la résonance cyclotronique électronique

Au chapitre 3, nous avons confirmé que les phénomènes de résonance dans les plasmas d'onde de surface peuvent conduire à la production d'électrons chauds; le chauffage non collisionnel des électrons est lié à la conversion au point de résonance de l'onde électromagnétique de surface en ondes électrostatiques et leur absorption par effet Landau. En présence d'un champ magnétique externe, le modèle de permittivité de Drude présenté au chapitre 1 se complexifie; la permittivité du plasma  $\epsilon_p$  devient un tenseur et une grande variété d'ondes avec des résonances et des fréquences de coupures différentes peuvent se propager [1, p. 114], [90]. De manière générale, une onde électromagnétique dans un plasma en présence d'un champ magnétique se décompose en une onde polarisée circulaire droite (PCD) et une onde polarisée circulaire gauche (PCG) [1, p. 114]. Dans ce type de plasma, les électrons suivent un mouvement circulaire à la fréquence cyclotronique  $\omega_{ce} = eB/m_e$  où  $e$  et  $m_e$  sont respectivement la charge et la masse de l'électron et  $B$  est l'intensité du champ magnétique. Lorsque la fréquence cyclotronique d'un électron est égale à la fréquence de l'onde électromagnétique PCG appliquée, il voit dans son système de référence un champ électrique constant et est constamment accéléré. Il en résulte un chauffage non collisionnel des électrons, communément appelé chauffage RCE (résonance cyclotronique électronique). Dans ce chapitre, nous explorons la production d'électrons chauds dans des plasmas magnétisés, en particulier ceux entretenus à la résonance cyclotronique électronique. Dans ces plasmas, en plus des phénomènes de résonances mentionnés plus haut, la présence d'électrons chauds peut aussi résulter du chauffage RCE. Les données sont présentées sous forme d'article récemment publié dans *Physics of Plasmas* (AIP ID: 008809PHP ; ED Code: POP55413). La contribution des auteurs est la même que pour l'article du chapitre 3.

# Probing suprathermal electrons by trace rare gases optical emission spectroscopy in low pressure dipolar microwave plasmas excited at the electron cyclotron resonance

S. Boivin<sup>1</sup>, X. Glad<sup>1</sup>, L. Latrasse<sup>2</sup>, A. Sarkissian<sup>3</sup>, and L. Stafford<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Département de physique, Université de Montréal, Montréal, Québec, Canada

<sup>2</sup> Sairem, SAS, Neyron, France

<sup>3</sup> Plasmionique inc. Varennes, Québec, Canada

## Abstract

In microwave plasmas with the presence of a magnetic field, fast electrons could result from collisionless energy absorption under electron cyclotron resonance (ECR) conditions. In this case, electrons are trapped between the two poles of the magnetic field and rotate at the cyclotron frequency  $\omega_{ce}$ . When crossing a zone where the cyclotron frequency equals the microwave frequency ( $\omega_{ce} = \omega$ ), electrons see a steady electric field in their reference frame and are constantly accelerated by the right handed polarized (RHP) wave. When the plasma density reaches the so-called critical density  $n_c$  at which  $\omega_{pe}^2 = \omega^2 \pm \omega\omega_{ce}$ , where  $\omega_{pe}$  is the plasma electron frequency, the left handed polarized (LHP) electromagnetic wave can excite electrostatic waves that can produce collisionless electron heating and fast electron generation by Landau damping. In this study, a combination of Langmuir probe and trace rare gases optical emission spectroscopy (TRG-OES) is used to analyze the electron energy probability function (EEPF) in microwave (2.45 GHz) low-pressure argon plasmas excited at ECR in a dipolar magnetic field. While both TRG-OES and Langmuir probe measurements agree on the effective electron temperature ( $T_e^{All}$ ) from 1.6 to 50 mTorr, TRG-OES, which is more sensitive to high energy electrons, shows that the EEPF is the sum of two Maxwellian populations: one described by  $T_e^{All}$  and a high energy tail characterized by a temperature  $T_e^{Tail}$ . Spatially-resolved-TRG-OES measurements show that the high-energy tail ( $T_e^{Tail}$ ) in the EEPF is spatially localized near the magnet while the effective electron temperature ( $T_e^{All}$ ) stays constant. The ratio between the high

---

\* Corresponding author: Luc.Stafford@umontreal.ca

energy tail and the effective temperatures is found to increase with the absorbed microwave power and decrease with increasing pressure. The former phenomenon is ascribed to a rise in ECR heating due to a stronger RHP waves electric field and to an enhanced absorption of the LHP waves. On the other hand, the decrease of the ratio is attributed to a smaller magnetic confinement of the electrons (increase of the collision frequency), which lessens ECR heating and to a decrease of the LHP field intensity at the resonant position, which impedes the conversion into electrostatic waves.

## 1. Introduction

Electron cyclotron resonance (ECR) plasmas cover a wide range of applications, in particular plasma deposition and etching of thin films [1]–[4]. For such applications, large-volume plasmas with excellent uniformity over large-area wafers as well as high population densities of positive ions and reactive neutral species are required. Multiple concepts have been suggested to meet these characteristics. Distributed ECR (DECR) plasmas [1], [5]–[11], which combine a multipolar magnetic field and antennas, can produce uniform plasmas under very-low-pressure conditions (large electron mean free paths). At higher pressures, a standing-wave can be achieved; this leads to greater electron densities though uniformity over very-large plasma volumes becomes more difficult to obtain [5], [6], [8], [12]. Additionally, because the applied electromagnetic (EM) field needs to propagate along the multipolar magnetic structure, plasma densities usually cannot exceed the so-called critical number density  $n_c$  in magnetized plasmas obtained from the condition  $\omega_{pe}^2 = \omega^2 \pm \omega\omega_{ce}$ , where  $\omega_{ce} = eB/m_e$  is the electron gyration frequency,  $B$  is the magnetic field intensity,  $m_e$  is the electron mass,  $e$  is the electron charge, and  $\omega_{pe} = \sqrt{n_e e^2 / m_e \epsilon_0}$  is the electron plasma frequency, with  $\epsilon_0$  being the free space permittivity, and  $n_e$  being the electron density. At 2.45 GHz, with  $B = 0$  G, this condition yields  $n_c = 7.5 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$  [13]. To overcome the limitations of under-dense plasmas, two-dimensional network of independent dipolar ECR source with their own microwave EM field applicator have been suggested and used [8], [9], [14], [15]. This concept is very promising because it can sustain highly uniform plasmas over very large volumes with plasma densities much higher than the critical density.

In dipolar ECR plasmas, high-energy electrons are trapped and oscillate between the two poles of the magnet in a helical motion at the electron cyclotron frequency  $\omega_{ce}$ . With the addition of a perpendicular oscillating electric field, ECR heating is achieved under resonant conditions in which the electron cyclotron frequency equals the field frequency ( $\omega = \omega_{ce}$ ). At 2.45 GHz, this condition gives  $B = 875$  G. In such systems, the gyrating electrons see in their reference frame a steady electric field and are constantly accelerated leading to a conical spiral motion and collisionless energy absorption. The background gas can then be excited and ionized by these trapped, high-energy electrons, thus generating a highly uniform plasma away from the ECR region [16, p. 492], [17, p. 130]. ECR plasmas can therefore be obtained at a much lower pressure than conventional plasmas relying only on ohmic (collisional) heating [1].

In ECR plasmas, the electromagnetic wave comprises both right-handed polarized (RHP) and left-handed polarized (LHP) waves. However, only the RHP waves can be resonantly absorbed under ECR conditions [16, p. 116], [18], [19]. Thus, ECR heating alone cannot explain the high degree of absorbed power (> 95%) of both the RHP and LHP waves. As proposed by *O. Popov* [18], LHP waves can be converted into electrostatic wave near the microwave applicator where the critical number density is reached. In such conditions, collisionless electron heating most likely arises by Landau damping of electrostatic waves. This phenomenon is well known in unmagnetized plasmas sustained by travelling electromagnetic surface waves. In such plasmas, the self-consistent interaction between the travelling wave and the plasma yields an overdense discharge in which, because of plasma inhomogeneities near the reactors walls, a resonance can be developed where the plasma density equals the critical density ( $\omega_{pe} \approx \omega$ ; the real part of the plasma permittivity goes through zero) [20]–[28]. This resonance is characterized by a sharp peak in the electric field component parallel to the plasma density gradient [23], [26]. Many theoretical and numerical studies pointed out that this resonance can produce fast electrons; a result ascribed to the conversion of long-wavelength electromagnetic surface waves into short-wavelength electrostatic Langmuir waves that can be absorbed by Landau damping [11], [20], [27]–[29].

A number of authors have examined the electron energy probability function (EEPF) in ECR plasmas. In most cases, the EEPF can be described as the sum of two Maxwellian distributions: the first one corresponds to the high-energy tail resulting from ECR heating and the second one

corresponds to the cold electrons emanating from collisions between fast electrons and the surrounding gas [10], [12], [13], [18], [30]–[33]. Using Langmuir probe, Lagarde *et al.* [10] have reported a high-energy tail of up to 17 eV that remains trapped in the magnetic field lines while the cold electron population diffuses away with a quasi-constant temperature ( $\sim 4$  eV). However, it is well established that Langmuir probe measurements are strongly distorted under magnetized plasma conditions. In addition, assessment of the high-energy electrons may be difficult due to their low density and due to the presence of a large ion current that needs to be subtracted from the total measured current.

This work reports the use of a non-intrusive trace-rare-gases-optical-emission-spectroscopy (TRG-OES) technique [34] to examine fast electron generation in a microwave Ar plasmas sustained at low pressure under ECR conditions. First, the experimental setup and the TRG-OES method applied to mostly Ar plasmas are described. Then, spatially-resolved results are presented and discussed over a wide range of experimental conditions.

## 2. Experimental Details

Figure 1 a) shows a schematic of the reactor used in this work. It comprises a 55-mm radius and 40-cm long vacuum chamber evacuated by turbomolecular and rotary pumps leading to a base pressure of  $2 \times 10^{-7}$  Torr. The Aura-wave ECR generator from Sairem SAS injects between 20 and 200 W of microwave power at 2.45 GHz at the base of the dipolar samarium-cobalt magnet ( $y = -20$  mm, see Figure 1). As shown on Figure 1 b), the ECR region where the electron cyclotron frequency matches the applied microwave frequency ( $B = 875$  G at 2.45 GHz) is located at about 3 mm from the end of the magnet ( $y = 3$  mm, see Figure 1) and all around the magnet. 5 sccm (standard cubic centimeters per minute) of argon along with 0.5 sccm of a mixture of rare gases from a premixed-gas bottle (40% Ne and 20% each for Ar, Kr, and Xe) is injected for TRG-OES measurements (see details below). The total pressure is measured with a Baratron gauge. In this work, the pressure is adjusted between 1.6 and 50 mTorr using a throttle valve located at the entrance of the pumping system. Typical optical images of the plasma at 1.6, 3, and 6 mTorr are presented in Figure 2.

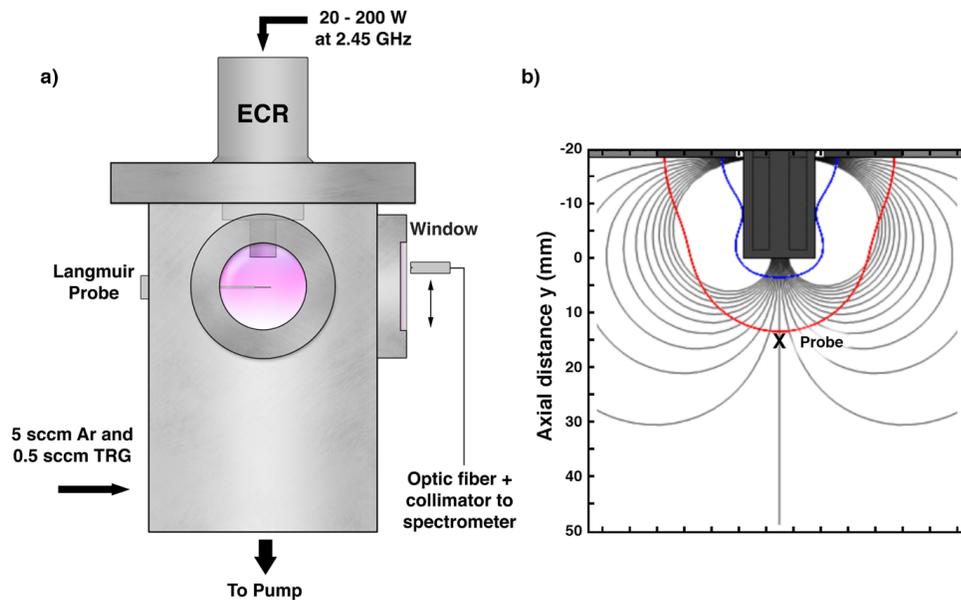
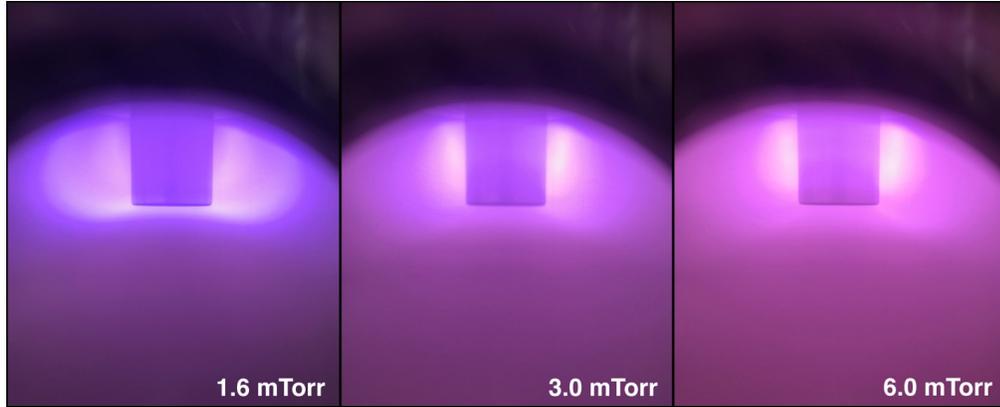


Figure 1 :a) Schematic of the experimental setup comprising the vacuum chamber, the ECR source from Sairem SAS, and the electrical and optical diagnostics. b) Configuration of the magnetic field produced by the dipolar magnet. The red line corresponds to the field line  $B=100$  G and the blue one to 875 G, i.e. the ECR condition at 2.45 GHz. The probe position is marked by a "X" and is perpendicular to the magnetic field lines.



*Figure 2 : Optical images of the plasma at 1.6, 3 and 6 mTorr for 100 W of absorbed power.*

For selected conditions, TRG-OES measurements were combined with Langmuir probe measurements obtained using a tungsten cylindrical (0.5 mm diameter, 8 mm long) probe located at 15 mm from the end of the magnet as shown on Figure 1. The probe is connected to a Keithley 2450 SourceMeter from Tektronix, Inc. to gather current-voltage characteristics. For such measurements, the probe voltage was varied between -40 and 40 V. In magnetized plasmas, low energy electrons with Larmor radius comparable or smaller than the probe radius could be affected by the magnetic field and therefore distort the current recorded near the plasma potential [35], [36]. At the probe position, the magnetic field of  $\sim 100$  G yields a Larmor radius of 0.76 mm for 5 eV electrons and smaller values for colder ones. The collection of electrons having a Larmor radius similar or smaller than the probe radius should thus be depleted. To minimize these effects, the probe was placed perpendicularly to the magnetic field lines [37].

In order to gather information on fast electron generation and collisionless electron heating in ECR conditions, TRG-OES measurements and analysis were carried out [34]. This method uses the appropriate electron-impact cross-sections and branching ratios to estimate relative emission intensities from Ne, Ar, Kr and Xe 2p levels (Paschen notation) using a collisional-radiative model

assuming a Maxwellian EEPF. This model includes direct excitation on the ground state and stepwise excitation on the metastable 1s levels for the population of emitting 2p states. Rare gases 2p levels having rather different energy threshold for electron-impact excitation (9.6-13 eV for Ar, Kr, and Xe and  $< 2$  eV for stepwise excitation processes), their relative emission intensity highly depends on the EEPF. Detailed analysis of all Ar, Kr, and Xe lines by this method thus yields an electron temperature averaged over most of the EEPF. In contrast to probe measurements, this method is non-intrusive, highly sensitive to high-energy electrons, and is not perturbed by the presence of a magnetic field.

In this study,  $T_e$  was first determined using 33 emission lines from Ar, Kr and Xe that are populated by both stepwise excitation on the metastable levels ( $< 2$  eV) and by direct excitation on the ground state (9.6-13 eV). As described above, this yields a temperature averaged over most of the EEPF; this temperature is here denoted as  $T_e^{All}$ . Using only the Ar 2p<sub>1</sub>, 2p<sub>5</sub> (750.4 and 751.5 nm) and the Ne 2p<sub>1</sub> (585.24 nm) emission lines, a second temperature was also calculated; this temperature is denoted here as  $T_e^{Tail}$ . These levels being populated almost exclusively ( $> 95\%$ ) by electron-impact excitation on the ground state of Ar and Ne atoms and thus requiring electron energies of at least 12.9-13.5 for Ar and 19 eV for Ne, this method yields a temperature that corresponds to the high-energy portion or the high-energy tail of the EEPF. It is worth mentioning that for gases with ionization potentials below the energy of the Ne 2p levels (such as Ar), Ne emission is usually either weak or not observable in discharges with near Maxwellian distributions. The presence of Ne emission in such plasmas thus reveals a significant population of high-energy electrons. In the case of perfectly Maxwellian EEPF,  $T_e^{All} = T_e^{Tail}$ .

For all TRG-OES measurements reported in this study, plasma emission was collected from 500 to 900 nm by an optical fiber mounted on a motorized rail equipped with a collimator and monitored using a wavelength-calibrated and intensity-calibrated optical emission spectrometer. Spectra were first acquired by maximizing the integration time on the spectrometer every 0.5 nm to have a good signal-to-noise ratio on all possible emission lines. For a few conditions, the most intense emission lines were saturated to allow the highest possible signal-to-noise ratio on the

weakest lines. A typical spectrum is presented in Figure 3a). In addition, the relative emission lines calculated by the collisional-radiative model for both  $T_e^{All}$  and  $T_e^{Tail}$  are presented. The collisional-radiative model used in TRG-OES analysis minimizes the standard deviation between observed and calculated lines yielding some lines under- and/or overestimated. Since the EEPF is usually not Maxwellian in ECR conditions [10], [12], [13], [30]–[33] and since measurements and cross-sections have uncertainty (around 15% [34]), statistical variance is to be expected .

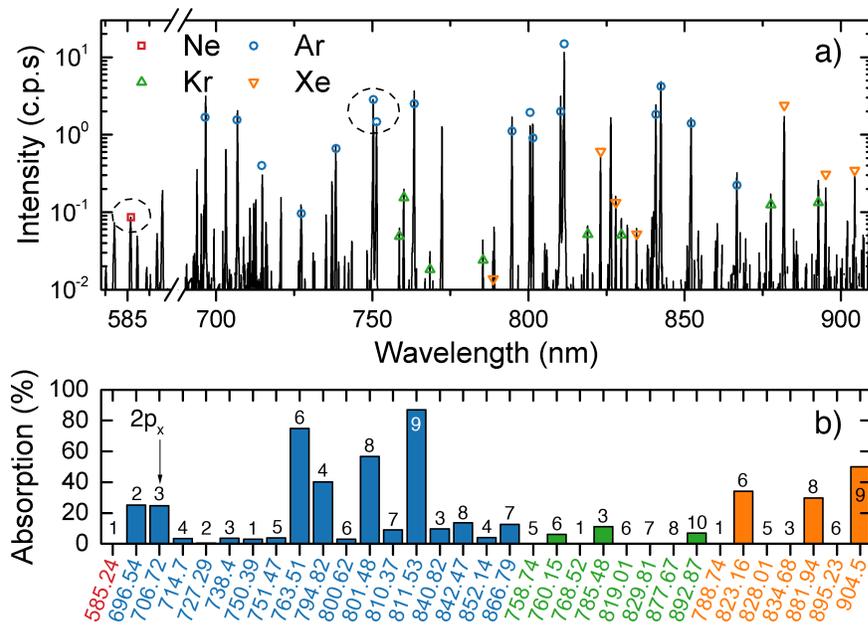


Figure 3: a) Measured and calculated emission line intensities. Conditions: argon/TRG = 90/10%, 1.6 mTorr, 100W of absorbed MW power at 2.45 GHz and  $y = 15$  mm. The circled lines (Ne 585.24 and Ar 750.39 and 751.47 nm) correspond to the calculated intensity for  $T_e^{Tail}$ . All lines excluding the Ne 585.24 nm are used to obtain  $T_e^{All}$  (Ar 750.39 and 751.47 nm, not shown for  $T_e^{All}$ ). b) Radiation trapping calculated for each emission lines. The number on each bar correspond to the  $2p_x$  emission level. Color map: red = Ne, blue = Ar, green = Kr, orange = Xe.

It is meaningful to note that the collisional-radiative model generally used for TRG-OES was originally developed by Donnelly for plasmas operated in molecular gases, with the Ne, Ar, Kr, and Xe injected in trace amounts [34], [38]–[43]. In such conditions, the medium is assumed optically thin for Ne, Ar, Kr, and Xe emission lines. In mostly Ar plasmas, however, radiation trapping of Ar emission lines is expected to play a significant role. In this context, the TRG-OES model was refined using the concept of escape factor  $\theta_{ij}$  for  $i$ -to- $j$  transition. This concept was introduced following the Mewe formula [44]:

$$\theta_{ij} = \frac{2 - \exp(10^{-3}k_0l)}{1 + k_0l}, \quad (1)$$

where  $l$  is the absorption half-length (the radius of the reactor, about 55 mm) and  $k_0$  is the absorption coefficient at the center of the line assuming Doppler broadening [45, p. 255]. In this framework, radiation trapping has two effects: 1) to populate the 2p levels via photon absorption by a metastable or resonant 1s state and 2) to reduce the final emission line intensity since the line emission intensity  $I_{ij}$  of a specific  $i$ -to- $j$  transition becomes  $\theta_{ij}I_{ij}$  ( $\theta_{ij}$  is between 0 and 1). The calculated absorption due to radiation trapping ( $1-\theta_{ij}$ ) is shown in Figure 3b) for every emission lines used in this study. This phenomenon is usually large for high-intensity lines (high Einstein coefficient for spontaneous emission) and transitions having a metastable state as the lower levels. Over the range of experimental conditions examined, the most populated 1s level is 1s<sub>5</sub> (metastable state) and the emission line with the most radiation trapping Ar 811.53 nm comes from a 2p<sub>9</sub>→1s<sub>5</sub> transition. One may note that xenon emission lines present relatively high absorption even if xenon is injected in trace amounts. This is due to the relatively low threshold energies of xenon metastable states (8.32 eV for 1s<sub>5</sub>) and thus their relatively high population densities computed in the collisional-radiative model. In addition, the Einstein coefficient of selected xenon transitions can be very high. Finally, in molecular gases, the quenching rate of metastable species from the rare gases due to collision with molecular species is about 10<sup>5</sup> times greater than the ones involved in mostly Ar plasmas; this considerably decreases the population of metastable species in molecular plasmas and thus possible radiation trapping effects [46].

### 3. Experimental Results

Figure 4 shows the evolution of the mean electron temperature ( $T_e^{All}$ , full squares) and the high-energy tail ( $T_e^{Tail}$ , full circles) of the EEPF obtained by TRG-OES along the axial distance  $y$ . At 1.6 mTorr and 100 W, the EEPF departs from a Maxwellian with the presence of a high-energy tail ( $T_e^{Tail} > T_e^{All}$ ). In addition,  $T_e^{All}$  appears to be fairly independent on  $y$ . This behaviour is expected since the mean electron energy should only depend on the pressure and reactor dimensions; this result can be deduced from a simple zero-dimensional model based on the particle balance equation of charged species (see below, Eq. 2).

On the other hand, the results presented in Figure 4 reveal that  $T_e^{Tail}$  exhibits very strong variations with  $y$ : a maximum value (18 eV) is observed at  $y = 2$  mm and then a strong decrease occurs between 15 and 25 mm. In addition,  $T_e^{Tail}$  reaches a local maximum at  $y = -3$  mm and another, broader, between 1 and 5 mm. These maxima correspond to the ECR zones as shown in Figure 1a). Indeed, high-energy electrons are trapped in the magnetic field for multiple gyro-rotations and gain energy as they subsequently pass through the ECR zones. The slight shift between the ECR zone at which  $\omega_{ce} = \omega$  can be explained by a Doppler shift in the resonance condition. For fast electrons, the condition reads  $\omega + kv_{res} = \omega_{ce}(y_{res})$ , where  $k$  is the wavenumber of the RHP wave,  $v_{res}$  is the electron speed at resonance, and  $y_{res}$  is the resonance position [47, p. 37]. As shown by *J. Stevens et al.* [48], this shift may broadened the ECR zone by up to 4 mm, which is consistent with our measurements. Finally, these high-energy electrons can escape the magnetic trap with collisions, which explains the relatively high (and constant) energy tail observed from 15 to 25 mm. Similar results were obtained experimentally by *T. Lagarde et al.* [10]. Their EEPF exhibited a high energy tail that varied from 17 to 14 eV over the axial distance while the colder electron temperature stayed nearly constant at  $\sim 4$  eV.

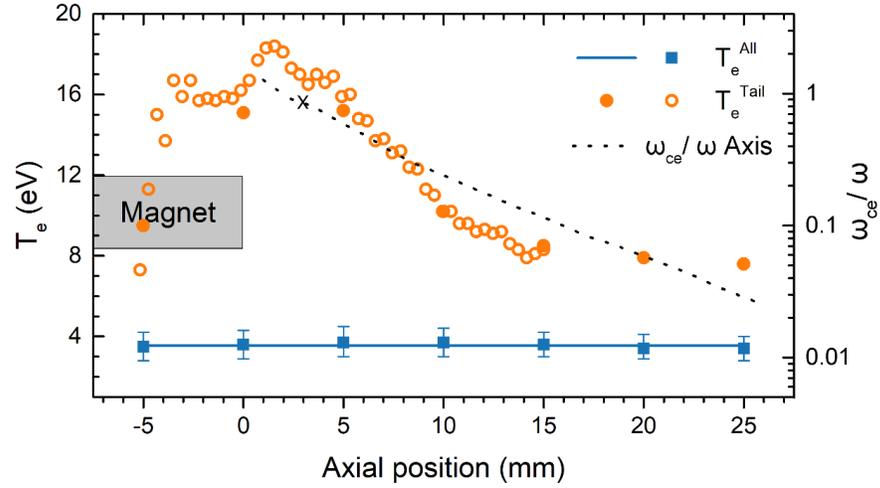


Figure 4: Mean and high energy electron temperatures ( $T_e^{All}$  and  $T_e^{Tail}$ ) determined by TRG-OES as a function of  $y$  at 100W and 1.6 mTorr. The axial electron cyclotron frequency over the microwave frequency ( $\omega_{ce}/\omega$ ) is also shown.

Similar measurements have been carried out for different absorbed powers. Since  $T_e^{All}$  is almost identical for every  $y$  position (as in Figure 4) and every absorbed power (not shown) detailed in this study, it has been chosen to depict in Figure 5 the variations of the ratio of  $T_e^{Tail}$  over  $T_e^{All}$  (thus analogous to  $T_e^{Tail}$ ). For all powers, the behaviour along  $y$  is identical to the one observed in Figure 4. However, the ratio  $T_e^{Tail}/T_e^{All}$  notably increases with rising absorbed power. The ratio is also far greater near the ECR zone than in the diffusion plasma ( $y > 15$  mm) with maxima increasing from 4.4 to 5.9 for absorbed powers rising from 60 to 180 W, respectively. Note that the ratio is still greater in the diffusion plasma with increasing power since the electron mean free path  $\lambda_e$  at 1.6 mTorr is larger than 15 mm ( $\lambda_e = \frac{1}{\sigma_m n_g}$ , where  $\sigma_m = 10^{19} \text{ m}^2$  is the total cross section for momentum transfer [16, p. 73]).

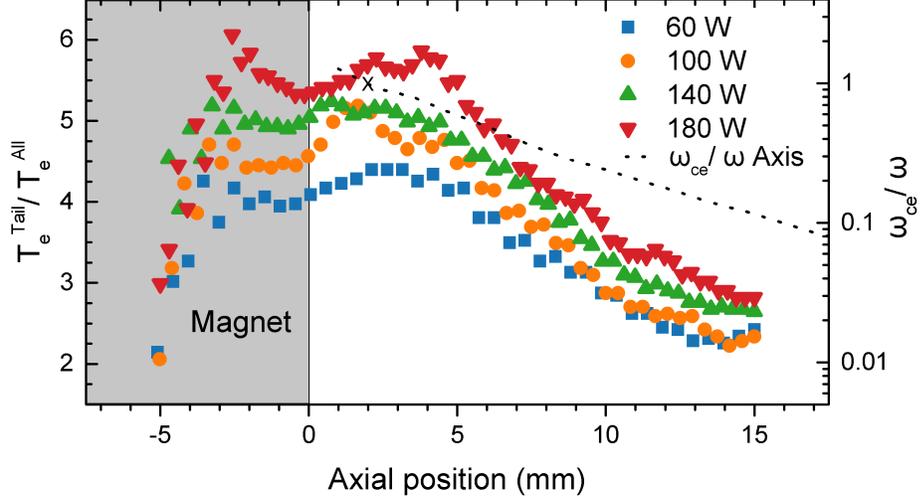


Figure 5 :  $T_e^{Tail}$  over  $T_e^{All}$  (assumed constant over the axial position) as a function of  $y$  at 1.6 mTorr for different absorbed powers (60, 100, 140 and 180 W). The axial electron cyclotron frequency over the microwave frequency ( $\omega_{ce}/\omega$ ) is also displayed.

As proposed by *O. Popov* [18], with growing microwave power, electron density rises in the vicinity of the microwave applicator and eventually reaches the critical density  $n_c$ . At this point, long-wavelength LHP electromagnetic waves can be converted into short-wavelength electrostatic waves that can propagate in the underdense plasma and produced high-energy electrons by Landau damping. In magnetized plasmas conditions, the resonance condition reads  $\omega_{pe}^2 = \omega^2 + \omega\omega_{ce}$  for LHP waves [16, p. 115]. These can therefore propagate in the vicinity of the magnetic structure (large  $\omega_{ce}$ ) before eventually being absorbed as the critical density is reached ( $\omega_{ce}$  decreases as one moves away from the magnet). In overdense microwave plasmas, this mechanism seems more efficient when the resonance is far from the reactor walls [27], [28]. However, in ECR plasmas and with growing microwave power, the electron density significantly rises. This allows reaching the critical density closer to the microwave applicator where the electric field is higher. This effect is likely to increase the conversion of LHP waves into Langmuir wave and thus the subsequent

collisionless electron heating by Landau damping of Langmuir waves. On the other hand, as discussed by *T. Lagarde et al.* [13], increasing the microwave power could also increase the amplitude of the electric field of the RHP wave leading to an enhanced ECR heating and thus a higher population of high-energy electrons. Because both mechanisms occur approximately at the same position and both lead to fast electron generation, it was not possible to differentiate them. Furthermore, at low pressure, the electron energy relaxation length is usually large meaning that the energy that could be gained locally by Landau damping is likely to be redistributed further away in the plasma [16, p. 690]. This aspect was also discussed by Durocher *et al.* [11], [12].

The axial profile of  $T_e^{Tail}$  was also measured for different pressures: 1.6, 3, 6 and 12 mTorr. Since, for a fixed pressure,  $T_e^{All}$  remains constant over  $y$  and because it becomes lower as pressure increases, Figure 6 presents the  $T_e^{Tail}/T_e^{All}$  ratio for meaningful comparison with other data. The evolution of both temperatures as a function of the gas pressure is displayed further in the manuscript (Figure 8). It can be seen that the tail temperature diminishes with respect to the average electron temperature as pressure increases. This is due to the greater number of collisions, which tend to “untrap” the magnetically-confined electrons, and thus prevent them from passing repeatedly through the ECR zone. For example, from 1.6 to 12 mTorr, the electron mean free path goes from 20 mm to 2.6 mm. In addition, it is well established that the electric field at the resonance position decreases with increasing pressure [22], [27]. This would impede the conversion of LHP electromagnetic waves into electrostatic waves, and thus the corresponding collisionless electron heating and fast electron generation. Finally, the spatial variation in the tail temperature becomes less pronounced as the pressure increases. This trend is also observable in Figure 2: at 6 mTorr, the plasma appears more homogeneous and only one ECR region can be observed (at  $y \sim -3$  mm). This corresponds to a local  $T_e^{Tail}/T_e^{All}$  maximum for each pressure.

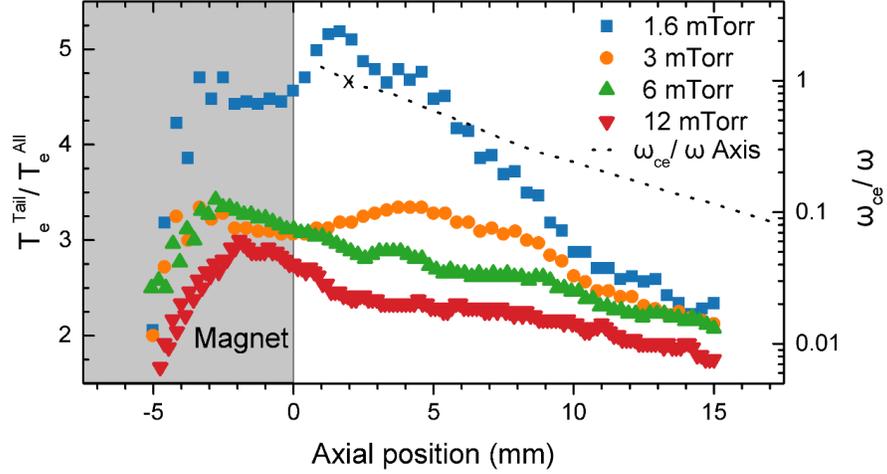


Figure 6 :  $T_e^{\text{Tail}}$  over  $T_e^{\text{All}}$  (assumed constant over the axial position) as a function of the axial distance  $y$  for different gas pressure and 100 W of power absorbed. Results are presented for 1.6, 3, 6 and 12 mTorr. The axial electron cyclotron frequency over the microwave frequency ( $\omega_{ce}/\omega$ ) as a function of the axial distance is also shown on the right axis.

Langmuir probe measurements have also been performed to strengthen the results obtained by TRG-OES. An example of the second derivative of the probe current, which is proportional to the EEPF, is presented in Figure 7 for three gas pressures. There is a slight depletion of the low energy electron population near the plasma potential that may be explained either by the magnetic field (as discussed above), the probe circuit resistance or the probe size [37]. Nonetheless, it is possible to extract the effective electron temperature from the second derivative of the current-voltage characteristics, the linear fit on a semi-logarithmic scale being proportional to  $1/T_e$ . In most conditions examined here, it was not possible to estimate an adequate tail temperature. As shown in , due to the successive derivative operations, the “tail” becomes very noisy with an almost constant slope without any noticeable trend while changing gas pressure. Another method would be to extract the electron current from the current-voltage characteristics but, since the ion saturation current is larger than the current produced by the high-energy electrons, significant

uncertainty would arise in the estimation of  $T_e^{Tail}$ . Therefore, only the effective electron temperature was assessed from Langmuir probe measurements [37].

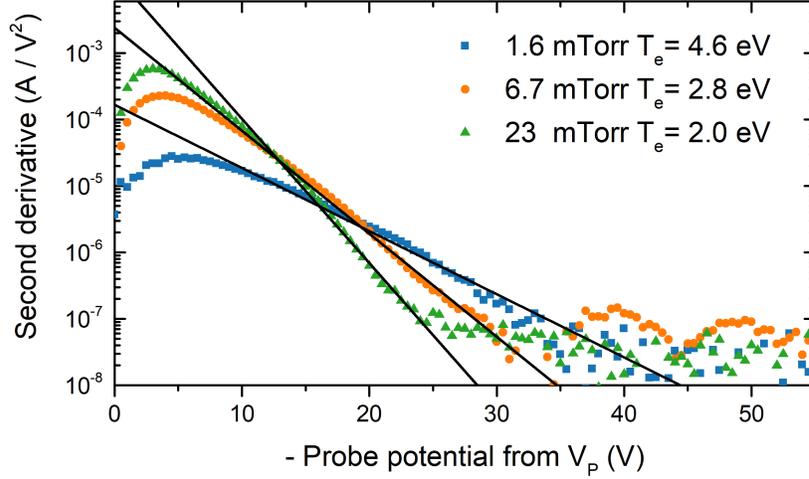


Figure 7 : Second derivative of the IV characteristics for 1.6, 6.7 and 23 mTorr at  $y = 15$  and 100 W of microwave power. The results are presented from the plasma potential ( $V_p$ , 0 in the scale) with decreasing probe potential.

Figure 8 compares the electron temperatures obtained by Langmuir probes and TRG-OES as a function of pressure. For further validation, this set of data is compared to the predictions of a zero-dimensional (global) model based on the particle balance equation of charged species. In this model, charged species are mostly produced by electron-impact ionization on ground state Ar atoms and lost by diffusion towards the reactor walls. In such framework, an effective electron temperature  $T_e^{eff}$  can be obtained from [16, p. 331]:

$$\frac{K_{iz}(T_e)}{u_B(T_e)} = \frac{1}{n_g d_{eff}} \quad (2)$$

where  $K_{iz}$  is the ionization rate for electron-impact on the ground state Ar atoms,  $u_B$  is the Bohm velocity,  $n_g$  is the gas density, and  $d_{eff}$  is an effective plasma size for particles losses. It is worth

highlighting that this model takes into account the collisionless, the variable mobility, and diffusion regimes in the calculations of the effective plasma size  $d_{eff}$  [16, p. 144]. With  $L = 40$  cm and  $R = 55$  mm, this yield  $d_{eff} = 80$  mm at 1.6 mTorr and  $d_{eff} = 50$  cm at 50 mTorr. Calculations were performed assuming a neutral gas temperature of 300 K.

As shown in Figure 8, the three effective electron temperatures agree very well and follow the same trend with increasing pressure. TRG-OES measurements seem to lead to an alight underestimation of  $T_e^{All}$  when compared with the other techniques but also allow estimating  $T_e^{Tail}$ , which has a significantly higher value. Additionally, the electron temperatures obtained from the current-voltage characteristics does not include the low-energy portion of the EEPF due to inherent measurements distortion. Figure 8 further reveals that  $T_e^{Tail}$  is maximum at low pressure when collisionless electron heating (ECR and Landau) is dominant and diminishes as the pressure increases. Eventually, at intermediate pressure ( $> 100$  mTorr), the plasma would reach the collisional regime and  $T_e^{Tail}$  would converge to  $T_e^{All}$ .

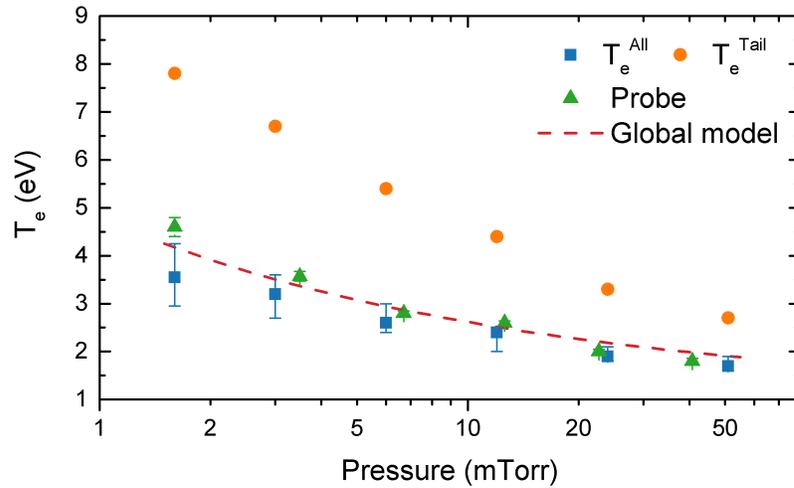


Figure 8 : Electron temperatures determined by TRG-OES ( $T_e^{Tail}$  and  $T_e^{All}$ ) and by Langmuir probe measurements as a function of pressure at  $y = 15$  mm and with 100 W of absorbed power.

*An estimation of the electron temperature calculated by the aforementioned global model is also displayed as a dashed line.*

#### **4. Conclusion**

The electron energy probability function (EEPF) was investigated in argon low-pressure microwave dipolar ECR plasmas by trace rare gases optical emission spectroscopy (TRG-OES) and Langmuir probe measurements. To do so, an updated version of the TRG-OES model, taking into account radiation trapping, was presented. The two different techniques, as well as a global model well-suited for low-pressure plasmas, agreed on the effective electron temperature over a wide range of pressures. Additionally, TRG-OES is sensitive enough to be able to assess a high-energy tail in the EEPF, thus describing it by the sum of two Maxwellian electron populations. One corresponds to the hot-electrons magnetically confined and heated by ECR while the other, the thermalized electrons, results from the collisions between hot electrons and the background gas. Spatially-resolved TRG-OES measurements shows that the effective electron temperature  $T_e^{All}$  stays constant over the axial distance  $y$  while the tail temperature  $T_e^{Tail}$  is maximum near the ECR zone and diminishes as  $y$  increases (towards the diffusion plasma). As the absorbed power is raised, the increase of the ratio  $T_e^{Tail}/T_e^{All}$  was attributed to an enhanced electromagnetic field strength, thus to a greater ECR heating per cyclotron period or a more efficient conversion of the LHP waves into electrostatic waves and their absorption by Landau damping. Finally,  $T_e^{Tail}$  increased with respect to  $T_e^{All}$  as the pressure diminished. This was ascribed to the longer electron confinement time in the magnetic trap resulting in a more efficient ECR heating and to the more prominent conversion of LHP waves into Langmuir waves at lower pressures.

#### **References**

- [1] M. Pichot, A. Durandet, J. Pelletier, Y. Arnal, and L. Vallier, "Microwave multipolar plasmas excited by distributed electron cyclotron resonance: Concept and performance," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 59, no. 7, pp. 1072–1075, 1988.
- [2] S. Zembutsu and T. Sasaki, "Growth of GaN single crystal films using electron cyclotron resonance plasma excited metalorganic vapor phase epitaxy," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 48, no. 13, pp. 870–872, 1986.

- [3] A. Martín, J. P. Espinós, A. Justo, J. P. Holgado, F. Yubero, and A. R. González-Elipe, "Preparation of transparent and conductive Al-doped ZnO thin films by ECR plasma enhanced CVD," *Surf. Coatings Technol.*, vol. 151–152, pp. 289–293, 2002.
- [4] N. Kondo and Y. Nanishi, "Low-temperature surface cleaning of GaAs by electron cyclotron resonance (ECR) plasma," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 28, no. 1 A, pp. L7–L9, 1989.
- [5] J. Pelletier and T. Lagarde, "Chemical vapor deposition in high-density low-pressure plasmas: reactor scale-up and performance," *Thin Solid Films*, vol. 241, no. 1–2, pp. 240–246, 1994.
- [6] T. Lagarde, J. Pelletier, and Y. Arnal, "Influence of the multipolar magnetic field configuration on the density of distributed electron cyclotron resonance plasmas," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 6, no. 1, pp. 53–60, 1997.
- [7] J. Pelletier, A. Lacoste, Y. Arnal, T. Lagarde, C. Lincot, and D. Hertz, "New trends in DECR plasma technology: applications to novel duplex treatments and process combinations with extreme plasma specifications," *Surf. Coatings Technol.*, vol. 139, no. 2–3, pp. 222–232, 2001.
- [8] A. Lacoste, T. Lagarde, S. Béchu, Y. Arnal, and J. Pelletier, "Multi-dipolar plasmas for uniform processing: Physics, design and performance," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 11, no. 4, pp. 407–412, 2002.
- [9] L. Latrasse, M. Radoiu, J. Lo, and P. Guillot, "2.45-GHz microwave plasma sources using solid-state microwave generators. ECR-type plasma source," *J. Microw. Power Electromagn. Energy*, vol. 50, no. 4, pp. 308–321, 2016.
- [10] T. Lagarde, Y. Arnal, A. Lacoste, and J. Pelletier, "Determination of the EEDF by Langmuir probe diagnostics in a plasma excited at ECR above a multipolar magnetic field," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 10, no. 2, pp. 181–190, 2001.
- [11] A. Durocher-Jean, L. Stafford, S. Dap, K. Makasheva, and R. Clergereaux, "Evidence of local power deposition and electron heating by a standing electromagnetic wave in electron-cyclotron-resonance plasma," *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear, Soft Matter Phys.*, vol. 90, no. 3, pp. 1–8, 2014.
- [12] A. Durocher-Jean, L. Stafford, M. Rojo, S. Dap, K. Makasheva, and R. Clergereaux, "Spatially modulated emission of ECR plasmas in helium," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, vol. 42, no. 10, pp. 2762–2763, 2014.

- [13] T. Lagarde, Y. Arnal, and J. Pelletier, "Influence of the applied field frequency on the characteristics of Ar and SF<sub>6</sub> diffusion plasmas sustained at electron cyclotron resonance above multipolar magnetic field structures," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 6, no. 3, pp. 386–393, 1997.
- [14] L. Latrasse, A. Lacoste, J. Sirou, and J. Pelletier, "High density distributed microwave plasma sources in a matrix configuration: Concept, design and performance," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 16, no. 1, pp. 7–12, 2007.
- [15] L. Latrasse, N. Sadeghi, A. Lacoste, A. Bès, and J. Pelletier, "Characterization of high density matrix microwave argon plasmas by laser absorption and electric probe diagnostics," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 40, no. 17, pp. 5177–5186, 2007.
- [16] M. A. Lieberman and A. J. Lichtenberg, *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing: Second Edition*. 2005.
- [17] F. F. Chen, *Introduction to plasma physics and controlled fusion*, vol. 53. 1984.
- [18] O. A. Popov, "Effects of magnetic field and microwave power on electron cyclotron resonance-type plasma characteristics," *J. Vac. Sci. Technol. A Vacuum, Surfaces, Film.*, vol. 9, no. 3, pp. 711–716, 1991.
- [19] J. Margot and M. Moisan, "Electromagnetic surface waves for a new approach to the investigation of plasmas produced at electron cyclotron resonance (ECR)," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 24, p. 1765, 1991.
- [20] Y. M. Aliev, V. Y. Bychenkov, A. V Maximov, and H. Schluter, "High energy electron generation in surface-wave-produced plasmas," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 1, no. 2, p. 126, 1992.
- [21] Y. M. Aliev and A. V. Maximov, "The influence of the plasma resonance heating on the maintenance of surface wave produced discharges," vol. 464, 1993.
- [22] yu. M. Aliev, J. Berndt, H. Schluter, and A. Shivarova, "Numerical calculations on surface wave propagation in longitudinally non-uniform plasmas," *Plasma Phys. Control. Fusion*, vol. 36, no. 6, p. 937, 1994.
- [23] L. L. Alves, S. Letout, and C. Boisse-Laporte, "Modeling of surface-wave discharges with cylindrical symmetry," *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear, Soft Matter Phys.*, vol. 79, no. 1, pp. 66–70, 2009.
- [24] C. M. Ferreira, "Theory of a plasma column sustained by a surface wave," *J. Phys. D. Appl.*

- Phys.*, vol. 14, pp. 1811–1830, 1981.
- [25] C. M. Ferreira and 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,” *Phys. Scr.*, vol. 38, pp. 382–399, 1988.
  - [26] K. Makasheva and A. Shivarova, “Surface-wave-produced plasmas in a diffusion-controlled regime,” *Phys. Plasmas*, vol. 8, no. 3, pp. 836–845, 2001.
  - [27] J. P. Boeuf, “Kinetic model of collisionless resonant absorption in a surface-wave plasma,” pp. 3–7.
  - [28] S. Boivin, X. Glad, J. P. Bœuf, and L. Stafford, “Analysis of the high-energy electron population in surface-wave plasma columns in presence of collisionless resonant absorption,” pp. 1–24.
  - [29] O. Boudreault *et al.*, “Nonlocal effect of plasma resonances on the electron energy-distribution function in microwave plasma columns,” *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear, Soft Matter Phys.*, vol. 86, no. 1, pp. 1–5, 2012.
  - [30] S. B. Singh, N. Chand, and D. S. Patil, “Langmuir probe diagnostics of microwave electron cyclotron resonance (ECR) plasma,” *Vacuum*, vol. 83, no. 2, pp. 372–377, 2008.
  - [31] H. J. You, F. W. Meyer, and K. S. Chung, “The cold and hot electron populations, temperatures and their transports in the edge plasma of the ORNL CAPRICE ECR ion source,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 18, no. 1, 2009.
  - [32] M. E. Mauel, “Electron-cyclotron heating in a pulsed mirror experiment,” *Phys. Fluids*, vol. 27, no. 12, p. 2899, 1984.
  - [33] A. Girard, C. Pernot, G. Melin, and C. Lécot, “Modeling of electron-cyclotron-resonance-heated plasmas,” *Phys. Rev. E - Stat. Physics, Plasmas, Fluids, Relat. Interdiscip. Top.*, vol. 62, no. 1 B, pp. 1182–1189, 2000.
  - [34] V. M. Donnelly, “Plasma electron temperatures and electron energy distributions measured by trace rare gases optical emission spectroscopy,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 37, no. 19, pp. R217–R236, 2004.
  - [35] M. J. Goeckner, J. Goree, and T. E. Sheridan, “Laser-induced fluorescence characterization of a multidipole filament plasma,” *Phys. Fluids B*, vol. 3, no. 10, pp. 2913–2921, 1991.
  - [36] R. L. Merlino, “Understanding Langmuir probe current-voltage characteristics,” *Am. J. Phys.*, vol. 75, no. 12, pp. 1078–1085, 2007.

- [37] V. A. Godyak and V. I. Demidov, "Probe measurements of electron-energy distributions in plasmas: What can we measure and how can we achieve reliable results?," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 44, no. 23, 2011.
- [38] M. V. Malyshev and V. M. Donnelly, "Trace rare gases optical emission spectroscopy: nonintrusive method for measuring electron temperatures in low-pressure, low-temperature plasmas.," *Phys. Rev. E. Stat. Phys. Plasmas. Fluids. Relat. Interdiscip. Topics*, vol. 60, no. 5, pp. 6016–6029, 1999.
- [39] M. V. Malyshev and V. M. Donnelly, "Diagnostics of chlorine inductively coupled plasmas. Measurement of electron temperatures and electron energy distribution functions.," *J. Appl. Phys.*, vol. 87, no. 4, p. 1642, 2000.
- [40] N. C. M. Fuller, M. V. Malyshev, V. M. Donnelly, and P. H. Irving, "Characterization of transformer coupled oxygen plasmas by trace rare gases-optical emission spectroscopy and Langmuir probe analysis," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 9, no. 2, p. 116, 2000.
- [41] L. Stafford, R. Khare, V. M. Donnelly, J. Margot, and M. Moisan, "Electron energy distribution functions in low-pressure oxygen plasma columns sustained by propagating surface waves," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, no. 2, pp. 2007–2010, 2009.
- [42] S. Mattei, O. Boudreault, R. Khare, L. Stafford, and V. M. Donnelly, "Characterization of a low-pressure chlorine plasma column sustained by propagating surface waves using phase-sensitive microwave interferometry and trace-rare-gas optical emission spectroscopy," *J. Appl. Phys.*, vol. 109, no. 11, 2011.
- [43] V. M. Donnelly and M. J. Schabel, "Spatially resolved electron temperatures, species concentrations, and electron energy distributions in inductively coupled chlorine plasmas, measured by trace-rare gases optical emission spectroscopy," *J. Appl. Phys.*, vol. 91, no. 10 I, pp. 6288–6295, 2002.
- [44] R. Mewe, "Relative Intensity of Helium Spectral Lines As a Function of Electron Temperature and Density," *J. Appl. Phys.*, vol. 18, p. 107, 1967.
- [45] M. Moisan, D. Kéroak, and L. Stafford, *Physique atomique et spectroscopie optique*. 2016.
- [46] J. E. Velazco, J. H. Kolts, and D. W. Setser, "Rate constants and quenching mechanisms for the metastable states of argon, krypton, and xenon," *J. Chem. Phys.*, vol. 69, no. 10, p. 4357, 1978.
- [47] O. A. Popov, *Physics of thin films*, Academins., vol. 18. New-York, 1994.

- [48] J. E. Stevens, Y. C. Huang, R. L. Jarecki, and J. L. Cecchi, "Plasma uniformity and power deposition in electron cyclotron resonance etch tools," *J. Vac. Sci. Technol. A Vacuum, Surfaces, Film.*, vol. 10, no. 4, pp. 1270–1275, 1992.

## Conclusion et perspectives

Dans les plasmas inhomogènes produits par des champs électromagnétiques de haute fréquence, une résonance se développe, à proximité des parois, dans la composante du champ électrique parallèle au gradient de densité. Cette résonance se produit à la densité critique (la permittivité du plasma passe par zéro) et est caractérisée par une amplitude proportionnelle à la collisionnalité du plasma  $\nu/\omega$ . En réécrivant les équations de Maxwell en termes de potentiels vecteur et scalaire et en considérant les effets thermiques dans l'équation du mouvement des électrons, il devient apparent que la résonance génère des oscillations électrostatiques (ondes de Langmuir). Ces ondes peuvent ainsi conduire à du chauffage non collisionnel par amortissement Landau de sorte qu'une fréquence de collision effective limitant l'amplitude de la résonance peut être définie.

Au fil des années, plusieurs auteurs se sont intéressés à la production d'électrons chauds et aux mécanismes de chauffage non collisionnels dans les plasmas produits par des champs électromagnétiques de haute fréquence. Par exemple, des études expérimentales ont montré que la production d'électrons chauds liés aux phénomènes de résonance disparaît lorsque la collisionnalité du plasma  $\nu/\omega$  augmente. Dans le cas des travaux théoriques, des simulations PIC-MCC suggèrent que les phénomènes de résonance disparaissent lorsque les points de résonance se rapprochent des parois, limitant ainsi la propagation et l'atténuation des ondes de Langmuir.

L'objectif principal de ce mémoire de maîtrise était d'examiner l'influence de phénomènes de résonance sur la production d'électrons chauds et les mécanismes d'absorption résonnante et non collisionnelle dans les plasmas produits par des champs électromagnétiques de haute fréquence. Dans ce contexte, nous avons mis au point deux réacteurs à plasma spécialement conçus pour des études fondamentales des interactions ondes-particules. Pour analyser la production d'électrons chauds, nous avons également mis au point une méthode de spectroscopie optique d'émission des gaz rares (TRG-OES) qui, couplée à un modèle collisionnel-radiatif, nous a permis de quantifier l'influence de divers paramètres opératoires

sur la température des électrons dans ce type de plasmas. Cette méthode possède l'avantage d'être non intrusive et particulièrement sensible aux électrons de haute énergie. D'abord développée par Donnelly pour l'étude des plasmas moléculaires à basse pression, elle a été raffinée dans le cadre de ce mémoire de maîtrise pour l'appliquer aux plasmas majoritairement composés d'argon. Entre autres, l'auto absorption ainsi que l'excitation à partir des niveaux résonnants ont été ajoutés au modèle. Avec ces améliorations, les prédictions du modèle sont en très bon accord avec les spectres d'émission optique mesurés expérimentalement. De plus, les températures électroniques obtenues par lissage des spectres expérimentaux de 2 mTorr à 50 mTorr sont parfaitement cohérentes avec les prédictions d'un modèle zéro-dimensionnel basé sur l'équation de conservation des particules chargées couramment utilisé pour la description des plasmas à pression réduite.

Les contributions de l'auteur à l'étude des phénomènes de résonance dans les plasmas produits par des champs électromagnétiques de haute fréquence ont été présentés sous forme d'articles aux chapitres 3 et 4. Premièrement, un plasma à basse pression d'argon créé et entretenu par une onde électromagnétique de surface à 600 MHz a été caractérisé par TRG-OES dans diverses conditions opératoires susceptibles de présenter des phénomènes de résonance. Pour déterminer la position de la résonance, le profil axial de la densité électronique a d'abord été mesuré par interférométrie micro-onde. Puis, en couplant ces mesures à des études du profil latéral de l'émission optique, nous avons pu déterminer le profil radial de densité électronique et donc la position radiale lorsque la fréquence plasma électronique devient égale à la fréquence de pulsation de l'onde électromagnétique. Nos analyses de la fonction de distribution en énergie des électrons par spectroscopie TRG-OES couplée au modèle radiatif nous a permis de mettre en évidence deux températures électroniques : la température de la majorité des électrons  $T_e^{All}$  et la température des électrons chauds  $T_e^{Tail}$ . L'étude de ces deux températures en fonction de la distance axiale et de la pression a permis de corrélérer l'augmentation du rapport  $T_e^{Tail}/T_e^{All}$  avec la longueur caractéristique du gradient de densité électronique  $L$  calculée à l'aide du profil spatial de densité électronique. La production d'électrons chauds a ainsi pu être corrélée à ce paramètre  $L$ , en excellent accord avec les prédictions des modèles associés à la conversion au point de résonance des ondes

électromagnétiques de surface en ondes électrostatiques et leur amortissement au voisinage des parois par effet Landau.

Deuxièmement, un plasma micro-onde (2450 MHz) à basse pression d'argon créé et entretenu par la résonance cyclotronique électronique (RCE) a été caractérisé par TRG-OES et par sonde électrostatique. Comme au chapitre 3, l'analyse détaillée de la fonction de distribution en énergie des électrons nous a permis de définir deux températures : la température de la majorité des électrons  $T_e^{All}$  et la température des électrons chauds  $T_e^{Tail}$ . L'étude en fonction de la distance axiale par rapport à la position de la source a montré que la production d'électrons chauds est fortement localisée autour de l'aimant, à l'endroit où le chauffage RCE s'effectue. L'augmentation du rapport  $T_e^{Tail}/T_e^{All}$  avec l'augmentation de la puissance absorbée dans le plasma a été attribuée à une combinaison du chauffage RCE et d'amortissement Landau d'ondes électrostatiques créées au point de résonance lorsque la permittivité du plasma tend vers 0. Finalement, des mesures de sondes électrostatiques ainsi que le modèle zéro dimensionnel évoqué plus haut nous ont permis de confirmer les valeurs de températures électroniques déduit de la méthode TRG-OES sur une gamme étendue de conditions opératoires.

Plusieurs perspectives s'ouvrent à la suite de ce travail. En particulier, l'effet du champ magnétique  $\mathbf{B}$  sur l'interaction onde-particule et le chauffage résonnant n'a été que brièvement discuté. En effet, plusieurs types d'ondes peuvent se propager dans les plasmas magnétisés selon l'orientation du champ magnétique et la fréquence de l'onde électromagnétique [1, pp. 113, 513]. Il serait donc judicieux d'analyser la production d'électrons chauds associés aux phénomènes de résonance en effectuant une étude paramétrique en fonction de l'intensité et de l'orientation du champ magnétique  $\mathbf{B}$ . Comme le montre la Figure 27, plusieurs phénomènes peuvent survenir de part et d'autre de la résonance cyclotronique électronique. Par exemple, le nombre d'onde de l'onde de surface  $\beta$  tend à la résonance ( $\omega_c/\omega = 1$ ) lorsque  $\mathbf{B}$  augmente, mais diverge à l'infini lorsque  $\mathbf{B}$  diminue vers la résonance.

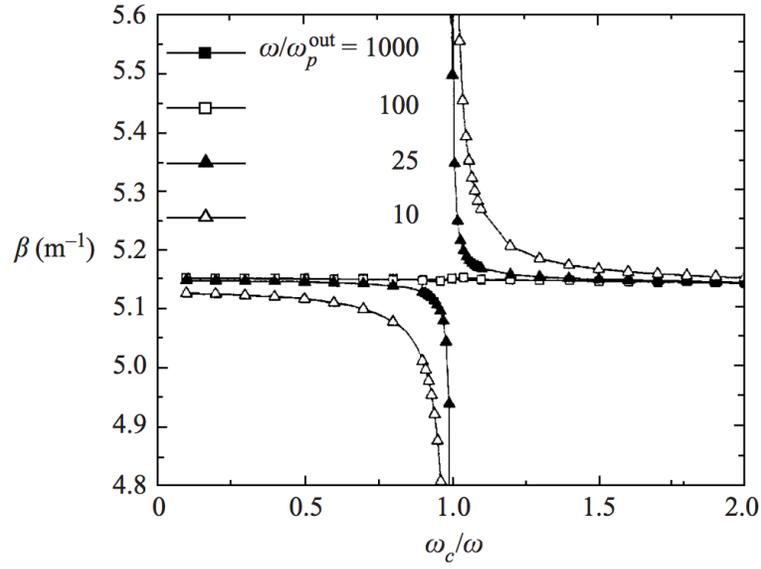


Figure 27: Nombre d'onde axial de l'onde électromagnétique de surface  $\beta$  en fonction de du champ magnétique ( $\omega_c/\omega$ ) pour  $\omega/\omega_{pe} = 0.1$  [91].

Finalement, au niveau du modèle collisionnel-radiatif, il serait intéressant d'utiliser une fonction de probabilité en énergie des électrons généralisée pour calculer les taux de réaction [92] :

$$f_p(E) = B_1 T_e^{-3/2} e^{-B_2(E/T_e)^x}, \quad (84)$$

avec

$$B_1 = x \left(\frac{2}{3}\right)^x \frac{[\Gamma(5/2x)]^{3/2}}{[\Gamma(3/2x)]^{5/2}}, \quad (85)$$

$$B_2 = \left(\frac{2}{3}\right)^x \frac{[\Gamma(5/2x)]^x}{[\Gamma(3/2x)]^x},$$

où  $\Gamma$  est la fonction Gamma. Dans ce cas, la maxwellienne correspond à  $x = 1$  et la druyvesteyn correspond à  $x = 2$ . Notons que  $T_e$  correspond maintenant à une température effective définie comme  $T_e = \frac{2}{3}\langle E \rangle$ , où  $\langle E \rangle$  est l'énergie moyenne des électrons  $\langle E \rangle =$

$\int_0^\infty E^{3/2} f_p(E) dE$ . Un exemple de ces distributions pour  $x = 1, 2$  et  $0.5$  est présenté à la Figure 28. Dans les conditions de chauffage résonnant présentées dans ce travail, la EEPF correspondrait à  $x < 1$ , c.-à-d. à une augmentation de la population des très basses et très hautes énergies.

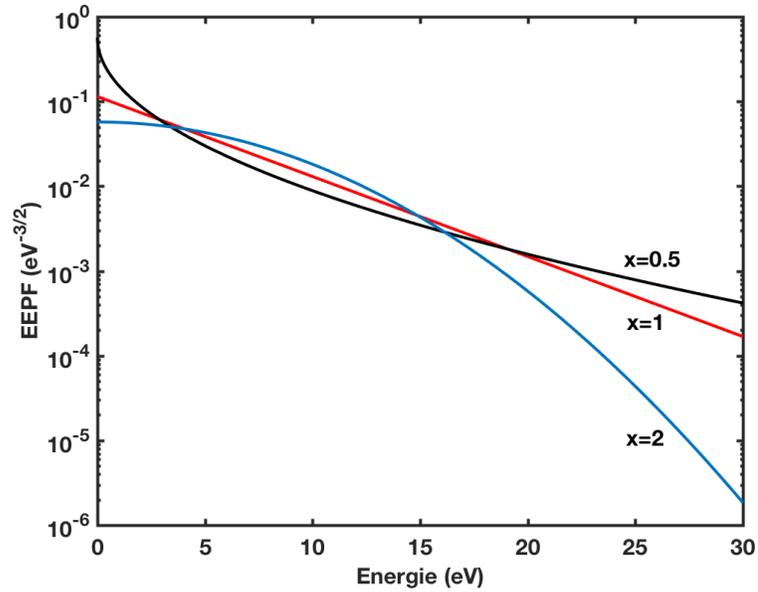


Figure 28 : Fonction de probabilité en énergie des électrons (EEPF) généralisé et normalisé pour  $x = 1$  (Maxwellienne),  $x = 2$  (Druyvesteyn) et  $x = 0.5$ .

## Bibliographie

- [1] M. A. Lieberman and A. J. Lichtenberg, *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing: Second Edition*. 2005.
- [2] P. Chabert and N. Braithwaite, *Physics of Radio-Frequency Plasmas*. 2011.
- [3] T. J. Wu and C. S. Kou, “A large-area plasma source excited by a tunable surface wave cavity,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 70, no. 5, p. 2331, 1999.
- [4] M. Moisan and Z. L. B.-M. Zakrzewski, “Plasma sources based on the propagation of electromagnetic surface waves,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 24, no. 7, p. 1025, 1991.
- [5] M. Moisan and Z. Zakrzewski, “New surface wave launchers for sustaining plasma columns at submicrowave frequencies (1-300 MHz),” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 58, no. 10, pp. 1895–1900, 1987.
- [6] J. Paraszczak, J. Heidenreich, M. Hatzakis, and M. Moisan, “Methods of creation and effect of microwave plasmas upon the etching of polymers and silicon,” *Microelectron. Eng.*, vol. 3, no. 1, pp. 397–410, 1985.
- [7] R. Claude, M. Moisan, M. R. Wertheimer, and Z. Zakrzewski, “Comparison of microwave and lower-frequency discharges for plasma polymerization,” *Plasma Chem. Plasma Process.*, vol. 7, no. 4, pp. 451–464, 1987.
- [8] L. Paquin, D. Masson, M. R. Wertheimer, and M. Moisan, “Amorphous silicon for photovoltaics produced by new microwave plasma-deposition techniques,” *Can. J. Phys.*, vol. 63, p. 831, 1985.
- [9] C. L. Hartz, J. W. Bevan, M. W. Jackson, and B. A. Wofford, “Innovative surface wave plasma reactor technique for PFC abatement,” *Environ. Sci. Technol.*, vol. 32, no. 5, pp. 682–687, 1998.
- [10] M. Moisan, J. Barbeau, M.-C. Crevier, J. Pelletier, N. Philip, and B. Saoudi, “Plasma sterilization. Methods and mechanisms,” *Pure Appl. Chem.*, vol. 74, no. 3, pp. 349–358, 2002.
- [11] Y. M. Aliev, V. Y. Bychenkov, A. V Maximov, and H. Schluter, “High energy electron generation in surface-wave-produced plasmas,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 1, no. 2, p. 126, 1992.

- [12] Y. M. Aliev and A. V. Maximov, “The influence of the plasma resonance heating on the maintenance of surface wave produced discharges,” vol. 464, 1993.
- [13] yu. M. Aliev, J. Berndt, H. Schluter, and A. Shivarova, “Numerical calculations on surface wave propagation in longitudinally non-uniform plasmas,” *Plasma Phys. Control. Fusion*, vol. 36, no. 6, p. 937, 1994.
- [14] L. L. Alves, S. Letout, and C. Boisse-Laporte, “Modeling of surface-wave discharges with cylindrical symmetry,” *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear, Soft Matter Phys.*, vol. 79, no. 1, pp. 66–70, 2009.
- [15] C. M. Ferreira, “Theory of a plasma column sustained by a surface wave,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 14, pp. 1811–1830, 1981.
- [16] C. M. Ferreira and 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,” *Phys. Scr.*, vol. 38, pp. 382–399, 1988.
- [17] K. Makasheva and A. Shivarova, “Surface-wave-produced plasmas in a diffusion-controlled regime,” *Phys. Plasmas*, vol. 8, no. 3, pp. 836–845, 2001.
- [18] S. Letout, C. Boisse-Laporte, and L. L. Alves, “Electron-drift detection using directional planar probes in a low-pressure coaxial surface-wave discharge,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 89, no. 24, pp. 1–4, 2006.
- [19] A. Durocher-Jean, L. Stafford, S. Dap, K. Makasheva, and R. Clergereaux, “Evidence of local power deposition and electron heating by a standing electromagnetic wave in electron-cyclotron-resonance plasma,” *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear, Soft Matter Phys.*, vol. 90, no. 3, pp. 1–8, 2014.
- [20] I. Ghanashev, H. Sugai, S. Morita, and N. Toyoda, “Local resonant excitation of plasma oscillations in a planar surface-wave plasma device,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 8, no. 3, p. 363, 1999.
- [21] T. Terebessy, M. Kando, and J. Kudela, “Detection of localized hot electrons in low-pressure large-area microwave discharges,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 77, no. 18, pp. 2825–2827, 2000.
- [22] J. Kudela, T. Terebessy, and M. Kando, “Hot-electron flux observation in large-area microwave sustained plasmas,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 76, no. 10, pp. 1249–1251, 2000.
- [23] O. Boudreault *et al.*, “Nonlocal effect of plasma resonances on the electron energy-

- distribution function in microwave plasma columns,” *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear, Soft Matter Phys.*, vol. 86, no. 1, pp. 1–5, 2012.
- [24] V. M. Donnelly, “Plasma electron temperatures and electron energy distributions measured by trace rare gases optical emission spectroscopy,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 37, no. 19, pp. R217–R236, 2004.
- [25] J. P. Boeuf, “Kinetic model of collisionless resonant absorption in a surface-wave plasma,” pp. 3–7.
- [26] N. G. Denisov, “On a Singularity of the Field of an Electromagnetic Wave,” *Jetp*, vol. 4, no. 4, pp. 544–553, 1957.
- [27] V. B. Gil’denburg, “Resonance Properties of Inhomogeneous Plasma Structures,” *Sov. Phys. JETP*, vol. 18, no. 5, pp. 1359–1364, 1964.
- [28] J. R. Albritton and A. B. Langdon, “Profile Modification and Hot-Electron Temperature from Resonant Absorption at Modest Intensity,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 45, p. 1794, 1980.
- [29] M. Colunga, P. Mora, and R. Pellat, “Resonant absorption in a steep density profile,” *Phys. Fluids*, vol. 28, no. 1985, p. 854, 1985.
- [30] T. -Y. Brian Yang, W. L. Kruer, A. B. Langdon, and T. W. Johnston, “Mechanisms for collisionless absorption of light waves obliquely incident on overdense plasmas with steep density gradients,” *Phys. Plasmas*, vol. 3, no. 7, pp. 2702–2709, 1996.
- [31] J. R. Angus, S. I. Krashennnikov, and A. I. Smolyakov, “Kinetic theory of electromagnetic plane wave obliquely incident on bounded plasma slab,” *Phys. Plasmas*, vol. 17, no. 10, 2010.
- [32] R. L. Stenzel, A. Y. Wong, and H. C. Kim, “Conversion of Electromagnetic Waves to Electrostatic Waves in Inhomogeneous Plasmas,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 32, no. 12, p. 654, 1974.
- [33] H. C. Kim, R. L. Stenzel, and A. Y. Wong, “Development of Cavitons and trapping of rf field,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 33, no. 15, p. 886, 1974.
- [34] J. C. Kieffer, P. Audebert, M. Chaker, J. P. Matte, H. Pépin, and T. W. Johnston, “Short-pulse laser absorption in very steep plasma density gradients,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 62, no. 7, p. 760, 1989.
- [35] M. M. Mueller, “Enhanced Laser-Light Absorption by Optical Resonance in

- Inhomogeneous Plasma,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 30, no. 13, 1973.
- [36] P. Koch and J. Albritton, “Electron and Ion Heating Through Resonant Plasma Oscillations,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 32, no. 2, pp. 1420–1423, 1974.
- [37] K. G. Estabrook, E. J. Valeo, and W. L. Kruer, “Two-dimensional relativistic simulations of resonance absorption,” *Phys. Fluids*, vol. 18, no. 9, p. 1151, 1975.
- [38] D. W. Forslund, J. M. Kindel, K. Lee, E. L. Lindman, and R. L. Morse, “Theory and simulation of resonant absorption in a hot plasma,” *Phys. Rev. A*, vol. 11, no. 2, pp. 679–683, 1975.
- [39] J. C. Adam, A. G. Serveniére, and D. Pazaiseau, “Instabilities Induced By Resonant Absorption of an Electromagnetic Wave in an Inhomogeneous Plasma,” *Phys. Fluids*, vol. 376, no. 48, p. 376, 1983.
- [40] F. David, “Resonant absorption in a self-consistent density profile at moderate intensities,” *Phys. Fluids*, vol. 26, no. 3, p. 747, 1983.
- [41] A. G. Serveniére-heron and J. C. Adam, “Pseudosolitons formation in resonant absorption of electromagnetic waves,” vol. 2005, no. 1984, 2005.
- [42] A. B. Langdon, B. F. Lasinski, and W. L. Kruer, “Nonlinear saturation and recurrence of the two-plasmon decay instability,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 43, no. 2, pp. 133–136, 1979.
- [43] Y. M. Aliev and A. V. Maximov, “Modeling of microwave discharges in the presence of plasma resonances,” *Phys. Rev. E*, vol. 51, no. 6, p. 6091, 1995.
- [44] Y. M. Aliev, S. Grosse, H. Schluter, and A. Shivarova, “Nonlinearity: Basis for self-consistent modeling of surface wave produced plasmas in diffusion controlled regimes,” *Phys. Plasmas*, vol. 3, no. 8, pp. 3162–3175, 1996.
- [45] Y. M. Aliev, H. Schluter, and A. Shivarova, *Guided-Wave-Produced Plasmas*. 2000.
- [46] H. SCHLUTER and A. SHIVAROVA, “Travelling-wave-sustained discharges,” *Phys. Rep.*, vol. 443, no. 4–6, pp. 121–255, 2007.
- [47] U. Kortshagen and H. Schluter, “Determination of electron energy distribution functions in surface wave produced plasmas. II. Measurements,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 24, pp. 1585–1593, 1991.
- [48] M. Zethoff and U. R. Kortshagen, “Dispersion characteristics and radial field distribution of surface waves in the collisional regime,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 25,

- p. 1574, 1992.
- [49] T. Omaru, F. Komiyama, and S. Kogoshi, "Mechanism for sustainment of high density in surface wave plasma," *Japanese J. Appl. Physics, Part 1 Regul. Pap. Short Notes Rev. Pap.*, vol. 43, no. 5 A, pp. 2690–2692, 2004.
- [50] C. H. Lan and X. W. Hu, "Particle-in-cell investigation on the resonant absorption of a plasma surface wave," *Chinese Phys. B*, vol. 20, no. 10, 2011.
- [51] B. Cros, G. Matthieussent, J. Godiot, and A. Heron, "Stochastic Behaviour of Resonant Absorption in a Plasma at Microwave Frequencies," *Europhys. Lett.*, vol. 9, pp. 41–46, 1989.
- [52] H. Sugai, I. Ghanashev, and K. Mizuno, "Transition of electron heating mode in a planar microwave discharge at low pressures," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 77, no. 22, pp. 3523–3525, 2000.
- [53] H. Sugai, I. Ghanashev, and M. Nagatsu, "High-density flat plasma production based on surface waves," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 7, no. 2, pp. 192–205, 1998.
- [54] M. Nagatsu, T. Niwa, and H. Sugai, "High-energy electrons near the dielectric-plasma boundary in a large-area surface-wave plasma excited at 915 MHz," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 81, no. 11, pp. 1966–1968, 2002.
- [55] L. L. Alves, S. Letout, and C. Boisse-Laporte, "Modeling of surface-wave discharges with cylindrical symmetry," *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear, Soft Matter Phys.*, vol. 79, no. 1, p. 66–70, 2009.
- [56] Y. M. Aliev, H. Schluter, and A. Shivarova, *Guided-Wave-Produced Plasmas*. 2000.
- [57] R. Koch, "Wave-particle interactions in plasmas," *Plasma Phys. Control. Fusion*, vol. 48, no. 12B, pp. B329–B345, 2006.
- [58] P. S. Verma, S. Sengupta, and P. Kaw, "Residual Bernstein-Greene-Kruskal-like waves after one-dimensional electron wave breaking in a cold plasma," *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear, Soft Matter Phys.*, vol. 86, no. 1, pp. 1–6, 2012.
- [59] N. A. Krall and A. W. Trivelpiece, *Principles of plasma physics*. McGraw-Hill, 1973.
- [60] M. R. Wertheimer and M. Moisan, "Processing of electronic materials by microwave plasma," *Pure Appl. Chem.*, vol. 66, no. 6, pp. 1343–1352, 1994.
- [61] C. M. Ferreira and M. Moisan, *Microwave Discharges Fundamentals and Applications*, Nato Scien., vol. 302. 1993.

- [62] A. Bergmann and P. Mulser, "Breaking of resonantly excited electron plasma waves," *Phys. Rev. E*, vol. 47, no. 5, pp. 3585–3589, 1993.
- [63] I. P. Ganachev and H. Sugai, "Production and control of planar microwave plasmas for materials processing," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 11, pp. A178–A190, 2002.
- [64] M. Moisan, Z. Zakrzewski, and R. Pantel, "The theory and characteristics of an efficient surface wave launcher (surfatron) producing long plasma columns," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 12, no. 2, pp. 219–237, 1979.
- [65] J. Margot-Chaker *et al.*, "Tube diameter and wave frequency limitations when using the electro magnetic surface wave in the  $m=1$  (dipolar) mode to sustain a plasma column," *J. Appl. Phys.*, vol. 66, no. 9, pp. 4134–4148, 1989.
- [66] J. Margot-Chaker, M. Moisan, Z. Zakrzewski, V. M. Glaude, and G. Sauvé, "Phase sensitive methods to determine the wavelength of electromagnetic waves in lossy nonuniform media: The case of surface waves along plasma columns," *Radio Sci.*, vol. 23, no. 6, pp. 1120–1132, 1988.
- [67] G. Pretzier, "A New Method for Numerical Abel-Inversion," *Zeitschrift für Naturforsch. A*, vol. 46, no. 7, pp. 639–641, 1991.
- [68] R. Mewe, "Relative Intensity of Helium Spectral Lines As a Function of Electron Temperature and Density," *J. App. Phys.*, vol. 18, p. 107, 1967.
- [69] V. M. Donnelly, "Mass spectrometric measurements of neutral reactant and product densities during Si etching in a high-density helical resonator  $Cl_2$  plasma," *J. Appl. Phys.*, vol. 79, no. 12, pp. 9353–9360, 1996.
- [70] L. Maaloul, S. Morel, and L. Stafford, "Populations of metastable and resonant argon atoms in radio frequency magnetron plasmas used for deposition of indium-zinc-oxide films," *J. Vac. Sci. Technol. A Vacuum, Surfaces, Film.*, vol. 30, no. 2, p. 021301, 2012.
- [71] M. V Malyshev and V. M. Donnelly, "Trace rare gases optical emission spectroscopy: nonintrusive method for measuring electron temperatures in low-pressure, low-temperature plasmas.," *Phys. Rev. E. Stat. Phys. Plasmas. Fluids. Relat. Interdiscip. Topics*, vol. 60, no. 5, pp. 6016–6029, 1999.
- [72] M. V Malyshev and V. M. Donnelly, "Diagnostics of chlorine inductively coupled plasmas. Measurement of electron temperatures and electron energy distribution functions.," *J. App. Phys.*, vol. 87, no. 4, p. 1642, 2000.

- [73] N. C. M. Fuller, M. V Malyshev, V. M. Donnelly, and P. H. Irving, “Characterization of transformer coupled oxygen plasmas by trace rare gases-optical emission spectroscopy and Langmuir probe analysis,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 9, no. 2, p. 116, 2000.
- [74] L. Stafford, R. Khare, V. M. Donnelly, J. Margot, and M. Moisan, “Electron energy distribution functions in low-pressure oxygen plasma columns sustained by propagating surface waves,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, no. 2, pp. 2007–2010, 2009.
- [75] J. E. Chilton, M. D. Stewart, and C. C. Lin, “Cross sections for electron-impact excitation of Krypton,” *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 62, no. 3, p. 13, 2000.
- [76] J. E. Chilton, J. B. Boffard, R. S. Schappe, and C. C. Lin, “Measurement of electron-impact excitation into the 3p<sup>5</sup>4p levels of argon using Fourier-transform spectroscopy,” *Phys. Rev. A*, vol. 57, no. 1, pp. 267–277, 1998.
- [77] J. E. Chilton, M. D. Stewart, and C. C. Lin, “Electron-impact excitation cross sections of neon,” *Phys. Rev. A*, vol. 61, no. 5, p. 052708, 2000.
- [78] J. T. Fons and C. C. Lin, “Measurement of the cross sections for electron-impact excitation into the 5p<sup>5</sup>6p levels of xenon,” *Phys. Rev. A*, vol. 58, no. 6, pp. 4603–4615, 1998.
- [79] M. J. Schabel, V. M. Donnelly, a. Kornblit, and W. W. Tai, “Determination of electron temperature, atomic fluorine concentration, and gas temperature in inductively coupled fluorocarbon/rare gas plasmas using optical emission spectroscopy,” *J. Vac. Sci. Technol. A Vacuum, Surfaces, Film.*, vol. 20, no. 2, p. 555, 2002.
- [80] J. B. Boffard, G. A. Piech, M. F. Gehrke, L. W. Anderson, and C. C. Lin, “Measurement of electron-impact excitation cross sections out of metastable levels of argon and comparison with ground-state excitation,” *Phys. Rev. A*, vol. 59, no. 4, pp. 2749–2763, 1999.
- [81] M. A. Khakoo *et al.*, “Electron impact excitation of the argon 3p<sup>5</sup>4s configuration: Differential cross-sections and cross-section ratios,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 37, no. 1, pp. 247–281, 2004.
- [82] R. S and D. Van, “Lifetime Lower Limits for the 3P<sub>0</sub> and 3P<sub>2</sub> Metastable States of Neon, Argon, and Krypton,” *Phys. Rev. A*, vol. 5, no. 2, pp. 991–993, 1972.
- [83] M. Moisan, D. Kéroak, and L. Stafford, *Physique atomique et spectroscopie optique*.

2016.

- [84] J. M. Ajello, G. K. James, B. Franklin, and S. Howell, “Study of electron impact excitation of argon in the extreme ultraviolet : emission cross section of resonance lines,” *J. Phys. B*, vol. 23, pp. 4355–4376, 1990.
- [85] K. Bartschat and V. Zeman, “Electron-impact excitation from the  $(3p^5 4s)$  metastable states of argon,” *Phys. Rev. A*, vol. 59, no. 4, pp. R2552–R2554, 1999.
- [86] A. Dasgupta *et al.*, “Electron-impact excitation from the  $(4p^5 5s)$  metastable states of krypton,” *Phys. Rev. A*, vol. 65, no. 4, p. 042724, 2002.
- [87] R. K. Gangwar, L. Sharma, R. Srivastava, and A. D. Stauffer, “Argon plasma modeling with detailed fine-structure cross sections,” *J. Appl. Phys.*, vol. 111, no. 5, 2012.
- [88] E. J. McGuire, “Scaled electron ionization cross sections in the Born approximation for atoms with  $55 \leq Z \leq 102$ ,” *Phys. Rev. A*, vol. 20, no. 2, p. 445, 1979.
- [89] J. E. Velazco, J. H. Kolts, and D. W. Setser, “Rate constants and quenching mechanisms for the metastable states of argon , krypton , and xenon,” *J. Chem. Phys.*, vol. 69, no. 10, p. 4357, 1978.
- [90] I. Pérès, M. Fortin, and J. Margot, “The radial structure of a magnetically confined surface-wave plasma column,” *Phys. Plasmas*, vol. 3, no. 5, pp. 1754–1769, 1996.
- [91] L. Stafford, J. Margot, and T. W. Johnston, “Propagation of surface waves in two-plasma systems bounded by a metallic enclosure,” *J. Plasma Phys.*, vol. 66, no. 5, pp. 349–362, 2001.
- [92] J. B. Boffard, R. O. Jung, C. C. Lin, and A. E. Wendt, “Optical emission measurements of electron energy distributions in low-pressure argon inductively coupled plasmas,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 19, no. 6, p. 065001, 2010.