

**ÉCOLE DOCTORALE ÉNERGIE, MATÉRIAUX, SCIENCES DE LA TERRE
ET DE L'UNIVERS**

Groupe de Recherches sur l'Énergétique des Milieux Ionisés

THÈSE présentée par :

Thibault DARNY

soutenue le : 27 juin 2016

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'Université d'Orléans**

Discipline/ Spécialité : Physique des Plasmas

**Étude de la production des espèces
réactives de l'oxygène et de l'azote par
décharge Plasma Gun à pression
atmosphérique pour des applications
biomédicales**

THÈSE dirigée par :

Éric ROBERT

Chargé de Recherche, CNRS, GREMI, Directeur de thèse

Jean-Michel POUVESLE

Directeur de Recherche, CNRS, GREMI, Co-Directeur

RAPPORTEURS :

Thierry BELMONTE

Directeur de Recherche, CNRS, IJL, Nancy

Svetlana STARIKOVSKAYA

Directeur de Recherche, CNRS, LPP, Palaiseau

JURY

Anne BOURDON

Directeur de Recherche, CNRS, LPP, Palaiseau

Rémi DUSSART

Professeur, Université d'Orléans, GREMI, Orléans

Laurent JOLY

Professeur, SUPAERO, ISAE, Toulouse

Pierre TARDIVEAU

Maître de Conférences, Université Paris Sud, LPGA, Orsay

Jean-Michel POUVESLE

Directeur de Recherche CNRS, GREMI, Orléans

Éric ROBERT

Chargé de Recherche, CNRS, GREMI, Orléans

« L'esprit n'utilise de sa faculté créatrice que quand l'expérience lui en impose la nécessité. »

Henri Poincaré

Remerciements

Il y a dans l'acte d'écrire un désir d'éternité, une volonté de figer ses pensées dans le flot incessant de l'écoulement du temps. Nous pouvons en être effrayés ou, au contraire, nous en émouvoir. Mais c'est peut-être de la combinaison de ces deux sentiments que peut naître le plaisir d'écrire. La rédaction de ce manuscrit est pour moi la pierre angulaire de cette palpitante épopée que fut ma thèse. Résumer toute la richesse de cette aventure en quelques pages seulement serait bien insuffisant. Parce que beaucoup de cette richesse tient en la qualité et en la diversité des rencontres effectuées, il y a nombre de personnes que je souhaiterai ici remercier.

Les premières personnes que je tiens à tout particulièrement remercier sont mon directeur de thèse Éric Robert et mon co-directeur Jean-Michel Pouvesle, sans qui rien de tout cela n'aurait été possible. J'ai appris tant de choses à vos côtés, bien au-delà de la science... Cela a été un bonheur de travailler avec vous, vous avez été pour moi beaucoup plus que mes directeurs de thèse.

Éric, tu as toujours été disponible lorsque j'en avais besoin. Tu m'as encouragé quand il le fallait et tu as toujours su, à ta manière, me donner l'énergie nécessaire pour que je me dépasse et aille au fond des choses. Je me remémore avec passion tous ces moments de partages, au gré des phénomènes extraordinaires découverts en salle de manip'. Tous les moments que nous avons passés en conférences resteront également pour moi d'excellents souvenirs.

Jean-Michel, tu as toi aussi toujours été disponible, aussi bien pour disserter avec passion sur les dernières découvertes « *in situ* » ou bien simplement pour refaire le monde. Ces moments passés à discuter avec toi, sur tant de sujets, ont été pour moi des instants privilégiés. Toutes ces discussions m'ont énormément apporté et maintenant je « visualise ». Je repenserai toujours avec beaucoup d'émotion à certains moments et je garderai bien précieusement enfouis dans ma mémoire tes conseils avisés.

Je souhaiterai ensuite chaleureusement remercier l'ensemble des membres de mon jury de thèse à commencer par Thierry Belmonte et Svetlana Starikovskaya, qui m'ont fait l'honneur de rapporter sur mes travaux de thèse. Merci à Svetlana Starikovskaya d'avoir accepté de faire ce travail dans des circonstances qui ont été particulièrement difficiles pour elle, je lui en suis infiniment reconnaissant. Merci à Thierry Belmonte pour son enthousiasme pour le manuscrit et également lors de la soutenance, cela m'a beaucoup touché. Je tiens également à vivement remercier Anne Bourdon, Laurent Joly et Pierre Tardiveau pour avoir accepté d'être examinateurs et Remi Dussart pour avoir présidé le jury de thèse.

Je tiens également à remercier ceux avec qui j'ai eu la chance de pouvoir collaborer durant mes travaux, nos discussions et nos échanges m'ont beaucoup apporté. Je remercie à nouveau Anne Bourdon du Laboratoire de Physique des Plasmas (LPP) et ses doctorants François Pechereau et Pedro Viegas pour toutes ces riches et fructueuses comparaisons entre les résultats de modélisation et nos résultats expérimentaux. Je remercie également Jérôme Fontane et Laurent Joly pour

l'organisation de ces campagnes de mesures de strioscopie à l'Institut Supérieur de l'Aéronautique et de l'Espace (ISAE), qui se sont déroulées dans les meilleures conditions possibles. J'adresse également mes sincères remerciements à Vincent Puech pour son aide et ses conseils sur les mesures de concentration des métastables de l'hélium par spectroscopie d'absorption par laser au Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas (LPGP).

Cette thèse s'est déroulée au sein du GREMI et je tiens ici à remercier la directrice, Chantal Leborgne, pour m'y avoir accueilli ainsi que pour sa prévenance au moment de la rédaction du manuscrit. Un grand merci également aux gestionnaires administratifs du laboratoire Christophe Dubois et Sylvie Jauffrion, pour leurs disponibilités et toute l'aide qu'ils m'ont apporté sur les nombreuses tâches administratives qui se sont présentées.

Plus personnellement, je tiens avant tout à particulièrement remercier les autres membres de mon équipe, par ces quelques mots et pensées :

Merci à Sébastien Dozias, électronicien de haut vol, ingénieur mérité et méritant, à la source de l'alimentation du Plasma Gun. Armé de ton couteau et d'un autre ustensile, il n'y a aucun défi technique qui n'a pu te résister ! Tes talents hors pair sont indissociables de tout ce qui a pu être réalisé. Je repenserai avec nostalgie à Nostalgie, à toutes ces discussions le midi, au café et également autour du fer à souder, toujours de main de maître manié.

Merci à Thomas Maho, partenaire du bureau, mais également coach organisationnel, sportif et nutritionniste avisé ! Partager le bureau et une grande partie de la thèse avec toi était vraiment super et me laissera quantité de souvenirs impérissables. Merci pour ton soutien moral et pour tous tes conseils anti prise de tête ! Je resterai toujours impressionné par ton impeccable ponctualité, à faire pâler de précision l'horloge atomique !

Merci à Claire Douat pour ces bons moments passés ensemble, j'ai été très heureux pour toi lorsque j'ai appris que tu allais intégrer l'équipe et je ne doute pas que ta carrière sera brillante, car je reste persuadé qu'une imagination débordante permet de voir bien au-delà de la simple surface des choses.

Merci à Guillaume Collet de m'avoir fait découvrir avec beaucoup de passion et de pédagogie le monde de la microbiologie et pour toutes ces discussions sur nos champs de recherches respectifs et sur la science en général. Merci pour ton ouverture d'esprit, ta bonne humeur et tes anecdotes sur la chasse au dragon !

Merci à Vanessa Sarron d'avoir pris le temps, en pleine période de rédaction, de me présenter la salle de manip' à mon arrivée. Une pensée également aux différents stagiaires de l'équipe avec qui j'ai pu discuter, Natacha, Alice, Antoine et Vinni, je vous souhaite le meilleur pour la suite. Aux nouvelles recrues Xavier et Audoin, je souhaite des thèses riches en découvertes et en nouvelles idées, profitez un maximum de chaque microsecondes !

Cette aventure au GREMI est également indissociable de toutes les personnes que j'ai eu la chance de côtoyer pendant ces quelques années, ceux qui jadis furent des compagnons du midi, du café et des partenaires de parlotte lors de plaisantes petites pauses. Je souhaite ici tous vous remercier.

Un grand merci également à Julien Simonneau pour sa disponibilité et son aide technique pour la réalisation des pièces mécaniques, profite bien de la douceur Angevine retrouvée ! Merci également à Nadjib Semmar pour son aide sur COMSOL et à Anne-Lise Thomann pour ces expérimentations sur le Fluxmètre. Merci également à Arnaud Stolz pour sa disponibilité et son aide d'urgence pour les soucis informatiques, qui ont éclaté au plus mauvais moment. Merci également à Maxime Mikikian pour l'organisation du stand GREMI à la fête de la science au fil de ces années passées, cela a toujours été pour moi de super moments de convivialité et de partages pour éclairer de jeunes esprits.

Je souhaite également remercier celles et ceux qui m'ont apporté leur aide pour la partie enseignements, notamment Titaina Gibert, Laurent Schwaederle, Cécile Pichard et Jean-Pierre Renouard. Un grand merci également à Rémi Dussart pour m'avoir donné la chance de pouvoir enseigner la relativité restreinte et la mécanique quantique. Je tiens également à remercier Laïfa Boufendi pour tous ses précieux conseils sur l'enseignement.

Remerciements spéciaux à Pablo Escot, fière capitaine des cinq giGars 2 rames, pour tous ces coups de palettes sur le Loiret. Cette compétition inter-labo d'aviron restera un excellent souvenir.

Merci également à mes anciens collègues doctorants, post doctorants et stagiaires du labo qui ont accompagné mon quotidien. Merci en particulier à Elodie pour toutes ces discussions sur nos passions communes. Merci à Maryem pour ses éclats de rire et sa bonne humeur, à Stéphane et Thibault pour ses joutes vidéoludiques mémorables, à Valentin pour nos échanges passionnés sur la physique des particules et la théorie des groupes, à Ibrahim pour nos échanges philosophiques, à Lucile et Fatou pour leurs sourires, sans oublier Nicolas, Marie, Perrine, Ali, Quentin, Floriane, Edouard et tous ceux avec qui j'ai pu discuter et passer de bon moments.

Il y a aussi des rencontres qui jouent un rôle déterminant dans notre parcours universitaire. C'est pourquoi je tiens ici à remercier Claire Meyer, Robert Bouzerar et Bruno Mettout pour m'avoir jadis transmis leurs passions de la physique, de la recherche et de l'enseignement. Je souhaite également sincèrement remercier Patrick Canu du LPP et Pierre Tardiveau du LPGP pour m'avoir accompagné dans mes premières expériences en laboratoire de recherche en physique des plasmas, qui resteront très chères à mes yeux.

Enfin, un tendre merci à ma famille, à ma mère, à mon père et à mon frère qui ont toujours été là pour me soutenir.

Table des matières

Chapitre I. Introduction : jets de plasma froid à pression atmosphérique

1. Généralités sur les plasmas	15
1.1 « Etat plasma »	15
1.2 Types de plasmas	16
2. Décharges électriques à pression atmosphérique.....	17
2.1 Mécanismes généraux : de l'avalanche électronique...	17
2.2 ... à la propagation des streamers	18
2.2.1 Streamer cathodique (positif)	19
2.2.2 Streamer anodique (négatif)	20
2.2.3 Rôle du canal	21
2.3 Quelques géométries de décharges non thermiques à pression atmosphérique.....	22
3. Jets de plasma froid à pression atmosphérique : types de jets et applications.	23
3.1 Un domaine en expansion rapide	23
3.2 Géométries de décharges et sources d'alimentations électriques.....	24
3.2.1 Alimentations électriques	24
3.2.2 Géométries de décharges	25
3.3 Le Plasma Gun	27
3.4 Quelques outils de diagnostics.....	28
4. Objectifs de la thèse	30
4.1 Thématique d'étude.....	30
4.2 Organisation des chapitres.....	31
5. Bibliographie du chapitre I.....	32

Chapitre II. Présentation du dispositif expérimental et des diagnostics de mesures

1. Le Plasma Gun.....	39
1.1 Géométrie « standard » du Plasma Gun	39
1.2 Alimentation électrique	41
2. Étude de la dynamique de propagation du plasma par l'émission lumineuse.....	44
2.1 Imagerie ICCD	44
2.2 Fibres optiques et tube photomultiplicateur	45

3. Spectroscopie d'émission	47
3.1 Spectroscopie intégrée en temps	47
3.2 Spectroscopie résolue en temps	48
4. Mesure du champ électrique	48
4.1 Principe de fonctionnement de la sonde électro-optique	48
4.2 Réalisation des mesures	49
5. Mesure de la concentration des métastables de l'hélium	50
5.1 Niveaux d'énergie de l'atome d'hélium	50
5.2 Banc optique d'absorption laser	52
6. Visualisation de l'écoulement de l'hélium par strioscopie	54

Chapitre III. Étude de la modification d'écoulement par plasma

1. Introduction	57
1.1 Actuateurs plasma et vent ionique	57
1.2 Modification d'écoulement dans les jets de plasma à pression atmosphérique : état de l'art	58
1.3 Résumé et organisation du chapitre	62
2. Dispositif expérimental et notions de mécanique des fluides	62
2.1 Géométrie du Plasma Gun	62
2.2 Régimes d'écoulement et nombre de Reynolds	63
2.3 Écoulement en conduite	66
2.4 Développement d'un jet d'hélium hors du capillaire	67
3. Régimes d'écoulement en géométrie Plasma Gun	68
3.1 Orientation du capillaire	68
3.2 Étude des régimes d'écoulement pour différents débits et longueurs de capillaire.	69
3.3 Résumé des observations	74
3.4 Quelles hypothèses sur l'écoulement choisir ?	76
3.4.1 Écoulement en conduite avec une marche	76
3.4.2 Écoulement tournant en conduite	78
4. Transitions entre régimes d'écoulement par plasma	79
4.1 Plasma confiné dans le capillaire	79
4.2 Conclusion partielle	80
4.3 Plasma hors du capillaire (plume plasma)	81

5. Construction d'un canal d'hélium par plasma.....	82
5.1 Choix des conditions expérimentales	83
5.2 Influence d'une cible métallique reliée à la masse située à distance du jet.....	83
5.3 Effet de la polarité de l'impulsion tension	84
5.4 Variation de la distance à la cible	84
5.5 Dynamique de construction du canal	85
5.5.1 Influence de la tension appliquée	85
5.5.2 Influence de la fréquence de répétition	88
5.5.3 Hypothèses sur le mécanisme de canalisation	90
5.5.3.1 cas de la polarité négative.....	92
5.5.3.2 cas de la polarité positive.....	93
5.5.3.3 Quels ions ?	94
5.5.4 Influence de la nature de la cible sur la vitesse de poussée	95
5.5.5 Influence de la nature de la cible sur l'étalement de l'hélium	96
5.5.6 Estimation de la force de poussée par imagerie rapide	98
6. Préparation d'un canal d'hélium pour la propagation du plasma.....	101
6.1 Développement du jet à 18 kV.....	101
6.2 Préparation d'un canal d'hélium pour stabiliser le plasma	104
6.3 Optimisations dans les actuateurs plasma.....	105
7. Implications de nos hypothèses dans l'étude des jets de plasma froid à pression atmosphérique.	105
7.1 Effet de canalisation.....	105
7.2 Vent ionique et effet thermique	106
8. Conclusion et perspectives	107
9. Bibliographie du chapitre III.....	109

Chapitre IV. Étude de la propagation du plasma dans le capillaire diélectrique

1. Etat de l'art	113
1.1 Mesure du champ électrique dans les jets de plasma froid à pression atmosphérique	113
1.2 Champ électrique et propagation du plasma	114
1.3 Organisation du chapitre	117
2. Évolution temporelle des composantes longitudinale et radiale du champ électrique du PAPS le long du capillaire	117

2.1 Dispositif expérimental	118
2.2 Mesure préliminaire : évolution du champ électrique sans plasma.....	118
2.3 Mesures pour un capillaire de 12 cm de longueur	120
2.3.1 Évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique le long du capillaire	120
2.3.2 Influence de la polarité de l'impulsion de tension.....	127
2.3.3 Vitesse de propagation du front d'ionisation en polarités positive et négative	129
2.4 Mesures pour un capillaire de 40 cm de longueur	131
2.4.1 Évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique pour la décharge d'hélium.....	131
2.4.2 Évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique pour la décharge de néon.....	133
2.5 Résumé.....	134
3. Modulation de la vitesse de propagation du front d'ionisation par des mélanges hélium-azote	135
3.1 Premières observations expérimentales.....	136
3.2 Évolution de la structure du plasma en fonction de la concentration d'azote	138
3.3 Évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation en fonction de la concentration d'azote	139
3.4 Évolution des spectres d'émission du plasma	142
3.5 Géométrie de décharge avec une électrode haute tension externe.....	145
3.5.1 Géométrie de décharge du modèle et ajustement de la géométrie expérimentale..	145
3.5.2 Comparaison expérimentale de la géométrie « électrode externe » avec la géométrie « électrode interne ».....	146
3.6 Résultats du modèle numérique	151
3.6.1 Détail du modèle numérique	151
3.6.2 Influence du taux de pré-ionisation	153
3.6.3 Influence de la cinétique réactionnelle sur la vitesse de propagation et la structure du plasma	154
3.6.4 Influence de la concentration de N ₂ sur la vitesse de propagation du front d'ionisation	156
3.6.5 Influence de la concentration d'azote sur le champ électrique	156
3.6.6 Résumé	160
3.7 Cas de la polarité négative	161
4. Conclusion et perspectives	162
5. Bibliographie du chapitre IV	164

Chapitre V. Étude de l'interaction du plasma avec une cible conductrice

1. Introduction	167
1.1 Pourquoi étudier le jet de plasma en contact avec une cible conductrice ?	167
1.2 Jets de plasma sur cibles dans la littérature : état de l'art	169
1.3 Résumé et organisation du chapitre	172
2. Première caractérisation de l'interaction avec la cible métallique	173
2.1 Modification de l'émission lumineuse dans la plume plasma	173
2.2 Modification de l'émission lumineuse dans le capillaire	178
2.3 Résumé des observations.....	181
3. Influence de la cible métallique sur la production des métastables de l'hélium et l'évolution du champ électrique	182
3.1 Dispositif expérimental	182
3.2 Mesures de la concentration des métastables de l'hélium en polarité négative.....	183
3.2.1 Évolution le long du capillaire	183
3.2.2 Évolution dans la plume	186
3.3 Mesures de concentration des métastables de l'hélium en polarité positive.....	187
3.3.1 Évolution le long du capillaire	187
3.3.2 Évolution dans la plume	189
3.4 Peuplements des métastables de l'hélium et évolutions du champ électrique en polarité négative	191
3.4.1 Analyse des évolutions temporelles de la concentration des métastables de l'hélium	191
3.4.2 Évolution du champ électrique	193
3.5 Peuplements des métastables de l'hélium et évolutions du champ électrique en polarité positive	198
3.5.1 Analyse des évolutions temporelle de la concentration des métastables de l'hélium	198
3.5.2 Évolution du champ électrique	199
3.6 Mesures de courant sur la cible	202
3.7 Résumé des observations et hypothèses sur le mécanisme d'interaction avec la cible ...	203
3.7.1 Résumé des observations	203
3.7.2 Modèle numérique de l'interaction plasma et cible conductrice dans la littérature.	205
3.7.3 Différences entre les fronts d'ionisation primaire et secondaire	206
3.7.4 Hypothèse sur la nature du front secondaire	208
3.8 Cas du mélange hélium - azote	212

3.8.1 Peuplements des métastables de l'hélium et évolutions du champ électrique.....	212
3.8.2 Perspectives	216
3.9 Résumé.....	218
4. Retour sur le cas du jet libre	220
5. Conclusion	222
6. Bibliographie du chapitre V	224
 Conclusion générale	 229

Annexe A : plasma et éclatement tourbillonnaire

1. Ondes de Kelvin et éclatement tourbillonnaire	235
2. Hélice, double hélice et colonne	236
3. « Dards » et ondes stationnaires.....	241
4. Recirculation à grande échelle	244
5. Phénomènes périodiques	247
5. Bibliographie de l'annexe A	250

Annexe B : plume plasma du jet libre en polarité négative et évolutions détaillées du champ électrique

1. Plume plasma en polarité négative (jet libre)	253
2. Evolutions détaillées du champ électrique en configurations cible à 1 cm et jet libre.....	255
2.1 Polarité négative	256
2.2 Polarité positive.....	259

C. Liste des figures : 263

D. Liste des tableaux : 275

Chapitre I. Introduction : jets de plasma froid à pression atmosphérique

1. Généralités sur les plasmas

1.1 « Etat plasma »

L'essentiel de la matière présente sur Terre, sous forme solide, liquide et gazeuse, est à l'état neutre. L'édifice atomique est neutre par construction, avec un nombre d'électrons négatifs égalant le nombre de protons positifs. Un apport d'énergie suffisant, sous forme thermique ou électromagnétique, permet d'ioniser les atomes et d'obtenir un milieu où électrons, ions et neutres (si présents) sont en interaction. Une définition naturelle d'un plasma est celle du gaz ionisé, milieu électriquement conducteur. La physique des plasmas est une science relativement récente, dont les premiers travaux sont situés entre la fin du 19^{ème} siècle et le début du 20^{ème} siècle. Cette science s'est donc développée suite à l'avènement de la théorie unificatrice de Maxwell, l'électromagnétisme, la thermodynamique et sa description statistique par Boltzmann et conjointement à la théorie atomique de la matière. Le nom « plasma » est attribué au physicien Irving Langmuir ([1] 1929), dont les observations sur les phénomènes de transport pour les décharges électriques dans des gaz à basse pression l'ont conduit à faire une analogie avec le plasma sanguin. En un sens, l'histoire fait écho aux récentes applications du domaine, puisque presque un siècle plus tard, ce sont les plasmas qui permettront des avancées significatives dans le domaine biomédical, sujet de la présente thèse.

Le concept de plasma a permis des développements considérables tant sur les plans théoriques et fondamentaux que dans l'immense richesse d'applications possibles. A l'état naturel peu de plasmas sont présent sur Terre, essentiellement les éclairs, les TLE (Transient Luminous Events [2]) plus en altitude et finalement l'ionosphère. En périphérie de la Terre la ceinture de Van Allen est un piège magnétique à particules chargées de hautes énergies en provenance du soleil, lequel est lui-même un astre en fusion intégralement en état plasma. Le plasma est en fait présent en écrasante majorité dans l'univers visible, à plus de 99 % (étoiles, nébuleuses, bras des galaxies...). Sur Terre, les études de plasmas artificiels sont à l'origine de développements technologiques majeurs, notamment dans l'éclairage (tube fluorescent), l'informatique (plasma de gravure, à des échelles de l'ordre de la vingtaine de nanomètres pour les microprocesseurs), la stérilisation (plasma radio fréquence et micro-ondes) ou la sidérurgie (plasma d'arc). Le projet ITER, visant le confinement magnétique et la stabilisation d'une réaction de fusion nucléaire auto-entretenu est un des plus grands défis de ce siècle, devant les besoins toujours plus croissants en énergie des sociétés modernes. La diversité des applications énumérées ici reflète la diversité de natures des plasmas étudiés. Une classification s'impose suivant le type de plasma étudié, ce que nous allons rapidement décrire dans la section suivante.

Toutefois, nous pouvons souligner d'une manière générale que l'organisation particulière de la matière en état plasma lui confère une grande richesse de comportements. Les particules chargées sont libres (ions et électrons), mais en interactions mutuelles par le potentiel coulombien. Cela confère au système des propriétés d'auto organisation, à des échelles de temps et d'espace caractéristiques (écranage coulombien dit de Debye). Le concept de plasma peut être étendu à toutes collections de particules libres, en interactions mutuelles sous l'influence d'un potentiel donné. La physique des particules élémentaires prédit ainsi l'existence de plasma quark-gluon, dans des conditions extrêmes (cœur des étoiles à neutrons), où l'analogue de l'écranage de Debye coulombien est un écranage de charge de couleur (degré de liberté supplémentaire introduit en QCD, Quantum Chromo Dynamics). L'intérêt est également d'ordre mathématique, comme pour le célèbre problème de l'amortissement Landau, décrivant l'atténuation du champ électrique dans un plasma suite à une perturbation. Landau met en évidence en 1946 l'atténuation du champ électrique, phénomène irréversible, marqué par la flèche du temps, dans un système uniquement gouverné par des équations réversibles. Le paradoxe a été résolu récemment par Mouhot et Villani [3], après un demi-siècle de controverses (médaille Fields 2010). Le phénomène de l'amortissement Landau serait également généralisable à des étoiles en interactions par le champ de gravitation et ouvre des perspectives en dynamique galactique.

1.2 Types de plasmas

Pour toutes les applications que nous avons citées, une première distinction doit être effectuée suivant la température des différentes espèces présentes dans le plasma. Les plasmas de fusion ou astrophysique sont dits « chauds ». Ces plasmas sont totalement ionisés et toutes les espèces (électrons et ions) sont à la même température, laquelle est généralement très élevée (10^8 eV environ pour un plasma de Tokamak, avec $1\text{eV}=11600\text{K}$). Ces plasmas sont dits à l'équilibre thermodynamique.

Pour l'éclairage ou la gravure, se sont des plasmas dits « froids ». Contrairement aux plasmas chauds, tous les atomes ne sont pas ionisés. Les ions et les neutres sont de températures proches, généralement proche de la température ambiante (entre 300 et 1000 K, soit une fraction d'eV) et les électrons sont beaucoup plus chauds (quelques eV en ordre de grandeur). On parle de plasmas hors équilibre thermodynamique. Les décharges électriques dans les gaz peuvent être considérées généralement comme plasma froids, si l'on fait exception des phénomènes d'arcs électriques.

Les décharges dans les gaz peuvent être effectuées à basse pression dans une enceinte, ou à pression atmosphérique à l'air libre. De fait, le plasma froid à pression atmosphérique est très collisionnel et il sera difficile au système de maintenir une température électronique élevée, en raison du libre parcours moyen très réduit (93 nm). Un rappel des mécanismes de propagation généraux (avalanche électronique et charge d'espace) ainsi qu'une présentation de différents types de décharges électriques à pression atmosphérique seront effectués en partie 2.

Le type de plasma étudié dans cette thèse est un jet de plasma froid à pression atmosphérique. On parle de jet de plasma car la décharge se propage dans un gaz rare (hélium, néon, argon). C'est

notamment le nombre très élevé de voies de désexcitations possibles sur les espèces présentes dans l'air qui confère à ce type de plasma une cinétique réactionnelle très riche pour la production d'espèces dites réactives. Ces espèces jouent un rôle essentiel dans les mécanismes biochimiques et c'est notamment cet aspect qui a permis, cette dernière dizaine d'années, l'essor du domaine d'étude des jets de plasma froid à pression atmosphérique, offrant de nouvelles perspectives pour les traitements biomédicaux. La partie 3 sera consacrée à une présentation des jets de plasma froid à pression atmosphérique et leurs applications.

2. Décharges électriques à pression atmosphérique

De nombreux ouvrages de références ont été publiés sur l'étude des décharges électriques dans les gaz [4]–[7]. Nous illustrerons ici les phénomènes généraux qui sont une base nécessaire à la compréhension du développement d'une décharge à pression atmosphérique (2.1 et 2.2). Quelques exemples de géométries de décharges seront illustrés en section 2.3.

2.1 Mécanismes généraux : de l'avalanche électronique...

L'air ambiant possède naturellement une faible quantité d'électrons libres, ce que l'on attribue généralement aux bombardements des rayonnements cosmiques. Un taux de pré-ionisation réaliste se situe aux alentours de $10^4 \text{ e}^-/\text{cm}^3$. Lorsque ces électrons sont accélérés entre deux plaques planes portées à une certaine différence de potentiel électrique, leur nombre va rapidement croître par les collisions ionisantes successives sur les neutres, on parle d'avalanche électronique.

La Figure I-1 schématise le phénomène, avec un électron germe initial entre deux plaques planes séparées d'une distance D et portées à une différence de potentielle continue. Le champ E_0 est considéré uniforme entre les deux plaques. Les électrons sont mis en mouvement par action du champ électrique et entrent en collision avec les atomes. On considère que chaque collision d'un électron sur un atome est ionisante et induit la génération d'un nouvel électron et d'un ion positif.

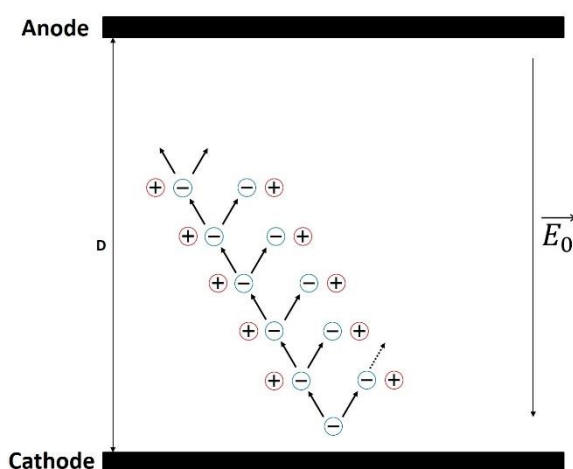


Figure I-1 : principe de l'avalanche électronique primaire

Pour un électron germe initial, le nombre total d'électrons créé pour une distance D sera donc de $N_e = e^{\alpha D}$ avec α le coefficient de création d'une paire électron-ion par unité de longueur. Ce coefficient est appelé premier coefficient de Townsend. On parle d'avalanche électronique primaire.

Cette phase est suivie de la migration des ions vers la cathode, jusqu'à leur impact sur celle-ci. Chaque impact génère γ électrons secondaires, avec γ le second coefficient de Townsend, propre au matériau constitutif de l'électrode et à la nature du gaz. Cette phase est appelée avalanche électronique secondaire.

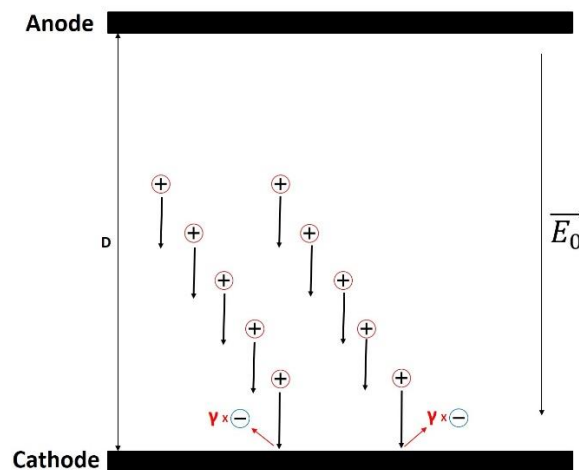


Figure I-2 : principe de l'avalanche électronique secondaire

Ce type de décharge est appelée décharge de Townsend. Lorsque l'amplification du courant devient très importante, cette décharge peut s'auto entretenir, on parle de claquage. La décharge de Townsend peut se produire si le libre parcours moyen électronique est suffisamment grand pour que les électrons puissent acquérir assez d'énergie cinétique entre deux collisions pour ioniser. Cette théorie permet d'expliquer l'allure de la tension de claquage dans un gaz en fonction du produit (pression X distance inter-électrode) (courbes de Paschen). Elle permet de rendre compte de manière satisfaisante des tensions de claquage pour de faibles produits (pression X distance). La limite est généralement fixée à 200 Torr.cm, soit $2,7 \cdot 10^4$ Pa.cm, (avec 1 torr = 133 Pa). À pression atmosphérique pour des distances inter électrode supérieures à 5 cm, cette théorie n'est pas suffisante.

2.2 ... à la propagation des streamers

L'avalanche électronique est un phénomène rapide, avec des vitesses de propagation de l'ordre de 10^7 cm/s [4]. Les ions positifs sont lourds et donc essentiellement statiques aux échelles de temps concernées. Lorsque le nombre d'électrons croît très rapidement, il peut se développer un champ électrique de charge d'espace. (Figure I-3). Si ce champ de charge d'espace est de l'ordre de grandeur du champ appliqué entre les deux électrodes, le champ appliqué est déformé. Les processus d'avalanche électronique seront alors dépendants du champ total, somme du champ

appliqué et du champ de charge d'espace. Le mode de propagation de la décharge en sera considérablement affecté, on parle de décharges de type streamers. Généralement, ce mécanisme se produit pour des produits (pression X distance) supérieurs à 4000 Torr.cm, avec une densité électronique de l'ordre $10^8 \text{ e}^-/\text{cm}^3$ atteinte lors de l'avalanche primaire (critère de Meek). Dans des conditions de tensions suffisamment élevées, le streamer peut à mi-parcours se développer vers la cathode et vers l'anode. On parle de streamer cathodique (positif) et de streamer anodique (négatif).

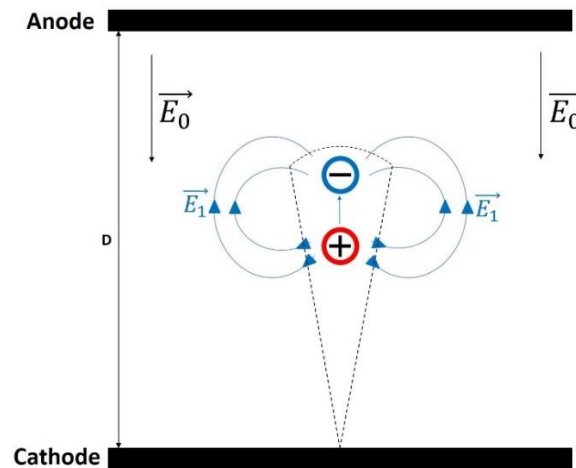


Figure I-3 : génération d'un champ de charge d'espace E_1 entre la charge négative (électrons mobiles) et la charge positive (ions fixes). (d'après [4]).

2.2.1 Streamer cathodique (positif)

Au cours de l'avalanche électronique primaire, les atomes excités suite à une collision électronique émettent des photons. Ils peuvent être suffisamment énergétiques pour ioniser les atomes, qui émettent des électrons secondaires (photoionisation). Le champ de charge d'espace pousse ces électrons secondaires vers le nuage d'ions positifs primaire. Les électrons et les ions forment alors un plasma faiblement conducteur, on parle de canal. Lorsque les électrons secondaires sont attirés vers le canal, ils peuvent à nouveau exciter des atomes sur le trajet et ceux-ci peuvent à leur tour émettre des photons photo-ionisant. La charge d'espace créée par les ions secondaires s'ajoute à la charge d'espace des ions primaires et le canal grandit. Le processus est répété à l'identique à chaque nouvelle vague d'électrons et d'ions. Les multiples « sauts » de la charge d'espace la rapprochent progressivement de la cathode, laissant un canal faiblement conducteur dans son sillage. Cela permet une propagation très rapide de la décharge, à des vitesses de l'ordre de 10^8 cm/s . Dans ce mécanisme, les électrons se meuvent donc vers le canal, en sens contraire de la propagation du streamer. La photoionisation serait donc nécessaire à sa propagation, bien que de récents résultats puissent nuancer cette affirmation [8]. Le mécanisme de propagation est schématisé en Figure I-4.

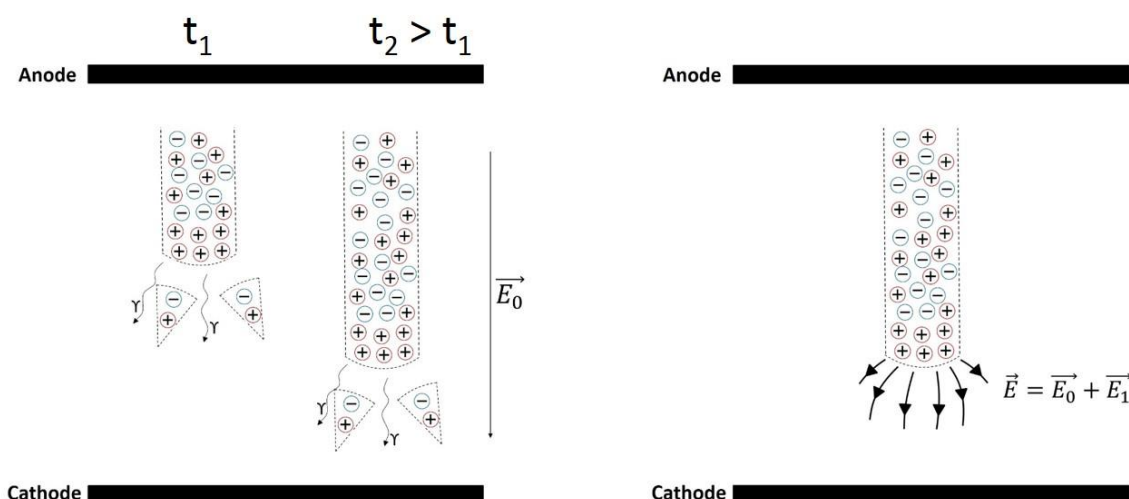


Figure I-4 : développement d'un streamer positif vers la cathode et représentation des lignes de champs en tête de streamer (d'après Raizer [4])

2.2.2 Streamer anodique (négatif)

Dans le cas d'un streamer se développant vers l'anode, le mécanisme de propagation est différent. Les avalanches électroniques se produisent en tête de canal et les électrons sont accélérés vers l'anode par le champ total E . Les électrons et le streamer se déplacent donc dans la même direction. La photoionisation peut toujours se produire, mais elle n'est plus nécessaire à la propagation. Le canal derrière la tête du streamer est également faiblement conducteur. Le mécanisme de propagation est schématisé en Figure I-5.

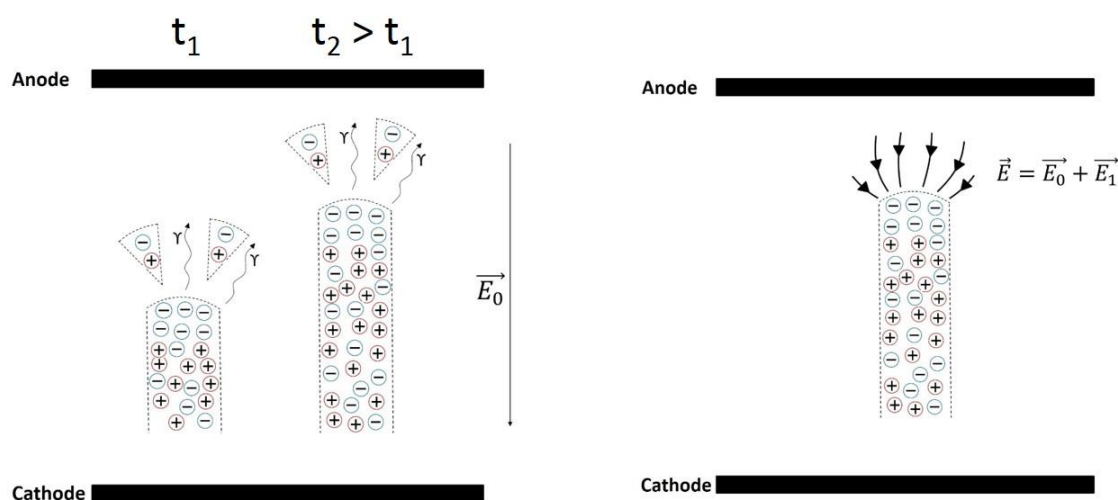


Figure I-5 : développement d'un streamer négatif vers l'anode et représentation des lignes de champs en tête de streamer (d'après Raizer [4])

2.2.3 Rôle du canal

Le concept de streamer a été introduit par Loeb [9] (1960), Raether [10] (1964) et Meek [11] (1971) pour pallier aux manques de la théorie de Townsend dans la description des décharges à pression atmosphérique et grande distance inter électrode sous un fort champ électrique appliqué. Dans l'air à pression atmosphérique, le champ de claquage se situe vers 30 kV/cm. Ce concept permet d'expliquer la propagation de décharges à des vitesses plus élevées que la propagation de l'avalanche électronique primaire. Le streamer est décrit comme une structure quasi neutre mais néanmoins conductrice.

Le rôle du canal derrière la tête du streamer est un point délicat. Des modèles peuvent simuler la propagation du streamer en considérant deux approches extrêmes : une tête « isolée » [12], ou a contrario une tête reliée à une électrode par un canal parfaitement conducteur [13]. Des cas intermédiaires avec des canaux de faible conductivité ont également été considérés. De nombreuses difficultés apparaissent également quant au rôle exact de la photoionisation ou au rôle des ions négatifs dans le développement de la décharge. Pour des streamers positifs, il a notamment été montré dans [14], en mélange azote-oxygène, que les photoélectrons en tête du streamer pouvaient être substitués par un milieu pré-ionisé. Les variations des paramètres du milieu ont permis de reproduire certaines caractéristiques du streamer (vitesse, courant de conduction, distribution électronique en tête et dans le canal).

Le canal constitue une jonction électrique entre les deux électrodes, l'intensité du courant qui y circule est caractéristique d'un certain type de décharge. Dans les modèles de streamers idéaux parfaitement conducteur, quelques centaines de milliampères circulent par le canal, entre l'anode et la cathode. La densité électronique est de l'ordre de quelques $10^{13} \text{ e}^-/\text{cm}^3$ et l'élévation de température est de l'ordre de la dizaine de Kelvin [4]. Des canaux fortement ionisés avec des densités électroniques élevées ($10^{17} \text{ e}^-/\text{cm}^3$) peuvent faire évoluer la décharge vers des gammes de courant beaucoup plus importantes (jusqu'à 10^5 A). On parle de décharge de type spark. La température du canal y est très élevée et peut atteindre 20 000 K.

Il existe également des étapes intermédiaires entre le streamer et le spark, on parle de décharge de type leader. Si le streamer se propage en « collectant » les avalanches électroniques, le leader se propage en collectant les streamers. La forte conductivité du canal est préservée par la forte augmentation de la température qui inhibe les effets d'attachement sur les ions négatifs. A plus basse température, ces effets entraînent une baisse de la densité électronique du canal. Dans le cas du streamer, le potentiel de l'anode ne peut se transférer de manière efficace en raison de la faible conductivité du canal. Dans le cas du leader, lors du contact à la cathode, le saut de potentiel très brusque entre le potentiel de l'anode et la masse entraîne une contre propagation très rapide (de l'ordre de 10^9 cm/s) de ce saut dans le canal conducteur. On parle de « return stroke » ou « back wave ». Ces phénomènes permettent notamment d'expliquer le transfert des charges négatives contenus dans un nuage vers le sol suite à l'impact d'un éclair. Le courant transféré est de l'ordre de 10^4 A .

2.3 Quelques géométries de décharges non thermiques à pression atmosphérique

L'évolution d'une décharge électrique à pression atmosphérique vers l'équilibre thermodynamique doit être stoppée si le dispositif est utilisé à des fins applicatives.

Utiliser des impulsions de tension suffisamment courtes (nanoseconde ou microseconde) permet de stopper l'évolution vers l'arc en limitant l'avalanche électronique avant que celle-ci ne devienne trop importante. Il est également possible d'adapter la géométrie de la décharge. On distingue d'une manière générale deux grands types de décharge électrique « froides » à pression atmosphérique : les décharges couronnes et les décharges à barrière diélectrique.

Le développement des streamers positifs et négatifs a été illustré en partie précédente entre deux plaques plates parallèles. Dans cette géométrie plan-plan, le champ électrique appliqué est uniforme. Pour une décharge couronne, la géométrie de décharge est asymétrique. La géométrie de type pointe-plan en est un exemple. Le potentiel est appliqué sur une électrode en pointe située à une certaine distance d'un plan. La répartition des équipotentiels au voisinage immédiat de la pointe rend le champ électrique localement très important à la pointe et nettement plus faible vers le plan. Ce type de décharge est appelé décharge couronne en raison de l'aspect que prend le plasma au voisinage de la pointe, du fait de la distribution des lignes de champ.

Les configurations en décharges à barrière diélectrique (DBD) consistent à envelopper au moins une des électrodes avec une couche de diélectrique. De cette manière, le dépôt de charges progressif sur les parois du diélectrique induit un champ électrique qui finit par écranter naturellement le champ appliqué et stoppe la décharge. Pour que la décharge soit maintenue, il est alors nécessaire de chasser les charges résiduelles en adaptant le signal de tension (sinusoïdal ou impulsionnel). Les géométries de décharges sont généralement planes ou coaxiales. Les streamers peuvent se former de manière aléatoire, donnant un aspect très filamentaire au plasma, mais dans certaines conditions, le plasma peut être homogène [15].

La valeur du produit pression X distance pour de très courtes distances inter électrode (inférieures au millimètre) permet également l'initiation de décharges à pression atmosphérique. On parle dans ce cas de micro-décharges.

Le type de décharge étudiée dans la présente thèse entre dans la catégorie des décharges à barrière diélectrique. A la différence des dispositifs présentés précédemment, le plasma n'est plus confiné dans la région inter-électrode. Un jet de gaz rare est soufflé depuis la zone inter électrode dans un capillaire diélectrique. Le plasma se propage alors dans le capillaire et dans le jet de gaz se développant dans l'air ambiant, après la sortie du capillaire. On parle de jets de plasma froid à pression atmosphérique.

3. Jets de plasma froid à pression atmosphérique : types de jets et applications.

3.1 Un domaine en expansion rapide

Au moment où cette thèse est écrite, sept revues majeures ont été publiées sur le domaine [16]–[22]. Dans la revue de Winter et al [22] publiée en 2015, les auteurs résument le nombre de publications par an de 1988 à 2014 (Figure I-6). L'année 2014 compte 211 publications sur le domaine contre seulement 15 en 2003. Ces dix dernières années, le nombre d'études dédiées au domaine a très fortement augmenté.

Les jets de plasma froid à pression atmosphérique présentent l'avantage d'être relativement simple de conception et d'utilisation (un tube diélectrique des électrodes et un flux de gaz) et plusieurs types d'alimentation électrique sont possibles. De nombreuses équipes étant en mesure de fabriquer leur propre générateur plasma, la diversité des dispositifs est importante. Néanmoins, il est possible de classer les différents jets en fonction de plusieurs critères, comme le type d'alimentation électrique [19] ou la géométrie de décharge et le type de gaz utilisé [21].

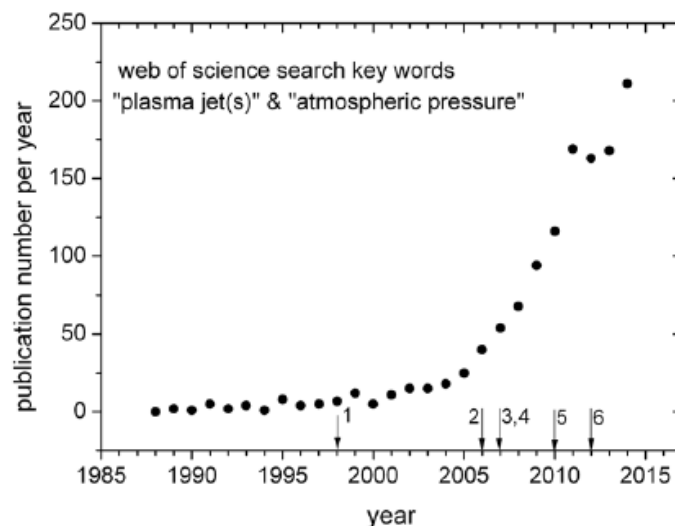


Figure I-6 : nombre de publications par an entre 1988 et 2014 (issue de [22]).

Cette simplicité de conception des jets tranche en revanche singulièrement avec la richesse des phénomènes physiques mis en jeu. La mise en place d'outils de diagnostics pertinents et leurs interprétations restent un véritable challenge. Dans l'équipe plasma médecine du GREMI, la présente thèse est la troisième dédiée à l'étude d'un jet de plasma froid à pression atmosphérique, le Plasma Gun. Elle s'inscrit dans la continuité de la thèse de Vanessa Sarron [23] et s'est effectuée en parallèle de la thèse de Delphine Ries [24]. Les thèses de Marc Vandamme [25] et de Laura Brullée [26], effectuées en collaboration entre le GREMI et le CIPA (Centre d'Imagerie du Petit Animal), furent dédiées à l'étude du plasma gun dans le cadre de thérapies anti-cancéreuses.

La simplicité d'utilisation des jets de plasma froid à pression atmosphérique combinée à leur capacité à pouvoir traiter localement une région (quelques mm ou moins) et à produire des espèces réactives (NO , OH , NO_2 , H_2O_2 , O , O_3 , ...) ont permis leur développement rapide dans le domaine

biomédical [27]–[38]. Les applications sont nombreuses : décontamination, stérilisation, traitement anti cancéreux, coagulation, cicatrisation, traitements dentaires...

Vandamme et al. [39] ont notamment été les premiers à montrer l'efficacité anti-tumorale *in vivo* d'un traitement plasma sur des souris. Collet et al. [40] ont mis en évidence que le plasma était capable d'induire une oxygénation des tissus. Il a été notamment montré que cet effet ne se produisait que lorsque la souris était vivante.

En Allemagne, le jet plasma développé par l'INP (kinpenMed) a été certifié dispositif médical et est actuellement utilisé en hôpital sur des patients [41].

3.2 Géométries de décharges et sources d'alimentations électriques

Les jets de plasma froid à pression atmosphérique ont tous pour point commun de pouvoir générer du plasma au-delà de la zone inter électrode. De nombreuses configurations existent et plusieurs classements sont possibles. La revue de Laroussi et al [19] propose un classement par types d'alimentations électriques. La revue de Lu et al [21] propose un classement par types de gaz utilisés et géométries de décharges.

3.2.1 Alimentations électriques

Plusieurs types d'alimentations électriques peuvent être utilisés :

- **Alimentations pulsées ou alternatives (AC)**

La haute tension utilisée (de l'ordre du kV ou de la dizaine de kV) est pulsée à des fréquences de l'ordre du kHz. La durée de chaque impulsion peut varier entre la dizaine de nanosecondes et la dizaine de microsecondes. La polarité de l'impulsion de tension peut être choisie positive ou négative, sachant qu'une majorité d'équipes travaillent en polarité positive. La haute tension utilisée peut être également sinusoïdale, alternant alors entre les deux polarités. Ces jets ont l'avantage de ne pas ou peu chauffer (température proche de l'ambiante) et sont particulièrement adaptés pour les applications biomédicales. Le Plasma Gun, jet plasma étudié dans cette thèse, utilise une alimentation électrique pulsée.

- **Alimentations radio fréquence (RF)**

Le plasma produit par ces dispositifs peut chauffer le gaz jusqu'à une centaine de degrés. Les électrodes doivent être refroidies pour éviter la surchauffe. L'objet traité doit être généralement à distance du plasma, beaucoup de jets alimentés en RF utilisent l'effluent du gaz, lequel transporte les espèces produites par le plasma. Historiquement, un des premiers jets de plasma à pression atmosphérique rapporté dans la littérature était alimenté en RF [42].

- Alimentations micro-ondes

Ce type d'alimentation est moins courant car le réglage entre la puissance injectée et le plasma demande un fin réglage. Les puissances injectées peuvent varier dans une gamme comprise entre le Watt et la centaine de Watts. Les températures atteintes sont en général élevées pour des applications biomédicales.

3.2.2 Géométries de décharges

La Figure I-7 issue de [23] résume les géométries principales utilisées. Plusieurs configurations sont possibles suivant la manière dont sont agencées les électrodes, le capillaire et la circulation du flux de gaz rare. Les gaz les plus couramment utilisés sont des gaz rares (hélium, néon, argon). La tension de claquage dans ces gaz rares étant plus faible que dans l'air, la décharge va préférentiellement se développer dans le flux de gaz.

Catégories	Alimentation	Schéma
DBD Plasma Jet	Continu pulsée Alternative kHz Radio fréquence	a
		b
		c
		d
		e
		f
		g
DBD like Plasma Jet	Alternative kHz Radio Fréquence Continu pulsée	h
		i

Figure I-7 : quelques géométries de jets de plasma froid à pression atmosphérique (issue de [23], p.32)

Le plasma est généré au voisinage de l'électrode haute tension et se propage dans le capillaire. La zone de propagation du plasma après la sortie du capillaire est appelée plume plasma. La distance entre les électrodes et la sortie du capillaire est variable suivant les équipes. Beaucoup d'équipes utilisent de courts capillaires et le plasma débouche rapidement à l'extérieur de ceux-ci. L'électrode haute tension peut être une bague glissée sur le capillaire (c[43] ; d [44] ; g [45]–[48]) ou une aiguille située à l'intérieur (a [49]–[51] ; b[52] ; e [53], [54]). Si une couche de diélectrique recouvre

l'électrode haute tension, on parle de décharge à double barrière diélectrique, sinon de décharge à simple barrière diélectrique si l'électrode haute tension est directement au contact du plasma. La géométrie du Plasma Gun est en f, nous reviendrons sur celle-ci en section 3.3. Dans toutes ces configurations, les jets plasma sont dit « libres », car la plume plasma s'étend librement en sortie de capillaire sans aucun obstacle pour l'entraver.

Dans les configurations h [55], [56] et i [57], les plumes plasmas sont en contact avec une cible conductrice et on ne peut plus parler de « jet libre ». De fait, utilisés en condition de traitement biomédical, les jets plasma entrent souvent dans cette catégorie pour des traitements *in vivo*. Nous verrons par la suite que cette distinction entre un jet libre et un jet en contact avec une cible s'avère particulièrement importante.

Certaines géométries ont été conçues pour permettre des mélanges avec d'autres gaz dans la décharge (notamment azote, oxygène ou air). La revue de Winter et al propose dans le tableau 2 de nombreux exemples de mélanges de gaz dans diverses configurations de jet [22].

Le plasma généré dans les jets de plasma à pression atmosphérique apparaît continu à l'œil (Figure I-8).

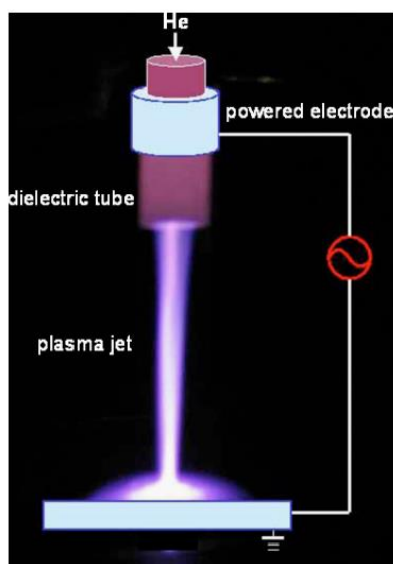


Figure I-8 : jet de plasma d'hélium de Walsh et al (issue de [58], fig.1)

En visualisant la propagation du plasma par imagerie rapide ICCD Teschke et al [44] (jet d'hélium RF) ont été les premiers à décrire que ce qui apparaît continu à l'œil résulte d'une succession de petits volumes de plasma sphériques (sans ramifications) se propageant à grande vitesse (quelques 10^6 cm/s). Lu et Laroussi ont rapporté la même année une observation similaire sur leur « Plasma Pencil » (jet d'hélium pulsé [59]).

Dans ces premières observations, les auteurs décrivent que cette structure est déconnectée de l'électrode haute tension et se propage telle une « balle ». Des analogies avec le modèle du streamer isolé [12] ont été proposées dans [59] principalement en raison de la vitesse élevée de propagation de la « balle ». Des analogies ont ensuite été effectuées entre la propagation de la

« balle » et les mécanismes de propagation des streamers positifs avec la propagation rapide d'un front d'ionisation [60]–[66].

Le front d'ionisation n'apparaît plus déconnecté de l'électrode mais relié à celle-ci par un canal conducteur [67]. C'est notamment suite à cette observation que la dénomination PAPS pour Pulse Atmospheric pressure Plasma Streams a été proposée pour nommer ce type de structure. Cette dénomination englobe la « tête », le front d'ionisation connecté à l'électrode haute tension par le « stream » canal ou colonne plasma conductrice.

3.3 Le Plasma Gun

Le Plasma Gun est un dispositif qui a été breveté en 2007, mais dont les premières observations (non publiées) de la propagation rapide du plasma dans des capillaires datent de 1991. Ces observations ont fait l'objet d'un dépôt dans une enveloppe solo.

Contrairement à une majorité de jets de plasma froid, le Plasma Gun peut générer des plasmas se propageant dans de longs capillaires (plusieurs dizaines de centimètres). Les capillaires peuvent être de natures variées (capillaires droits en verre ou quartz, ou tuyaux souples en téflon, Figure I-9).

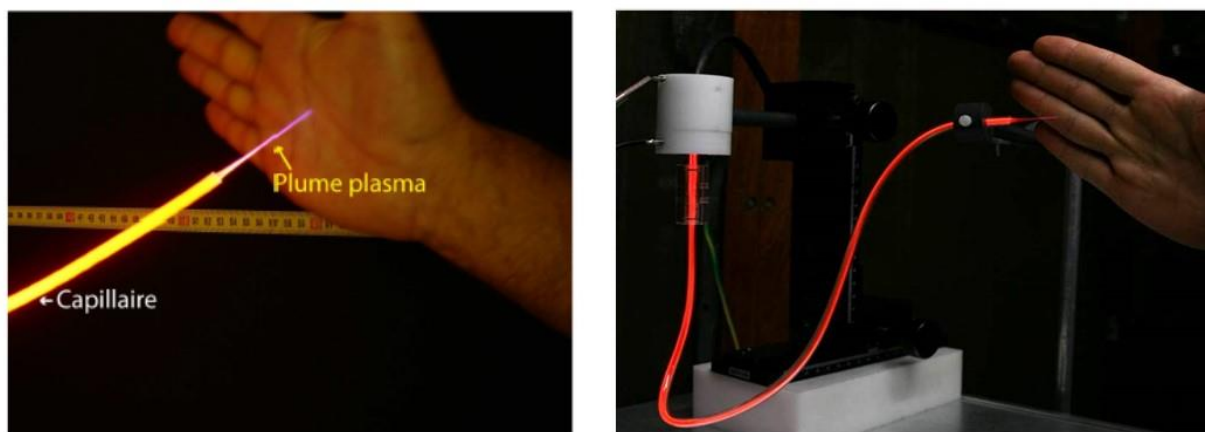


Figure I-9 : propagation d'un plasma de néon dans un capillaire droit et un tuyau souple

Une grande variété de configurations est ainsi possible, notamment en utilisant des capillaires en anneau [68] ou de fins capillaires qui rendent possibles des traitements in vivo par voie endoscopique [36].

Une étude approfondie du Plasma Gun avec des impulsions de tensions à fronts de montées raides (environ 20 ns) avec une alimentation thyatron, principalement dans le néon, a été effectuée dans le travail de thèse de Vanessa Sarron [23], [67]–[70]. Dans [24] et la présente thèse, le Plasma Gun étudié est alimenté par des impulsions de tensions μ s et principalement en hélium. Nous y reviendrons au second chapitre lors de la présentation du dispositif expérimental.

3.4 Quelques outils de diagnostics

La propagation du front d'ionisation est un phénomène très rapide s'effectuant à des échelles de temps nanosecondes. A pression atmosphérique, le plasma est collisionnel et il est difficile au système de maintenir une température électronique et un degré d'ionisation élevé. Les gaz rares utilisés (hélium, néon ou argon) possèdent des états excités qui sont métastables. Ces états n'ont pas de désexcitation par voie radiative et ont une durée de vie importante. Les électrons les plus chauds du front d'ionisation peuvent stocker leur énergie cinétique dans ces « réservoirs » à longue durée de vie. Ces réservoirs dispensent ensuite leur énergie par quenching (i.e désexcitation par collision) aux impuretés présentes dans le gaz (principalement azote et oxygène moléculaire ainsi que des molécules d'eau de l'air environnant). Le lecteur intéressé pourra notamment se reporter à la revue de Golubovskii et al présentant les mécanismes de transport des espèces métastables dans les décharges [71].

Suite au passage du front d'ionisation (collision électronique directe) et au quenching des états métastables, une grande variété d'ions et de neutres (moléculaires et atomiques), distribuées sur de nombreux niveaux excités, est ainsi produite. De très nombreuses voies de désexcitation sont possibles (ionisations, transferts de charges, dissociations, recombinaisons...) aboutissant au final à une cinétique réactionnelle complexe et extrêmement riche [72]. Les voies cinétiques mènent notamment à la formation des espèces réactives jouant un rôle clé dans les applications biomédicales [33], [34].

Beaucoup d'efforts ont été entrepris pour étudier la physique des jets et quantifier la production d'espèces réactives. Les propriétés du plasma sont accessibles notamment par la lumière émise ou absorbée. La récente revue de Ono [73] expose notamment en détail différentes techniques spectroscopiques utilisées pour l'étude des espèces réactives produites par plasma froid à pression atmosphérique.

L'imagerie rapide ICCD permet de suivre la dynamique de propagation du front d'ionisation à l'échelle nanoseconde. Outil « historique » dans l'étude expérimentale de la dynamique des jets plasma [44], elle permet de visualiser de manière non intrusive la structure du plasma à de courtes échelles de temps et de calculer sa vitesse de propagation. Gherardi et al. [74] présente de manière exhaustive l'usage de cet outil pour l'étude des jets plasma. Disposer plusieurs fibres optiques reliées à un tube photomultiplicateur permet également de suivre la dynamique de propagation du plasma [67].

La spectroscopie d'émission a l'avantage d'être simple de mise en œuvre et non intrusive également. Elle permet de visualiser les désexcitations radiatives, résolues spatialement et temporellement, mais ne donne pas accès aux espèces dans le fondamental. Sous certaines hypothèses, appuyées par des modèles numériques pour des transitions bien précises, elle peut permettre de remonter aux températures de différentes espèces [75].

De nombreuses techniques de spectroscopie d'absorption ont été développées pour permettre des mesures quantitatives. On peut notamment citer succinctement :

- Laser absorption spectroscopy (LAS) : Cette technique permet de remonter à la densité absolue d'une espèce dans le fondamental par absorption d'un photon produit par un laser à une longueur d'onde adaptée à la transition que l'on souhaite. Les densités des métastables d'hélium $\text{He } 2^3\text{S}$ peuvent notamment être mesurées avec des photons infrarouge [76]–[81]. Dans sa thèse, Claire Douat [81] a notamment mis au point un diagnostic pour la mesure de la concentration des métastables de l'hélium dans les jets plasma, que nous avons utilisé sur notre jet. Nous reviendrons sur la mesure des métastables de l'hélium au second chapitre.
- Laser Induced Fluorescence (LIF) : Cette technique consiste à induire une fluorescence sur l'espèce visée et à remonter à sa densité par le développement de schémas détaillés de fluorescence et d'excitations sur plusieurs niveaux d'énergie. Les densités de OH [82], [83], NO [84],[85] peuvent être mesurées par LIF. Pour les mesures des densités de N, O et H, on parle de TALIF (Two Photon Laser induced fluorescence) car l'excitation nécessite également des photons VUV.

Les mesures de courant nécessitant de placer un objet métallique dans ou à proximité du jet sont perturbatrices et/ou intrusive. Les mesures de courant et les déductions indirectes de densité électronique sont à ce titre difficiles à interpréter [86], puisque le fait de faire la mesure peut modifier ce que l'on observe. Certaines équipes ont toutefois utilisées des mesures de courant pour calculer la vitesse de propagation du front d'ionisation [87].

La densité et la température électronique ainsi que le champ électrique sont des quantités plus aisément accessibles par le biais de la simulation numérique [62], [64]–[66], [69], [70], [88]–[90]. Le développement des techniques de « Thomson scattering » permet de mesurer de manière non intrusive ces deux quantités [91]–[95]. Pour les mesures expérimentales du champ électrique, il existe peu de techniques et peu de publications. Nous reviendrons sur celles-ci et en particulier sur le dispositif que nous avons utilisé pour notre jet.

Quelques équipes ont étudié leur jet d'un point de vue hydrodynamique, en étudiant l'écoulement du gaz par strioscopie [96]–[99]. La plume plasma favorise notamment l'apparition de turbulence dans l'écoulement [96], entraînant un fort mélange entre l'hélium et l'air environnant. Par simulation numérique, Karakas et al [47] ont montré que le plasma ne se développait que dans une région ne contenant qu'une fraction suffisante d'hélium dans l'air ambiant et que la turbulence limite donc la taille des plumes plasma.

4. Objectifs de la thèse

4.1 Thématique d'étude

Depuis les premières études sur les jets de plasma froid à pression atmosphérique, de nombreuses techniques de mesures ont été développées pour étudier la physique des jets et quantifier la production des espèces réactives dans un jet donné. La diversité des types de jets étant importante (géométries, alimentations électriques et gaz utilisés), les comparaisons directes de résultats expérimentaux d'une géométrie à l'autre sont souvent difficiles.

La présente thèse concerne l'étude du Plasma Gun en hélium (alimenté par impulsions de tension μs) et des mécanismes de décharges susceptibles d'affecter la production d'espèces réactives, dans des conditions réalistes vis-à-vis des applications biomédicales. Des mécanismes clés sont susceptibles d'affecter considérablement la production d'espèces réactives, en particulier liés à l'écoulement de l'hélium, à la propagation du plasma et à l'interaction de celui-ci avec une cible conductrice.

Dans les conditions standards du Plasma Gun utilisées en traitement biomédical, la plume plasma est en contact avec la cible traitée. Nous avons observé que le débit d'hélium utilisé n'était pas suffisant pour que l'hélium atteigne la cible, lorsque le plasma était coupé. Or, dans les traitements plasmas effectués à ce débit d'hélium, la plume plasma atteint la cible. Cette observation est contradictoire avec les conclusions de Karakas et al [47], puisque le plasma se développe dans une région où initialement l'hélium est absent. Cette observation indique donc que le plasma doit modifier l'écoulement en « poussant » de l'hélium sur la cible. Les considérations hydrodynamiques s'avèrent ainsi primordiales pour une compréhension exhaustive du développement du jet plasma.

L'étude des mécanismes de propagation du plasma reste également fondamentale dans la compréhension du développement du jet plasma. Le champ électrique n'a été que très peu étudié expérimentalement. En particulier, aucune étude expérimentale n'a été effectuée sur la propagation du front et l'évolution du champ électrique (champ local du front et champ de la colonne plasma). Au moyen d'une sonde électro-optique, nous avons étudié en détail l'évolution du champ électrique dans notre jet plasma. D'autre part, les cinétiques réactionnelles considérées dans les jets plasma sont généralement complexes et les réactions pertinentes considérées peuvent fortement varier d'un modèle à l'autre. Par une étude expérimentale des effets de mélanges hélium-azote sur la dynamique de propagation et l'évolution des spectres d'émission du plasma, couplée à un modèle numérique développé en collaboration avec Anne Bourdon (anciennement EM2C et actuellement LPP), François Péchereau (anciennement EM2C et actuellement CERFCACS) et Pedro Viegas (LPP) nous avons pu définir un schéma cinétique précis, dont les réactions sont à même de reproduire les changements observés dans la dynamique de propagation et l'évolution du champ électrique mesuré.

La description d'un jet se voulant proche d'un cas de traitement, en contact avec une cible conductrice, nous amène donc à aborder l'étude de la physique de notre jet en trois points

principaux : hydrodynamique, mécanisme de propagation du plasma en jet libre et influence du contact avec la cible. Ces différentes thématiques sont de fait assez générales et ne sont pas restrictives à un seul jet plasma. En effet, une grande majorité de jets plasma utilise un flux de gaz dans lequel le plasma se propage. De plus, tout jet plasma destiné à des traitements sera amené à être en contact avec une cible, en particulier conductrice dans le cas de traitements biomédicaux *in vivo*. Nous verrons que chacun de ces phénomènes opèrent à des échelles de temps bien précises, séparées de plusieurs ordres de grandeur. Ils ont néanmoins tous pour point commun de pouvoir potentiellement considérablement affecter la production d'espèces réactives. Le Plasma Gun ayant pour caractéristique notable de pouvoir propager le plasma sur des distances relativement importantes, nous nous attacherons en particulier à étudier la globalité du jet plasma (propriétés de l'écoulement et du plasma dans le capillaire diélectrique) sans réduire notre description à la seule plume plasma.

4.2 Organisation des chapitres

La présente thèse s'articulera donc en trois chapitres principaux, précédés d'un chapitre de présentation du dispositif expérimental et des diagnostics de mesures utilisés. Un état de l'art « thématique » sera effectué pour les trois chapitres principaux.

- **Le chapitre II** présentera le jet Plasma Gun utilisé et les diagnostics de mesures.
- **Le chapitre III** sera dédié à l'étude de l'interaction entre l'écoulement de l'hélium et le développement du plasma. Les phénomènes seront abordés en deux temps : transition entre régimes d'écoulement et mécanisme de canalisation d'un flux d'hélium. Le mécanisme de canalisation sera traité à faible débit d'hélium, dans des conditions proches des applications biomédicales. Les écoulements ont été visualisés par strioscopie sur le banc optique de l'ISAE (Institut Supérieur de l'Aéronautique et de l'Espace) à Toulouse, dans le cadre de l'ANR blanc PAMPA.
- **Le chapitre IV** présentera l'étude des mécanismes de propagation du plasma en jet libre. Ce chapitre sera divisé en deux parties : étude du champ électrique et étude des propriétés des mélanges hélium-azote. La maîtrise d'un outil récent pour la mesure du champ électrique (sonde électro-optique) nous a permis d'étudier en détail l'évolution temporelle et spatiale de deux composantes orthogonales du champ électrique (longitudinale et radiale). D'autre part, a été développé en collaboration (Anne Bourdon, François Pechereau et Pedro Viegas) un modèle numérique comportant notamment une cinétique réactionnelle ciblée. Le modèle est à même de reproduire les comportements expérimentaux observés sur l'influence de mélanges hélium-azote sur la dynamique de propagation et l'évolution du champ électrique.

- **Le chapitre V** présentera en détail l'influence du contact avec une cible métallique reliée à la masse sur les propriétés du plasma. Notre étude est principalement basée sur la corrélation entre deux diagnostics. L'évolution du peuplement des métastables de l'hélium (mesurée par spectroscopie d'absorption laser, à Orsay au LPGP) et l'évolution de deux composantes orthogonales du champ électrique. Cette corrélation a permis d'identifier un mécanisme d'interaction précis avec la cible conductrice, affectant la globalité du jet (plume plasma et capillaire) et particulièrement influant sur la production d'espèces réactives. Les mesures des métastables de l'hélium ont été effectuées dans le cadre de l'ANR blanc PAMPA.
- **Une conclusion générale** résumera les résultats majeurs de nos travaux, en ouvrant sur leurs perspectives.

5. Bibliographie du chapitre I

- [1] L. Tonks and I. Langmuir, "Oscillations in ionized gases," *Phys. Rev.*, vol. 33, no. 1925, pp. 195–211, 1929.
- [2] V. P. Pasko, Y. Yair, and C. L. Kuo, "Lightning related transient luminous events at high altitude in the earth's atmosphere: Phenomenology, mechanisms and effects," *Space Sci. Rev.*, vol. 168, no. 1–4, pp. 475–516, 2012.
- [3] C. Mouhot and C. Villani, "Landau damping," *J. Math. Phys.*, vol. 51, no. 1, 2010.
- [4] Y. P. Raizer, *Gas discharge physics*. Berlin: Springer-Verlag, 1991.
- [5] M. A. Lieberman, *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing*, Wiley. New York, 1994.
- [6] A. Fridman and L. Kennedy, *Plasma Physics and Engineering*. CAMBRIDGE, 2004.
- [7] A. Fridman, *Plasma Chemistry*, CAMBRIDGE. 2008.
- [8] S. Nijdam, F. M. J. H. van de Wetering, R. Blanc, E. M. van Veldhuizen, and U. Ebert, "Probing photo-ionization: experiments on positive streamers in pure gases and mixtures," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 43, no. 14, p. 145204, 2010.
- [9] L. . Loeb, *Basic process of gaseous electronics*. Berkeley CA: University of California Press, 1960.
- [10] H. Raether, *Electrons avalanches and breakdown in gases*. Butterworths 1964.
- [11] J. M. Meek and J. D. Craggs, *Electrical Breakdown of Gases*. New York: Wiley, 1978.
- [12] G. a. Dawson and W. P. Winn, "A model for streamer propagation," *Zeitschrift fur Phys.*, vol. 183, no. 2, pp. 159–171, 1965.

- [13] R. F. F. R. Klingbeil, D.A. Tidman, "Ionizing Gas Breakdown Waves in Strong Electric Fields," *Phys. Fluids*, vol. 1969, no. 1972, 1972.
- [14] S. Pancheshnyi, S. M. Starikovskaia, and a Y. Starikovskii, "Role of photoionization processes in propagation of cathode-directed streamer," *J. Phys. D Appl. Phys.*, vol. 34, no. 1, pp. 105–115, 2000.
- [15] S. a Stepanyan, a Y. Starikovskiy, N. a Popov, and S. M. Starikovskaia, "A nanosecond surface dielectric barrier discharge in air at high pressures and different polarities of applied pulses: transition to filamentary mode," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 23, p. 45003, 2014.
- [16] a Schutze, J. Y. Jeong, S. E. Babayan, J. Park, G. S. Selwyn, and R. F. Hicks, "The atmospheric-pressure plasma jet: a review and comparison to other plasma sources," *Plasma Sci. IEEE Trans.*, vol. 26, no. 6, pp. 1685–1694, 1998.
- [17] C. Tendero, C. Tixier, P. Tristant, J. Desmaison, and P. Leprince, "Atmospheric pressure plasmas: A review," *Spectrochim. Acta - Part B At. Spectrosc.*, vol. 61, no. 1, pp. 2–30, 2006.
- [18] J. Laimer and H. Störi, "Recent advances in the research on non-equilibrium atmospheric pressure plasma jets," *Plasma Process. Polym.*, vol. 4, no. 3, pp. 266–274, 2007.
- [19] M. Laroussi and T. Akan, "Arc-free atmospheric pressure cold plasma jets: A review," *Plasma Processes and Polymers*, vol. 4, no. 9. pp. 777–788, 2007.
- [20] L. Bárdos and H. Baránková, "Cold atmospheric plasma: Sources, processes, and applications," *Thin Solid Films*, vol. 518, no. 23, pp. 6705–6713, 2010.
- [21] X. Lu, M. Laroussi, and V. Puech, "On atmospheric-pressure non-equilibrium plasma jets and plasma bullets," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 21, no. 3, p. 34005, 2012.
- [22] J. Winter, R. Brandenburg, and K. Weltmann, "Atmospheric pressure plasma jets: an overview of devices and new directions," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 24, no. 6, p. 64001, 2015.
- [23] V. Sarron, "Étude et optimisation d'une décharge « Plasma Gun » à pression atmosphérique, pour des applications biomédicales," Thèse de l'Université d'Orléans, 2013.
- [24] D. Ries, "Etude d'une décharge hors équilibre à pression atmosphérique pour des applications biomédicales. Physique de la décharge, cinétique de la production des espèces réactives lors de l'interaction avec des cellules et des tissus vivants.," Thèse de l'Université d'Orléans, 2014.
- [25] M. Vandamme, "Les plasmas froids, nouvelle stratégie thérapeutique en cancérologie," Thèse de l'Université d'Orléans, 2012.
- [26] L. Brullé, "Développement de stratégies multimodalités pour la pharmacologie des agents anticancéreux," Thèse de l'Université d'Orléans, 2012.
- [27] M. Laroussi, "Nonthermal decontamination of biological media by atmospheric-pressure plasmas: Review, analysis, and prospects," *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 30, no. 4 I. pp. 1409–1415, 2002.
- [28] J. F. Kolb, A.-A. H. Mohamed, R. O. Price, R. J. Swanson, A. Bowman, R. L. Chiavarini, M. Stacey, and K. H. Schoenbach, "Cold atmospheric pressure air plasma jet for medical applications," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 92, no. 24, p. 241501, 2008.

- [29] M. G. Kong, G. Kroesen, G. Morfill, T. Nosenko, T. Shimizu, J. van Dijk, and J. L. Zimmermann, "Plasma medicine: an introductory review," *New J. Phys.*, vol. 11, no. 11, p. 115012, 2009.
- [30] G. E. Morfill, M. G. Kong, and J. L. Zimmermann, "Focus on plasma medicine," *New J. Phys.*, vol. 11, 2009.
- [31] M. Keidar, R. Walk, A. Shashurin, P. Srinivasan, A. Sandler, S. Dasgupta, R. Ravi, and B. Trink, "Cold plasma selectivity and the possibility of a paradigm shift in cancer therapy," *Br. J. Cancer*, vol. 105, no. 9, pp. 1295–1301, 2011.
- [32] L. Brullé, M. Vandamme, D. Ries, E. Martel, E. Robert, S. Lerondel, V. Trichet, S. Richard, J. M. Pouvesle, and A. Le Pape, "Effects of a Non Thermal Plasma Treatment Alone or in Combination with Gemcitabine in a MIA PaCa2-luc Orthotopic Pancreatic Carcinoma Model," *PLoS One*, vol. 7, no. 12, pp. 1–10, 2012.
- [33] D. B. Graves, "The emerging role of reactive oxygen and nitrogen species in redox biology and some implications for plasma applications to medicine and biology," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 45, no. 26, p. 263001, 2012.
- [34] M. Vandamme, E. Robert, S. Lerondel, V. Sarron, D. Ries, S. Dozias, J. Sobilo, D. Gosset, C. Kieda, B. Legrain, J. M. Pouvesle, and A. Le Pape, "ROS implication in a new antitumor strategy based on non-thermal plasma," *Int. J. Cancer*, vol. 130, no. 9, pp. 2185–2194, 2012.
- [35] M. Keidar, A. Shashurin, O. Volotskova, M. Ann Stepp, P. Srinivasan, A. Sandler, and B. Trink, "Cold atmospheric plasma in cancer therapy," *Phys. Plasmas*, vol. 20, no. 5, 2013.
- [36] E. Robert, M. Vandamme, L. Brullé, S. Lerondel, A. Le Pape, V. Sarron, D. Riès, T. Darny, S. Dozias, G. Collet, C. Kieda, and J. M. Pouvesle, "Perspectives of endoscopic plasma applications," *Clinical Plasma Medicine*, vol. 1, no. 2. Elsevier, pp. 8–16, 2013.
- [37] W. Murphy, C. Carroll, and M. Keidar, "Simulation of the effect of plasma species on tumor growth and apoptosis," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 47, no. 47, p. 472001, 2014.
- [38] M. Keidar, "Plasma for cancer treatment," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 24, no. 3, p. 33001, 2015.
- [39] M. Vandamme, E. Robert, S. Pesnel, E. Barbosa, S. Dozias, J. Sobilo, S. Lerondel, A. Le Pape, and J. M. Pouvesle, "Antitumor effect of plasma treatment on u87 glioma xenografts: Preliminary results," *Plasma Process. Polym.*, vol. 7, no. 3–4, pp. 264–273, 2010.
- [40] G. Collet, E. Robert, a Lenoir, M. Vandamme, T. Darny, S. Dozias, C. Kieda, and J. M. Pouvesle, "Plasma jet-induced tissue oxygenation: potentialities for new therapeutic strategies," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 23, no. 1, p. 12005, 2014.
- [41] H. Metelmann, T. Thom, H. Tung, T. Nguyen, B. Le, T. Ha, A. Hoang, T. Thu, T. Phi, T. My, L. Luong, V. T. Doan, T. Trang, H. Nguyen, T. Hong, M. Nguyen, T. Linh, D. Quyen, T. Kim, X. Le, T. Von Woedtke, K. Weltmann, R. Khalili, and F. Podmelle, "Scar formation of laser skin lesions after cold atmospheric pressure plasma (CAP) treatment : A clinical long term observation," vol. 1, pp. 30–35, 2013.
- [42] H. Koinuma, H. Ohkubo, T. Hashimoto, K. Inomata, T. Shiraishi, A. Miyanaga, and S. Ihayashi, "Development and application of a microbeam plasma generator," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 60, no. 7, pp. 816–817, 1992.

- [43] Q. Li, J.-T. Li, W.-C. Zhu, X.-M. Zhu, and Y.-K. Pu, "Effects of gas flow rate on the length of atmospheric pressure nonequilibrium plasma jets," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 95, no. 2009, p. 3pp, 2009.
- [44] M. Teschke, J. Kedzierski, E. G. Finantu-Dinu, D. Korzec, and J. Engemann, "High-speed photographs of a dielectric barrier atmospheric pressure plasma jet," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, vol. 33, no. 2, pp. 310–311, 2005.
- [45] N. Mericam-Bourdet, M. Laroussi, a Begum, and E. Karakas, "Experimental investigations of plasma bullets," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 42, no. 5, p. 55207, 2009.
- [46] J. Jarrige, M. Laroussi, and E. Karakas, "Formation and dynamics of plasma bullets in a non-thermal plasma jet: influence of the high-voltage parameters on the plume characteristics," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 19, no. 6, p. 65005, 2010.
- [47] E. Karakas, M. Koklu, and M. Laroussi, "Correlation between helium mole fraction and plasma bullet propagation in low temperature plasma jets," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 43, no. 15, p. 155202, 2010.
- [48] E. Karakas and M. Laroussi, "Experimental studies on the plasma bullet propagation and its inhibition," *J. Appl. Phys.*, vol. 108, no. 6, 2010.
- [49] Q. Xiong, X. Lu, J. Liu, Y. Xian, Z. Xiong, F. Zou, C. Zou, W. Gong, J. Hu, K. Chen, X. Pei, Z. Jiang, and Y. Pan, "Temporal and spatial resolved optical emission behaviors of a cold atmospheric pressure plasma jet," *J. Appl. Phys.*, vol. 106, no. 8, 2009.
- [50] Q. Xiong, X. Lu, K. Ostrikov, Z. Xiong, Y. Xian, F. Zhou, C. Zou, J. Hu, W. Gong, and Z. Jiang, "Length control of He atmospheric plasma jet plumes: Effects of discharge parameters and ambient air," *Phys. Plasmas*, vol. 16, no. 4, 2009.
- [51] X. Lu, Q. Xiong, Z. Xiong, J. Hu, F. Zhou, W. Gong, Y. Xian, C. Zhou, Z. Tang, Z. Jiang, and Y. Pan, "A cold plasma cross made of three bullet-like plasma plumes," *Thin Solid Films*, vol. 518, no. 3, pp. 967–970, 2009.
- [52] X. Lu, Z. Jiang, Q. Xiong, Z. Tang, and Y. Pan, "A single electrode room-temperature plasma jet device for biomedical applications," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 92, no. 15, pp. 1–4, 2008.
- [53] Y. Xian, X. Lu, S. Wu, P. K. Chu, and Y. Pan, "Are all atmospheric pressure cold plasma jets electrically driven?," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 100, no. 12, 2012.
- [54] E. Robert, E. Barbosa, S. Dozias, M. Vandamme, C. Cachoncinlle, R. Viladrosa, and J. M. Pouvesle, "Experimental study of a compact nanosecond plasma gun," *Plasma Process. Polym.*, vol. 6, no. 12, pp. 795–802, 2009.
- [55] A. Shashurin, M. Keidar, S. Bronnikov, R. A. Jurjus, and M. A. Stepp, "Living tissue under treatment of cold plasma atmospheric jet," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 93, no. 18, 2008.
- [56] A. Shashurin, M. A. Stepp, T. S. Hawley, S. Pal-Ghosh, L. Brieda, S. Bronnikov, R. A. Jurjus, and M. Keidar, "Influence of cold plasma atmospheric jet on surface integrin expression of living cells," *Plasma Process. Polym.*, vol. 7, no. 3–4, pp. 294–300, 2010.
- [57] V. Léveillé and S. Coulombe, "Design and preliminary characterization of a miniature pulsed RF APGD torch with downstream injection of the source of reactive species," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 14, no. 3, pp. 467–476, 2005.

- [58] J. L. Walsh, J. J. Shi, and M. G. Kong, "Contrasting characteristics of pulsed and sinusoidal cold atmospheric plasma jets," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 88, p. 171501, 2006.
- [59] X. Lu and M. Laroussi, "Dynamics of an atmospheric pressure plasma plume generated by submicrosecond voltage pulses," *J. Appl. Phys.*, vol. 100, no. 6, pp. 1–6, 2006.
- [60] B. L. Sands, B. N. Ganguly, and K. Tachibana, "A streamer-like atmospheric pressure plasma jet," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 92, no. 15, 2008.
- [61] J. L. Walsh, F. Iza, N. B. Janson, V. J. Law, and M. G. Kong, "Three distinct modes in a cold atmospheric pressure plasma jet," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 43, no. 7, p. 75201, 2010.
- [62] G. V Naidis, "Modelling of streamer propagation in atmospheric-pressure helium plasma jets," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 43, no. 40, p. 402001, 2010.
- [63] D. Breden, K. Miki, and L. L. Raja, "Computational study of cold atmospheric nanosecond pulsed helium plasma jet in air," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 99, no. 11, 2011.
- [64] D. Breden, K. Miki, and L. L. Raja, "Self-consistent two-dimensional modeling of cold atmospheric-pressure plasma jets/bullets," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 21, no. 3, p. 34011, 2012.
- [65] J. Boeuf, L. L. Yang, and L. C. Pitchford, "Dynamics of a guided streamer ('plasma bullet') in a helium jet in air at atmospheric pressure," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 46, no. 1, p. 13pp, 2013.
- [66] G. V Naidis, "Modelling of plasma bullet propagation along a helium jet in ambient air," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 44, no. 21, p. 215203, 2011.
- [67] E. Robert, V. Sarron, D. Riès, S. Dozias, M. Vandamme, and J.-M. Pouvesle, "Characterization of pulsed atmospheric-pressure plasma streams (PAPS) generated by a plasma gun," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 21, no. 3, p. 34017, 2012.
- [68] V. Sarron, E. Robert, S. Dozias, M. Vandamme, D. Ries, and J. M. Pouvesle, "Splitting and mixing of high-velocity ionization-wave-sustained atmospheric-pressure plasmas generated with a plasma gun," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, vol. 39, no. 11 PART 1, pp. 2356–2357, 2011.
- [69] Z. Xiong, E. Robert, V. Sarron, J.-M. Pouvesle, and M. J. Kushner, "Dynamics of ionization wave splitting and merging of atmospheric-pressure plasmas in branched dielectric tubes and channels," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 45, no. 27, p. 275201, 2012.
- [70] Z. Xiong, E. Robert, V. Sarron, J.-M. Pouvesle, and M. J. Kushner, "Atmospheric-pressure plasma transfer across dielectric channels and tubes," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 46, no. 15, p. 12pp, 2013.
- [71] Y. Golubovskii, S. Gorchakov, and D. Uhrlandt, "Transport mechanisms of metastable and resonance atoms in a gas discharge plasma," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 22, no. 2, p. 32pp, 2013.
- [72] W. Van Gaens and A. Bogaerts, "Kinetic modelling for an atmospheric pressure argon plasma jet in humid air," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 46, no. 27, p. 275201, 2013.
- [73] R. Ono, "Optical diagnostics of reactive species in atmospheric-pressure nonthermal plasma," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 49, no. 8, p. 83001, 2016.
- [74] M. Gherardi, N. Puač, D. Marić, A. Stancampiano, G. Malović, V. Colombo, and Z. L. Petrović,

- "Practical and theoretical considerations on the use of ICCD imaging for the characterization of non-equilibrium plasmas," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 24, no. 6, p. 64004, 2015.
- [75] P. J. Bruggeman, N. Sadeghi, D. C. Schram, and V. Linss, "Gas temperature determination from rotational lines in non-equilibrium plasmas: a review," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 23, no. 2, p. 23001, 2014.
- [76] B. Niermann, M. Böke, N. Sadeghi, and J. Winter, "Space resolved density measurements of argon and helium metastable atoms in radio-frequency generated He-Ar micro-plasmas," *Eur. Phys. J. D*, vol. 60, no. 3, pp. 489–495, 2010.
- [77] K. Niemi, J. Waskoenig, N. Sadeghi, T. Gans, and D. O'Connell, "The role of helium metastable states in radio-frequency driven helium-oxygen atmospheric pressure plasma jets: measurement and numerical simulation," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 20, p. 55005, 2011.
- [78] B. Niermann, A. Kanitz, M. Böke, and J. Winter, "Impurity intrusion in radio-frequency micro-plasma jets operated in ambient air," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 44, no. 32, p. 325201, 2011.
- [79] B. Niermann, T. Hemke, N. Y. Babaeva, M. Böke, M. J. Kushner, T. Mussenbrock, and J. Winter, "Spatial dynamics of helium metastables in sheath or bulk dominated rf micro-plasma jets," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 44, no. 48, p. 485204, 2011.
- [80] K. Urabe, T. Morita, K. Tachibana, and B. N. Ganguly, "Investigation of discharge mechanisms in helium plasma jet at atmospheric pressure by laser spectroscopic measurements," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 43, p. 95201, 2010.
- [81] C. Douat, "Étude d'un micro-jet de plasma à pression atmosphérique," Thèse de l'Université Paris Sud, 2014.
- [82] S. Yonemori, Y. Nakagawa, R. Ono, and T. Oda, "Measurement of OH density and air–helium mixture ratio in an atmospheric-pressure helium plasma jet," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 45, no. 22, p. 225202, 2012.
- [83] Q. Xiong, A. Y. Nikiforov, L. Li, P. Vanraes, N. Britun, R. Snyders, X. P. Lu, and C. Leys, "Absolute OH density determination by laser induced fluorescence spectroscopy in an atmospheric pressure RF plasma jet," *Eur. Phys. J. D*, vol. 66, no. 11, p. 281, 2012.
- [84] a F. H. van Gessel and P. J. Bruggeman, "Thermalization of rotational states of NO A(2) Σ^+ (v = 0) in an atmospheric pressure plasma," *J. Chem. Phys.*, vol. 138, no. 20, p. 204306, 2013.
- [85] a F. H. van Gessel, B. Hrycak, M. Jasiński, J. Mizeraczyk, J. J. a M. van der Mullen, and P. J. Bruggeman, "Temperature and NO density measurements by LIF and OES on an atmospheric pressure plasma jet," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 46, no. 9, p. 95201, 2013.
- [86] A. Shashurin, M. N. Shneider, and M. Keidar, "Measurements of streamer head potential and conductivity of streamer column in cold nonequilibrium atmospheric plasmas," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 21, p. 49601, 2012.
- [87] M. Dang Van Sung Mussard, O. Guaitella, and A. Rousseau, "Propagation of plasma bullets in helium within a dielectric capillary—influence of the interaction with surfaces," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 46, p. 5pp, 2013.
- [88] G. V. Naidis, "Simulation of streamers propagating along helium jets in ambient air: Polarity-

- induced effects," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 98, no. 14, pp. 2009–2012, 2011.
- [89] G. V Naidis, "Modeling of helium plasma jets emerged into ambient air: Influence of applied voltage, jet radius, and helium flow velocity on plasma jet characteristics," *J. Appl. Phys.*, vol. 112, no. 2012, pp. 1–6, 2012.
 - [90] G. V Naidis and J. L. Walsh, "The effects of an external electric field on the dynamics of cold plasma jets—experimental and computational studies," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 46, no. 9, p. 95203, 2013.
 - [91] F. Jia, N. Sumi, K. Ishikawa, H. Kano, H. Inui, J. Kularatne, K. Takeda, H. Kondo, M. Sekine, A. Kono, and M. Hori, "Laser scattering diagnosis of a 60-Hz non-equilibrium atmospheric pressure plasma jet," *Appl. Phys. Express*, vol. 4, no. 2, pp. 2–5, 2011.
 - [92] A. F. H. van Gessel, E. A. D. Carbone, P. J. Bruggeman, and J. J. A. M. van der Mullen, "Laser scattering on an atmospheric pressure plasma jet: disentangling Rayleigh, Raman and Thomson scattering," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 21, no. 1, p. 15003, 2012.
 - [93] B. Van Gessel, R. Brandenburg, and P. Bruggeman, "Electron properties and air mixing in radio frequency driven argon plasma jets at atmospheric pressure," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 103, no. 6, pp. 2–6, 2013.
 - [94] S. Hübner, S. Hofmann, E. M. van Veldhuizen, and P. J. Bruggeman, "Electron densities and energies of a guided argon streamer in argon and air environments," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 22, no. 6, p. 65011, 2013.
 - [95] S. Hübner, J. S. Sousa, V. Puech, G. M. W. Kroesen, and N. Sadeghi, "Electron properties in an atmospheric helium plasma jet determined by Thomson scattering," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 47, no. 43, p. 432001, 2014.
 - [96] J. Oh, O. T. Olabanji, C. Hale, R. Mariani, K. Kontis, and J. W. Bradley, "Imaging gas and plasma interactions in the surface-chemical modification of polymers using micro-plasma jets," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 44, no. 15, p. 155206, 2011.
 - [97] N. Jiang, J. Yang, F. He, and Z. Cao, "Interplay of discharge and gas flow in atmospheric pressure plasma jets," *J. Appl. Phys.*, vol. 109, no. 9, 2011.
 - [98] M. Ghasemi, P. Olszewski, J. W. Bradley, and J. L. Walsh, "Interaction of multiple plasma plumes in an atmospheric pressure plasma jet array," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 46, no. 5, p. 52001, 2013.
 - [99] X. Shao, S. Member, Z. Chang, and H. Mu, "Experimental and Numerical Investigation on the Interaction Between Ar Flow Channel and Ar Plasma Jet at Atmospheric Pressure," vol. 41, no. 4, pp. 899–906, 2013.

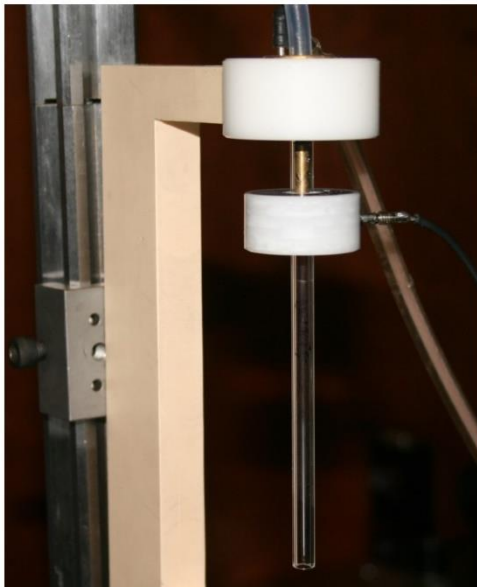
Chapitre II. Présentation du dispositif expérimental et des diagnostics de mesures

1. Le Plasma Gun

1.1 Géométrie « standard » du Plasma Gun

La Figure II-1 montre une photographie et un schéma de la géométrie « standard » du Plasma Gun.

a.



b.

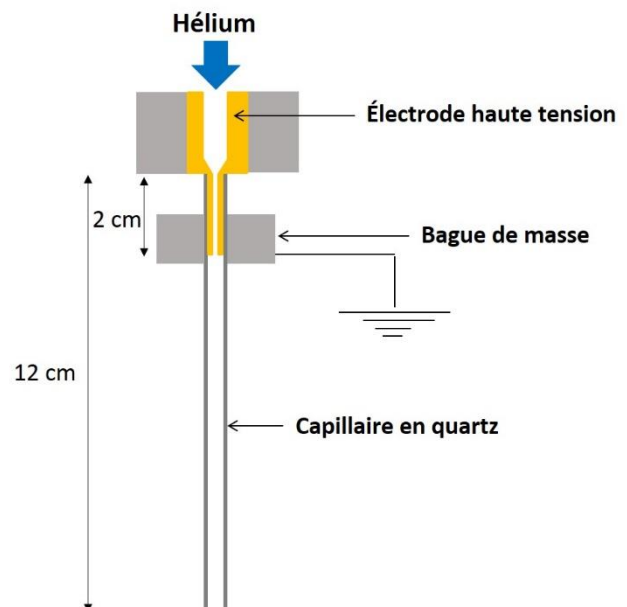


Figure II-1 : photographie du Plasma Gun (a) et représentation schématique en coupe (b).

Le Plasma Gun est une décharge à barrière diélectrique coaxiale. Une électrode creuse en laiton est insérée dans un capillaire en quartz (électrode haute tension interne) et une électrode de masse (électrode externe ou « bague de masse ») est glissée sur le capillaire. Un flux d'hélium circule dans un tuyau en téflon, inséré dans l'électrode haute tension. L'hélium est soufflé dans le capillaire à travers l'électrode interne. La bague de masse est amovible, et est toujours positionnée de façon à ce que l'électrode interne soit légèrement en retrait du bord inférieur de la bague de masse.

La bague de masse est constituée d'un anneau métallique en laiton encastré entre deux bagues de Delrin®. La bague de Delrin® la plus fine (2 mm de diamètre) est en contact direct avec le capillaire, l'anneau métallique se situant derrière. De la résine époxy est coulée dans l'espace entre l'anneau métallique et la bague en Delrin® la plus externe. Un socle en Delrin enserre également la partie externe de l'électrode haute tension pour protéger d'un éventuel contact.

La longueur totale du capillaire sur la Figure II-1 est de 12 cm. La partie de l'électrode haute tension s'insérant dans le capillaire mesure 2 cm de longueur. Le plasma généré à l'électrode interne doit donc ici parcourir une distance de 10 cm avant de sortir du capillaire. Par la suite, nous nous référerons toujours à la distance entre l'extrémité de l'électrode interne et le bord du capillaire pour définir la taille de capillaire.

Les plus longs capillaires utilisés dans cette thèse ont une taille de 40 cm. De nombreux types de capillaires peuvent être utilisés (capillaire effilé, capillaire en boucle, capillaire en T...), mais l'essentiel de notre étude concernera les capillaires « droits ».

Les capillaires utilisés sont en quartz ou en verre, l'avantage du quartz étant de laisser passer les UV. Les capillaires utilisés au chapitre III sont en verre, ceux utilisés aux chapitres IV et V sont en quartz. Les capillaires sont rectifiés, leur diamètre externe est garanti à 6 mm et leur diamètre interne 4 mm (1 mm d'épaisseur de paroi).

La Figure II-2 montre un schéma détaillé de la géométrie d'injection de l'hélium, dans le capillaire via l'électrode interne.

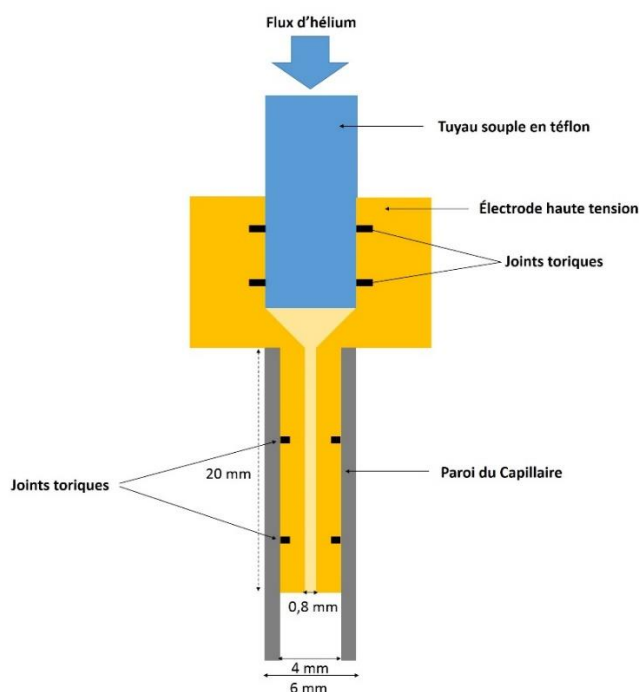


Figure II-2 : schéma en coupe de la géométrie d'injection de l'hélium dans le capillaire par l'électrode interne

Le tuyau souple en téflon par lequel circule un flux d'hélium est directement inséré dans l'électrode interne. L'étanchéité du raccord est assurée par une paire de joints toriques. Le diamètre du trou, dans lequel s'insère le tuyau en téflon, se rétrécit en forme de cône jusqu'au diamètre de l'orifice de l'électrode interne (0,8 mm). L'étanchéité du raccord entre l'électrode interne et le capillaire est également assurée par une paire de joints toriques. Nous verrons au chapitre III qu'il est important de tenir compte en détail de la géométrie d'injection de l'hélium pour comprendre les comportements de l'écoulement observés.

Les gaz utilisés proviennent d'Air Liquide®. L'hélium est le gaz principal utilisé au cours de cette thèse. Deux puretés d'hélium ont été utilisées : hélium ALPHAGAZ 1 (pureté globale : 99,999 %) et ALPHAGAZ 2 (pureté globale : 99,9999 %) nous y reviendrons au chapitre IV. Quelques expériences ont été également réalisées en néon (pureté : 99,999 %) L'azote utilisé pour les mélanges hélium-azote est de pureté ALPHAGAZ 1.

Les débitmètres utilisés sont des débitmètres massiques (Brooks Mass Flow Controller 5850 TR et Vogtlin RED-Y Compact 1 Series). Les mélanges hélium-azote ont été réalisés avec les débitmètres Brooks après calibration. Le mélange s'effectue en amont de la décharge en sortie des deux débitmètres via un raccord en croix.

La longueur des tuyaux en téflon entre le branchement au débitmètre et l'électrode interne est d'une cinquantaine de centimètres environ. Pour chasser les impuretés de l'air ambiant après raccordement, de l'hélium est soufflé à plusieurs l/min pendant au moins cinq minutes. Lorsque le plasma est initié, une partie se propage dans le capillaire dans le sens du flux de gaz et une autre se propage en remontant le flux de gaz dans le tuyau en téflon. Cette longueur de tuyau a été choisie pour que le plasma ne puisse pas atteindre le débitmètre lors de sa remontée dans le tuyau. Cette partie du plasma n'a pas été étudiée, mais nous devons mentionner que le phénomène existe.

La cible métallique utilisée aux chapitres III et V est en laiton (Figure II-3). La cible est de forme circulaire et emboîtée dans un socle en plastique. La cible est mise à la masse par un câble. Si le câble est retiré, la cible sera qualifiée de flottante. Exposée sur l'autre face, la cible sera un diélectrique.

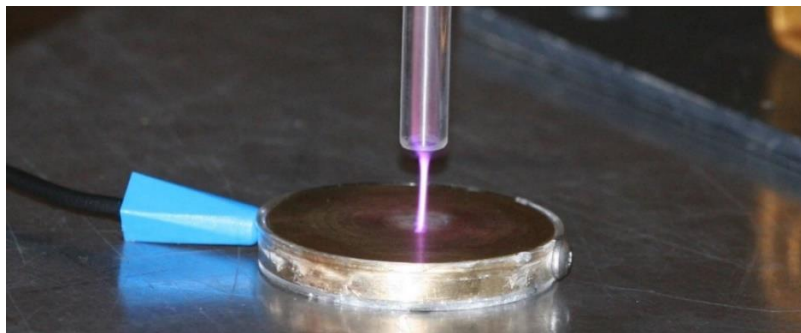


Figure II-3 : cible métallique en laiton reliée à la masse en contact avec la plume plasma

Des mesures de courant ont été réalisées aux bornes d'une résistance branchée en série sur la cible (chapitre V section 3.6).

1.2 Alimentation électrique

Une haute tension pulsée est appliquée sur l'électrode interne. L'impulsion de tension est générée via un dispositif électronique appelé « abiopulse ». Le générateur a été légèrement modifié au cours de la thèse et sa configuration actuelle correspond au schéma ci-dessous (Figure II-4). C'est une source compacte et facilement transportable. Elle se compose d'un convertisseur de tension alternative en tension continue, d'un condensateur de décharge (470 nF), d'un transistor IGBT

(interrupteur) et d'un transformateur haute tension (10 spires au primaire et 700 spires au secondaire).

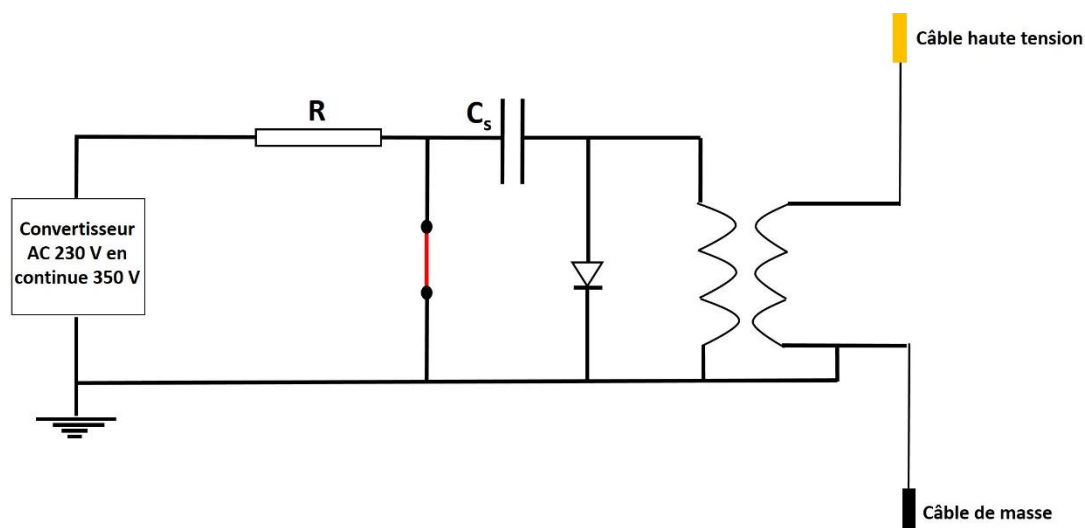


Figure II-4 schéma de l'alimentation électrique « abiopulse » du plasma Gun

Le câble haute tension est directement inséré dans l'électrode haute tension, ainsi que le câble de masse pour l'électrode de masse. La carcasse métallique qui renferme le circuit est elle-même mise à la masse. Le câble haute tension est glissé dans un fin tuyau en plastique souple et l'ensemble est glissé dans une gaine épaisse en mousse. Tout contact entre une partie du câble et une surface métallique entraîne la formation d'une décharge parasite entre la surface et le câble. Cette décharge produit une odeur d'ozone et une dissipation inutile de l'énergie entre la sortie du transformateur et l'électrode haute tension et doit être évitée.

La forme de l'impulsion de tension est illustrée en Figure II-5. Cette forme a été utilisée pour tous les résultats présentés dans cette thèse. Elle est propre au transformateur utilisé et ne peut être modifiée. Elle reste similaire quelle que soit sa fréquence de répétition. Les mesures de haute tension sont réalisées directement à l'électrode interne, par une sonde haute tension (Tektronix P6015A 75 MHz). L'oscilloscope utilisé est un Tektronix DPO 4104B (bande passante 1 GHz et échantillonnage maximum à 5 GS/s).

La partie principale de l'impulsion est la partie en « cloche ». Elle se compose d'un front de montée de 2 μ s et d'une diminution de la tension (symétrique à la montée) jusqu'à 4 μ s environ. Nous verrons, aux chapitres IV et V, que tous les phénomènes de propagation rapide du plasma se produisent dans ce laps de temps. La tension diminue ensuite linéairement jusqu'à 10 μ s environ, puis oscille légèrement avant de s'annuler totalement vers 20 μ s.

En façade extérieure du boîtier, plusieurs paramètres sont accessibles : amplitude maximale, fréquence de répétition et polarité de l'impulsion de tension.

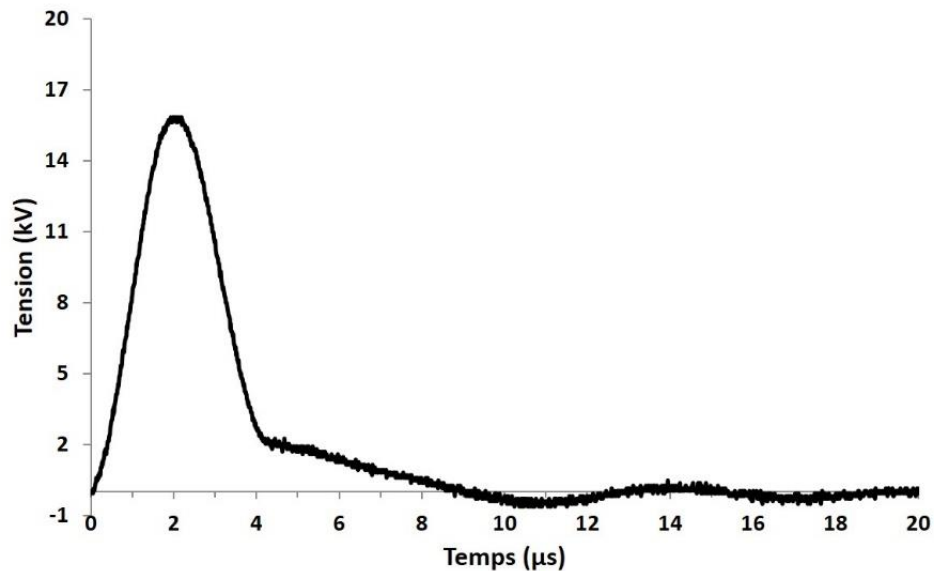


Figure II-5 : évolution temporelle de l'impulsion de tension générée par l'abiopulse

Le maximum d'amplitude des impulsions de tension peut varier entre 0 et 20 kV via un potentiomètre contrôlant la valeur de tension au primaire avant transformation.

La fréquence de répétition est contrôlée par un programme. Elle peut être variée entre 10 Hz et 5 kHz. Le mono coup ainsi que des cycles « ON/OFF » de durée programmable sont également possibles. Pour des valeurs supérieures à 2 kHz avec des tensions supérieures à 10 kV, le rendement du transformateur est moins efficace et la valeur maximale de haute tension diminue pour une valeur fixe de tension au primaire. La valeur au primaire doit donc être augmentée (30 V au maximum) pour compenser la baisse de la haute tension aux fréquences les plus élevées.

Plus la fréquence est élevée, plus le rendement du transformateur diminue rapidement au cours du temps. Ces phénomènes sont en particuliers problématiques pour les mesures des vitesses de propagation du front d'ionisation, très sensibles à la tension appliquée. La fréquence de 1 kHz, à laquelle l'essentiel des mesures des chapitres IV et V ont été effectuées, a été choisie de manière pragmatique, car, à cette fréquence, le fonctionnement de l'alimentation électrique pendant une durée d'au moins deux heures n'entraîne pas de variation suffisante de tension pour être décelable sur la mesure de vitesse de propagation du front d'ionisation (voir partie 2 pour les mesures de vitesses).

La polarité de l'impulsion de tension peut être choisie positive ou négative, via un interrupteur en façade du boîtier. Le passage d'une polarité à une autre entraîne également une légère différence du rendement du transformateur et la valeur de tension au primaire doit être également légèrement ajustée, pour conserver la même valeur de haute tension.

L'alimentation électrique fournit un signal TTL de 5 V à front de montée nanoseconde, servant de signal de déclenchement pour les appareils de mesures utilisés (sonde haute tension, caméra ICCD, tube photomultiplicateur, sonde de champ électrique). Tous les déclenchements ont été effectués sur le front de montée du signal TTL à la valeur seuil de 1,5 V.

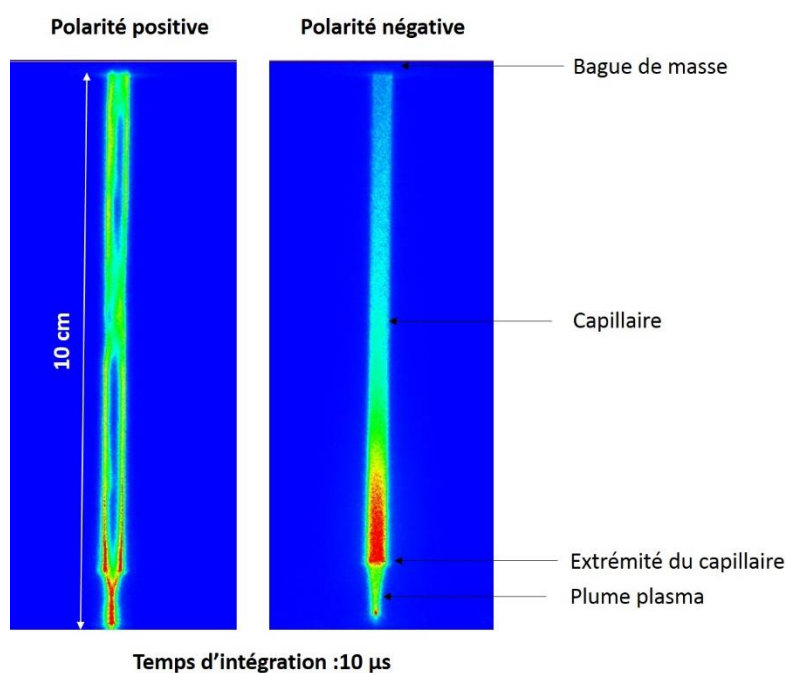
2. Étude de la dynamique de propagation du plasma par l'émission lumineuse

2.1 Imagerie ICCD

La caméra ICCD (Intensified Charge Coupled Device) utilisée dans cette thèse est une PI-MAX 3 de Princeton Instrument. La résolution est de 1024 x 1024 pixels avec un temps d'exposition minimal de 0,3 ns. L'objectif utilisé est un objectif de 60 mm de focale (AF MICRO-NIKKOR 60 mm). La caméra est placée à l'extérieur de la cage de faraday dans laquelle est placé le Plasma Gun, pour éviter d'éventuelles perturbations électromagnétiques dues à l'impulsion de tension. L'imagerie effectuée dans cette thèse n'est pas filtrée, la lumière collectée par l'objectif est dans tout le spectre visible.

La caméra est déclenchée sur le signal TTL de l'abiopulse. Le logiciel pilotant la caméra (Lightfield) permet entre autre de régler le temps d'intégration de la lumière à chaque acquisition ainsi que le délai. Le délai représente le temps d'attente entre le signal de déclenchement et le début de l'acquisition. Ainsi, un accroissement progressif du délai pour des temps d'intégration suffisamment courts (10 ns) permet de suivre le développement du front d'ionisation. Un temps d'intégration de 10 μ s représentera la totalité de la lumière émise par le plasma pour une impulsion. L'imagerie ICCD permet également d'observer la structure de la décharge (Figure II-6), via la répartition de la lumière.

Les fausses couleurs représentent une échelle qualitative d'intensité lumineuse, le rouge étant le plus intense et le bleu le moins intense. Elle est définie par l'utilisateur lors de traitement de l'image sur les quelques pixels les plus intenses, pris comme références.



La structure du plasma diffère entre les deux polarités. Le plasma est assez filamentaire en polarité positive et plus homogène en polarité négative. Tous les évènements enregistrés ont été effectués sans moyennage en « single acquisition ». Nous avons vérifié en procédant de nombreuses fois à la même acquisition et en observant attentivement le comportement du plasma en mode « lecture » (acquisitions continues sans enregistrer de fichiers), que les images enregistrées sont bien représentatives de ce qui est observé, en particulier pour les courts temps d'intégration liés au développement du front d'ionisation. Ici, dans les deux cas, la décharge restera assez filamentaire en polarité positive et homogène en polarité négative. L'utilisation d'un moyennage empêchera en revanche de mettre en évidence la structure inhomogène en polarité positive, puisque la position des filaments évolue d'une impulsion à l'autre.

Les différences de comportements liées à la polarité de l'impulsion de tension, loin de se limiter à une différence de structure du plasma, seront une thématique récurrente de nos trois chapitres d'étude.

2.2 Fibres optiques et tube photomultiplicateur

Disposer plusieurs fibres optiques de même longueur le long du capillaire, en les reliant à un tube photomultiplicateur (PMT), permet de suivre le développement du front d'ionisation au cours du temps et de calculer aisément sa vitesse. La méthode est illustrée en Figure II-7.

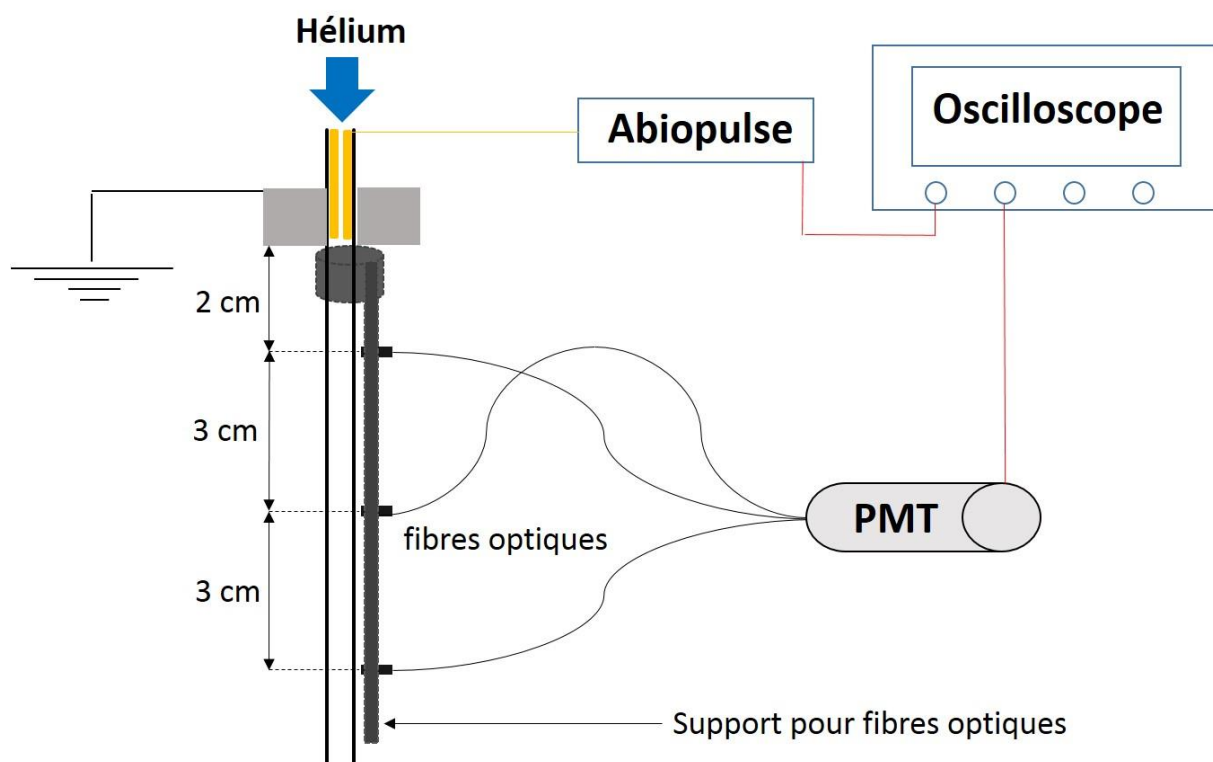


Figure II-7 : mesure de la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire par des fibres optiques reliées à un tube photomultiplicateur

Les fibres sont insérées dans un support en PVC, percé de plusieurs trous régulièrement espacés. Le support est ensuite fixé sur le capillaire et maintenu par une visse en nylon. Seul le bord du support touche le capillaire, les fibres optiques sont éloignées de quelques millimètres de la paroi. Les fibres sont donc disposées dans chaque trou et ne peuvent bouger au cours des mesures. Le positionnement des fibres est donc précis au millimètre près. L'écart en chaque fibre désigne l'écart entre le centre de chaque trou.

Le tube photomultiplicateur (PMT) utilisé est de marque Hamamatsu (modèle R955, photocathode de surface effective 8x24 mm et de réponse spectrale comprise entre 160 et 900 nm). La tension d'alimentation est réglée sur 800 volts pour éviter une éventuelle saturation du signal (maximum à 1250 V).

Le temps de réponse du PMT est de 2 ns. L'écart entre le temps de chaque maximum du signal (associé au passage du front d'ionisation devant une fibre) permet de calculer la vitesse de propagation du front d'ionisation dans le capillaire. Le temps relevé sur chaque fibre fluctue aléatoirement autour d'une valeur moyenne, on parle de jitter. Cette fluctuation résulte de la variation du temps d'initiation de la décharge et de la variation de la vitesse de propagation du front d'ionisation. Le jitter est ici inférieur à 10 ns.

La Figure II-8 montre le signal du PMT pour la configuration de fibres optiques présentée en Figure II-7, lorsque le front d'ionisation se propage le long du capillaire (tension appliquée de 16 kV). Le signal est tracé sur les 2000 premières nanosecondes après le démarrage de l'impulsion de tension et est moyenné sur 500 acquisitions.

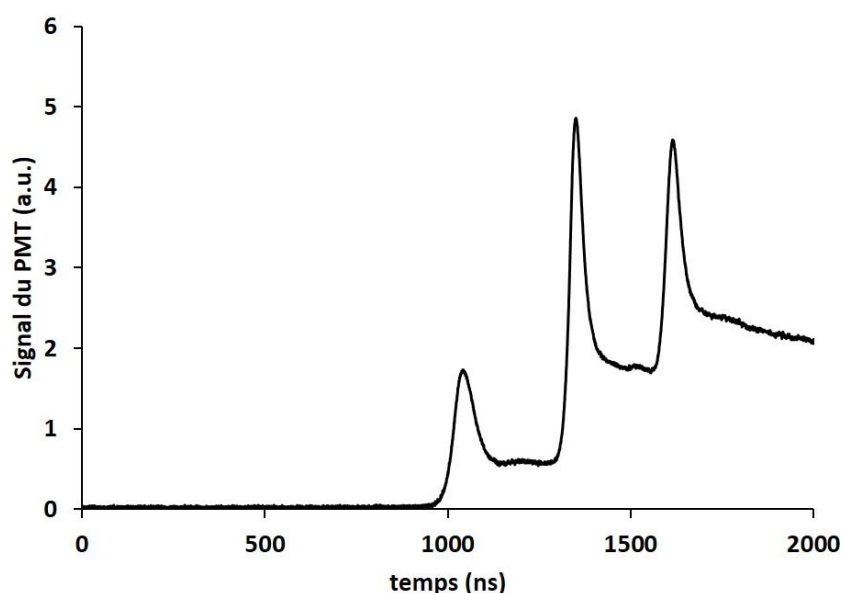


Figure II-8 : évolution du signal du PMT dans la configuration de fibres optiques présentée en Figure II-7 (tension appliquée 16 kV en polarité positive)

Le signal comporte trois pics distincts, de plus en plus tardifs. Chaque pic est associé au moment où le front d'ionisation passe au niveau d'une fibre optique. La brusque augmentation du signal (70 ns sur le premier pic) traduit la brusque augmentation de lumière au passage du front. Nous pouvons remarquer que les signaux des seconds et troisièmes pics sont plus intenses qu'au premier pic. Lorsque la première fibre a recueillie la lumière du front d'ionisation, celle-ci continue, après son passage, à intégrer la lumière de la colonne plasma résiduelle.

Le temps repéré au premier pic (1040 ns) représente donc le temps d'initiation de la décharge additionné au temps de propagation du front jusqu'à la première fibre. Le front atteint ensuite la seconde fibre (1350 ns) et la troisième (1610 ns). Sachant que la distance entre deux fibres consécutives est de 3 cm, la vitesse de propagation du front d'ionisation est donc de $9,7 \cdot 10^6$ cm/s entre la première et seconde fibre et de $1,2 \cdot 10^7$ cm/s entre la seconde et troisième fibre. La vitesse de propagation du front d'ionisation n'est donc, ici, pas constante le long du capillaire. Ces comportements seront détaillés au chapitre IV.

3. Spectroscopie d'émission

3.1 Spectroscopie intégrée en temps

Le spectromètre utilisé est un spectromètre compact Maya 2000 Pro (photodiode Hamamatsu S10420 de réponse spectrale comprise entre 200 et 1100 nm). Le pas du réseau optique est de 600 traits/mm et la fente d'ouverture est de 10 μ m. Les harmoniques du second et troisième ordre sont bloquées par un filtre. Sur les spectres enregistrés, deux longueurs d'ondes consécutives sont séparées de 0,47 nm au minimum.

La lumière est collectée par une fibre optique (2m de longueur, 1 mm de diamètre). A l'extrémité de la fibre, le cœur a été mis à nu et aucune partie métallique n'est présente à proximité du plasma. Compte tenu de l'angle d'ouverture de la fibre, une distance de 5 mm par rapport à la plume plasma ou au capillaire est suffisante pour couvrir une zone de visée de 1 mm.

Le spectromètre est piloté par un logiciel (SpectraSuite). Il permet notamment de définir le temps d'intégration ainsi que le moyennage sur chaque spectre. Dans nos différentes conditions expérimentales, un temps d'intégration de 30 ms est suffisamment court pour ne pas saturer sur les émissions les plus intenses et suffisamment long pour obtenir assez de signal pour les espèces les moins intenses sur un même spectre. Les spectres ont été moyennés sur 50 acquisitions.

Le maya permet notamment de rapidement contrôler si les spectres du plasma d'hélium, sans mélange, dans le capillaire sont de qualité acceptable et sans variation aberrante d'un jour à l'autre (généralement pour cause de trop d'impuretés résiduelles d'air dans le tuyau en téflon ou par défaut d'étanchéité, en raison d'une usure des joints toriques de l'électrode interne).

3.2 Spectroscopie résolue en temps

Le spectromètre utilisé est un Acton VM Series Vacuum Monochromator VM-504. Le pas du réseau optique est de 1200 traits/mm. La focale est de 390 mm et la résolution spectrale de 0,06 nm. Le tube photomultiplicateur utilisé est le même que pour les mesures de vitesse par fibres optiques (Hamamatsu R955). La tension d'alimentation a été réglée à 1050 V pour ces mesures.

La largeur de fente d'entrée et sortie utilisées est de 25 μm . La longueur d'onde est définie manuellement par l'utilisateur via un logiciel. La calibration en longueur d'onde a été effectuée pour cette largeur de fente avec une lampe à vapeur de mercure dans l'UV et le visible.

La fente est éclairée par la lumière du plasma. Un cache en PVC avec un trou de 5 mm de diamètre est positionné devant le Plasma Gun pour ne laisser passer la lumière que de la zone considérée. Ces mesures seront illustrées au chapitre V.

4. Mesure du champ électrique

4.1 Principe de fonctionnement de la sonde électro-optique

Le champ électrique est mesuré par une sonde électro-optique, conçue par Kapteos®. La mesure est basée sur l'effet Pockels. Cet effet se manifeste dans des cristaux dit électro-optiques. Lorsqu'un cristal de ce type est plongé dans un champ électrique, ses axes diélectriques principaux sont modifiés. Au contact d'un champ électrique, ce cristal devient donc biréfringent.

Deux cas peuvent être considérés, suivant si le cristal électro-optique est isotrope ou anisotrope. Dans le cas d'un cristal isotrope, il a été montré par Duvillaret et al ("Electro-optic sensors for electric field measurements .I. Theoretical comparison among different modulation technique," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 19, no. 11, pp. 2692–2703, 2002) que la biréfringence induite du cristal se fait selon deux directions privilégiées de l'espace (orthogonales), chacune étant dépendante du champ électrique. Ils avaient donc montré qu'en utilisant une onde initialement plane se propageant dans le cristal (laser), l'état de polarisation de l'onde permettait de remonter à l'amplitude du champ électrique dans deux directions orthogonales de l'espace.

Pour remonter à l'amplitude du champ électrique à partir des variations de l'indice de réfraction du cristal, différentes techniques de modulation sont possibles : en amplitude, en phase ou en état de polarisation (cf. Duvillaret et al). La technique utilisée pour ce dispositif est la modulation de l'état de polarisation. Nous ne rentrerons pas dans les détails de la technique, mais Bernier et al ("Electric field and temperature measurement using ultra wide bandwidth pigtailed electro-optic probes," *Appl. Opt.*, vol. 47, no. 13, p. 2470, 2008) ont montré qu'en utilisant un polarimètre spécifique, il était possible de retrouver les informations des deux composantes du champ électrique, selon les deux axes du cristal.

Une fibre optique est utilisée pour sonder le cristal par un faisceau laser, puis pour rapatrier le laser du cristal jusqu'à l'unité de traitement du signal. La fibre est également biréfringente, pour ne pas perdre la polarisation du laser (polarization-maintaining optical fiber). En revanche, l'état de polarisation du laser dans la fibre est sensible aux variations de température. L'électronique de commande Eosense® compense ces variations en temps réel. L'état de polarisation est ensuite converti en modulation optique, laquelle est alors convertie en signal analogique électrique par une photodiode.

Le dispositif de mesure agit donc comme une « antenne optique ». Cette antenne est sensible aux variations temporelles du champ électrique dans deux directions orthogonales de l'espace. Le signal de sortie (en mV) est directement proportionnel à l'amplitude du champ électrique, aux facteurs d'antennes près, dans chacune des deux directions de l'espace. Les facteurs d'antennes sont calibrés avec un kit de calibration externe (Airfield®) et calculés en temps réel par l'électronique de commande Eosense®. L'amplitude du champ électrique, pour chaque composante, est exprimée en kV/cm.

Le cristal isotrope a été fait sur mesure (1,75 mm de diamètre, 1 mm de long) et encapsulé dans de l'alumine, pour éviter tout contact avec l'air ambiant (poussières). La sonde est très réactive et peut répondre à l'échelle de la nanoseconde (bande passante de 1 GHz). Les variations temporelles simultanées de deux composantes orthogonales du champ électrique sont donc accessibles avec cette sonde électro-optique.

4.2 Réalisation des mesures

La Figure II-9 montre les dimensions de la sonde de champ électrique ainsi que son positionnement le long du capillaire.

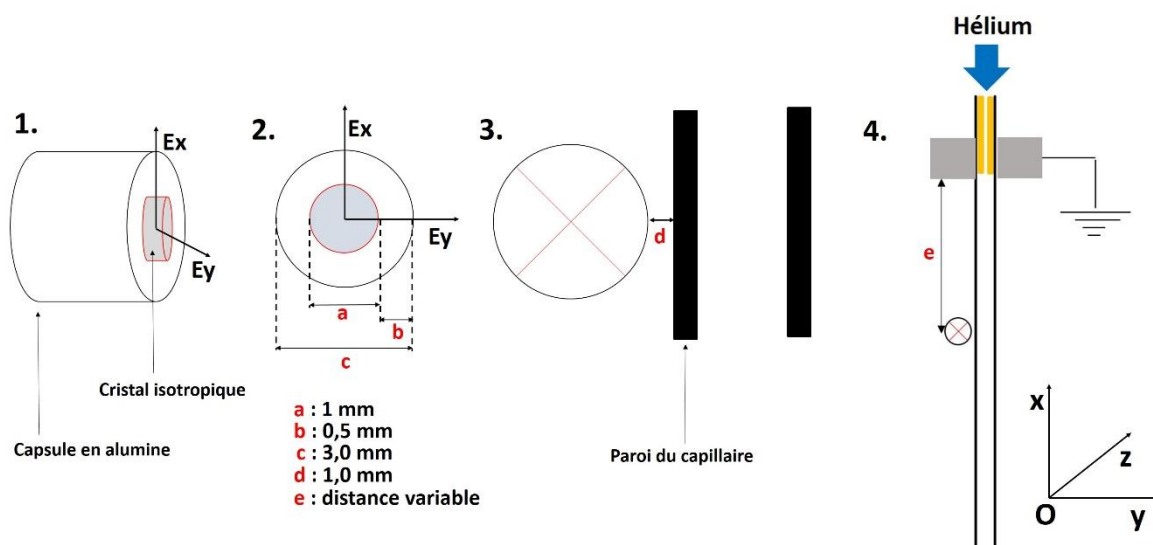


Figure II-9 : schéma des dimensions, de l'orientation et du placement de la sonde de champ le long du capillaire. 1. : sonde de profil ; 2. : sonde vue de dos ; 3. : représentation simplifiée de la sonde et positionnement le long du capillaire ; 4. : translation le long du capillaire.

Connectée à un oscilloscope, la sonde permet de suivre les variations temporelles de deux composantes orthogonales du champ électrique. Après la calibration (Airfield®), un clip en plastique est serré sur la fibre pour repérer la direction E_x . La direction E_y est donnée par le trièdre direct, sachant que la direction en Oz est définie par la direction vers la laquelle la sonde pointe. La sonde est très sensible à l'orientation. Elle est placée sur un support qui maintient la direction E_x selon Ox (parallèle à l'axe longitudinal du capillaire), en l'empêchant de tourner. Aucune contrainte mécanique ne doit s'appliquer sur la capsule en alumine. Le support est solidaire d'une platine de déplacement X/Y manuelle précise au demi mm près, elle permet d'ajuster le déplacement vertical selon Ox (le long du capillaire) et le déplacement selon Oz . Sur Oz , le cristal est aligné avec l'axe de symétrie du capillaire. Le Plasma Gun est également monté sur une platine X/Y, le capillaire est bougé dans la direction Oy tel que l'écart entre la paroi du capillaire et le bord de la capsule en alumine soit de 1 mm. Cette orientation et ces positions sont toujours conservées lorsque la sonde se déplace verticalement (le long du capillaire et le long de la plume). Nous considérons que le positionnement du cristal est précis au millimètre près.

E_x correspond donc à la composante longitudinale du champ électrique et E_r à la composante radiale. La sonde délivre deux signaux en mV correspondant à chacune de ces composantes. La valeur du champ est obtenue après multiplication des facteurs d'antennes donnés en m^{-1} sur chaque composante par l'électronique de commande Eosense®. Les facteurs d'antennes ont été systématiquement relevés à chaque mesure. L'origine des temps est toujours définie par le front de montée du signal TTL de l'abiopulse.

De nombreuses séries de mesures ont été effectuées pour trouver le positionnement idéal de la fibre et la façon de bouger le long du capillaire, sans fausser les mesures. Les mêmes mesures ont également été effectuées plusieurs fois après démontage intégral et repositionnement du dispositif. D'après toutes ces mesures, nous estimons qu'un écart de la valeur du champ entre deux mesures devient pertinent lorsqu'il est plus élevé que 0,5 kV/cm. Les mesures du champ électrique seront présentées en détail au chapitre IV.

5. Mesure de la concentration des métastables de l'hélium

5.1 Niveaux d'énergie de l'atome d'hélium

La Figure II-10 présente quelques niveaux d'énergie de l'atome d'hélium. Les niveaux d'énergie sont repérés par les termes spectraux en notation Russel Saunders $^{2S+1}L_J$. $2S+1$ correspond à la multiplicité, L repère le nombre quantique associé au moment cinétique orbital et J le nombre quantique associé au moment cinétique total.

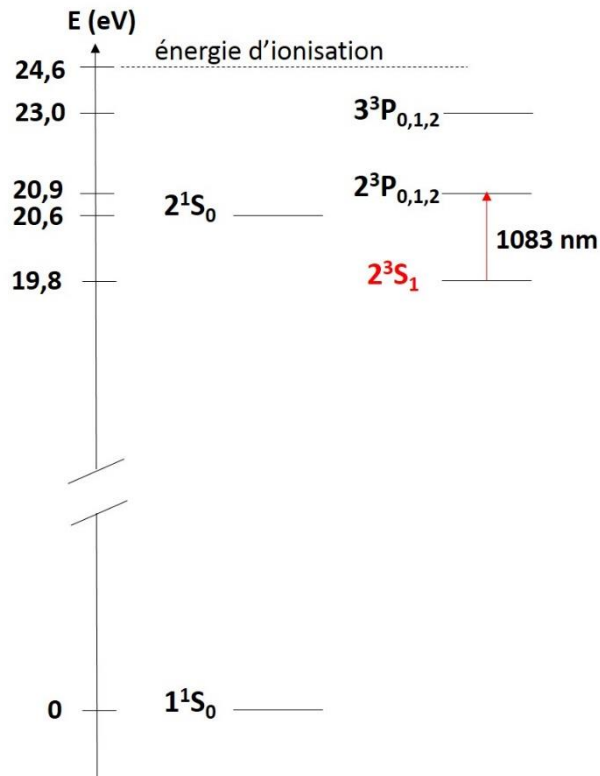


Figure II-10 : quelques niveaux d'énergie de l'atome d'hélium

Le niveau 2^3S_1 est légèrement plus bas en énergie que le niveau 2^1S_0 (de 0,8 eV). Cela provient du fait 2^3S_1 est un état triplet. Les électrons étant des fermions (particules de spin demi-entier), la fonction d'onde totale du système (produit tensoriel d'une fonction d'onde de spin et d'une fonction d'onde d'espace) doit être antisymétrique. La fonction d'onde d'espace de l'état triplet 2^3S_1 est antisymétrique. Dans ce cas, les électrons ne peuvent se situer au même point de l'espace et s'évitent. Cette contrainte n'existe pas pour la fonction d'onde d'espace symétrique de l'état singulet 2^1S_0 . En conséquence, l'énergie de répulsion entre électrons, dû à leurs interactions mutuelles, est légèrement plus élevée dans ce dernier cas.

Le niveau 2^3S_1 est donc métastable. Dans cet état d'énergie, l'absorption d'un photon à 1083 nm (1,1 eV) permet de directement peupler les niveaux 2^3P . Les techniques de spectroscopie d'absorption par laser sont basées sur ce principe. Dans la suite, nous noterons He 2^3S le niveau métastable 2^3S_1 de l'atome d'hélium, en omettant le terme J.

5.2 Banc optique d'absorption laser

Ces mesures ont été réalisées sur le banc optique d'absorption du LPGP. La Figure II-11, schématisant le banc d'absorption, est réalisée d'après le schéma de la thèse de Claire Douat (p.71, figure 2-25 de la référence [81] du chapitre I). Le lecteur intéressé pourra se référer à cette thèse pour une présentation détaillée de la technique.

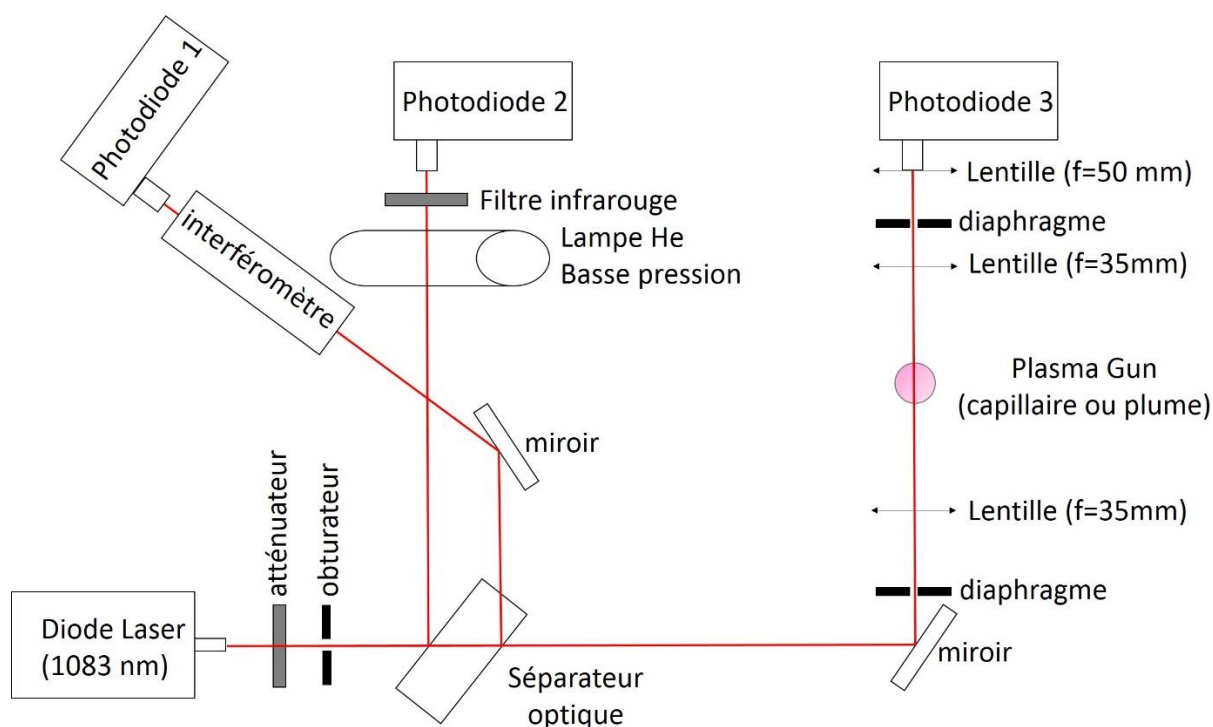


Figure II-11 : montage optique d'absorption laser pour la mesure des métastables de l'hélium (réalisé d'après le schéma de la thèse de Claire Douat)

Un faisceau laser de longueur d'onde 1083 nm est produit par une diode laser (DL 100 DFB Toptica). Le faisceau passe au travers d'un atténuateur pour éviter la saturation et est séparé en trois sous faisceaux. Deux d'entre eux sont utilisés pour le réglage du laser : calage à la longueur d'onde d'absorption (lampe à basse pression d'hélium) et absorption monomode (interféromètre de Fabry Perrot). Le faisceau sonde est réfléchi sur un miroir puis est collimaté par un système de lentilles convergentes. Le faisceau traverse le plasma (à travers la plume ou le capillaire) avant d'atteindre une photodiode (New Focus en Indium Gallium Arsenide avec un temps de réponse de 3 ns). Un obturateur permet de couper le faisceau pour enregistrer l'émission du plasma à 1083 nm. Un diaphragme supplémentaire a dû être placé devant la photodiode pour limiter la zone d'éclairement par l'émission de lumière du plasma.

Nous avons collimaté le faisceau laser à un diamètre de 48 μm . La taille du faisceau est mesurée de manière très précise en bougeant finement une lame de rasoir fixée sur une platine micrométrique motorisée et en observant les variations de l'intensité du signal.

Cette même platine est rendue solidaire d'un support sur lequel le Plasma Gun a été fixé (Figure II-12). Le schéma représente une vue face au faisceau laser.

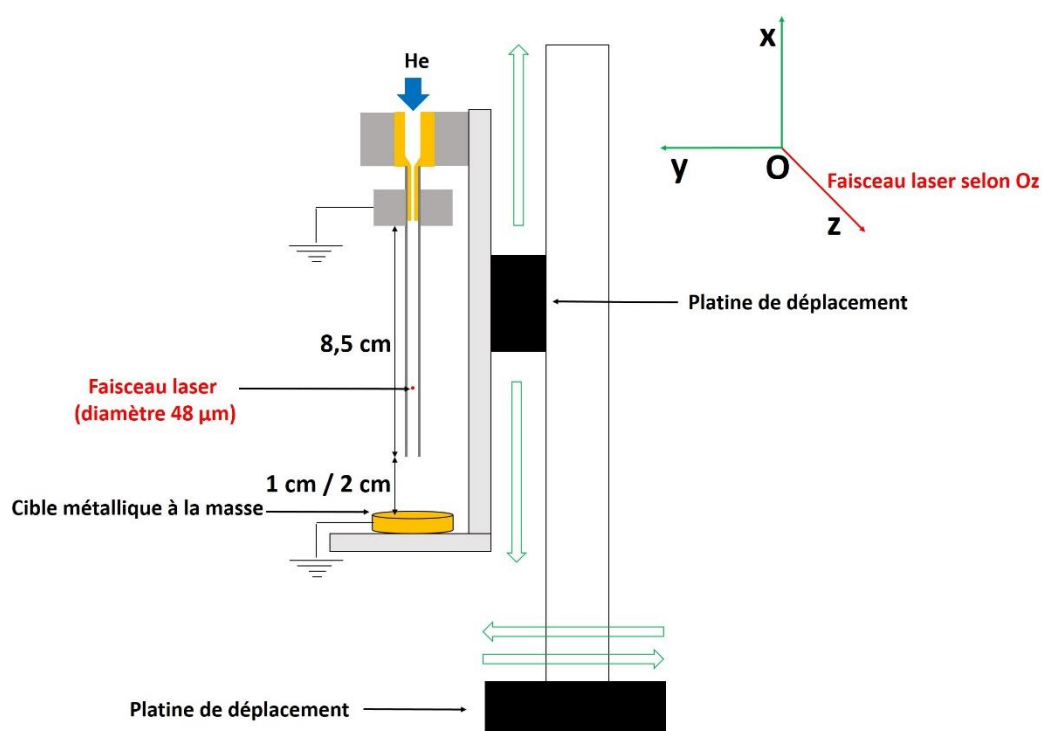


Figure II-12 : déplacement du plasma gun sur le banc optique d'absorption par laser (configuration avec cible ou jet libre)

Des mesures ont été effectuées dans la plume et le long du capillaire, en collaboration avec Vincent Puech. Pour les mesures le long du capillaire (direction Ox), le faisceau doit exactement être centré sur l'axe de symétrie pour ne pas être dévié. A chaque déplacement vertical, nous avons systématiquement vérifié que le faisceau était bien centré sur le capillaire en ajustant finement le déplacement selon Oy. Les déplacements fins sont effectués à l'aide de la platine motorisée micrométrique dont l'amplitude de déplacement maximal est de 3 cm environ. Pour couvrir toute la longueur du capillaire, nous avons utilisé une bride de 5 mm de diamètre pour baisser manuellement la platine. Dans la plume les déplacements sont possibles en Ox et Oy, ce qui permet de déterminer notamment les profils spatiaux de concentration des métastables par transformée d'Abel (qui ne seront pas présentés dans cette thèse).

Un développement théorique permet, d'après la loi de Beer Lambert, de déduire la concentration moyenne de métastables de l'hélium d'après l'intensité lumineuse mesurée avant et après absorption. La thèse de Claire Douat présente en détail la dérivation de la formule ainsi que les nombreux phénomènes physiques à prendre compte (élargissements de raie) pour calculer la densité.

Au final, le logarithme népérien du rapport de l'intensité du signal avant et après absorption est directement proportionnel à la concentration de métastables à un facteur multiplicatif près.

$$[He^m] \times l = \Delta_{\nu_L} \times 1,24 \cdot 10^{15} \times \ln\left(\frac{I}{I_0}\right)$$

Avec $\Delta\nu_L$ la largeur de raie mesurée à 13,2 GHz. I_0 correspond à l'intensité du signal avant absorption et I l'intensité après absorption. l est la longueur d'absorption, dont nous considérons la valeur à 4 mm (diamètre interne du capillaire) en supposant le plasma homogène.

La concentration sera donc :

$$[He^m] = \ln\left(\frac{I}{I_0}\right) \times 4,1 \cdot 10^{12} \text{ (cm}^{-3}\text{)}$$

Les mesures de concentration de métastables de l'hélium seront présentées en détail au chapitre V.

6. Visualisation de l'écoulement de l'hélium par strioscopie

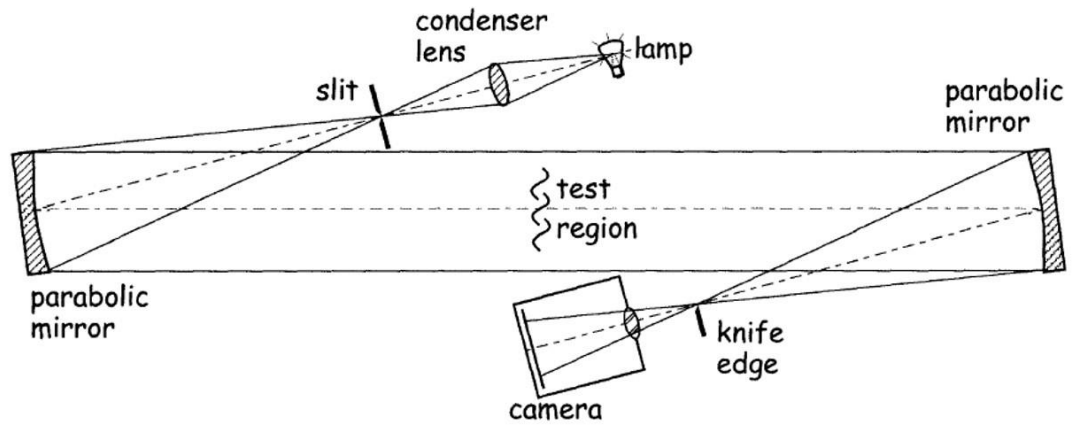
La strioscopie (ou Schlieren en Allemand) est une méthode optique, non intrusive, qui permet d'observer de manière qualitative un écoulement présentant des variations d'indices de densités, ce qui est le cas pour l'expansion d'un jet d'hélium dans l'air.

Lorsque la lumière se propage dans un milieu inhomogène, le changement d'indice de réfraction du milieu entraîne une déviation du faisceau lumineux qui le traverse (loi de la réfraction de Snell-Descarte). Avec un dispositif optique adapté, il est possible de focaliser l'image du jet en un point précis. En filtrant la lumière qui ne subit pas de déviation, on peut choisir de ne visualiser que la lumière déviée suite à un changement d'indice. On visualise alors en temps réel une image qui rend compte du mouvement de l'hélium dans l'air.

Il existe plusieurs configurations possibles pour le montage optique, nous avons utilisé la configuration en « Z », comme le montre la Figure II-13.

Le jet est placé entre deux miroirs paraboliques. Son image est formée dans le plan focal du second miroir. Un couteau (dit couteau de Foucault) filtre la lumière qui ne subit pas de déviation. Dans les termes de l'optique de Fourier, ce couteau est placé dans le plan de Fraunhofer du miroir, là où se forme le spectre de l'image. Le couteau est donc un filtre spatial qui filtre la composante continue de la lumière (l'ordre 0, qui ne varie pas dans le temps) et ne laisse passer que les ordres supérieurs, associée aux hautes fréquences (variation rapide dans le temps). La strioscopie est donc une application directe du filtrage spatiale, le couteau agissant comme un filtre passe haut.

L'image filtrée est ensuite recueillie par une caméra. On peut noter que la visualisation de l'écoulement fonctionne aussi sans couteau, on parle dans ce cas d'ombroscopie. Cette technique est très similaire, mais donne des images où la composante continue est toujours présente, elles sont donc moins contrastées que leurs analogues obtenues par strioscopie. La strioscopie permet en outre de choisir la direction des variations à observer via l'orientation du couteau.



Schardin, H. Das Toeplersche Schlierenverfahren: Grundlagen für seine Anwendung und quantitative Auswertung. *VDI-Forschungsheft No. 367, 5(4):1-32, 1934.*

Figure II-13 : schéma du montage optique de strioscopie en configuration Z

Pour visualiser l'écoulement de l'hélium dans notre jet, nous avons utilisé le banc optique de strioscopie de l'ISAE à Toulouse (Figure II-14). Le deuxième miroir est hors champ (sur la droite de l'image).

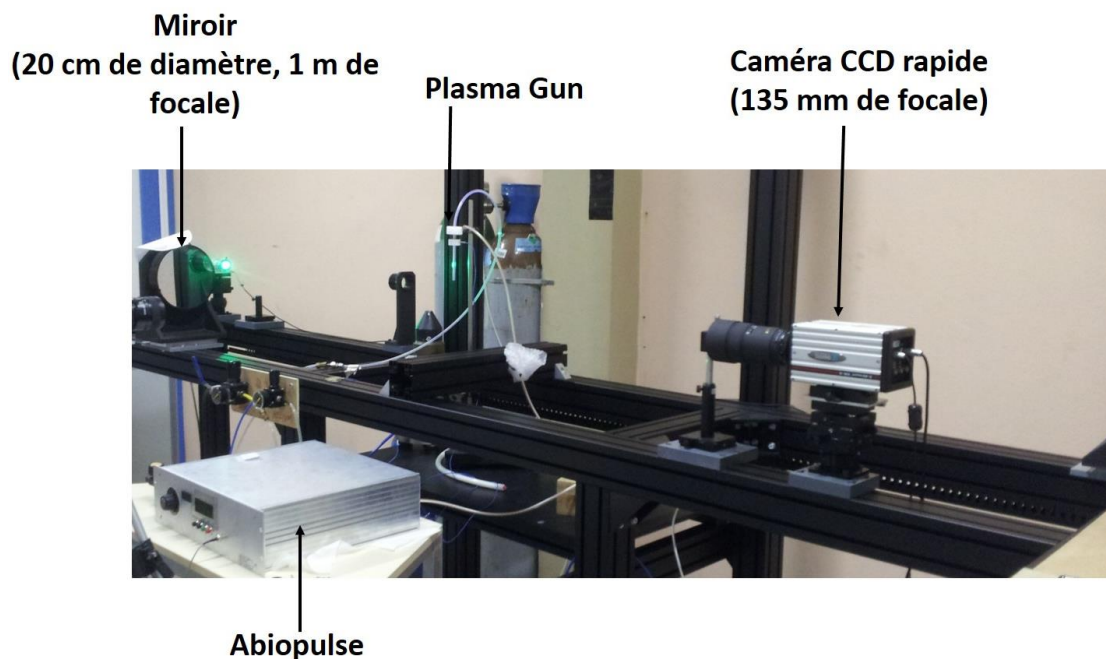


Figure II-14 : banc optique de strioscopie de l'ISAE

Les deux miroirs utilisés ont une distance focale de 1 m et un diamètre de 20 cm. La caméra est une CCD rapide (IDT X-Streal XS-3). Elle est munie d'un objectif de focale ajustable, ici réglé à la focale maximum (135 mm). La fréquence d'acquisition peut monter à 800 images/s en pleine résolution et 1500 images/s en résolution basse. Nous avons essentiellement travaillé à des cadences de 200 images/s et 1000 images/s. La source lumière utilisée est une diode verte.

Le banc optique est situé dans un préfabriqué dédié : aucun courant d'air ne doit perturber le développement du jet d'hélium. Le déclenchement et l'enregistrement sont toujours effectués à l'extérieur de la pièce.

La Figure II-15 montre un exemple de visualisation de l'écoulement d'un flux d'hélium obtenue sur le banc de l'ISAE, lorsque le capillaire est orienté vers le bas avec un débit de 1 l/min. Cette image est issue d'une vidéo rapide cadencée à 200 images/s. Son temps de pose est de 2,35 ms.

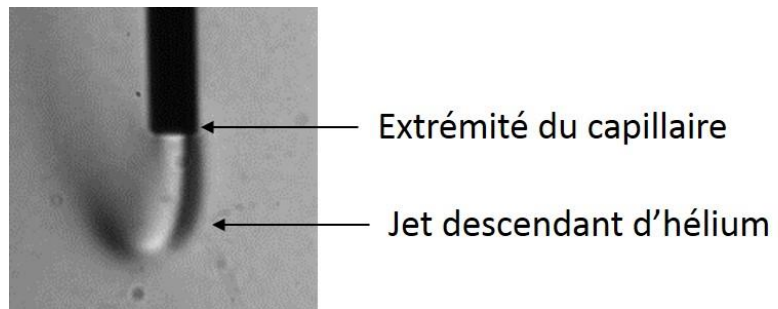


Figure II-15 : jet descendant d'hélium à un débit de 1 l/min lorsque le capillaire est orienté vers le bas

Le capillaire est visible en noir sur l'image. Le jet d'hélium apparaît sur l'image à travers des variations d'intensité lumineuse qui traduisent la répartition des gradients d'indice. Les zones sombres sont associées au passage d'une densité forte en air vers une densité plus faible, et les zones plus claires au passage d'une densité forte en hélium vers une densité plus faible. Nous reviendrons en détail sur ces mesures au chapitre suivant.

Chapitre III. Étude de la modification d'écoulement par plasma

Dans ce chapitre, nous allons étudier l'interaction entre l'écoulement d'un flux d'hélium, gaz porteur de notre décharge et le plasma généré dans notre dispositif expérimental. Nous caractériserons tout d'abord le comportement de l'écoulement de l'hélium, propre à notre géométrie d'injection, en fonction du débit d'hélium et de la longueur des capillaires. La modification de l'écoulement par plasma sera dans un premier temps abordée à travers la transition entre régimes d'écoulements. Puis, dans nos conditions typiques de traitements biomédicaux, à bas débit d'hélium, nous étudierons en détail comment le plasma peut amener à la construction et la parfaite stabilisation d'un canal d'hélium.

1. Introduction

1.1 Actuateurs plasma et vent ionique

La modification d'écoulement par plasma est une thématique de recherche très active. Pour le contrôle d'écoulement, Les dispositifs les plus utilisés sont des décharges couronnes ou des DBD, on parle d'actuateur plasma. La première référence que l'on puisse trouver dans la littérature quant à l'utilisation d'actuateur plasma de type DBD pour le contrôle d'écoulement date a priori de 1968, dans une étude menée par Mkhitarian et al [1]. Néanmoins, ce type de dispositif n'a été popularisé qu'à la fin des années 90 suite à l'étude de Roth et al [2], montrant la faculté du plasma à recoller l'écoulement sur un profil d'aile d'avion (Figure III-1). Dès lors, le domaine a connu une expansion rapide, et les études sont aujourd'hui nombreuses [3],[4].

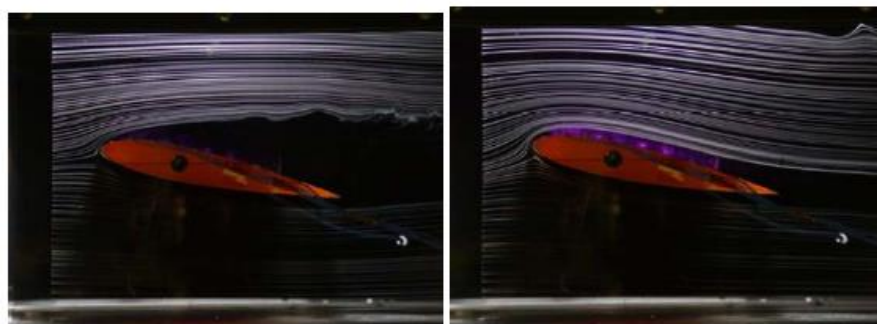


Figure III-1 : contrôle d'écoulement par DBD. Le plasma est allumé sur l'image de droite et recolle l'écoulement sur l'aile (Issue de [5])

Le but d'un actuateur plasma est de générer du vent ionique. Le vent ionique résulte de l'accélération de particules chargées, des ions, sous l'effet d'un champ électrique intense. Par collisions, les ions transfèrent leurs quantités de mouvement aux neutres, ce qui aboutit à un

mouvement de dérive globale. On a donc un couplage entre des forces de nature électrique et des forces existant dans le fluide neutre, on parle d'électrohydrodynamique (EHD) [6],[7]. Il est intéressant de noter que la notion de vent ionique est ancienne, antérieure même à la notion de plasma. La première observation de ce phénomène date sans doute de 1709, faite par Hauksbee dans le cas d'un tube chargé. Faraday, en 1838, en propose une première interprétation, décrivant la force à l'origine de ce vent comme la friction des ions sur les molécules du gaz.

1.2 Modification d'écoulement dans les jets de plasma à pression atmosphérique : état de l'art

Comme nous l'avons vu au premier chapitre, beaucoup d'efforts ont été consacrés à la caractérisation des jets de plasma froid à pression atmosphérique par le biais de techniques spectroscopiques (émission et absorption), d'imagerie ICCD rapide ou de mesures de courant. En revanche, en ce qui concerne la modification d'écoulement dans les jets de plasma, la littérature est beaucoup moins abondante.

Une des premières observations d'une modification d'écoulement a été faite par Oh et al [8] sur un jet micro plasma d'hélium (Figure III-2). En visualisant l'écoulement de l'hélium dans l'air par strioscopie, ils avaient observé que le plasma favorisait l'apparition de la turbulence en réduisant la zone d'écoulement initialement laminaire sans plasma. Ces notions de mécanique des fluides seront détaillées en partie 2.

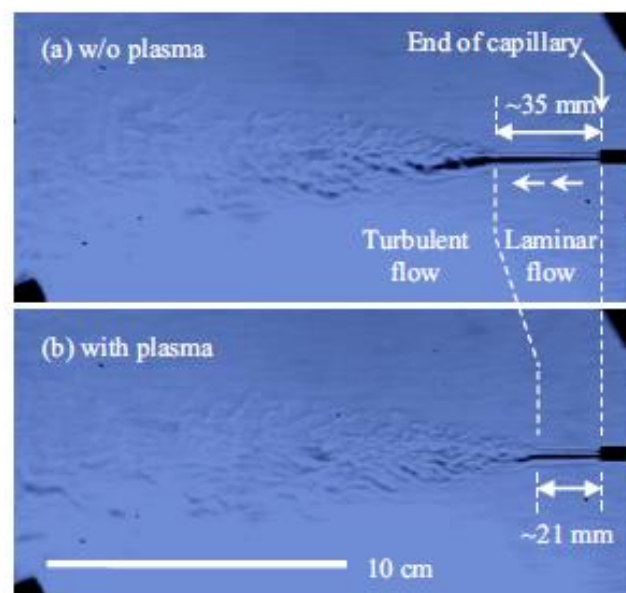


Figure III-2 : visualisation de l'écoulement de l'hélium par strioscopie et de sa modification par le plasma. (issue de [8])

Le débit d'hélium utilisé était de 4,4 l/min, soufflé dans un capillaire de 1 mm de diamètre interne. Le générateur électrique délivrait une tension sinusoïdale à une fréquence de 10 kHz, pour une tension crête de 8 kV. Les auteurs indiquaient que cette observation traduisait une interaction entre le plasma et le fluide neutre et deux hypothèses ont été formulées pour expliquer la transition : un chauffage du gaz par collision des électrons sur les neutres et le transfert de quantité de mouvement des ions vers les neutres. Les deux effets tendraient à augmenter la vitesse du gaz et favoriser la

turbulence. Les auteurs indiquaient toutefois qu'une telle réduction de la zone laminaire devrait s'accompagner d'une augmentation de 100 % de la vitesse du gaz, sachant qu'ils estimaient cette augmentation à 30 % par chauffage des électrons.

Jiang et al [9] ont montré par strioscopie que l'écoulement pouvait gagner de l'impulsion en présence de plasma. La Figure III-3, issue de [9], montre l'effet du plasma sur l'écoulement, à différents débits d'hélium.

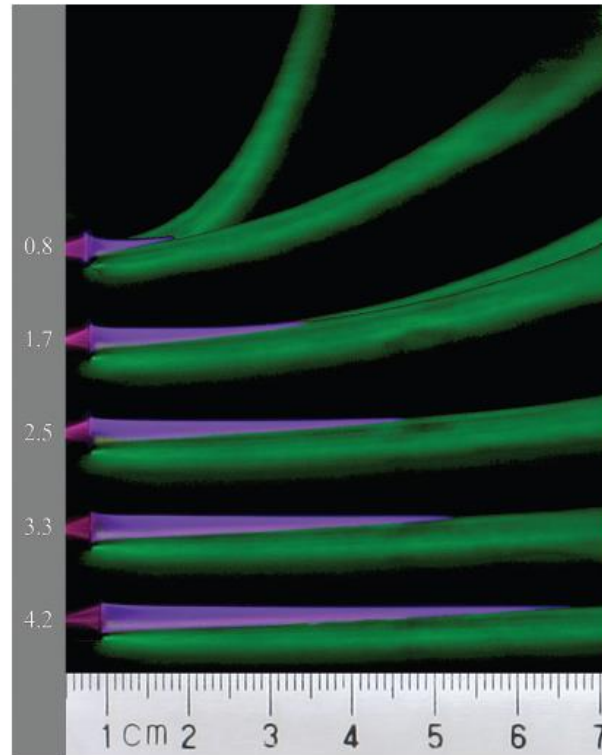


Figure III-3 : photographies de la plume plasma (violette) et de l'écoulement avec et sans plasma (en vert) à différents débits d'hélium (l/min). (issue de [9])

L'hélium étant plus léger que l'air, la force de flottabilité, exercée par l'air sur l'hélium, affecte le développement du jet. Cela est particulièrement marqué pour de faibles débits, (0,8 l/min sur la figure), le jet se courbe et s'écoule vers le haut. Dans cette condition, on distingue très nettement qu'en présence de plasma le jet est beaucoup moins courbé, signe que de la quantité de mouvement est transmise du plasma vers l'écoulement. Une tension sinusoïdale de fréquence 17 kHz et d'amplitude 8 kV était utilisée dans cette expérience. Les auteurs, en testant trois configurations de décharge, montraient également que la manière dont l'écoulement et le plasma interagissaient dépendait aussi de la configuration de décharge utilisée.

Gashemi et al [10], utilisaient un dispositif comportant 4 tubes en quartz disposés les uns à côté des autres. Les capillaires étaient longs de 10 cm, pour 1 mm de diamètre interne, et 3 débits d'hélium étaient utilisés (3, 5 et 7 l/min). Avec une alimentation délivrant une tension sinusoïdale de 19 kHz pour 19 kV d'amplitude, ils avaient observé une déviation des plumes plasma (aux deux extrémités de leur dispositif), corrélée à celle des jets d'hélium visualisés par strioscopie. Ils concluaient donc que la répulsion électrostatique entre les plumes plasma affectait l'écoulement de l'hélium. Dans

leurs conditions expérimentales, reprenant l'hypothèse de [8], ils expliquaient qu'en présence de plasma l'apparition de la turbulence par accélération du gaz était essentiellement due à un chauffage et minimisaient l'importance du vent ionique.

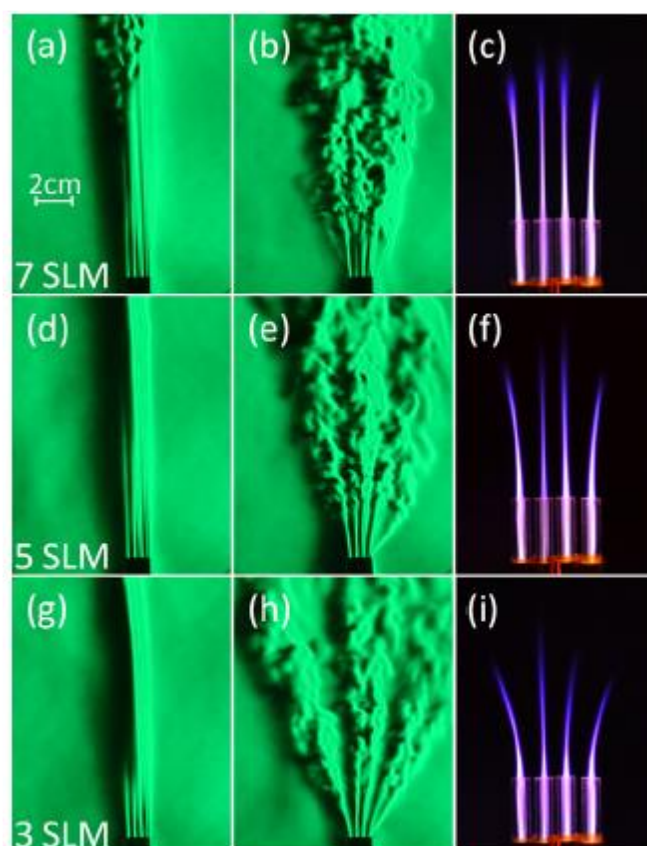


Figure III-4 : visualisation des jets d'hélium à différents débits avec et sans plasma. Colonne de gauche : jets sans plasma. Colonne au centre : jets avec plasma. Colonne de droite : plumes plasma. (issue de [10])

Shao et al [11] avaient observé des modifications de l'écoulement dans un jet d'argon, en présence de plasma. En se basant à la fois sur leurs expérimentations et sur un modèle numérique, comprenant de la turbulence et les effets de flottabilité, ils interprétaient également les déviations du jet par un gain de quantité de mouvement de la part du plasma. Bien que les jets d'argon soient généralement reconnus pour être plus chauds que les jets d'hélium, par transfert d'énergie très efficace des métastables de l'argon vers les niveaux ro-vibrationnels de l'azote moléculaire, les effets thermiques n'étaient pas considérés. En raisonnant d'un point de vue électrostatique, ils considéraient que la force électrique, induisant des modifications de l'écoulement, ne pouvait exister plus loin que la plume visible. Ils interprétaient leur taille de plume plasma comme dépendante du débit principalement, en raison des changements dans la fraction molaire de l'argon dû à la turbulence.

Dans beaucoup d'études, la longueur de la plume plasma visible a souvent été reliée aux transitions fluides qui caractérisaient l'écoulement du gaz porteur de la décharge. Avant l'étude de Jiang et al [9], Karakas et al [12] expliquaient qu'en raison de la turbulence, la plume ne peut s'étendre plus

loin que ne le permet la quantité d'air mélangée à l'hélium, i.e la fraction molaire de l'hélium. Pour simuler les différentes plumes plasma obtenues dans leur dispositif, ils considéraient la propagation du plasma dans un jet d'hélium donné, calculé par simulation numérique, en ne prenant pas en compte les interactions entre le plasma et l'écoulement.

Nous avons, dans nos conditions expérimentales typiques de traitements biomédicaux, visualisé par strioscopie l'écoulement d'un jet d'hélium à un débit de 0,5 l/min. A ce débit, l'hélium plus léger que l'air est fortement contraint par la force de flottabilité et ne peut s'étendre que 4 mm au-delà de la sortie du capillaire. Pourtant, dans les mêmes conditions, nous pouvons traiter une cible située à 1 cm puisqu'une plume plasma existe entre le capillaire et la cible (ici une cible métallique reliée à la masse). Ces observations sont résumées sur la Figure III-5.

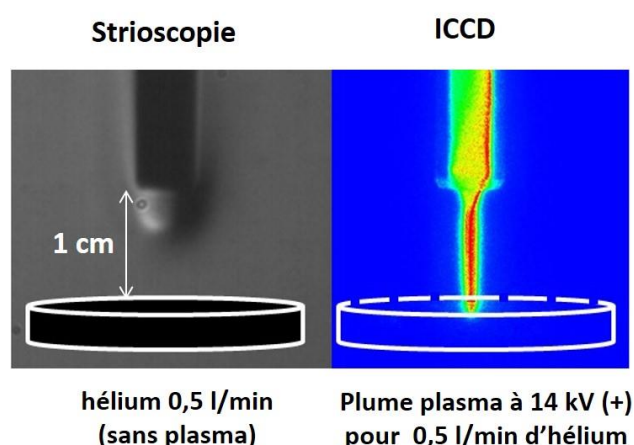


Figure III-5 : comparaison entre l'écoulement d'un jet d'hélium à un débit de 0,5 l/min (sans plasma) et une plume plasma au même débit (14 kV ,polarité positive), en contact avec une cible métallique située à 1 cm de l'extrémité du capillaire.

Si on ne tient pas compte du fait que le plasma puisse modifier l'écoulement et amener de l'hélium jusqu'à la cible, il y a donc un paradoxe, puisque la fraction molaire initiale de l'hélium est nulle 5 mm au-dessus de la cible.

L'étude de la modification de l'écoulement apparaît donc importante, à la fois d'un point de vue pratique mais également fondamental. D'un point de vue pratique, dans les conditions de la Figure III-5, une souris à 1 cm de l'extrémité du capillaire, sans plasma, ne serait pas en contact avec l'hélium et rendrait donc le test de contrôle (exposition au flux d'hélium sans plasma) caduc. D'un point du vue fondamental, les échanges de forces entre le plasma et le fluide sont importants pour comprendre en profondeur le développement du jet.

1.3 Résumé et organisation du chapitre

Des études précédentes ont montré de manière claire des effets de modification de l'écoulement dans les jets de plasma froid à pression atmosphérique. Cependant, en regard de ces études, il est difficile de savoir si le vent ionique joue un rôle plus important que les effets thermiques dans la modification d'écoulement. Aucune étude n'a été réalisée pour clairement mettre en évidence le rôle de l'un et de l'autre. De plus, le plasma a toujours été associé à un effet plutôt destructeur et générateur de désordre, puisqu'il semble systématiquement apporter la turbulence à l'écoulement. Ceci apparaît plutôt antagoniste à la modification d'écoulement par actuateurs plasma, où ces derniers sont utilisés pour stabiliser l'écoulement.

Le chapitre sera organisé comme suit :

- **La partie 2** présentera notre dispositif expérimental. Quelques rappels de notions de base de la mécanique des fluides seront également effectués.
- **La partie 3** présentera l'étude de l'écoulement de l'hélium dans notre géométrie, pour différents débits et longueurs de capillaire, en identifiant les régimes d'écoulement.
- **La partie 4** sera consacrée à la transition entre différents régimes d'écoulement, provoquée par le plasma. Deux cas seront considérés suivant que le plasma reste ou non confiné dans le capillaire. D'autres cas seront illustrés en annexe A.
- **La partie 5** traitera en détail du mécanisme de canalisation de l'hélium par plasma, au cœur de notre étude.
- **La partie 6** montrera comment, grâce à l'étude précédente, optimiser au mieux nos paramètres, pour contrôler l'écoulement de l'hélium et la propagation du plasma. Une comparaison avec l'optimisation des paramètres dans les actuateurs plasma sera effectuée.
- **La partie 7** mettra nos observations et hypothèses en perspective avec les études des jets de plasma froid à pression atmosphérique dans la littérature.

2. Dispositif expérimental et notions de mécanique des fluides

2.1 Géométrie du Plasma Gun

La géométrie du Plasma Gun ainsi que l'injection de l'hélium dans le capillaire ont été présentées dans le second chapitre en section 1.1. La Figure III-6 rappelle la géométrie du Plasma Gun et l'injection de l'hélium dans le capillaire à travers l'électrode interne. Nous rappelons que la taille des capillaires se rapportera toujours à la distance entre l'extrémité de l'électrode haute tension insérée dans le capillaire et le bord du capillaire. Pour qualifier la zone de changement de section entre le diamètre de l'orifice de l'électrode interne (0,8 mm) et le diamètre interne du capillaire, nous parlerons de « marche ».

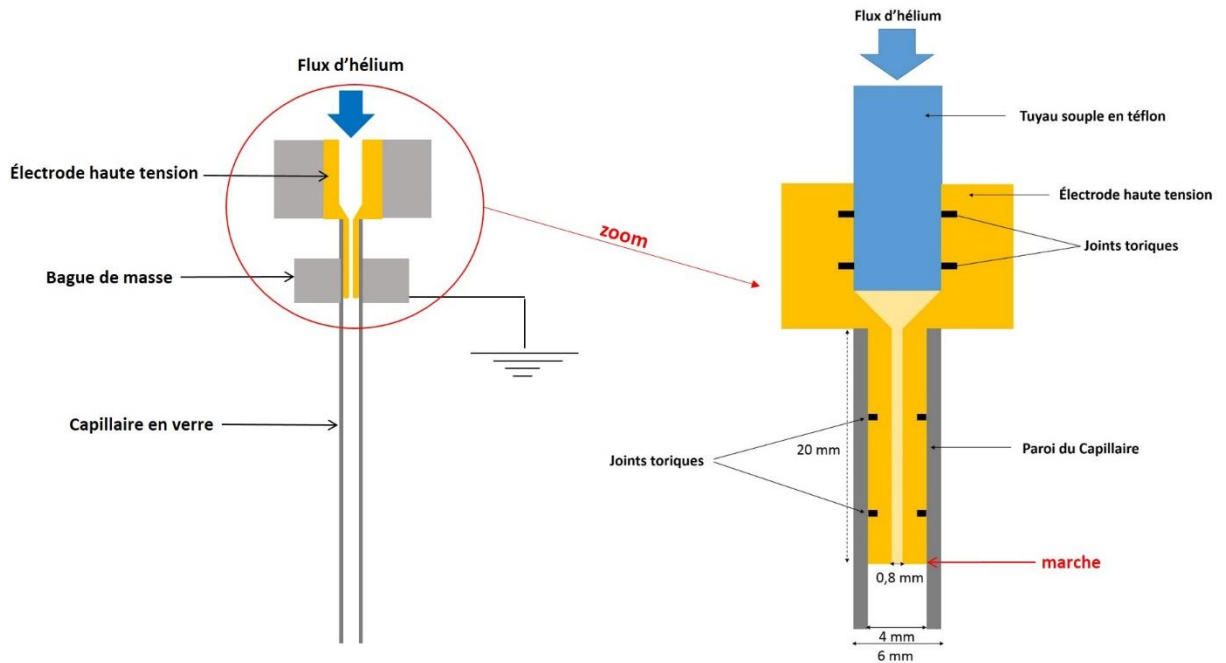


Figure III-6 : injection de l'hélium dans le capillaire par l'électrode interne

L'étude de l'écoulement dans cette géométrie nécessite donc de considérer de prime abord un écoulement en conduite cylindrique pour la circulation de l'hélium dans le capillaire, puis le développement du jet d'hélium dans l'air, à l'extérieur de celui-ci.

Pour visualiser l'écoulement de l'hélium dans notre géométrie, nous avons utilisé le banc optique de striescopie de l'ISAE à Toulouse (présenté en partie 6 du second chapitre).

2.2 Régimes d'écoulement et nombre de Reynolds

Osborne Reynolds a démontré empiriquement l'existence de différents régimes d'écoulement. L'expérience de Reynolds consistait à suivre l'évolution d'un liquide coloré au sein d'une masse liquide en mouvement dans un tube en verre. La vitesse de l'écoulement dans le tube pouvait être modulée. Selon cette vitesse, des régimes bien distincts apparaissent, comme le montre la Figure III-7.

Trois régimes sont observables :

- A vitesse d'écoulement modérée le régime est dit laminaire, les particules fluides s'écartent peu les unes des autres. Les différentes couches de fluide (lamelles) glissent les unes sur les autres sans se mélanger, la diffusion est donc très lente.
- A vitesse d'écoulement plus importante, les particules fluides ne se déplacent plus exactement de manière parallèle et le régime est qualifié de transitoire. Ce régime est instable, à différents degrés.
- Si la vitesse de l'écoulement est encore augmentée, des tourbillons se forment de manière aléatoire en taille et en direction, on parle de régime turbulent. La diffusion de la quantité de mouvement des particules fluide est alors importante.

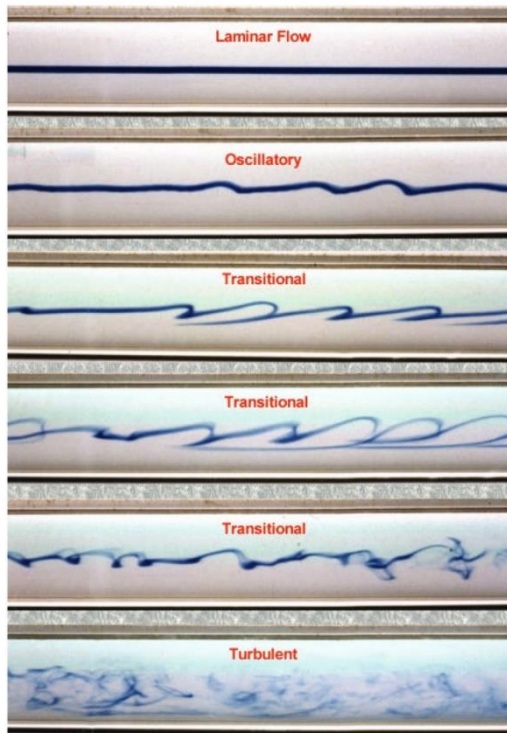


Figure III-7 : transitions entre régimes d'écoulements à vitesse d'écoulement croissante.

Pour caractériser les transitions entre ces différents régimes, Reynolds a établi l'expression, de manière empirique, d'un nombre adimensionné qui porte maintenant son nom.

Le nombre de Reynolds s'écrit :

$$Re = \frac{\rho V D}{\mu}$$

Avec :

V : Vitesse moyenne de l'écoulement (m/s)

D : diamètre interne du tube (m)

ρ : masse volumique (kg/m³)

μ : viscosité dynamique (Pa.s)

Le nombre de Reynolds quantifie directement le rapport entre les termes des forces inertielles et des forces visqueuses intervenant dans l'équation de Navier-Stokes (pour un fluide newtonien incompressible). A bas Reynolds les termes visqueux dominant, tandis qu'à haut Reynolds, ce sont les termes inertiels qui dominant. La turbulence est pour l'écoulement un moyen très efficace de dissiper son énergie aux petites échelles.

Le passage d'un régime à l'autre en fonction du nombre du nombre de Reynolds est assez imprécis, toutefois les limites suivantes peuvent être données de manière générale :

- Régime laminaire : $Re < 2000$
- Régime transitoire : $2000 < Re < 4000$
- Régime turbulent : $Re > 4000$

Il est important de préciser que les limites indiquées ici, ainsi la pertinence du nombre de Reynolds pour caractériser les transitions, varient beaucoup suivant les hypothèses qui peuvent être faites sur l'écoulement ainsi que les conditions aux limites appliquées, comme nous allons le voir par la suite dans nos conditions expérimentales.

Dans la géométrie du plasma gun, l'hélium s'écoule dans un capillaire cylindrique de 4 mm de diamètre interne. Pour une géométrie cylindrique le débit volumique, imposé par le débitmètre, s'écrit :

$$Q_{vol} = V.S = V.\frac{\pi D^2}{4}$$

En injectant l'expression du débit volumique dans le nombre de Reynolds, on obtient :

$$Re = 4 \frac{\rho}{\mu} \frac{Q_{vol}}{\pi D}$$

Avec :

$\rho = 0,1692 \text{ kg / m}^3$ (loi des gaz parfaits à 300 K et 1,013 bar)

$\mu = 2,00.10^{-5} \text{ Pa.s}$ (loi de Sutherland à 1,013 bar)

$D = 4 \text{ mm}$

Le Tableau III-1 donne la conversion débit d'hélium / nombre de Reynolds ainsi que la vitesse moyenne de l'écoulement associée.

$Q_{vol}(\text{l / min})$	Reynolds	Vitesse de l'écoulement (m/s)
0,5	22,5	0,67
1	45	1,33
2	90	2,66
3	135	3,99
4	180	5,32
5	225	6,65
6	270	7,98
7	315	9,31

Tableau III-1 : nombres de Reynolds et vitesse moyenne associée de l'écoulement pour différents débits

Dans la mesure où les vitesses de l'écoulement sont bien inférieures à Mach 0,3, l'hypothèse du fluide incompressible est justifiée. Nous sommes de fait dans des gammes de Reynolds qui sont dans l'absolu considérées comme faibles, en regard des gammes précédemment indiquées.

2.3 Écoulement en conduite

Les écoulements laminaires en conduite ont été étudiés aux alentours des années 1850 par l'ingénieur allemand Hagen et le médecin français Poiseuille, ceux-ci s'intéressant aux écoulements sanguins.

Dans l'écoulement dit de Hagen-Poiseuille, la vitesse des particules fluides présente un profil parabolique caractéristique (Figure III-8).

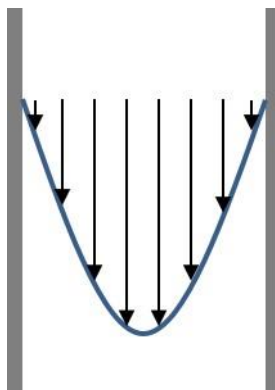


Figure III-8 : profil de vitesse parabolique de l'écoulement de Hagen-Poiseuille

Localement à la paroi du capillaire, la vitesse de l'écoulement doit être nulle (condition de non glissement à la paroi). Se développe alors proche de la paroi, sur une certaine épaisseur, une zone avec de forts gradients de vitesse où les effets visqueux dominent. Cette zone est appelée couche limite. Loin des parois, la viscosité n'a pas d'influence et la vitesse de l'écoulement n'est pas modifiée et est maximale. Le profil de vitesse est donc parabolique. Ce régime stationnaire est atteint pour une certaine distance de propagation l dans le tube de diamètre D et peut être estimée à :

$$l = 0,06 . Re . D$$

A un débit de 1 l/min, la distance d'établissement est d'environ 11 mm. On peut noter que plus le nombre de Reynolds augmente, plus la distance d'établissement du régime stationnaire augmente. La vitesse moyenne de l'écoulement correspond à la moitié de la vitesse maximale (centre de la parabole).

Ce type d'écoulement n'est valable qu'en régime laminaire. En régime turbulent, la forte diffusion de la quantité de mouvement homogénéise le profil de vitesse dans la conduite, qui est alors plus plat.

Comme nous l'avons vu sur la Figure III-6, notre géométrie est plus complexe puisque une marche est présente dans le capillaire. Dans notre étude sur l'écoulement de l'hélium, nous allons mettre en évidence l'influence de cette marche sur le comportement de l'écoulement. Les hypothèses sur l'écoulement et le rôle de la marche seront détaillés par la suite lors de la confrontation aux observations expérimentales.

2.4 Développement d'un jet d'hélium hors du capillaire

A la sortie du capillaire, l'hélium débouche dans l'air. En raison du mélange des deux gaz de masse volumique différente, la densité ne peut plus être considérée comme constante. On parle de jet à masse volumique variable. Cette problématique est un grand domaine d'étude de la mécanique des fluides, pour des domaines variés allant des applications industrielles à la météorologie. Lorsqu'aucun obstacle ne vient entraver le jet, celui-ci est qualifié de libre. Il sera également, dans notre cas, toujours considéré comme incompressible.

L'hélium étant moins dense que l'air, les forces de flottabilité ne vont pas être négligeables. Lorsque le capillaire est orienté vers le bas on parle de jet descendant, le jet est contraint par la force de flottabilité, dont la direction s'oppose au sens de l'écoulement. Lorsque le capillaire est orienté vers le haut, on parle de jet ascendant, les forces de flottabilité participent de manière favorable à l'expansion du jet, en s'ajoutant aux forces d'inertie et accélérant celui-ci.

Le jet peut être découpé en trois zones distinctes, comme schématisé sur la Figure III-9

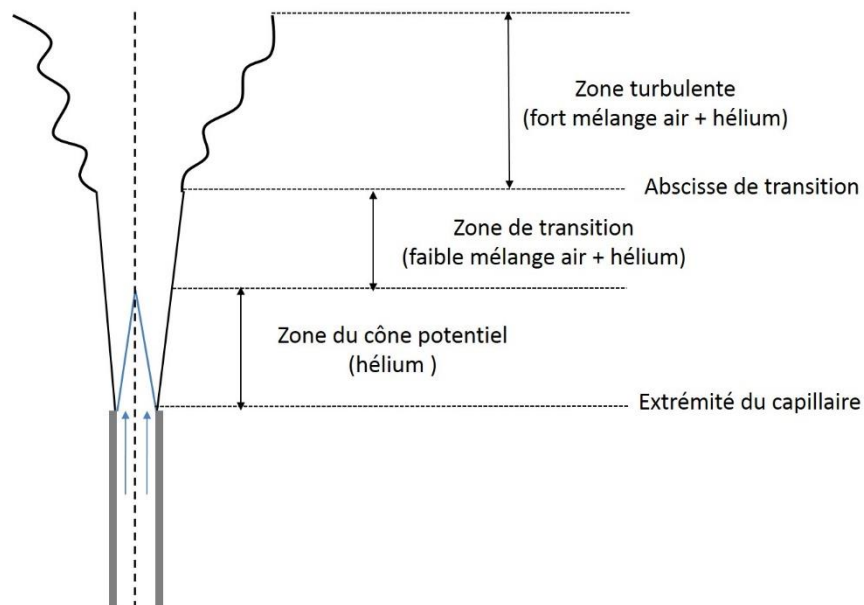


Figure III-9 : schéma d'un jet d'hélium ascendant comportant trois régions distinctes.

On distingue proche de la sortie du capillaire une zone où l'hélium et l'air ne se mélangent pas, cette zone est appelée cône potentiel. Le profil de vitesse dans cette zone doit être constant. On distingue ensuite la zone dite de transition, où l'écoulement est toujours en régime laminaire, mais où l'hélium et l'air commencent à se mélanger. A une certaine distance de l'extrémité du capillaire, on peut repérer une abscisse de transition vers un panache de gaz, l'écoulement est alors en régime turbulent. Dans cette zone, l'hélium et l'air se mélangent fortement.

L'abscisse de transition dépend du nombre de Reynolds, plus celui-ci est élevé, plus l'abscisse de transition se rapprochera de l'extrémité du capillaire. Cette abscisse dépend aussi également du ratio entre les forces d'inertie et de flottabilité, cette dernière étant importante dans le cas du jet d'hélium s'écoulant dans l'air. Dans [13], où est simulé notamment l'expansion d'un jet d'hélium laminaire ascendant dans l'air, il est expliqué que le taux de croissance de la vitesse de l'écoulement

est important même au voisinage de la buse, en raison du rapport de densité initial entre l'hélium et l'air.

En toute rigueur, il convient pour ce type de problème d'introduire d'autres nombres adimensionnés, en sus du nombre de Reynolds, comme le nombre de Galilée qui quantifie le rapport entre les forces de flottabilité et les forces visqueuses [13] où le nombre de Richardson qui traduit le rapport entre l'énergie potentielle gravitationnelle et l'énergie cinétique des particules fluides [8].

3. Régimes d'écoulement en géométrie Plasma Gun

3.1 Orientation du capillaire

Pour un jet d'hélium, deux cas peuvent être distingués suivant que le capillaire est orienté vers le bas ou vers le haut. Nous rappelons que le diamètre interne de tous les capillaires utilisés est de 4 mm.

La Figure III-10 montre un instantané de l'écoulement de l'hélium pour trois débits différents, lorsque le capillaire (10 cm) est orienté vers le bas. La taille du jet descendant est ici directement dépendante de la vitesse de l'écoulement, elle-même fonction du débit imposé par le débitmètre. Plus le débit est élevé, plus l'inertie du gaz sera grande. À un débit de 0,5 l/min, la taille du jet est de 0,4 cm. À un débit deux fois supérieur, elle est de 1,5 cm, soit plus du double. Finalement pour un débit quatre fois supérieur, 2 l/min, la taille est multipliée par huit, soit 4 cm. L'hélium étant plus léger que l'air, dans cette configuration les forces d'inertie et de flottabilité s'opposent. Lorsque l'intensité relative des forces d'inertie devient négligeable devant la flottabilité, l'écoulement ralentit, jusqu'à être finalement stoppé. Sous l'effet de la seule force de flottabilité, l'hélium s'écoule alors de manière ascendante.

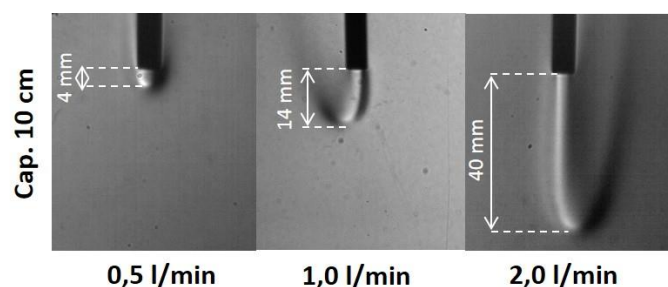


Figure III-10 : écoulement d'un jet d'hélium pour trois débits lorsque le capillaire est orienté vers le bas (capillaire de longueur 10 cm et de diamètre interne 4 mm)

La Figure III-11 montre l'écoulement de l'hélium pour les mêmes débits, mais lorsque le capillaire est orienté vers le haut. Dans cette configuration, les forces d'inertie et de flottabilité s'ajoutent, l'écoulement n'est donc plus contraint. Proche de la sortie du capillaire et au fur et à mesure que

l'on s'en éloigne, la vitesse de l'écoulement augmente sous l'action de la flottabilité. Sur toute la zone de visualisation, nous voyons que l'écoulement est en régime laminaire.

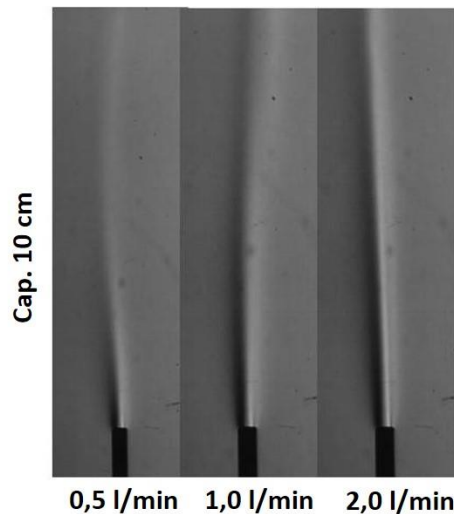


Figure III-11 : écoulement d'un jet d'hélium pour trois débits lorsque le capillaire est orienté vers le haut

Pour étudier le comportement de l'écoulement en fonction du débit d'hélium et de la longueur de capillaire, nous choisirons la configuration la plus simple à appréhender. Nous travaillerons donc avec le capillaire orienté vers le haut pour notre étude de caractérisation des différents régimes.

3.2 Étude des régimes d'écoulement pour différents débits et longueurs de capillaire.

Comme décrit en section 2.1, une marche importante est présente dans notre capillaire (passage de 0,8 à 4 mm de diamètre). Localement, la conservation du débit, fixé par le débitmètre, impose que la vitesse de l'écoulement soit plus importante près de la marche qu'en sortie du capillaire. Pour déterminer l'influence de cette marche sur le comportement de l'écoulement en sortie du capillaire, nous avons donc fait varier le débit d'hélium pour différentes longueurs de capillaire et enregistrer des vidéos rapides dans chaque cas. Toutes les images qui vont suivre sont issues de vidéos cadencées à 200 images/s avec un temps d'exposition de 2,35 ms.

La Figure III-12 montre l'évolution de l'écoulement à différents débits pour un capillaire de 15 cm de longueur. Le régime d'écoulement reste laminaire pour des Reynolds jusqu'à 180. On peut toutefois noter à Reynolds 90 une forme sinueuse loin de la sortie du capillaire. Ce n'est pas un panache de gaz turbulent, mais un mode particulier du jet (régime dit sinueux [14]). A Reynolds 225, on peut voir un panache de gaz turbulent avec une abscisse de transition située à environ 10 cm de l'extrémité du capillaire. A Reynolds 300, l'abscisse de transition se rapproche de l'extrémité du capillaire, ici 8,5 cm. Comme décrit précédemment, ce rapprochement progressif de l'abscisse de transition turbulente est un comportement tout à fait classique de l'écoulement.

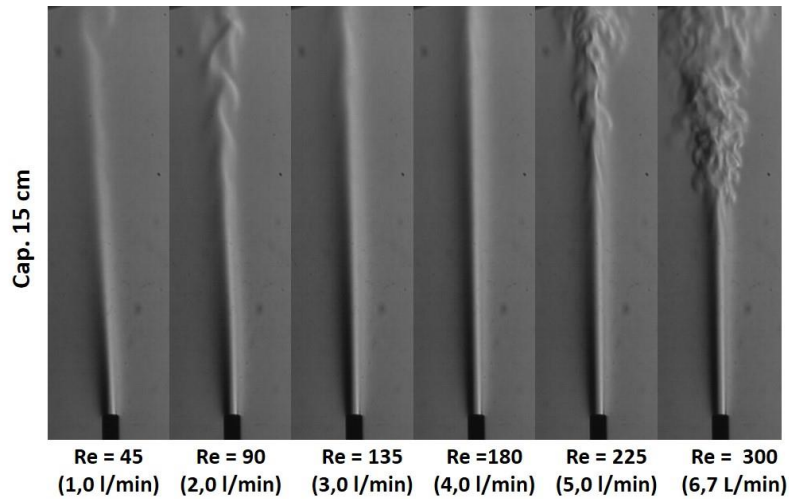


Figure III-12 : régimes d'écoulement pour différents Reynolds en sortie d'un capillaire de 15 cm de longueur

Les écoulements sont ici figés à un instant précis. Nous pouvons suivre leurs évolutions au cours du temps grâce à une découpe image par image de la vidéo rapide. La Figure III-13 montre cinq instantanés de l'écoulement, à 10 ms d'intervalle chacun, pour un Reynolds de 135 et la Figure III-14 pour un Reynolds de 225.

A Reynolds 135, l'écoulement reste en régime laminaire. A Reynolds 225, l'abscisse de transition vers l'état turbulent reste localisée au même endroit. Nous avons vérifié que sur toute la durée de l'enregistrement vidéo, quels que soient les instants choisis pour représenter l'écoulement, que ces derniers sont toujours représentatifs de n'importe quel autre instant antérieur ou ultérieur. Les régimes d'écoulement sont donc établis.

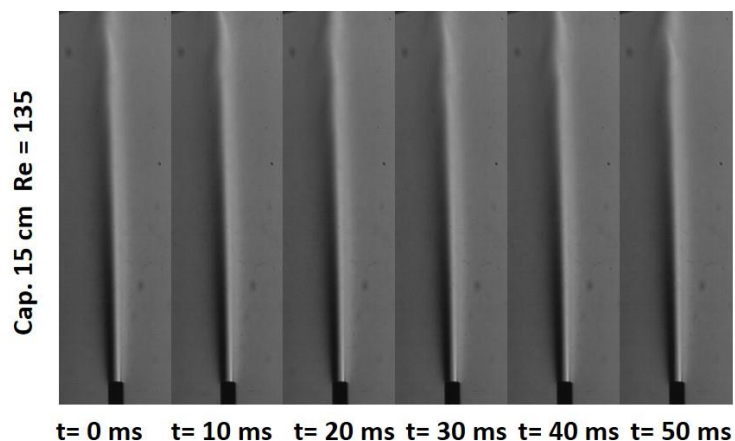


Figure III-13 : évolution de l'écoulement au cours du temps (Reynolds 135) à la sortie d'un capillaire de 15 cm.

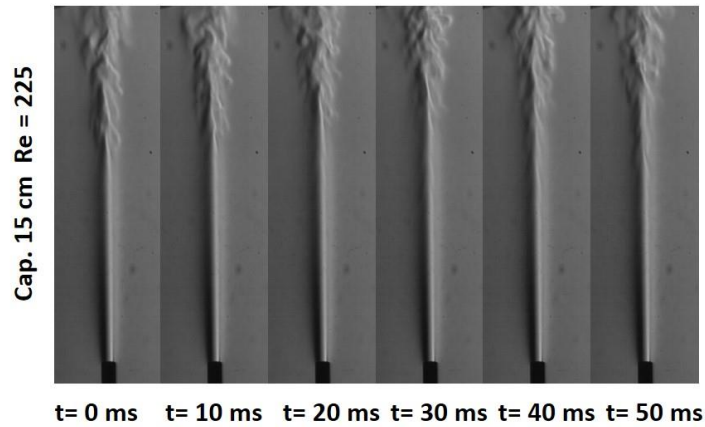


Figure III-14: évolution de l'écoulement au cours du temps (Reynolds 225) à la sortie d'un capillaire de 15 cm.

Nous avons ensuite procédé à une augmentation progressive du nombre de Reynolds pour un capillaire plus court, 10 cm de longueur, comme illustré sur la Figure III-15.

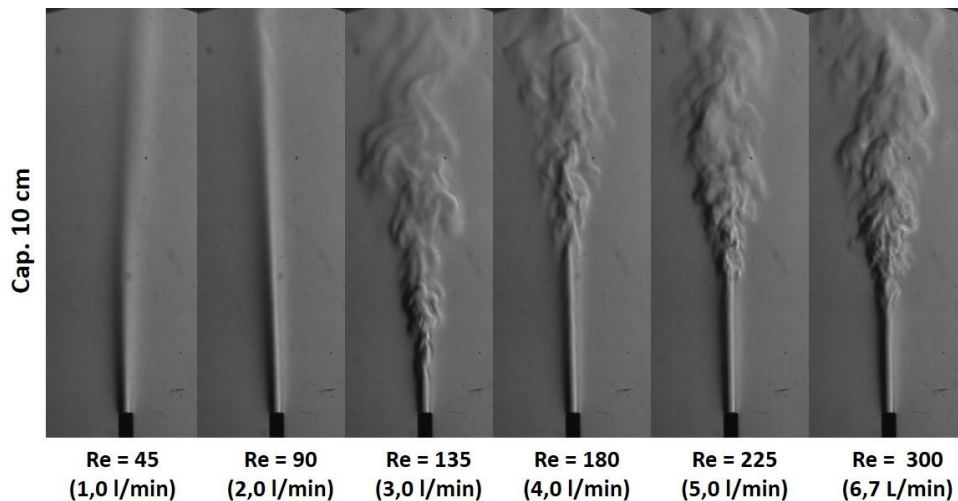


Figure III-15 : régimes d'écoulement pour différents Reynolds en sortie d'un capillaire de 10 cm de longueur

Aux Reynolds 45 et 90, les écoulements sont en régimes laminaire. A $Re=135$, l'abscisse de transition turbulente est localisée à seulement 2 cm de la sortie du capillaire. De manière surprenante, à $Re=180$, l'abscisse de transition recule à 7 cm de la sortie du capillaire. Pour des Reynolds plus élevés, l'abscisse de transition se rapproche ensuite graduellement de l'extrémité du capillaire (5,5 cm à $Re=225$ et 4 cm à $Re=300$). Ce comportement entre $Re=135$ et $Re=180$ n'est pas conforme à la description classique d'un écoulement pour lequel le nombre de Reynolds augmente avec une transition progressive vers la turbulence. Une partie du jet qui était turbulente à $Re=135$ se retrouve ici laminaire à $Re=180$.

Nous avons observé le comportement de l'écoulement à $Re=135$ au cours du temps, illustré sur la Figure III-16.

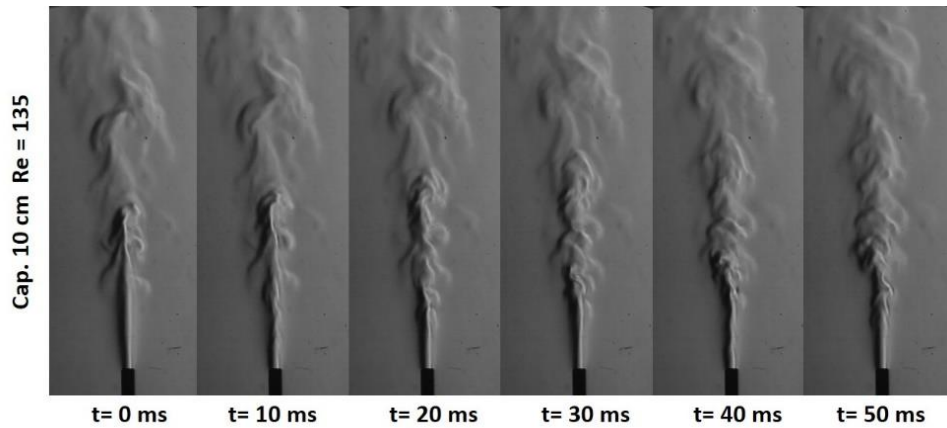


Figure III-16 : évolution de l'écoulement au cours du temps (Reynolds 135) à la sortie d'un capillaire de 10 cm.

Entre les différentes images, nous pouvons voir que l'abscisse de transition n'est pas stable ($t=0$ et 10 ms par exemple). La taille de la zone laminaire varie au cours du temps. Nous pouvons également voir que près de la sortie du capillaire, la forme de la zone laminaire n'est pas stable non plus ($t=10$ et 40 ms). Ceci marque une claire différence avec les régimes d'écoulement observés dans le cas du capillaire de 15 cm, lesquels étaient parfaitement stables. Nous avons pu déterminer que ce régime particulier de l'écoulement se produisait dans une certaine gamme de Reynolds, comprise entre 135 et 170 . Pour tous les autres Reynolds, nous retrouvons un comportement stable de l'écoulement, tel que décrit pour le capillaire de 15 cm. Pour qualifier ce comportement instable de l'écoulement, nous parlerons de régime intermittent.

Nous pouvons noter que pour les régimes établis avec une abscisse de transition stable, la turbulence est plus proche de l'extrémité du capillaire que dans le cas du capillaire de 15 cm. On peut même voir un panache de gaz turbulent à Reynolds 180 pour le capillaire de 10 cm, alors que le régime est laminaire pour le capillaire de 15 cm. Avec le tube de 10 cm, nous sommes 5 cm plus proche de la marche qu'avec celui de 15 cm. La vitesse moyenne de l'écoulement est attendue plus élevée, si l'on se rapproche de la marche. Cela explique que pour ces régimes d'écoulement établis, la transition vers l'état turbulent se produit pour un nombre de Reynolds plus faible pour le tube de 10 cm, comparé au tube de 15 cm.

La Figure III-17 illustre le comportement de l'écoulement pour les mêmes Reynolds en sortie d'un capillaire de 5 cm.

D'une manière générale, l'écoulement est très perturbé comparé au capillaire de 10 cm. A Reynolds 45 , nous pouvons distinguer une partie laminaire bien verticale du jet, ainsi qu'une partie que l'on voit inclinée, plus étalée radialement et dont on peut supposer qu'elle ne se trouve pas dans le même plan. A Reynolds 90 , le jet possède une fine zone laminaire réduite et transite rapidement en régime turbulent. On peut voir que le diamètre du jet en sortie de capillaire est nettement plus fin que le diamètre du capillaire. Aux Reynolds 135 et 180 , les jets sont turbulents dès la sortie du capillaire. Aux Reynolds 225 et 300 , on retrouve une zone laminaire de faible taille en sortie du capillaire et dont la largeur occupe tout le diamètre interne du capillaire.

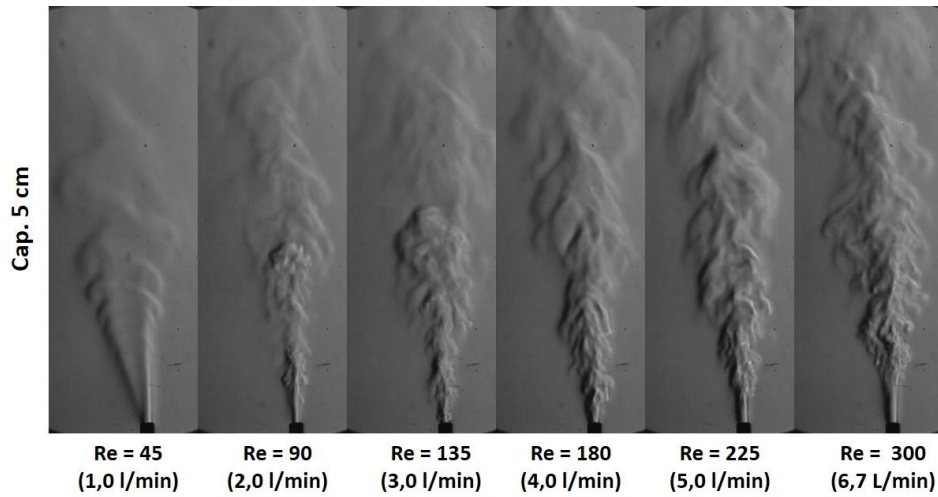


Figure III-17 : régimes d'écoulement pour différents Reynolds en sortie d'un capillaire de 5 cm de longueur

Dans ces deux derniers cas, les jets ont une abscisse de transition stable. Le cas à Reynolds 45 est également stable. La Figure III-18 montre en revanche l'évolution de l'écoulement à $Re=135$.

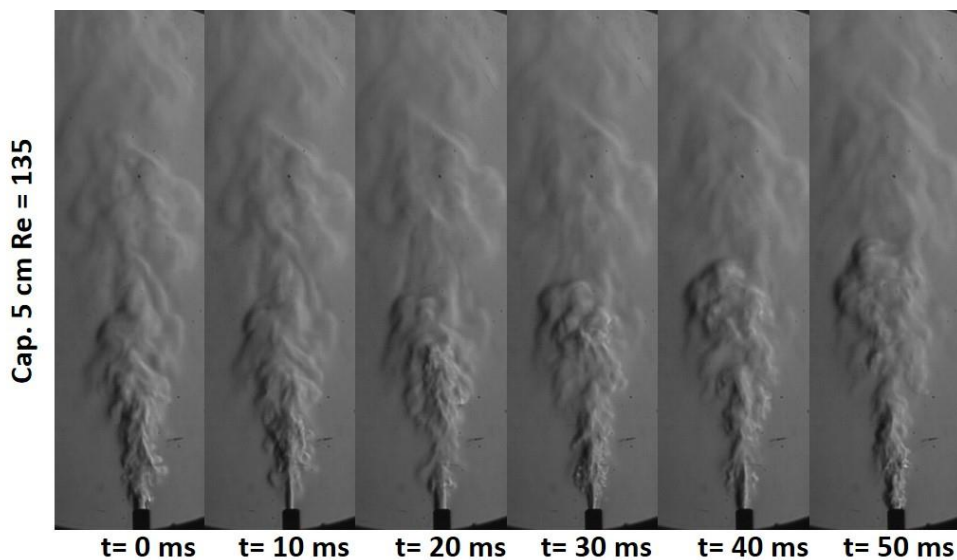


Figure III-18 : évolution de l'écoulement au cours du temps (Reynolds 135) à la sortie d'un capillaire de 5 cm.

Suivant l'instant considéré, le jet peut être totalement turbulent dès la sortie du capillaire, ou posséder une zone laminaire de faible extension. L'écoulement est en régime intermittent.

La Figure III-19 illustre le comportement de l'écoulement à $Re=90$. L'alternance des images montrent qu'une zone laminaire d'extension relativement importante apparaît de manière quasi périodique au cours du temps. L'instant de référence à $t=0$ ms illustre le moment où cette zone est à son extension maximale. 10 ms plus tard, le jet se déstructure à partir de la base du capillaire. La zone laminaire s'étend ensuite graduellement jusqu'à 30 ms. à 40 ms, le jet se déstructure à nouveau depuis la sortie du capillaire. La zone laminaire s'étend alors graduellement jusqu'à 70 ms, avant de se déstructurer à nouveau entre 70 et 80 ms.

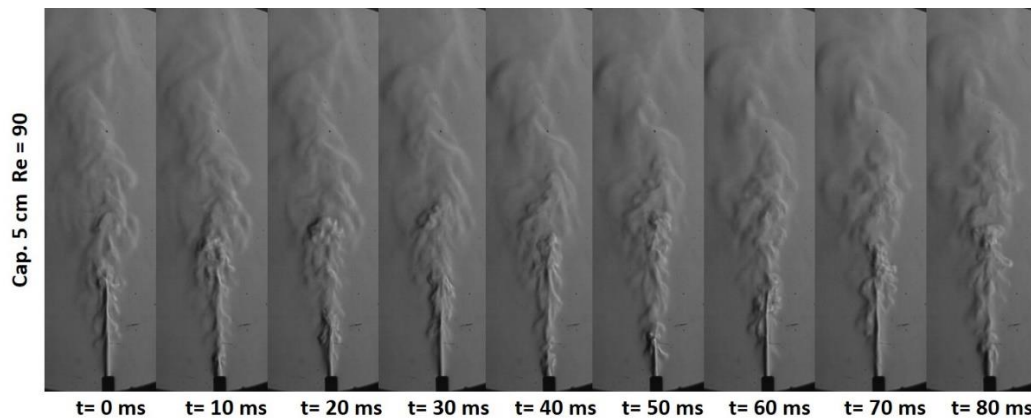


Figure III-19 : évolution de l'écoulement au cours du temps (Reynolds 90) à la sortie d'un capillaire de 5 cm.

Nous avons déterminé que pour un capillaire de 5 cm de longueur, le régime intermittent se produisait dans une gamme de Reynolds entre 90 et 210 environ.

3.3 Résumé des observations

Le Tableau III-2 indique les différents régimes d'écoulement observés pour plusieurs longueurs de capillaire en fonction des gammes de nombres de Reynolds :

Régime d'écoulement	laminaire	Intermittent	Turbulent avec abscisse de transition stable
Capillaire 15 cm	1 à 200	X	225
Capillaire 10 cm	1 à 120	135 à 170	180
Capillaire 7 cm	1 à 110	120 à 190	200
Capillaire 5 cm	1 à 45	90 à 210	225

Tableau III-2 : classement des régimes d'écoulement en fonction des nombres de Reynolds pour différentes longueurs de capillaire.

Pour un capillaire de 15 cm de longueur, l'écoulement transite naturellement d'un état laminaire vers un état de plus en plus turbulent, avec une abscisse de transition stable se rapprochant de l'extrémité du capillaire lorsque le nombre de Reynolds augmente (à travers l'augmentation du débit).

Pour un capillaire de 10 cm de longueur, entre le régime laminaire et le régime avec abscisse de transition turbulente, tous deux stables, existe un régime intermittent, où l'écoulement n'est pas stable et se déstructure de manière visible depuis l'extrémité du capillaire. Plus la longueur du capillaire diminue, plus la gamme de Reynolds dans laquelle se produit ce régime est importante. Pour un capillaire de 5 cm, il se produit dans une gamme de Reynolds assez étendue. Pour un capillaire de 10 cm, il se produit dans une gamme plus restreinte. Nous avons également pu déterminer une longueur de capillaire critique pour laquelle il n'est pas possible d'observer ce

régime intermittent. À partir d'un capillaire de 11,5 cm de longueur (et pour des capillaires de longueurs supérieures), ce régime n'est plus visible, quel que soit le nombre de Reynolds.

Pour des Reynolds suffisamment élevés, pour toutes nos longueurs de capillaire, nous retrouvons un régime classique de l'écoulement, avec abscisse de transition turbulente stable.

Nous avons également vérifié qu'en procédant à une variation de débit en raccordant directement le tuyau en téflon en sortie de débitmètre aux différents capillaires (donc sans la marche), le régime intermittent ne se produit jamais, quels que soient les débits ou les longueurs des capillaires. Nous pouvons également noter que ce régime se produit également quelle que soit l'orientation du capillaire (vers le haut, vers le bas ou horizontale).

D'après ces observations, nous pouvons conclure que la marche est à l'origine des perturbations observées sur l'écoulement. Plus le nombre de Reynolds augmente, plus la zone de perturbation due à la marche raccourcit. Pour les régimes d'écoulement établis, laminaire ou avec abscisse de transition turbulente stable, nous pouvons considérer que la marche ne perturbe pas l'écoulement.

Si cette zone de perturbation est plus petite que la longueur du capillaire, l'écoulement retrouvera un profil de vitesse parabolique classique avant la sortie du capillaire. Pour un capillaire de 15 cm de longueur, quel que soit le débit imposé, nous avons toujours observé un comportement classique de l'écoulement avec une abscisse de transition turbulente se rapprochant graduellement de l'extrémité du capillaire.

Si la taille de la zone de perturbation est comparable à celle du capillaire, alors l'écoulement en sortie de capillaire en est affecté. Dans le cas d'un capillaire de 10 cm, dans une certaine gamme de Reynolds, nous avons pu observer en sortie du capillaire un écoulement instable perturbé par ce qui est généré à la marche. De fait, plus le capillaire est court, plus le débit devra être augmenté pour que la taille de la zone de perturbation soit inférieure à la longueur du capillaire et que l'écoulement retrouve son profil de vitesse non perturbé en sortie.

Ce régime d'écoulement intermittent s'accompagne de plus d'un bruit caractéristique très facilement audible. Dans les régimes identifiés comme périodiques, un vrombissement périodique est nettement audible, dont la fréquence augmente avec le débit de gaz. Lorsqu'on augmente encore le débit, pour les régimes les plus violents ou le jet est turbulent dès la sortie du capillaire, un crachotement irrégulier très fort se fait entendre. Ces bruits importants sont le signe de fortes variations de pression engendrées par ce régime d'écoulement. Nous pouvons enfin noter que les transitions se font de manière extrêmement brutale, notamment pour le périodique, sur des variations de quelques Reynolds, c'est-à-dire des variations de débit de seulement quelques dizaines de ml/min. Dans le cas du tube de 5 cm, nous avons par exemple repéré que la transition entre les régimes laminaire et périodique s'effectuait exactement au passage entre le Reynolds 82 et 83 (soit une augmentation de débit de seulement 22 ml/min).

3.4 Quelles hypothèses sur l'écoulement choisir ?

Nous avons pu mettre en évidence des phénomènes très marqués dans les régimes d'écoulement propres à notre géométrie, en fonction du débit et de la longueur des capillaires. Nous allons maintenant comparer ces comportements avec ce qui peut être prédit dans un type d'écoulement, ou ce qui a été observé expérimentalement, dans la littérature, afin de trouver une hypothèse qui rende compte de manière satisfaisante des phénomènes que nous avons observés.

3.4.1 Écoulement en conduite avec une marche

Dans la mesure où nous avons mis en évidence le rôle fondamental de la marche sur le comportement de l'écoulement, celle-ci doit être considérée dans l'écoulement en conduite. Localement, la vitesse d'éjection du fluide est importante aux abords de la marche. Lorsque le jet impacte le bord du tube proche de la marche, une zone avec des très forts gradients de vitesse entre les différentes couches de fluide se développe, on parle de cisaillement en vitesse. Ce fort cisaillement entre les couches de fluide tend à créer une vitesse qui n'est plus seulement longitudinale (dans le sens de l'écoulement), mais également transversale. En effet, si on considère plusieurs couches de fluide stratifiées en vitesse superposées les unes aux autres, les couches de fluide de vitesses supérieures vont progressivement déferler sur les couches inférieures plus lentes, créant un mouvement de rotation. Ceci va induire des instabilités de type tourbillonnaire, on parle d'instabilités de Kelvin-Helmholtz. Au final, une région entière peut se développer où le fluide stagne globalement, on parle de zone (ou de bulle) de recirculation. La vitesse longitudinale de l'écoulement peut être positive (dans le sens du jet) ou négative, suivant la position radiale considérée.

La Figure III-20 illustre la formation de cette zone de recirculation au voisinage d'une marche.

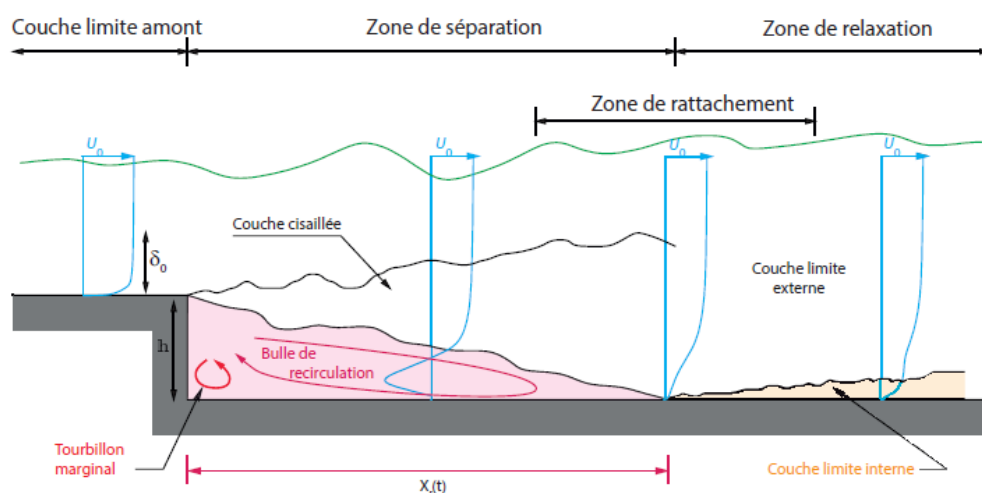


Figure III-20 : formation d'une zone de recirculation en aval d'une marche et évolution de l'écoulement (d'après [15])

Cette zone de recirculation s'étend sur une certaine longueur X_r . Au-delà de cette longueur, une couche limite « classique » se développe et l'écoulement évolue dans la conduite tel que décrit dans l'hypothèse de Hagen-poiseuille. On peut donc faire l'hypothèse que si l'écoulement débouche hors du capillaire sans être en régime établi, alors son comportement observé ne sera pas stable.

En se basant sur des études bibliographiques, Vanessa Sarron [16] a estimé en première approche, dans notre géométrie, la longueur totale à parcourir dans le capillaire, depuis la marche, pour que l'écoulement soit en régime établi. Cette distance correspond donc à la somme de X_r (taille de la zone de recirculation) et de la longueur d'établissement pour retrouver un régime établi dans le cas de l'écoulement en conduite (profil de vitesse parabolique).

Le Tableau III-3, issue de [16], donne une estimation de la taille de zone de recirculation et de la longueur totale d'établissement après la marche, pour que l'écoulement soit en régime établi, en fonction du débit d'hélium :

$Q_{vol}(l/min)$	$X_r (mm)$	$X_r + L_e (mm) = L_e \text{ tot}$
0,5	2	7
1	3	14
2	6	28
4	13	56
6	20	85
8	26	113

Tableau III-3 : taille de la zone de recirculation et longueur totale d'établissement pour différents débits (issue de [16])

Nous pouvons donc voir que plus le débit augmente, plus la longueur totale d'établissement augmente. Si l'on compare avec nos observations expérimentales, dans le cas du tube de 10 cm à un débit de 3 l/min, la marche perturbe l'écoulement alors que la longueur totale nécessaire, dans cette hypothèse se produirait pour un débit proche de 8 l/min. A contrario, dans les capillaires les plus courts aux débits les plus élevés, les régimes d'écoulement observés sont établis. Dans l'hypothèse formulée ici, plus le débit est élevé, plus la région où l'écoulement est perturbé est étendue. A un débit de 6 l/min par exemple, il faut 8,5 cm de propagation dans un capillaire pour que le régime d'écoulement soit établi. Dans nos observations, un comportement stable est observé dans le capillaire de 5 cm à un débit de 6,7 l/min.

Cette première approche ne rend donc pas compte de manière satisfaisante des comportements qui ont été observés en fonction des différents débits et longueurs de capillaire. Plutôt que de s'allonger, la zone de perturbation due à la marche semble raccourcir quand le débit augmente. Cette hypothèse est néanmoins intéressante, car elle introduit conceptuellement l'idée que la marche est génératrice d'instabilités hydrodynamiques.

3.4.2 Écoulement tournant en conduite

Si nous reprenons la géométrie d'injection de l'hélium du plasma gun (Figure III-6), nous pouvons voir que dans la zone du raccord entre le tuyau en téflon (dans lequel circule l'hélium) et la partie de l'électrode interne s'insérant dans le capillaire, se trouve une partie conique. Si l'on suppose une légère asymétrie du raccord entre le tuyau et l'électrode, lorsque l'hélium s'engouffre dans le cône, l'écoulement peut acquérir du moment angulaire et entrer en rotation. On peut considérer dès lors le cas d'un écoulement tournant en conduite.

Cette hypothèse nous permet d'introduire un autre type d'instabilité hydrodynamique, appelé éclatement tourbillonnaire. Nous ne chercherons pas à détailler les mécanismes sous-jacents à ce type d'instabilité, qui sont complexes et qui dépassent largement le propos de notre étude. Par des recherches bibliographiques, nous avons comparé les observations qui ont été faites sur le comportement de ce type d'écoulement avec nos propres observations expérimentales. Nous nous sommes appuyés notamment sur la revue de Lucca-Negro et O'Doherty [17].

Le phénomène d'éclatement tourbillonnaire a été beaucoup étudié au cours des cinquante dernières années pour des applications variées. D'abord mis en évidence dans un contexte aéronautique, il est aussi utilisé pour la stabilisation de flammes et l'optimisation de mélanges dans des systèmes de combustion [18] (cas d'écoulement en conduite). La première structure décrite par Harvey et al [19] est composée d'une bulle de recirculation axisymétrique, proche de la sortie du jet, qui éclate ensuite en aval pour prendre une forme de spirale symétrique par rapport à l'axe de la conduite. (Figure III-21).

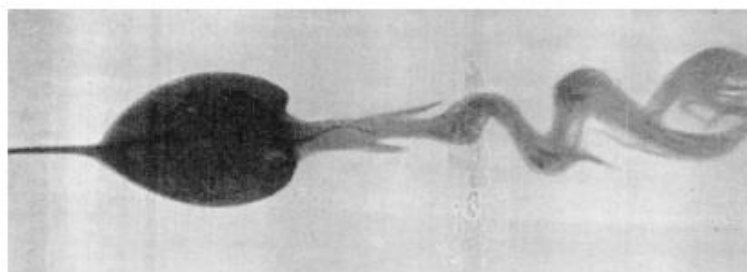


Figure III-21 : éclatement tourbillonnaire présentant une bulle de recirculation axisymétrique et une queue en spirale (issue de [20])

Faler et Leibovitch [21] ont répertorié par la suite un total de six formes distinctes que peut prendre l'éclatement tourbillonnaire, dont les transitions sont principalement gouvernées par le nombre de Reynolds, calculé en fonction du diamètre de la conduite. Certaines formes sont en hélice ou double hélice, d'autres permettent le développement d'une zone de recirculation à grande échelle, en forme de colonne, dans toute la conduite. Des transformations périodiques entre formes, avec brusque variation du diamètre du jet, peuvent également se produire.

Les observations détaillées des comportements fluides que nous avons observées et les comparaisons avec des observations expérimentales ainsi que numériques dans la littérature de l'éclatement tourbillonnaire, sont détaillées en annexe A.

En résumé, la formation d'une zone de recirculation à grande échelle, les mouvements périodiques, les formes observées et l'évolution des régimes en fonction du nombre de Reynolds (gamme similaires aux faibles nombres de Reynolds, brusques transitions entre régimes observées, disparition des phénomènes à grande échelle à Reynolds plus élevés) sont des descriptions cohérentes avec les comportements que nous avons pu mettre en évidence. Nous pouvons noter que ces phénomènes, malgré beaucoup d'études expérimentales, numériques et théoriques, ne sont pas encore complètement compris. La géométrie des conduites utilisées influe notablement sur le comportement de l'écoulement. Contrairement à ce qui a été lu dans la littérature sur les écoulements tournants, nous n'avons pas de système particulier pour faire entrer l'écoulement en rotation (injection tangentielle de fluide, système de vannes orienté) et nous ne pouvons donc pas contrôler la rotation de l'écoulement. Toutefois, la formation d'un tourbillon de cœur rotationnel étroit par rapport au diamètre de la conduite, but visé à travers les dispositifs précédents pour faire apparaître ce type d'instabilité, doit dans notre cas s'opérer naturellement lors du rétrécissement conique au diamètre 0,8 mm de l'électrode interne.

4. Transitions entre régimes d'écoulement par plasma

Dans la partie précédente, nous avons pu caractériser des comportements fluides complexes propres à notre géométrie. Nous allons maintenant étudier les effets du plasma sur l'écoulement. Dans un premier temps, nous allons montrer que le plasma, sans que celui-ci ne sorte du capillaire, peut provoquer des transitions entre régimes d'écoulement impactant drastiquement l'évolution du jet en sortie de capillaire. Puis, dans des conditions où la plume plasma se développe hors du capillaire, nous étudierons l'évolution de l'écoulement au cours du temps, après activation du plasma.

4.1 Plasma confiné dans le capillaire

Nous nous sommes placés dans le régime d'écoulement intermittent avec un capillaire de 10 cm de longueur, pour un Reynolds de 135 (conditions de la Figure III-16). Nous avons ensuite initié notre plasma à 4,5 kV, tension légèrement supérieure à la tension de claquage. Le plasma ne se propage ainsi que sur quelques centimètres à l'intérieur du capillaire. Dans ces conditions, nous n'avons donc pas de plume plasma.

La Figure III-22 montre le comportement du jet dans ces conditions.

L'écoulement est en régime établi laminaire. Ceci contraste fortement avec le comportement observé dans les mêmes conditions sans plasma, où l'écoulement n'est pas stable (Figure III-16). Dans ces conditions, le plasma modifie localement l'écoulement proche de la marche. La perturbation induite suffit à faire transiter l'écoulement vers un régime établi. Il est intéressant de noter que le plasma possède donc l'avantage de pouvoir générer des perturbations locales et ce

sans ajout de systèmes mécaniques particuliers ou de modification géométrique de la conduite (goulet d'étranglement).

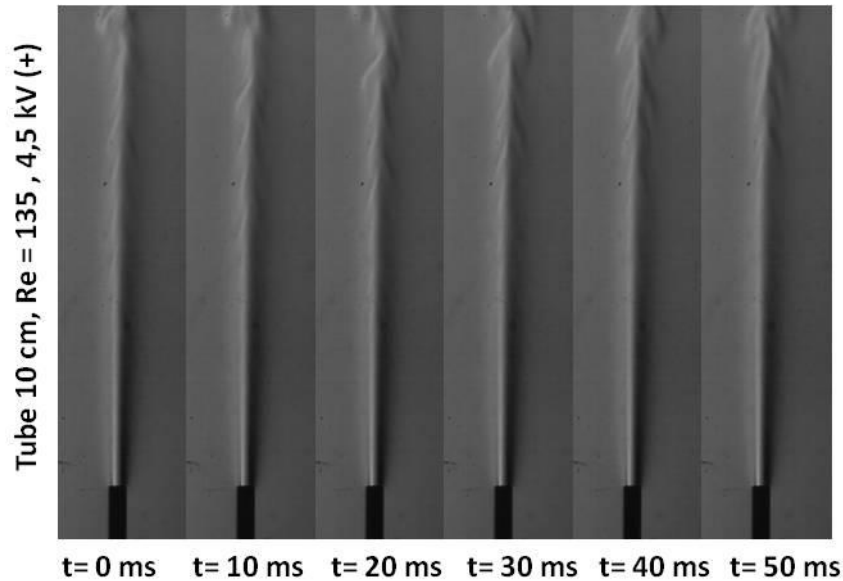


Figure III-22 : évolution de l'écoulement au cours du temps, avec plasma, à la sortie d'un capillaire de 10 cm (Reynolds 135). Le plasma ne se propage que sur les premiers centimètres du capillaire (4,5 kV en polarité positive).

En annexe A est illustrée une grande variété de formes d'éclatement tourbillonnaires sur lesquelles nous pouvons directement influencer par le plasma, en jouant sur nos paramètres de décharge. Le lien avec l'éclatement tourbillonnaire nous a notamment permis d'interpréter beaucoup plus en détail des observations que nous avons publiées dans [22], [23].

4.2 Conclusion partielle

Notre étude fluide en partie 3 nous a permis de mettre en évidence un type particulier d'instabilité hydrodynamique, propre à notre géométrie d'injection du gaz. Sans plume plasma, lorsque le plasma reste confiné dans le capillaire proche de l'électrode interne, des transitions entre régimes d'écoulement sont provoquées, impactant fortement sur l'évolution du jet en sortie de capillaire.

Ce phénomène n'a pour l'instant jamais été mis en évidence dans d'autres jets de plasma froid à pression atmosphérique. Cependant, étant donné le nombre très élevé de géométries différentes utilisées pour l'injection du gaz dans les jets de plasma (chapitre I, section 3.2), le comportement de l'écoulement dans une géométrie donnée doit être étudié pour pondérer au mieux les effets plasmas des effets fluides dans les transitions entre régimes, a fortiori pour des débits de plusieurs l/min dans des capillaires courts, de sorties proches du système d'injection. Si l'on reprend par exemple l'étude de Jiang et al [9], il est possible que pour les trois configurations de décharges utilisées, les différences qu'ils ont observées sur le comportement du fluide soient dues à des différences dans des perturbations initiées au sein même du capillaire par le plasma.

4.3 Plasma hors du capillaire (plume plasma)

En travaillant à une tension appliquée plus élevée, le plasma se propage dans l'intégralité du capillaire et une plume plasma s'étend hors de celui-ci. La Figure III-23 illustre l'effet du plasma pour deux longueurs de capillaire (5 cm et 15 cm) à deux débits différents (2 l/min et 5 l/min). Le plasma est appliqué à une tension de 14 kV en polarité positive, à une fréquence de 2 kHz.

Dans le capillaire le plus court (5 cm, cas (a)), à 2 l/min, le plasma fait transiter l'écoulement du régime intermittent vers un régime établi avec une abscisse de transition turbulente fixe, localisée proche de la sortie du capillaire. Pour la même longueur de capillaire, à un débit de 5 l/min, sans plasma, la totalité du jet est en régime turbulent. Avec la plume plasma, le jet présente également une abscisse de transition turbulente stable. Le plasma induit ici une action stabilisatrice sur le comportement du jet.

Pour le capillaire de 15 cm, le régime d'écoulement est laminaire à 2 l/min. La plume plasma a pour effet de détruire une partie du jet que l'on voyait initialement laminaire. A contrario, à plus fort débit, la plume plasma repousse l'abscisse de transition turbulente et l'on peut visualiser un jet en régime laminaire. Pour cette longueur de capillaire, il n'y a pas de perturbation due à la marche en sortie de capillaire. Le comportement observé est un donc ici indépendant des modifications d'écoulement pouvant se produire à l'électrode interne.

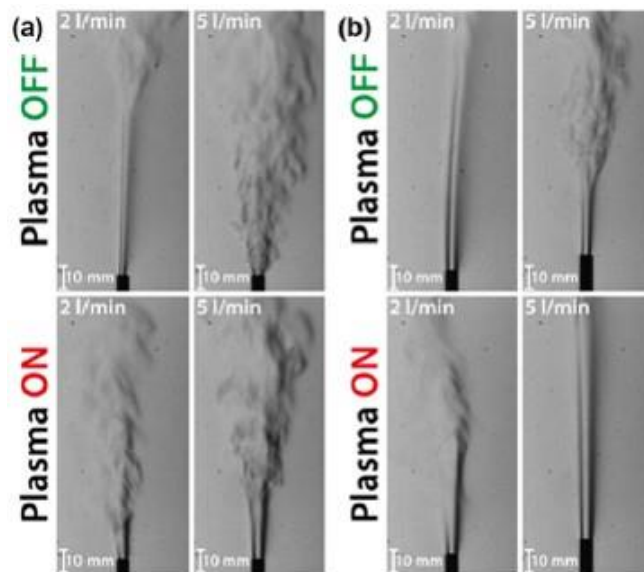


Figure III-23 : transitions entre régimes d'écoulement provoquées par plasma pour deux débits d'hélium et deux longueurs de capillaire ((a) : 5 cm, (b) : 15 cm) (publié dans [24])

Pour un régime initialement fortement turbulent, la Figure III-24 illustre la stabilisation de l'écoulement au cours du temps, lorsque le plasma est activé.

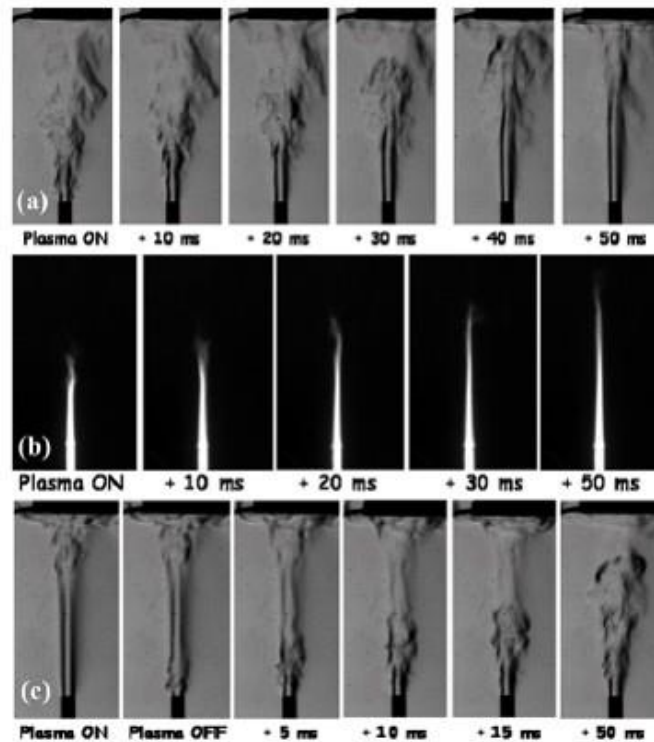


Figure III-24 : évolution de l'écoulement pour les 50 premières ms après activation du plasma (a) et évolution de la plume plasma ICCD (5 ms d'intégration) dans le même temps (b). : évolution de l'écoulement pour les 50 premières ms après extinction du plasma (c). (publié dans [24])

Sous l'action du plasma, le jet se structure graduellement, la zone laminaire s'étendant progressivement sur une échelle de temps ms (a). 50 ms après l'activation du plasma, une grande partie du jet est en régime laminaire établi. Nous pouvons suivre dans le même temps par imagerie ICCD (intégrée 5 ms) la plume plasma, qui s'étend également progressivement de manière synchrone (b). Aux temps les plus longs, tant que le plasma est activé, le jet est stable, tel que sur la première image du cas (c). Dès que le plasma est coupé, le jet se déstructure immédiatement et de la turbulence apparaît de nouveau.

Le plasma a donc un effet stabilisateur sur l'écoulement. Cette structuration progressive d'un canal d'hélium laminaire de grande taille et sa stabilisation met donc en lumière un échange de force entre le fluide et le plasma, dont la dynamique d'évolution est visible à l'échelle de temps milliseconde. On peut noter qu'une cible métallique reliée à la masse a été placée à 9 cm de l'extrémité du capillaire. L'influence de cette cible sur la canalisation sera détaillée en partie 5.

5. Construction d'un canal d'hélium par plasma

Lorsque la plume plasma s'étend à l'extérieur du capillaire, nous avons mis en évidence une structuration graduelle d'un canal d'hélium, sur de grandes distances, à l'échelle de temps milliseconde. Nous allons maintenant étudier ce phénomène plus en détail.

5.1 Choix des conditions expérimentales

Dans la partie précédente, nous avons pu caractériser le comportement de l'écoulement en fonction du débit d'hélium et de la longueur du capillaire et mis en évidence des phénomènes complexes. Pour détailler au mieux le mécanisme de canalisation par plasma, nous avons travaillé avec des conditions d'écoulement les plus simples possibles, c'est-à-dire non turbulentes et où toute perturbation due à la marche est absente. Nous avons choisi d'effectuer notre étude à un débit de 0,5 l/min avec un capillaire de 10 cm de longueur, orienté vers le bas. Ce choix est donc motivé d'une part par la simplicité du régime d'écoulement (laminaire sans aucune perturbation) mais également par le fait que ces conditions d'études sont pertinentes d'un point de vue applicatif, puisque ce sont des conditions typiques utilisées lors de traitements biomédicaux.

Dans ces conditions d'écoulement parfaitement connues et fixées, nous allons donc observer l'influence de la variation de plusieurs paramètres de décharge.

5.2 Influence d'une cible métallique reliée à la masse située à distance du jet

La Figure III-25 montre l'influence de la présence de la cible sur la distance que peut parcourir l'hélium avant de remonter par flottabilité. Nous nommerons par « longueur du jet » cette distance. Nous appliquons ici une tension de 10 kV en polarité négative, à une fréquence de 2 kHz.

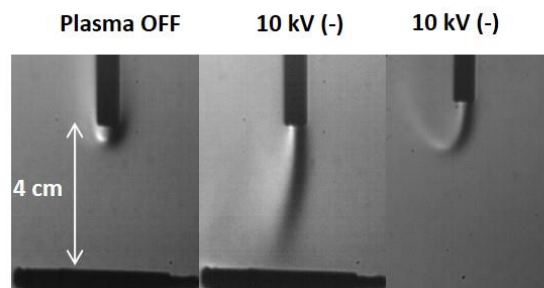


Figure III-25 : influence sur la longueur du jet d'une cible métallique à la masse, à 4 cm de l'extrémité du capillaire (10 kV, polarité négative)

A un débit de 0,5 l/min, le jet ne peut s'étendre que 4 mm au-delà de la sortie du capillaire, la force de flottabilité s'opposant toujours à l'écoulement lorsque le capillaire est orienté vers le bas. Lorsque le plasma est allumé, le jet est affecté de manière radicalement différente suivant la présence ou l'absence d'une cible métallique reliée à la masse en face du jet. En effet, lorsque la cible est située à 4 cm de l'extrémité du capillaire, l'hélium atteint la cible. Si celle-ci est retirée, la longueur du jet se réduit dans ses conditions à seulement 1,5 cm. Celle-ci est donc radicalement différente dans les deux cas. Cette observation de l'influence à distance d'un corps conducteur sur la longueur du jet met directement en évidence les effets d'une force qui ne peut être a priori que de nature électrique.

5.3 Effet de la polarité de l'impulsion tension

La Figure III-26 montre l'influence de la polarité de l'impulsion de tension sur la longueur du jet d'hélium. La cible métallique reliée à la masse reste positionnée à 4 cm de l'extrémité du capillaire. La tension appliquée est fixée à 10 kV et la fréquence de répétition à 2 kHz.

En fonction de la polarité de l'impulsion de tension, le jet est affecté de manière radicalement différente. Nous avons déjà décrit que pour la polarité négative, le jet d'hélium s'étend jusqu'à la cible située 4 cm plus bas. Cependant, en polarité positive, nous pouvons voir que la longueur du jet n'est que de 1 cm seulement. La forme incurvée du jet montre que la force de flottabilité devient dans ce cas rapidement dominante. Dans le cas négatif en revanche, la force de poussée est supérieure à la force de flottabilité sur une distance d'au moins 4 cm, puisque l'hélium atteint la cible.

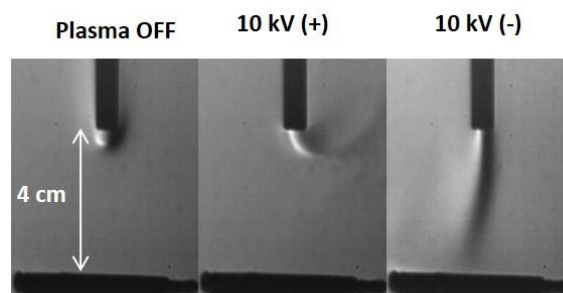


Figure III-26 : influence sur la longueur du jet de la polarité de la tension appliquée (10 kV), pour une cible métallique à la masse située à 4 cm de l'extrémité du capillaire

Nous pouvons également noter que le jet s'étend également plus loin en polarité négative sans cible (1,5 cm) qu'en polarité positive avec une cible (1 cm), signe que la poussée est bien plus efficace dans le cas de la polarité négative. La différence qu'entraîne la polarité de l'impulsion sur les modifications d'écoulement permet également de confirmer l'aspect électrique du phénomène.

5.4 Variation de la distance à la cible

La Figure III-27 montre l'influence de la polarité mais pour une cible plus proche de l'extrémité du capillaire (2 cm) qu'en Figure III-26. La tension appliquée est toujours de 10 kV et la fréquence de 2 kHz, pour les deux polarités.

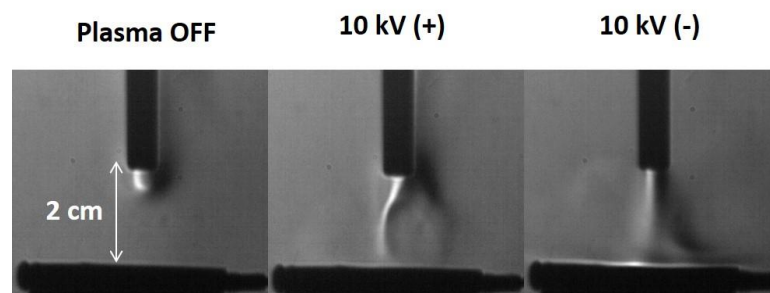


Figure III-27 : influence sur la canalisation du jet de la polarité de la tension appliquée (10 kV), pour une cible métallique à la masse située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

Nous pouvons donc voir qu'en comparaison de la Figure III-26 avec la cible à 4 cm, la distance à la cible influe également sur la longueur du jet, puisqu'en polarité positive, le jet est de longueur deux fois supérieure (2 cm) et atteint la cible. Un canal d'hélium entre le capillaire et la cible, de forme sinueuse, est alors visible. Dans le cas de la polarité négative, la longueur du jet était déjà suffisante pour atteindre la cible lorsque celle-ci était située à 4 cm de l'extrémité du capillaire. On peut cependant ici observer un canal d'hélium droit et plus large que son homologue en positif. On observe également qu'une couche d'hélium est étalée uniformément sur la cible, ce qui n'est pas le cas en polarité positive.

5.5 Dynamique de construction du canal

Toutes les images illustrées dans la section 5.4 sont des instantanés. Nous allons maintenant étudier la manière dont les canaux d'hélium se construisent et évoluent au cours du temps, grâce à l'imagerie haute cadence. Nous avons choisi de travailler dans des conditions où la canalisation est favorable, avec la cible métallique reliée à la masse située à 2 cm de l'extrémité du capillaire. L'abipulse est programmé sur un cycle ON/OFF, où le plasma est activé durant 500 ms et coupé durant 1 s.

Par commodité, nous parlerons abusivement de « jet positif » pour décrire l'évolution du jet d'hélium lorsqu'une tension de polarité positive est appliquée. De même nous parlerons de « jet négatif » pour une tension de polarité négative.

5.5.1 Influence de la tension appliquée

La Figure III-28 illustre la construction du canal d'hélium au cours du temps pour une tension appliquée de 10 kV, à une fréquence de 2 kHz, dans le cas des polarités positive et négative.

Dans le cas négatif, le jet se propage progressivement vers la cible et l'a quasiment atteinte en 50 ms. Le jet se développe de manière stable, on distingue en aval de celui-ci un front courbé, à l'interface entre l'hélium et l'air. Ce front est bien défini et se développe dès les premières millisecondes jusqu'au contact avec la cible. Aux temps supérieurs, un canal d'hélium est établi entre l'extrémité du capillaire et la cible, tandis que l'hélium s'étale progressivement sur celle-ci. Le jet est alors parfaitement stabilisé, comme nous pouvons le voir aux instants 245 ms et 375 ms. On peut toutefois noter la présence d'un panache de gaz de forme plutôt conique à la base du jet.

Dans le cas positif, la dynamique du jet est radicalement différente. A 25 ms, le jet positif est en recul par rapport au jet négatif. On peut remarquer la formation d'un front courbé, mais qui éclate rapidement (50 ms). Dans le même temps, le jet négatif a déjà quasiment atteint la cible. Le panache de gaz atteint la cible en 80 ms et évolue ensuite de manière très désordonnée. On peut noter, pour les temps plus longs, la formation d'un canal de gaz qui évolue de façon très erratique (245 ms et 375 ms). Le jet positif se développe donc de manière très désordonnée et n'est jamais stabilisé,

contrairement au jet négatif. Comme nous l'avons également indiqué, l'hélium ne s'étale pas sur la cible dans le cas positif.

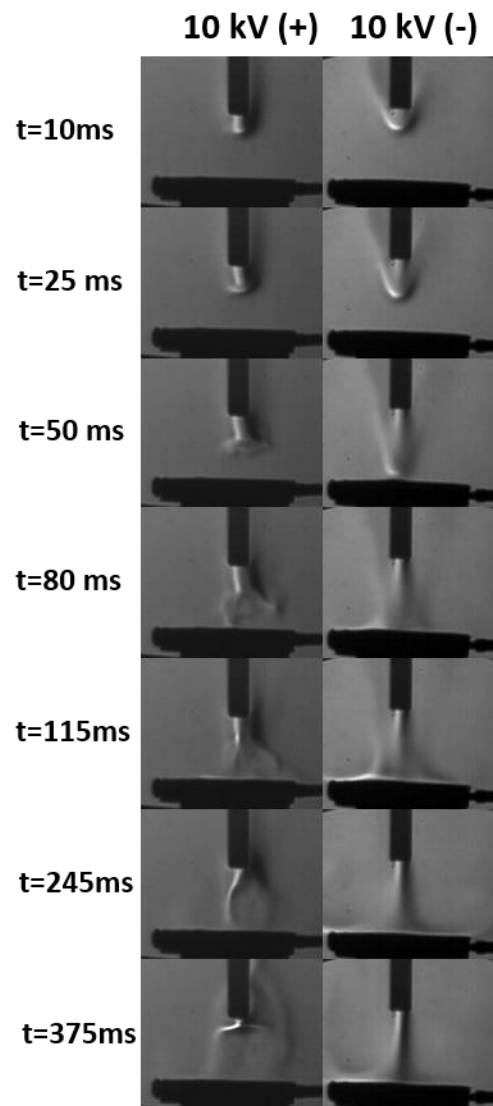


Figure III-28 : construction et évolution du canal d'hélium à une tension appliquée de 10 kV (fréquence 2 kHz) pour les polarités positive et négative. La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

La Figure III-29 illustre le développement des jets positif et négatif dans les mêmes conditions à une tension appliquée de 14 kV.

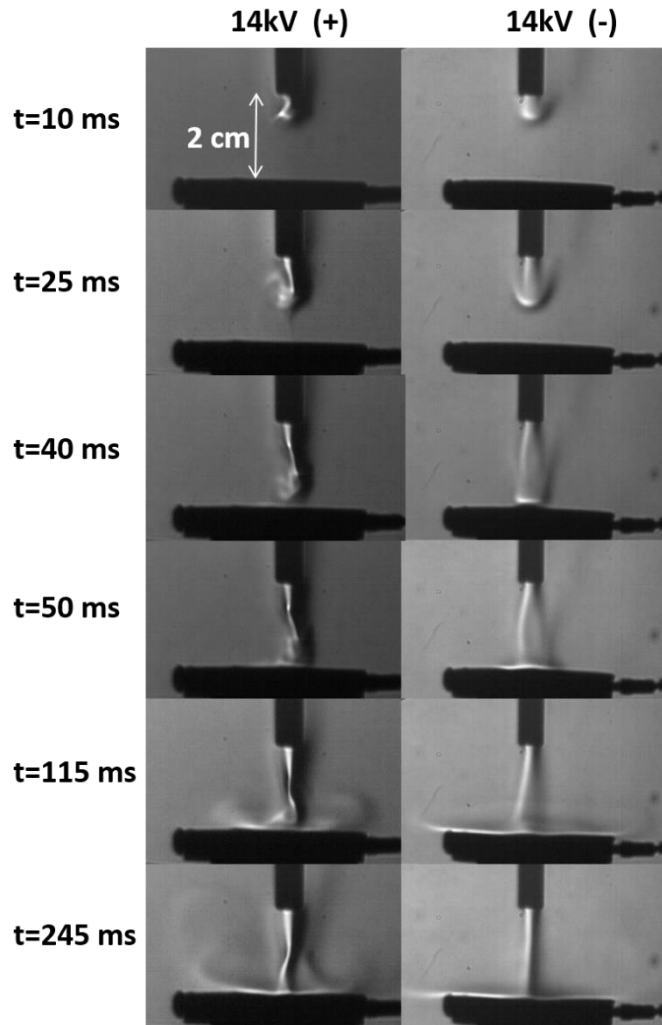


Figure III-29 : construction et évolution du canal d'hélium à une tension appliquée de 14kV (fréquence 2 kHz) pour les polarités positive et négative. La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

Nous pouvons voir dans ce cas que les jets positif et négatif atteignent la cible quasiment au même instant (40 ms). Cependant, la différence de développement est encore très marquée suivant la polarité. Le front du jet négatif est toujours stable et bien définie. Le front du jet positif est quant à lui éclaté et évolue de manière plus désordonnée. On peut noter également une différence de structuration entre les deux jets dès les 10 premières millisecondes, ce qui n'est pas le cas à une tension appliquée de 10 kV (Figure III-28). Aux temps supérieurs, dans le cas du jet négatif, l'hélium s'étale progressivement sur toute la surface de la cible avec un canal rectiligne extrêmement propre. Le jet est alors parfaitement stable, tant que le plasma reste activé. Pour le jet positif, nous pouvons également voir un canal d'hélium, cependant de forme assez sinueuse. De plus, l'hélium ne s'étale pas sur toute la surface de la cible. Contrairement au jet négatif, le jet positif n'est pas parfaitement stable, on peut toujours voir une légère ondulation de la partie sinueuse du jet tant que le plasma est activé.

La Figure III-30 montre dans les mêmes conditions l'évolution du canal d'hélium lorsque le plasma est coupé, pour les deux polarités.

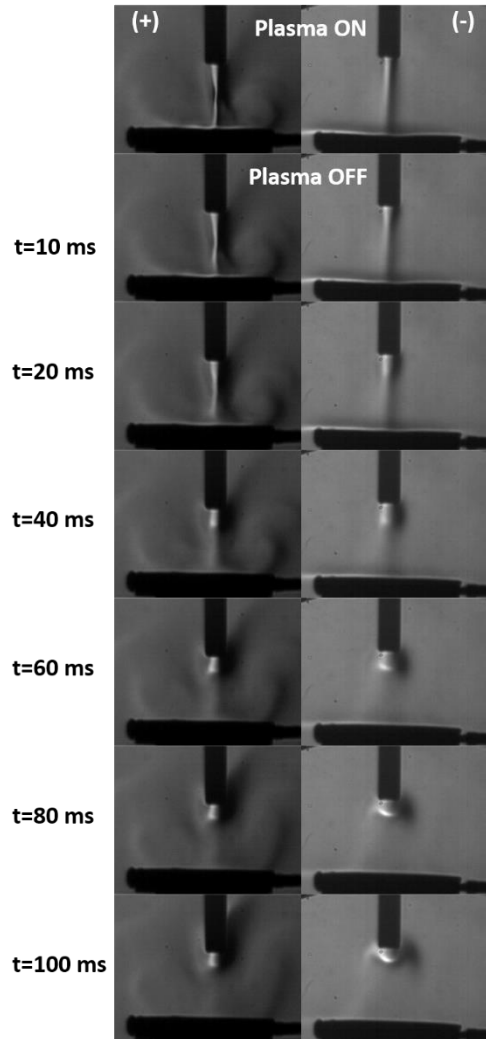


Figure III-30 : destruction progressive du canal d'hélium après extinction du plasma (plasma ON : 14 kV ,2 kHz), pour les polarités positive et négative. La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

La première image est prise à la fin du cycle ON du plasma (500 ms). Nous pouvons voir d'ailleurs que le jet négatif est exactement de la même forme qu'au temps 245 ms sur la Figure III-29. Lorsque le plasma est coupé, les canaux d'hélium se déstructurent progressivement.

5.5.2 Influence de la fréquence de répétition

Pour toutes les observations précédentes, nous avons toujours travaillé à une fréquence de répétition de l'impulsion de tension de 2 kHz. Pour montrer l'influence de la fréquence sur l'évolution du canal, nous avons choisi de travailler dans de bonnes conditions de canalisation, à 14 kV en polarité négative. La cible est toujours située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

La Figure III-31 illustre la construction du canal d'hélium en fonction du nombre d'impulsions pour trois fréquences différentes, 1000 Hz, 500 Hz et 250 Hz. Pour chacune des trois vidéos rapides,

l'enregistrement est cadencé à la même fréquence que celle de la décharge, respectivement 1000 images/s, 500 images/s et 250 images/s.

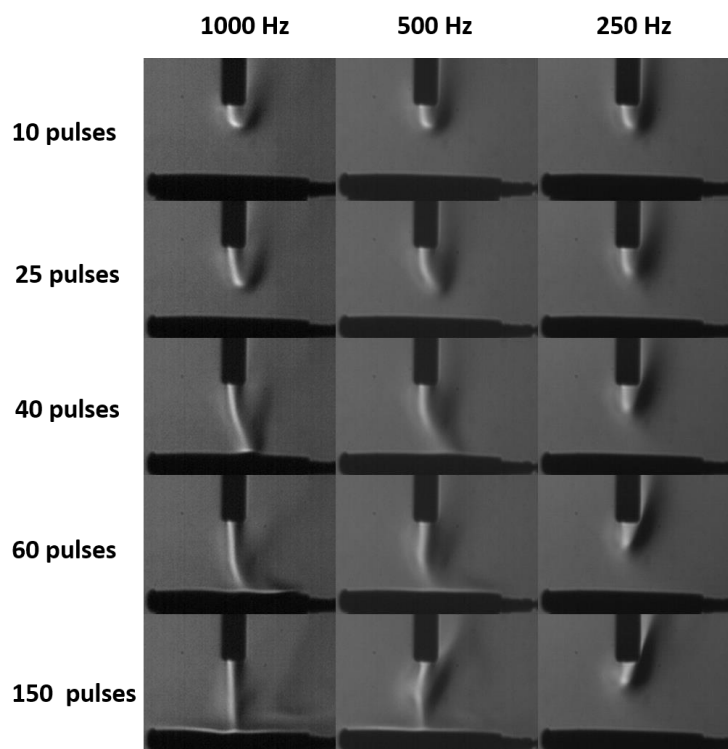


Figure III-31 : influence de la fréquence de répétition de l'impulsion de tension sur la construction du canal d'hélium (14 kV, polarité négative). La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

À 1000 Hz, il faut 40 impulsions pour atteindre la cible, soit 40 ms. A 500 Hz, il faut également 40 impulsions pour atteindre la cible, soit deux fois plus de temps, 80 ms. A 250 Hz, le jet n'évolue pas, quel que soit le nombre d'impulsions. En d'autres termes, si le temps entre deux impulsions est trop important, la poussée est inefficace. D'après cette observation, une canalisation efficace sera possible si ce temps est au plus de 1 ms. Nous pouvons effectivement voir qu'à 1000 Hz, nous obtenons en 150 impulsions un canal parfaitement propre. Pour 2 ms entre chaque impulsion (500 Hz), bien que l'hélium soit poussé jusqu'à la cible, le canal n'est pas parfaitement structuré et n'est pas stable pour le même nombre d'impulsion. Et finalement pour 4 ms entre chaque impulsion (250 Hz), le jet est essentiellement statique.

Si nous reprenons la Figure III-29, pour laquelle la fréquence était de 2 kHz, nous pouvons voir que le jet met également 40 ms pour atteindre la cible. Cette comparaison est importante car elle montre que si l'on applique deux fois plus d'impulsions pour une même durée (2 impulsions par ms à 2 kHz), le jet ne progresse pas deux fois plus vite. Nous avons effectué la même observation à 4 kHz (4 impulsions par ms), et constaté également un temps de 40 ms pour atteindre la cible.

Comme vu au second chapitre (section 1.2), nous travaillons avec des impulsions de tension de durée μ s. En considérant que le temps de l'impulsion est de 10 μ s pour simplifier le calcul (estimation large) et que le canal se construit à l'échelle de temps de la ms, cela signifie que la force électrique n'existe que de manière extrêmement transitoire, sur au plus 0,1 % du temps. Les espèces

chargées accélérées doivent donc transmettre leur quantité de mouvement par collision sur les neutres, dont l'inertie perdure mécaniquement bien après la fin de l'impulsion de tension. Cette inertie s'oppose continuellement à la flottabilité et doit être plus forte que celle-ci, afin que le jet puisse s'étendre. La flottabilité est vaincue efficacement si le temps entre deux impulsions, approximativement de 10 μ s chacune, est au plus de 1 ms. Avec 4 ms entre chaque impulsion, l'effet d'une impulsion est totalement dissipé sous l'effet de la force de la flottabilité, avant l'arrivée de la suivante. Nous pouvons d'ailleurs comparer les inclinaisons des jets, à 2000 Hz, 1000 Hz et 500 Hz. A 2000 Hz (Figure III-29), le jet arrive bien droit sur la cible. A 1000 Hz, le jet est légèrement incliné. A 500 Hz, cette inclinaison est encore plus prononcée. Cette déformation est donc due au fait que la flottabilité est de moins en moins bien contrée, au fur et à mesure que le temps entre deux impulsions augmente.

Bien que les canaux d'hélium soit moins propres dans le cas de la polarité positive, nous avons également constaté les mêmes comportements vis-à-vis de la poussée de l'hélium pour les trois différentes fréquences.

5.5.3 Hypothèses sur le mécanisme de canalisation

La poussée de l'hélium sur la cible et la structuration d'un canal de gaz résulte d'un effet cumulatif d'impulsions de tension, d'amplitudes suffisantes, répétées sur un temps suffisamment court. L'amplitude de la tension joue sur la vitesse de progression du jet vers la cible, mais pas la fréquence de répétition lorsque celle-ci est augmentée au-delà de la valeur seuil pour canaliser. Nous avons mis en évidence que la force motrice est de nature purement électrique, très sensible à la présence d'une cible métallique reliée à la masse et à la polarité de l'impulsion de tension. La nature de la cible est également un paramètre influant (cible flottante ou diélectrique), ce qui sera détaillé en section 5.5.5.

De la même manière que pour les actuateurs plasma, nous sommes en présence d'un vent ionique. Un champ électrique accélère des ions, lesquels transfèrent leur quantité de mouvement aux neutres par collision. L'inertie résultante des neutres, contrant la flottabilité, permet alors la progression du jet d'hélium vers la cible. Lorsque le canal est construit, l'hélium s'écoule alors naturellement à l'intérieur (débit de 0,5 l/min). La force de flottabilité ne s'oppose donc plus ni à l'inertie de l'écoulement, ni à l'inertie communiquée aux neutres, après transfert de quantité de mouvement des ions. Ce raisonnement sera détaillé dans la section suivante.

Pour que les ions transfèrent efficacement leur impulsion aux neutres de l'hélium, ils doivent donc d'une part être accélérés suffisamment longtemps et d'autre part vivre un temps assez long. Le champ développé en tête de front d'ionisation existe sur des échelles de temps très courtes, de l'ordre de la nanoseconde, mais la colonne plasma conductrice derrière le front assure la connexion à l'électrode interne et un apport de champ sur une échelle de temps μ s et répété à l'échelle de temps ms. Nous reviendrons plus en détail sur l'étude du champ électrique du front d'ionisation et de la colonne plasma dans le chapitre IV.

L'amplitude du champ électrique joue directement sur l'accélération des ions, plus celle-ci est élevée, plus les ions vont être accélérés. De même, l'accélération est aussi dépendante de la distribution des lignes du champ électrique, sur laquelle la cible métallique reliée à la masse influe directement, par sa présence, ou sa distance par rapport à l'extrémité du capillaire.

La polarité joue quant à elle sur les ions qui vont participer à la canalisation. Par force électrostatique, on peut supposer qu'en polarité positive les ions positifs sont accélérés dans le sens de l'écoulement, favorable à la canalisation. De même pour les ions négatifs dans la polarité négative. Dans la mesure où nous avons mis en évidence que la canalisation est meilleure en polarité négative, nous pouvons supposer que les ions négatifs participent de manière beaucoup plus efficace à la canalisation.

La Figure III-32 montre la lumière visible de la plume plasma dans les conditions de la Figure III-29. La lumière est intégrée par ICCD sur un temps de 1 ms, 50 ms après l'activation du plasma.

Dans le cas positif, nous pouvons voir une plume sinueuse, de forme assez similaire au canal d'hélium vu par strioscopie. En revanche, dans le cas négatif, la plume est extrêmement réduite et s'étend à peine plus loin que la sortie du capillaire. Il n'y a donc dans ce cas pas de corrélation entre la lumière de la plume, la forme du canal d'hélium et son étalement sur la cible.

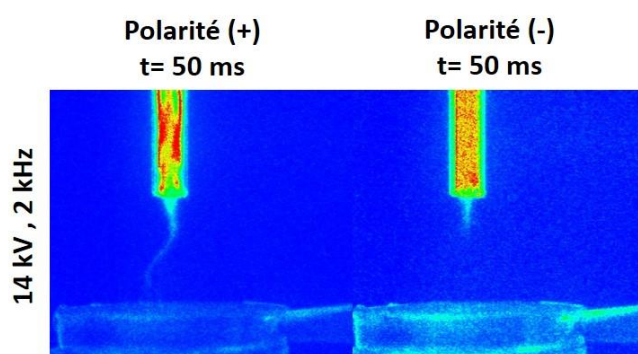


Figure III-32 : plume plasma (ICCD 1 ms) avec un canal d'hélium structuré (conditions Figure III-29,) en polarité positive et négative à une tension appliquée de 14 kV et une fréquence de 2 kHz. La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

On peut noter également que dans le cas de la Figure III-25, (cible située à 4 cm de l'extrémité du capillaire avec une tension de 10 kV), le fait que l'hélium parvienne jusqu'à la cible pourrait indiquer que du champ électrique existe dans une région relativement importante de l'espace, bien au-delà de la plume plasma visible. Dans ces conditions, où la plume plasma est de plus encore réduite comparée à celle de la Figure III-29, nous devrions donc avoir en toute logique un champ électrique qui s'étend au moins 4 cm en aval de la plume visible. Ce point sera discuté plus en détail dans le chapitre IV.

Concernant les effets thermiques, nous pouvons noter que si le plasma apporte un échauffement du gaz, celui-ci aurait pour conséquence d'augmenter la force de flottabilité. Nous excluons donc les effets thermiques dans le mécanisme de canalisation.

Nous allons maintenant traiter de manière distincte les mécanismes de canalisation dans les cas de la polarité positive et négative. Le développement du jet étant plus simple à décrire en polarité négative, nous allons débiter par cette dernière.

5.5.3.1 cas de la polarité négative

Quelle que soit la nature des ions intervenant dans le mécanisme de poussée, il faut également considérer le fait que l'hélium s'écoule continuellement à 0,5 l/min dans le canal. Il faut donc considérer deux vitesses : la vitesse d'écoulement naturelle de l'hélium, due à son inertie, et la vitesse de poussée, due à l'action des ions. Si les ions en aval du jet doivent lutter contre la flottabilité, les ions en amont quant à eux n'ont plus à vaincre cette force et suivent la direction du canal dans lequel l'hélium s'écoule.

La vitesse moyenne de l'écoulement du gaz à un débit de 0,5 l/min, dans l'hypothèse de Hagen-Poiseuille (cf partie 2.1.2), est 0,67 mm/ms.

Si l'on considère maintenant le cas de la Figure III-29 en polarité négative, le jet atteint la cible en 40 ms. Sans plasma, le jet s'étend 4 mm après la sortie du capillaire et la cible est située à 20 mm de celle-ci. Nous pouvons donc estimer la vitesse moyenne de poussée à 0,40 mm/ms.

Les deux vitesses sont donc proches, mais à 14 kV, la vitesse de poussée est légèrement supérieure à la moitié vitesse moyenne de l'écoulement dans le capillaire.

Dans le cas de la Figure III-28 (tension appliquée de 10 kV), sachant que le jet atteint la cible en 50 ms, nous pouvons, par un raisonnement similaire, estimer la vitesse de poussée à 0,32 mm/ms. Dans ce cas, la vitesse de poussée est donc légèrement inférieure à la moitié de la vitesse moyenne de l'écoulement dans le capillaire.

La comparaison de ces vitesses permet d'interpréter la qualité du canal d'hélium établi en fonction de la tension appliquée. En effet, comme le montre la Figure III-33, aux tensions 8 kV, 10 kV et 14 kV, la canalisation est optimale dans le cas où la vitesse de poussée est supérieure à la moitié de la vitesse moyenne de l'écoulement dans le capillaire. Si la vitesse de poussée est inférieure, la structure du canal en est affectée. A 8 kV, le jet atteint la cible en 80 ms, soit une vitesse de poussée moyenne de 0,20 mm/ms.

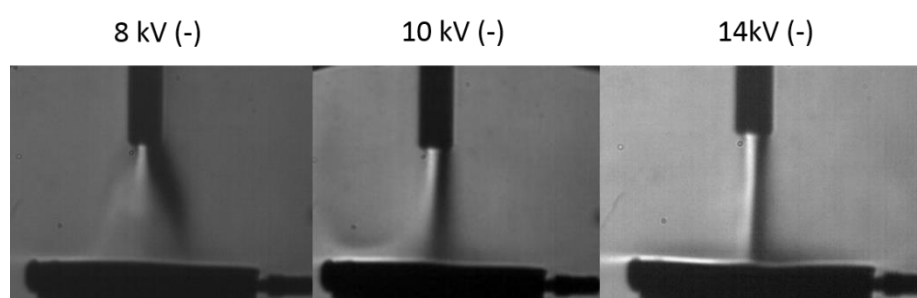


Figure III-33 : influence de la tension appliquée sur la canalisation du jet d'hélium (2 kHz, polarité négative). La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

Toutefois, il est à noter que la vitesse de poussée n'est pas constante durant le développement du jet jusqu'à la cible, nous y reviendrons en section 5.5.6.

Dans la même logique, nous pouvons également interpréter l'étalement uniforme de l'hélium sur la cible. Lorsque le jet d'hélium progresse vers elle, l'inertie de l'écoulement et le vent ionique sont dans le même sens, dirigés vers la cible. Lorsque les ions atteignent la cible, la force électrique les y maintient. En continuant de s'écouler dans le canal, l'hélium s'étale sur la surface de la cible, entraînant les ions avec lui. En revanche, ces ions exercent maintenant une force électrique de « plaquage », dirigée vers la cible. Cette force empêche l'hélium de remonter par flottabilité. En conséquence, l'hélium est « piégé » sur la surface de la cible et s'étale uniformément sur celle-ci, jusqu'à atteindre les bords de la cible et s'écouler de part et d'autre. Cette configuration est extrêmement stable tant que le plasma est activé, à une tension appliquée suffisante.

La force d'inertie et la force de flottabilité s'exercent à chaque instant. La force électrique est quant à elle répétée à chaque impulsion de tension. Elle existe sur un temps μs , mais répété deux fois par milliseconde à 2 kHz. Les ions cèdent donc suffisamment de quantité de mouvement aux neutres pour vaincre la flottabilité après accélération, si les accélérations ont lieu à une fréquence suffisante. En polarité négative, l'hypothèse de la construction du jet et du confinement optimal de l'hélium sur la cible nécessite que la génération d'ions négatifs, entre ceux responsables des premiers mouvements du jet après activation du plasma et ceux plaquant l'hélium sur le bord de la cible, soit la même. A 14 kV, ce temps est d'environ 75 ns. Les ions doivent donc être non radiatifs (cf Figure III-32) et dotés d'un temps de vie particulièrement long.

5.5.3.2 cas de la polarité positive

Nous avons mis en évidence que la canalisation est beaucoup moins efficace en polarité positive. Lors de son développement vers la cible, la progression du jet est moins stable et plus irrégulière, l'interface entre l'hélium et l'air n'étant jamais bien définie (Figure III-28, Figure III-29). Le canal d'hélium n'est de plus jamais parfaitement stabilisé, même à 14 kV (dernière image de la Figure III-29 et première image de la Figure III-30). De plus, les formes des plumes plasma et des canaux d'hélium sont assez similaires (Figure III-32). Contrairement à la polarité négative, la plume plasma en polarité positive atteint la cible à 14 kV.

Nous pouvons également noter que l'hélium s'étale sur une portion réduite de la surface de la cible à 14 kV (Figure III-29) et ne s'étale pas du tout à 10 kV (Figure III-28), contrairement à la polarité négative.

En polarité positive les ions participant au mécanisme de canalisation sont des ions positifs. Nous pouvons donc supposer que ces ions positifs ne peuvent exister qu'au voisinage de la plume plasma et seraient donc de durée de vie bien plus courte que les ions négatifs. De même, les déformations du jet observées (lors de sa progression, à l'interface entre l'hélium et l'air et sur les déformations du canal), pourraient laisser penser que les ions négatifs entravent la progression du jet dans cette

polarité. Toutefois, même si la canalisation est moins bonne qu'en polarité négative, le raisonnement quant à l'inertie de l'écoulement de l'hélium dans le canal reste toujours valide.

5.5.3.3 Quels ions ?

Dans un jet de plasma d'hélium à pression atmosphérique, Oh et al [25] ont identifiés par spectrométrie de masse les ions produits dans la plume plasma. Le plasma est généré dans un capillaire de 1 mm de diamètre et 15 cm de long, l'impulsion de tension est sinusoïdale de fréquence 10 kHz et d'amplitude 8 kV. Une grande richesse d'ions négatifs est détectée, 34 espèces au total, beaucoup d'entre eux existent sous la forme d'agrégat (cluster), dû à la présence d'eau dans l'air environnant. L'influence de la présence d'eau a été étudiée par plusieurs équipes ([26]–[29]), de manière générale, plus la concentration d'eau est élevée, plus les quantités d'agrégats formées sont importantes.

Dans [25], pour les ions positifs, seulement 11 espèces sont détectées. Ces ions sont plus légers et de durée de vie plus courte que celle des ions négatifs. On peut également noter que quelques agrégats positifs existent également. De manière générale, les ions négatifs sont donc moins mobiles, plus massifs et de plus longue durée de vie que les ions positifs. Les auteurs indiquent également que les ions négatifs sont détectables plus loin que l'extension de la plume plasma visible (indiqués comme toujours détectables à 15 mm avec une plume plasma de 11 mm), ce qui n'est pas le cas des ions positifs.

Pour les ions négatifs, il est intéressant de noter qu'il a été détecté entre autre, les ions OH^- , NO_2^- et NO_3^- . Ces ions ont été identifiés comme jouant un grand rôle dans les décharges couronne en polarité négative dans l'air ([30]–[33]). A la pression atmosphérique, l'ion NO_3^- a une durée de vie extrêmement longue (10 secondes) et peut également former un agrégat avec des molécules d'eau [32]. Les ions NO_2^- ont également une durée de vie importante (supérieure à la seconde) et OH^- de l'ordre de la milliseconde [33].

Les potentiels d'ionisations de NO_2 et NO_3 sont respectivement de 11,23 et 12,57 eV [34], tout à fait accessibles dans notre décharge et détectés par ailleurs dans d'autres jets d'hélium [25],[35].

Les ions O_2^- et O_3^- de longue durée de vie à pression atmosphérique [36] pourraient également jouer un rôle important. Concernant les actuateurs DBD, dans [37] les auteurs mentionnent le rôle de O_2^- dans l'efficacité des actuateurs, en procédant par ajout d'oxygène dans l'air. Dans [38], il est prédit dans un modèle phénoménologique qu'en présence des ions O_2^- et O_3^- la poussée engendrée par l'actuateur est meilleure pendant la phase négative de la tension sinusoïdale. Récemment cela a été confirmé expérimentalement dans [39], pour une DBD alimentée en régime sinusoïdale en atmosphère contrôlée, pour différents mélanges d'azote et d'oxygène.

En conclusion, nous interprétons les différences observées entre les canalisations en polarité positive et négative par les différences de nature entre les ions positifs et négatifs, mis chacun à contribution dans leur polarité respective. Les ions positifs, plus légers, plus mobiles et de courte durée de vie ne seraient pas très efficaces pour canaliser l'hélium, ni pour stabiliser parfaitement le jet sur le temps d'activation du plasma. En revanche, les ions négatifs, plus massifs et de durée de vie bien plus longue, notamment l'ion NO_3^- , seraient beaucoup plus efficaces pour canaliser et stabiliser le jet d'hélium tant que le plasma est en fonctionnement.

5.5.4 Influence de la nature de la cible sur la vitesse de poussée

En section 5.5.1, nous avons montré que la tension appliquée influe sur la vitesse de poussée du jet. A tension appliquée fixée, nous pouvons également jouer sur la vitesse de poussée par l'intermédiaire de la cible. La Figure III-34 montre trois cas distincts : cible métallique reliée à la masse, cible métallique flottante et jet libre (sans cible). Pour illustrer au mieux le phénomène, nous nous sommes placés dans une condition de canalisation optimale, à 14 kV et 2 kHz en polarité négative. La cible, lorsqu'elle est présente, est placée à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

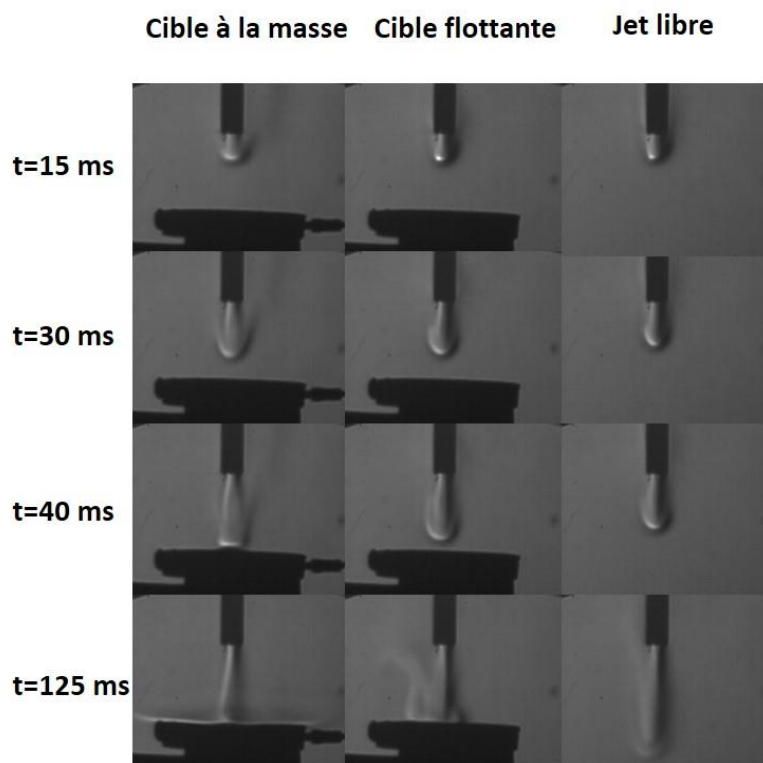


Figure III-34 : influence de la cible et de sa nature électrique sur la vitesse de poussée du jet, comparée au jet libre (14 kV, 2 kHz, polarité négative). La cible métallique est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

Durant les 15 premières ms suivant l'activation du plasma, les trois jets sont situés à la même distance. A 30 ms, le jet situé en face de la cible reliée à la masse précède légèrement le jet situé en

face de la cible flottante. De même, ce dernier est lui-même légèrement en avance sur le jet libre. A 40 ms, les écarts sont nettement visibles dans les trois cas. En effet, le jet a atteint la cible reliée à la masse, mais pas encore la cible flottante. Le jet libre est également nettement en recul sur ce dernier. Cette différence illustre bien le caractère électrique de la force mise en jeu par la modification des lignes de champ dû à la nature électrique de la cible, ou sa présence.

Finalement, au temps 125 ms, le jet libre atteint son extension maximale. La longueur du jet est alors supérieure à 2 cm. La forme courbée du front est particulièrement bien visible. Dans le même temps, Il est intéressant de voir que lorsque la cible est en face du jet, l'étalement de l'hélium est radicalement différent si elle est à la masse ou flottante.

Lorsque la cible est à la masse, l'hélium est uniformément étalé sur toute la surface de la cible, comme décrit pour la Figure III-29 et en section 5.5.3.1. Lorsque la cible est flottante, l'hélium ne s'étale que sur une faible portion de la surface, de manière asymétrique et remonte rapidement par flottabilité. L'étalement étant beaucoup réduit dans le cas de la cible flottante, nous pouvons supposer que la configuration des lignes de champs ne permet pas de plaquer l'hélium sur toute la surface. Lorsque la cible est flottante, nous pouvons de plus supposer qu'un dépôt de charges peut se produire, entraînant un écrantage du champ électrique du plasma.

5.5.5 Influence de la nature de la cible sur l'étalement de l'hélium

La Figure III-35 complète la Figure III-34 pour des temps supérieurs à 125 ms après activation du plasma.

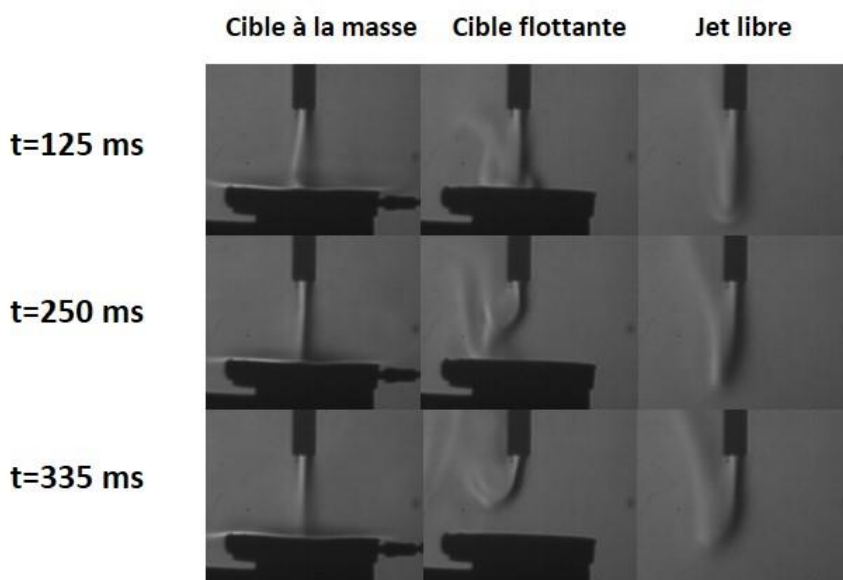


Figure III-35 : influence d'une cible métallique à la masse et d'une cible métallique flottante sur l'évolution du canal, comparée au jet libre (14 kV, 2 kHz, polarité négative). La cible métallique est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

Lorsque la cible est à la masse, le jet est parfaitement stable. En revanche, lorsque la cible est flottante, le jet semble être repoussé. Il s'éloigne progressivement de la cible (250 ms), jusqu'à ne plus du tout être en contact avec celle-ci (335 ms). Ce phénomène se produit sur une échelle de temps relativement longue, bien supérieure à celle du mécanisme de canalisation précédemment décrit. Nous pouvons supposer que sur la cible flottante, les charges électriques ne sont pas efficacement évacuées. La cible, en se chargeant progressivement, pourrait donc entraîner une répulsion électrostatique du jet. Nous pouvons noter également que le jet, dans le cas flottant, n'est toujours pas stable à 335 ms. Aux temps supérieurs, nous avons observé que le jet progresse à nouveau vers la cible et la touche vers la fin du cycle ON/OFF de l'alimentation (470 ms). Aux mêmes instants, les jets avec cible à la masse et libre sont toujours stables. Le phénomène se reproduit à l'identique d'un cycle à l'autre. Nous pouvons donc supposer que les charges finissent par s'évacuer de la cible pour des temps suffisamment longs.

Lorsque la cible reliée à la masse est positionnée à 2 cm de l'extrémité du capillaire, l'hélium couvre la totalité de sa surface. La Figure III-36 illustre l'étalement de l'hélium sur la cible lorsque celle-ci est située à 1 cm de l'extrémité du capillaire. La tension appliquée est de 14 kV en polarité négative, répétée à 2 kHz. Dans les deux cas, les jets sont établis et restent stables tant que le plasma est en fonctionnement. Contrairement au cas précédent, l'hélium ne s'étale pas sur toute la surface de la cible, si celle-ci est trop proche de l'extrémité du capillaire. De part et d'autre du jet, l'hélium s'étale sur une faible portion de la surface, de manière symétrique et remonte ensuite par flottabilité.

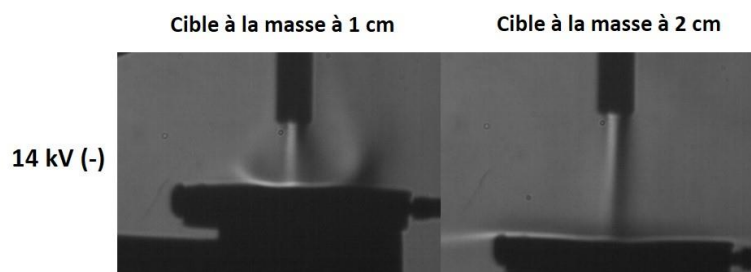


Figure III-36 : influence de la distance de la cible métallique à la masse sur l'étalement de l'hélium (14 kV, 2 kHz, polarité négative).

La zone peu étendue où l'hélium s'étale sur la cible pourrait indiquer l'endroit où la force électrique, responsable du plaquage, existe. En d'autres termes, les lignes de champs électriques sont confinées dans une région relativement peu étendue de l'espace. Etant situées proches de la sortie du capillaire, les lignes de champs doivent se refermer étroitement sur la cible métallique. Lorsque le capillaire est suffisamment éloigné de la cible, en chaque point de la surface existerait un champ suffisamment fort pour que les ions empêchent l'hélium de remonter par flottabilité.

La Figure III-37 compare l'étalement de l'hélium sur une cible métallique reliée à la masse et un diélectrique. La tension appliquée est de 14 kV en polarité négative, répétée à 2 kHz.

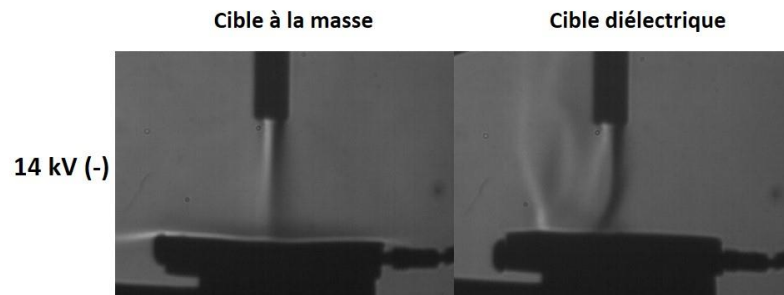


Figure III-37 : influence de la nature de la cible (cible métallique à la masse et cible diélectrique) sur l'étalement de l'hélium. La cible est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

Dans le cas du diélectrique, l'hélium ne s'étale pas sur toute la surface de la cible. Le canal est également moins propre que lorsque la cible est métallique, mais le jet reste toujours en contact avec la cible et est globalement stable sur toute la durée de fonctionnement du plasma. Sur la surface du diélectrique, nous pouvons nous attendre à un dépôt de charges suffisant pour empêcher l'hélium de s'étaler sur toute la surface.

5.5.6 Estimation de la force de poussée par imagerie rapide

Nous pouvons grâce à la haute cadence de la caméra CCD suivre le développement du jet de manière très précise. Sur la Figure III-38, nous pouvons voir le développement du jet issu d'une vidéo cadencée à 1000 images/s. Le temps entre chaque image est donc de 1 ms. Les conditions sont celles de la Figure III-29, 14 kV en polarité négative, à une fréquence de 2 kHz avec une cible métallique à la masse située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

Le jet atteint la cible en 38 ms, ce qui est tout à fait cohérent par rapport au temps repéré avec la vidéo cadencée à 200 images/s (40 ms) dans les mêmes conditions. Les positions du jet aux différents instants sont mesurées précisément (logiciel Inkscape). Nous avons mesuré que lors de sa progression vers la cible, la vitesse du jet n'est pas constante. Le jet est plus lent sur les premières impulsions. En effet, entre les instants 5 et 15 ms, le jet évolue à une vitesse de 0,24 mm/ms. Entre 15 et 30 ms, sa vitesse est de 0,57 mm/ms. Ces deux vitesses instantanées nous donnent accès à l'accélération moyenne du jet et donc à une estimation de la force de poussée, par application du principe fondamental de la dynamique.

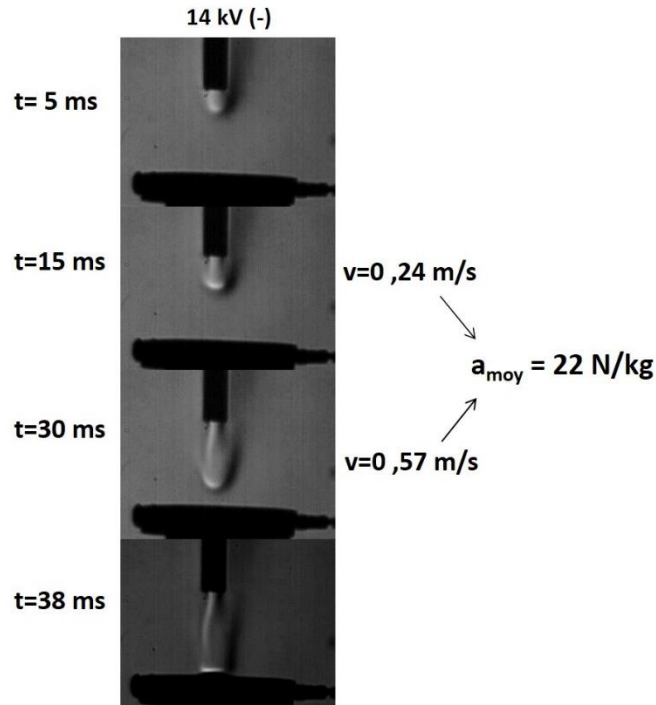


Figure III-38 : évolution du jet d'hélium à tension appliquée de 14kV en polarité négative (2 kHz), sur une vidéo cadencée à 1000 images/s. La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

L'accélération moyenne du jet entre les instants 15 ms et 30 ms s'écrit :

$$a_{moy} = \frac{\Delta v}{\Delta t} = \frac{0,57 - 0,24}{15 \cdot 10^{-3}} = 22 \text{ N/kg}$$

Par application du principe fondamental de la dynamique, cette accélération équivaut à une force :

$$F_{rés} = a_{moy} * m_{air}$$

Avec m_{air} la masse du volume d'air déplacée entre 15 et 30 ms.

Cette force est donc la résultante de la force de poussée des ions (en supposant que les ions transfèrent toute leur quantité de mouvement par collision sur les neutres) dirigée vers le bas, à laquelle se retranche la force de flottabilité dirigée vers le haut. La force de poussée s'écrit donc :

$$F_{poussée} = F_{rés} + F_{flo}$$

Entre 15 ms et 30 ms, nous pouvons approximer le volume d'air déplacé par l'hélium en mouvement. Nous assimilons celui-ci à un cylindre, de hauteur équivalente à la différence de position des deux fronts et de diamètre défini par la largeur du front à 30 ms.

Son volume est de :

$$V_{air} = \pi r^2 h$$

avec :

hauteur du cylindre : $h = 8,6 \text{ mm}$

rayon du cylindre : $r = 3,5 \text{ mm}$

Soit :

$$V_{air} = 3,3 \cdot 10^{-7} \text{ m}^3$$

La force de flottabilité, poussée qu'exerce ce volume d'air sur l'hélium, s'écrit :

$$F_{flo} = \Delta\rho * g * V_{air}$$

Avec :

$$\Delta\rho = \rho_{air} - \rho_{He} = 1,03 \text{ kg/m}^3$$

($g = 9,8 \text{ N/kg}$, accélération de la pesanteur terrestre)

Soit :

$$F_{flo} = 3,3 \text{ }\mu\text{N}$$

La masse de l'air contenue dans ce volume est de :

$$m_{air} = V_{air} * \rho_{air} = 3,9 * 10^{-7} \text{ kg}$$

Nous avons donc :

$$F_{rés} = a_{moy} * m_{air} = 8,6 \text{ }\mu\text{N}$$

Nous retrouvons donc une force résultante supérieure à la force de flottabilité, auquel cas le jet ne pourrait pas s'étendre vers la cible.

Et finalement :

$$F_{poussée} = F_{rés} + F_{flo} \approx 12 \text{ }\mu\text{N}$$

Cette méthode d'estimation de la force de poussée, basée sur des considérations simples, permet d'en donner un ordre de grandeur.

Plusieurs techniques ont été développées pour mesurer les forces de poussée dans les actuateurs plasma. Par sonde de pression d'arrêt (tube Pitot) [40], balance de force électronique [40], [41], ou basée sur des mesures de vitesses (vélocimétrie par images de particules (PIV)) [42], [43], [44]. Les ordres de grandeur de la densité de forces mesurés sont de l'ordre de la dizaine de mN/m (ou $\mu\text{N/mm}$).

Dans [40], pour un actuateur à deux barrières alimenté par une tension triangle à 1 kHz pour des amplitudes comprises entre 11 kV et 13 kV, les auteurs mesurent des forces de poussée sur la balance comprises entre 10 et 60 μN .

Notre estimation nous apparaît donc cohérente en regard de l'ordre de grandeur des valeurs que l'on peut trouver dans la littérature pour les actuateurs.

En ce qui concerne les jets de plasma à pression atmosphérique, par une étude expérimentale et de modélisation, Papadopoulos et al [45] estimaient une densité volumique de force EHD de l'ordre $5\text{mN}/\text{cm}^3$. On peut néanmoins remarquer que dans notre cas l'on parle bien en termes de force de poussée et non de force EHD. Comme mentionné dans [43], en raison de toutes les pertes potentielles pouvant se produire entre la force apportée par le plasma et le mouvement observé du gaz neutre, la distinction entre les deux doit être faite en toute rigueur. De plus, dans le modèle phénoménologique de [45], aucune hypothèse sur la nature des ions n'a été effectuée (ni donc sur les collisions). La force considérée était électrostatique, calculée par la valeur d'un champ électrique local en tête de streamer, estimée d'après [46] et appliquée sur une densité moyenne d'ions mono chargés. Cela étant, en comparant l'importance relative de la force EHD et des effets thermiques induit par le plasma, les auteurs excluaient également le caractère thermique comme cause de la modification d'écoulement observé dans leur décharge.

6. Préparation d'un canal d'hélium pour la propagation du plasma

Dans cette partie nous allons présenter une application possible des propriétés de canalisation du Plasma Gun, découlant ce qui a été présenté en partie 5. Nous allons également comparer nos observations avec la littérature sur l'optimisation de l'efficacité des actuateurs plasma.

6.1 Développement du jet à 18 kV

La Figure III-39 illustre le développement du jet lorsque la tension appliquée est de 18 kV, pour les polarités positive et négative. La fréquence de répétition est de 2 kHz, la cible métallique reliée à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

Pour cette tension appliquée, les jets ont quasiment atteint la cible en 25 ms. En 30 ms, les deux jets sont en contact avec la cible, soit 10 ms plus tôt qu'à la tension 14 kV. Nous pouvons voir pour le jet positif une déformation très particulière apparaître dès l'activation du plasma. De multiples branches courbes apparaissent sur le jet, particulièrement visibles à 10 ms. Dans le même temps, le jet négatif suit une évolution classique, comparée à ce qui a été précédemment décrit pour une tension appliquée plus faible. En revanche, lorsque celui-ci est suffisamment proche de la cible, à 25 ms, nous pouvons remarquer une unique branche fine et rectiligne entre le centre du front du jet d'hélium et la cible. Aux temps supérieurs, les jets évoluent classiquement, tel que ce qui a été

décrit pour les deux polarités. En polarité négative, le canal est stable et l'hélium s'étale progressivement sur la cible. En polarité positive, le canal est toujours instable et l'étalement réduit.

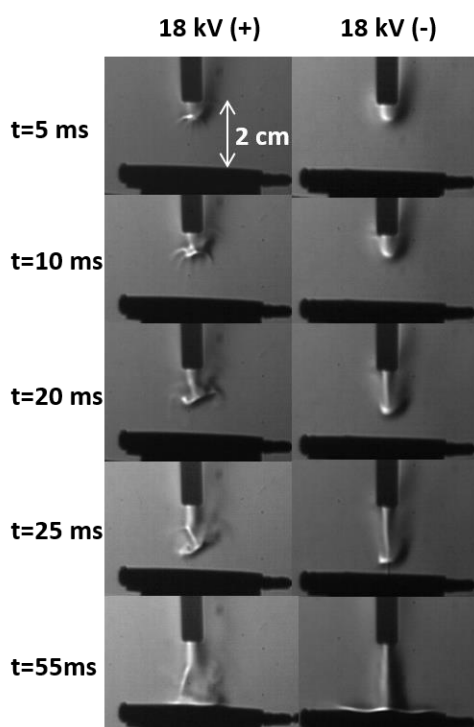


Figure III-39 : évolution du jet d'hélium à tension appliquée de 18kV (2 kHz), en polarité positive et négative. La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

Dans ces conditions, nous pouvons suivre la propagation rapide du front d'ionisation par imagerie ICCD au cours d'une impulsion de tension choisie (pour n'importe quelle impulsion du cycle ON/OFF). Compte tenu de l'échelle de temps de propagation du front d'ionisation (ns), le gaz peut être considéré comme figé lorsque le front se propage. Autrement dit, en se décalant impulsion après impulsion, nous pouvons suivre la propagation du front d'ionisation dans une configuration de jet donné, telle qu'elle apparaît aux différents instants sur la Figure III-39.

La Figure III-40 montre le développement du front d'ionisation aux impulsions correspondant aux instants 10 ms et 25 ms. Pour chaque impulsion considérée, la lumière est intégrée 50 ns, au moment où le front d'ionisation, suite à la propagation rapide dans le capillaire, atteint le jet d'hélium.

Les branches visibles par strioscopie sont également visibles sur le temps très court de propagation du front d'ionisation. Lorsque le front d'ionisation atteint l'extrémité du jet d'hélium, il amène un champ électrique suffisant pour initier un claquage entre l'extrémité du jet d'hélium et la cible. Ce claquage a donc lieu dans l'air et les branches correspondent à l'initiation de streamers dans l'air, se propageant suivant la courbure des lignes de champs. Ceci est parfaitement analogue à une décharge couronne, où la plume plasma joue le rôle de la pointe. En décalant l'acquisition des images ICCD, nous pouvons également suivre l'évolution de ces streamers dans l'air, qui se propagent de manière courbe jusqu'à la cible. A 25 ms, le jet d'hélium a progressé, et de multiples claquages ont lieu dans le gap réduit entre l'hélium et la cible. Nous pouvons voir la trace des streamers par strioscopie car ils entraînent une légère élévation de température, induisant un changement de l'indice de réfraction.

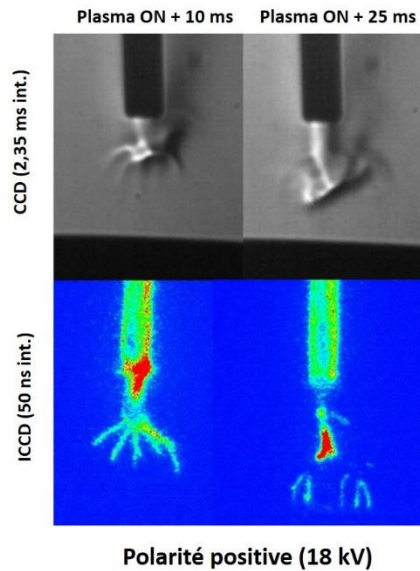


Figure III-40 : images ICCD du front d'ionisation en polarité positive (intégrées sur 50 ns) dans le jet d'hélium (visible par strioscopie), à l'impulsion correspondant aux temps 10 ms et 25 ms après démarrage du cycle. (18 kV, 2kHz, cible à 2cm). Des streamers se développent dans l'air entre l'extrémité du jet d'hélium et la cible.

La Figure III-41 montre quant à elle l'équivalent en polarité négative.

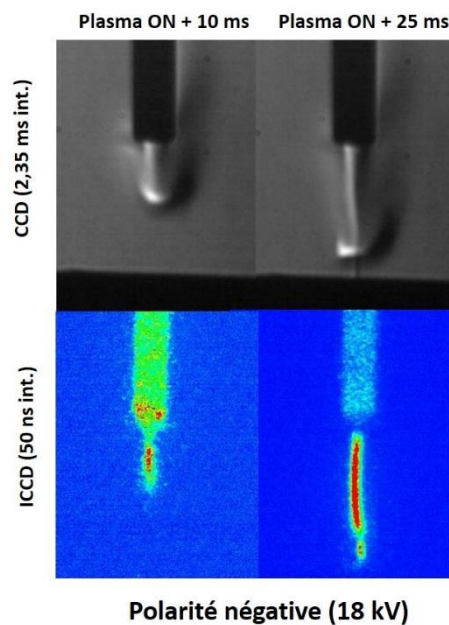


Figure III-41 : images ICCD du front d'ionisation en polarité négative (intégrées sur 50 ns) dans le jet d'hélium (visible par strioscopie) à l'impulsion correspondant aux temps 10 ms et 25 ms après démarrage du cycle. (18 kV, 2kHz, cible à 2cm). Un streamer se développe dans l'air entre l'extrémité du jet et la cible, lorsque le jet est assez proche de la surface.

A l'instant 10 ms, le front se propage dans le canal d'hélium, mais aucun claquage ne se produit. Lorsque le jet est suffisamment proche de la cible, le front d'ionisation se propage dans tout le canal d'hélium et nous pouvons voir le claquage d'un streamer, entre l'extrémité du jet d'hélium et la cible. Le fait que le claquage ne se produise qu'à courte distance, contrairement au cas précédent, tendrait à montrer que le champ électrique du front d'ionisation serait soit plus faible en polarité négative, ou possiblement écranté par la charge d'espace du nuage d'ions négatifs dans le jet

d'hélium. La distinction entre les champs électriques en polarité positive et négative sera discutée au chapitre IV. En annexe B (annexe du chapitre V), nous reviendrons sur la plume plasma en jet libre en polarité négative. Nous pouvons noter qu'à cette de tension appliquée de 18 kV, contrairement aux tensions de 14 kV et 10 kV, la plume plasma se connecte à la cible.

6.2 Préparation d'un canal d'hélium pour stabiliser le plasma

Pour toutes nos observations précédentes, nous avons décrit qu'en polarité positive le canal d'hélium n'était jamais stable sur la cible située à 2 cm. En polarité négative, le canal d'hélium est parfaitement stable, mais la plume plasma (dans des conditions de tension raisonnables propres aux applications biomédicales) ne se propage que sur de faibles distances.

Or, nous avons observé (Figure III-30) que le canal d'hélium établi en polarité négative met au moins 20 ms pour commencer à se déstructurer après arrêt du plasma. En alternant les impulsions négatives et positives de manière appropriée, il serait donc théoriquement possible de construire un canal d'hélium pour que le plasma puisse s'y propager, dans la polarité souhaitée. Nous avons modifié notre alimentation électrique pour que celle-ci incorpore dans son cycle ON/ OFF 50 impulsions négatives suivies de 50 impulsions positives. Les impulsions sont répétées à une fréquence de 1 kHz, et le basculement entre les deux polarités dure 1 ms.

La Figure III-42 illustre la propagation du plasma (1 ms d'intégration) à la 50^{ème} impulsion positive, et à la 1^{ère} impulsion positive précédée de 50 impulsions négatives. La tension appliquée est de 14 kV, la cible métallique reliée à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

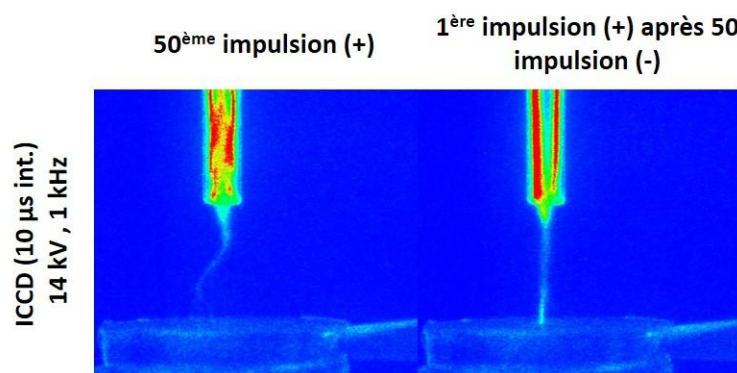


Figure III-42 : image de gauche : plasma dans un canal non stabilisé, à la 50^{ème} impulsion positive. Image de droite : plasma à la 1^{ère} impulsion positive dans un canal stabilisé. Le canal de gaz est préalablement préparé par la répétition de 50 impulsions négatives La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.

La répétition d'impulsions de tension positives ne conduit jamais à un canal d'hélium et une plume plasma stables, à cette distance de cible. En revanche, lorsque le canal est préparé par 50 impulsions négatives au préalable (tel qu'en Figure III-29), à la première impulsion positive, une milliseconde plus tard, le plasma se propage dans le canal rectiligne et impacte la cible. Ceci combine donc l'avantage de la polarité positive à propager du plasma sur de plus longues distances avec l'avantage de la polarité négative à stabiliser un canal d'hélium. Dans ces conditions, nous pouvons donc envoyer sur la cible un plasma en polarité positive de manière extrêmement localisée.

6.3 Optimisations dans les actuateurs plasma

L'idée d'utiliser différentes sources de tension a déjà été mise en pratique dans le cas des actuateurs plasma. En 2004, Enloe et al [47] remarquent qu'en utilisant des signaux en dent de scie en polarité positive ou négative dans leur DBD, la morphologie du plasma et la poussée développée n'était pas la même. Ils travaillaient avec des amplitudes de tensions entre 5 et 20 kV répétés du Hz au kHz, avec deux formes en dent de scie. Ils observaient qu'en utilisant un signal en dent de scie négatif sur la majeure partie du cycle, le plasma était plus diffus et la poussée développée plus grande. A contrario, avec un signal en dent de scie positif sur la majeure partie du cycle, le plasma était plus irrégulier sur la durée du cycle et le transfert d'impulsion vers l'écoulement moins efficace. Ils en concluaient que de telles différences en fonction de la polarité permettaient d'exclure tout effet thermique dû à un chauffage du plasma sur la modification de l'écoulement.

En se basant sur les propriétés connues des streamers en polarités positive et négative, des modèles numériques ont été développés pour optimiser l'efficacité des actuateurs en utilisant des formes de tension originales. Il a été en effet montré dans le modèle de [48], qu'utiliser une forme de tension sinusoïdale était une source de perte en raison des alternances des phases positive et négative. En utilisant un modèle à 4 fluides (molécules neutres, électrons et ions positif et négatif) et une forme de tension composée d'impulsions nanosecondes négatives couplées avec un courant continu positif [48],[49], les auteurs ont prédit que l'efficacité des actuateurs pouvait être considérablement augmentée. Il a été mesuré expérimentalement dans [50], avec une forme sinusoïdale de tension, que 97 % du transfert de moment se produisait au cours de la phase de tension négative du cycle, avec de forts changements dans la structure de la décharge.

Autre point similaire entre les actuateurs et nos observations, il a été montré dans [49] qu'une augmentation de la tension appliquée favorisait le transfert d'impulsion et aboutissait à des poussées plus importantes. Notre conclusion est similaire quant à nos observations de la variation de la vitesse de poussée en fonction de la tension appliquée (section 5.5.2.), bien que nous ayons également montré qu'il était possible de jouer sur celle-ci indépendamment de la tension appliquée, en influant sur la topologie des lignes de champ électrique (section 5.5.5).

7. Implications de nos hypothèses dans l'étude des jets de plasma froid à pression atmosphérique.

7.1 Effet de canalisation

Dans nos conditions expérimentales, nous avons très clairement mis en évidence la modification de l'écoulement du jet d'hélium provoquée par le plasma. Nous avons également montré que la force mise en jeu était clairement de nature électrique et non thermique.

Ce phénomène de canalisation n'a jamais été, à notre connaissance, mis en évidence dans les jets de plasma froid à pression atmosphérique. Dans notre cas, il résulte d'une combinaison de plusieurs paramètres : des impulsions de tension μs (très efficaces si négatives), répétées à une fréquence suffisante (de l'ordre du kHz) avec une inertie de l'écoulement modéré (bas débit d'hélium dans un capillaire de 4 mm de diamètre interne).

Si l'on reconsidère les différentes études des jets de plasma froid à pression atmosphérique traitant de la modification d'écoulement cités en section 1.2, on peut s'apercevoir que les impulsions de tension utilisées sont sinusoïdales. Au vu de notre étude et de ce qu'il a été montré par ailleurs pour les actuateurs, il est probable que la canalisation ne se produise pas (ou mal) avec cette forme de tension. De plus, les débits de gaz employés sont souvent élevés (plusieurs l/min), avec donc une inertie de l'écoulement plus importante (plus encore pour des capillaires fins), comparée à la force de poussée développée par le plasma.

Pour des impulsions de tension rapides (front de montée nanoseconde et faible durée de maintien), il est également possible que le mécanisme de canalisation ne puisse se produire efficacement [51].

Dans certaines conditions, nous pouvons affirmer que considérer la fraction molaire initiale du gaz porteur, indépendamment de l'effet du plasma sur l'écoulement, n'est clairement pas suffisant. Par ailleurs, beaucoup d'études, depuis [12], ont été réalisées sur les longueurs de plumes, alors mises en relation avec des transitions fluides conditionnant leurs tailles. Cette approche reste valable uniquement si la force de l'inertie de l'écoulement domine la force EHD transmise par le plasma. Dans le cas contraire, nous avons mis en évidence un phénomène quasiment inverse : des plumes plasma très courtes (en polarité négative) et des modifications de l'écoulement pouvant se produire sur de longues distances devant la plume, (au moins jusqu'à 4 cm).

La prise en compte de la modification de l'écoulement apparaît également importante pour la cinétique réactionnelle développée dans la plume. McKay et al [35], en étudiant l'influence de plusieurs sources de tension sur les espèces produites (sinusoïdale au kHz et impulsionnelle DC), indiquaient que le mode d'excitation n'a que peu d'influence sur les types d'ions produits, contrairement à la largeur du capillaire utilisé, qui selon eux influait directement sur les transitions laminaire-turbulent. Aux vues de nos observations, nous pouvons nuancer cette affirmation, si les paramètres utilisés tendent à canaliser l'écoulement. L'implication sur la cinétique sera alors considérable, puisque cela entraînera des mélanges avec l'air ambiant radicalement différents [52].

7.2 Vent ionique et effet thermique

Bien que nous ayons mis en évidence que l'aspect électrique primait sur l'aspect thermique, quant à la modification de l'écoulement dans notre dispositif plasma et nos conditions expérimentales, les effets thermiques peuvent par ailleurs se révéler importants dans d'autres conditions.

Iseni et al [53] ont développé une technique pour visualiser indirectement l'écoulement de l'argon dans leur dispositif plasma (KinPen). L'écoulement est visualisé indirectement par fluorescence de

l'acétone (technique PLIF), mélangé à l'argon. Une très courte résolution temporelle est ainsi accessible via cette méthode (200 ns). Les auteurs observent que la propagation du streamer est conditionnée par les gradients de densités du gaz due à la turbulence. Pour expliquer l'apparition de la turbulence pour un régime initialement laminaire, les auteurs ont évoqué le développement d'instabilités déclenchées par effet thermique.

Zhang et al [54] ont étudié en détail le phénomène dans un jet d'argon RF, modulés aux fréquences 50 Hz et 20 kHz. Par ombroscopie pour visualiser l'écoulement et par diffusion Rayleigh pour mesurer la température du gaz, ils ont établis une corrélation directe entre la réduction du cône potentiel et l'élévation de la température du gaz, proche de la sortie du capillaire. Ce chauffage entrainerait une augmentation de la vitesse du gaz et l'apparition d'une instabilité tourbillonnaire de Kelvin-Helmholtz, par les gradients de vitesse induits. Proche de la sortie du capillaire, ils ont estimé la force EHD négligeable. Cependant, en modulant la puissance injectée, ils ont visualisé un allongement du cône potentiel pour des puissances supérieures à 5,6 W. Pour expliquer ce phénomène, les auteurs n'excluaient pas le rôle du vent ionique. L'hypothèse de la modification de la transition laminaire turbulent par effet du vent ionique est également évoquée dans l'étude de Foletto et al [55].

8. Conclusion et perspectives

Nous avons étudié l'interaction du plasma et de l'écoulement de l'hélium dans notre dispositif de jet de plasma froid à pression atmosphérique, le Plasma Gun. En procédant au préalable à une étude de l'écoulement de l'hélium par striescopie, sans plasma, nous avons pu identifier des instabilités hydrodynamiques particulières, inhérentes à notre géométrie d'injection de l'hélium, ainsi que les moyens de s'en prémunir.

Dans un premier temps, nous avons montré que dans ces régimes particuliers, le plasma pouvait induire, sans nécessairement se propager à l'extérieur du capillaire, un effet stabilisateur en modifiant drastiquement la globalité de l'écoulement, jusqu'au jet d'hélium dans l'air en sortie du capillaire. Cette étude permet notamment de souligner qu'en raison du très grand nombre de géométries d'injections différentes utilisées dans les jets de plasma froid à pression atmosphérique, le comportement de l'écoulement doit être étudié avec précaution, pour une géométrie donnée. Dans l'annexe A est illustrée une grande variété de comportements fluide observés, dont les transitions peuvent être pilotées par nos paramètres de décharge.

Dans un second temps, nous nous sommes placés dans des conditions proches de nos applications biomédicales, avec une condition d'écoulement laminaire. L'hélium à bas débit (0,5 l/min) circule dans un capillaire de 10 cm de longueur orienté vers le bas, une cible métallique est positionnée en face. A ce débit, le jet d'hélium ne s'étend que 4 mm au-delà de la sortie du capillaire, en raison de la flottabilité. En revanche, lorsque le plasma est activé, l'hélium est poussé sur la cible, sur des distances allant jusqu'à plusieurs cm. En étudiant en détail ce phénomène, nous avons observé que le plasma, pour les paramètres de décharge appropriés, pouvait engendrer la construction et la stabilisation parfaite d'un canal d'hélium entre le capillaire et la cible. Les effets de la polarité de la

tension appliquée et de l'influence à grande distance d'un corps conducteur, ont permis de trancher quant au caractère électrique de la force transmise par le plasma à l'écoulement neutre, éloignant donc l'hypothèse des effets thermiques dans notre cas. Comme pour les actuateurs plasma, nous sommes en présence d'un vent ionique. De manière générale, nous avons observé que la polarité négative est beaucoup plus efficace que la polarité positive pour pousser, canaliser et stabiliser le jet d'hélium. Nous expliquons ce phénomène par la nature des ions intervenant en polarité négative, massifs et de très longue durée de vie, comparés à leurs homologues positifs. Ces considérations se retrouvent également dans l'étude des actuateurs plasma.

Nous avons montré que l'effet de canalisation de l'hélium résulte, dans nos conditions expérimentales, d'une combinaison appropriée de plusieurs paramètres : une répétition d'impulsions de tension μs (très efficace si négatives) à une fréquence suffisante (de l'ordre du kHz), avec une inertie de l'écoulement modérée (bas débit d'hélium dans un capillaire de 4 mm de diamètre interne).

Enfin, en utilisant les résultats de notre étude, nous avons réussi à combiner l'avantage de la polarité négative à construire et stabiliser un canal d'hélium et l'avantage de la polarité positive à propager le plasma sur de plus longues distances. En construisant le canal par la répétition d'impulsions de tension négatives, nous pouvons ensuite y faire se propager le plasma en polarité positive. Le plasma se propage ainsi dans l'intégralité du canal d'hélium et impacte la cible de manière très directive.

Historiquement, la modification d'écoulement était l'apanage des actuateurs plasma, où ces derniers étaient utilisés pour stabiliser l'écoulement. Les premières études de l'écoulement dans les jets de plasma froid à pression atmosphérique étaient souvent associées à des effets destructeurs, en induisant de la turbulence. Nous avons mis en évidence, dans notre jet, que le plasma pouvait canaliser l'écoulement de l'hélium et jouer un rôle stabilisateur. La considération de la modification d'écoulement dans les jets plasma à pression atmosphérique apparaît donc primordiale pour toute application où l'état de l'écoulement doit être connu. Nous pouvons notamment penser aux tests de contrôles pour des cibles biologiques, où sont comparées des cibles exposées au plasma et exposées au flux d'hélium (plasma coupé). La connaissance précise des fractions molaires est également importante pour une calibration d'un diagnostic quantitatif de mesure de concentration d'espèces réactives produites. La production des espèces réactives dans la plume plasma est susceptible d'être radicalement affectée suivant le degré de mélange entre l'air environnant et le gaz porteur de la décharge.

Contrairement aux actuateurs plasma, dont les configurations géométriques sont assez limitées, les jets de plasma froid à pression atmosphérique ont l'avantage de posséder des géométries extrêmement souples. Combinée à la richesse de la cinétique produite et à l'intensité des champs électriques développés, leur utilisation dans la thématique de la modification d'écoulement s'avère pertinente.

9. Bibliographie du chapitre III

- [1] A. M. Mkhitarian, G. N. Boyarskii, V. A. Kasyanov, and A. F. Tishkov, "Experimental studies of driving voltage frequency effects on EHD," *Cbl*, 1968.
- [2] M. K. Lockwood, "Ross," *Astrobiology*, vol. 1, no. 4, pp. 523–525, 2001.
- [3] T. C. Corke, C. L. Enloe, and S. P. Wilkinson, "Dielectric Barrier Discharge Plasma Actuators for Flow Control*," *Annu. Rev. Fluid Mech.*, vol. 42, no. 1, pp. 505–529, 2010.
- [4] J.-J. Wang, K.-S. Choi, L.-H. Feng, T. N. Jukes, and R. D. Whalley, "Recent developments in DBD plasma flow control," *Prog. Aerosp. Sci.*, vol. 62, pp. 52–78, 2013.
- [5] J. R. Roth, "Aerodynamic flow acceleration using paraelectric and peristaltic electrohydrodynamic effects of a one atmosphere uniform glow discharge plasma," *Phys. Plasmas*, vol. 10, no. 5 II, pp. 2117–2126, 2003.
- [6] E. Moreau, "Airflow control by non-thermal plasma actuators," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 40, no. 3, pp. 605–636, 2007.
- [7] T. Corke and M. Post, "Overview of plasma flow control: concepts, optimization, and applications," *AIAA Pap.*, no. January, pp. 1–15, 2005.
- [8] J. Oh, O. T. Olabanji, C. Hale, R. Mariani, K. Kontis, and J. W. Bradley, "Imaging gas and plasma interactions in the surface-chemical modification of polymers using micro-plasma jets," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 44, no. 15, p. 155206, 2011.
- [9] N. Jiang, J. Yang, F. He, and Z. Cao, "Interplay of discharge and gas flow in atmospheric pressure plasma jets," *J. Appl. Phys.*, vol. 109, no. 9, 2011.
- [10] M. Ghasemi, P. Olszewski, J. W. Bradley, and J. L. Walsh, "Interaction of multiple plasma plumes in an atmospheric pressure plasma jet array," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 46, no. 5, p. 52001, 2013.
- [11] X. Shao, S. Member, Z. Chang, and H. Mu, "Experimental and Numerical Investigation on the Interaction Between Ar Flow Channel and Ar Plasma Jet at Atmospheric Pressure," vol. 41, no. 4, pp. 899–906, 2013.
- [12] E. Karakas, M. Koklu, and M. Laroussi, "Correlation between helium mole fraction and plasma bullet propagation in low temperature plasma jets," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 43, no. 15, p. 155202, 2010.
- [13] W. Kriaa, H. Mhiri, S. El Golli, and G. Le, "Etude Numérique d'un Jet Plan à Masse Volumique Variable en Régime Laminaire," vol. 5, pp. 93–106, 2002.
- [14] M. Lessieur, *Turbulence in fluids.*, Springer. Dordrecht, Netherlands, 2008.
- [15] A. Danet, "Influence des conditions amont sur l'écoulement derrière une marche par la simulation des grandes échelles," Thèse de l'Institut National Polytechnique de Grenoble, 2001.
- [16] V. Sarron, "Étude et optimisation d'une décharge « Plasma Gun » à pression atmosphérique, pour des applications biomédicales," Thèse de l'Université d'Orléans, 2013.
- [17] O. Lucca-Negro and T. O'Doherty, "Vortex breakdown: A review," *Prog. Energy Combust. Sci.*, vol. 27, no. 4, pp. 431–481, 2001.
- [18] B. Leclaire, "Etude théorique et expérimentale d'un écoulement tournant dans une

conduite," Thèse de l'Ecole Polytechnique, 2006.

- [19] J. K. Harvey, "Some observations of the vortex breakdown phenomenon," *J. Fluid Mech.*, vol. 14, no. 4, p. 585, 1962.
- [20] T. Sarpkaya, "On stationary and travelling vortex breakdowns," *J. Fluid Mech.*, vol. 45, no. 3, p. 545, 1971.
- [21] J. H. Faler and S. Leibovich, "Disrupted states of vortex flow and vortex breakdown," *Phys. Fluids*, vol. 20, no. 9, p. 1385, 1977.
- [22] T. Darny, E. Robert, S. Dozias, and J. Pouvesle, "Helical Plasma Propagation of Microsecond Plasma Gun Discharges," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, vol. 42, no. 10, pp. 2506–2507, 2014.
- [23] T. Darny, E. Robert, D. Ries, S. Dozias, and J. M. Pouvesle, "Unexpected plasma plume shapes produced by a microsecond plasma gun discharge," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, vol. 42, no. 10, pp. 2504–2505, 2014.
- [24] E. Robert, V. Sarron, T. Darny, D. Riès, S. Dozias, J. Fontane, L. Joly, and J.-M. Pouvesle, "Rare gas flow structuration in plasma jet experiments," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 23, no. 1, p. 12003, 2014.
- [25] J.-S. Oh, Y. Aranda-Gonzalvo, and J. W. Bradley, "Time-resolved mass spectroscopic studies of an atmospheric-pressure helium microplasma jet," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 44, no. 36, p. 365202, 2011.
- [26] P. Bruggeman, F. Iza, D. Lauwers, and Y. A. Gonzalvo, "Mass spectrometry study of positive and negative ions in a capacitively coupled atmospheric pressure RF excited glow discharge in He–water mixtures," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 43, no. 1, p. 12003, 2009.
- [27] D. X. Liu, P. Bruggeman, F. Iza, M. Z. Rong, and M. G. Kong, "O plasmas," *Plasma Sources Science and Technology*, vol. 19, no. 2, p. 25018, 2010.
- [28] T. Murakami, K. Niemi, T. Gans, D. O'Connell, and W. G. Graham, "Chemical kinetics and reactive species in atmospheric pressure helium–oxygen plasmas with humid-air impurities," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 22, no. 1, p. 15003, 2013.
- [29] Z. Abd-Allah, D. a G. Sawtell, K. McKay, G. T. West, P. J. Kelly, and J. W. Bradley, "Mass spectrometric investigation of the ionic species in a dielectric barrier discharge operating in helium-water vapour mixtures," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 48, no. 8, p. 85202, 2015.
- [30] B. Gravendeel and F. J. de Hoog, "Clustered negative ions in atmospheric negative corona discharges in the Trichel regime," *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, vol. 20, no. 23, pp. 6337–6361, 1999.
- [31] K. Nagato, Y. Matsui, T. Miyata, and T. Yamauchi, "An analysis of the evolution of negative ions produced by a corona ionizer in air," *Int. J. Mass Spectrom.*, vol. 248, no. 3, pp. 142–147, 2006.
- [32] K. Sekimoto and M. Takayama, "Influence of needle voltage on the formation of negative core ions using atmospheric pressure corona discharge in air," *Int. J. Mass Spectrom.*, vol. 261, no. 1, pp. 38–44, 2007.
- [33] K. Sekimoto and M. Takayama, "Negative ion formation and evolution in atmospheric pressure corona discharges between point-to-plane electrodes with arbitrary needle angle," *Eur. Phys. J. D*, vol. 60, no. 3, pp. 589–599, 2010.
- [34] K. N. Joshipura, S. Gangopadhyay, and B. G. Vaishnav, "Electron scattering and ionization of NO, N₂O, NO₂, NO₃ and N₂O₅ molecules : theoretical cross sections," *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 40, pp. 199–210, 2007.

- [35] K. McKay, J.-S. Oh, J. L. Walsh, and J. W. Bradley, "Mass spectrometric diagnosis of an atmospheric pressure helium microplasma jet," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 46, no. 46, p. 464018, 2013.
- [36] W. Van Gaens and A. Bogaerts, "Kinetic modelling for an atmospheric pressure argon plasma jet in humid air," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 46, no. 27, p. 275201, 2013.
- [37] W. Kim, H. Do, M. G. Mungal, and M. a. Cappelli, "On the role of oxygen in dielectric barrier discharge actuation of aerodynamic flows," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 91, no. 18, pp. 2007–2009, 2007.
- [38] V. R. Soloviev, "Analytical estimation of the thrust generated by a surface dielectric barrier discharge," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 45, no. 2, p. 25205, 2011.
- [39] P. Audier, H. Rabat, A. Leroy, and D. Hong, "Experimental investigation of a surface DBD plasma actuator at atmospheric pressure in different N₂/O₂ gas mixtures," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 23, p. 65045, 2014.
- [40] A. R. Hoskinson, N. Hershkowitz, and D. E. Ashpis, "Force measurements of single and double barrier DBD plasma actuators in quiescent air," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 41, no. 24, p. 245209, 2008.
- [41] J. Gregory, C. Enloe, G. Font, and T. McLaughlin, "Force production mechanisms of a dielectric-barrier discharge plasma actuator," *AIAA Pap.*, no. January, pp. 1–13, 2007.
- [42] M. Kotsonis, S. Ghaemi, L. Veldhuis, and F. Scarano, "Measurement of the body force field of plasma actuators," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 44, no. 4, p. 45204, 2011.
- [43] J. Kriegseis, C. Schwarz, C. Tropea, and S. Grundmann, "Velocity-information-based force-term estimation of dielectric-barrier discharge plasma actuators," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 46, no. 5, p. 55202, 2013.
- [44] T. Albrecht, T. Weier, G. Gerbeth, H. Metzkes, and J. Stiller, "A method to estimate the planar, instantaneous body force distribution from velocity field measurements," *Physics of Fluids*, vol. 23, no. 2, p. 21702, 2011.
- [45] P. K. Papadopoulos, P. Vafeas, P. Svarnas, K. Gazeli, P. M. Hatzikonstantinou, A. Gkelios, and F. Clément, "Interpretation of the gas flow field modification induced by guided streamer ('plasma bullet') propagation," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 47, no. 42, p. 425203, 2014.
- [46] J. Boeuf, L. L. Yang, and L. C. Pitchford, "Dynamics of a guided streamer ('plasma bullet') in a helium jet in air at atmospheric pressure," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 46, no. 1, p. 13pp, 2013.
- [47] C. L. Enloe, T. E. McLaughlin, R. D. Van Dyken, K. D. Kachner, E. J. Jumper, and T. C. Corke, "Mechanisms and Responses of a Single Dielectric Barrier Plasma Actuator: Plasma Morphology," *AIAA Journal*, vol. 42, no. 3, pp. 595–604, 2004.
- [48] A. V. Likhanskii, M. N. Shneider, S. O. MacHeret, and R. B. Miles, "Modeling of Interaction Between Weakly Ionized Near-Surface Plasmas and Gas Flow," in *44th AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit*, no. January, pp. 1–26, 2006.
- [49] A. V. Likhanskii, M. N. Shneider, S. O. Macheret, and R. B. Miles, "Optimization of Dielectric Barrier Discharge Plasma Actuators Driven By Repetitive Nanosecond Pulses," in *45th AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit*, 2007, no. January, pp. 2007–633.
- [50] C. L. Enloe, M. G. McHarg, and T. E. McLaughlin, "Time-correlated force production measurements of the dielectric barrier discharge plasma aerodynamic actuator," *J. Appl. Phys.*, vol. 103, no. 7, p. 73302, 2008.

- [51] M. Boselli, V. Colombo, E. Ghedini, M. Gherardi, R. Laurita, a. Liguori, P. Sanibondi, and a. Stancampiano, "Schlieren high-speed imaging of a nanosecond pulsed atmospheric pressure non-equilibrium plasma jet," *Plasma Chem. Plasma Process.*, vol. 34, no. 4, pp. 853–869, 2014.
- [52] D. Riès, G. Dilecce, E. Robert, P. F. Ambrico, S. Dozias, and J.-M. Pouvesle, "LIF and fast imaging plasma jet characterization relevant for NTP biomedical applications," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 47, no. 27, p. 275401, 2014.
- [53] S. Iseni, a Schmidt-Bleker, J. Winter, K.-D. Weltmann, and S. Reuter, "Atmospheric pressure streamer follows the turbulent argon air boundary in a MHz argon plasma jet investigated by OH-tracer PLIF spectroscopy," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 47, no. 15, p. 152001, 2014.
- [54] S. Zhang, a Sobota, E. M. van Veldhuizen, and P. J. Bruggeman, "Gas flow characteristics of a time modulated APPJ: the effect of gas heating on flow dynamics," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 48, no. 1, p. 15203, 2015.
- [55] M. Foletto, V. Puech, J. Fontane, L. Joly, and L. C. Pitchford, "Evidence of the Influence of Plasma Jets on a Helium Flow into Open Air," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, vol. 42, no. 10, pp. 2436–2437, 2014.

Chapitre IV. Étude de la propagation du plasma dans le capillaire diélectrique

Dans ce chapitre, nous étudierons les mécanismes de propagation du plasma dans le capillaire diélectrique, dans le cas d'un jet libre. Nous caractériserons tout d'abord sa propagation par l'évolution temporelle des composantes longitudinale et radiale du champ électrique, le long du capillaire. L'évolution temporelle des deux composantes permet de distinguer le champ électrique associé au front d'ionisation et celui de la colonne plasma dans son sillage. Nous étudierons ensuite l'influence du mélange de différentes concentrations d'azote dans l'hélium, sur la dynamique de propagation du front d'ionisation, par une étude expérimentale appuyée d'un modèle numérique. Ce modèle a été développé dans le cadre d'une collaboration avec le LPP (Anne Bourdon (LPP), François Péchereau (CERFACS), Pedro Viegas (LPP)). Notre étude met en lumière le rôle de la cinétique de la colonne dans la dynamique de propagation du front d'ionisation et l'évolution du champ électrique local du front d'ionisation.

1. Etat de l'art

1.1 Mesure du champ électrique dans les jets de plasma froid à pression atmosphérique

Peu d'études expérimentales ont été réalisées sur la mesure du champ électrique dans les jets de plasma froid à pression atmosphérique. Une des premières mesures sans doute rapportée dans la littérature fut effectuée par Shashurin et al [1]. Le jet plasma utilisé était alimenté par une tension sinusoïdale pour des amplitudes inférieures à 10 kV, à une fréquence de 25 kHz. Un anneau métallique était placé autour de la plume plasma. Lorsque le potentiel appliqué à l'anneau était suffisant, la propagation du plasma était stoppée. En se basant sur l'hypothèse de la propagation d'un streamer isolé (cf. chapitre I section 2.2) la valeur du champ électrique en tête de streamer était déduite du potentiel appliqué. Les auteurs déduisaient une valeur de l'ordre de 100 kV/cm.

Cette méthode est simple de mise en œuvre, se basant donc uniquement sur des considérations électrostatiques, mais se heurte néanmoins à un certain nombre de limitations. Elle est d'une part intrusive, puisque la simple présence d'un corps conducteur au voisinage de la plume plasma peut modifier la distribution des lignes de champ, perturber le développement du plasma et changer la valeur du champ électrique que l'on cherche à mesurer. Il a été également montré que l'hypothèse du streamer cathodique isolé de [2], n'est pas suffisante pour décrire la propagation du jet, car la colonne plasma résiduelle subsistant après le passage du front d'ionisation le relie à l'électrode haute tension (chapitre I, section 3.2.2). Quelques équipes avaient entrepris de mesurer la résistivité et la chute de potentiel le long de la colonne [1],[3], mais le caractère intrusif de la mesure rendait également l'interprétation délicate.

Sobota et al [4] ont réalisé la première mesure de l'amplitude du champ électrique sur la surface d'un diélectrique en contact avec un jet de plasma d'hélium. La mesure est basée sur l'effet Pockels. L'alimentation du jet délivrait une tension sinusoïdale de 2 kV, répétée à une fréquence de 30 kHz. Nous reviendrons sur cette étude dans le chapitre V, consacré à l'interaction du jet avec une cible. Les auteurs ont mesuré des champs d'amplitude maximale de 11,6 kV/cm.

Stretenovic et al ont développé une méthode non intrusive par spectroscopie d'émission [5], [6], récemment appliquée sur un jet d'hélium à pression atmosphérique [7], [8]. La méthode est basée sur l'analyse des transitions interdites dans l'atome d'hélium, par spectroscopie Stark polarisée. Le jet était alimenté par un générateur délivrant une tension sinusoïdale de 4 kV d'amplitude, à une fréquence de 12,65 kHz. Les mesures étaient effectuées seulement sur la partie positive du signal. La plume plasma était sondée avec une résolution temporelle entre 20 et 500 ns. Le type de polarisation utilisée permettait de déduire l'amplitude du champ électrique dans la direction longitudinale (sens de propagation du jet). Des champs d'amplitudes comprises entre 10 et 20 kV/cm ont été mesurés.

Des méthodes offrant des résolutions temporelles plus élevées encore ont été appliquées récemment par Goldberg et al [9] (DBD plane). La méthode repose sur la spectroscopie d'absorption et est appelée mélange à 4 ondes. Elle offre une résolution temporelle sub-nanoseconde de l'évolution du champ électrique. Le champ était mesuré pour une décharge plan - plan pulsée nanoseconde, dans l'hydrogène à une pression de 440 Torr. Il est important de noter que les mesures de champs de [9] ont été réalisées pour des impulsions de tensions de polarité positives et négatives, avec des valeurs proches dans les deux cas. Des champs longitudinaux d'amplitudes maximales comprises entre 15 et 20 kV/cm ont été mesurés. L'excellente résolution temporelle de la méthode leur a permis de résoudre la phase de breakdown après application de la tension et la diminution du champ après celle-ci. La technique a été récemment appliquée pour une onde d'ionisation se propageant en surface [10], sur deux composantes orthogonales du champ électrique.

1.2 Champ électrique et propagation du plasma

Une caractéristique notable des jets de plasma froid à pression atmosphérique est de pouvoir propager le plasma sur des distances importantes, bien au-delà de la zone de génération à l'électrode. Nous avons vu au chapitre I (section 3.4) que de nombreuses études expérimentales ont été réalisées, depuis les premiers jets, sur les mécanismes de propagation du plasma. Pour étudier la propagation du front d'ionisation, la lumière émise par ce dernier s'avère être un outil commode, accessible par l'imagerie ICCD rapide ou par un tube photomultiplicateur et des fibres optiques. Les techniques de mesures du champ électrique que nous avons présentées en partie précédente ne sont a priori pas applicables pour suivre la propagation du plasma sur de grandes distances.

La visualisation de l'évolution du champ électrique, relativement à la propagation du plasma, est une donnée accessible par simulation numérique. Le modèle développé par Kushner et al [11], pour une configuration proche du Plasma Gun, simule notamment la propagation du plasma,

principalement dans un tube flexible de 15 cm de long pour 600 μm de large. La décharge est initiée dans un mélange néon-xéon (99,9 % Ne, 0,1 % Xe) avec une impulsion de tension ns. Il a été notamment montré que l'amplitude du champ électrique était maintenue constante sur toute la longueur de propagation, même pour des longueurs de 50 cm. La Figure IV-1, issue de [11] (p.5), montre un tracé vectoriel du champ électrique en fonction de la position du front d'ionisation. Nous pouvons voir qu'en amont du front existe un champ essentiellement longitudinal tandis que le champ est radial dans la colonne plasma, derrière le front. Il est expliqué que la configuration longitudinale du champ en aval du front est nécessaire à sa propagation, tandis que le basculement radial est lié notamment au dépôt de charges sur les parois.

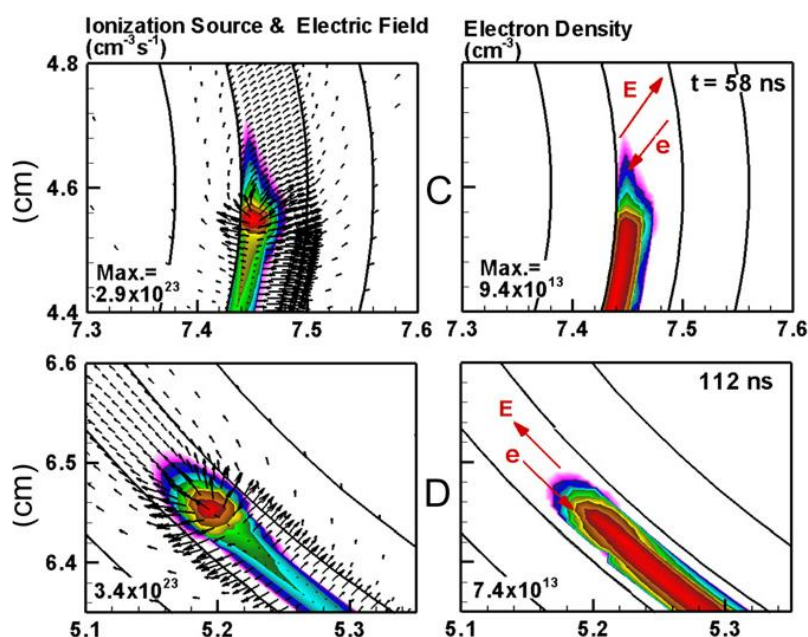


Figure IV-1 : tracé vectoriel du champ électrique à une position donnée du front d'ionisation. Les vecteurs champs électriques sont représentés par une flèche noire sur la colonne de gauche. (issue de [11] (p.5)).

Un paramètre influant fortement sur la propagation du plasma est la polarité de la tension appliquée. De nombreuses études ont mis en évidence des différences de structure et de vitesse de propagation du plasma, entre une polarité de tension appliquée positive ou négative. Dans la majorité des cas, les vitesses de propagation sont plus importantes en polarité positive qu'en polarité négative [12],[13],[14], ce qui est similaire à ce qui est décrit pour le comportement des streamers non confinés dans l'air [15]. Pour expliquer les différences observées, des hypothèses sur l'influence du champ électrique ont été formulées. Dans [14], Naidis expliquait que le champ électrique en tête de streamer était plus élevé en polarité positive qu'en polarité négative. En revanche, il montrait que le champ électrique est supérieur dans le canal du streamer négatif, comparé au positif. Il expliquait également que ces différences de valeurs du champ électrique amenaient à une émission de lumière globale dans tout le canal en polarité négative, alors que la lumière était émise localement au voisinage de la tête du streamer en polarité positive.

Dans le modèle de Kushner et al [11], ainsi que dans les observations de Robert et al [16], la dépendance de la vitesse quant à la polarité de la tension appliquée était typiquement inverse, avec des vitesses de propagation plus élevées en polarité négative. Dans [11], il était expliqué que le caractère confiné de la décharge influait sur sa propagation et entraînait une augmentation de la vitesse en polarité négative (« focusing effect »), comparée à la polarité positive.

Une autre approche expérimentale a été développée par Walsh et al [17], pour étudier l'effet du champ électrique sur la propagation du plasma. Cette approche est intéressante car elle se démarque par sa démarche. Elle ne consistait pas à mesurer directement le champ électrique dans le plasma, mais plutôt à observer l'influence de champs électriques extérieurs sur la dynamique de propagation. L'équipe avait travaillé avec une décharge d'hélium dans un capillaire de 50 cm de long (2 mm de diamètre interne), alimentée par des impulsions de tension rectangulaires de durée μs variable, appliquées sur une électrode externe en anneau glissée sur le tube. L'originalité du dispositif résidait dans le fait d'adjoindre à l'électrode principale des électrodes supplémentaires le long du capillaire, sur lesquels peuvent être appliquées indépendamment des impulsions de tensions à des délais choisis. Dans leur géométrie de décharge, les auteurs indiquaient qu'un champ électrique extérieur, dû à l'application de la tension sur l'électrode, environnait une partie du capillaire au-delà de l'électrode. En configuration électrode unique, ils observaient une augmentation de la vitesse de propagation du front d'ionisation pour des tensions de plus en plus élevées appliquées sur l'électrode, phénomène également observé par de nombreuses équipes [16],[18],[19],[20]. Dans leur géométrie, ils interprétaient ce phénomène par le fait que le champ électrique externe aidait la propagation du front d'ionisation en exerçant une force sur le front, ce qui selon eux augmentait sa vitesse de propagation.

Dans la configuration à deux électrodes (4,2 cm d'écart entre les électrodes), ils observaient qu'en appliquant une impulsion de tension sur la seconde électrode à différents délais par rapport à la première (donc pour différentes positions du front d'ionisation), la vitesse de propagation pouvait être considérablement diminuée (front d'ionisation au milieu des deux électrodes), voir complètement stoppée (front d'ionisation proche de la première électrode). De plus, si la tension était appliquée à des délais supérieurs à celui du passage du front à la seconde électrode, ils observaient que la vitesse et la longueur de propagation étaient considérablement augmentées. Dans une configuration multi électrode, en jouant sur les délais d'application des impulsions de tension à chaque électrode par rapport à la propagation du front d'ionisation, ils observaient que la distance de propagation pouvait être considérablement augmentée. Nous reviendrons plus en détail en partie 2 (plus spécifiquement section 2.5) sur l'interprétation de leurs résultats, à la lumière de notre étude sur les composantes du champ électrique associées à la propagation du plasma.

Leur méthode permettait donc un contrôle de la vitesse et de la longueur de propagation du front d'ionisation, dont les auteurs précisaient qu'elles étaient accompagnées de variations d'intensité lumineuse. Nous verrons en partie 3, dans nos conditions expérimentales, que nous pouvons par ailleurs moduler la vitesse de propagation du front d'ionisation, ainsi que sa distance de propagation, sans modifier ni la géométrie de la décharge, ni les paramètres électriques du

générateur, mais uniquement en procédant à des mélanges de différentes concentrations d'azote dans l'hélium.

1.3 Organisation du chapitre

Les techniques de mesure du champ électrique dans les jets de plasma froid à pression atmosphérique présentées en partie précédente ne permettent pas de suivre la propagation du plasma, aspect dévolue aux modèles numériques. Par sonde électro-optique, notre dispositif de mesure du champ électrique présenté au chapitre II (partie 4), nous avons réalisé la première étude expérimentale de la dynamique de propagation du plasma (front d'ionisation et colonne) par l'évolution temporelle de deux composantes orthogonales du champ électrique, le long du capillaire. Ces résultats seront notamment comparés aux prédictions du modèle numérique de [11]. Ces observations mettront à nouveau en valeur la connexion du front d'ionisation à l'électrode interne par la colonne plasma. Par ailleurs, nous montrerons également que les aspects de la cinétique réactionnelle de la décharge dans la colonne sont importants pour la dynamique de propagation du front d'ionisation et l'évolution du champ électrique, en procédant à une étude expérimentale et numérique de la dynamique de la propagation avec des mélanges hélium-azote.

Ce chapitre sera donc organisé comme suit :

- **La partie 2** traitera en détail des mesures de champ électrique par sonde électro-optique. Les évolutions temporelles des composantes longitudinales et radiales du champ électrique, le long du capillaire, nous ont permis de résoudre la dynamique de propagation du plasma.
- **La partie 3** présentera notre étude sur la modification de la vitesse de propagation du front d'ionisation dans le capillaire par des mélanges de faibles concentrations d'azote dans l'hélium. Une comparaison entre expérience et modèle numérique mettra en évidence le rôle de la cinétique réactionnelle dans les phénomènes observés. Une comparaison directe du champ électrique mesuré à l'extérieur du capillaire et simulé au même endroit sera de plus effectuée. Par le calcul, le modèle met en évidence la dépendance de l'amplitude du champ électrique du front d'ionisation à la concentration d'azote, *in situ*, à l'intérieur du capillaire. Ces résultats ont été publiés dans [21].

2. Évolution temporelle des composantes longitudinale et radiale du champ électrique du PAPS le long du capillaire

Dans cette partie, nous caractériserons l'évolution temporelle des composantes longitudinale et radiale du champ électrique, relativement à la propagation du plasma dans le capillaire. Nous procéderons pour différentes longueurs de capillaires, amplitudes et polarités d'impulsions de tension. Nous étudierons également l'évolution des deux composantes pour une décharge dans le néon.

2.1 Dispositif expérimental

La méthode de mesure du champ électrique par la sonde électro-optique a été décrite dans le chapitre II en section 4. Nous rappelons que ce dispositif nous permet de visualiser simultanément l'évolution temporelle de deux composantes orthogonales du champ électrique. En orientant le cristal de façon appropriée, nous pouvons observer l'évolution de la composante longitudinale du champ électrique (dans la direction de propagation du plasma) ainsi que celle de la composante radiale, perpendiculaire. Nous adopterons les notations E_x pour la composante longitudinale et E_r pour la composante radiale.

En déplaçant la sonde le long du capillaire, nous pouvons visualiser l'évolution temporelle de E_x et E_r à chaque position. La Figure IV-2 rappelle le placement et l'orientation de la sonde le long du capillaire. Nous rappelons que la protection en alumine de la sonde est toujours distante de 1 mm de la paroi du capillaire, lorsque la sonde est déplacée verticalement. La sonde n'est donc jamais directement en contact du plasma ou du capillaire. La présence de la sonde à cette distance ne perturbe pas la propagation du plasma et aucune modification de la vitesse de propagation du front d'ionisation et du spectre d'émission du plasma n'ont été relevées. Nous pouvons donc considérer que cette méthode de mesure du champ électrique est non intrusive et non perturbative.

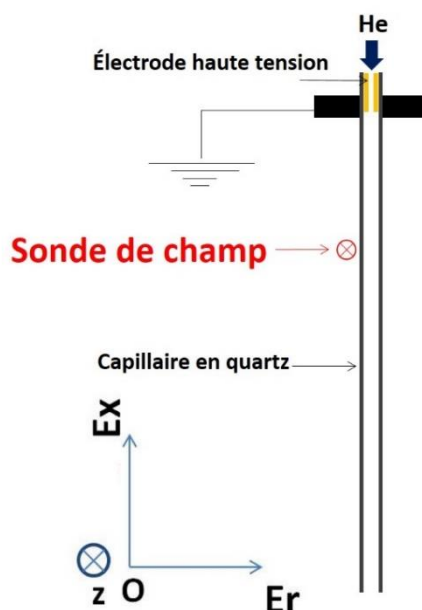


Figure IV-2 : schéma du positionnement et de l'orientation de la sonde de champ le long du capillaire du Plasma Gun

2.2 Mesure préliminaire : évolution du champ électrique sans plasma

Dans un premier temps, nous avons réalisé une mesure sans plasma afin de simplement visualiser l'évolution du champ électrique résultant de l'application de la tension sur l'électrode interne. Ce champ laplacien résulte donc du gradient du potentiel appliqué sur l'électrode interne et de la

position de l'électrode de masse. Dans un souci de simplification, nous nommerons par la suite ce champ « champ électrique de l'électrode interne ». Pour étendre ce champ dans l'espace, nous avons modifié la configuration du plasma gun (Figure IV-3). En effet, en configuration classique, (Figure IV-2), l'électrode de masse externe est quasiment alignée avec l'extrémité de l'électrode interne. Dans cette configuration, les lignes de champ sont donc essentiellement confinées dans la région réduite de l'espace entre les deux électrodes. Pour étendre le champ, nous avons choisi d'éloigner l'électrode de masse de 6 cm de l'électrode interne. De cette manière, le champ est étendu dans toute la région entre les deux électrodes.

Nous avons appliqué sur l'électrode interne une impulsion de tension de 14 kV d'amplitude, répétée à 1 kHz, en polarités positive et négative, sans injecter de gaz. Le profil temporel de l'impulsion est illustré en Figure IV-3 en polarité positive.

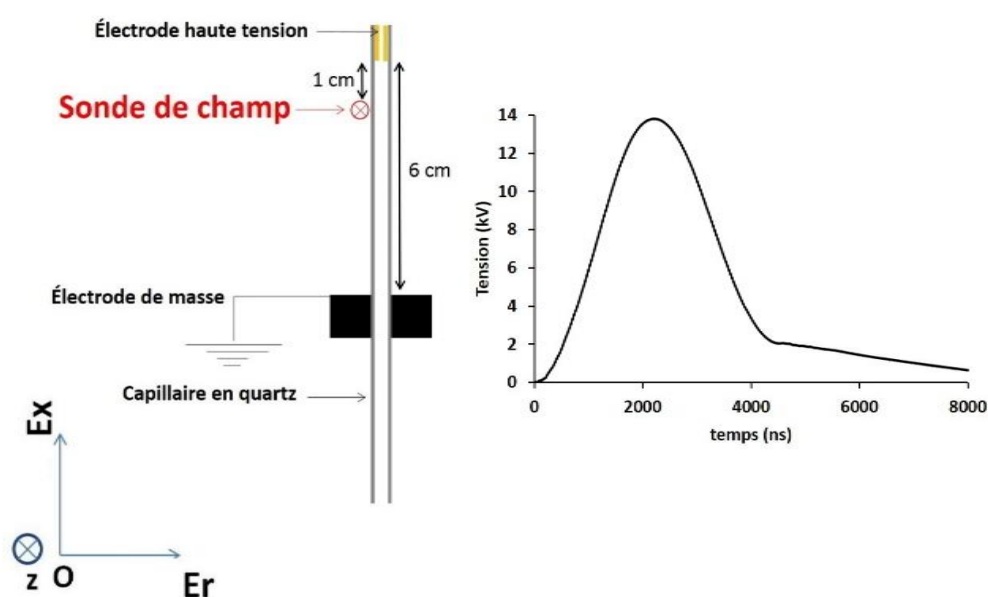


Figure IV-3 : configuration du Plasma Gun et du placement de la sonde pour mesurer l'évolution du champ électrique de l'électrode interne (E_z : composante longitudinale, parallèle au capillaire, E_r : composante radiale, perpendiculaire au capillaire).

La Figure IV-4 montre l'évolution temporelle des composantes longitudinale et radiale du champ électrique mesuré.

Les évolutions en polarités positive et négative sont les mêmes, mais inversées l'une par rapport à l'autre. L'évolution temporelle du signal, dans une polarité donnée, est corrélée à l'évolution temporelle de l'impulsion de tension $V(t)$. La valeur de la composante longitudinale atteint son maximum à environ 2,5 kV/cm, tandis que le potentiel croît. Lorsque le potentiel s'approche de la valeur maximale, la pente est plus faible, jusqu'au plateau où la valeur reste constante. La composante E_z diminue donc jusqu'à s'annuler. Lorsque le potentiel décroît, E_z change de signe et suit une évolution symétrique à sa première phase, jusqu'au moment de la cassure sur l'évolution de $V(t)$. E_z décroît alors régulièrement jusqu'à s'annuler. Pour la polarité négative, l'évolution est la même au signe près.

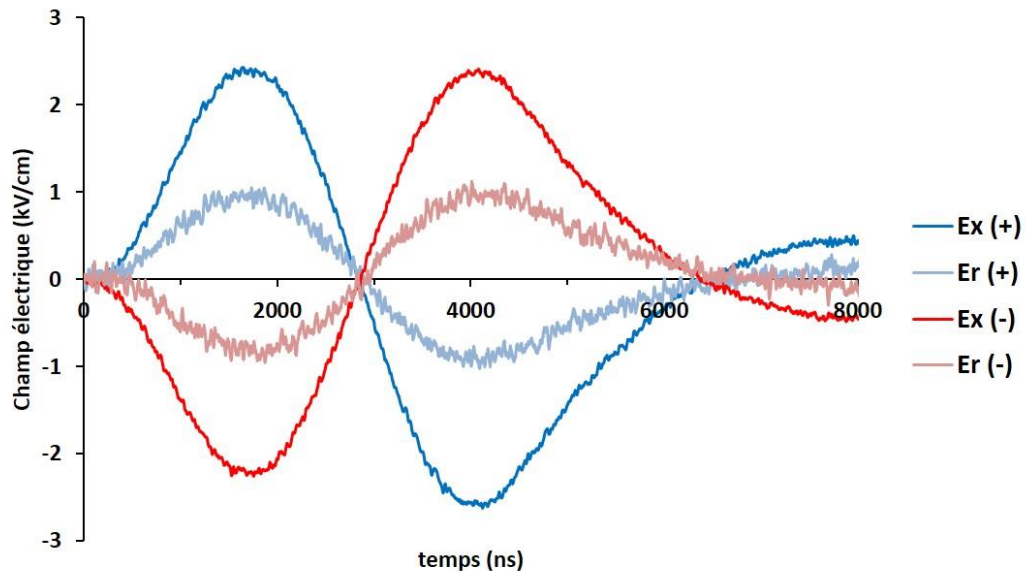


Figure IV-4 : évolution temporelle des composantes longitudinale (E_x) et radiale (E_r) du champ électrique de l'électrode interne (sans plasma)

Il est à noter que dans cette configuration géométrique, le champ possède également une faible composante radiale à l'endroit où est positionnée la sonde, du fait de la courbure locale des lignes de champ au voisinage des électrodes (haute tension ou masse). Dans une région suffisamment éloignée des électrodes, les lignes de champ sont quasi parallèles au capillaire et le champ est donc purement longitudinal.

2.3 Mesures pour un capillaire de 12 cm de longueur

2.3.1 Évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique le long du capillaire

Nous utilisons un capillaire de 12 cm de longueur tel que sur la Figure IV-2. De l'hélium est injecté à un débit de 1 l/min. L'impulsion de tension est de 16 kV d'amplitude, répétée à une fréquence de 1 kHz. Dans un premier temps, nous avons placé la sonde de champ aux positions 2 cm, 5 cm et 8 cm. Les positions sont repérées par rapport à l'extrémité de l'électrode de masse. Aux mêmes positions, trois fibres optiques reliées à un tube photomultiplicateur (PMT) visualisent le passage du front d'ionisation (dispositif présenté au chapitre II, section 2.1).

La Figure IV-5 montre l'évolution de la composante E_x pour les trois positions de la sonde, ainsi que les pics des signaux du PMT pour ces mêmes positions. Les pics du PMT sont synchronisés avec les maxima de E_x à chacune des positions. Les évolutions de E_x enregistrées sont donc cohérentes avec la propagation du front d'ionisation dans le capillaire. Dans le cas de la polarité positive, la composante longitudinale en tête du front d'ionisation doit être négative, tel que décrit dans la théorie classique du streamer. Par soucis de lecture, nous avons ici tracé les composantes E_x positives.

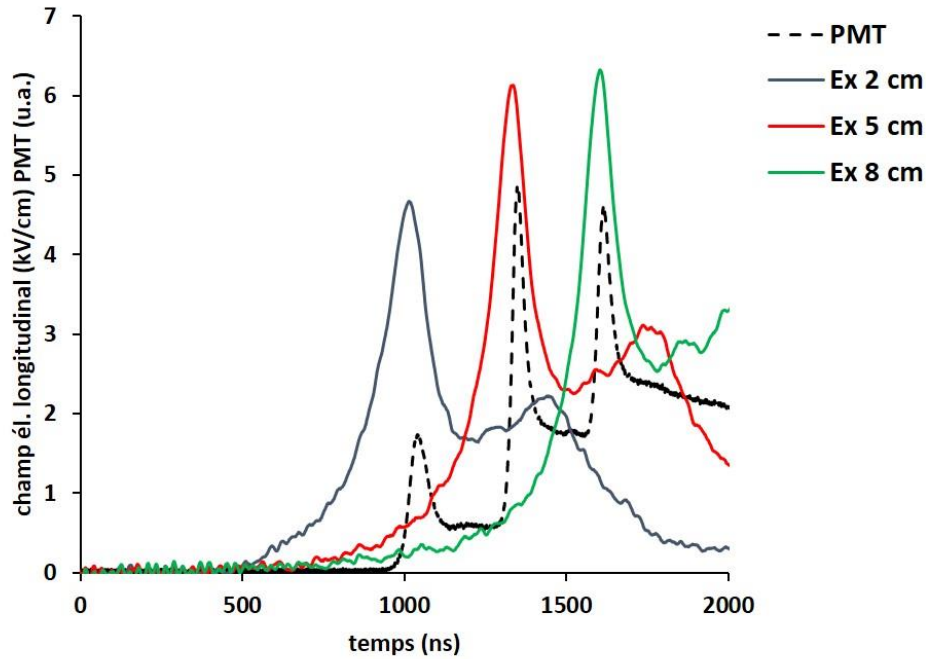


Figure IV-5 : évolution temporelle de la composante longitudinale du champ électrique pour trois positions le long du capillaire. Les pics du PMT indiquent le passage du front d'ionisation devant trois fibres optiques aux mêmes positions (16 kV, polarité positive). Les signes des composantes longitudinales sont inversés sur la figure.

Nous pouvons voir par ailleurs que le champ augmente avant que la lumière du front ne parvienne à la fibre. En effet, à la position 2 cm, la lumière du front arrive environ à l'instant 1000 ns. Or, la sonde située à 2 cm voit Ex augmenter 500 ns plus tôt. Cela implique donc que devant la lumière visible du front, la composante longitudinale existe dans une région relativement étendue de l'espace. Nous décrirons à la Figure IV-8 une méthode pour déterminer précisément son étendue spatiale.

Nous pouvons voir une évolution de l'amplitude de Ex en fonction de la position de la sonde. Pour la sonde située à 2 cm, l'amplitude maximale de Ex est proche de 5,0 kV/cm. Aux deux positions suivantes, les maxima de Ex sont proches de 6,0 kV/cm. Comme expliqué au second chapitre (section 4), nous estimons qu'un écart de plus de 0,5 kV/cm est significatif.

La Figure IV-6 montre les évolutions des mêmes composantes longitudinales Ex superposées aux composantes radiales Er. Les composantes sont tracées avec les signes mesurés : la longitudinale est négative, la radiale est positive.

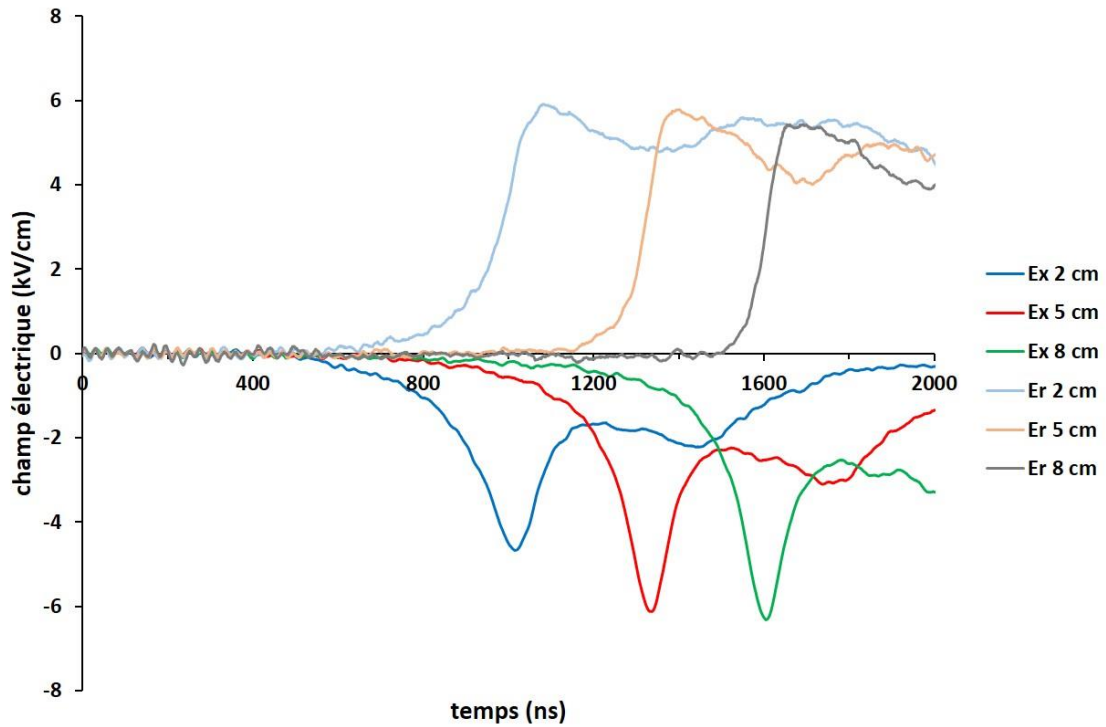


Figure IV-6 : évolution temporelle des composantes longitudinale et radiale du champ électrique pour trois positions de la sonde le long du capillaire (16 kV, polarité positive).

Nous pouvons voir que les composantes E_x et E_r sont synchronisées. En revanche, contrairement aux composantes E_x , les composantes E_r augmentent de manière extrêmement brusque, à un temps proche des maxima des composantes E_x . On peut noter que les maxima des composantes E_r (environ 6 kV/cm) sont atteints systématiquement plus tard que ceux des composantes E_x (50 ns plus tard en moyenne). De plus, les amplitudes des composantes E_r sont maintenues à une valeur élevée et stable sur des temps longs. Cela signifie donc que la composante E_r est initiée après la composante E_x , au voisinage du front d'ionisation, et qu'elle est ensuite maintenue après son passage, par la colonne plasma. Ces observations confirment donc la prédiction du modèle de [11] (Figure IV-1). Nous pouvons donc affirmer que la synchronisation entre le maximum de E_x et la brusque augmentation de E_r signe, sans ambiguïté, le passage du front d'ionisation.

La composante longitudinale diminue rapidement après le passage du front d'ionisation, cependant le potentiel de l'électrode interne, qui se transmet par le biais de la colonne plasma, génère également une faible composante longitudinale, après le passage du front.

Le fait que la composante longitudinale existe en aval du front d'ionisation et que la composante radiale soit maintenue après son passage peut être illustré en raisonnant d'un point de vue électrostatique, comme le montre la Figure IV-7.

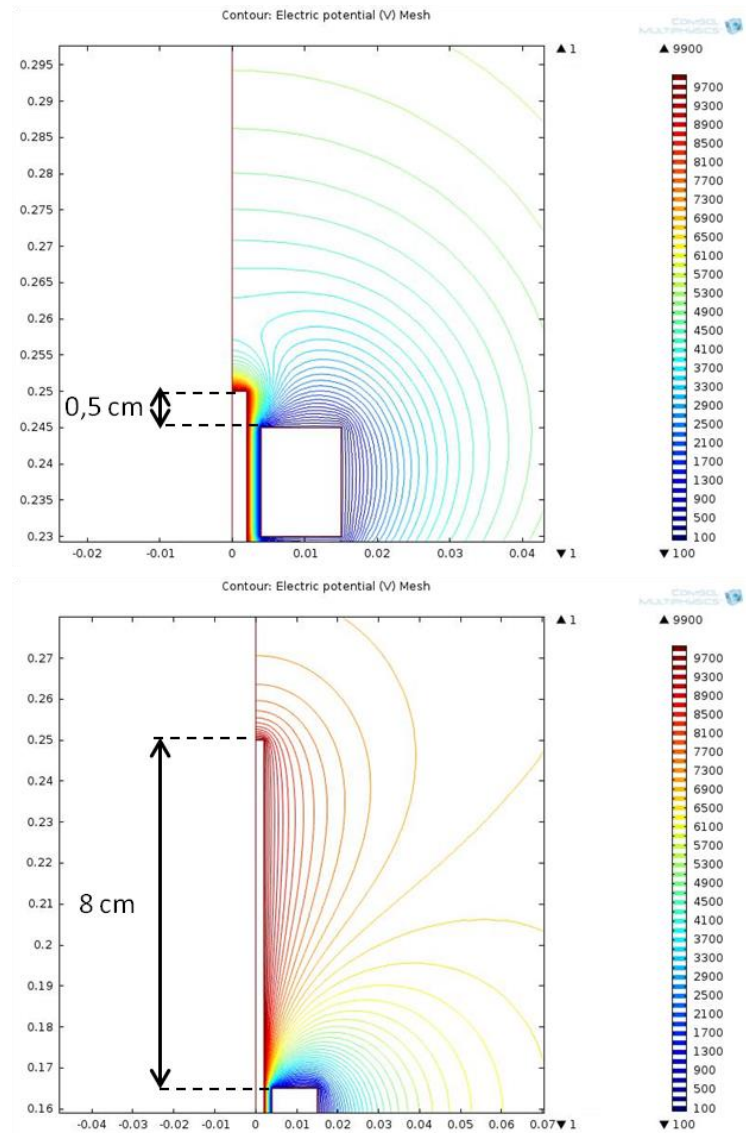


Figure IV-7 : distribution des lignes équipotentiellles du champ électrique dans une géométrie simplifiée de notre dispositif expérimental.

Nous avons utilisé COMSOL Multiphysics® pour résoudre l'équation de Poisson et calculer la distribution des lignes équipotentiellles du champ électrique, dans une géométrie approchant la nôtre. En travaillant dans un domaine 2D axisymétrique, nous avons appliqué un potentiel fixe de 10 kV sur une tige métallique, que nous considérons ici comme notre colonne plasma. L'électrode de masse est représentée par un rectangle métallique éloignée de 1 mm de la tige et fixé au potentiel nul. Le tout est plongé dans l'air de constante diélectrique unité. Nous avons fait varier la distance de la tige métallique par rapport à l'électrode de masse, illustrant ainsi de manière simplifiée la propagation du plasma et sa colonne résiduelle, connectée à l'électrode haute tension.

Nous pouvons donc voir qu'en raison de la distribution des lignes équipotentiellles le long de la « colonne », le champ est radial. Le fait que la composante radiale soit maintenue sur des temps long, ici μs , montre que la colonne plasma derrière le front d'ionisation est connectée à l'électrode sur laquelle est appliquée l'impulsion de tension, de durée μs . Ce qui a donc été observé en étudiant

la lumière du PAPS par imagerie rapide [16], est ici illustré d'une autre manière par le comportement du champ électrique.

En aval du « front d'ionisation », le champ ne peut être que longitudinal en raison de la distribution des équipotentiellles. Si le front est proche de l'électrode de masse, nous pouvons voir que les équipotentiellles sont significativement déformées avec une forte courbure. Nous pouvons également voir ce phénomène sur la Figure IV-6. En effet, lorsque la sonde est à 2 cm de l'électrode de masse, nous pouvons voir que les composantes E_x et E_r commencent à augmenter quasiment simultanément, ce qui n'est pas le cas aux positions 5 cm et 8 cm. Le champ est donc en partie radial et longitudinal, ce que traduit sa courbure due à la proximité de l'électrode de masse.

La Figure IV-8 montre, dans les mêmes conditions, l'évolution de la composante longitudinale le long du capillaire pour dix positions de la sonde, espacées chacune de 1 cm.

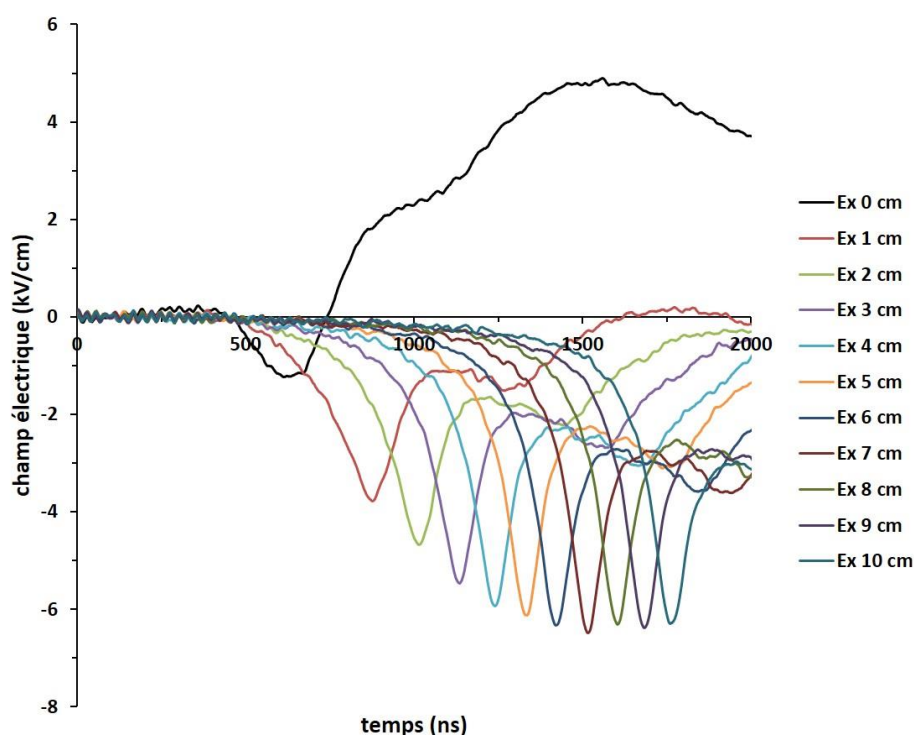


Figure IV-8 : évolution temporelle de la composante longitudinale du champ électrique pour dix positions de la sonde le long du capillaire (16 kV, polarité positive).

A proximité immédiate de l'électrode de masse (position 0 cm), le champ laplacien est de forte amplitude (5 kV/cm à 1500 ns). Ce champ existe donc indépendamment de la présence du plasma, comme nous l'avons décrit en Figure IV-4. La différence avec la Figure IV-4 réside dans la position de l'électrode de masse par rapport à l'électrode interne. En effet, le champ reste ici localisé au voisinage immédiat de l'électrode de masse uniquement. La contribution E_x du front d'ionisation est négative et est visible entre 500 et 700 ns. La valeur du champ mesurée à cette position est donc la somme de deux champs de signe opposé : le champ laplacien décrit précédemment (ici aux instants compris entre 500 ns et 700 ns) et le champ local dû au front d'ionisation. La somme des deux champs s'élève à 1 kV/cm.

A la position 1 cm, nous pouvons voir que la valeur de E_x au passage du front d'ionisation à l'instant 870 ns est d'environ 4 kV/cm, soit quatre fois plus élevée. A cette position, il est important de noter que sans plasma, aucun champ n'est mesurable par la sonde. Le champ vu par cette dernière à l'instant 870 ns résulte donc de la seule contribution du champ associé au front. Aux instants ultérieurs, l'évolution de la composante résulte du potentiel transmis par la colonne plasma.

Nous pouvons voir que pour les positions plus éloignées de la sonde, la valeur du champ local évolue plus faiblement (4,6 kV/cm, 5,4 kV/cm, 5,9 kV/cm à respectivement 2 cm, 3 cm et 4 cm. Les maxima des E_x sont stabilisés aux alentours de 6 kV/cm, à partir de 4 cm jusqu'à 10 cm. Ce comportement se comprend par l'observation des composantes radiales associées, ce que montre la Figure IV-9. En effet, l'augmentation des composantes radiales devient brutale vers la position 4 cm. Comme précédemment expliqué, cela indique que l'électrode de masse ne courbe plus significativement les lignes de champs à partir de cette position. Le champ reste donc purement longitudinal en aval du front, puis essentiellement radial après son passage.

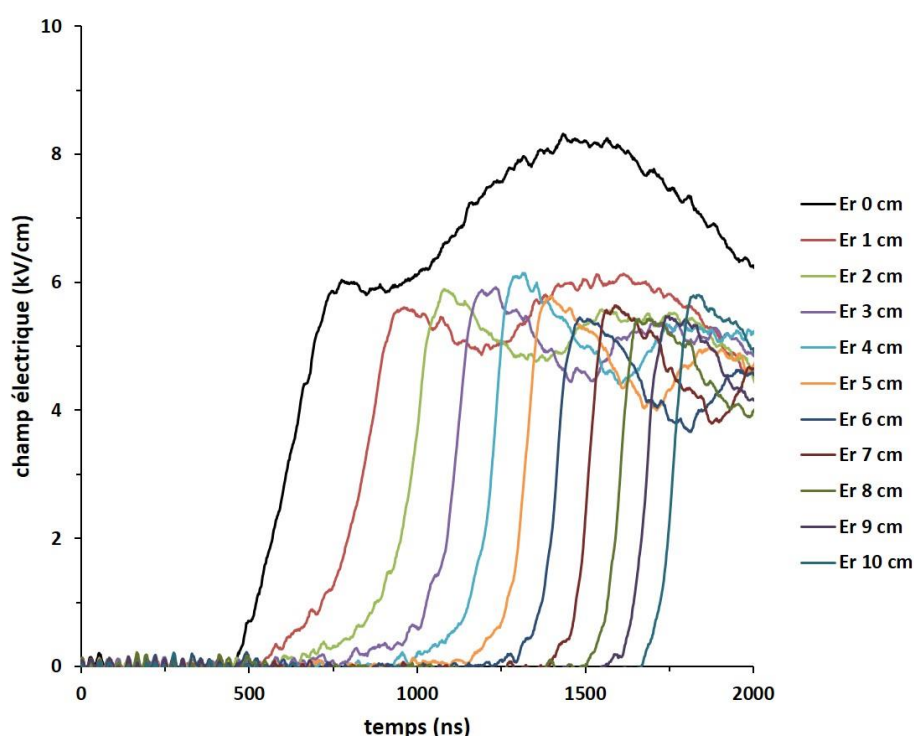


Figure IV-9 : évolution temporelle de la composante radiale du champ électrique pour dix positions de la sonde le long du capillaire (16 kV, polarité positive).

Nous pouvons noter qu'au plus proche de l'électrode de masse, les contributions positives du champ laplacien de l'électrode et du champ de la colonne s'additionnent. Les maxima au voisinage du front d'ionisation restent stables aux alentours de 6 kV/cm, à toutes les positions.

Pour les Figure IV-8 et Figure IV-9, nous avons indiqué que la tension appliquée était de 16 kV. Cette valeur désigne le maximum d'amplitude de l'impulsion de tension, ce qui correspond à un temps proche de 2 μ s. Cette valeur n'est donc pas représentative de la tension à l'électrode interne dans l'intervalle de temps entre l'initiation de la décharge (650 ns) et la propagation du front d'ionisation jusqu'à l'extrémité du capillaire (1760 ns). En l'occurrence, dans ces conditions, le maximum de l'impulsion de tension n'est même jamais atteint au cours de la propagation du front d'ionisation. Il

est donc plus juste de se référer à la valeur « instantanée » de la tension à l'électrode interne, relativement au temps de propagation du front d'ionisation.

Le Tableau IV-1 montre l'évolution de la tension instantanée à l'électrode interne à partir de la position 4 cm, à partir de laquelle les maxima de E_x sont stabilisés. Le temps est donc relevé pour chaque maxima de E_x , correspondant à une valeur de tension instantanée précise à l'électrode interne. Nous pouvons donc voir qu'entre les positions 4 cm et 10 cm, la tension instantanée évolue de 9,4 à 14,3 kV/cm, tandis que les valeurs des maxima de E_x et E_r sont stables. Le fait que l'amplitude du champ local du front d'ionisation se maintienne le long de la propagation est un phénomène qui a également été prédit dans [11]. De plus, nos observations tendent également à montrer que la valeur du champ local du front d'ionisation semblerait peu influencée par la valeur de la tension à l'électrode interne.

Toutefois, nous devons préciser qu'il existe une chute de potentiel propre à la résistivité de la colonne plasma, comme il a été montré dans [11] notamment (de l'ordre du kV/cm). Dans notre cas, la combinaison de l'augmentation du potentiel de l'électrode interne au cours du temps (environ 1 kV supplémentaire tous les cm, compte tenu de la vitesse de propagation du front) et de la chute le long de la colonne (~1 kV/cm) pourrait aboutir à un certain équilibre du potentiel le long du capillaire, ce qui peut rendre plus complexe l'interprétation de la valeur du champ électrique local du front d'ionisation.

Position (cm)	Tension instantanée (kV)	Max E_x (kV/cm)	Max E_r (kV/cm)
4	9,4	5,9	6,0
5	10,4	6,1	5,7
6	11,4	6,3	5,4
7	12,4	6,4	5,5
8	13,2	6,3	5,4
9	13,9	6,3	5,4
10	14,3	6,3	5,7

Tableau IV-1 : évolution de la tension instantanée et des maxima des composantes longitudinale et radiale du champ électrique le long du capillaire (polarité positive).

Enfin, concernant l'extension spatiale de la composante longitudinale en aval du front d'ionisation, nous pouvons directement la déterminer d'après la Figure IV-8. En effet, si l'on considère par exemple la courbe E_x 3 cm, le front d'ionisation est localisé à la position 3 cm à l'instant 1100 ns (maximum de la courbe). Or, à ce même temps, la sonde placée à 4 cm voit déjà une composante E_x d'environ 2 kV/cm d'amplitude. Toujours au même temps, la valeur de E_x est d'environ 1 kV/cm sur la position suivante. La dernière position où du champ est perçu au temps 1100 ns est 7 cm, avec une valeur d'environ 0,5 kV/cm. Nous pouvons donc en déduire qu'à une position du front

d'ionisation donnée, la composante longitudinale du champ électrique s'étend avec une valeur significative jusqu'à environ 4 cm devant le front d'ionisation.

2.3.2 Influence de la polarité de l'impulsion de tension

Les Figure IV-10 et Figure IV-11 montrent respectivement les évolutions des composantes longitudinale et radiale du champ électrique en polarité négative, dans les mêmes conditions que la Figure IV-8. Dans cette polarité, la composante longitudinale est positive et la composante radiale est négative.

L'évolution des composantes E_x et E_r le long du capillaire est globalement similaire à ce qui a été décrit pour la polarité positive. Les amplitudes maximales sont également proches pour les deux polarités.

Il y a en revanche une nette différence dans la dynamique de propagation. À 10 cm le maximum de E_x est atteint en 1760 ns en polarité positive et 2170 ns en polarité négative, ce qui implique donc que les vitesses de propagation du front d'ionisation sont différentes (initiation de la décharge proche de 650 ns pour les deux polarités).

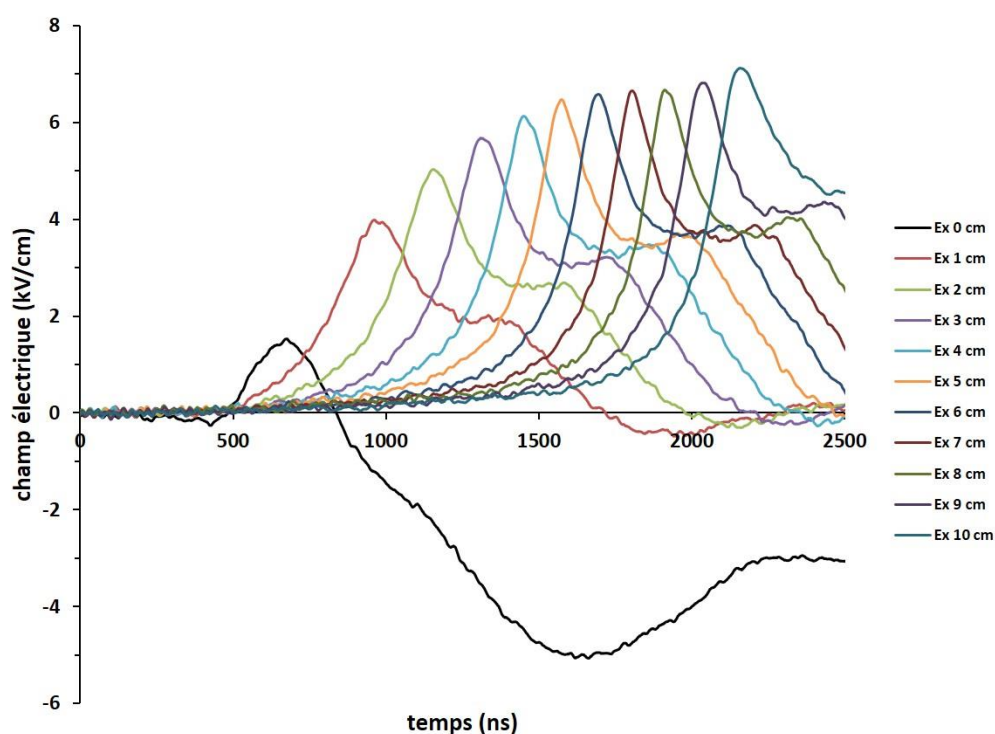


Figure IV-10 : évolution temporelle de la composante longitudinale du champ électrique pour dix positions de la sonde le long du capillaire (16 kV, polarité négative).

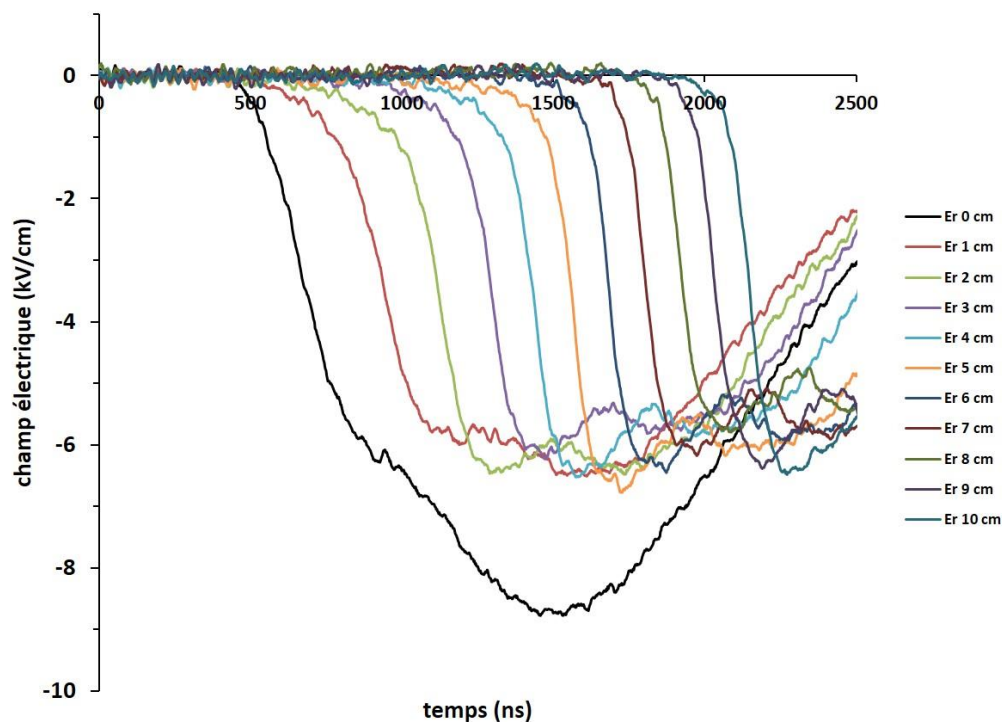


Figure IV-11 : évolution temporelle de la composante radiale du champ électrique pour dix positions de la sonde le long du capillaire (16 kV, polarité négative).

En conséquence, la tension instantanée sera donc différente de la polarité positive. Le Tableau IV-2 montre l'évolution de la tension instantanée : entre les positions 4 cm et 10 cm, la tension instantanée évolue de 11,8 kV à 15,7 kV. Le maximum de la composante semble globalement peu influencé par la valeur de la tension instantanée à l'électrode interne, le gain n'étant que de 1 kV/cm pour 4 kV supplémentaire à l'électrode. Comme pour la polarité positive, l'interprétation est rendue plus complexe par la chute de potentiel le long de la colonne plasma.

Position (cm)	Tension instantanée (kV)	Max Ex (kV/cm)	Max Er (kV/cm)
4	11,8	6,0	6,5
5	13,0	6,3	6,6
6	13,9	6,5	6,3
7	14,6	6,5	6,1
8	15,2	6,5	5,8
9	15,6	6,7	6,3
10	15,7	7,0	6,4

Tableau IV-2 : évolution de la tension instantanée et des maxima des composantes longitudinale et radiale du champ électrique le long du capillaire (polarité négative).

2.3.3 Vitesse de propagation du front d'ionisation en polarités positive et négative

Des Figure IV-8 et Figure IV-10, nous pouvons calculer la vitesse de propagation du front d'ionisation dans le capillaire (polarité positive et négative respectivement) en relevant le temps entre 2 maxima successifs de E_x , distants spatialement de 1 cm. La Figure IV-12 indique la vitesse de propagation le long du capillaire pour les deux polarités.

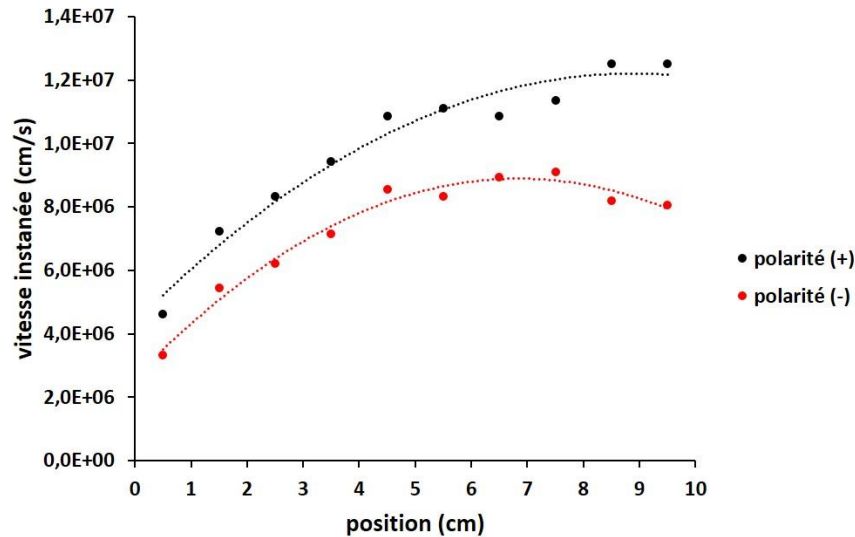


Figure IV-12 : évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire en polarités positive et négative (16 kV).

Dans le capillaire, le front d'ionisation se propage donc toujours plus vite en polarité positive qu'en polarité négative. Nous observons donc ici une dépendance à la polarité telle que le rapporte une majorité d'étude. Nous reviendrons à la fin du chapitre sur les observations de [16] quant à l'effet de polarité sur la vitesse de propagation.

Si l'on compare les deux profils de vitesse, nous pouvons voir que la vitesse est croissante tout le long du capillaire en polarité positive. En polarité négative, la vitesse de propagation diminue en fin de capillaire. Ceci est la conséquence de l'évolution de l'impulsion de tension, relativement au temps de propagation du plasma. En effet, en polarité positive, la tension à l'électrode augmente significativement pour chacune des positions du front le long du capillaire. En revanche, en polarité négative, la tension est quasiment stabilisée sur les trois derniers centimètres. La valeur de la tension instantée joue donc directement sur la vitesse de propagation du front d'ionisation. Nous retrouvons donc ici la sensibilité de la vitesse de propagation à la valeur de la tension appliquée à l'électrode. Toutefois, en raison de la chute de potentiel le long de la colonne plasma, la vitesse mesurée est en toute rigueur la résultante de l'évolution de la tension instantée à chaque instant de la propagation du front dans le capillaire et de la chute de potentiel le long de la colonne.

Nous pouvons par ailleurs remarquer que bien que la tension instantée soit toujours plus élevée en polarité négative qu'en polarité positive, la vitesse de propagation est plus faible en polarité négative. Bien que cette différence de vitesse entre les deux polarités semble ici non liée à la valeur de la tension à l'électrode, la chute de potentiel le long de la colonne est a priori différente entre les deux polarités [11] (plus élevée dans le cas négatif, environ 3 à 4 kV/cm). Nous reviendrons plus

en détail sur l'étude de la vitesse de propagation du front d'ionisation en partie 3 et plus spécifiquement sur le cas de la polarité négative en section 3.8.

Il est important de noter également que d'après nos observations, la différence de vitesse de propagation entre les deux polarités ne peut a priori pas s'expliquer par une différence d'amplitude du champ électrique au front d'ionisation, puisque celles-ci sont proches les unes des autres dans les deux cas. Nous pouvons remarquer que cette similitude est contradictoire avec les prédictions du modèle de Naidis [14] (cf. section 1.2).

Dans nos conditions expérimentales, nous pouvons remarquer que l'utilisation d'une impulsion de tension de polarité positive ou négative amène également à de très fort changement de structure de la décharge, comme illustré au second chapitre (Figure II-6 en section 2.1) et sur la Figure IV-13.

En polarité positive, la décharge est filamentaire sur l'intégralité de la propagation dans le capillaire. Nous pouvons noter que même pour des capillaires plus longs (40 cm en section 2.4), la décharge reste filamentaire sur l'intégralité du capillaire. En polarité négative, la décharge est plus homogène dans tout le capillaire. Bien que pour cette tension appliquée, le plasma se propage dans l'intégralité du capillaire dans les deux cas, les distances de propagation sont bien inférieures en polarité négative, comme nous le verrons dans la partie suivante. Enfin, l'intensité de la lumière émise par le plasma est moindre en polarité négative, comparée à la polarité positive. Ces observations sur le caractère plus homogène du plasma et sur les distances de propagation moindres en polarité négative sont similaires à ce qui est rapporté par de nombreuses équipes, en comparaison de la polarité positive. Nous pouvons également remarquer que les plumes plasmas sont également différentes (plume courte, fine et rectiligne en polarité négative) comme nous l'avons décrit au chapitre III. Nous reviendrons plus en détail sur cet aspect en annexe B du chapitre V.

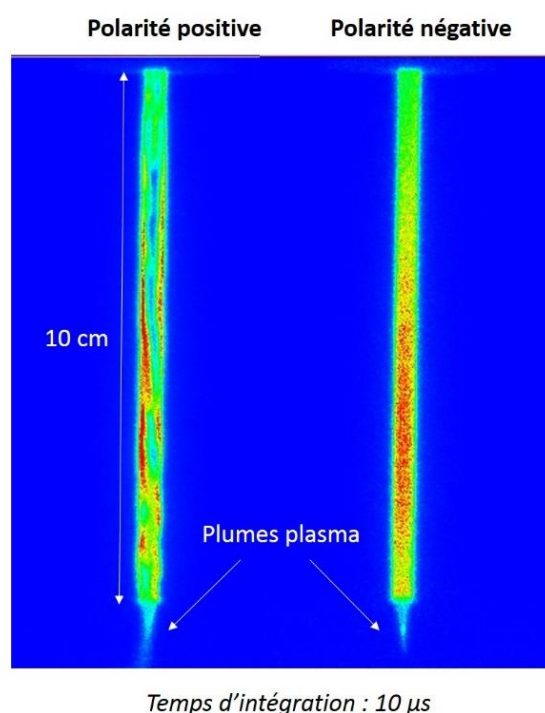


Figure IV-13 : image ICCD du plasma (intégrée 10 μ s) dans le cas d'une impulsion de tension de polarité positive ou négative (tension appliquée 16 kV, capillaire de 10 cm).

2.4 Mesures pour un capillaire de 40 cm de longueur

Pour visualiser l'évolution du champ électrique sur une grande distance de propagation, nous avons utilisé un capillaire de 40 cm de longueur. L'amplitude de l'impulsion de tension est de 16 kV en polarité positive, répétée à une fréquence de 1 kHz. Deux gaz sont utilisés, l'hélium et le néon.

2.4.1 Évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique pour la décharge d'hélium

La Figure IV-14 montre les composantes E_x et E_r à deux positions de la sonde, 10 et 25 cm, pour une décharge d'hélium. L'évolution de l'impulsion de tension est également tracée sur la figure.

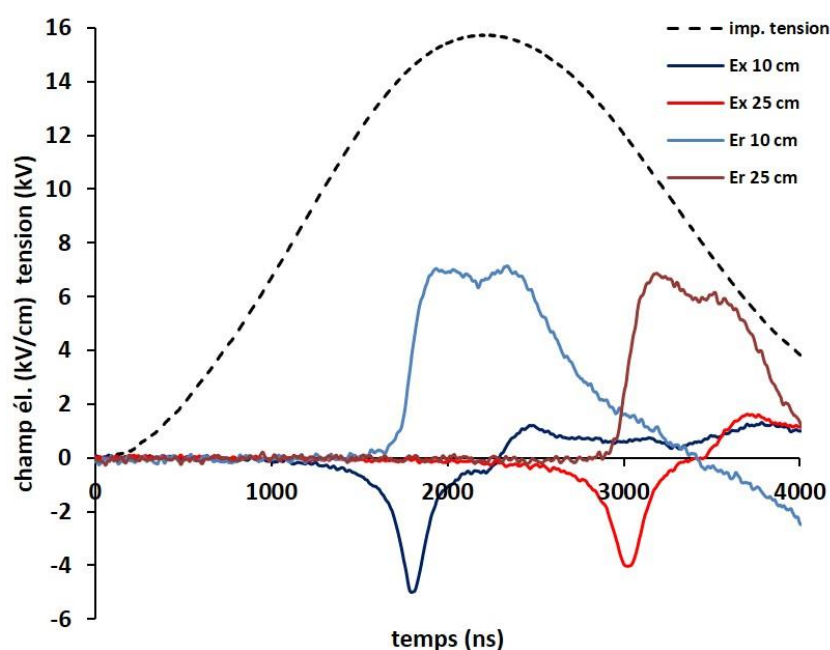


Figure IV-14 : évolution temporelle des composantes longitudinale et radiale du champ électrique pour deux positions de la sonde le long d'un capillaire de 40 cm (hélium, 16 kV, polarité positive). L'évolution de l'impulsion de tension est tracée en pointillés.

La vitesse moyenne de propagation du front entre ces deux positions est de $1,2 \cdot 10^7$ cm/s, ce qui est conforme aux derniers points de mesures reportés sur la Figure IV-12.

Les valeurs des maxima sont proches de ce qui a été précédemment décrit pour le capillaire de 12 cm. Nous pouvons voir qu'entre les positions 10 et 25 cm, l'amplitude de E_x diminue en passant de 5,0 à 4,0 kV/cm. Dans le même temps, la tension instantanée évolue respectivement de 14,3 kV à 12,0 kV. La composante radiale reste aux alentours de 7,0 kV/cm pour les deux positions. La durée de maintien des composantes radiales est directement dépendante de l'évolution de l'impulsion de tension, à l'instant où la composante est initiée. A la position 10 cm, E_r est initiée vers 1700 ns, l'impulsion de tension est alors proche de son maximum. La durée de maintien de E_r à la

position 10 cm est donc plus importante qu'à la position 25 cm, où E_r est initiée vers 2900 ns, lorsque l'impulsion de tension diminue.

La valeur du champ local du front d'ionisation reste donc globalement stable pour de grandes distances de propagations. Cet aspect a été également prédit dans [11] pour des distances de propagation de plusieurs dizaines de centimètres.

Nous pouvons noter qu'à cette tension de 16 kV, le plasma ne se propage pas dans l'intégralité du capillaire (33 cm de propagation en repérant la lumière visible). La Figure IV-15 montre l'évolution de E_x et E_r proche de la distance limite de propagation (30 cm) et légèrement au-delà (35 cm).

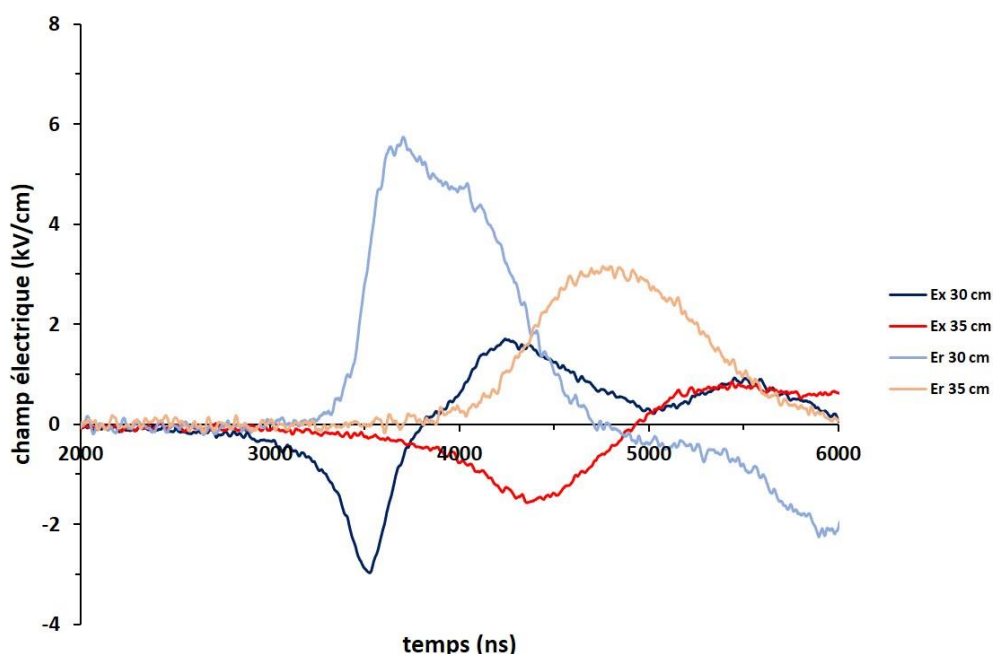


Figure IV-15 : évolution temporelle des composantes longitudinale et radiale du champ électrique pour une position légèrement inférieure et légèrement supérieure à la distance limite de propagation du plasma en lumière visible (33 cm) (hélium, 16 kV, polarité positive).

Nous pouvons voir qu'en approchant la sonde proche de la distance maximale de propagation du plasma (lumière visible), ici à la position 30 cm, soit 3 cm avant la fin de la propagation, les composantes E_x et E_r diminuent avec un maximum de respectivement 3 kV/cm et 5,5 kV/cm. A ce temps précis (3520 ns) , la tension instantanée est de 7,3 kV. A la position 35 cm, aucune lumière n'est visible. Cependant, la sonde détecte les composantes E_x et E_r , de plus faibles amplitudes (respectivement 1,5 et 3 kV/cm) et d'évolutions différentes de ce qui a été montré précédemment, avec des maxima nettement moins piqués. Bien qu'il n'y ait pas de lumière visible, l'évolution des composantes sur des temps longs atteste néanmoins que la colonne plasma transmet toujours le champ laplacien de l'électrode interne.

2.4.2 Évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique pour la décharge de néon

La Figure IV-16 montre l'évolution temporelle des composantes E_x et E_r à trois positions de la sonde, 10 cm, 25 cm et 40 cm, pour une décharge de néon. La distance de propagation est plus importante dans le néon que dans l'hélium, le plasma se propage ici dans l'intégralité du capillaire, avec une plume plasma en sortie de celui-ci.

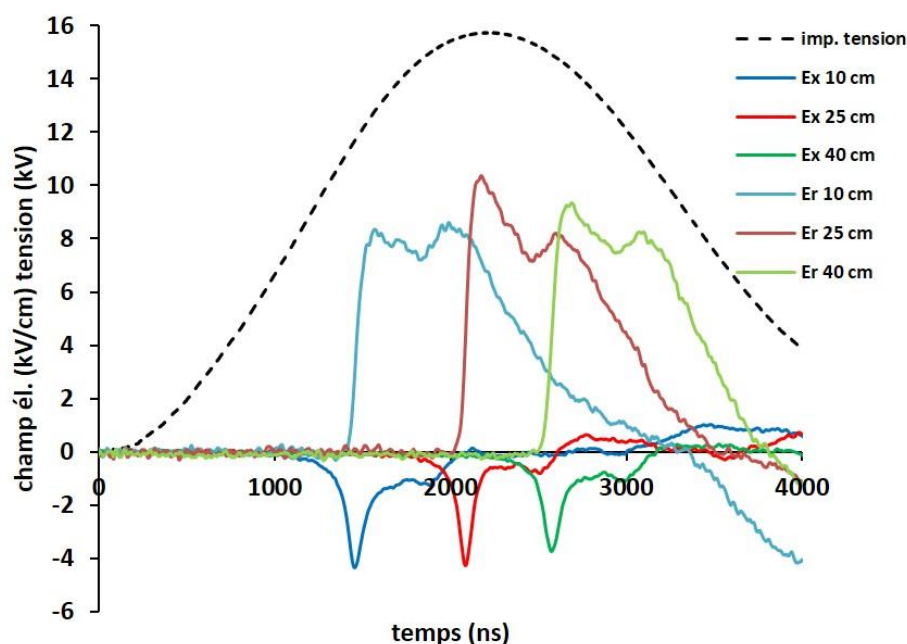


Figure IV-16 : évolution temporelle des composantes longitudinale et radiale du champ électrique pour trois positions de la sonde le long du capillaire (néon, 16 kV, polarité positive).

Aux positions 10, 25 et 40 cm, l'amplitude maximale de E_x est de respectivement 4,4 kV/cm, 4,2 kV/cm et 3,7 kV/cm. Il y a donc peu d'évolution des maxima le long du capillaire. Les maxima de E_r varient respectivement entre 8,2 kV/cm, 10,0 kV/cm et 9,2 kV/cm aux mêmes positions. Nous pouvons remarquer que le maximum le plus élevé est à la position 25 cm, à un temps correspondant au maximum de l'impulsion de tension (2150 ns).

Il est intéressant de noter qu'entre 10 et 25 cm, la vitesse de propagation est deux fois plus rapide dans le cas du néon comparé à l'hélium ($2,4 \cdot 10^7$ cm/s). En conséquence, entre les deux gaz, la tension instantanée est différente pour les mêmes positions du front le long du capillaire. Aux positions 10, 25 et 40 cm, elle évolue respectivement aux valeurs 11,7 kV, 15,6 kV et 14,9 kV. Ceci pourrait expliquer le net allongement de la longueur de propagation observé entre l'hélium et le néon. En effet, la vitesse de propagation du front d'ionisation est telle dans le cas du néon, que lorsque celui-ci atteint l'extrémité du capillaire du 40 cm, l'impulsion de tension commence tout juste à diminuer.

Nous pouvons remarquer que pour une décharge dans le néon ou dans l'hélium, l'amplitude du champ longitudinal associé au front d'ionisation reste dans la même gamme (environ 4 kV/cm). La

vitesse de propagation du front d'ionisation est en revanche deux fois plus élevée pour le néon que pour l'hélium. Cela semble donc indiquer que les variations des vitesses de propagation ne seraient a priori pas reliées à des différences d'amplitudes du champ électrique du front d'ionisation. Toutefois, nous devons rappeler que les mesures de champs sont réalisées à l'extérieur du capillaire, à distance du front d'ionisation.

2.5 Résumé

Nous avons étudié l'évolution du champ électrique associé à la propagation du PAPS dans le capillaire. Au front d'ionisation, repéré en lumière visible par imagerie ICCD ou PMT avec fibres optiques, est associé un champ électrique de composantes longitudinale E_x (dans la direction de propagation du front) et radiale E_r (perpendiculaire à E_x). La composante longitudinale est étendue environ 4 cm en aval de la lumière visible du front d'ionisation, elle est maximale lorsque le front atteint la position de la sonde, puis diminue rapidement lorsque celui-ci s'en éloigne. La composante radiale ne précède pas le front d'ionisation, elle croît de façon extrêmement brusque au passage du front, jusqu'à son maximum. Le maximum de E_x et la brusque augmentation de E_r sont synchrones et se produisent à un temps proche de ce qui est détecté par PMT avec la lumière émise par le front, à une position donnée. La transmission du potentiel de l'électrode interne par la colonne plasma, laissée dans le sillage du front d'ionisation, pilote l'évolution μs de la composante radiale E_r . Son évolution temporelle est donc une signature directe de la connexion de la colonne plasma à l'électrode interne.

Nous avons observé peu d'évolution des maxima des deux composantes le long du capillaire, y compris pour des distances de propagation importantes dans le capillaire (40 cm). Dans nos conditions expérimentales, les maxima semblent également peu influencés par la valeur de la tension instantanée, c'est-à-dire la valeur de la tension à l'électrode interne relativement au temps de propagation du front le long du capillaire. Toutefois, le lien direct avec la tension perçue au front est plus complexe en raison de la chute de potentiel le long de la colonne.

L'amplitude du champ électrique est également peu sensible à la polarité de l'impulsion de tension ou au gaz utilisé (hélium ou néon). La vitesse de propagation du front d'ionisation est en revanche très affectée par ces deux paramètres, avec notamment un facteur deux pour le néon comparé à l'hélium. Ces observations indiqueraient donc a priori que la vitesse de propagation du front d'ionisation semblerait peu dépendante de la valeur du champ électrique du front d'ionisation. Nous devons rappeler néanmoins que ces mesures ont été réalisées à l'extérieur du capillaire et non directement *in situ*.

Nos observations nous amènent également à potentiellement nuancer un résultat de Stretenovic et al [8] quant au lien conclu dans leur étude entre l'augmentation de l'amplitude du champ électrique local du front d'ionisation et l'augmentation constatée de sa vitesse de propagation. En effet, la configuration du « jet 2 » présenté plaçait une électrode de masse aux alentours de la plume plasma, en aval de l'électrode haute tension. La configuration géométrique générait donc un champ électrique externe, indépendamment du plasma, par application d'une tension (sinusoïdale dans

l'étude) sur l'électrode interne. De fait, toute mesure de champ réalisée dans cette zone somrait obligatoirement la contribution du champ local du front d'ionisation et du champ électrique externe dans lequel il baignait. De fait, la conclusion sur la dépendance directe de la vitesse de propagation à l'amplitude du champ local mesuré peut être biaisée par cette augmentation du champ électrique externe, de manière tout à fait similaire à ce qui est décrit par Walsh et al [17].

Si nous reprenons l'étude [17], nous pouvons par ailleurs interpréter leurs résultats sur les configurations multi électrodes par les comportements que nous avons décrits sur l'évolution de E_x et E_r . En effet, les auteurs ont observé qu'entre deux électrodes distantes de 4,2 cm, l'application d'une tension sur la seconde électrode, au moment où le front d'ionisation atteignait la première, stoppait la propagation du front. Dans [11] était décrit que la composante longitudinale en aval du front était nécessaire à sa propagation. L'observation de [17] pourrait donc s'interpréter par l'écrantage de la composante longitudinale en aval du front par la seconde électrode. Nous pouvons par ailleurs remarquer que cette distance inter-électrode est cohérente avec l'extension spatiale de la composante longitudinale en aval du front que nous avons mesurée en section 2.3 (4 cm). En procédant de même lorsque le front est au milieu des deux électrodes, les auteurs avaient observé que la propagation du front était ralentie mais non stoppée. Dans ce cas, la composante longitudinale du front s'étendait donc déjà 2 cm en aval de la seconde électrode et ne pouvait donc pas, a priori, être totalement écrantée.

Les auteurs avaient également observé une augmentation de la vitesse et de la longueur de propagation lorsque la tension était appliquée à la seconde électrode après le passage du front d'ionisation. Cette observation peut donc s'expliquer par la transmission du potentiel de la seconde électrode à la colonne plasma. Leur étude montrait donc également que le front d'ionisation reste connecté à la colonne plasma laissée dans son sillage.

3. Modulation de la vitesse de propagation du front d'ionisation par des mélanges hélium-azote

Dans la partie précédente, nous avons observé des évolutions de vitesse de propagation du front d'ionisation très dépendantes de la valeur de la tension instantanée. Nous allons illustrer dans cette partie l'importance des propriétés de la colonne plasma sur la vitesse de propagation du front d'ionisation.

Nous avons observé qu'en procédant à un mélange d'une faible concentration d'azote dans l'hélium, nous pouvions augmenter nettement la longueur de propagation du plasma. Nous avons également observé une augmentation de la vitesse de propagation du front d'ionisation, accompagnée de nets modifications des spectres d'émission du plasma. Suspectant un rôle important de la cinétique réactionnelle de la décharge dans ces phénomènes, nous avons eu recours à un modèle numérique développé dans le cadre d'une collaboration avec le LPP (Anne Bourdon (LPP), François Péchereau (CERFACS), Pedro Viegas (LPP)) pour comprendre plus en détail la physique du phénomène.

Dans cette partie, nous étudierons donc les modifications entraînées par le mélange de faibles concentrations d'azote dans l'hélium (entre 0,1 % et 1,4 %). Nous étudierons les propriétés de ces mélanges par l'expérience, puis nous comparerons nos résultats avec le modèle numérique. Par la confrontation entre expérience et modèle, nous expliciterons le choix des paramètres physiques influant notablement sur la dynamique du plasma et le rôle de l'azote dans sa modification. Nous comparerons de plus le champ électrique mesuré expérimentalement à l'extérieur du capillaire et le champ calculé par le modèle, au même endroit. À l'intérieur du capillaire, le modèle peut prédire les évolutions de l'amplitude du champ électrique, pour plusieurs concentrations d'azote. Cette étude a été publiée dans [21]. Les techniques d'imagerie rapide, de mesure de vitesse par fibre optique et de spectrométrie d'émission ont été détaillées dans le chapitre II.

3.1 Premières observations expérimentales

Dans un capillaire de 40 cm de longueur, à une tension de 16 kV en polarité positive, nous avons mentionné que le plasma ne se propageait pas dans l'intégralité du capillaire, mais jusqu'à 33 cm environ. Dans ces mêmes conditions de décharges, le mélange d'une faible concentration d'azote (0,1 %) dans l'hélium permet de significativement augmenter la longueur de propagation du plasma, comme l'illustre la Figure IV-17. Cette propriété peut se révéler intéressante pour toutes applications nécessitant de propager le plasma sur des distances importantes, puisqu'il est donc possible d'augmenter la longueur de propagation sans modifier les paramètres électriques du générateur.

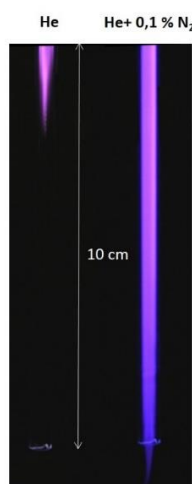


Figure IV-17 : augmentation de la longueur de propagation du plasma par mélange d'une faible concentration d'azote dans l'hélium (0,1 % soit 1 ml/min de N₂ pour 1000 ml/min de He)

La Figure IV-18 illustre l'évolution de la lumière au cours de la propagation du front d'ionisation, par imagerie rapide ICCD et fibre optique reliée à un PMT. Une seule fibre optique est positionnée le long du capillaire. L'image ICCD est intégrée 20 ns.

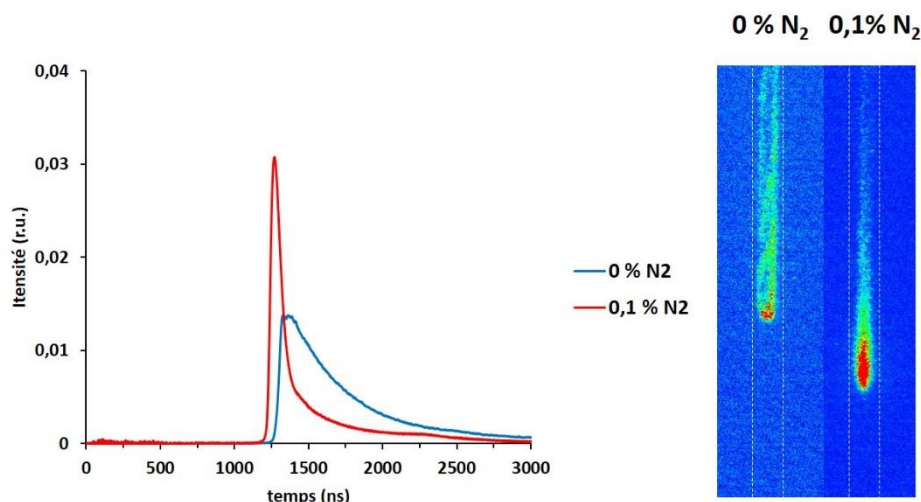


Figure IV-18 : évolution de la lumière du PAPS dans le capillaire recueillie par une fibre optique et visualisée en imagerie rapide ICCD dans le cas hélium (i.e 0 % N₂) et hélium + 0,1 % N₂ . Les images sont intégrées 20 ns au même instant dans les deux cas.

Nous pouvons voir sur l'évolution temporelle et l'imagerie ICCD que lorsque l'azote est ajouté, le front d'ionisation est plus rapide que celui dans l'hélium seul. De plus, la lumière associée au front d'ionisation est plus intense avec azote mélangé, avec une décroissance de la lumière dans la colonne bien plus rapide comparée à celle de l'hélium sans mélange. Ceci est le signe d'une modification de la cinétique du plasma, avec des vitesses de recombinaison des espèces différentes dans les deux cas.

Enfin, il est également visible sur l'image ICCD que la décharge est plus filamentaire dans le cas hélium sans mélange et s'homogénéise avec l'azote.

La Figure IV-19 montre l'évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation sur les 20 premiers centimètres du capillaire, dans le cas hélium sans azote et avec azote. 10 fibres optiques ont été également disposées à 2 cm les unes des autres pour le calcul des vitesses.

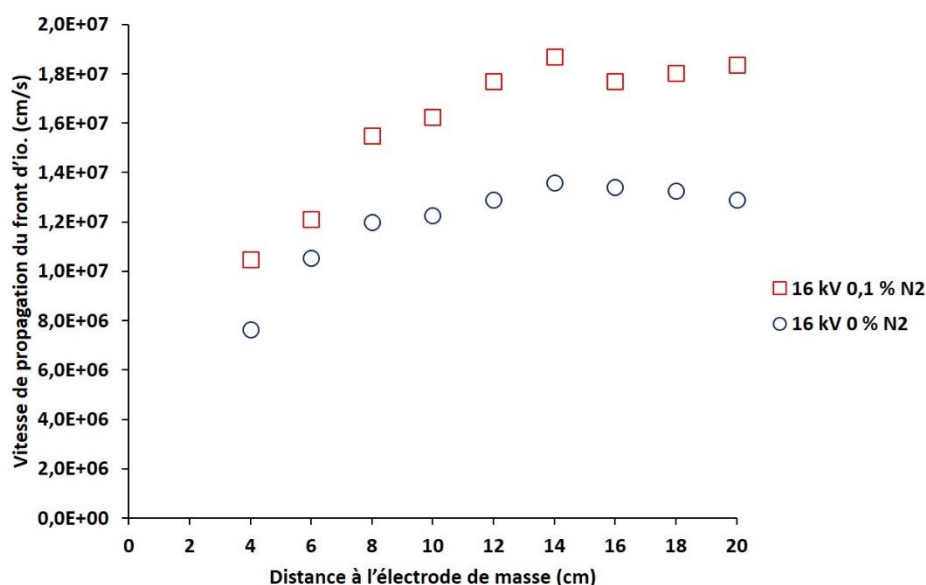


Figure IV-19 : évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire pour l'hélium sans azote et avec 0,1 % d'azote.

L'évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire est similaire à ce qui a été décrit en Figure IV-12. Nous pouvons voir qu'en présence d'azote le front d'ionisation se propage significativement plus rapidement. Par un raisonnement similaire à celui développé en section 2.4 vis à vis de la tension instantanée, l'augmentation de la longueur de propagation observée est cohérente avec cette augmentation de la vitesse de propagation.

Nous allons donc étudier expérimentalement les effets induits par le mélange de différentes concentrations d'azote dans l'hélium sur le plasma. Par soucis de comparaison avec le modèle, il a été choisi de travailler avec un capillaire de 10 cm de longueur, avec une impulsion de tension de polarité positive. Le cas de la polarité négative sera néanmoins abordé en section 3.8.

3.2 Évolution de la structure du plasma en fonction de la concentration d'azote

La Figure IV-20 montre l'évolution de la forme du front d'ionisation, pour différentes concentrations d'azote mélangées à l'hélium. La tension appliquée est de 16 kV. Les images sont intégrées 20 ns. La zone de visée couvre environ 3 cm du capillaire (de 3 cm à 6 cm après la bague de masse).

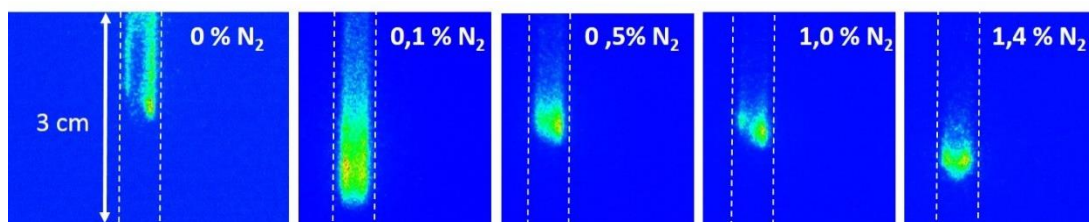


Figure IV-20 : images ICCD de la structure du front d'ionisation en fonction de la concentration d'azote dans l'hélium (20 ns d'intégration)

La mention « 0 % N_2 », désigne le cas sans mélange d'azote. Dans tout le capillaire, le plasma est inhomogène, filamentaire, comme précédemment décrit. Nous pouvons voir qu'en fonction de la concentration d'azote mélangée à l'hélium, la structure du front d'ionisation évolue. Avec 0,1 % d'azote, le plasma est homogène et perd son aspect filamentaire. Le front d'ionisation est nettement plus intense comparée à la colonne dernière lui. Lorsque l'on augmente la quantité d'azote, les changements dans le front se produisent de manière plus graduelle. À 0,5 % de N_2 , la zone d'intensité lumineuse maximale du front d'ionisation occupe un volume plus réduit, puis semble se fragmenter à 1,0 % et reste de forme similaire au pourcentage le plus élevé. Nous pouvons voir également que l'intensité lumineuse de la colonne baisse au fur et à mesure que le pourcentage d'azote augmente.

Nous pouvons préciser que pour des distances de propagation plus importantes (dans un capillaire de 40 cm), les résultats quant aux changements de forme des fronts sont similaires, hormis aux plus hautes concentrations d'azote (1,4 % et 1,5 %) où le front d'ionisation était plus fragmenté. Ces résultats ont été présentés lors de la conférence Gas Discharge 2014 [22].

3.3 Évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation en fonction de la concentration d'azote

Nous avons étudié l'influence de la concentration d'azote mélangée à l'hélium sur la vitesse de propagation du front d'ionisation. Le schéma du montage expérimental utilisé est celui de la Figure II-7 du chapitre II (section 2.1). La taille du capillaire est de 10 cm, la fréquence de répétition de l'impulsion de tension est fixée à 1 kHz.

La Figure IV-21 montre l'évolution de la vitesse moyenne de propagation du front d'ionisation entre les positions 2 cm et 8 cm en fonction de la tension appliquée pour l'hélium sans azote, avec 0,1 % d'azote et 0,2 % d'azote. Les mesures de vitesses ont été effectuées quatre fois, chaque mesure est moyennée sur 500 impulsions.

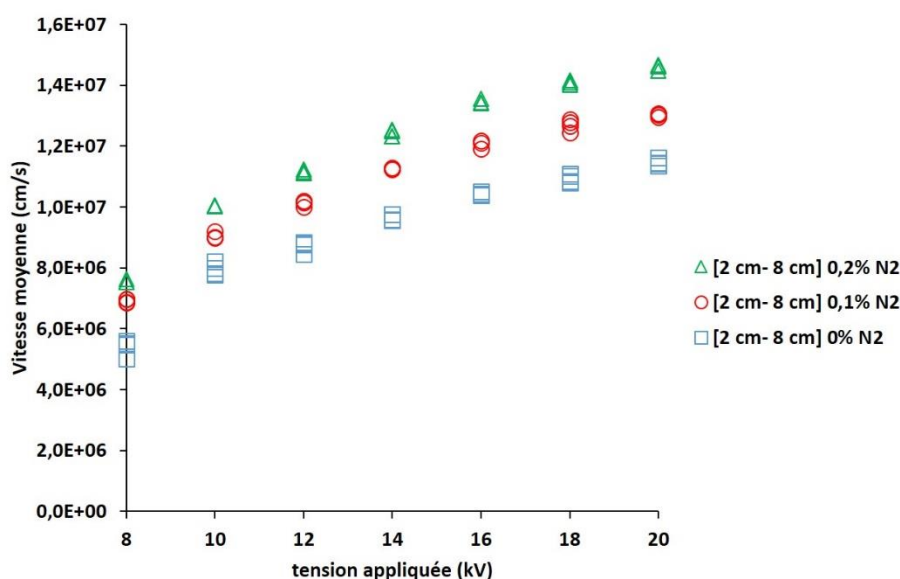


Figure IV-21 : évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire (entre 2 et 8 cm) en fonction de la tension appliquée pour l'hélium sans azote, avec 0,1 % d'azote et 0,2 % d'azote.

Comme nous l'avons décrit précédemment, plus la tension appliquée est élevée, plus la vitesse de propagation du front d'ionisation sera importante. Mais à une tension donnée, la vitesse de propagation du front augmente significativement pour 0,1 % puis 0,2 % d'azote.

Afin de limiter les paramètres expérimentaux, nous avons choisi de travailler essentiellement aux tensions appliquées 10 kV et 16 kV. La Figure IV-22 présente dans ces conditions la vitesse moyenne de propagation du front d'ionisation pour une gamme plus étendue de concentrations d'azote (entre 0 et 1,4 %). La dispersion des points est représentative de la dispersion en vitesse à chaque concentration d'azote.

Nous pouvons donc voir que l'ajout d'azote, à différentes concentrations, influe directement sur la vitesse de propagation du front d'ionisation et que les courbes passent par un optimum. À 10 kV sans azote, la vitesse de propagation est de $8,0 \cdot 10^6$ cm/s et augmente à $9,6 \cdot 10^6$ cm/s avec 0,1 % d'azote. La courbe de vitesse atteint un optimum entre 0,3 % et 0,5 % d'azote avec une vitesse proche de $1,1 \cdot 10^7$ cm/s. Nous pouvons par ailleurs remarquer que le front d'ionisation est dans

cette gamme aussi rapide qu'à une tension appliquée de 16 kV sans azote ajouté. Aux concentrations supérieures, la vitesse diminue graduellement, environ $9,6 \cdot 10^6$ cm/s à 1,4 %.

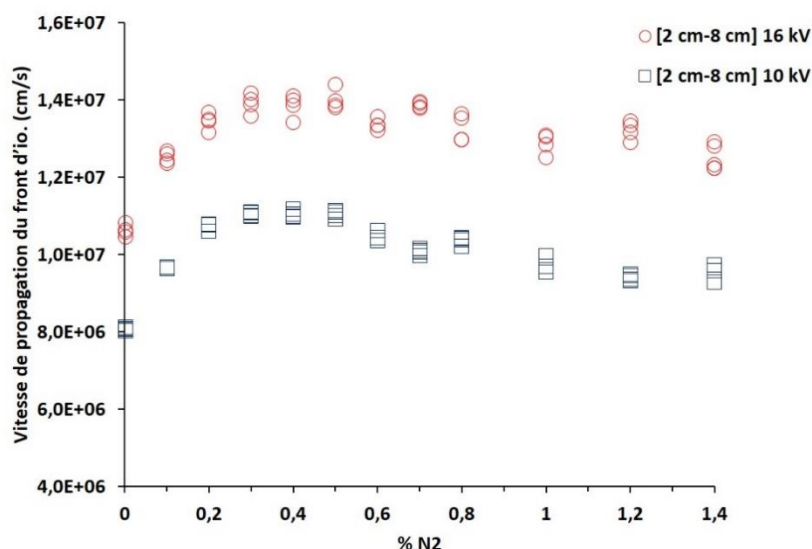


Figure IV-22 : évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire (entre 2 et 8 cm) en fonction de la concentration d'azote pour deux tensions appliquées.

La courbe à 16 kV, présentant des vitesses toujours supérieures au cas 10 kV aux mêmes concentrations d'azote, suit une tendance proche avec toutefois une dispersion en vitesse légèrement plus importante qu'à 10 kV.

Nous rappelons que ces valeurs de tensions appliquées désignent le maximum de l'amplitude de l'impulsion de tension. La Figure IV-23 montre les pics du PMT associées au passage du front d'ionisation devant les trois fibres optiques (configurations de la Figure II-7). Les tensions appliquées sont de 10 kV et 16 kV, dans un cas sans azote et avec azote mélangé (0,1 %).

Le faible décalage sur le premier pic, à 10 et 16 kV, montre que l'ajout d'azote n'a qu'une faible influence sur le temps d'initiation de la décharge. Nous pouvons voir que les pics apparaissent plus tôt avec 0,1 % d'azote, la tension instantanée étant donc plus faible que dans l'hélium, pour une position de fibre donnée. De fait, cela renforce le rôle accélérateur de l'azote sur la vitesse de propagation du front qui, malgré une tension instantanée plus faible, se propage plus rapidement. Comme nous l'avons vu en Figure IV-18, le temps de décroissance de la lumière, après le passage du front d'ionisation, est bien plus rapide avec l'azote mélangé à l'hélium. Après le passage du front, une augmentation du signal est visible aux alentours de 2500 ns environ à 10 kV et 16 kV sans azote et légèrement visible pour le cas 10 kV avec 0,1 % d'azote. Cela correspond à une faible réémission de lumière dans la colonne plasma (intégrée par les trois fibres optiques), dans les deux cas synchrone avec le début de la diminution de l'impulsion de tension.

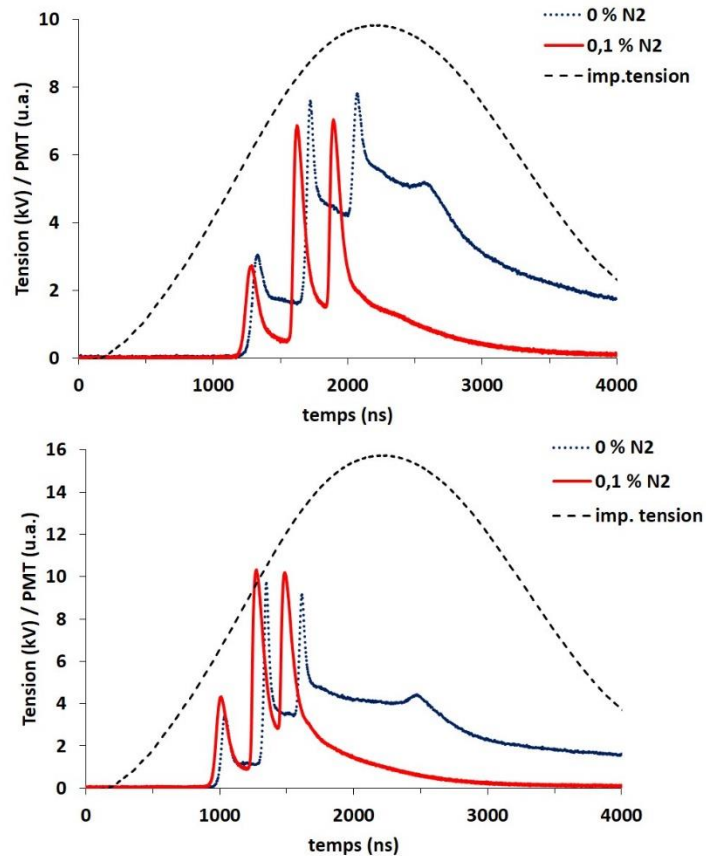


Figure IV-23 : signaux du PMT associés au passage du front d'ionisation devant les fibres optiques et évolution de l'impulsion de tension (10 kV et 16 kV appliquées, hélium sans azote et avec 0,1 % d'azote).

Par les signaux du PMT et l'évolution de l'impulsion de tension, nous pouvons également interpréter la dispersion en vitesse, plus importante à 16 kV qu'à 10 kV sur la Figure IV-22. En effet, les pics à 16 kV se produisent à des instants où la tension instantanée évolue fortement (pente montante de l'impulsion de tension). A 10 kV, les deux derniers pics se produisent à des instants où les variations de tension instantanée sont plus faibles (plus proches du maximum de l'impulsion de tension). Or, le jitter de la décharge entrainera une variation de tension instantanée plus importante, si les fluctuations se produisent dans un intervalle de temps où l'impulsion de tension varie le plus fortement. En conséquence, les variations de tension instantanées et donc de vitesse de propagations, pour ces positions, sont plus importantes à 16 kV qu'à 10 kV.

La tension à l'électrode interne reste donc très influente sur la vitesse de propagation du front d'ionisation. Cette vitesse sera toujours plus élevée entre la deuxième et troisième fibre qu'entre la première et la deuxième, comme le montre la Figure IV-24 dans le cas 10 kV appliquée, à chaque concentration d'azote.

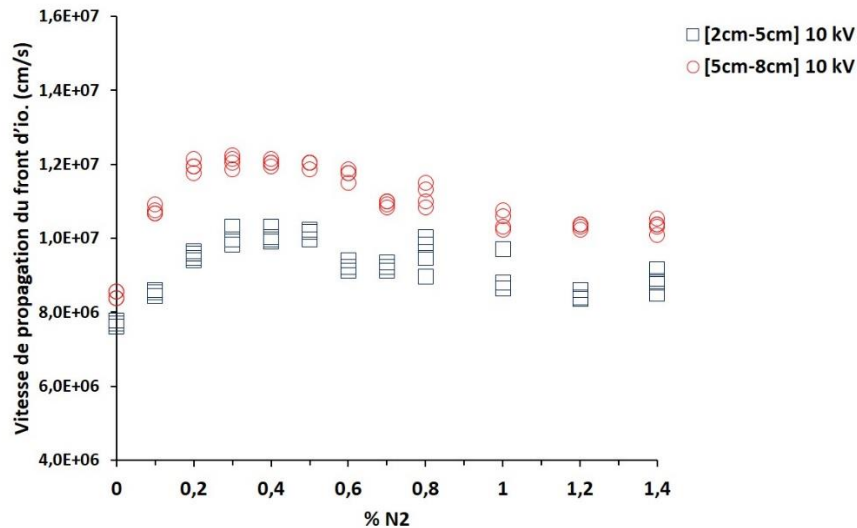


Figure IV-24 : évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation le long capillaire (entre 2 et 5 cm et entre 5 et 8 cm) en fonction de la concentration d'azote (10 kV appliquée).

La valeur instantanée de la tension à l'électrode interne influe donc sur la vitesse de propagation du front, le long du capillaire. En revanche, les variations de vitesse observées avec l'azote ne peuvent s'expliquer par des variations de tensions. Nous avons illustré, en partie 2, que le front d'ionisation était toujours connecté à l'électrode haute tension par la colonne plasma laissée dans son sillage. Le fait que la vitesse de propagation du front d'ionisation soit donc directement dépendante de la tension à l'électrode, amène donc à s'intéresser au rôle de la colonne plasma quant à la transmission du potentiel jusqu'au front d'ionisation.

3.4 Évolution des spectres d'émission du plasma

En Figure IV-18 et Figure IV-23, nous avons vu que le temps de décroissance de la lumière de la colonne plasma était bien plus rapide dans le cas avec azote mélangé à l'hélium. Nous avons de plus observé une nette augmentation de l'intensité lumineuse du plasma, ce qui a été décrit en Figure IV-18, mais qui est également bien visible à l'œil nu.

La Figure IV-25 montre l'évolution des spectres d'émission du plasma pour différentes concentrations d'azote. La lumière est observée à travers le capillaire en quartz, à la position 5 cm. La tension appliquée est de 16 kV.

Sans azote, l'espèce à l'émission la plus intense est l'oxygène atomique à 777,2 nm. Nous pouvons l'attribuer aux impuretés résiduelles de la bouteille de gaz ainsi qu'à celles de nos tuyaux de circulation. L'influence de ces impuretés sera discutée en fin de section. Sur ce même spectre, les émissions du N_2^{+*} à 391,4 et 427,8 nm sont nettement visibles, tandis que les émissions de N_2^* à 337,1 et 357,7 nm sont très faibles en comparaison (facteur 36 entre 337,1 et 391,4 nm).

Entre 0 % et 0,1 %, les changements sur le spectre d'émission sont extrêmement marqués. L'émission du N_2^{+*} à 391,4 nm est fortement augmentée, elle est trois fois plus intense que dans le

cas précédent et devient dominante sur le spectre. L'émission de N_2^+ se distingue facilement, elle est sur ce spectre 16 fois plus intense que dans le cas précédent. L'émission de l'oxygène atomique baisse notablement et de nombreuses raies d'émission du NO γ sont visibles entre 200 et 300 nm. Il est de plus intéressant de noter que l'émission de la raie d'hélium à 706,5 nm est plus intense dans le cas 0,1 % d'azote mélangé (facteur 1,5) que dans le cas 0 %.

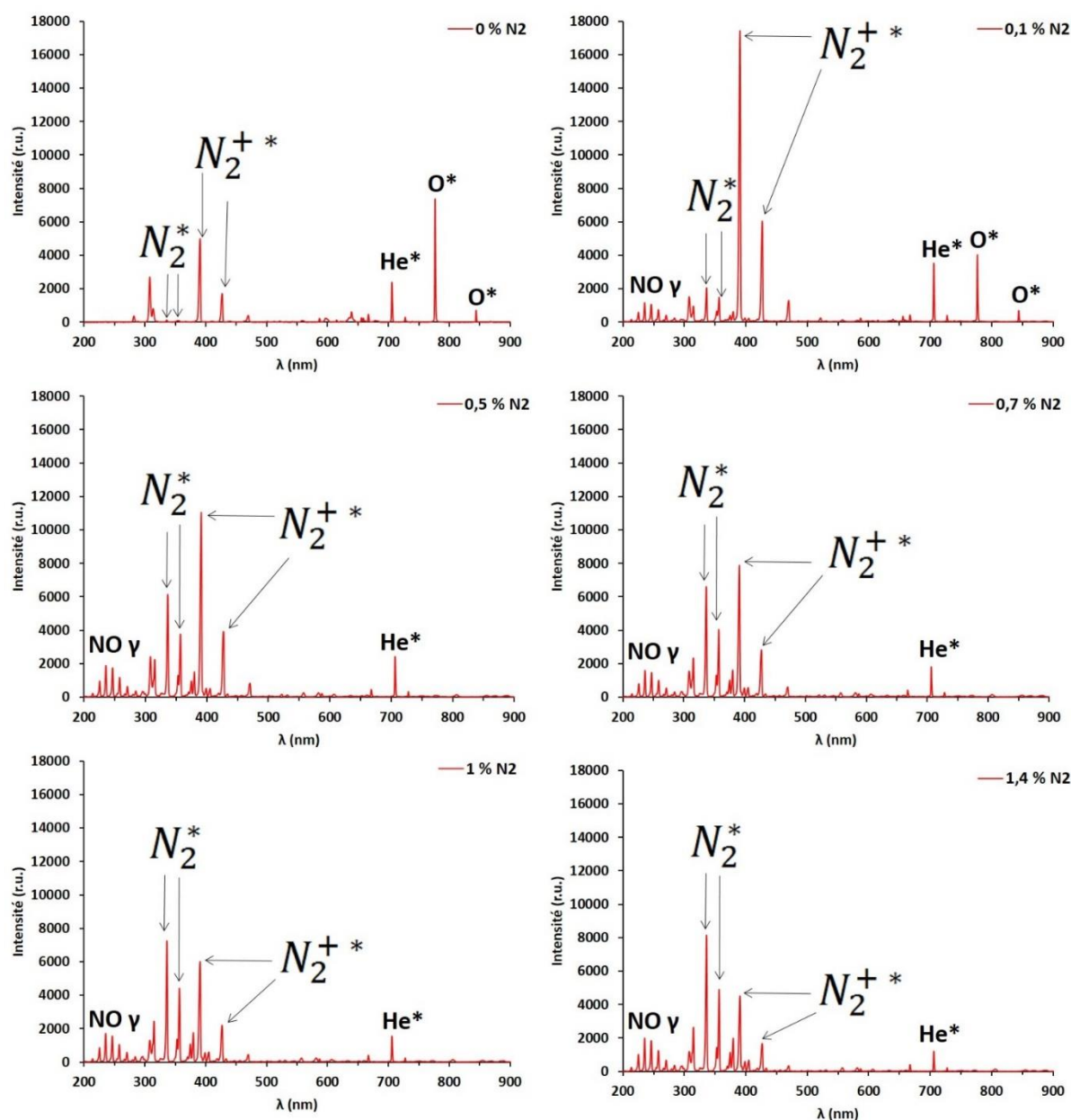


Figure IV-25 : évolution des spectres d'émission du plasma dans le capillaire pour différentes concentrations d'azote mélangées à l'hélium (16 kV appliquée).

Aux concentrations supérieures d'azote, nous observons un basculement progressif entre l'intensité de l'émission du N_2^{+*} et du N_2^* . L'évolution du rapport entre ces deux intensités est illustrée en Figure IV-26, pour les différentes concentrations d'azote.

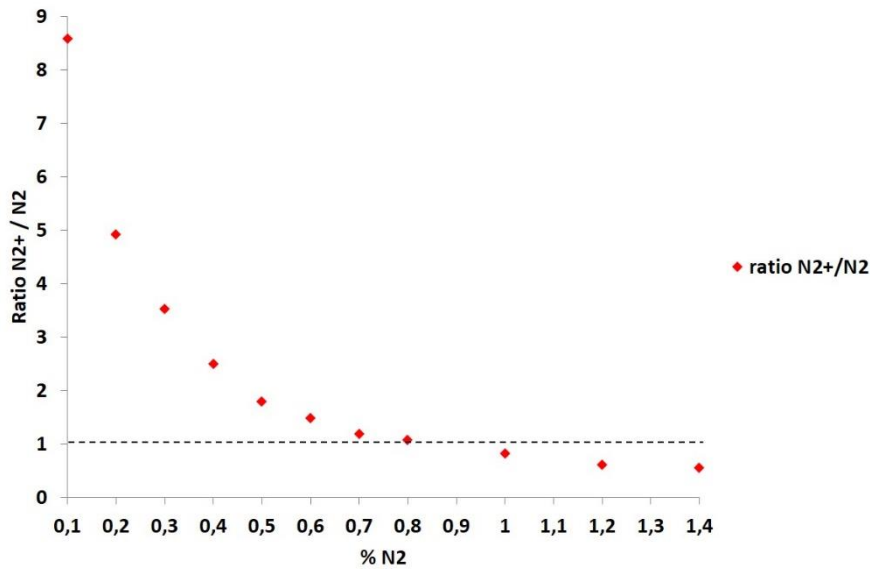


Figure IV-26 : évolution du rapport de l'intensité de l'émission de N_2^+ à 391,4 nm et du N_2 à 337,1 nm en fonction de la concentration d'azote mélangée à l'hélium.

L'évolution de la vitesse de propagation du front s'accompagne donc de nets changements sur les spectres d'émission. Entre les cas 0 et 0,1 %, le spectre d'émission change radicalement et les émissions du N_2^{+*} et du N_2^* sont fortement augmentées, N_2^{+*} étant l'espèce à l'émission la plus intense. Pour les concentrations entre 0,1 et 0,5 %, N_2^{+*} reste l'espèce à l'émission la plus intense, tandis que la vitesse de propagation du front est à son optimum. Aux concentrations plus élevées, lorsque les niveaux d'émission de N_2^{+*} et de N_2^* s'équilibrent (0,8 %) et que l'émission de N_2^* devient dominante aux concentrations encore supérieures, la vitesse de propagation tend à diminuer.

Cette observation montre qu'outre la valeur de la tension à l'électrode interne, la variation de la vitesse de propagation du front d'ionisation s'accompagne de modifications dans la cinétique réactionnelle du plasma. Pour les faibles concentrations d'azote, nous pouvons nous attendre notamment à une forte ionisation penning, conduisant à l'augmentation observée de l'intensité du N_2^{+*} . Aux plus fortes concentrations d'azote, nous pouvons supposer un impact électronique direct peuplant les niveaux ro-vibrationnels de N_2^* , ce qui tendrait donc à diminuer la température électronique du plasma. Ce résultat est important, puisque c'est notamment sur la base de cette observation qu'a été développé le travail de collaboration entre les aspects numériques et expérimentaux.

Comme nous l'avons précisé en début de ce chapitre, les expériences ont été réalisées avec de l'hélium ALPHAGAZ 2 (pureté globale 99,9999 %). Nous pouvons indiquer qu'avec un hélium moins pure ALPHAGAZ 1 (pureté globale 99,999 %), nous n'avons observé aucune différence significative de vitesse de propagation du front d'ionisation.

Les impuretés des deux gaz sont comparées dans le Tableau IV-3, d'après les données d'Air Liquide :

Impuretés max (ppm)	H ₂ O	O ₂	CO ₂	CO	H ₂	N ₂	C _n H _m
He ALPGAGAZ 1	3	2	NC	NC	NC	NC	0,5
He ALPGAGAZ 2	0,5	0,1	0,1	0,1	0,1	NC	0,1

Tableau IV-3 : caractéristique des puretés d'hélium ALPHAGAZ 1 et 2 (données Air Liquide)

Nous pouvons donc en conclure que les taux d'impuretés variant d'un hélium à l'autre ne sont pas suffisants pour induire des variations vitesse de propagation du front d'ionisation. Pour ces deux gaz, nous pouvons également préciser que la structure du plasma reste toujours filamentaire en polarité positive.

3.5 Géométrie de décharge avec une électrode haute tension externe

Pour comprendre plus en détail le rôle de la cinétique réactionnelle sur l'augmentation de la vitesse de propagation du plasma, nous avons collaboré avec Anne Bourdon, François Péchereau et Pedro Viegas qui ont adaptés leur modèle de décharge en fonction de nos conditions et observations expérimentales. Réciproquement, nous avons également adapté notre géométrie de décharge pour nous approcher au plus près de celle du modèle.

3.5.1 Géométrie de décharge du modèle et ajustement de la géométrie expérimentale

La géométrie du modèle est illustrée en Figure IV-27. L'électrode haute tension est un anneau externe glissé autour du capillaire. L'impulsion de tension appliquée sur l'électrode suit la même évolution temporelle que dans l'expérience. Le capillaire en quartz (10 cm de longueur à partir de l'extrémité de l'électrode haute tension) est plongé dans un cylindre métallique relié à la masse.

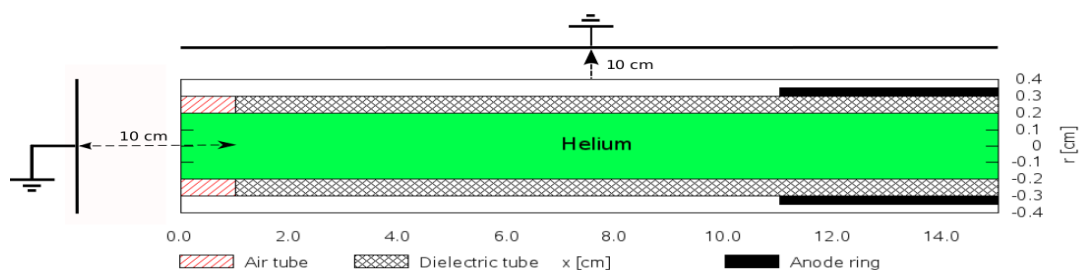


Figure IV-27 : géométrie de décharge du modèle numérique, issue de [21].

Pour faciliter la comparaison entre le modèle et l'expérience, nous avons modifié notre géométrie classique (électrode interne) de manière à nous approcher de la géométrie de décharge utilisée dans le modèle. Le montage expérimental est schématisé en Figure IV-28.

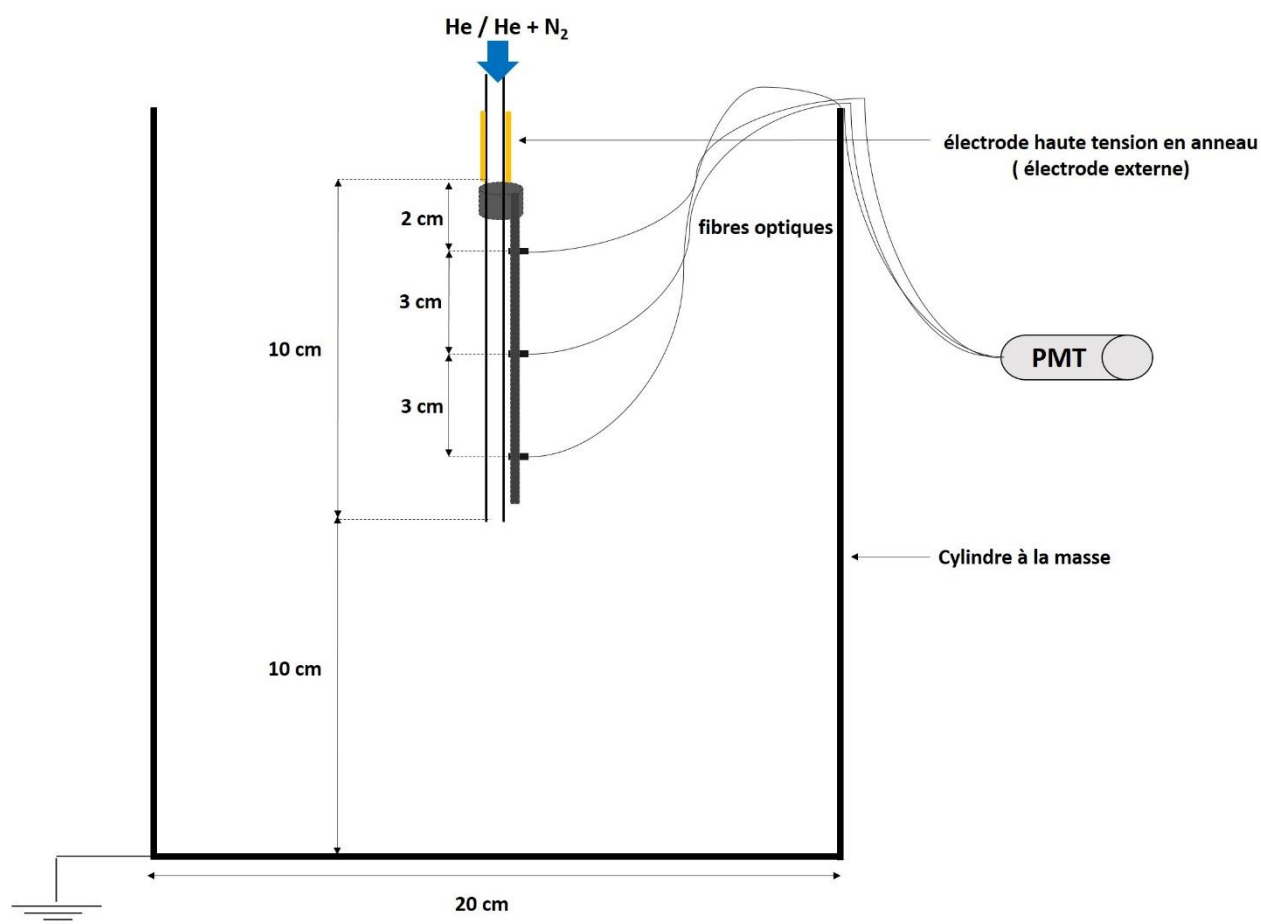


Figure IV-28 : schéma du plasma gun en électrode haute tension externe, centré dans un cylindre métallique relié à la masse.

Une électrode externe en anneau de 2 cm de longueur est glissée sur le capillaire diélectrique. L'ensemble est positionné au centre d'un cylindre métallique de 20 cm de diamètre. La distance entre l'extrémité du capillaire et le plan de masse, sur lequel repose le cylindre, est de 10 cm.

3.5.2 Comparaison expérimentale de la géométrie « électrode externe » avec la géométrie « électrode interne »

De façon similaire à ce qui a été présenté en Figure IV-22, la Figure IV-29 présente l'évolution de la vitesse moyenne de propagation du front d'ionisation en fonction de la concentration d'azote, pour les tensions appliquées 10 et 16 kV.

Comme pour la géométrie avec électrode interne, nous pouvons voir que la concentration d'azote influe sur la vitesse de propagation du front d'ionisation. Pour une tension appliquée de 10 kV, les différentes valeurs de vitesses sont globalement proches de celles de la Figure IV-22. Il est clair que

la vitesse de propagation augmente avec l'ajout d'azote, mais il en revanche plus difficile de définir un optimum en fonction de la concentration en raison de la dispersion en vitesse.

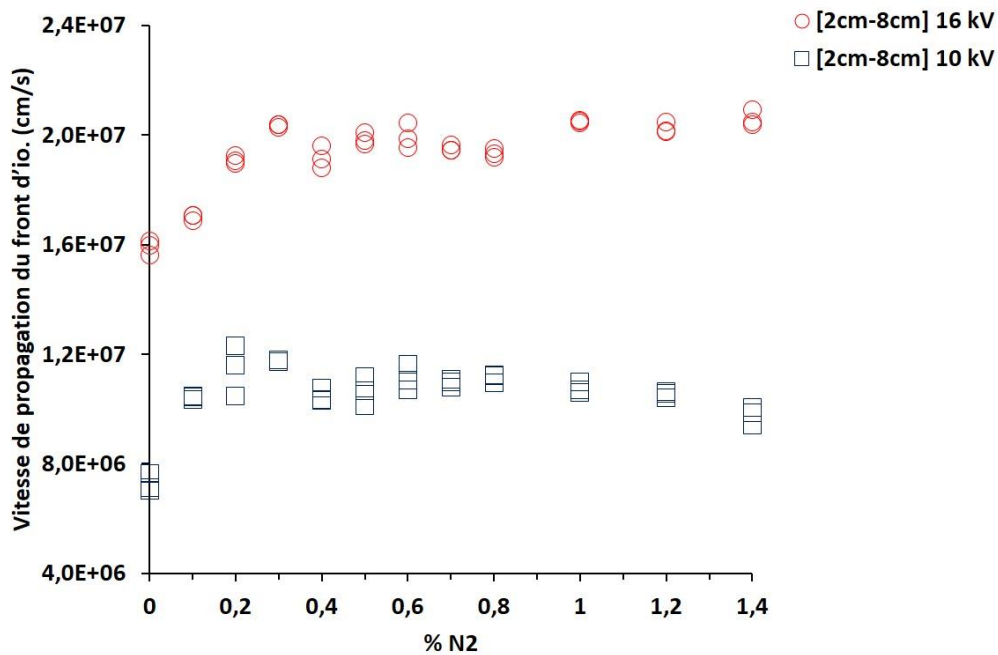


Figure IV-29 : évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire (entre 2 et 8 cm) en fonction de la concentration d'azote pour deux tensions appliquées (géométrie électrode externe).

A 16 kV, l'augmentation de la vitesse de propagation du front d'ionisation est nettement visible entre 0 et 0,3 %, mais nous ne pouvons pas définir d'optimum de vitesse en fonction de la concentration d'azote. A chaque concentration, les valeurs de vitesses moyennes sont en comparaison plus élevées que leurs homologues en Figure IV-22. Les vitesses maximales sont proches de $2 \cdot 10^7$ cm/s, alors qu'elles n'excèdent pas $1,4 \cdot 10^7$ cm/s en géométrie électrode interne.

Nous pouvons expliquer cette différence par la valeur de la tension instantanée, plus élevée dans la géométrie électrode externe. En effet, comme le montre la Figure IV-30 à 16 kV appliquée, la décharge s'initie à un temps plus tardif qu'en géométrie électrode interne, ce qui implique une valeur de tension instantanée plus élevée. Sur la Figure IV-22, la tension instantanée est environ de 10 kV entre les deux derniers pics. Sur la Figure IV-30, la tension instantanée est proche de 14 kV entre ces deux mêmes pics. Entre 0 % et 0,1 %, le faible décalage temporel sur le premier pic (65 ns en électrode externe, 50 ns en électrode interne) montre que le temps d'initiation de la décharge reste peu sensible à la présence de l'azote dans les deux géométries.

En revanche, à 10 kV appliqué, l'écart est plus important (370 ns). Expérimentalement, pour cette configuration en électrode externe, nous avons constaté que dans l'hélium la décharge s'initie difficilement à 10 kV appliquée, ce qui n'est pas le cas avec azote. De même, nous avons constaté qu'il est possible de baisser la tension appliqué à 8 kV tout en maintenant la décharge avec le mélange, alors que celle-ci s'éteint en hélium seul. Cela indiquerait donc qu'il est a priori plus facile à la décharge de s'initier et de se propager dans le mélange hélium-azote.

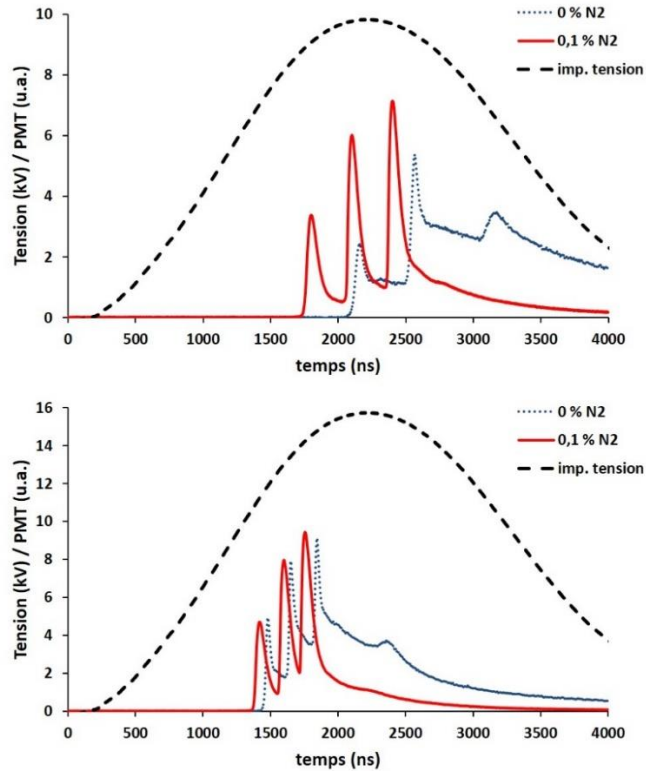


Figure IV-30 : évolution de l'impulsion de tension et signaux du PMT associés au passage du front d'ionisation devant les fibres optiques (10 kV et 16 kV appliquées, hélium sans azote et avec 0,1 % d'azote, géométrie électrode externe).

À 10 kV sans azote, en raison du temps d'initiation tardif, nous pouvons noter que la tension instantanée est plus faible entre les deux derniers pics, comparée au cas 0,1 %. Dans ce cas, l'augmentation de la vitesse de propagation du front d'ionisation s'accompagne donc d'une augmentation de la tension instantanée. Pour vérifier que l'azote possède toujours un rôle accélérateur sur la vitesse de propagation du front d'ionisation, indépendamment de la valeur de la tension à l'électrode interne, nous avons tracé l'évolution de la vitesse de propagation en fonction de la tension instantanée (Figure IV-31).

Pour la déterminer, nous avons repéré la valeur de la tension instantanée entre les deux derniers pics (positions 5 cm et 8 cm), pour différentes tensions appliquées à l'électrode interne (entre 10 et 20 kV), en hélium sans azote et avec 0,1 % d'azote.

Pour des valeurs de tensions instantanées proches, le front d'ionisation se propage toujours plus rapidement avec azote, ce qui reste donc valable pour les deux géométries expérimentales.

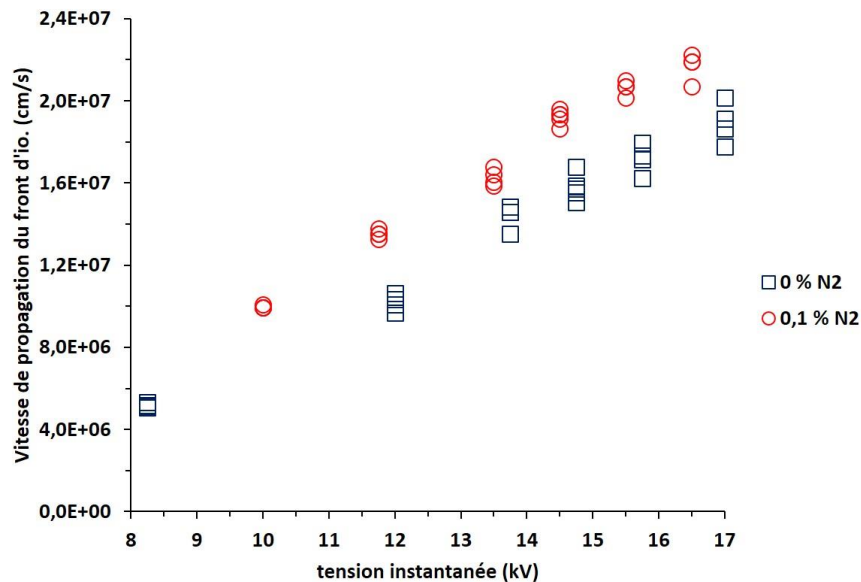


Figure IV-31 : évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire entre 5 cm et 8 cm en fonction de la tension instantanée avec et sans azote (géométrie électrode externe).

Nous pouvons noter deux principales différences entre les deux géométries : le fait que l'électrode haute tension soit placée à l'intérieur ou à l'extérieur du capillaire et la position de la masse par rapport à celle-ci.

En géométrie électrode interne, la bague de masse est positionnée sur le capillaire, telle que l'extrémité de l'électrode interne soit légèrement en retrait du bord de la bague de masse (Figure IV-2). Comme nous l'avons expliqué en section 2.3, cela implique localement un fort gradient de potentiel. En revanche, dans le cas du cylindre, la masse est beaucoup plus éloignée (10 cm) et nous pouvons donc nous attendre, a priori, à un champ électrique plus faible proche de l'électrode haute tension.

Les différences de temps d'initiation observées entre les deux géométries, à la même tension appliquée, pourraient donc en partie s'expliquer par la valeur du champ électrique proche de l'électrode haute tension. En géométrie électrode interne, le fort champ électrique ne nécessite pas une tension instantanée très élevée pour que la décharge s'initie (environ 3 à 4 kV). Pour l'électrode externe, le champ étant plus faible, la tension instantanée doit significativement augmenter pour que la décharge s'initie, ce qui entraîne un retard sur le temps d'initiation.

Pour illustrer l'influence de la bague de masse sur le temps d'initiation, nous avons laissé la bague flottante. L'impact sur le temps d'initiation est important, comme le montre la Figure IV-32, avec environ 500 ns de décalage sur le premier pic (tension appliquée 10 kV).

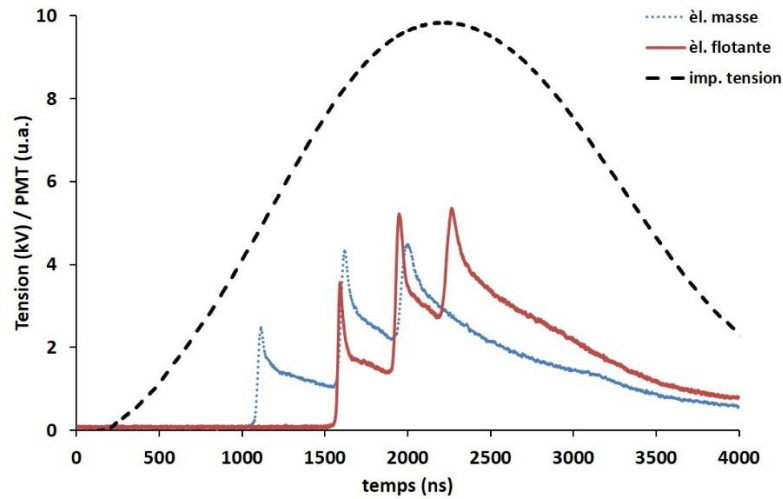


Figure IV-32 : évolution de l'impulsion de tension et signaux du PMT associés au passage du front d'ionisation devant les fibres optiques en géométrie électrode interne lorsque la bague externe est à la masse ou flottante.

Entre la première et la dernière fibre, la vitesse de propagation est plus faible ($6,9 \cdot 10^6$ cm/s) lorsque la bague externe est à la masse. Elle est plus élevée ($8,9 \cdot 10^6$ cm/s) lorsque la bague externe est flottante. Le temps d'initiation est plus tardif et donc la tension instantanée plus élevée dans le dernier cas.

Nous avons également comparé les temps de propagation du front d'ionisation lorsque l'électrode haute tension est à l'intérieur ou l'extérieur du capillaire. Dans les deux cas, le cylindre est positionné tel que sur la Figure IV-28. La Figure IV-33 montre le décalage entre les pics du PMT pour 10 kV de tension appliquée. Le premier pic est 500 ns plus tardif dans le cas de l'électrode externe, ce qui montre bien qu'il est également plus difficile à la décharge de s'initier lorsque l'électrode n'est pas à l'intérieur du capillaire. Ce décalage entraîne une nette baisse de la tension instantanée entre les deux dernières fibres et une diminution de la vitesse de propagation du front d'ionisation ($6,3 \cdot 10^6$ cm/s entre les deux premières fibres et $5,2 \cdot 10^6$ cm/s entre la seconde et la troisième fibre).

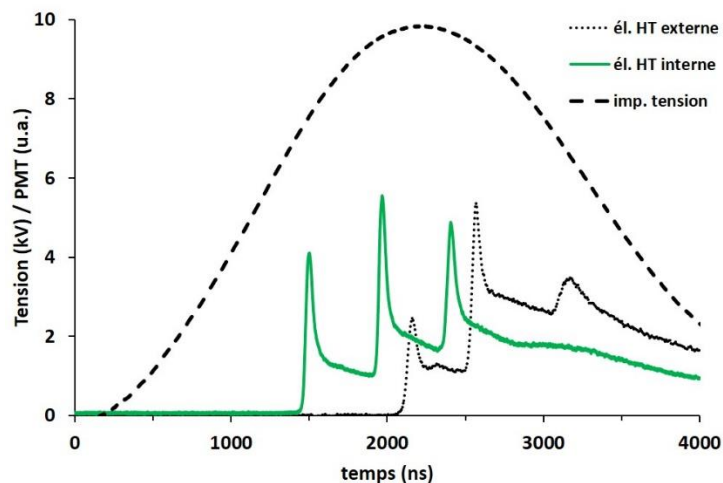


Figure IV-33 : évolution de l'impulsion de tension et signaux du PMT associés au passage du front d'ionisation devant les fibres optiques dans la géométrie électrode interne (sans bague de masse) et externe. Les deux dispositifs sont placés au centre du cylindre relié à la masse.

Dans les géométries électrode interne et électrode externe, la décharge s'initie donc à des temps différents pour une même tension appliquée. Les tensions instantanées et les vitesses de

propagation sont donc également différentes. En revanche, indépendamment de la valeur de la tension instantanée, dans les deux géométries, l'ajout d'azote influe sur la vitesse de propagation du front d'ionisation, avec une nette accélération aux faibles pourcentages. Le phénomène reste donc commun aux deux géométries.

3.6 Résultats du modèle numérique

3.6.1 Détail du modèle numérique

Le capillaire en quartz (permittivité relative $\epsilon_r = 4$) contient de l'hélium à différentes concentrations d'azote, entre 10 et 10000 ppm (1000 ppm = 0,1 %, gaz à 300 K à pression atmosphérique). Nous avons considéré qu'une gamme de concentrations entre 10 ppm et 100 ppm était proche du taux d'impuretés résiduelles d'azote dans notre dispositif expérimental. Compte tenu de l'échelle de temps μs sur laquelle est simulée l'évolution de la décharge, l'écoulement du gaz peut être considéré comme statique. La modification de l'écoulement par le plasma à la sortie du capillaire est donc également négligée. En sortie de capillaire, l'air est modélisé comme un diélectrique de constante unité.

Le code utilisée est un code fluide 2D axisymétrique, couplant l'équation de Poisson et les équations de diffusions des espèces chargées [23].

Pour étudier l'influence de l'ajout d'azote, à différentes concentrations, le modèle comporte un module cinétique détaillé. Nous pouvons noter qu'il n'existe pas de schéma cinétique de référence pour les jets de plasma en mélange hélium-azote. Plusieurs schémas cinétiques peuvent être trouvés dans la littérature : [14], [23]–[31].

La Figure IV-34 résume les différentes réactions incorporées dans le modèle.

Le schéma cinétique de référence est dérivé de Pouvesle et al [32], détaillant l'étude d'une post décharge d'hélium à pression atmosphérique, à des concentrations d'azote entre 6 et 700 ppm (réactions 6 à 25 sur la Figure IV-34). Les réactions Penning à trois corps (réactions 10 à 21) et de transfert de charge (réactions 15 à 24) sont particulièrement importantes. He^* désigne le niveau métastable de l'hélium $He\ 2^3S$. Le schéma comporte de plus les excitations par impact électronique direct, les réactions d'ionisations (réactions 1 à 5) ainsi que les réactions de désexcitations $N_2(C)$ issues de [33] (réactions 26 à 28). Les réactions cinétiques de l'ion N_4^+ ont également été prises en compte (réactions 29 à 31).

En résumé, le schéma cinétique inclue donc 8 espèces, dont 5 ions positifs (He^+ , He_2^+ , N_2^+ , $N_2^+(B)$, N_4^+), 2 espèces excités (He^* et $N_2(C)$) ainsi que les électrons.

Le dépôt de charges sur la surface interne du capillaire est pris en compte lorsque le plasma se propage. Le modèle de photo ionisation utilisé est similaire à celui proposé dans [34]. Les photons

émis par l'hélium excité sont absorbés par les molécules d'azote et les ionisent. Ce flux de photons est supposé proportionnel au taux d'excitation de l'hélium par impact électronique.

Enfin, il est important de noter qu'à l'échelle de temps μs de l'évolution de l'impulsion de tension, la cinétique entre en compte. En d'autres termes, tous les processus de recombinaisons ont le temps de se produire dans la colonne plasma.

L'avantage d'un schéma cinétique comportant un nombre de réactions limité, est de pouvoir directement visualiser l'effet de la prise en compte (ou non prise en compte) d'une réaction ou d'un groupe de réactions spécifique, en comparaison avec les comportements observés expérimentalement sur la dynamique de propagation du front d'ionisation.

Nos	Reaction	Rate coefficient	Ref.
R1	$\text{He} + \text{e}^- \rightarrow \text{He}^+ + 2\text{e}^-$	$f(E/N)$	<i>Hagelaar and Pitchford</i> [2005]
R2	$\text{N}_2 + \text{e}^- \rightarrow \text{N}_2^+ + 2\text{e}^-$	$f(E/N)$	<i>Hagelaar and Pitchford</i> [2005]
R3	$\text{He} + \text{e}^- \rightarrow \text{He}^* + \text{e}^-$	$f(E/N)$	<i>Hagelaar and Pitchford</i> [2005]
R4	$\text{N}_2 + \text{e}^- \rightarrow \text{N}_2(\text{C}^3\Pi_u) + \text{e}^-$	$f(E/N)$	<i>Hagelaar and Pitchford</i> [2005]
R5	$\text{N}_2 + \text{e}^- \rightarrow \text{N}_2^+(\text{B}) + 2\text{e}^-$	$f(E/N)$	<i>Hagelaar and Pitchford</i> [2005]
R6	$\text{He}^* + \text{e}^- \rightarrow \text{He} + \text{e}^-$	$2.9 \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R7	$\text{He}^* + \text{He}^* \rightarrow \text{He}^+ + \text{He} + \text{e}^-$	$4.35 \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R8	$\text{He}^* + \text{He}^* \rightarrow \text{He}_2^+ + \text{e}^-$	$1.015 \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R9	$\text{He}^* + \text{N}_2 \rightarrow \text{He} + \text{N}_2^+ + \text{e}^-$	$3.8 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R10	$\text{He}^* + \text{N}_2 + \text{He} \rightarrow 2\text{He} + \text{N}_2^+ + \text{e}^-$	$1.65 \times 10^{-30} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R11	$\text{He}_2^+ + \text{e}^- \rightarrow \text{He} + \text{He}$	$4.0 \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R12	$\text{N}_2^+ + \text{e}^- \rightarrow \text{N} + \text{N}$	$1.0 \times 10^{-7} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R13	$\text{He}^+ + 2\text{He} \rightarrow \text{He}_2^+ + \text{He}$	$1.5 \times 10^{-31} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R14	$\text{He}_2^+ + \text{N}_2 \rightarrow \text{N}_2^+ + 2\text{He}$	$0.275 \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R15	$\text{He}_2^+ + \text{N}_2 + \text{He} \rightarrow \text{N}_2^+ + 3\text{He}$	$0.34 \times 10^{-29} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R16	$\text{He}_2^+ + \text{e}^- \rightarrow \text{He}^* + \text{He}$	$5.0 \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R17	$\text{He}^* + 2\text{He} \rightarrow \text{He}_2^* + \text{He}$	$1.9 \times 10^{-34} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R18	$\text{He}^+ + \text{N}_2 \rightarrow \text{He} + \text{N}_2^+$	$1.2 \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R19	$\text{He}^+ + \text{N}_2 + \text{He} \rightarrow 2\text{He} + \text{N}_2^+$	$2.2 \times 10^{-29} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R20	$\text{He}^* + \text{N}_2 \rightarrow \text{He} + \text{N}_2^+(\text{B}) + \text{e}^-$	$3.8 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R21	$\text{He}^* + \text{N}_2 + \text{He} \rightarrow 2\text{He} + \text{N}_2^+(\text{B}) + \text{e}^-$	$1.65 \times 10^{-30} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R22	$\text{N}_2^+(\text{B}) + \text{e}^- \rightarrow \text{N} + \text{N}$	$1.0 \times 10^{-7} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R23	$\text{He}_2^+ + \text{N}_2 \rightarrow \text{N}_2^+(\text{B}) + 2\text{He}$	$0.825 \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R24	$\text{He}_2^+ + \text{N}_2 + \text{He} \rightarrow \text{N}_2^+(\text{B}) + 3\text{He}$	$1.02 \times 10^{-29} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R25	$\text{N}_2^+(\text{B}) \rightarrow \text{N}_2^+ + h\nu$	$1.5 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$	<i>Pouvesle et al.</i> [1982]
R26	$\text{N}_2(\text{C}^3\Pi_u) + \text{N}_2 \rightarrow \text{products}$	$8.0 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	<i>Naidis</i> [2011b]
R27	$\text{N}_2(\text{C}^3\Pi_u) + \text{He} \rightarrow \text{products}$	$1.0 \times 10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	<i>Naidis</i> [2011b]
R28	$\text{N}_2(\text{C}^3\Pi_u) \rightarrow \text{N}_2(\text{B}^3\Pi_g) + h\nu$	$2.4 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$	<i>Naidis</i> [2011b]
R29	$\text{N}_2^+ + 2\text{N}_2 \rightarrow \text{N}_4^+ + \text{N}_2$	$5 \times 10^{-29} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$	<i>Kossyi et al.</i> [1992]
R30	$\text{N}_4^+ + \text{e}^- \rightarrow \text{N}_2 + \text{N}_2$	$2 \times 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	see text
R31	$\text{N}_4^+ + \text{N}_2 \rightarrow \text{N}_2^+ + 2\text{N}_2$	$2.5 \times 10^{-15} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	<i>Kossyi et al.</i> [1992]

Figure IV-34 : schéma cinétique du modèle, issue de [21].

3.6.2 Influence du taux de pré-ionisation

Nous avons vu précédemment que des variations du temps d'initiation influent sur la vitesse de propagation du front d'ionisation, en raison de la forme de l'impulsion de tension. Dans le modèle, le choix de la pré-ionisation initiale influe sur le temps d'initiation de la décharge.

Le Tableau IV-4, issue de [21], compare dans les cas 10 et 16 kV appliquées, pour 1000 ppm d'azote, les temps d'initiation de la géométrie expérimentale et du modèle pour différents taux de pré-ionisation initiaux.

Tension appliquée (kV)	10	16
Temps initiation expérimentale (ns)	1690	1240
Temps initiation modèle (ns) pour $n_{init} =$		
10 cm^{-3}	1500	1150
10^4 cm^{-3}	1400	1050
10^7 cm^{-3}	1100	900
10^9 cm^{-3}	1050	750

Tableau IV-4 : variation du temps d'initiation de la décharge calculé par le modèle en fonction du taux de pré-ionisation pour deux valeurs de tensions appliquées. Variation du temps d'initiation mesurée expérimentalement pour les mêmes tensions appliquées (issue de [21]).

Dans l'expérience comme dans le modèle, le temps d'initiation diminue lorsque la tension appliquée augmente, ce qui est conforme à ce que nous avons décrit précédemment. Nous pouvons remarquer que les temps d'initiation issues du modèle, de plus en plus tardifs lorsque le taux de pré-ionisation initial diminue, sont moins élevés que dans l'expérience. Expérimentalement, nous avons relevé ce temps en plaçant une fibre optique au plus proche de l'électrode et en repérant le temps du démarrage du pic du signal du PMT. Dans le modèle, le temps d'initiation correspond au moment où le pic du champ électrique longitudinal atteint une valeur située entre 8 et 10 kV/cm (sur l'axe de la décharge). Or, nous avons montré en partie 2.3 que la composante longitudinale précédait toujours la lumière associée au front d'ionisation d'environ 500 ns. Cela pourrait donc expliquer que les temps d'initiation mesurés soient plus tardifs que les temps calculés par le modèle.

La Figure IV-35 montre les courbes de vitesses associées à différents taux de pré-ionisation initiaux. La vitesse de propagation dans le modèle est calculée à partir des différentes positions, le long du capillaire, du pic de champ électrique longitudinal associé au front d'ionisation, par intervalle de 50 ns.

Plus le taux de pré-ionisation diminue, plus la décharge s'initie tardivement et plus la vitesse de propagation du front est élevée. Ceci est la conséquence directe de la forme de l'impulsion de tension et de la valeur de la tension instantanée. Entre l'expérience et le modèle, les vitesses de propagations sont les plus proches pour les faibles taux de pré-ionisations. Le taux 10^4 cm^{-3} étant proche du taux de pré-ionisation naturel dans l'air, cette valeur sera fixée pour la suite des calculs.

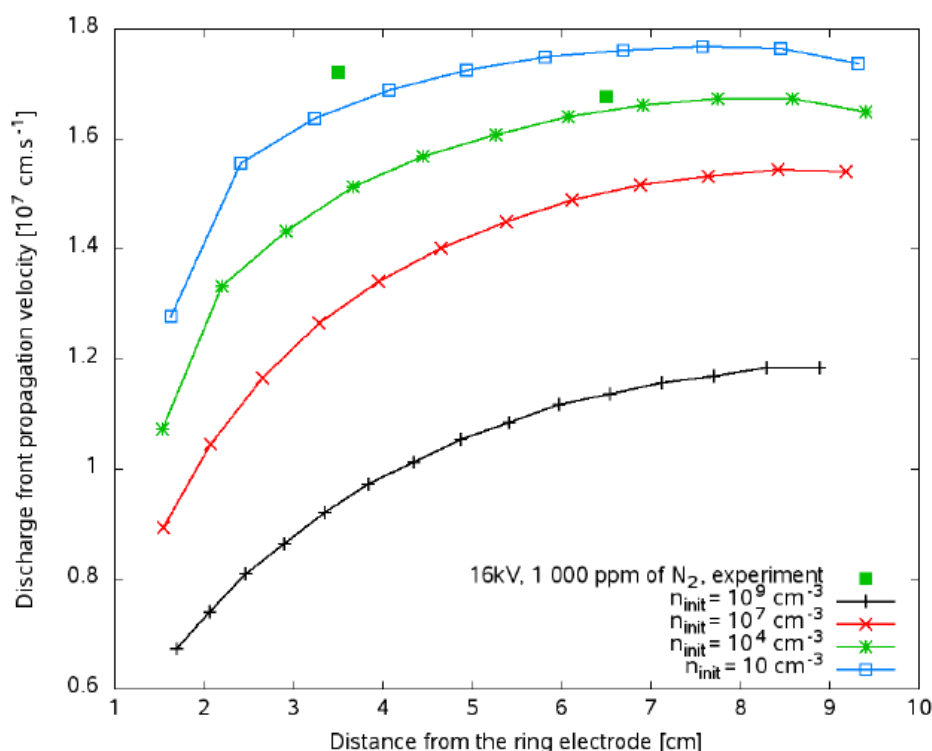


Figure IV-35 : évolution de la vitesse de propagation le long du capillaire pour différents taux de pré-ionisation initiaux (16 kV appliquée, 1000 ppm de N₂) issue de [21].

Nous pouvons toutefois noter que l'allure des courbes de vitesses le long du capillaire est plus difficile expérimentalement à mettre en évidence en géométrie électrode externe (vitesse presque constante sur les deux positions moyenne). Cependant, l'allure des courbes est en bon accord avec ce qui été mesuré en géométrie électrode interne le long du capillaire (Figure IV-12 , Figure IV-19). Nous reviendrons sur ce point en section 3.6.6.

3.6.3 Influence de la cinétique réactionnelle sur la vitesse de propagation et la structure du plasma

La Figure IV-36 montre l'influence de la cinétique sur la vitesse de propagation du front d'ionisation. Différents schémas ont été testés par rapport au schéma de référence présenté en partie 3.6.1 (courbe noire sur la figure). Les temps de propagation associés à chacune des courbes sont ici toujours inférieurs au temps du maximum de l'impulsion de tension (2 μs). De fait, une baisse de la vitesse de propagation le long du capillaire, en raison d'une diminution de tension instantanée, ne peut donc pas se produire.

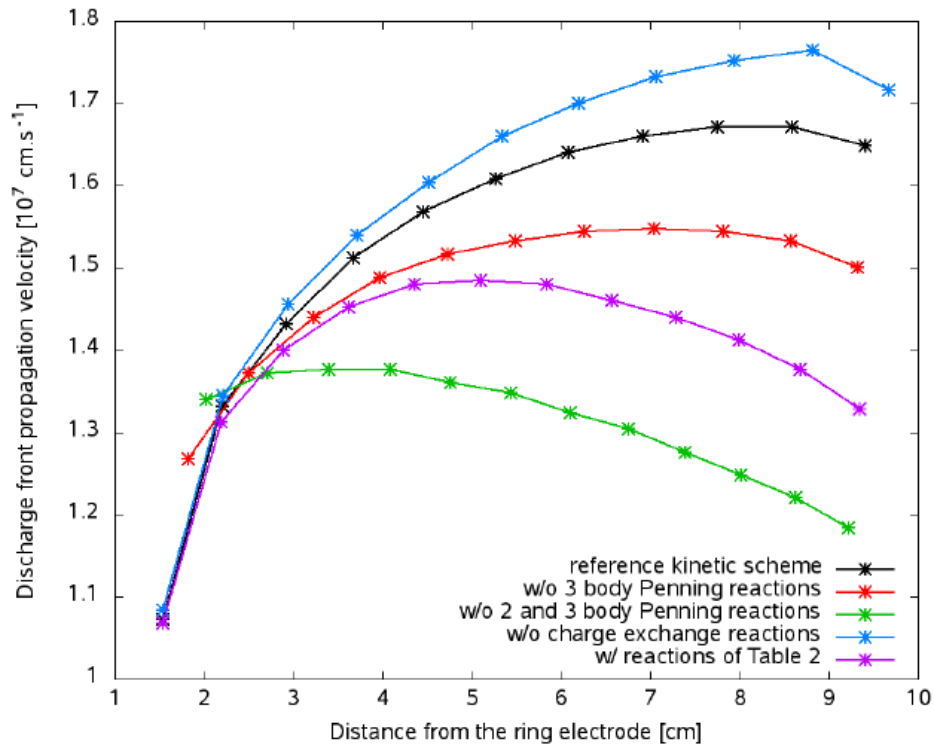


Figure IV-36 : influence de la cinétique sur la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire (16 kV appliquée, 1000 ppm d'azote), Issue de [21].

Nous pouvons voir sur la courbe verte que lorsque les réactions penning sont retirées (réactions 9, 10, 20 et 21 sur la Figure IV-34), la vitesse de propagation chute rapidement le long du capillaire. Dans la mesure où les réactions penning génèrent des ions et des électrons dans la colonne plasma, derrière le front d'ionisation, retirer ces réactions tend à diminuer la conductivité de la colonne. La colonne étant plus résistive, la vitesse de propagation du front diminue par rapport au cas de référence. Ce résultat est important car il montre clairement l'influence de la colonne plasma sur la vitesse de propagation du front d'ionisation.

La courbe bleu clair montre l'influence des réactions de transfert de charge sur la vitesse de propagation (réactions 14, 15, 23 et 24 sur la Figure IV-34). Sans ces réactions, la concentration de l'ion moléculaire He_2^+ reste élevée dans la colonne. Cet ion possède un taux de recombinaison dissociatif plus faible que N_2^+ et $\text{N}_2^+(\text{B})$, en conséquence, la colonne est donc plus conductrice que dans le cas de référence. Cet accroissement de conductivité de la colonne tend donc à légèrement augmenter la vitesse de propagation.

Enfin, le schéma cinétique de la courbe violette ajoute deux réactions au schéma de référence (Figure IV-37).

Nos	Reaction	Rate coefficient	Ref.
R32	$\text{N}_2^+ + \text{N}_2 + \text{He} \rightarrow \text{N}_4^+ + \text{He}$	$1.9 \times 10^{-29} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1}$	<i>Martens et al.</i> [2008]
R33	$\text{N}_4^+ + \text{He} \rightarrow \text{N}_2^+ + \text{N}_2 + \text{He}$	$2.5 \times 10^{-15} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	<i>Martens et al.</i> [2008]

Figure IV-37 : réactions cinétiques additionnelles au schéma cinétique de référence. Issue de [21]

Lorsque ces réactions sont ajoutées, N_4^+ devient l'ion majoritaire dans la colonne. Sa recombinaison dissociative étant plus efficace que celle de N_2^+ , la conductivité de la colonne et la vitesse de propagation diminuent par rapport au cas de référence. Nous verrons en partie suivante que ces réactions interviennent pour les plus fortes concentrations d'azote.

3.6.4 Influence de la concentration de N_2 sur la vitesse de propagation du front d'ionisation

Nous avons vérifié que le temps d'initiation de la décharge était peu sensible aux différentes concentrations d'azote. Les mesures ont été effectuées telles que décrites en partie 3.6.2

ppm de N_2	0	10	100	1000	5000	10000
Temps initiation expérience (ns)	1340	-	-	1240	1200	1340
Temps initiation modèle (ns)	-	1150	1100	1050	1000	1050

Tableau IV-5 : temps d'initiation de la décharge en fonction de la concentration d'azote (modèle et géométrie expérimentale en électrode externe).

Ces variations de concentration vont directement impacter sur la cinétique. Pour des concentrations inférieures à 1000 ppm d'azote, l'ion majoritaire sera He_2^+ . Pour 1000 ppm, N_2^+ sera majoritaire, tandis que pour les plus fortes concentrations, N_4^+ sera majoritaire. Comme expliqué en partie précédente, les différents temps de recombinaison de ces ions vont induire des modifications dans la dynamique de propagation du plasma.

Les différentes concentrations d'azote vont également influencer sur le terme source de photoionisation, lequel peut impacter sur la structure et la vitesse de propagation. Toutes les évolutions détaillées des vitesses en fonction de la position le long du capillaire aux différentes concentrations d'azote sont détaillées dans [21] (figures 13 et 14).

3.6.5 Influence de la concentration d'azote sur le champ électrique

La Figure IV-38 compare les évolutions temporelles de la composante longitudinale E_x et la composante radiale E_r mesurées expérimentalement et calculées par le modèle, dans le cas 0,1 % d'azote et 16 kV appliquée. Les évolutions des composantes sont calculées et mesurées à la position longitudinale 3 cm de l'électrode haute tension, à l'extérieur du capillaire (distant de 1 mm de la paroi du capillaire).

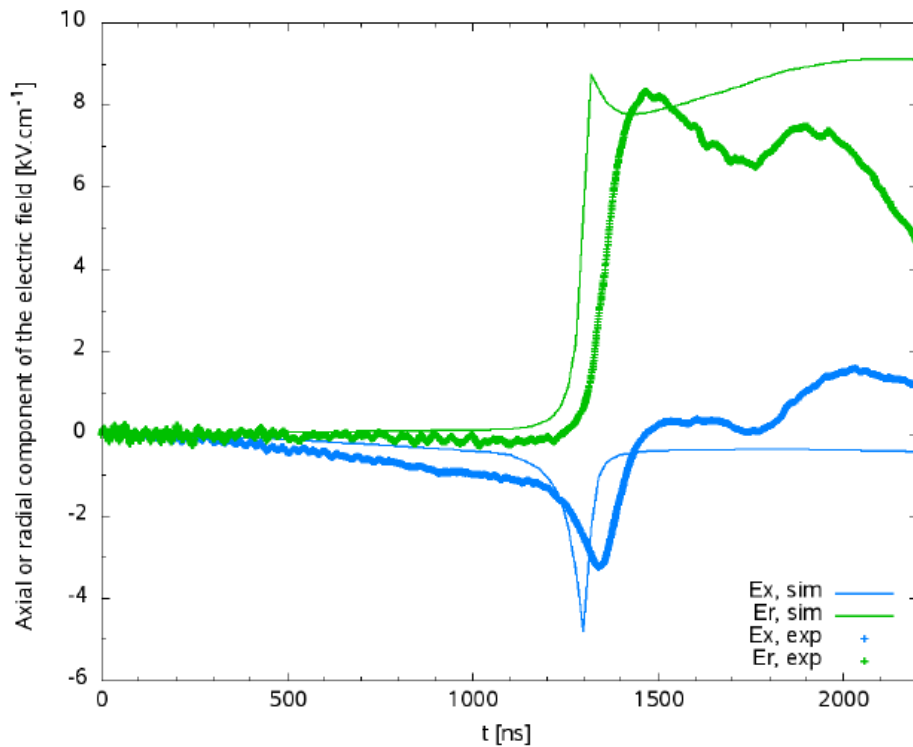


Figure IV-38 : comparaison des évolutions temporelles des composantes longitudinales et radiales du champ électrique mesurées expérimentalement et calculées par le modèle (16 kV, 0,1 % N₂), Issue de [21].

Les évolutions de E_x et E_r calculées par le modèle et mesurées expérimentalement sont en bon accord. Expérimentalement, le front d'ionisation atteint la position 3 cm à l'instant 1350 ns, ce qui correspond donc au maximum de E_x (3,0 kV/cm) et à la brusque augmentation de E_r (8,0 kV/cm). L'évolution des composantes E_x et E_r calculées par le modèle est similaire : à 1300 ns (associée au passage du front d'ionisation à la position 3 cm dans le modèle), le maximum de E_x est synchrone avec la brusque augmentation de E_r . Dans le modèle, les amplitudes maximales de E_x sont comprises entre 3,5 et 5,0 kV/cm et celles de E_r entre 8,1 et 8,5 kV/cm. Après le passage du front d'ionisation, E_x décroît rapidement tandis que la composante radiale présente une évolution plus lente et est maintenue à une valeur élevée, ce qui est visualisé à la fois par l'expérience et par le modèle. Dans ce dernier, le champ émis par la colonne plasma est purement radial.

Expérimentalement, nous pouvons noter une augmentation régulière du champ entre 500 et 1000 ns environ (plus marquée sur E_x), précédant l'augmentation plus rapide dû au passage front d'ionisation. Cette évolution résulte de la configuration géométrique de la décharge, l'électrode haute tension externe émet un champ électrique dans l'intégralité du cylindre. En géométrie électrode interne, ce champ est essentiellement localisé entre l'électrode interne et la bague de masse.

Dans les mêmes conditions expérimentales, sans azote, nous avons mesuré l'évolution temporelle des composantes E_x et E_r . La Figure IV-39 compare les évolutions des deux composantes avec et sans azote.

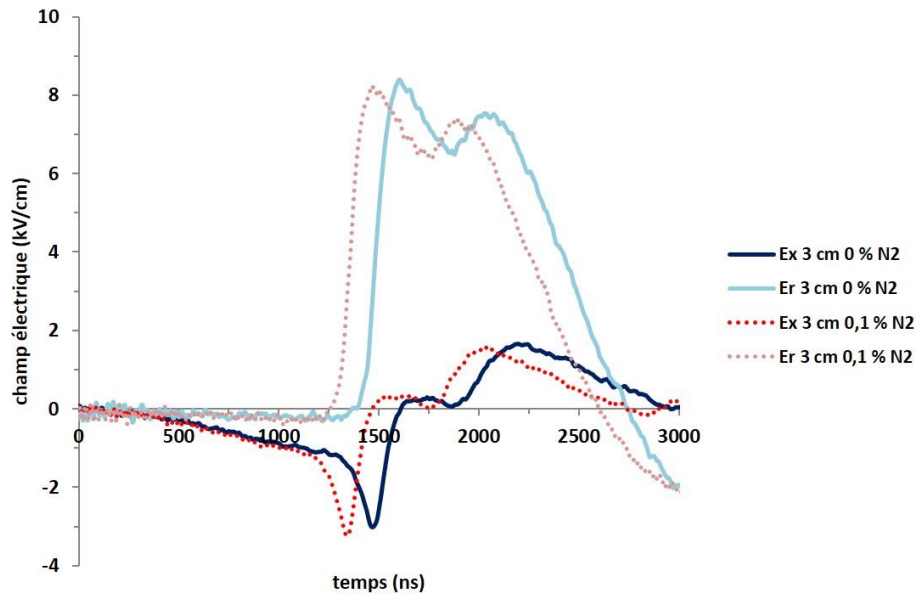


Figure IV-39 : comparaison des évolutions temporelles des composantes longitudinale et radiale du champ électrique dans un cas sans et avec (0,1 %) azote (16 kV appliquée).

Nous pouvons voir que l'amplitude des composantes évolue peu dans les deux cas. Les maxima des composantes sont atteints plus tôt avec 0,1 % d'azote, en raison de la vitesse de propagation du front d'ionisation plus élevée. Cette observation a été validée par le modèle.

Ces mesures expérimentales du champ électrique sont effectuées à l'extérieur du capillaire. Puisque l'expérience et le modèle s'accorde sur l'évolution du champ à cette position (Figure IV-38), nous pouvons utiliser le modèle pour prédire les valeurs du champ électrique à des positions où il est difficile, voire impossible, de le mesurer expérimentalement.

La Figure IV-40 montre l'évolution du champ électrique calculée sur l'axe de symétrie (a) et localement au front d'ionisation (b) pour plusieurs concentrations d'azote. La tension appliquée est de 16 kV. Dans les mêmes conditions que la Figure IV-38, le modèle prédit une valeur de Ex de 8,5 kV/cm sur l'axe de symétrie du capillaire. Cette valeur évolue peu le long du capillaire, ce qui est cohérent avec les mesures de champs électriques effectuées le long du capillaire, décrites en partie 2.

Entre 100 ppm et 10000 ppm de N₂, Ex est globalement peu influencé par la concentration d'azote (entre 8 kV/cm et 9 kV/cm). La valeur du champ est en revanche légèrement plus élevée à 10 ppm de N₂ (entre 9,2 kV/cm et 9,8 kV/cm).

Expérimentalement, nous ne pouvons également pas mesurer le champ électrique localement au front d'ionisation, à l'intérieur du capillaire proche des parois, ce qui est accessible par le modèle. En (b) le modèle montre que localement au front d'ionisation, les valeurs de champs calculées sont bien plus élevées que sur l'axe de symétrie et sont beaucoup plus dépendantes de la concentration d'azote. Pour une concentration de 10 ppm, la valeur est proche de 45 kV/cm le long du capillaire. À 1000 ppm, la valeur chute à environ 30 kV/cm (valeurs les plus faibles calculées). À 5000 ppm l'évolution le long du capillaire est plus importante avec un minimum à 36 kV/cm (1 cm) et un

maximum à 40 kV/cm (8 cm). Cette évolution est encore plus importante pour 10000 ppm, avec un minimum à 39 kV/cm (1 cm) et un maximum à 46 kV/cm (5,5 cm). Entre les différentes concentrations d'azote influant sur les valeurs du champ, le modèle visualise les basculements du schéma cinétique dans les ions dominants. Pour des concentrations augmentant jusqu'à 1000 ppm, l'ion dominant évolue de He_2^+ à N_2^+ et $\text{N}_2^+(\text{B})$, tandis que pour les concentrations de plus en plus élevées, $\text{N}_2(\text{C})$ augmentent progressivement.

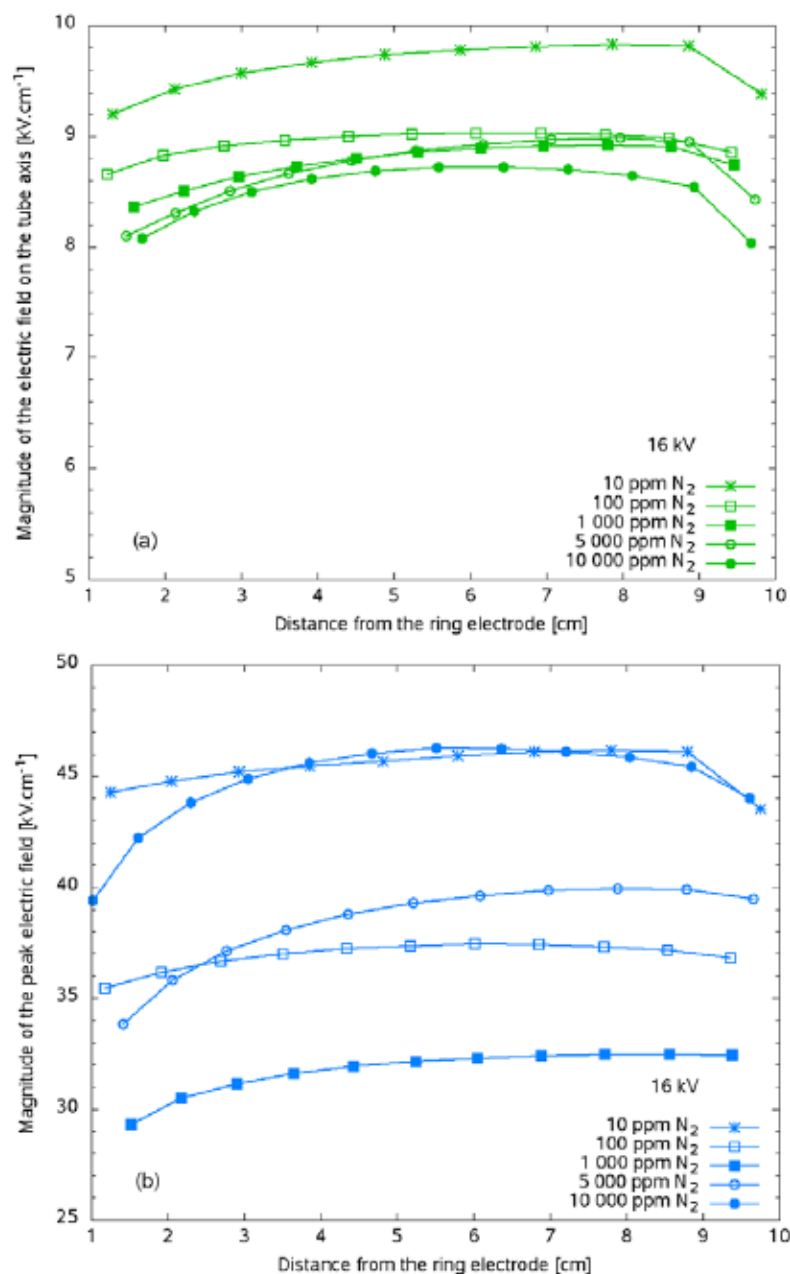


Figure IV-40 : résultats du modèle sur l'évolution du champ électrique le long du capillaire, sur l'axe de symétrie (a) et localement au front d'ionisation proche de la paroi (b) pour plusieurs concentrations d'azote. Issue de [21]

3.6.6 Résumé

Des variations de vitesses de propagation du front d'ionisation le long du capillaire ont été observées expérimentalement, par ajout d'azote dans l'hélium, à différentes concentrations. Ces variations sont accompagnées de nettes modifications dans les spectres d'émission du plasma. Pour simuler les résultats expérimentaux, un schéma cinétique a été développé pour le modèle numérique pour calculer les vitesses de propagation du front d'ionisation le long du capillaire et l'évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique [21].

La décharge étant alimentée par une impulsion de tension μs , les réactions cinétiques dans la colonne, derrière le front d'ionisation, sont importantes pour sa dynamique de propagation (en particulier les réactions penning à 2 et 3 corps). Le modèle montre qu'en fonction de la concentration d'azote, la vitesse du front d'ionisation résulte d'un couplage complexe entre la cinétique de la décharge, sa structure et la photoionisation. Le modèle retrouve la forte dépendance de la vitesse à la tension appliquée et montre que la quantité d'azote, pour plusieurs concentrations, modifie la vitesse dans une moindre mesure.

Nous avons obtenu un bon accord entre les évolutions temporelles des composantes longitudinales et radiales du champ électrique, mesurées et calculées à l'extérieur du capillaire. Le modèle nous a donc permis de prédire des valeurs du champ électrique à des endroits où il est impossible de le mesurer expérimentalement. Le modèle calcule que sur l'axe de symétrie du dispositif, l'amplitude maximale du champ du front d'ionisation évolue peu le long du capillaire et est peu sensible à l'ajout d'azote, ce que nous mesurons expérimentalement hors axe. Cependant, le modèle prédit que localement au front d'ionisation, l'amplitude maximale du champ est nettement plus élevée (de l'ordre de 30 à 45 kV/cm) et beaucoup plus dépendante de la concentration d'azote.

Concernant la géométrie de la décharge, la géométrie expérimentale a été adaptée pour approcher au plus près celle du modèle (électrode haute tension en anneau externe, dispositif au centre d'un cylindre relié à la masse) afin de faciliter la comparaison avec le modèle. Bien que les phénomènes de variations de vitesses soient similaires entre les deux géométries, les courbes d'évolution de la vitesse en fonction de la concentration d'azote (cf. Figure IV-29) sont moins marquées en géométrie électrode externe. Il en est de même pour la dépendance à la tension instantanée le long du capillaire. En géométrie électrode externe, le capillaire diélectrique sépare le plasma et l'électrode. En géométrie électrode interne, le plasma est en revanche directement en contact avec l'électrode. Il serait, a priori, possible que le couplage entre la colonne plasma et l'électrode haute tension soit plus efficace en géométrie électrode interne. Ceci pourrait expliquer que les évolutions de vitesses le long du capillaire ainsi que les courbes d'optimum de vitesse en fonction de la concentration d'azote, soient expérimentalement plus marquées en géométrie électrode interne.

Nous pouvons également noter que le passage d'une géométrie à l'autre nous a permis de mettre en évidence des effets géométriques sur la configuration des lignes de champs électrique, impactant sur le temps d'initiation de la décharge. De fait, le modèle peut initier la décharge pour un taux de pré-ionisation proche du taux naturel dans l'air, avec un temps d'initiation proche de celui de l'expérience dans la même géométrie. Nos expériences ont été effectuées à une fréquence

de répétition de l'impulsion de tension de 1 kHz. Dans nos conditions expérimentales, en mono coup, c'est-à-dire pour une unique impulsion, nous n'avons par ailleurs pas mesuré de différences significatives dans les vitesses de propagation du front d'ionisation. Le modèle numérique est capable d'initier une décharge pour un taux de pré-ionisation naturelle proche du taux naturelle dans l'air ($10^4 \text{ e}^-/\text{cm}^3$), ce qui est donc réaliste vis-à-vis de nos observations expérimentales.

3.7 Cas de la polarité négative

Notre étude a précédemment porté sur la mesure de la vitesse de propagation du front d'ionisation dans le capillaire pour une impulsion de tension de polarité positive. Toutefois, nous avons également effectué quelques mesures de vitesses en polarité négative.

L'accélération aux faibles concentrations d'azote (ainsi que l'augmentation de la longueur de propagation) est également vérifiée dans le cas de la polarité négative. Les vitesses de propagations sont inférieures à celles de la polarité positive, à une même concentration d'azote. Pour une tension appliquée de 16 kV, nous avons mesuré une vitesse de propagation qui évolue de $8,3 \cdot 10^6 \text{ cm/s}$ sans azote à $9,6 \cdot 10^6 \text{ cm/s}$ avec 0,1 % d'azote (position [2cm -5cm]). L'augmentation de vitesse s'accompagne d'une forte augmentation d'intensité lumineuse en tête de front d'ionisation et dans la colonne, comme le montre la Figure IV-41.

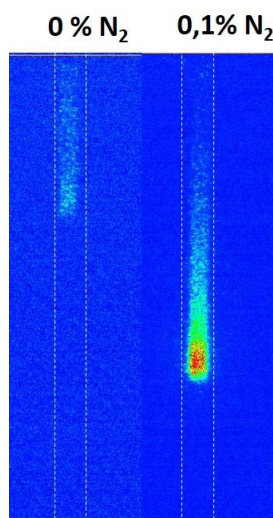


Figure IV-41 : images ICCD de la propagation du plasma dans le capillaire de 10 cm en hélium sans azote et avec 0,1 % d'azote, en polarité négative. Les images sont intégrées 20 ns aux mêmes délais.

Dans [11] il était expliqué que le dépôt de charges sur les parois était conséquent en polarité négative, ce qui entraînait une forte augmentation de la résistivité de la colonne, comparé au cas positif.

Nous pouvons faire l'hypothèse que les vitesses de propagation du front d'ionisation plus faibles en polarité négative soient a priori une conséquence directe de la résistivité plus élevée de la colonne. Cette résistivité plus élevée pourrait donc expliquer que même à tension instantanée supérieure à

l'électrode interne (section 2.3.3), la vitesse de propagation du front d'ionisation est plus lente en polarité négative.

Tout comme pour la polarité positive, l'augmentation de la vitesse de propagation aux faibles concentrations d'azote pourrait donc directement s'interpréter par une baisse de résistivité de la colonne. Nous pouvons par ailleurs remarquer que pour cette polarité, le mécanisme de photoionisation est moins crucial à la propagation de la décharge, puisque les électrons dérivent dans le sens de la propagation du front d'ionisation. Ceci tendrait donc, a priori, à minimiser le rôle de la photoionisation dans les phénomènes d'augmentation de vitesse de propagation du front d'ionisation pour les mélanges hélium-azote.

Bien que n'ayons pas mesuré des différences significatives dans les amplitudes des composantes longitudinales et radiales du champ électrique associées au front d'ionisation entre les polarités positive et négative (section 2.3.2), seul le modèle pourrait vérifier si localement au front d'ionisation, l'amplitude du champ électrique varie significativement d'une polarité à l'autre.

4. Conclusion et perspectives

Par notre étude de la propagation du plasma le long du capillaire diélectrique, nous avons mis en évidence le caractère fondamental que jouait la colonne plasma dans la dynamique de propagation du front d'ionisation. Nous avons tout d'abord procédé à des mesures de l'évolution temporelle des composantes longitudinale et radiale du champ électrique le long du capillaire. Ces premières mesures expérimentales permettent de suivre la dynamique de propagation du front d'ionisation et de la colonne derrière celui-ci, possibilité jusqu'alors uniquement octroyée par des modèles numériques. Ces mesures ont confirmé les prédictions du modèle de Kushner [11] quant au maintien de l'amplitude du champ électrique associée au front d'ionisation, pour de grandes distances de propagation. Sont également confirmés la présence d'une composante longitudinale en aval du front d'ionisation, (4 cm devant la lumière du front), nécessaire à sa propagation, et le basculement radial du champ dans la colonne plasma. Ces mesures confirment par ailleurs la connexion du front d'ionisation à l'électrode interne, par les durées de maintien des composantes radiales, s'expliquant par la transmission du potentiel appliqué à l'électrode interne, par la colonne plasma conductrice. Ces résultats sont en partie publiés dans [35].

La seconde partie de notre étude nous a permis de mettre en évidence les propriétés de la colonne plasma sur la dynamique de propagation du front d'ionisation. Nous avons procédé à une étude expérimentale et numérique des effets de mélanges de plusieurs concentrations d'azote dans l'hélium, sur la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire. Nous avons observé que la vitesse de propagation pouvait être modulée en fonction de la concentration d'azote injectée dans l'hélium. Ces phénomènes s'accompagnent d'une homogénéisation du plasma, d'une augmentation de la longueur de propagation et de changements graduels dans les spectres d'émissions. Il s'avère que compte tenu de la durée microseconde de l'impulsion de tension, les aspects de la cinétique réactionnelle de la colonne doivent être pris en compte pour décrire la dynamique de propagation du front d'ionisation. Suivant les concentrations d'azote mélangées, les

réactions cinétiques mises en jeu font varier la résistivité de la colonne et influent sur la vitesse de propagation du front. Le modèle a de plus montré que contrairement à ce qui est mesuré et calculé à l'extérieur du capillaire, l'amplitude du champ électrique, localement au front d'ionisation, est élevée (30 kV/cm à 45 kV/cm) et est sensible à la concentration d'azote. Cette étude a été publiée dans [21].

Nous pouvons également noter que les ratios des intensités des émissions du N_2^{+*} à 391,4 nm et le N_2^* à 337,1 nm ont été utilisés par Stepanyan et al [36], dans le cas d'une DBD de surface (pulsée ns), pour déduire, via un modèle numérique, l'amplitude du champ électrique (en polarités positive et négative).

Pour des tensions à front de montée nanosecondes sur le Plasma Gun, Robert et al dans [16] avaient mis en évidence des vitesses de propagation du front d'ionisation plus rapides en polarité négative qu'en polarité positive. Dans ce cas, par rapport à une impulsion de tension μ s, plus lente, il est possible que les réactions cinétiques dans la colonne n'aient pas le temps d'influer significativement sur la vitesse de propagation du front. L'effet des mélanges hélium-azote dans le plasma Gun avec ce type d'impulsion permettrait de confirmer cette hypothèse.

Pour les jets de plasma froid à pression atmosphérique utilisés pour les applications biomédicales, l'ajout de faibles concentrations d'azote dans l'hélium possèdent plusieurs avantages. Il est possible d'une part d'augmenter la longueur de propagation du plasma, sans modifier la géométrie de la décharge ni les paramètres électriques du générateur. D'autre part, l'ajout d'azote tend à fortement augmenter l'émissions de NO^* , molécule d'intérêt pour les applications biologiques.

Outre son intérêt fondamental, la caractérisation du champ électrique dans les jets de plasma froid à pression atmosphérique pourrait également se révéler importante pour certains mécanismes cellulaires, potentiellement déclenchés par de fortes amplitudes de champ électrique transitoires (phénomène d'électro-poration, [37]).

Notre étude a ici porté sur la caractérisation d'un jet libre, c'est à dire un jet plasma se développant librement dans l'air. Or, en condition de traitement biomédicale, le jet plasma est mis en contact avec une cible. Dans le chapitre suivant, nous allons étudier en détail les phénomènes mis en jeu lors de l'interaction du jet avec la cible, pour lesquels la colonne plasma conductrice joue un rôle fondamental.

5. Bibliographie du chapitre IV

- [1] A. Shashurin, M. N. Shneider, and M. Keidar, "Measurements of streamer head potential and conductivity of streamer column in cold nonequilibrium atmospheric plasmas," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 21, p. 049601, 2012.
- [2] G. a. Dawson and W. P. Winn, "A model for streamer propagation," *Zeitschrift fur Phys.*, vol. 183, no. 2, pp. 159–171, 1965.
- [3] G. Cho, J. Kim, H. Kang, Y. Kim, G. Kwon, and H. S. Uhm, "Electrical potential measurement in plasma columns of atmospheric plasma jets," *J. Appl. Phys.*, vol. 112, no. 10, p. 103305, 2012.
- [4] a Sobota, O. Guaitella, and E. Garcia-Caurel, "Experimentally obtained values of electric field of an atmospheric pressure plasma jet impinging on a dielectric surface," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 46, no. 37, p. 5pp, 2013.
- [5] G. B. Sretenović, I. B. Krstić, V. V. Kovačević, B. M. Obradović, and M. M. Kuraica, "Spectroscopic measurement of electric field in atmospheric-pressure plasma jet operating in bullet mode," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 99, no. 16, pp. 2013–2016, 2011.
- [6] G. B. Sretenović, I. B. Krstić, V. V. Kovačević, B. M. Obradović, and M. M. Kuraica, "Spectroscopic study of helium DBD plasma jet," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, vol. 161502, no. 171034, p. 171034, 2012.
- [7] S. S. Ivković, G. B. Sretenović, B. M. Obradović, N. Cvetanović, and M. M. Kuraica, "On the use of the intensity ratio of He lines for electric field measurements in atmospheric pressure dielectric barrier discharge," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 47, no. 5, p. 055204, 2014.
- [8] G. B. Sretenović, I. B. Krstić, V. V. Kovačević, B. M. Obradović, and M. M. Kuraica, "Spatio-temporally resolved electric field measurements in helium plasma jet," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 47, no. 10, p. 102001, 2014.
- [9] B. M. Goldberg, I. Shkurenkov, S. O'Byrne, I. V Adamovich, and W. R. Lempert, "Electric field measurements in a dielectric barrier nanosecond pulse discharge with sub-nanosecond time resolution," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 24, no. 3, p. 035010, 2015.
- [10] B. M. Goldberg, P. S. Böhm, U. Czarnetzki, I. V Adamovich, and W. R. Lempert, "Electric field vector measurements in a surface ionization wave discharge," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 24, no. 5, p. 055017, 2015.
- [11] Z. Xiong and M. J. Kushner, "Atmospheric pressure ionization waves propagating through a flexible high aspect ratio capillary channel and impinging upon a target," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 21, no. 3, p. 034001, 2012.
- [12] C. Jiang, M. T. Chen, and M. a Gundersen, "Polarity-induced asymmetric effects of nanosecond pulsed plasma jets," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 42, no. 23, p. 232002, 2009.
- [13] Z. Xiong, X. Lu, Y. Xian, Z. Jiang, and Y. Pan, "On the velocity variation in atmospheric pressure plasma plumes driven by positive and negative pulses," *J. Appl. Phys.*, vol. 108, no. 10, pp. 1–6, 2010.
- [14] G. V. Naidis, "Simulation of streamers propagating along helium jets in ambient air: Polarity-induced effects," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 98, no. 14, pp. 2009–2012, 2011.
- [15] A. Luque, V. Ratushnaya, and U. Ebert, "Positive and negative streamers in ambient air: modeling evolution and velocities," *J. Phys. D Appl. Phys.*, vol. 41, p. 18, 2008.

- [16] E. Robert, V. Sarron, D. Riès, S. Dozias, M. Vandamme, and J.-M. Pouvesle, "Characterization of pulsed atmospheric-pressure plasma streams (PAPS) generated by a plasma gun," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 21, no. 3, p. 034017, 2012.
- [17] J. L. Walsh, P. Olszewski, and J. W. Bradley, "The manipulation of atmospheric pressure dielectric barrier plasma jets," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 21, no. 3, p. 034007, 2012.
- [18] J. Shi, F. Zhong, J. Zhang, D. W. Liu, and M. G. Kong, "A hypersonic plasma bullet train traveling in an atmospheric dielectric- barrier discharge jet," *Phys. Plasmas*, vol. 15, no. 01, p. 5pp, 2008.
- [19] X. Lu and M. Laroussi, "Dynamics of an atmospheric pressure plasma plume generated by submicrosecond voltage pulses," *J. Appl. Phys.*, vol. 100, no. 6, pp. 1–6, 2006.
- [20] J. L. Walsh and M. G. Kong, "Room-temperature atmospheric argon plasma jet sustained with submicrosecond high-voltage pulses," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 91, no. 22, p. 221502, 2007.
- [21] A. Bourdon, T. Darny, F. Pechereau, J.-M. Pouvesle, P. Viegas, S. Iséni, and E. Robert, "Numerical and experimental study of the dynamics of a μ s helium plasma gun discharge with various amounts of N₂ admixture," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 25, p. 035002, 2016.
- [22] T. Darny, E. Robert, S. Dozias, and J.-M. Pouvesle, "modulation of ionization front propagation velocity in a μ s Plasma Gun helium discharge with nitrogen admixture," in *GD 2014, Orléans, France*, 2014.
- [23] J. Jánský and A. Bourdon, "Simulation of two counter-propagating helium discharges at atmospheric pressure," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 23, no. 2, p. 025001, 2014.
- [24] T. J. Sommerer and M. J. Kushner, "Numerical investigation of the kinetics and chemistry of rf glow discharge plasmas sustained in He, N₂, O₂, He/N₂/O₂, He/CF₄/O₂, and SiH₄/NH₃ using a Monte Carlo-fluid hybrid model," *J. Appl. Phys.*, vol. 71, no. 4, pp. 1654–1673, 1992.
- [25] G. M. Petrov, J. P. Matte, I. Peres, J. Margot, T. Sadi, J. Hubert, K. C. Tran, L. L. Alves, J. Loureiro, C. M. Ferreira, V. Guerra, and G. Gousset, "Numerical Modeling of a He–N₂ Capillary Surface Wave Discharge at Atmospheric Pressure," vol. 20, no. 2, 2000.
- [26] T. Murakami, K. Niemi, T. Gans, D. O'Connell, and W. G. Graham, "Chemical kinetics and reactive species in atmospheric pressure helium–oxygen plasmas with humid-air impurities," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 22, no. 1, p. 15003 (29pp), 2013.
- [27] Y. Sakiyama and D. B. Graves, "Finite element analysis of an atmospheric pressure RF-excited plasma needle," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 39, pp. 3451–3456, 2006.
- [28] T. Martens, A. Bogaerts, W. J. M. Brok, and J. V Dijk, "The dominant role of impurities in the composition of high pressure noble gas plasmas," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 92, no. 4, pp. 139–142, 2008.
- [29] M. A. Lieberman, "Analytical model of atmospheric pressure , helium / trace gas radio-frequency capacitive," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 025009, p. 25009.
- [30] P. Zhang and U. Kortshagen, "Two-dimensional numerical study of atmospheric pressure glows in helium with impurities," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 39, no. 1, pp. 153–163, 2005.
- [31] C. Lazarou, D. Koukounis, A. S. Chipper, C. Costin, I. Topala, and G. E. Georgiou, "Numerical modeling of the effect of the level of nitrogen impurities in a helium parallel plate dielectric barrier discharge," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 035012, p. 35012.

- [32] J. M. Pouvesle, a Bouchoule, and J. Stevefelt, "Modeling of the charge transfer afterglow excited by intense electrical discharges in high pressure helium nitrogen mixtures," *J. Chem. Phys.*, vol. 77, p. 817, 1982.
- [33] G. V Naidis, "Modelling of plasma bullet propagation along a helium jet in ambient air," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 44, no. 21, p. 215203, 2011.
- [34] G. V Naidis, "Modelling of streamer propagation in atmospheric-pressure helium plasma jets," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 43, no. 40, p. 402001, 2010.
- [35] E. Robert, T. Darny, S. Dozias, S. Iseni, and J. M. Pouvesle, "New insights on the propagation of pulsed atmospheric plasma streams: From single jet to multi jet arrays," *Phys. Plasmas*, vol. 22, no. 12, p. 122007, 2015.
- [36] S. a Stepanyan, V. R. Soloviev, and S. M. Starikovskaia, "An electric field in nanosecond surface dielectric barrier discharge at different polarities of the high voltage pulse: spectroscopy measurements and numerical modeling," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 47, no. 48, p. 485201, 2014.
- [37] Q. Zhang, J. Zhuang, T. von Woedtke, J. F. Kolb, J. Zhang, J. Fang, and K.-D. Weltmann, "Synergistic antibacterial effects of treatments with low temperature plasma jet and pulsed electric fields," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 105, no. 10, p. 104103, 2014.

Chapitre V. Étude de l'interaction du plasma avec une cible conductrice

Ce chapitre porte sur l'interaction du plasma avec une cible conductrice métallique. Dans un premier temps, nous étudierons l'influence du contact avec la cible sur la dynamique du plasma en imagerie rapide, ainsi que par spectroscopie d'émission (intégrée et résolue en temps). Nous étudierons ensuite plus en détail le mécanisme d'interaction par le couplage entre deux diagnostics. Nous corrélons l'évolution temporelle de la concentration des métastables de l'hélium $\text{He } 2^3\text{S}$ (mesurée par spectroscopie d'absorption par laser sur le banc optique du LPGP) et l'évolution temporelle des composantes longitudinale et radiale du champ électrique (mesurée par sonde électro-optique). En procédant à des mesures le long du capillaire et de la plume plasma, nous avons identifié un mécanisme d'interaction précis, déclenché lors du contact du plasma avec la cible conductrice.

1. Introduction

1.1 Pourquoi étudier le jet de plasma en contact avec une cible conductrice ?

Un traitement biomédical par jet de plasma impose de mettre le jet en contact avec le corps que l'on souhaite traiter. Nous rappelons qu'il existe deux approches principales, *in vivo* et *in vitro*, pour lesquels la plume plasma interagit directement avec la cible traitée. De fait, les conditions expérimentales du jet de plasma en traitement diffèrent donc de celles du jet libre.

Une simple comparaison visuelle d'une plume plasma en condition de traitement *in vivo*, avec une plume plasma en jet libre, permet de constater que les allures des deux plumes sont singulièrement différentes. La Figure V-1 illustre la différence visuelle entre ces deux types de plumes.

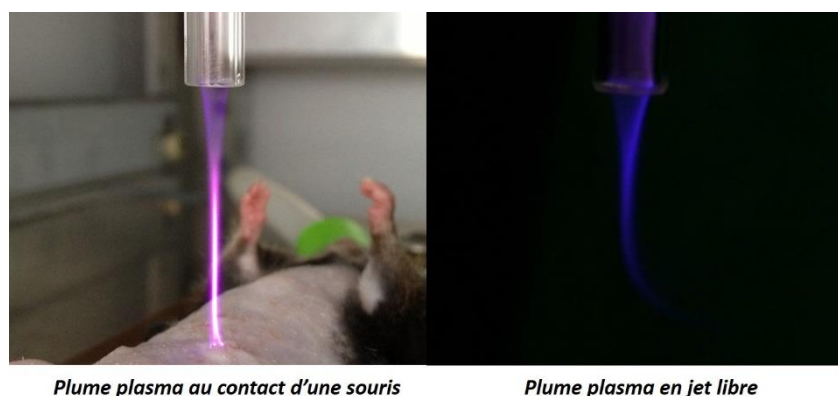


Figure V-1 : plume plasma en contact avec une souris anesthésiée (photo Guillaume Collet) et plume plasma en jet libre

La photographie de gauche, prise au Centre de Biologie Moléculaire (CBM), dans le cadre de l'étude [1], montre la plume du Plasma Gun en contact avec une souris anesthésiée. La photographie de droite montre la plume plasma en jet libre. En contact avec la souris, la plume plasma arbore une

lumière rose intense, dans ces conditions sur une majeure partie de la plume. La lumière dans cette zone rose est bien plus intense que la lumière de la plume proche de la sortie du capillaire ou à l'intérieur de celui-ci, laquelle est difficilement visible en plein jour. La plume du jet libre est en revanche beaucoup moins contrastée. La zone rose y est absente et la plume est beaucoup moins lumineuse. Ces deux configurations de jets (libre et en contact avec la souris) présentent donc des plumes radicalement différentes visuellement.

De manière plus générale, mettre le jet plasma en contact avec une cible conductrice est une condition sine qua non à l'apparition de cette lueur rose dans la plume. La Figure V-2 montre trois plumes plasma d'hélium dans trois configurations distinctes (en contact avec une souris, avec une cible métallique et avec une cible diélectrique isolante). Le débit d'hélium est de 0,5 l/min sur la souris et de 1l/min sur la cible en métal et sur le diélectrique. Les plumes plasma en contact d'une souris ou d'une cible en métal sont visuellement proches, avec une zone rose caractéristique et une zone de contact restreinte sur la surface. Sur le diélectrique, en revanche, la plume plasma ne présente pas de lueur rose et s'étale sur la surface de la cible.

Cette modification de l'émission lumineuse dans la plume plasma, qui diffère suivant la nature ou la présence de la cible, implique des modifications des mécanismes d'excitation des espèces au sein du plasma. Nous reviendrons plus en détail sur ces aspects en partie 2. De fait, nous observons la signature visuelle d'un mécanisme qui semble se déclencher uniquement lorsque le plasma est en contact avec une cible conductrice. Cela implique donc de faire, a priori, une distinction entre un jet de plasma en contact avec une cible conductrice et un jet libre. Cela mène également à faire une distinction entre un traitement *in vivo* et *in vitro*, si la cible est un diélectrique dans le dernier cas. La conductivité électrique étant un vecteur commun à n'importe quel organe, organisme ou liquide, il nous apparaît primordial d'étudier le jet plasma dans une condition expérimentale où des phénomènes similaires sont susceptibles de se déclencher.

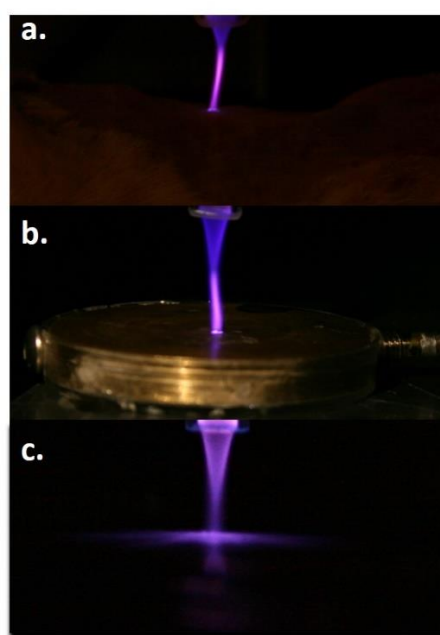


Figure V-2 : plumes plasma en contact avec la peau d'une souris (photo Guillaume Collet (a)), avec une cible métallique reliée à la masse (b) et avec une cible diélectrique (c). La tension appliquée est de 14 kV, le débit 1l/min (b et c) et 0,5 l/min (a). Temps de poses : 0,25 s (a et b) et 0,5 s (c)

1.2 Jets de plasma sur cibles dans la littérature : état de l'art

Les études fondamentales et quantitatives sur les jets libres sont abondantes dans la littérature. En revanche, depuis les premières études sur les jets de plasma froid à pression atmosphérique, très peu d'études sur les jets en interaction avec une cible ont été réalisées.

Il a été montré que les espèces réactives produites par les jets de plasma sont importantes pour les applications biomédicales [2]–[4]. Pour des jets libres, nous pouvons trouver de nombreuses études consacrées à des mesures de la production d'espèces réactives, notamment l'oxygène atomique [5]–[13], le radical hydroxyle OH [14]–[21], le monoxyde d'azote NO [22]–[24] ou l'ozone [25]–[28].

Pour l'étude des propriétés du plasma, ont également été mesurées les espèces métastables de l'argon [29]–[31] et de l'hélium [29], [32]–[34], ainsi que la densité et la température électronique [35]–[37] et le champ électrique [38].

Pour le cas de jets de plasma en contact avec une cible métallique, les études sont beaucoup moins nombreuses. Urabe et al [39] avaient étudié l'interaction d'un jet d'hélium avec une cible métallique reliée à la masse. Le jet plasma utilisé était une DBD coaxiale, alimentée par une tension pulsée bipolaire à une fréquence de répétition de 5 kHz. La largeur de l'impulsion à mi-hauteur était de 2,38 μ s, avec un délai de 100 μ s entre une impulsion positive et une impulsion négative. L'amplitude maximale de la tension était de 6 kV. L'électrode haute tension était un anneau de cuivre glissé sur des capillaires de 2 et 4 mm de diamètres. L'électrode de masse était également un anneau de cuivre, distant de 20 mm de l'électrode haute tension. Le débit d'hélium utilisé était de 2,80 l/min. La cible était une plaque de cuivre reliée à la masse, distante de 20 mm de l'extrémité du capillaire. La densité absolue des métastables de l'hélium He 2^3S était mesurée par LAS et la densité absolue de $N_2^+(X)$ était mesurée par LIF. Les mesures étaient résolues spatialement et temporellement dans la plume plasma, pour les polarités positive et négative. Les profils temporels d'émission de N_2^* à 337,1 nm et N_2^{+*} à 391,4 nm dans la plume, à 1 mm de la surface de la cible, complétaient ces mesures.

La Figure V-3, extraite de l'article, montre les profils temporels d'émission de N_2^* et N_2^{+*} à 1 mm de la surface de la cible. Urabe et al observaient plusieurs phases de peuplement sur les espèces. Ils attribuaient le premier peuplement au passage du front d'ionisation. Pour des temps supérieurs, ils observaient un second peuplement sur N_2^* en polarité positive et sur N_2^* et N_2^{+*} en polarité négative. Les secondes émissions de lumière se produisaient sur une durée plus longue, avec une intensité supérieure à la première émission sur N_2^* en polarité négative. Dans la plume, à des temps ultérieurs au passage du front d'ionisation, ils ont mis en évidence des zones de fortes densités des métastables. Le phénomène était observé dans les deux polarités, mais avec une répartition spatiale et une dynamique différentes.

En polarité positive, ils ont décrit que cette zone de forte densité semblait se propager depuis la sortie du capillaire jusqu'à une distance de 14 mm, à une vitesse de 30 km/s. Pour décrire ce phénomène, Urabe et al ont fait l'analogie avec un mécanisme de glow transitoire [40], observé dans les décharges DBD de type filamentaire [41]. En polarité négative, la zone de forte densité

semblait s'étendre depuis la surface de la cible vers l'extrémité du capillaire, à une vitesse de 100 km/s. Une analogie avec une décharge de type glow était également effectuée.

Ces peuplements décrits sur N_2^* et N_2^{+*} n'ont en revanche pas été clairement mis en évidence sur les allures temporelles des densités de métastables proches de la surface de la cible (voir fig.18 de [39]). Les auteurs avaient conclu leur étude en indiquant que des phénomènes d'ionisation et d'excitation se produisaient probablement proche de la surface de la cible, avec des électrons moins énergétiques. Leur étude, appuyée par des mesures quantitatives, est probablement la première à montrer clairement que le contact avec une cible conductrice influence considérablement les propriétés du plasma. À notre connaissance, cette étude reste conceptuellement la plus proche de ce qui fait l'objet de ce chapitre et qui sera détaillé en partie 2 et 3.

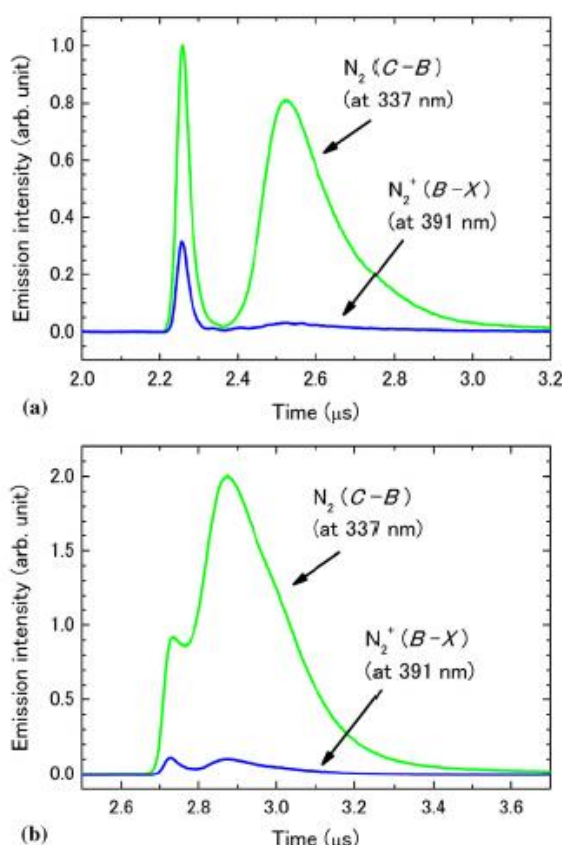


Figure V-3 : évolution de l'intensité de l'émissions lumineuse de N_2^* et N_2^{+*} en polarités positive (a) et négative (b) à 1 mm de la surface de la cible (issue de [39] figure 14).

Xiong et al [42] avaient étudié l'interaction d'un jet d'hélium avec une cible, mais uniquement par spectroscopie optique d'émission. L'étude n'était pas à proprement parler dédiée à l'interaction avec la cible, celle-ci n'était présente que pour des mesures de courant. Toutefois, ils soulignaient entre autre que les niveaux d'excitation de l'hélium étaient fortement peuplés.

Yonemori et al [43] avaient étudié la production de OH et O par LIF et TALIF à la surface de différentes cibles au contact d'un jet d'hélium, alimenté en tension pulsée (8 kV, 10 kHz). Trois types de surfaces étaient considérées : plaque de verre, éponge humide et peau de rat (Figure V-4). Ils ont notamment mis en évidence que la densité de OH était dépendante de l'humidité de la surface. En comparaison de la plaque de verre, la densité était deux fois supérieure dans le cas de la peau de rat et trois fois supérieure pour l'éponge humide, par rapport au jet libre.

Ries et al avaient montré [44] par des mesure de LIF sur le Plasma Gun (hélium) qu'une variation de conductivité d'un liquide cible induisait une variation de la densité de OH produite, jusqu'à un facteur 2. Sur une cible en métal, l'augmentation de la densité était importante ($2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ en jet libre, 10^{14} cm^{-3} avec la cible). L'imagerie ICCD rapide du plasma montrait l'impact du front d'ionisation sur la cible (échelle de temps ns) et ce qui était décrit comme un plasma secondaire en contre-propagation depuis la surface de la cible (échelle de temps μs). Une corrélation était effectuée entre cette observation et la représentation spatiale des plus fortes densités d'OH atteintes à l'instant 200 μs .

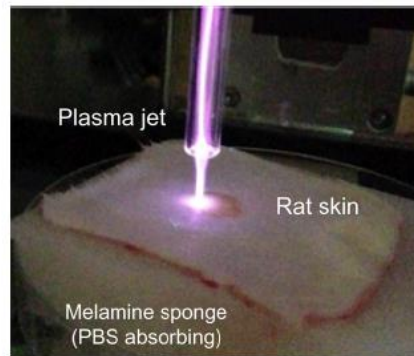


Figure V-4 : jet de plasma de Yonemori et al, en contact avec une peau de rat [43] (figure 4).

Plus récemment, Guaitella et al [45] ont étudié l'interaction d'un jet d'hélium avec une surface en verre. Ils ont mis en évidence un renforcement local du champ électrique proche de la surface de la cible, ainsi que la formation d'une gaine sur la surface.

Enfin, Norberg et al [46] ont étudié numériquement l'interaction d'un jet d'hélium avec des cibles de nature différente (diélectrique et métallique). Nous reviendrons en détail sur cette étude en section 3.7.

Nous pouvons noter que les jets de type plasma needle et les décharges pointes-plan [47]–[55] ou plan-plan [56], [57], [58] sont également en interaction avec une cible. La Figure V-5 est issue de [50].

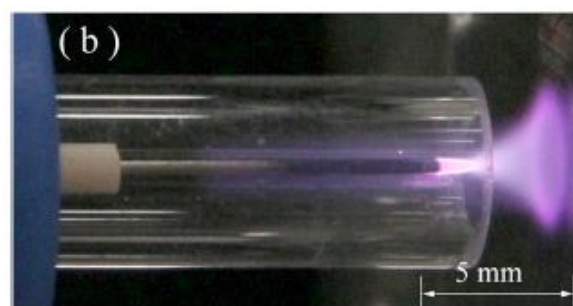


Figure V-5 : jet de plasma de Sakiyama et al [50] (fig.1).

L'interaction plasma liquide [59]–[62] entre également dans la catégorie de l'interaction avec des milieux conducteurs, mais dépasse néanmoins le cadre de notre étude.

Nous pouvons enfin mentionner un dernier cas d'interaction avec une cible conductrice, de nature plus complexe encore. La cible conductrice peut en effet être un autre jet plasma, alimenté par sa propre électrode haute tension, comme étudié par Douat et al [63] pour deux jets d'hélium en interaction (Figure V-6).

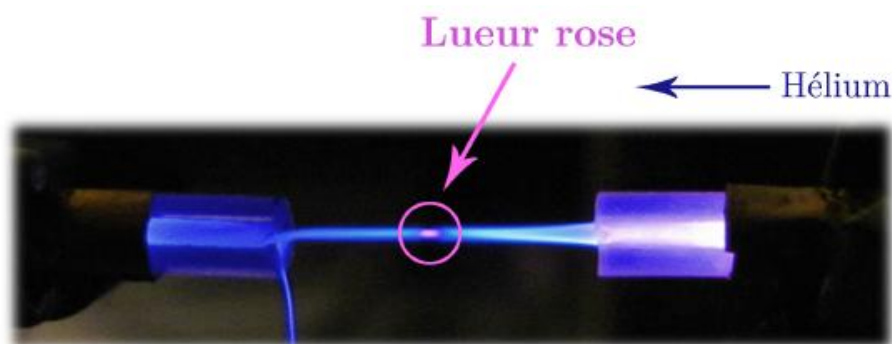


Figure V-6 : jets de plasma d'hélium en interaction mutuelle (thèse de Claire Douat, [33] fig.5-12 p.166).

1.3 Résumé et organisation du chapitre

Bien que la plupart des applications biomédicales et notamment *in vivo* se fassent au contact d'une cible conductrice, il y a un fort déséquilibre du nombre d'études sur la physique des jets libres et des jets en interaction avec une cible conductrice, bien qu'il ait été montré que la cible influençait clairement la production d'espèces réactives et celle des métastables de l'hélium. L'interaction avec une cible dépasse également le cadre biomédical et concerne également toutes applications potentielles de traitements de surface par jet de plasma [64], [65]. Ce chapitre sera donc consacré à une étude approfondie de l'interaction de notre jet plasma (Plasma Gun μ s, principalement en hélium) avec une cible conductrice.

À notre connaissance, toutes les études traitant de l'interaction des jets avec une cible conductrice étaient essentiellement focalisées sur la plume plasma. Dans la continuité de notre étude présentée au chapitre 4, ayant mis en valeur le rôle essentiel de la colonne plasma dans le capillaire, nous étudierons la globalité du jet, de la surface de la cible (plume) jusqu'à l'électrode interne (capillaire). Pour cette étude, nous avons choisi de travailler avec une cible métallique à la masse (laiton), d'une résistivité que nous pouvons considérer comme « nulle ».

Ce chapitre sera organisé comme suit :

- **La partie 2** sera consacrée à une première caractérisation du jet de plasma en interaction avec une cible métallique. Cette étude se base sur la spectroscopie d'émission et l'imagerie ICCD rapide du plasma, dans la globalité du jet (plume et capillaire), ainsi que sur les profils temporels d'émissions des espèces excitées dans la plume et dans le capillaire.

- **La partie 3** concernera le cœur de notre étude de l'interaction du jet de plasma et de la cible métallique. Le long du capillaire et de la plume, nous avons corrélié les mesures des évolutions temporelles des concentrations des métastables de l'hélium (par spectroscopie d'absorption par laser sur le banc optique du LPGP) et les évolutions temporelles des composantes longitudinales et radiales du champ électrique (par sonde électro optique).
- **La partie 4** nous amènera à reconsidérer le cas du jet libre, à la lumière des hypothèses découlant de notre étude principale

2. Première caractérisation de l'interaction avec la cible métallique

2.1 Modification de l'émission lumineuse dans la plume plasma

La Figure V-7 montre la plume plasma en jet libre et au contact d'une cible conductrice métallique reliée à la masse. La cible est située à 1,5 cm de l'extrémité du capillaire. Si l'on se réfère à la Figure III-10 du chapitre III, le jet d'hélium s'étend naturellement à 4 mm de la sortie du capillaire à un débit de 0,5 l/min et à 14 mm à un débit de 1 l/min. Nous avons donc choisi de faire nos mesures à un débit de 1 l/min pour nous affranchir des effets de poussée du plasma à cette distance de cible. Le débit d'hélium sera de 1 l/min pour toutes les mesures présentées en partie 2.

La plume plasma en contact avec la cible métallique émet une lumière rose caractéristique. Pour un débit d'hélium de 1 l/min et une distance de cible de 1,5 cm, la plume est rose sur la moitié inférieure et violette sur la partie supérieure. La zone de contact entre la plume et la cible est restreinte.

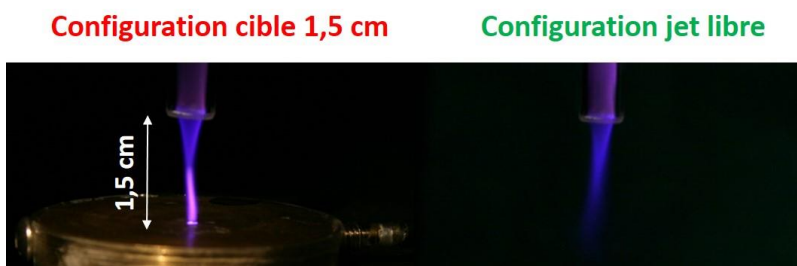


Figure V-7 : photographies des plumes plasma en configuration cible 1,5 cm (temps de pose 0,25s) et en jet libre (temps de pose 1 s) (14 kV, 1 kHz, polarité positive).

La Figure V-8 montre les spectres de la plume plasma proche de la sortie du capillaire (dans la zone violette, à 4 mm de l'extrémité du capillaire) dans les configurations jet libre et cible 1,5 cm à une tension appliquée de 14 kV.

Dans ces conditions, une forte augmentation d'intensité lumineuse se produit sur la globalité du spectre, lorsque la cible est présente. En comparant les maxima d'intensité lumineuse, l'émission du second positif de l'azote N_2^* (337,1 nm) est 8,5 fois plus intense en présence de la cible. Les émissions de l'ion N_2^{+*} (391,4 nm) et de l'oxygène atomique O^* (777,2 nm) sont 6 fois plus intenses.

L'émission de l'hélium atomique He^* à (706,5 nm) est quant à elle 5 fois plus intense et celle de OH^* (308,9 nm) 8 fois plus intense.

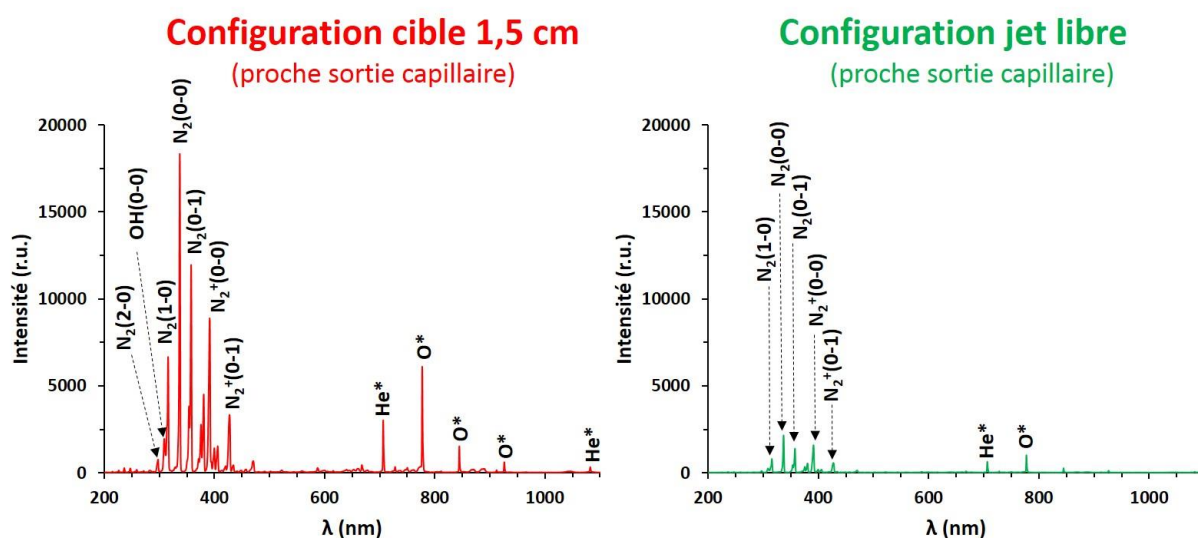


Figure V-8 : spectres d'émission dans la plume à 4 mm de la sortie du capillaire en configuration cible 1,5 cm et en jet libre (14 kV, 1 kHz, polarité positive).

La Figure V-9 montre les spectres de la Figure V-8 entre 200 et 290 nm (spectres de gauche) et 600 et 1100 nm (spectres de droite), en superposant les spectres des deux configurations de jet.

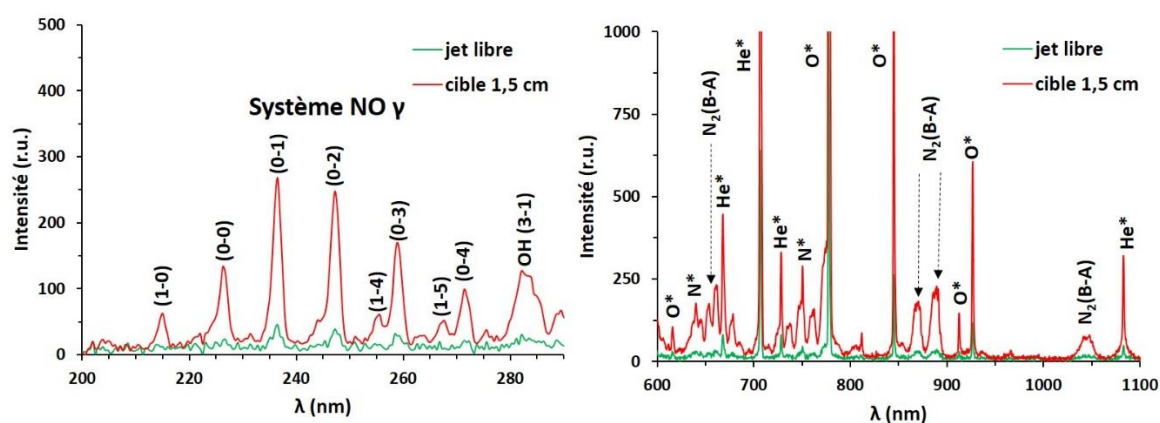


Figure V-9 : spectres d'émission dans la plume à 4 mm de la sortie du capillaire en configuration cible 1,5 cm et en jet libre (14 kV, 1 kHz, polarité positive).

En présence de la cible, on peut noter les émissions du système $\text{NO } \gamma$ entre 200 et 280 nm et les émissions du premier positif de l'azote $\text{N}_2(\text{B/A})$, entre 600 et 1050 nm. Quelques transitions vibrationnelles de $\text{NO } \gamma$ sont indiquées sur les têtes de bandes, avec la plus intense à 236,3 nm. Des émissions de l'azote atomique N^* ont également été relevées, notamment à 640,0 nm et 748,5 nm. En jet libre, les émissions de $\text{NO } \gamma$ et $\text{N}_2(\text{B/A})$ sont très faibles.

La Figure V-10 montre le spectre d'émission de la plume plasma, proche de la surface de la cible (2 mm), dans les mêmes conditions que celles de la Figure V-8.

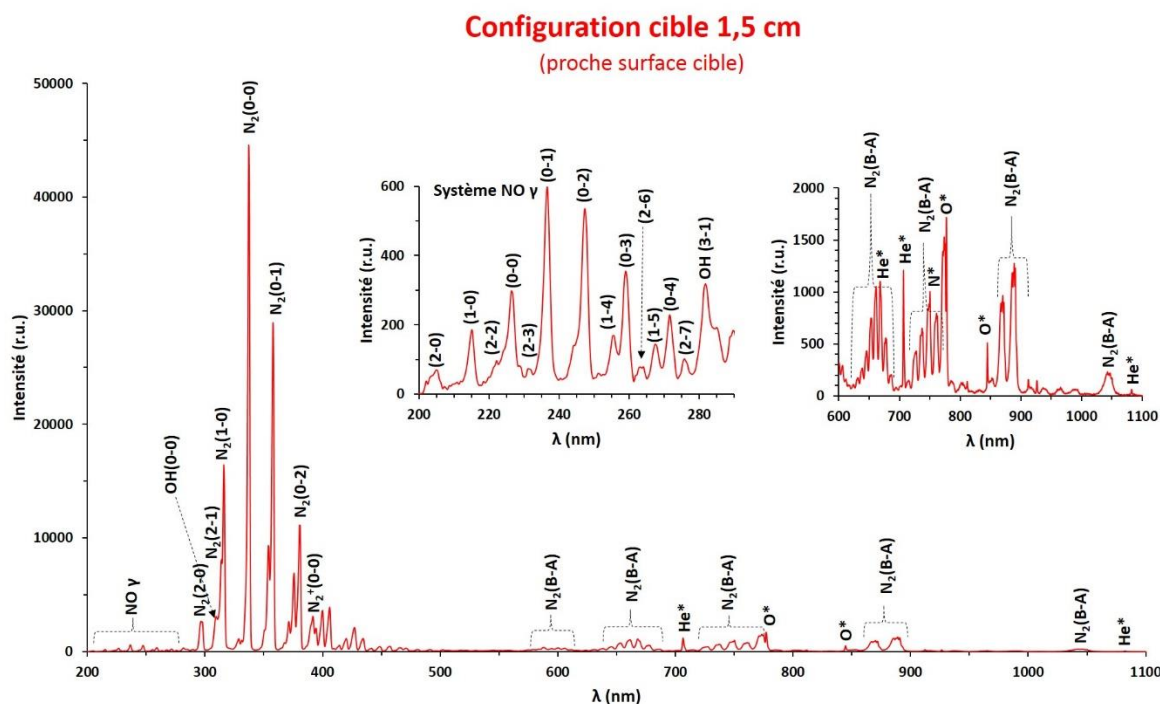


Figure V-10 : spectre d'émission de la plume plasma à 2 mm de la surface de la cible (14 kV, 1 kHz, polarité positive).

L'intensité globale du spectre est nettement plus élevée proche de la surface de la cible que proche de la sortie du capillaire. Proche de la surface de la cible, les émissions du second positif de l'azote $N_2(C-B)$ sont les plus intenses, largement supérieures aux émissions de N_2^{+*} . Les émissions du premier positif de l'azote $N_2(B-A)$ sont également plus intenses comparées au spectre proche de la sortie du capillaire (facteur 5 sur la plus intense à 660 nm). Par rapport à la sortie du capillaire, nous pouvons également remarquer un facteur 2 d'augmentation sur l'émission la plus intense du $NO \gamma$ à 236,3 nm et un facteur 1,5 sur l'émission du OH^* à 308,9 nm.

Les spectres précédemment présentés sont intégrés et ne peuvent rendre compte de la dynamique de l'émission lumineuse. La Figure V-11 montre la dynamique de l'émission de la plume plasma par imagerie ICCD rapide non filtrée (temps d'intégration 20 ns) en configuration cible 1,5 cm, pour une tension appliquée de 14 kV.

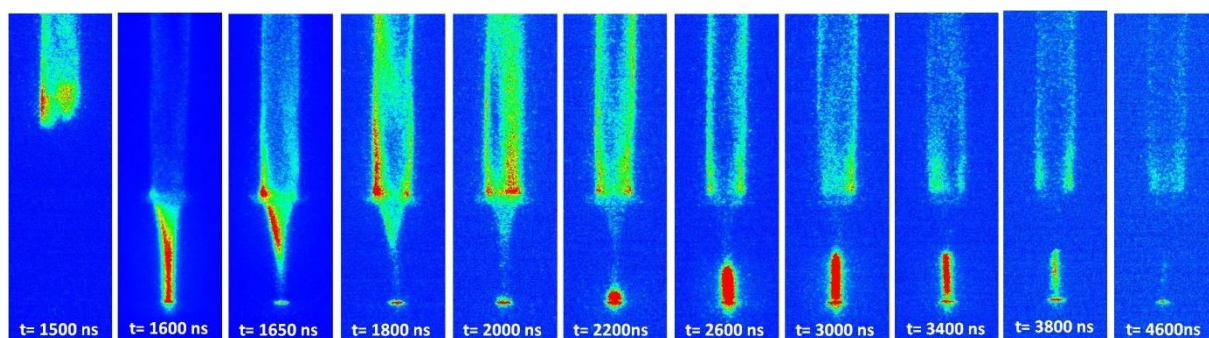


Figure V-11 : dynamique de la plume plasma (ICCD intégrée 20 ns) en configuration cible 1,5 cm (14 kV, 1 kHz, polarité positive)

Le front d'ionisation, après son initiation à l'électrode interne et sa propagation dans le capillaire, est proche de l'extrémité du capillaire à l'instant 1500 ns. Il atteint la surface de la cible vers l'instant 1600 ns. La lumière émise dans la plume est intense, mais celle-ci est également visible dans le capillaire. Cette lumière est émise par la colonne plasma, laissée dans le sillage du front d'ionisation. 50 ns après l'impact, nous pouvons remarquer une augmentation de l'intensité lumineuse dans le capillaire et une zone lumineuse réduite sur la surface de la cible, dans la zone d'impact du front. La lumière évolue peu entre 1650 et 1800 ns, mais aux instants ultérieurs, une lumière de forte intensité apparaît proche de la surface de la cible et s'étend graduellement jusqu'à mi-distance de l'extrémité du capillaire. L'intensité dans cette région a été laissée volontairement saturée, pour illustrer que durant toute cette phase, la colonne plasma émettait toujours de la lumière. À 3000 ns la zone de lumière la plus intense atteint son extension maximale puis s'éteint ensuite graduellement, ainsi que la lumière dans le capillaire. Ce type de comportement dans la plume du plasma gun en interaction avec une cible métallique a été publié dans [44].

Nous pouvons noter le caractère inhomogène du plasma, visible dans le capillaire, propre à la polarité positive. Par la comparaison avec la photographie de la Figure V-7, nous pouvons constater que la zone de lumière intense correspond à la répartition de la zone rose, étendue à environ mi-distance entre la surface de la cible et l'extrémité du capillaire. Concernant la dynamique observée, nous devons néanmoins mentionner que cette lumière dans la plume, après contact du front d'ionisation sur la cible, ne semble pas toujours s'étendre depuis la surface de la cible. Cette dynamique est différente en fonction notamment de la tension appliquée à l'électrode interne ou de la polarité de l'impulsion de tension, pour une distance de cible et un débit d'hélium fixés. La Figure V-12 illustre la dynamique de la lumière de la plume plasma en polarité négative, dans les mêmes conditions que celles de la Figure V-11.

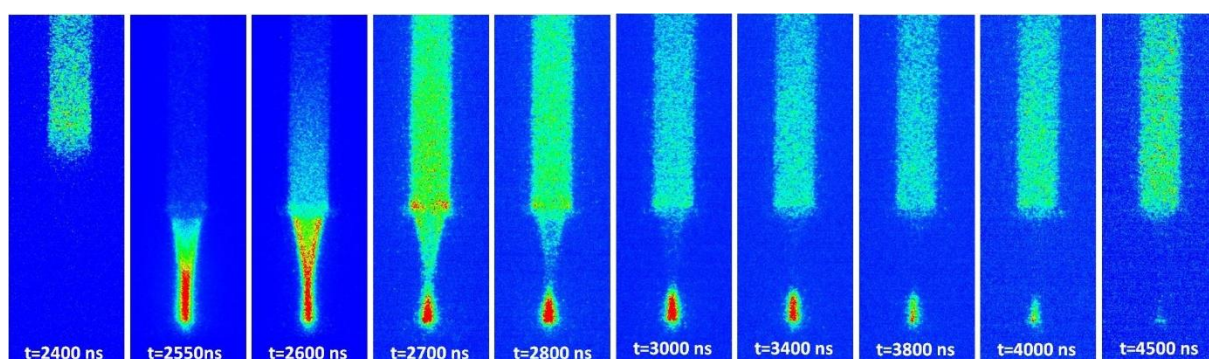


Figure V-12 : dynamique de la plume plasma (ICCD intégrée 20 ns) en configuration cible 1,5 cm (14 kV, 1 kHz, polarité négative).

On peut noter que le plasma est plus homogène qu'en polarité positive, ce que nous avons décrit au chapitre précédent. Le front atteint la surface de la cible à un instant plus tardif qu'en Figure V-11, car le front d'ionisation se propage plus lentement dans cette polarité. La lumière intense dans la plume, après impact du front d'ionisation, est toujours localisée proche de la cible, mais reste en revanche assez statique comparée à la polarité positive. Nous pouvons également remarquer que la lumière la plus intense s'étend sur une plus courte distance dans cette polarité. En partie 3, nous traiterons des cas d'une polarité positive et d'une polarité négative de l'impulsion de tension.

La Figure V-13 montre les profils d'émission lumineuse de quelques espèces excitées dans la plume (He^* , N_2^{+*} et N_2^*) au cours du temps, en configuration cible 1 cm et jet libre. La zone de visée couvre

5 mm dans la plume, sur la moitié inférieure au plus proche de la cible. Les évolutions avec cible ont été moyennées sur 2000 impulsions, celles en jet libre ont été moyennées sur 10000 impulsions. Lorsque la cible est retirée, la zone de visée dans la plume en jet libre reste la même. Nous avons choisi de réduire la distance entre la cible et le capillaire afin de minimiser les mouvements de la plume sur la surface de la cible.

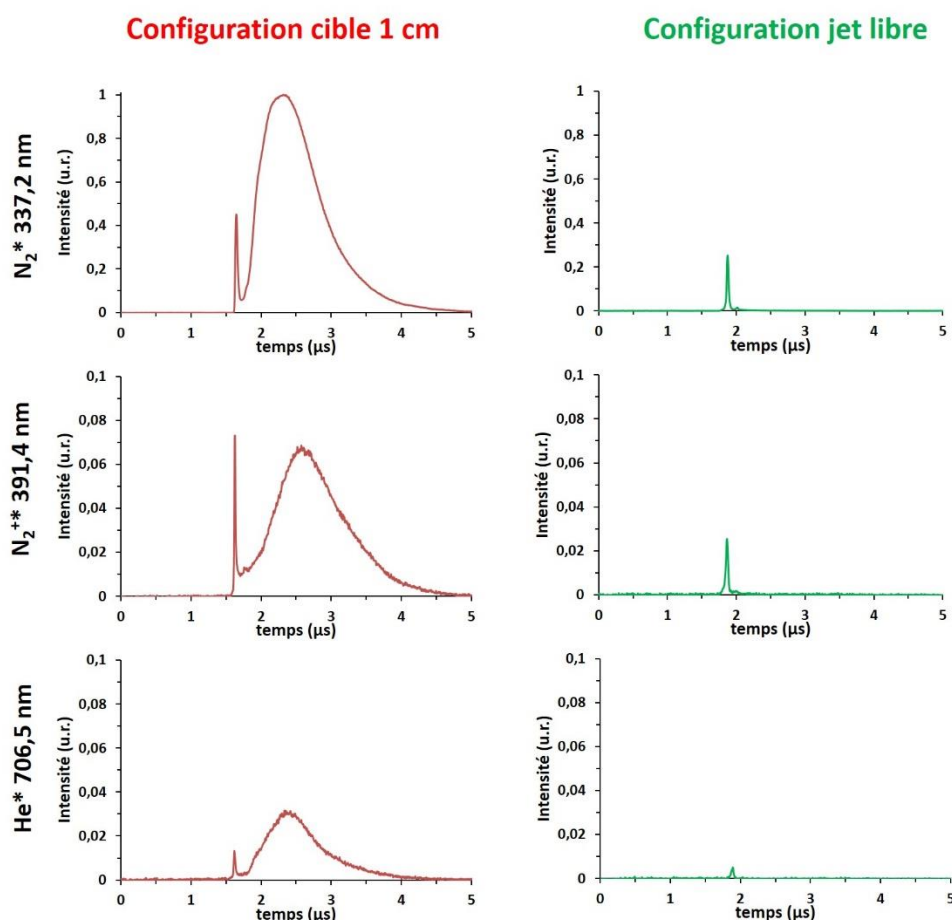


Figure V-13 : émissions lumineuses de He^* , N_2^{+*} et N_2^* dans la plume plasma en configuration cible 1 cm et en jet libre. La zone de visée couvre 5 mm, sur la partie inférieure de la plume (14 kV, 1 kHz, polarité positive).

En présence de la cible, pour les trois espèces présentées, deux contributions radicalement différentes se distinguent. Une première augmentation rapide se produit aux alentours de $1,6 \mu\text{s}$, ce qui correspond à un temps proche de l'impact du front d'ionisation sur la cible. La lumière décroît ensuite très rapidement, en une centaine de nanosecondes. L'essentiel de la lumière provient en revanche de la contribution suivante, laquelle se produit sur un temps beaucoup plus long, de l'ordre de $2 \mu\text{s}$. L'émission y est même plus intense que celle dû au passage du front sur He^* et N_2^* , et du même ordre sur N_2^{+*} . Le maximum d'intensité est atteint vers $2,5 \mu\text{s}$ sur chaque espèce. Ce comportement est similaire aux observations d'Urabe et al [39] décrit en Figure V-3, à ceci près que dans nos conditions expérimentales, toutes les espèces observées sont repeuplées.

Dans le cas du jet libre, nous pouvons voir que cette contribution μs intense n'est pas présente et seule la première contribution rapide du front d'ionisation est visible. Nous pouvons noter qu'elle est légèrement plus tardive et moins intense qu'en présence de la cible.

La Figure V-14 montre l'évolution de l'émission pour trois autres espèces (O^* , OH^* et NO^*) en configuration cible 1 cm (moyenné sur 10000 impulsions).

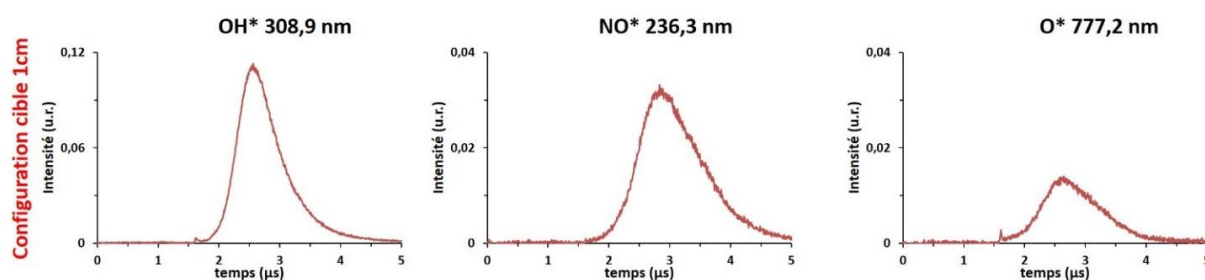


Figure V-14 : émissions lumineuses de O^* , OH^* et NO^* dans la plume plasma en configuration cible 1 cm. La zone de visée couvre 5 mm, sur la partie inférieure de la plume (14 kV, 1 kHz, polarité positive).

L'émission de lumière est maximale vers 2,5 μs et très largement supérieure à ce qui est émis au passage du front d'ionisation. La lumière émise par le front est visible sur O^* , discernable sur OH^* et n'est pas visible sur NO^* . Dans le cas du jet libre, cette émission intense μs ne se produit pas et l'émission de lumière au passage du front d'ionisation est difficile à distinguer du bruit de fond.

Des mesures de concentration sur les radicaux produits par le jet au contact d'une cible ont également été effectuées. Dans le cadre d'une collaboration avec l'INP (Greifswald), nous avons mesuré une augmentation de concentration de l'espèce NO_2 produite par le Plasma Gun lorsque la plume était en contact avec une cible reliée à la masse (100 ppb en jet libre et 150 ppb avec cible à une tension appliquée de 16 kV). Ces résultats ont été présentés à la conférence ICOPS 2013 (poster « Analysis of NO_x production in an RF KINPen and a μs driven Plasma Gun »). Dans [44], il a été mesuré une augmentation de la densité de OH dans la plume lors du contact avec une cible métallique ($2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ en jet libre, 10^{14} cm^{-3} avec la cible).

2.2 Modification de l'émission lumineuse dans le capillaire

La Figure V-15 montre la totalité du Plasma Gun, à la même tension appliquée qu'en Figure V-7 (14 kV), ainsi qu'à 18 kV. La plume plasma, ainsi que l'intégralité du capillaire, sont visibles. Le temps de pose des photographies est de 1 s pour le jet libre et 0,5 s pour les jets sur cible. Les contrastes des trois photographies n'ont pas été modifiés.

Nous pouvons voir que les modifications lumineuses dans la plume s'accompagnent de variations de lumière dans le capillaire. À une tension appliquée de 14 kV, une augmentation d'intensité lumineuse avec une teinte pâle est visible en début de capillaire, en comparaison du jet libre. Dans ces conditions, la zone rose de la plume plasma s'étend sur la moitié de la distance entre la surface de la cible et le capillaire. Pour une tension appliquée de 18 kV, toute la plume plasma émet une lumière très intense (saturée sur la photographie). La lumière émise dans le capillaire est également plus intense et la teinte pâle visible sur une zone plus grande.

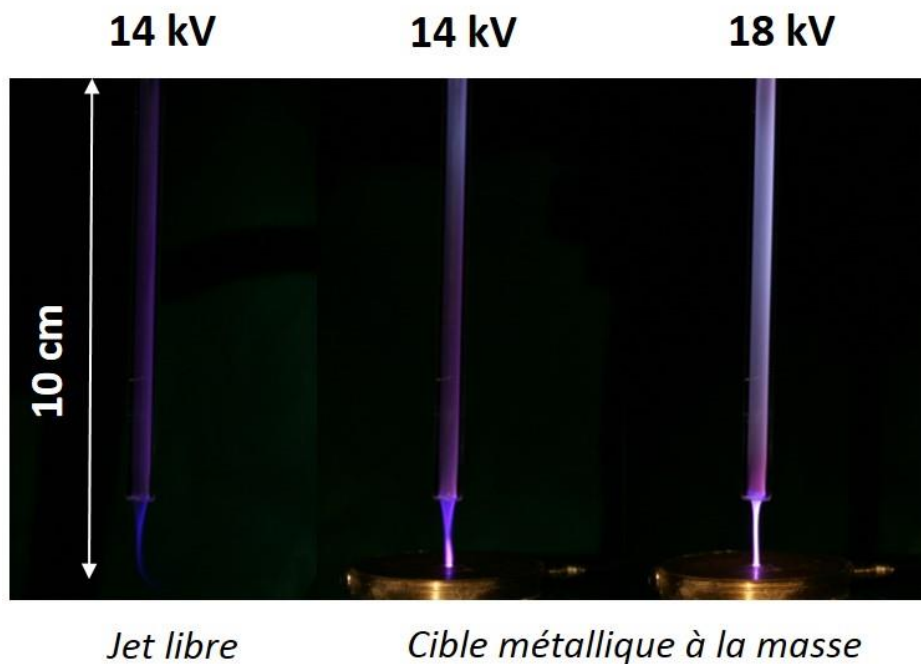


Figure V-15 : Plasma Gun en configurations jet libre et cible 1,5 cm, pour deux tensions appliquées (14 et 18 kV, 1 kHz, polarité positive).

La Figure V-16 montre la dynamique de propagation du plasma en imagerie ICCD dans les mêmes conditions que celles de la Figure V-11, mais dans l'intégralité du capillaire. La cible est située également à 1,5 cm de l'extrémité du capillaire et la tension appliquée est de 14 kV.

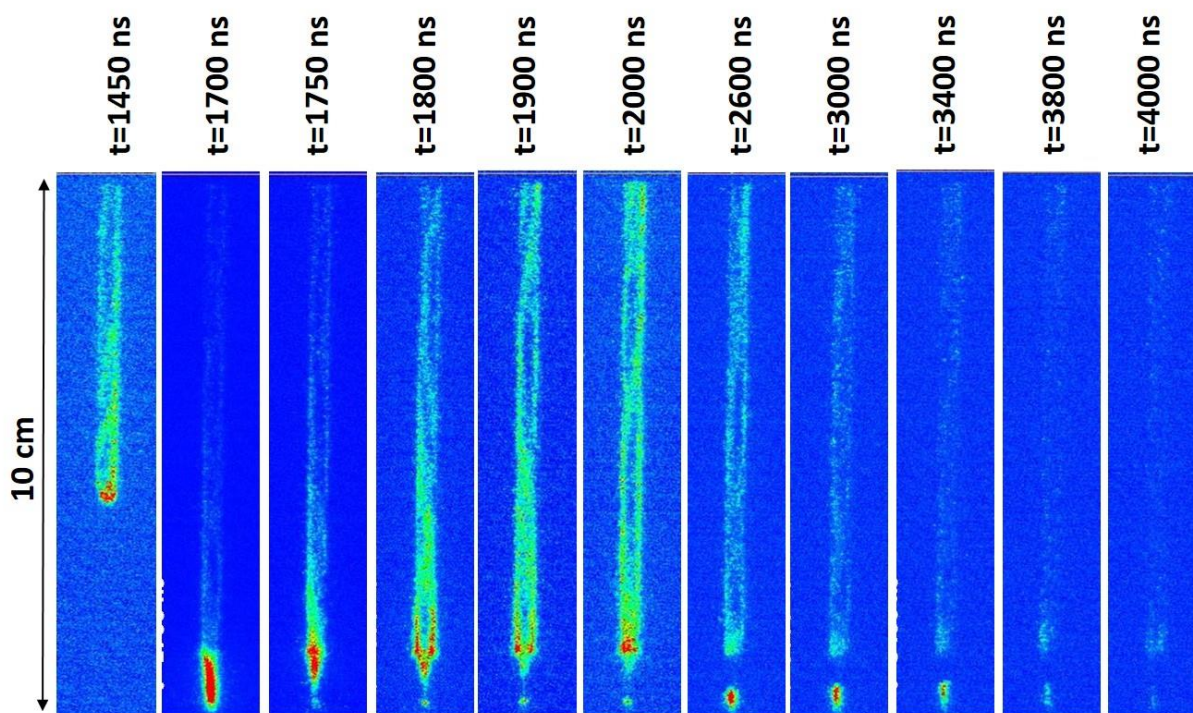


Figure V-16 : dynamique de propagation du plasma (ICCD intégrée 20 ns) dans le capillaire et dans la plume en configuration cible 1,5 cm (14 kV, 1 kHz, polarité positive).

Au chapitre IV, consacré au mécanisme de propagation du plasma dans le capillaire, nous avons mis en évidence la connexion du front d'ionisation à l'électrode interne par la colonne plasma conductrice, ainsi que la transmission du potentiel appliqué à l'électrode par son intermédiaire. Lorsque le front d'ionisation impacte la surface de la cible (ici à l'instant 1700 ns), la cible est donc électriquement reliée à l'électrode interne par la colonne plasma. À des instants légèrement supérieurs à l'impact du front sur la cible (1750 et 1800 ns) nous pouvons constater des variations rapides d'intensité lumineuse, se produisant dans la colonne. À des instants ultérieurs, l'intensité lumineuse dans le capillaire diminue et une lumière plus intense apparaît dans la plume et s'étend depuis la surface de la cible (de 2000 à 3000 ns). A 4000 ns, la colonne plasma (plume et capillaire) n'émet quasiment plus de lumière.

La Figure V-17 montre deux spectres d'émission du plasma dans le capillaire, à 5 cm de l'électrode de masse, pour une tension appliquée de 14 kV en configurations jet libre et cible 1 cm.

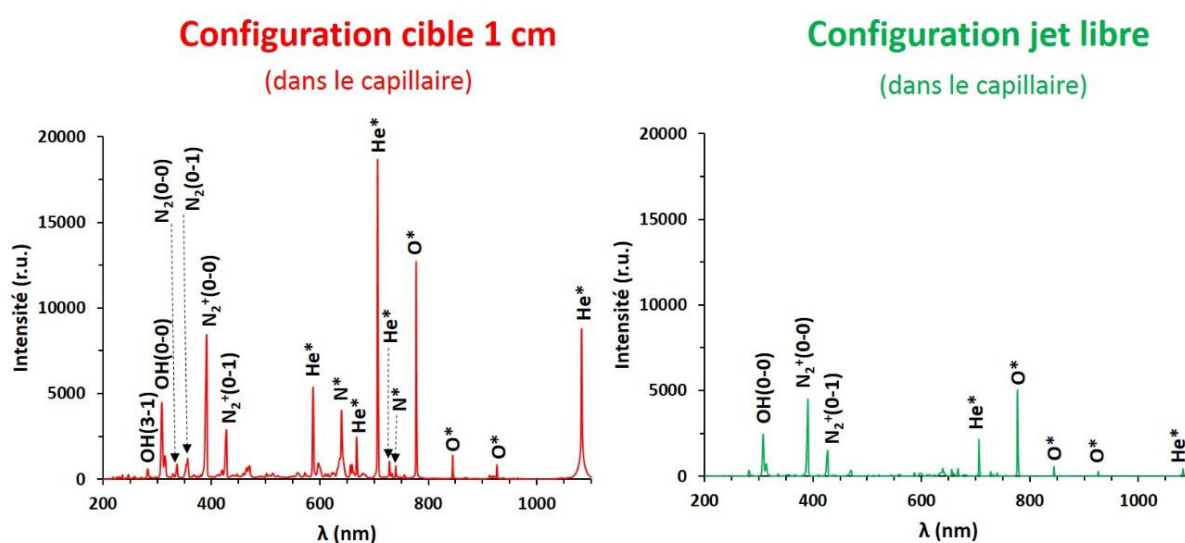


Figure V-17 : spectres d'émission du plasma à travers le capillaire (à 5 cm de la bague de masse) en configurations cible 1 cm et en jet libre (14 kV, 1 kHz, polarité positive).

Tout comme pour la plume plasma, une forte augmentation d'intensité lumineuse se produit sur la globalité du spectre lorsque la cible est présente. Pour les émissions de He^* , le facteur d'augmentation est notamment de 13 pour le maximum d'émission à 1083 nm. Cette remarque est importante car cette transition peuple directement le niveau métastable de l'hélium 2^3S_1 (19,82 eV), par désexcitation radiative du niveau 2^3P_2 (20,96 eV). Par cette observation, nous pouvons donc nous attendre à ce que le contact avec la cible ait une influence directe sur le peuplement des métastables de l'hélium dans le capillaire. On peut également relever un facteur 2 sur les maxima des émissions de N_2^{+*} et O^* , ainsi qu'un facteur 1,5 sur celle de OH^* . Les émissions du NO^* est très légèrement supérieur, mais toujours proche de la limite de détection dans les deux cas. Des émissions de l'azote atomique N^* sont également visibles en présence de la cible, notamment à 640,0 et 740,0 nm.

Pour une plus forte valeur de tension appliquée (18 kV), nous avons de plus identifié le système $\text{N}_2(\text{a-X})$, chevauchant les émissions de $\text{NO } \gamma$, avec des profils temporels d'excitation très proches de celles du N_2^{+*} . Nous avons également constaté que les augmentations d'intensité lumineuse dans

le capillaire, entre les configurations avec et sans cible, étaient également associées à des repeuplements ultérieurs au passage du front d'ionisation (notamment N_2^{+*} , Figure V-18)

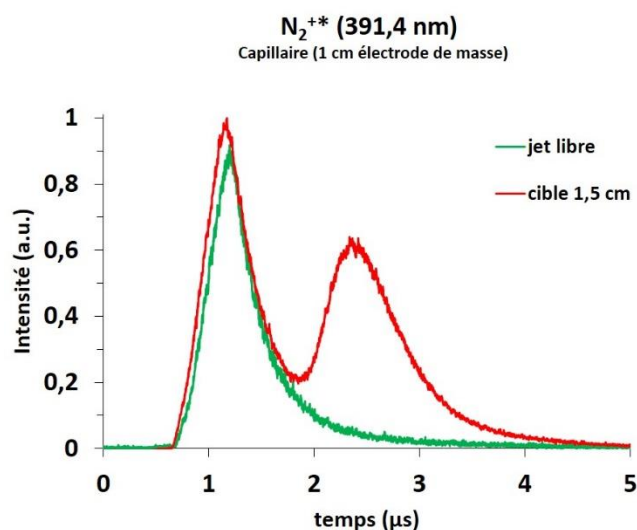


Figure V-18 : émission lumineuse de N_2^{+*} dans le capillaire (à 1 cm de la bague de masse) en configuration cible 1,5 cm et en jet libre. La zone de visée couvre 5 mm, (14 kV, 1 kHz, polarité positive).

Les deux peuplements observés se font sur une échelle de temps d'une centaine de nanoseconde et sont donc des phénomènes rapides. Nous commenterons beaucoup plus en détail ce genre d'évolution en partie 3, sur les évolutions temporelles des concentrations des métastables de l'hélium.

2.3 Résumé des observations

Le contact du jet de plasma avec une cible métallique engendre de profondes modifications dans l'excitation des espèces du plasma, à la fois dans la plume et le capillaire, ainsi que dans la dynamique de propagation. Toutes les espèces dans la plume émettent une lumière très intense sur une longue durée (2 μs), parfois d'intensité très supérieure à ce qui est émis brièvement (~100 ns) au passage du front d'ionisation. Dans le capillaire, des repeuplements rapides, ultérieurs au passage du front d'ionisation, ont également été observés. Ces repeuplements sur N_2^{+*} (391,4 nm), ainsi que la très forte augmentation d'intensité de l'émission He^* à 1083 nm, indiqueraient que le contact avec la cible modifie l'excitation jusqu'à des niveaux suffisamment élevés pour potentiellement peupler plus efficacement les métastables de l'hélium. Dans la mesure où nous n'avons pas observé ces comportements dans le cas du jet libre ou sur une cible diélectrique, nous sommes donc amenés à faire une forte distinction entre le comportement du jet libre (ou sur un diélectrique) et le jet en contact avec une cible conductrice. Dans le cadre d'un traitement biomédical, le jet de plasma est souvent en interaction avec une cible conductrice et il apparaît donc primordial d'étudier la physique du jet dans une condition où des phénomènes similaires sont susceptibles de se produire.

Lorsque le jet est en contact avec la cible, nous avons indiqué que les émissions intenses μs de lumière se produisent après que le front d'ionisation ait impacté la surface de la cible. Elles se

produisent donc dans la colonne plasma qui relie électriquement, en raison de sa nature conductrice, l'électrode interne et la surface de la cible métallique reliée à la masse. Pour étudier plus en détail l'influence de la cible sur les mécanismes d'excitation dans la globalité du plasma (plume et capillaire), nous avons corrélié les mesures de deux diagnostics. Par le dispositif de spectroscopie optique d'absorption par laser du LPGP [33], nous avons mesuré la production des métastables de l'hélium le long du capillaire et dans la plume, pour plusieurs configurations de jet. Nous avons comparé les évolutions temporelles des concentrations aux évolutions temporelles des composantes longitudinales et radiales du champ électrique. Les composantes sont mesurées par la sonde électro optique (cf. chapitre II pour la présentation du dispositif et chapitre IV pour la caractérisation du champ électrique).

3. Influence de la cible métallique sur la production des métastables de l'hélium et l'évolution du champ électrique

3.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé (banc optique d'absorption par laser) a été présenté au chapitre II en partie 5. Nous rappelons que le capillaire utilisé sur le Plasma Gun est de 8,5 cm de longueur. Une cible métallique en laiton, reliée à la masse, est positionnée à 1 ou 2 cm de l'extrémité du capillaire. Le faisceau laser est collimaté avec un diamètre de 48 μm . Pour mesurer la concentration des métastables dans le capillaire, le faisceau est exactement positionné sur l'axe de symétrie, de telle sorte qu'il ne soit pas dévié par la courbure des parois du capillaire.

Nous avons choisi de travailler essentiellement à une tension appliquée de 18 kV, en polarités positive et négative. La fréquence de répétition de l'impulsion est fixée à 1 kHz. Pour les trois configurations « jet libre », « cible 2 cm » et « cible 1 cm », le débit d'hélium utilisé est de 2 l/min. Nous avons choisi ce débit de façon à ce que la plume plasma soit la plus stable possible dans toutes les configurations. Si l'on se réfère au chapitre III (section 3.1), à un débit de 2 l/min, l'inertie du gaz est suffisante pour que le jet d'hélium s'étende sur une distance de 4 cm. De fait, l'hélium atteint donc toujours naturellement la cible même si celle-ci est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire, indépendamment de la poussée du plasma exercé sur le jet. Toutes les mesures présentées ont été moyennées sur 400 impulsions.

3.2 Mesures de la concentration des métastables de l'hélium en polarité négative

3.2.1 Évolution le long du capillaire

La Figure V-19 montre un signal typique de l'évolution temporelle de la concentration des métastables au cours du temps, à une position donnée dans le capillaire. La mesure est effectuée à 4,5 cm de la bague de masse de masse, dans le cas du jet libre.

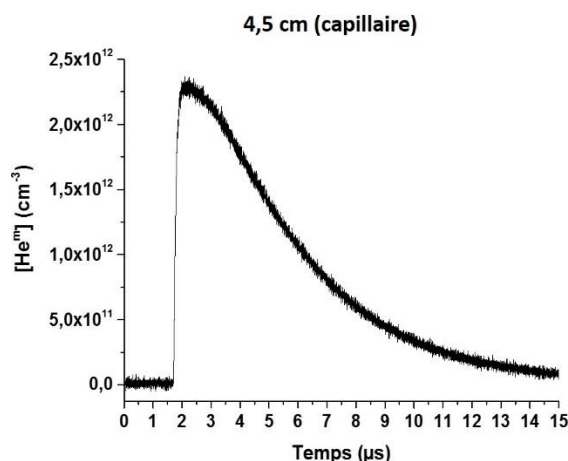


Figure V-19 : évolution temporelle de la concentration des métastables de l'hélium dans le capillaire (4,5 cm de l'électrode de masse) en jet libre (18 kV, polarité négative, 1 kHz).

La concentration des métastables augmente rapidement à partir du temps 1,7 μs , ce qui correspond au passage du front d'ionisation à la position 4,5 cm. Le peuplement est rapide et s'effectue en une centaine de nanosecondes. La concentration maximale atteinte est de $2,4 \cdot 10^{12} cm^{-3}$. La décroissance de la concentration après le passage du front d'ionisation correspond à la destruction des métastables dans la colonne plasma. Elle suit globalement une loi mono exponentielle avec une constante de temps de décroissance de 3,9 μs dans l'exemple de la Figure V-19. Ce temps de décroissance résulte de la cinétique des métastables de l'hélium (temps de vie naturelle en hélium pur et destruction par les impuretés). Les impuretés résiduelles proviennent de la qualité du gaz utilisé (hélium ALPHAGAZ 2) et des impuretés résiduelles dans la ligne de circulation du gaz et du capillaire.

La Figure V-20 montre l'influence de la cible métallique sur l'évolution temporelle de la concentration des métastables lorsque la cible est située à 1 ou 2 cm de l'extrémité du capillaire, par rapport au jet libre. Trois positions le long du capillaire sont ici illustrées : haut du capillaire (1,5 cm de la bague de masse), milieu du capillaire (4,5 cm de la bague de masse) et proche de la sortie du capillaire (7,5 cm de la bague de masse).

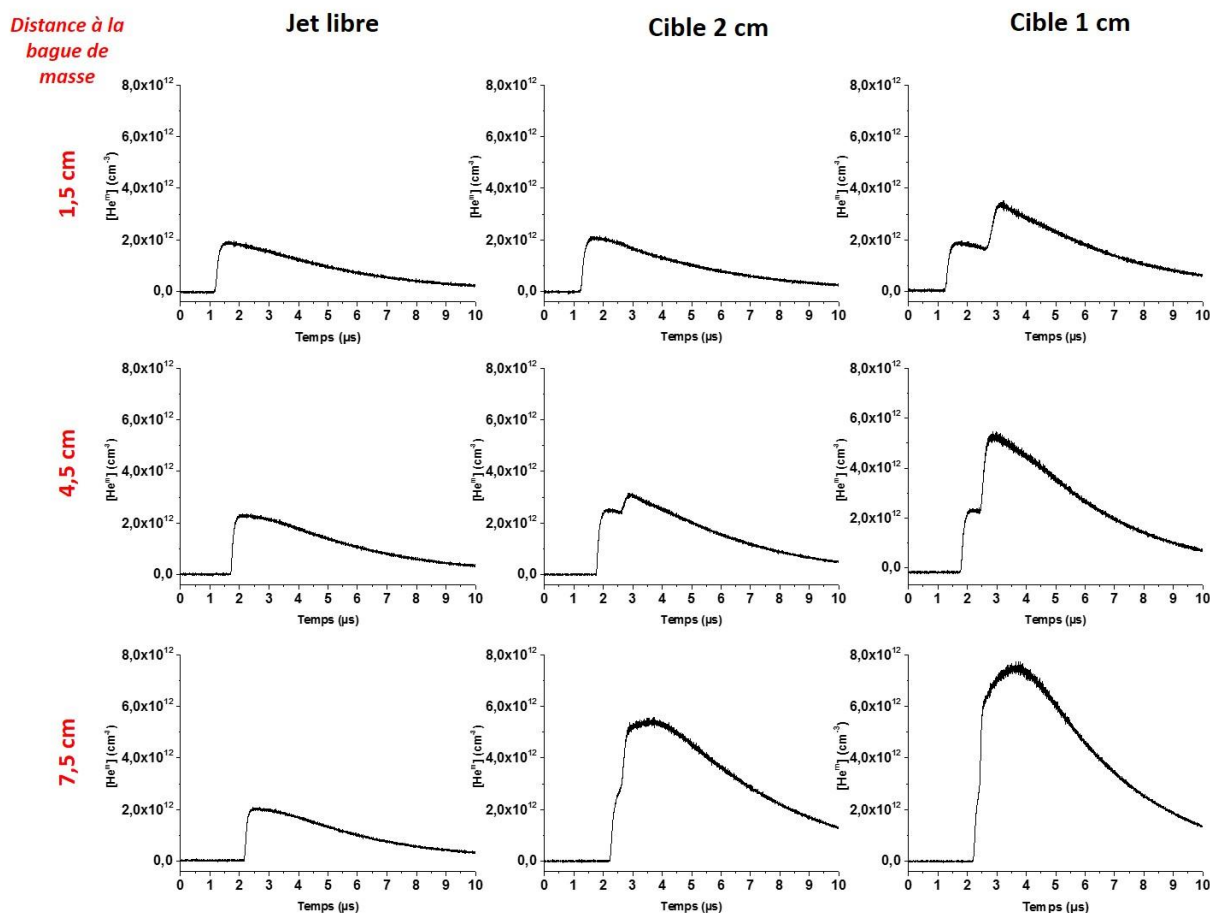


Figure V-20 : évolutions temporelles de la concentration des métastables de l'hélium pour trois positions dans le capillaire en configurations jet libre, cible 2 cm et cible 1 cm (18 kV, polarité négative, 1 kHz).

Dans le cas du jet libre, aux trois positions le long du capillaire, nous pouvons voir que la concentration maximale reste proche de $2.10^{12} \text{ cm}^{-3}$. Le peuplement des métastables s'effectue de plus en plus tard lorsque l'on s'éloigne de la bague de masse, ce qui correspond au temps de propagation du front d'ionisation pour atteindre la position considérée.

Lorsque la cible est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire, à la position 1,5 cm l'évolution est identique au cas du jet libre. En revanche, à 4,5 cm, deux peuplements rapides sont visibles, séparés d'environ 1 μs . Lors du premier peuplement, la concentration est de $2,5.10^{12} \text{ cm}^{-3}$, valeur proche de celle du jet libre à la même position. Au second peuplement, la valeur est plus élevée ($3,3.10^{12} \text{ cm}^{-3}$). À la position 7,5 cm, l'écart temporel entre les deux peuplements est nettement plus faible (environ 400 ns) et la concentration au second peuplement ($5,5.10^{12} \text{ cm}^{-3}$) double par rapport au premier.

Lorsque la cible est située à 1 cm de l'extrémité du capillaire, les deux peuplements rapides sont visibles à la position 1,5 cm avec un écart de 1,5 μs . Lors du premier peuplement, la concentration atteinte reste proche de celle des cas jet libre et cible à 2 cm. En revanche, au second peuplement, la concentration augmente fortement ($3,5.10^{12} \text{ cm}^{-3}$). À la position 4,5 cm, la concentration atteint $5.10^{12} \text{ cm}^{-3}$ au second peuplement avec de 700 ns d'écart entre le premier et second peuplement. Enfin, à la position 7,5 cm, les deux peuplements sont très proches (200 ns d'écart) et la

concentration au second atteint une valeur plus élevée encore ($7,8 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$). Nous pouvons noter par ailleurs que l'évolution du maximum de concentration aux différentes positions le long du capillaire s'accompagne d'une variation de la raideur des pentes. Les métastables sont peuplés sur des durées de 100 ns (7,5 cm), 200 ns (4,5 cm) et 400 ns (1,5 cm).

La Figure V-21 montre l'évolution de la concentration maximale atteinte le long du capillaire entre les positions 0,1 et 8,1 cm, pour les trois configurations de jet.

Dans le cas du jet libre, il y a peu d'évolution de la concentration des métastables le long du capillaire. La valeur de concentration moyenne reste proche de $2 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$. La seule contribution au peuplement des métastables est due au front d'ionisation.

En configuration cible à 2 cm, la concentration reste proche de celle du jet libre jusqu'à 3,5 cm. Pour ces différentes positions, les métastables sont uniquement peuplés au passage initial du front d'ionisation. En revanche, le second peuplement entraîne une augmentation quasi linéaire de la concentration le long du capillaire à partir de 4,5 cm. La concentration la plus élevée est de $6,8 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$.

En configuration cible à 1 cm, la seconde contribution se produit à toutes les positions mesurées. L'augmentation de la concentration est quasi linéaire le long du capillaire et les concentrations mesurées sont toujours largement supérieures à celles des configurations jet libre et cible à 2 cm. Le maximum de concentration est de $8,0 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$.

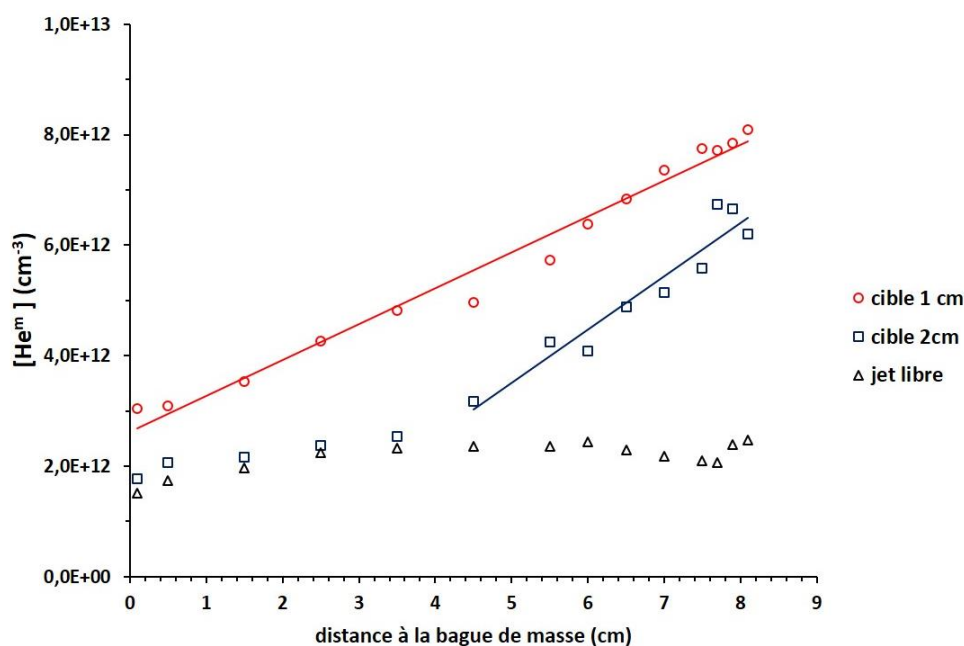


Figure V-21: évolution du maximum de concentration des métastables de l'hélium le long du capillaire en configurations jet libre, cible 2 cm et cible 1 cm (18 kV, polarité négative, 1 kHz).

Le contact avec la cible placée en face du jet engendre donc de nettes modifications du peuplement des métastables au sein même du capillaire, avec un second peuplement rapide, ultérieur au front d'ionisation. Ce second peuplement se produit donc dans la colonne plasma, laissée dans le sillage du front d'ionisation.

3.2.2 Évolution dans la plume

De manière similaire à ce qui a été présenté en Figure V-20, la Figure V-22 montre l'évolution temporelle de la concentration des métastables de l'hélium, pour trois positions verticales dans la plume plasma.

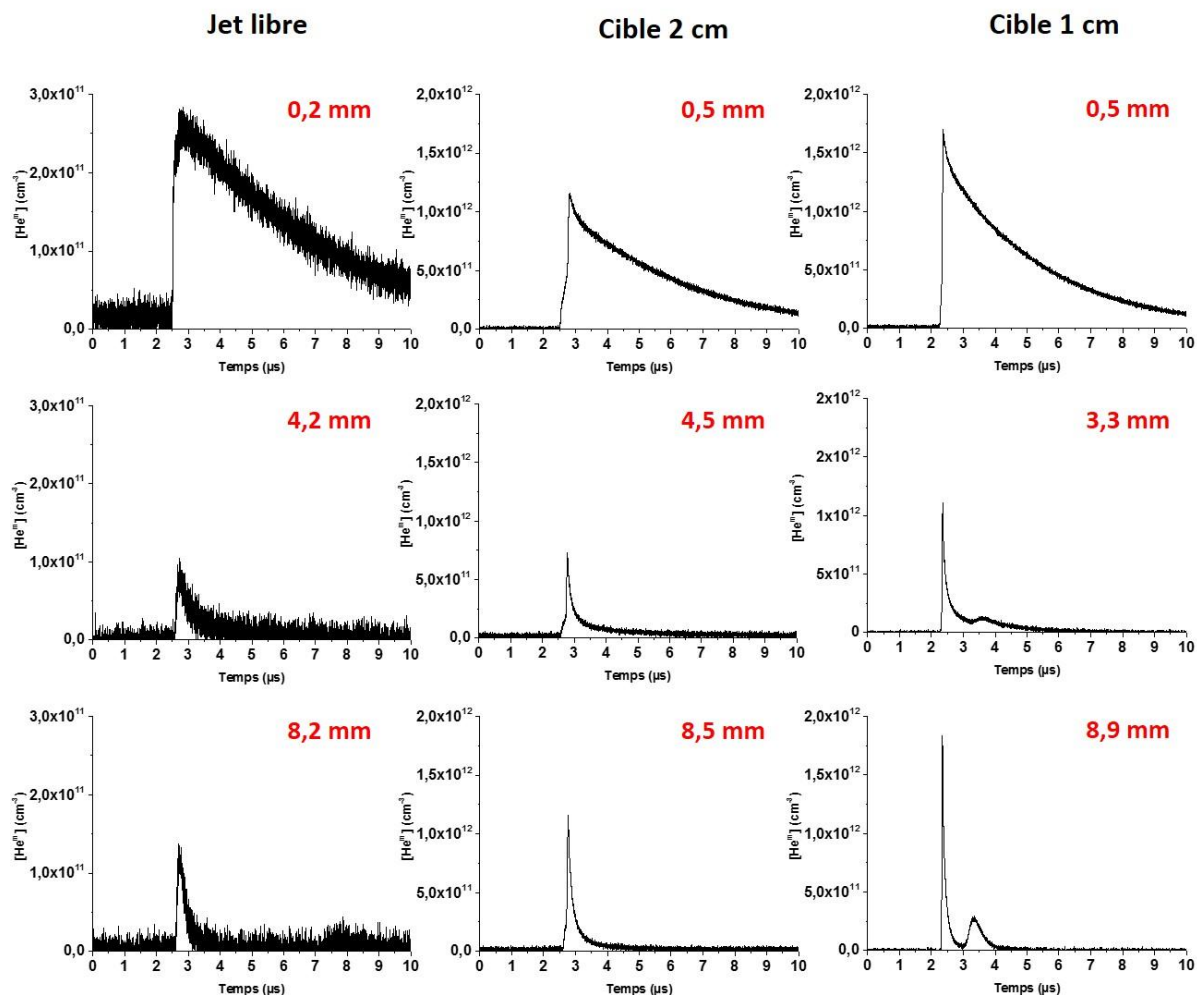


Figure V-22 : évolutions temporelles de la concentration des métastables de l'hélium pour trois positions dans la plume plasma en configurations jet libre, cible 2 cm et cible 1 cm (18 kV, polarité négative, 1 kHz).

Dans le cas du jet libre, nous pouvons voir que la concentration chute rapidement entre les positions 0,2 mm ($2,5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$) et 4 mm après la sortie du capillaire ($1,0 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$). À 4 mm, la constante de temps est considérablement réduite (constante de temps de 0,9 μs). Cette destruction rapide des métastables est dû à la diffusion de l'air dans le jet d'hélium. Peu d'air est mélangé à l'hélium proche de la sortie du capillaire, mais plus l'on s'en éloigne, plus la diffusion est importante.

Nous pouvons remarquer que lorsque la cible est présente, les deux peuplements étaient déjà quasiment confondus à l'extrémité du capillaire. Nous pouvons voir ici qu'ils le sont toujours dans la plume. En effet, dans le cas de la cible à 2 cm, à la position 0,5 mm après la sortie du capillaire, les deux contributions sont très proches et le maximum est environ 5 fois supérieur au cas sans cible. À 4,5 et 8,5 mm, la valeur est également bien plus élevée que pour le jet libre. Bien que le

temps de vie des métastables soit significativement plus faible entre les positions 0,5 et 4,5 mm, les deux peuplements sont si proches que les impuretés diffusées n'ont pas le temps de détruire significativement les métastables dans l'intervalle.

Lorsque la cible est située à 1 cm de l'extrémité du capillaire, les deux contributions sont superposées. La concentration est plus élevée encore ($1,8 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$) que dans le cas de la cible à 2 cm à la même position. À 4,5 mm, nous pouvons voir qu'un léger repeuplement tardif se produit à 3,2 μs , soit 0,9 μs après les deux premiers. À 8,5 mm, ce troisième peuplement tardif est bien visible. Le maximum de concentration atteint ($2,5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$) est nettement plus faible que pour le second peuplement. Son interprétation sera détaillée en section 3.7.

3.3 Mesures de concentration des métastables de l'hélium en polarité positive

3.3.1 Évolution le long du capillaire

La Figure V-23 est l'analogue de la Figure V-20 en polarité positive. Elle montre l'influence de la cible métallique sur l'évolution temporelle de la concentration, lorsque la cible est située à 1 ou 2 cm de l'extrémité du capillaire, par rapport au jet libre. Nous avons décrit au chapitre IV qu'en polarité positive, le plasma est filamentaire et inhomogène (comme visible sur la Figure V-16). Pour déterminer la valeur absolue de la concentration, nous nous basons toujours sur le même facteur (chapitre II partie 5), lequel suppose une répartition homogène du plasma dans le capillaire (longueur d'absorption de 4 mm). La valeur de concentration est donc sous-estimée en polarité positive.

Dans le cas du jet libre, les métastables sont uniquement peuplés au passage du front d'ionisation. On peut noter que le long du capillaire, la concentration varie plus qu'en polarité négative entre 1,5 cm ($3,8 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$) et 4,5 cm ($1,0 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$).

En configuration cible à 2 cm, les deux peuplements rapides sont déjà visibles à la position 1,5 cm, contrairement au cas de la polarité négative. Le maximum de concentration atteint au second peuplement ($1,8 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$) est nettement plus élevé qu'au premier ($6,3 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$, 1,5 μs plus tôt). À 4,5 cm, les deux peuplements sont plus proches (700 ns) et la concentration maximale au second augmente fortement ($3,5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$). À la position 7,5 cm, les deux peuplements sont très proches (200 ns d'écart), mais la concentration atteinte au second est plus faible ($2 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$).

En configuration cible à 1 cm, les deux contributions se rapprochent progressivement (1,3 μs d'écart à 1,5 cm, 680 ns à 4,5 cm) et sont quasiment confondues à 7,5 cm (230 ns d'écart). Dès le début du capillaire, le maximum atteint au second peuplement est d'emblée nettement plus élevé ($2,5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$) que le premier ($5,0 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$). Le maximum de concentration augmente ensuite très fortement, en se rapprochant de l'extrémité du capillaire ($5,3 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ à 4,5 cm et $6,1 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ à 7,5 cm).

Distance à la
bague de
masse

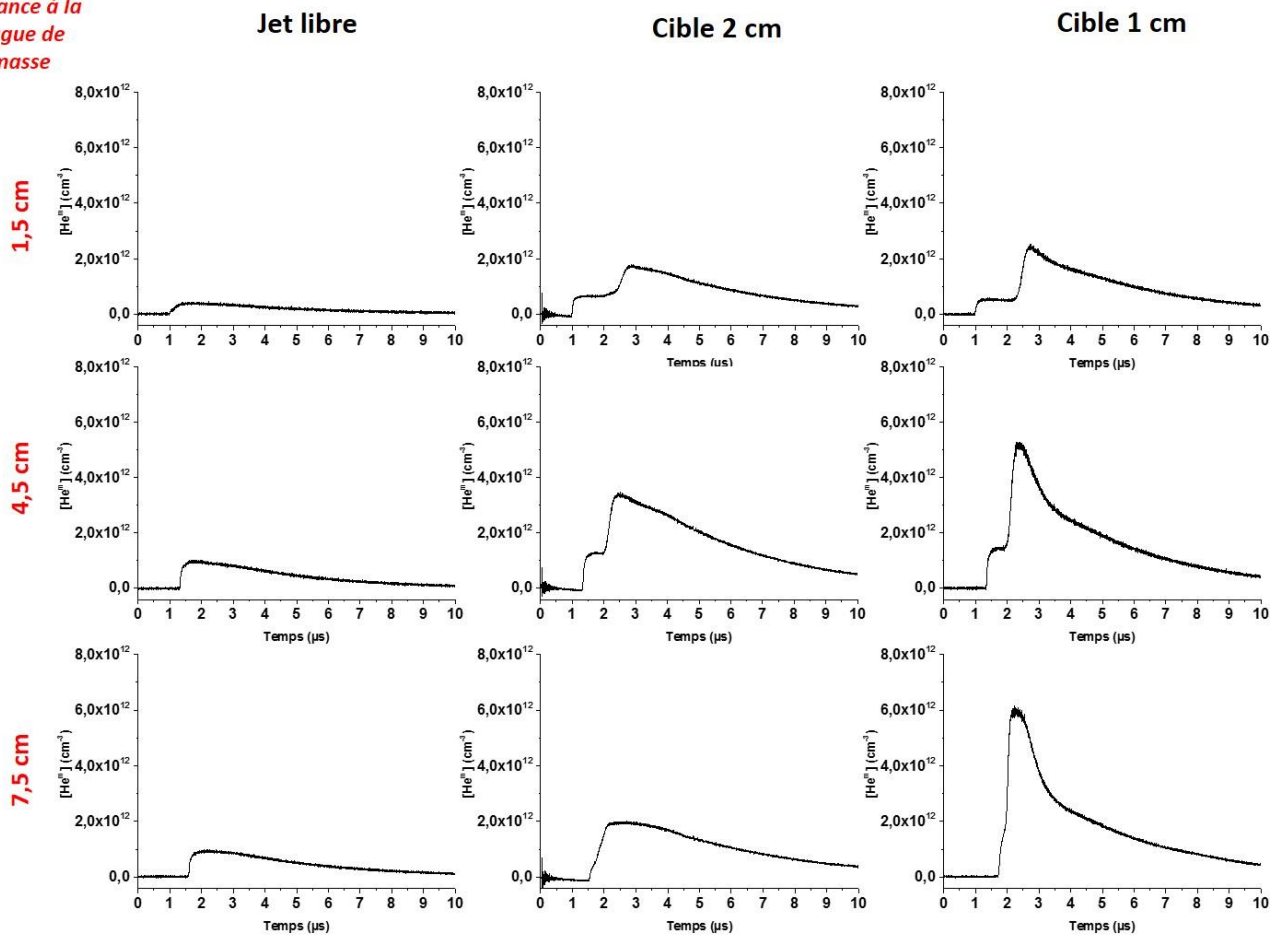


Figure V-23 : évolutions temporelles de la concentration des métastables de l'hélium pour trois positions dans le capillaire en configurations jet libre, cible 2 cm et cible 1 cm (18 kV, polarité positive, 1 kHz).

L'évolution temporelle des deux peuplements en présence de la cible est donc similaire à ce qui a été décrit en section 3.2 pour le cas de la polarité négative, avec un écart temporel diminuant lorsqu'on se rapproche de l'extrémité du capillaire. Toutefois, le cas de la polarité positive tranche avec celui de la polarité négative, en ce qui concerne les augmentations des maxima aux seconds peuplements. Les augmentations relatives entre les premiers et seconds peuplements sont bien plus élevées dans le cas positif. En configuration cible à 2 cm, un second peuplement rapide, doublant la concentration des métastables peuplés au premier, est observé dès la position 1,5 cm (4,5 cm pour le cas négatif avec une modeste augmentation).

La Figure V-24 est l'analogue de la Figure V-23 en polarité positive. Elle montre l'évolution des maxima de concentration des métastables de l'hélium le long du capillaire entre les positions 0,1 cm et 8,1 cm, dans les trois configurations de jets. La dispersion des mesures est plus importante qu'en polarité négative, ce que nous pouvons probablement attribuer au caractère fortement inhomogène du plasma en polarité positive. Néanmoins les tendances observées en polarité négative sont ici également observées.

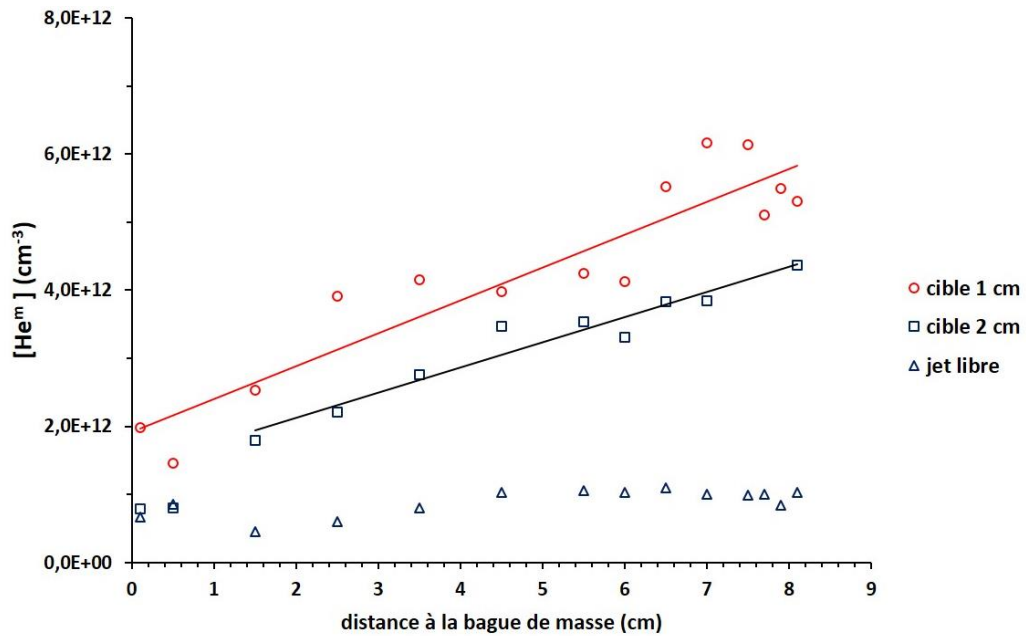


Figure V-24 : évolution du maximum de concentration des métastables de l'hélium le long du capillaire en configuration jet libre, cible 2 cm et cible 1 cm (18 kV, polarité positive, 1 kHz).

En configuration cible 1 cm, les maxima de concentration au second peuplement augmentent fortement le long du capillaire. Cette augmentation se produit à partir de 1,5 cm en configuration cible à 2 cm (4,5 cm en polarité négative). Pour le jet libre, la concentration des métastables évolue peu le long du capillaire en comparaison, l'unique peuplement étant dû au passage du front d'ionisation.

3.3.2 Évolution dans la plume

La Figure V-25 est l'analogue de la Figure V-22, pour la polarité positive. Elle montre l'évolution temporelle de la concentration des métastables de l'hélium à trois positions verticales dans la plume plasma, centrée sur l'axe du jet, pour les trois configurations.

Pour le jet libre, les métastables sont uniquement peuplés au passage du front d'ionisation. Loin de la sortie du capillaire, on peut remarquer que la concentration maximale est plus élevée (de l'ordre de $3 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$) qu'en polarité négative. Au plus proche du capillaire, la constante de temps de destruction est bien plus faible ($1,8 \mu\text{s}$), comparé au cas négatif. Nous pouvons l'interpréter par une diffusion de l'air plus importante dans le cas positif, signe d'une canalisation du jet moins efficace qu'en polarité négative, comme décrit au chapitre III.

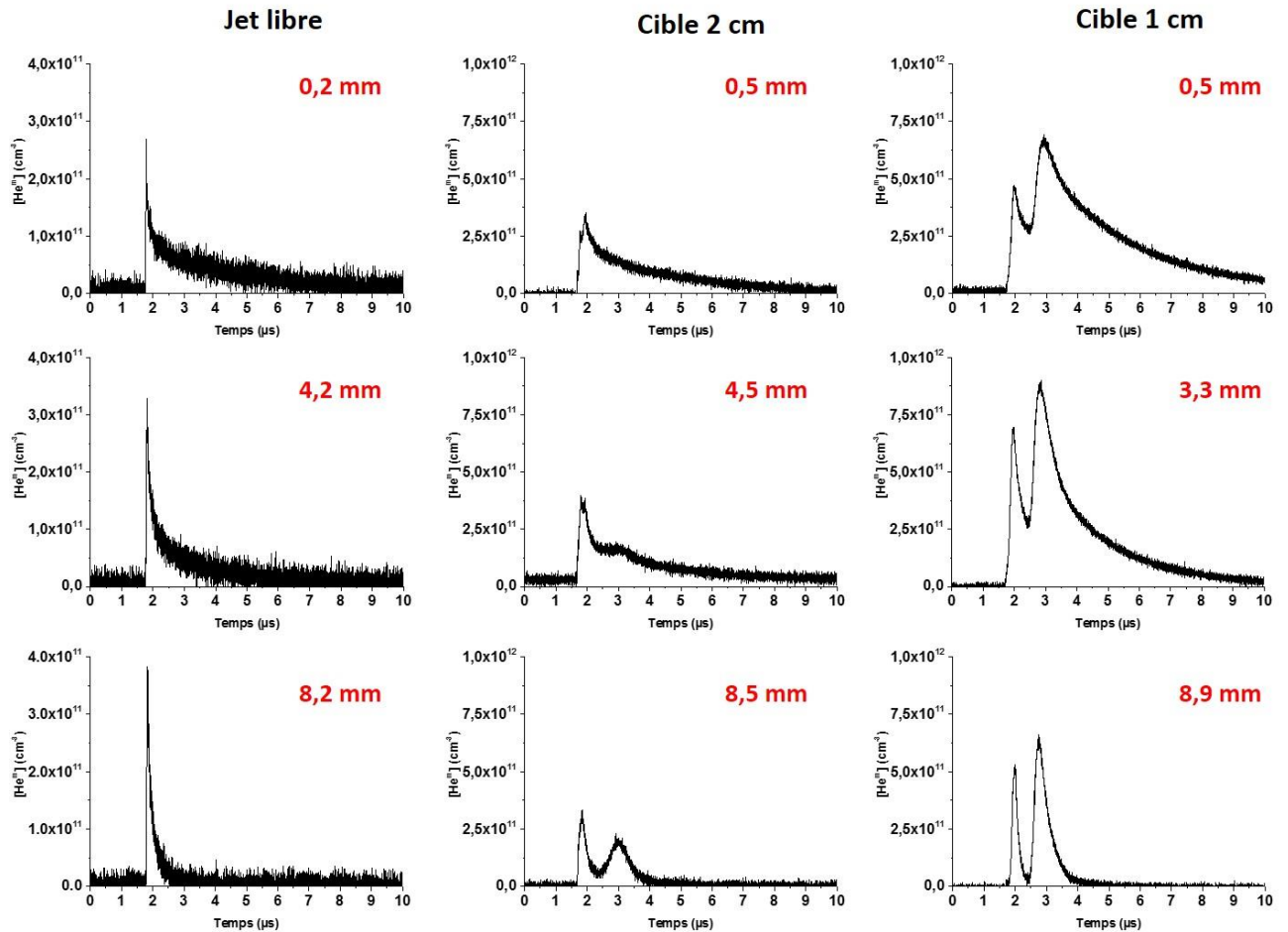


Figure V-25 : évolutions temporelles de la concentration des métastables de l'hélium pour trois positions dans la plume en configurations jet libre, cible 2 cm et cible 1 cm (18 kV, polarité positive, 1 kHz).

En configuration cible à 2 cm, les deux peuplements sont quasiment confondus le long de la plume. Un léger peuplement tardif est visible à la position 4,5 mm. Ce troisième peuplement est, en polarité négative, uniquement observé lorsque la cible est située à 1 cm de l'extrémité du capillaire et n'a pas été observé en configuration cible à 2 cm. À la position 8,5 mm, la concentration atteinte au maximum du troisième peuplement ($2,0 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$) est proche de celle du second ($2,5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$).

En configuration cible à 1 cm, la troisième contribution est très largement supérieure à la seconde et est visible dans toute la plume, ce qui contraste également avec le cas de la polarité négative (le troisième peuplement était tout juste décelable proche de la cible). Cependant, nous devons indiquer que la valeur relative entre les maxima atteint lors des second et troisième peuplements est dépendante de la position radiale dans la plume. Les seconds peuplements sont plus importants sur les bords du jet, les troisièmes peuplements sont plus importants vers le centre de la plume. Cette remarque est importante pour les profils spatiaux de concentration déterminés par transformée d'Abel, car la procédure standard considère un maximum absolu de concentration sur toute l'évolution temporelle.

3.4 Peuplements des métastables de l'hélium et évolutions du champ électrique en polarité négative

Dans cette partie, nous allons analyser les délais d'apparition des peuplements observés le long du capillaire et dans la plume, dans le cas de la polarité négative. Dans la mesure où la seconde contribution au peuplement des métastables est observée dans l'intégralité du capillaire lorsque la cible est située à 1 cm de son extrémité, nous allons traiter en détail de cette configuration. Ces évolutions seront comparées aux évolutions temporelles des composantes longitudinales et radiales du champ électrique.

3.4.1 Analyse des évolutions temporelles de la concentration des métastables de l'hélium

Aux différentes positions le long du capillaire et de la plume, les délais d'apparition des trois peuplements sont systématiquement relevés telle que l'illustre la Figure V-26 pour les positions 5,5 cm après la bague de masse (capillaire) et 9,1 cm après la bague de masse (plume). Nous rappelons que l'extrémité du capillaire est à 8,5 cm et la surface de la cible à 9,5 cm de la bague de masse.

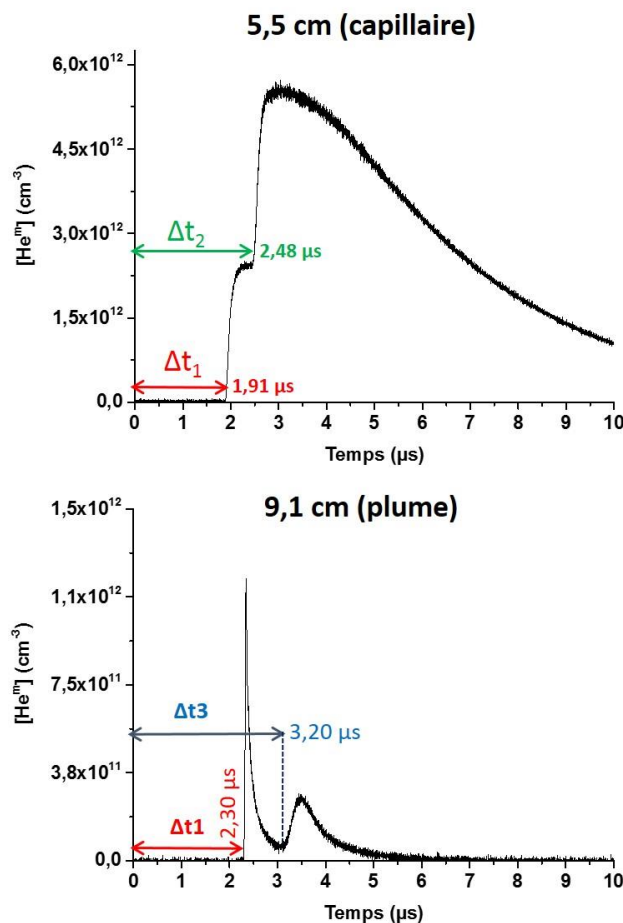


Figure V-26 : délais d'initiation des peuplements des métastables de l'hélium dans le capillaire et dans la plume, par rapport au démarrage de l'impulsion de tension (18 kV, 1kHz, polarité négative, cible 1 cm).

Le délai d'apparition du premier peuplement des métastables est repéré par Δt_1 , intervalle de temps entre le démarrage de l'impulsion de tension et la première augmentation rapide de la concentration. L'initiation du premier peuplement est repérée précisément lorsque la concentration atteint une valeur suffisamment élevée par rapport au bruit de fond ($1.10^{11} \text{ cm}^{-3}$ sur la Figure V-26). De la même manière, l'intervalle de temps Δt_2 désignera l'équivalent pour l'apparition du second peuplement des métastables. Le temps d'initiation du second peuplement est repéré lorsque la concentration atteint une valeur significativement supérieure aux fluctuations de la valeur moyenne du premier peuplement. Il en est de même pour le délai d'apparition Δt_3 du troisième peuplement dans la plume. Dans la mesure où il est difficile de distinguer le premier et second peuplement dans la plume, nous n'indiquerons uniquement que Δt_1 . Enfin, pour les très faibles augmentations de concentration (Figure V-22 à la position 3,3 mm), le troisième peuplement est nettement plus lent et l'incertitude sur le temps relevé sera donc plus importante. En configuration cible 1 cm, la plume a été sondée en 4 positions verticales (8,55 cm, 8,83 cm, 9,16 cm et 9,39 cm, cette dernière position étant distante de 1 mm de la surface de la cible).

La Figure V-27 montre donc l'évolution des délais Δt_1 , Δt_2 et Δt_3 le long du capillaire et dans la plume plasma.

Le long du capillaire, le délai Δt_1 est plus court proche électrode de masse ($0,89 \mu\text{s}$ à $0,1 \text{ cm}$) et augmente progressivement jusqu'à la cible. Comme nous l'avons déjà indiqué, il correspond à la propagation du front d'ionisation le long du capillaire, après son initiation à l'électrode interne. Entre $0,5$ et $7,5 \text{ cm}$, la vitesse de propagation du front d'ionisation est de $5,9.10^6 \text{ cm/s}$.

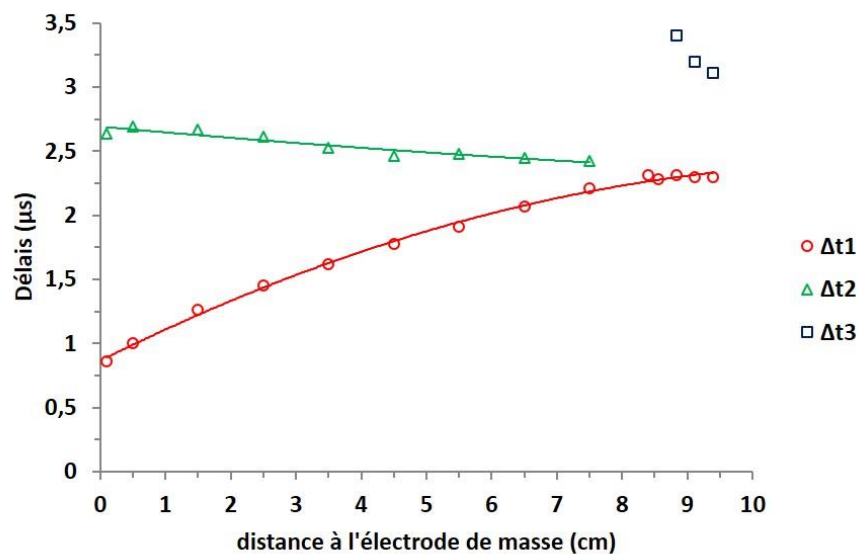


Figure V-27 : évolution des délais des trois peuplements des métastables de l'hélium dans le capillaire et dans la plume (18 kV, 1KHz, polarité négative, cible 1 cm).

Concernant le délai Δt_2 , nous pouvons voir qu'il suit une évolution exactement inverse à celle de Δt_1 le long du capillaire, avec le délai le plus long proche de la bague de masse ($2,67 \mu\text{s}$ à 5 mm) et le plus court à l'extrémité du capillaire ($2,42 \mu\text{s}$ à $7,5 \text{ cm}$). Si Δt_1 résulte d'une propagation, Δt_2 s'interprète donc naturellement comme la résultante d'une contre- propagation. Compte tenu des

délais, la vitesse de contre-propagation est élevée ($2,8 \cdot 10^7$ cm/s entre 0,5 et 7,5 cm). Nous pouvons voir que la contre propagation débute légèrement plus tardivement que l'impact du front d'ionisation sur la cible. Elle s'effectue donc dans la colonne plasma, milieu déjà ionisé, en remontant de la surface de la cible jusqu'à l'électrode interne. C'est probablement pour cette raison que la vitesse de contre-propagation est bien plus rapide que la vitesse de propagation du front d'ionisation. Nous pouvons remarquer que le laps de temps séparant la fin de la propagation et le début de la contre-propagation n'est pas accessible par les évolutions temporelles des concentrations des métastables, celui-ci devant être extrêmement réduit. Nous verrons que ce délai est accessible par les mesures de champ électrique.

Δt_3 est quant à lui toujours supérieur à Δt_2 . Le troisième peuplement se produit donc également dans la colonne plasma, mais après que la contre-propagation rapide atteigne le haut du capillaire. Nous pouvons remarquer que Δt_3 augmente lorsque l'on s'éloigne progressivement de la cible (3,1, 3,2 et 3,4 μ s). Pour le Δt_3 le plus tardif, le peuplement est très faible (cf Figure V-22). Nous reviendrons plus en détail sur l'interprétation de Δt_3 en partie 3.7.

3.4.2 Évolution du champ électrique

La première propagation correspond donc à celle du front d'ionisation, de son initiation à l'électrode interne jusqu'à son impact sur la surface de la cible. Nous avons, au chapitre IV, présenté en détail la caractérisation de la dynamique de propagation du front, par le biais de l'évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique le long du capillaire. Pour étudier la dynamique de contre-propagation, nous avons procédé de même, en translatant verticalement la sonde de champ, le long du capillaire et de la plume plasma. La distance entre la paroi du capillaire et le bord de la protection en alumine de la sonde est de 1 mm. Cette distance par rapport au capillaire est également conservée le long de la plume.

La Figure V-28 illustre l'évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique à la position 5,5 cm. Elle montre une comparaison direct entre les configurations cible à 1 cm (courbe noir) et jet libre (courbe bleu en pointillés), pour la même position de sonde.

Pour le cas du jet libre, nous pouvons voir les composantes longitudinale et radiale associées au passage du front d'ionisation et de la colonne plasma résiduelle. Ces comportements ont été décrits en détail au chapitre IV (section 2.3.1). Le maximum de la composante longitudinale E_x est synchronisé avec la brusque augmentation de la composante radiale E_r , ce qui est associé au passage du front d'ionisation à la position 5,5 cm. E_x chute ensuite rapidement dans la colonne, tandis que la composante E_r est maintenue sur un temps relativement long (environ 1 μ s) ce qui est dû à l'évolution de l'impulsion de tension.

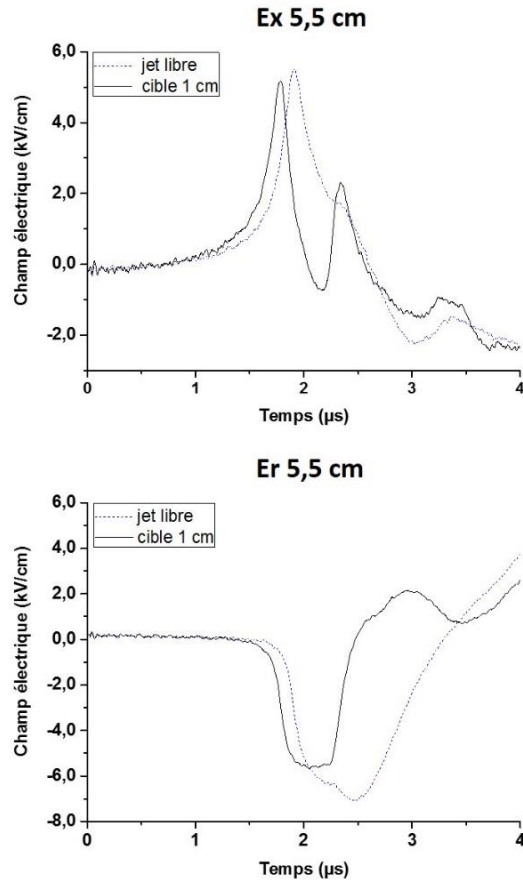


Figure V-28 : comparaison des évolutions temporelles des composantes longitudinales et radiales du champ électrique le long du capillaire (5,5 cm), en configurations cible à 1 cm et jet libre (18 kV, 1 kHz, polarité négative).

En configuration cible à 1 cm, nous pouvons voir sur la composante E_x que le maximum est atteint à l'instant $1,78 \mu s$ à la position 5,5 cm. Ce temps est légèrement inférieur, mais toutefois proche, du délai relevé sur le premier peuplement des métastables à la même position ($\Delta t_1 = 1,91 \mu s$), lors du passage du front d'ionisation. Ce décalage résulte d'une part de l'incertitude de position lors du placement de la sonde (0,5 mm), ainsi que du temps nécessaire aux électrons pour peupler les métastables par collision suite à l'accélération par le champ électrique.

Dans le cas du jet libre, la composante E_x chutait rapidement dans la colonne. Nous pouvons ici voir une seconde contribution apparaître, d'allure similaire et de plus faible amplitude. Celle-ci se produit au temps $2,34 \mu s$, qui est également légèrement inférieur mais proche du délai relevé au second peuplement des métastables ($\Delta t_2 = 2,48 \mu s$) à la position 5,5 cm. Concernant la composante radiale, nous pouvons voir que celle-ci est maintenue sur un temps beaucoup plus court que dans le cas du jet libre. Il est important de remarquer que la brusque décroissance de E_r est de plus synchrone avec la seconde augmentation vue sur E_x . Cette observation nous permet de fait d'affirmer que nous visualisons à cet instant précis, la signature d'un front « secondaire », postérieur au front d'ionisation « primaire », caractérisé par une seconde augmentation de la composante longitudinale et une annulation de la composante radiale.

En relevant systématiquement les délais des fronts primaires et secondaires, respectivement $\Delta t_1'$ et $\Delta t_2'$, par les deux composantes, nous pouvons en déterminer la dynamique de propagation, telle

que décrite sur la Figure V-27 par les peuplements des métastables. Ces évolutions sont illustrées en Figure V-29.

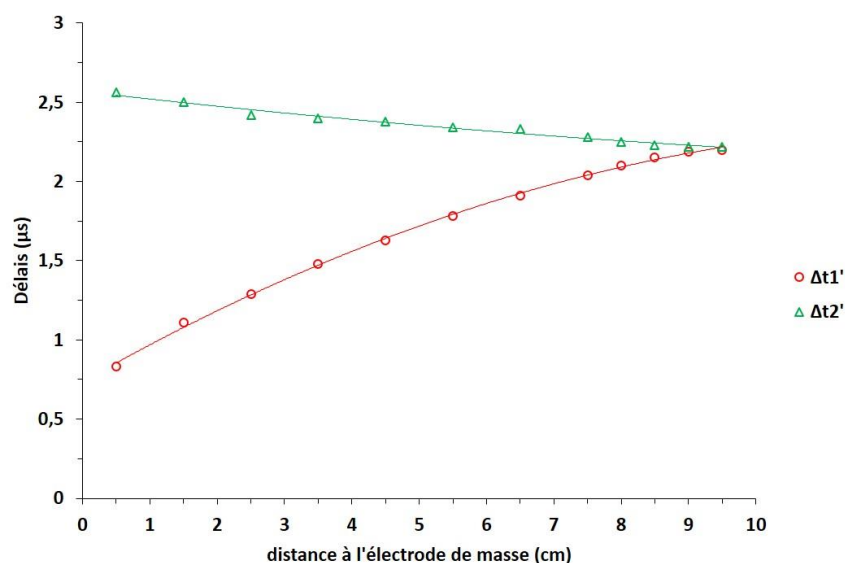


Figure V-29 : évolution des délais du front d'ionisation primaire et du front secondaire, le long du capillaire et de la plume, déterminée par les évolutions des composantes longitudinales et radiales du champ électrique (18 kV, 1KHz, polarité négative, cible 1 cm).

Nous retrouvons ici deux propagations en sens opposé. La première correspond donc à la propagation du front d'ionisation primaire, de l'électrode interne à la cible. Entre les positions 0,5 cm et 7,5 cm, sa vitesse de propagation est de $5,9 \cdot 10^6$ cm/s, valeur identique à celle déterminée à partir du délai du premier peuplement des métastables. Concernant la contre-propagation, entre les positions 0,5 cm et 7,5 cm, sa vitesse est de $2,6 \cdot 10^7$ cm/s, ce qui est très proche de la valeur déterminée par l'évolution du second peuplement des métastables.

Nous avons donc un parfait accord entre la dynamique des fronts primaire et secondaire le long du capillaire, déterminée par les évolutions temporelles des composantes longitudinales et radiales du champ électrique et par les peuplements des métastables.

Nous sommes donc en mesure d'affirmer que le second peuplement rapide des métastables s'effectue suite à la contre-propagation rapide d'un front secondaire dans la colonne plasma. À ce front secondaire est associée une seconde augmentation de la composante longitudinale du champ électrique, de même signe que celle du front d'ionisation primaire. En revanche, la composante radiale, établie suite à la propagation du front primaire, s'annule au voisinage du front secondaire, ce qui entraîne la brusque diminution observée lors de son passage devant la sonde. La durée totale du maintien de la composante radiale représente donc directement le délai entre le passage des fronts primaires et secondaires à une position donnée. La durée de maintien de la composante radiale est donc maximale en haut du capillaire et minimale au plus proche de la cible. Proche de la surface de la cible, la sonde de champ nous permet donc de résoudre le délai entre $\Delta t_1'$ et $\Delta t_2'$ (20 ns), non accessible par le peuplement des métastables. La valeur maximale de la composante radiale est donc très fortement réduite au voisinage de la cible (1 kV/cm, voir Figure V-30).

Par ailleurs, nous pouvons faire plusieurs remarques supplémentaires sur la Figure V-28. Le front d'ionisation, en configuration cible à 1 cm, précède légèrement celui dans le cas du jet libre (130 ns plus tôt en configuration cible 1 cm). À la position 5,5 cm, le front d'ionisation se trouve donc à 4 cm de la cible. Or, du fait de l'extension spatiale de la composante longitudinale 4 cm en aval du front (décrite en section 2.3.1 du chapitre IV), celui-ci est influencé par la présence de la cible avant même de la toucher. Il se propage donc légèrement plus rapidement. Nous avons observé que ces délais évoluent le long du capillaire (ils augmentent en se rapprochant de la cible). Les évolutions des composantes longitudinales et radiales à toutes les positions le long du capillaire et de la plume seront détaillées en annexe B.

L'amplitude de la composante E_x du front secondaire (2,5 kV/cm) est plus faible que celle du front d'ionisation primaire (5,5 kV/cm). Vers l'extrémité du capillaire, la composante E_x du front secondaire est de plus forte amplitude (3,5 kV/cm à 7,5 cm voir annexe B) qu'à 5,5 cm. Nous avons observé une diminution progressive de l'amplitude du champ en remontant le long du capillaire, jusqu'à ce que la composante E_x du front secondaire ne soit plus visible. Sur l'évolution de la concentration des métastables (Figure V-21), nous avons observé que le maximum de concentration atteint au second peuplement était également le plus élevé à l'extrémité du capillaire et diminuait progressivement en se rapprochant de l'électrode interne. Cela semble donc indiquer que le front secondaire s'atténue au cours de sa propagation. Pour le front d'ionisation primaire, nous avons montré au chapitre IV que l'amplitude de la composante longitudinale était essentiellement maintenue constante tout le long du capillaire. De plus, nous avons également vu qu'il en était de même pour l'évolution des maxima de concentration des métastables dans le capillaire (Figure V-20). Avec la différence de vitesse de propagation, ceci établit donc une forte distinction entre les comportements des fronts primaire et secondaire. Nous reviendrons sur cette remarque plus en détail dans les hypothèses en section 3.7.

La Figure V-30 montre l'évolution temporelle de la composante radiale du champ électrique lorsque la sonde de champ est positionnée au plus proche de la cible (1 mm), en comparaison de celle du jet libre à la même position.

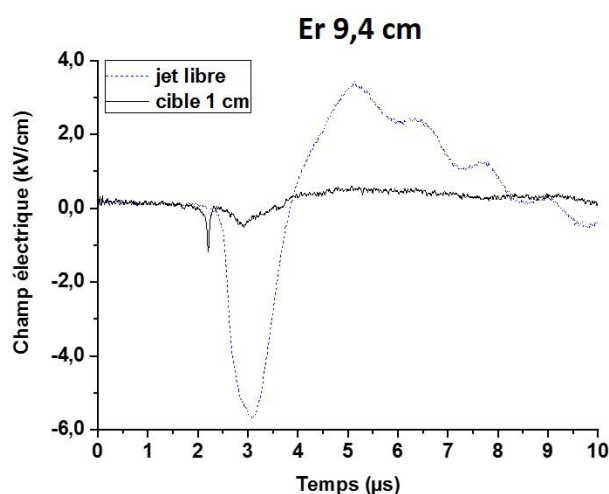


Figure V-30 : évolution de la composante radiale du champ électrique dans la plume(9,4 cm) en configurations jet libre et cible 1 cm (18 kV, 1 kHz, polarité négative).

En raison du très court intervalle de temps entre l'impact du front d'ionisation primaire sur la cible et l'initiation du front secondaire, le maximum d'amplitude de la composante radiale en est fortement affecté. Le délai entre son augmentation et sa diminution rapide est de seulement 20 ns et l'amplitude maximale atteinte dans l'intervalle est faible (1 kV/cm).

La Figure V-31 montre l'évolution des composantes longitudinale et radiale à 1 mm de la surface de la cible.

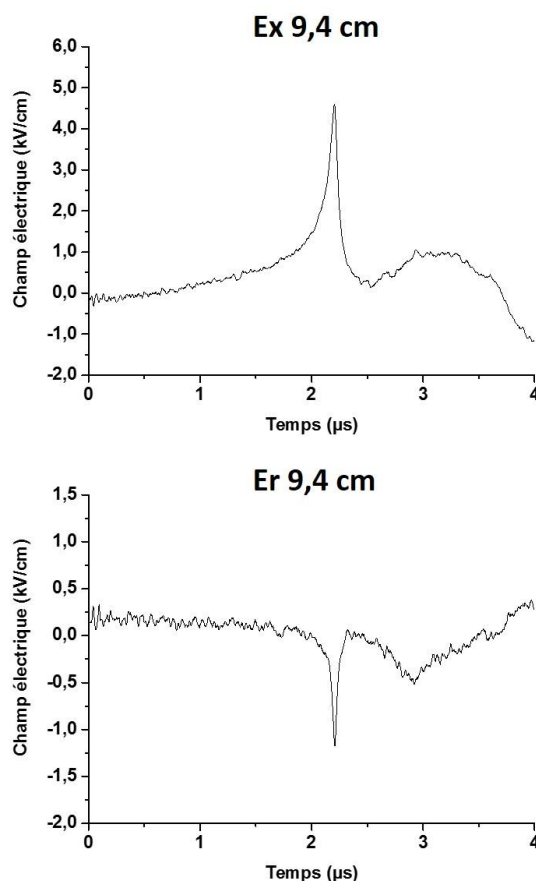


Figure V-31 : évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique à 9,4 cm, soit 1 mm au dessus de la surface de la cible (18 kV, 1 kHz, polarité négative, cible 1 cm).

Nous pouvons remarquer une légère augmentation du champ aux alentours de 3 µs. Cette augmentation du champ est présente sur les deux composantes, de profils assez similaires à cette position. Cette augmentation se produit sur un temps relativement long (~ 1 µs) et son amplitude est faible (0,5 kV/cm). Cette nouvelle augmentation du champ électrique, postérieur au passage des fronts primaires et secondaire, est proche des délais d'apparition Δt_3 des troisièmes peuplements des métastables.

3.5 Peuplements des métastables de l'hélium et évolutions du champ électrique en polarité positive

3.5.1 Analyse des évolutions temporelle de la concentration des métastables de l'hélium

La Figure V-32 est l'analogue de la Figure V-26 en polarité positive. Les délais des trois peuplements des métastables sont représentés en fonction de la position le long du capillaire et dans la plume.

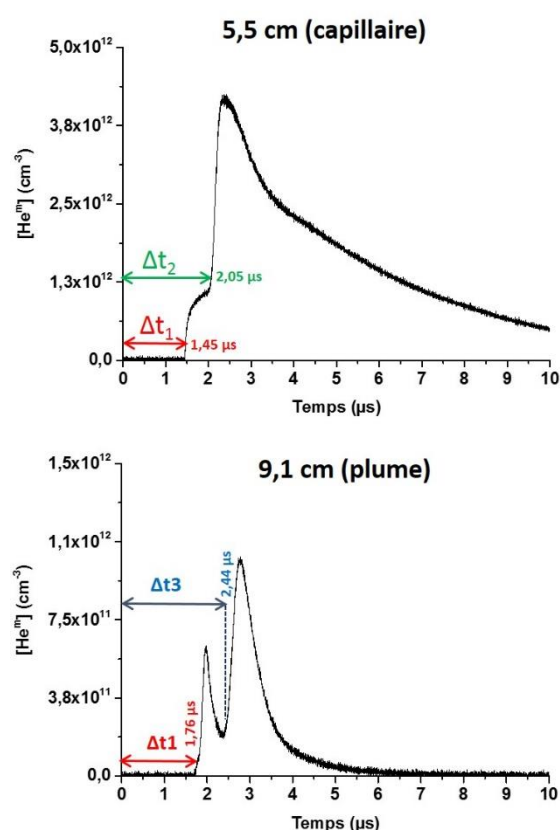


Figure V-32 : délais d'initiation des peuplements des métastables de l'hélium dans le capillaire et dans la plume, par rapport au démarrage de l'impulsion de tension (18 kV, 1kHz, polarité positive, cible 1 cm).

Nous rappelons que contrairement au cas de la polarité négative, la valeur de la concentration est plus élevée pour le troisième peuplement que pour le second, dans toute la plume (4 positions sondées). La pente est de plus très raide et comparable à celle du second peuplement.

Les allures des trois délais d'apparition des métastables en fonction de la distance à la bague de masse sont illustrés en Figure V-33.

Les délais Δt_1 du front d'ionisation primaire entre les positions 0,5 cm ($0,84 \mu\text{s}$) et 7,5 cm ($1,66 \mu\text{s}$) correspondent à une vitesse de propagation de $8,6 \cdot 10^6 \text{ cm/s}$. Nous retrouvons donc une vitesse de propagation supérieure en polarité positive, comparée à la polarité négative ($5,9 \cdot 10^6 \text{ cm/s}$), ce qui est en accord avec ce que nous avons détaillé au chapitre précédent.

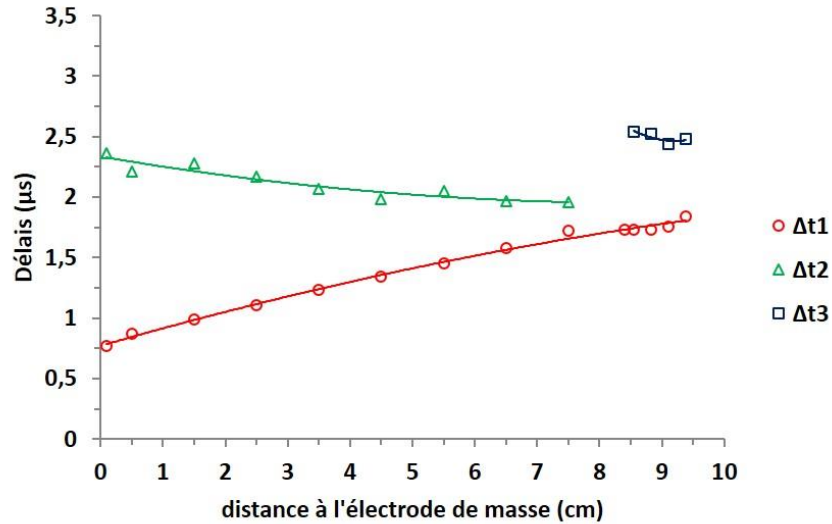


Figure V-33 évolutions des délais des trois peuplements des métastables de l'hélium dans le capillaire et dans la plume (18 kV, 1KHz, polarité positive, cible 1 cm).

Les délais Δt_2 suivent la même tendance que pour la Figure V-27 (délais les plus longs proche de l'électrode interne et les plus courts proches de l'extrémité du capillaire), ce qui signe également une contre-propagation. La dispersion entre les différents délais le long du capillaire est globalement plus importante qu'en polarité négative. Suivant la position considérée, la vitesse du front secondaire est comprise entre $1,6 \cdot 10^7$ cm/s et $1,9 \cdot 10^7$ cm/s. Cette valeur est inférieure à la vitesse de contre-propagation en polarité négative ($2,8 \cdot 10^7$ cm/s), mais néanmoins bien supérieure à la vitesse de propagation du front d'ionisation primaire.

Les délais Δt_3 sont ici visibles à toutes les positions sondées dans la plume. Ces délais sont toujours supérieurs aux délais Δt_2 et Δt_1 . De l'extrémité du capillaire jusqu'à la surface de la cible, les délais suivent une tendance décroissante, s'apparentant également à une contre-propagation. Nous reviendrons ce point en partie 3.7.

3.5.2 Évolution du champ électrique

En suivant la même démarche que pour la polarité négative en Figure V-28, la Figure V-34 montre la comparaison des composantes longitudinales E_x et radiales E_r du champ électrique pour les configurations cible à 1 cm (courbe noire) et jet libre (courbe bleu en pointillés), le long du capillaire à la position 5,5 cm.

De manière analogue à la Figure V-28, le passage du front secondaire s'illustre par une seconde augmentation sur la composante E_x , tandis qu'au même instant la composante E_r diminue brusquement ($1,83 \mu s$). Ce délai est donc proche du délai du second peuplement des métastables observé à la même position ($2,05 \mu s$). La présence du front secondaire est donc également confirmée dans le cas de la polarité positive.

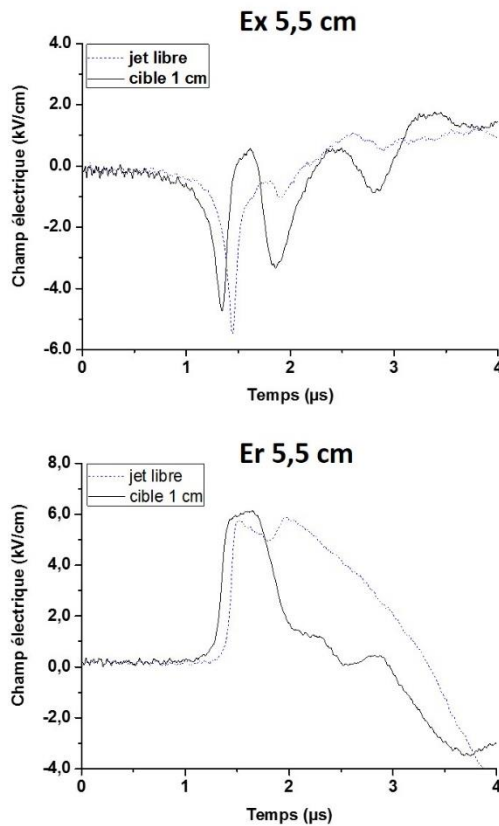


Figure V-34 : comparaison des évolutions temporelles des composantes longitudinales et radiales du champ électrique le long du capillaire (5,5 cm) en configurations cible à 1 cm et jet libre (18 kV ,1 kHz, polarité positive).

La valeur de E_x au passage du front secondaire à la position 5,5 cm (3,5 kV/cm) est plus élevée qu'en polarité négative (2,5 kV/cm). Sa diminution le long du capillaire semble également plus faible (3,0 kV/cm à 7,5 cm, voir annexe B) qu'en polarité négative. Cette observation peut être reliée avec les comportements observés sur la différence d'amplitude au second peuplement des métastables en polarités positive (Figure V-22) et négative (Figure V-20). En effet, par rapport au premier peuplement, le maximum de concentration au second peuplement des métastables est, relativement, bien plus important en polarité positive, sur toute la longueur du capillaire. Ceci pourrait donc s'expliquer notamment par une atténuation plus faible de la composante E_x sur le front secondaire en polarité positive. Sur la Figure V-34 est également visible une troisième augmentation sur la composante E_x à l'instant 2,81 μs, de plus faible amplitude (1kV/cm) que celle du second. Au même instant sur la composante radiale, une très légère augmentation est également visible. Nous reviendrons sur ce point en partie 3.7.

Nous pouvons donc, comme pour la Figure V-29, tracer l'évolution des deux délais le long du capillaire et de la plume, ce qui est présenté sur la Figure V-35.

La vitesse de propagation du front d'ionisation entre les positions 0,5 cm (0,72 μs) et 7,5 cm (1,52 μs) est de $9,1 \cdot 10^6$ cm/s, valeur proche de celle déterminée par l'évolution des premiers peuplements des métastables ($8,6 \cdot 10^6$ cm/s).

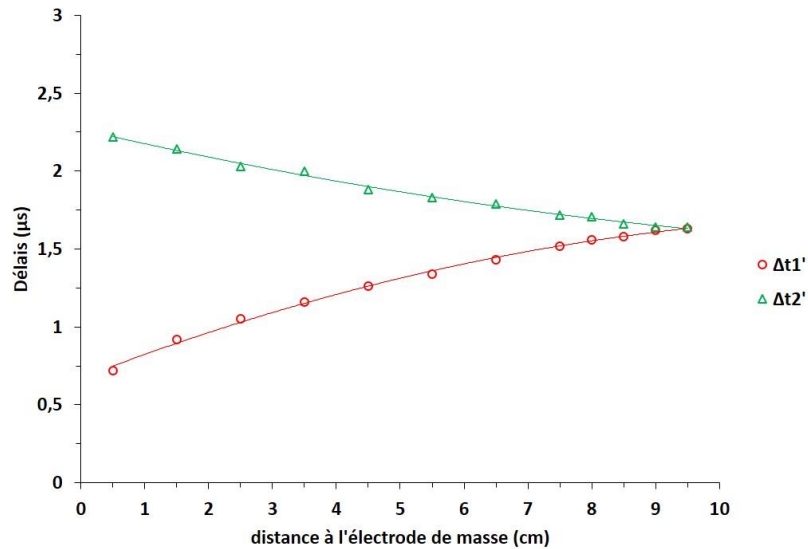


Figure V-35 : évolution des délais du front d'ionisation primaire et du front secondaire le long du capillaire et de la plume, déterminée par les évolutions des composantes longitudinales et radiales du champ électrique (18 kV, 1KHz, polarité positive, cible 1 cm).

La vitesse de contre-propagation entre les positions 0,5 cm (2,22 μ s) et 7,5 cm (1,72 μ s) est de $1,4 \cdot 10^7$ cm/s. Cette valeur est supérieure à la vitesse de propagation du front d'ionisation primaire. Elle est également proche de la valeur (basse) de vitesse mesurée par le peuplement des métastables à la Figure V-33 ($1,6 \cdot 10^7$ cm/s). Par les deux mesures (métastables et champ électrique), la vitesse de propagation du front secondaire en polarité positive est inférieure à celle en polarité négative.

De façon analogue à la Figure V-31, la Figure V-36 montre l'évolution des composantes longitudinale et radiale à 1 mm de la surface de la cible en polarité positive.

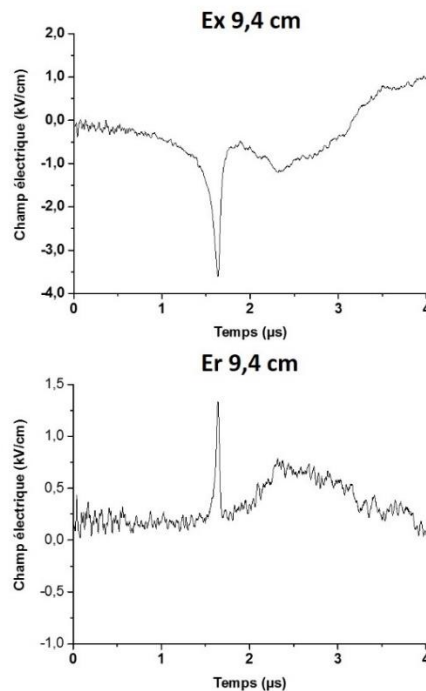


Figure V-36 : évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique à 9,4 cm, soit 1 mm au dessus de la surface de la cible (18 kV, 1 kHz, polarité positive, cible 1 cm).

L'allure des composantes est similaire à celle de la Figure V-31. Une faible augmentation du champ se produit dans la colonne (0,5 kV/cm). Comme pour la polarité négative, elle se produit à un temps proche (2,3 μ s) des délais d'apparition des troisièmes peuplements des métastables.

3.6 Mesures de courant sur la cible

Dans les mêmes conditions expérimentales, nous avons également réalisé des mesures du courant s'écoulant à travers la cible, en configuration cible à 1 cm, dans le cas des polarités positive et négative. Une résistance de 100 Ohms (non selfique) est branchée en série sur la cible et le courant est mesuré à l'aide d'une sonde de tension, aux bornes de la résistance.

La Figure V-37 montre l'évolution du courant s'écoulant à travers la cible. Nous avons superposé l'évolution de l'impulsion de tension appliquée à l'électrode interne.

Nous pouvons voir une augmentation progressive du courant, débutant vers 800 ns et très brusque aux alentours du 2 μ s (60 mA). Ce moment correspond donc à l'instant où le front d'ionisation impacte la cible en polarité négative, dans ces conditions expérimentales. Aux instants antérieurs, l'augmentation du courant est due à l'influence de l'extension spatiale du champ électrique en aval du front d'ionisation, ce qui se traduit donc par un courant de déplacement. Une fois que le front a impacté la cible, cette dernière et l'électrode interne sont électriquement reliées par le biais de la colonne plasma. L'augmentation du courant est alors importante avec un maximum de 155 mA à 3,1 μ s. Nous pouvons remarquer que le maximum du courant est donc atteint à un temps proche du temps relevé sur le troisième peuplement des métastables, ainsi qu'à celui de la faible augmentation du champ électrique dans la plume plasma proche de la cible. Le courant diminue ensuite progressivement (80 mA à environ 4 μ s) puis s'annule vers 7 μ s.

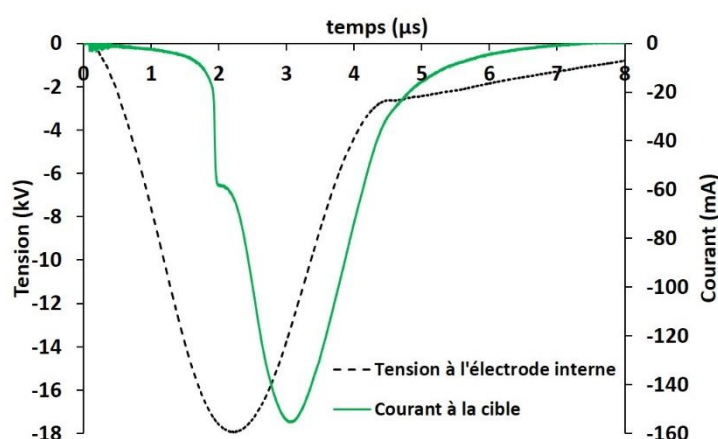


Figure V-37 : évolution temporelle du courant, mesurée aux bornes d'une résistance de 100 Ohms, branchée en série sur la cible métallique reliée à la masse. L'impulsion de tension appliquée à l'électrode interne est également illustrée (18 kV, 1 KHz, polarité négative, cible 1 cm).

La Figure V-38 présente l'équivalent en polarité positive. L'impact du front d'ionisation (1,6 μ s) est associé à une valeur de courant (65 mA) proche du cas négatif. Une forte augmentation du courant

est visible entre 2 et 4 μs , avec un maximum de 140 mA à 2,8 μs . Le troisième peuplement des métastables dans la plume se produit donc à un moment où le courant est important (130 mA à 2,5 μs), mais pas encore maximum. Ce maximum est atteint légèrement plus tôt que pour la polarité négative.

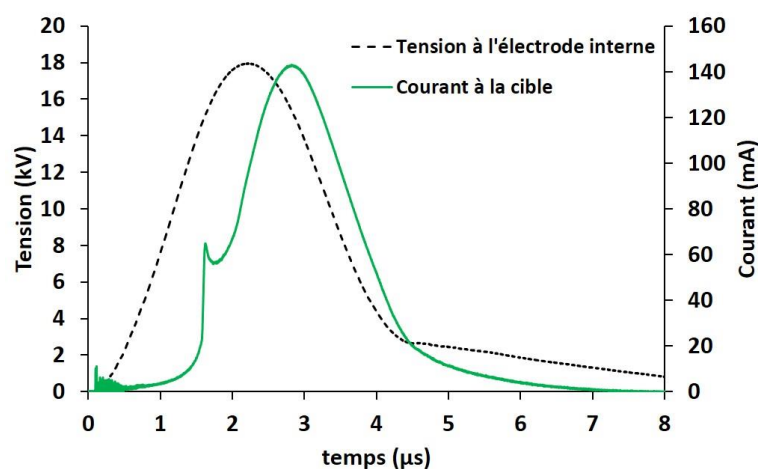


Figure V-38 : évolution temporelle du courant, mesurée aux bornes d'une résistance de 100 Ohms, branchée en série sur la cible métallique reliée à la masse. L'impulsion de tension appliquée à l'électrode interne est également illustrée (18 kV, 1 KHz, polarité positive, cible 1 cm).

Le courant s'écoulant à travers la cible est donc élevé, avec des valeurs proches pour les deux polarités. Néanmoins, nous devons souligner que le front d'ionisation n'impacte pas la cible au même instant dans les deux cas. La tension transmise de l'électrode interne à la cible, reliée électriquement par la colonne plasma, ne sera donc pas la même, compte tenu du temps d'évolution de l'impulsion de tension. Dans le cas positif, la tension continue d'augmenter lorsque le front impacte la cible (15 kV lors de l'impact). Dans le cas négatif, la tension est proche de son maximum (18 kV) lorsque le front impacte la cible et ne peut donc que diminuer. Sachant que la chute de potentiel est également différente entre les deux polarités, ainsi que la structure du plasma, une comparaison directe des deux valeurs de courant mesurées est complexe.

3.7 Résumé des observations et hypothèses sur le mécanisme d'interaction avec la cible

3.7.1 Résumé des observations

Par l'étude des évolutions temporelles de la concentration des métastables de l'hélium couplée aux évolutions temporelles des composantes longitudinales et radiales du champ électrique, nous avons mis en évidence la dynamique d'un mécanisme se produisant lorsque le jet plasma est en contact avec une cible métallique. Nous avons traité en détail la configuration de jet pour laquelle la cible métallique reliée à la masse est située à 1 cm de l'extrémité du capillaire, pour des impulsions de tension de polarités négative et positive.

Dans les deux cas, le front d'ionisation est initié à l'électrode interne et se propage le long du capillaire jusqu'à finalement impacter la surface de la cible. L'électrode interne et la cible sont alors

électriquement reliées par la colonne plasma laissée dans le sillage du front d'ionisation. Très peu de temps après cet impact (20 ns), un front secondaire se contre propage de la surface de la cible jusqu'à l'électrode interne par le biais de la colonne plasma. Les évolutions du champ électrique attestent de ce front secondaire, caractérisé par sa propre composante longitudinale et par l'annulation de la composante radiale établie suite à la propagation du front primaire. L'augmentation du champ dans la colonne au passage de ce front permet à des électrons « chauds » de directement peupler à nouveau les métastables de l'hélium. Ces derniers sont donc peuplés une première fois au passage du front d'ionisation primaire puis une seconde fois au passage du front secondaire. La contre-propagation du front secondaire est plus rapide que la propagation du front d'ionisation primaire car elle s'effectue dans la colonne plasma, milieu qui est ionisé. Un troisième peuplement des métastables est de plus observé dans la plume, plus tardif que les deux premiers, associé à une forte augmentation du courant s'écoulant à travers la cible (maximum proche de 150 mA) et à une faible augmentation du champ électrique. Le mécanisme décrit ici est commun aux deux polarités.

Toutefois, de fortes différences existent entre les polarités positive et négative. En polarité positive, le troisième peuplement se produit sur toute la longueur de la plume avec des valeurs de concentrations bien plus élevées que pour le second peuplement. Le troisième peuplement est de plus très rapide, comme en atteste la raideur des pentes lors de l'augmentation de la concentration des métastables. En polarité négative, le troisième peuplement se produit essentiellement sur la moitié inférieure de la plume, avec des valeurs de concentrations bien plus faibles que celles atteintes suite au passage du front secondaire. Les pentes sont également notablement moins raides. Dans le capillaire, le second peuplement se produit avec des pentes raides, à une position proche de la surface de la cible jusqu'à une position proche de l'électrode de masse, au début du capillaire. En polarité négative, les pentes du second peuplement sont nettement moins raides au début du capillaire, comparées à celles à l'extrémité du capillaire. L'augmentation relative de concentration entre les premiers et seconds peuplements est également plus importante en polarité positive.

Pour une distance cible-extrémité du capillaire plus importante (2 cm), nous avons observé en polarité positive un troisième peuplement dans les trois quarts de la plume (jusqu'à 1,55 cm de la surface de la cible) et un second peuplement dans la totalité du capillaire. En polarité négative, le troisième peuplement dans la plume ne se produit pas et le second peuplement s'estompe entre trois et quatre centimètres avant l'électrode interne.

Concernant les vitesses de contre-propagation, nous avons montré que celles-ci étaient du même ordre de grandeur pour les deux polarités, mais plus élevée dans le cas négatif ($2,6 \cdot 10^7$ cm/s contre $1,4 \cdot 10^7$ cm/s). Cette différence de vitesse est difficile à expliquer en l'état. Nous pouvons supposer qu'elle pourrait notamment dépendre de la résistivité de la colonne, de sa structure, mais aussi de la valeur de la tension à l'électrode interne, relativement au temps de contre-propagation du front secondaire.

3.7.2 Modèle numérique de l'interaction plasma et cible conductrice dans la littérature

Les observations détaillées ici sont les premières, à notre connaissance, à mettre expérimentalement en évidence ces phénomènes dans un jet de plasma froid à pression atmosphérique en interaction avec une cible métallique, de la surface de la cible dans la plume, jusqu'à l'électrode interne dans le capillaire.

Urabe et al [39], dont nous avons résumé les observations en section 1.2, avaient observé expérimentalement dans la plume de leur jet d'hélium, au contact d'une cible métallique, des « fronts » de haute densité de métastables semblant se propager dans la plume avec des vitesses et des répartitions spatiales différentes entre les polarités positive et négative.

Plus récemment est parue dans la littérature une étude numérique de Norberg et al [46] sur l'interaction d'un jet de plasma d'hélium à pression atmosphérique en contact avec une cible de nature diélectrique ou métallique. La géométrie utilisée est une aiguille placée dans un capillaire de 1,6 mm de diamètre, sur laquelle est appliquée une impulsion de tension de 15 kV d'amplitude, de durée totale 100 ns (front de montée 5 ns, 75 ns maintenue au maximum de tension et décroissance de 20 ns). Une cible est placée à 7,5 mm de l'extrémité du capillaire, vers laquelle est soufflé de l'hélium (auquel est mélangé une faible quantité d'O₂ (99,8/0,2)), à un débit de 4 l/min. De l'air humide est également soufflé au même débit autour du capillaire. La permittivité électrique relative de la cible est adaptée pour simuler différents matériaux, des valeurs basses ($\epsilon_r = 2,5, 10$ proches d'un polymère, d'un tissu biologique ou du verre) aux valeurs hautes ($\epsilon_r = 80$ pour un liquide) et infinie pour le métal. Ils indiquent que dans le modèle, tout ce qui n'est pas métallique est considéré de conductivité nulle, c'est-à-dire comme un pur diélectrique. Ils indiquent de plus que l'électrode haute tension est également traitée comme un diélectrique dans leurs simulations. Ils étudient les propriétés de la colonne à différents instants de l'impulsion de tension, à partir du moment où le front impacte la cible, pour les différentes permittivités.

Ils considèrent le jet comme un élément d'un circuit électrique : le courant de conduction et de déplacement circulant entre les électrodes dans le plasma doit retourner à la masse, en respectant la conservation totale du courant circulant dans le circuit. Aux plus fortes valeurs de permittivité et dans le cas métallique, ils mettent en évidence que la colonne plasma (formée entre les électrodes après impact du front sur la cible) est plus conductrice, comparée aux cibles de permittivités plus faibles. Cette augmentation de la conductivité s'accompagne d'une augmentation de la densité électronique, de la température électronique, du terme source d'ionisation dans la colonne et de globalement toutes les concentrations d'espèces produites, dont les métastables de l'hélium, O, NO et OH, N₂ (A) et N₂ (B). Sur le métal, les auteurs indiquent que les charges ne peuvent s'accumuler et que le champ électrique ne pénètre pas dans la cible.

Il est intéressant de noter qu'aux plus hautes valeurs de permittivité, ils observent ce qu'ils nomment un « restrike » (retour), se produisant très peu de temps après que le front d'ionisation ait touché la cible (10 ns) et dont ils indiquent qu'il peut éventuellement se contre-propager jusqu'à l'électrode haute tension. Nous validons donc cette prédiction dans nos conditions expérimentales, en ce sens que le « restrike » prédit par le modèle correspondrait à ce que nous décrivons comme

un front secondaire en contre-propagation. Toutefois, Norberg et al n'en décrivent pas la dynamique et n'émettent pas d'hypothèses sur sa nature physique.

Nous pouvons également noter qu'ils ont remarqué que le plasma a tendance à s'étaler sur le diélectrique (propagation d'une onde de surface), alors que l'impact reste localisé dans le cas métallique, sans étalement. Nos observations du comportement de la plume sur la cible métallique sont en accord avec cette prédiction. La plume reste en effet fine et très localisée sur la cible, sans s'étaler sur celle-ci. Sur un diélectrique, nous avons observé que le jet s'étalait effectivement en surface (Figure V-2), de façon homogène sur un certain diamètre proche du point d'impact et multi-ramifié en fins filaments (forme d'étoile) aux extrémités. Norberg et al ont décrit que la surface se charge et qu'une onde d'ionisation de surface est initiée sur la cible, par renforcement du champ électrique. Ils ont indiqué que le champ électrique pénètre également dans le matériau. Dans ce cas, ils ont précisé que la conductivité de la colonne est plus basse, ainsi que la température et la densité électronique. Ils ont également déterminés que toutes les densités des espèces précédemment citées sont également plus faibles par rapport à celles dans le cas de cibles de plus grandes permittivités.

3.7.3 Différences entre les fronts d'ionisation primaire et secondaire

Outre le sens de propagation, nous avons mis en évidence une différence de vitesse entre les fronts primaire et secondaire. Ce dernier se propage bien plus rapidement, ce que nous attribuons au fait qu'il se propage dans la colonne plasma.

Toutefois, d'autres caractéristiques distinguent les deux fronts. Dans notre étude, nous avons essentiellement travaillé à la tension appliquée 18 kV, afin de limiter les paramètres expérimentaux. Nous devons indiquer que le second peuplement des métastables est très sensible à la tension appliquée. La Figure V-39 illustre l'évolution de la concentration des métastables de l'hélium pour trois tensions appliquées, à la position 5,5 cm en polarités positive et négative, en configuration cible à 1 cm. À la valeur la plus faible (12 kV), le plasma atteint toujours la cible, pour les deux polarités, et la connexion entre l'électrode interne et la cible n'est pas donc perdue.

En polarité positive, le second peuplement est visible aux tensions 12 kV, 14 kV et 18 kV. Le maximum de concentration évolue peu entre 12 kV et 14 kV, mais augmente fortement à 18 kV. Nous pouvons remarquer qu'aux trois tensions appliquées, la concentration atteinte au premier peuplement, au passage front d'ionisation primaire, ne varie presque pas. Au chapitre IV (partie 2) nous avons décrit que la tension appliquée à l'électrode interne semblait avoir peu d'influence sur la valeur du champ local du front d'ionisation. Le fait que la concentration atteinte lors du premier peuplement soit donc également peu influencée par la tension appliquée est donc en accord avec cette observation.

En polarité négative, le second peuplement ne se produit pas à 12 kV. Entre 14 et 18 kV, une très forte augmentation du maximum de concentration est visible.

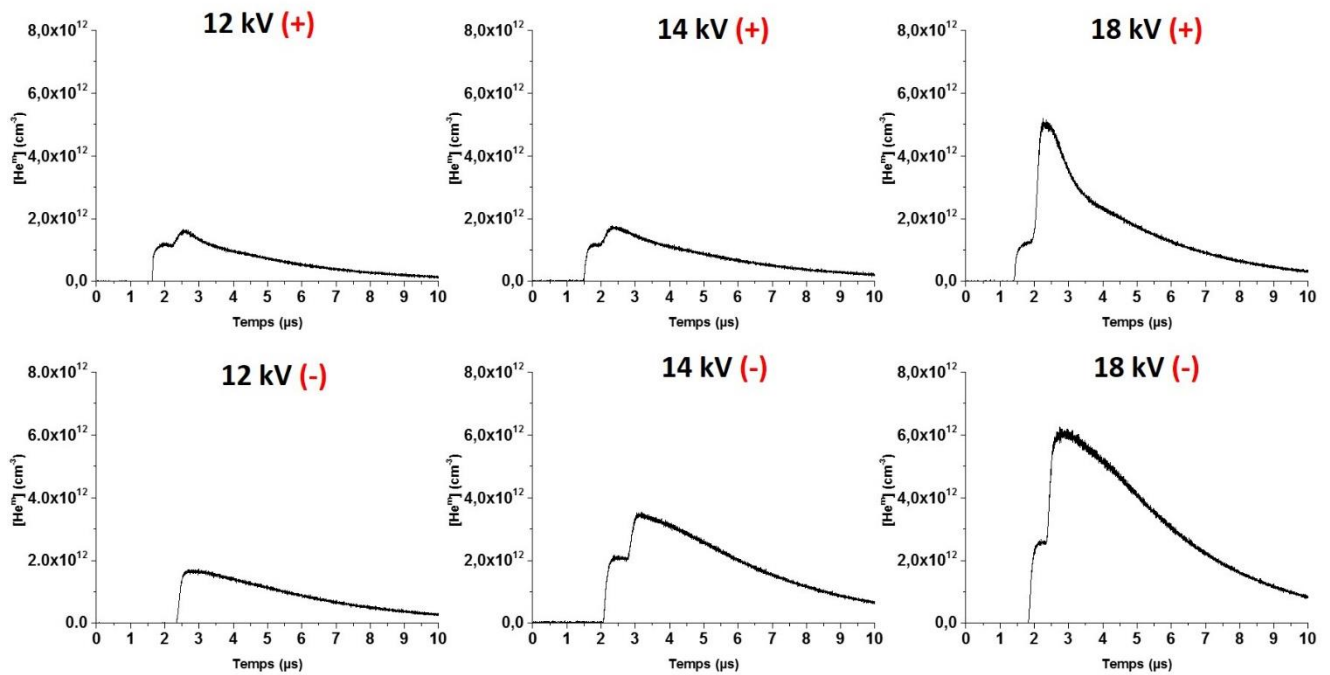


Figure V-39 : évolution dans le capillaire (5,5 cm) de la concentration des métastables de l'hélium pour trois valeurs de tensions appliquées en polarité positive et négative (configuration cible à 1 cm).

Cette différence de dépendance à la tension appliquée marque donc une nette distinction de comportement entre les fronts primaire et secondaire. Nous devons indiquer que dans les mêmes conditions, les effets de la variation de la fréquence de répétition (entre 500 kHz et 2 kHz), pour une tension appliquée fixée, sont également visibles sur le maximum de concentration atteint au second peuplement, mais dans des amplitudes bien plus faibles que celles dues à la variation de la tension appliquée.

Une autre distinction peut être relevée sur l'évolution du maximum de la concentration des métastables atteint le long du capillaire pour les deux peuplements. En effet, le maximum atteint lors du premier peuplement évolue peu le long du capillaire, ce que nous pouvons directement relier à la faible évolution du champ local du front d'ionisation au cours de la propagation. En revanche, nous avons observé en Figure V-20 et en Figure V-22 qu'il n'en est pas de même pour le second peuplement dû au front secondaire. La concentration maximale atteinte diminue au cours de la contre-propagation dans le capillaire. Nous avons relié cette observation avec une baisse d'intensité observée du champ électrique au cours du passage du front secondaire. Tout se passe donc comme si le front secondaire s'amortissait au cours de sa contre-propagation dans la colonne.

Nous avons par ailleurs décrit que la contre-propagation se produisait dans l'intégralité du capillaire en polarité positive pour les configurations cible à 1 et 2 cm, avec des pentes raides lors de l'augmentation de la concentration, contrairement à celles en polarité négative. La distinction est encore plus forte concernant les évolutions du troisième peuplement des métastables entre les deux polarités.

Nous pouvons légitimement nous attendre à ce que les propriétés de la colonne, notamment sa résistivité, aient donc des répercussions sur la dynamique de propagation du front secondaire. Dans

la colonne plasma, la chute de potentiel a été décrite comme plus importante en polarité négative qu'en polarité positive [66]. Nous pourrions donc interpréter les différences de comportement observés sur les peuplements des métastables entre les deux polarités par une différence d'amortissement du front secondaire (plus importante en polarité négative).

3.7.4 Hypothèse sur la nature du front secondaire

Par nos observations, nous pouvons formuler une hypothèse sur la nature de ce front secondaire. Nous suspectons dans ce phénomène un effet de nature purement électrique. En effet, nous pouvons considérer la colonne plasma comme un segment de circuit électrique, caractérisé par sa propre impédance. La colonne plasma relie électriquement deux électrodes, l'électrode sur laquelle est appliquée l'impulsion de tension, à l'intérieur du capillaire, et la cible à la masse en face de celui-ci. Nous pouvons donc y voir conceptuellement un signal de tension (impulsionnelle) voyageant dans une ligne (la colonne plasma) entre deux électrodes connectées. Or, il existe justement dans ce type de système un phénomène faisant état d'un « retour » du signal dans la ligne, par le phénomène de désadaptation d'impédance. Ce phénomène se produit lorsque la ligne est dite désadaptée, c'est-à-dire lorsqu'un brusque changement d'impédance se produit entre l'impédance caractéristique de la ligne et les électrodes aux extrémités.

Or dans notre cas, l'impédance de la cible métallique peut être considérée comme nulle. L'impédance de la colonne plasma, si complexe à caractériser soit-elle, est nécessairement plus élevée. Ces deux segments de circuit sont donc électriquement désadaptés. La tension transmise peut donc à l'interface colonne plasma-cible subir un retour et ce faisant, se contre propager dans la colonne jusqu'à l'autre électrode. Nous pouvons donc interpréter ce front secondaire comme résultant d'une réflexion de la tension par la désadaptation d'impédance entre la colonne plasma et la cible métallique. De plus, pour une ligne désadaptée en régime impulsionnel, la résistivité engendre un amortissement du signal au cours de sa propagation. Nous pouvons donc interpréter que le peuplement des métastables, bien plus important à l'extrémité du capillaire qu'à l'électrode interne, résulte de l'amortissement progressif du front secondaire, au cours de sa propagation dans la colonne plasma. Sachant que la polarité de l'impulsion de tension influe directement sur la chute de potentiel le long de la colonne, il serait donc possible que le front secondaire soit plus rapidement amorti en polarité négative, en raison d'une chute de potentiel plus importante.

Cette hypothèse de ligne désadaptée possède de plus une implication directe. En effet, à l'autre extrémité de la ligne est également présente une électrode (l'électrode haute tension), constituée du même matériau que la cible (laiton). À l'interface entre l'électrode haute tension et la colonne plasma, il y a donc encore désadaptation d'impédance. La tension transmise peut donc potentiellement subir une réflexion sur l'électrode interne et poursuivre sa propagation dans la colonne. Ce phénomène est parfaitement décrit dans les lignes désadaptées en régime impulsionnel. Il implique donc que la tension rebondisse aux deux extrémités de la ligne, par des multiples réflexions entre chacune des électrodes, jusqu'à son atténuation totale. Sur la Figure V-34, la signature du passage d'un front ultérieur au front secondaire est nettement visible sur les

composantes longitudinale et radiale du champ électrique. Le maximum d'amplitude (1kV/cm sur Ex) est plus faible que pour le second front (3,5 kV/cm), ce qui indiquerait son amortissement.

La Figure V-40 montre l'évolution des composantes longitudinale et radiale à la position 3,5 cm, en configuration cible 1 cm pour la polarité positive, sur une durée de 10 μ s. Des oscillations périodiques du champ électrique sont visibles dans la colonne, sur les deux composantes. Elles sont nettement visibles sur la composante longitudinale, avec une période d'environ 1 μ s entre deux maxima consécutifs, soit une fréquence d'oscillation proche de 1 MHz. Nous pouvons noter que ces oscillations semblent également s'amortir vers 8 μ s et perdurent avec cette amplitude sur au moins 20 μ s, alors que la tension appliquée ne permet normalement plus d'entretenir un plasma. Nous les interprétons comme la conséquence des rebonds continus de la tension sur chaque électrode (haute tension et cible à la masse).

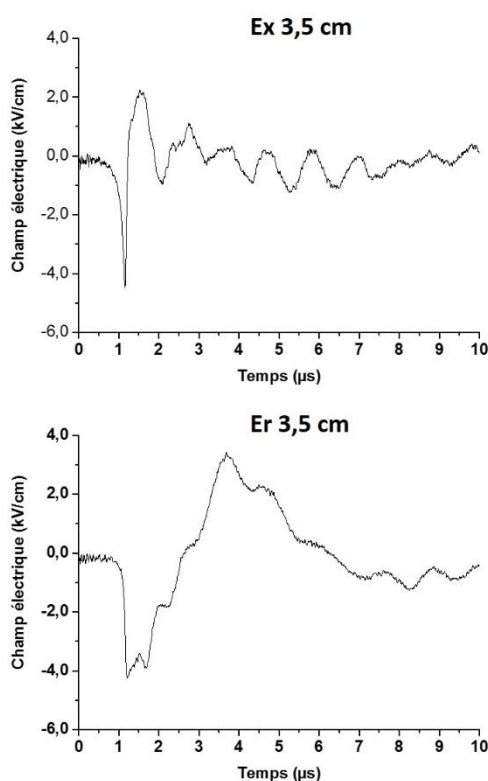


Figure V-40 : évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique dans le capillaire (3,5 cm) en configurations cible à 1 cm (18 kV, 1 kHz, polarité positive).

Cette hypothèse implique donc que des fronts ultérieurs au front secondaire (nouveau front initié à chaque impact sur une électrode) seraient donc également potentiellement capables de peupler des métastables dans le capillaire, s'ils ne sont pas trop amortis.

La Figure V-41 montre l'évolution de la concentration des métastables à la position 3,5 cm, en configuration cible 1 cm pour la polarité positive.

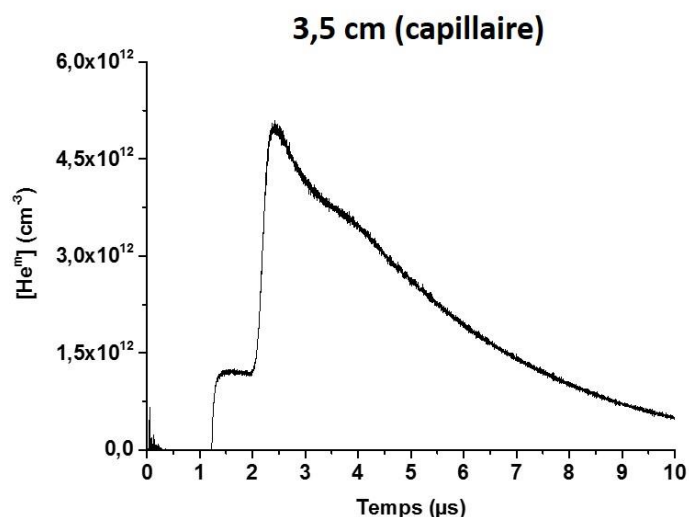


Figure V-41 : évolution de la concentration des métastables de l'hélium dans le capillaire (3,5 cm) en configuration cible 1 cm (18 kV, 1 kHz, polarité positive).

Le premier et le second peuplement sont conformes à la description que nous en avons effectuée en section 3.5. Cependant, nous pouvons à cette position observer un léger peuplement dans la pente globalement décroissance de la concentration, se produisant vers 3,4 μs , 3,5 μs . Sur la Figure V-40 est également visible à ce temps une augmentation sur la composante longitudinale. Ce peuplement entraîne donc une légère augmentation de la concentration des métastables, par rapport à ce qu'il subsiste du peuplement du front précédant. Pour pouvoir observer ce peuplement à une position donnée, il faut que la concentration des métastables ait suffisamment diminué après le second peuplement (passage du front secondaire), sans que le front ultérieur ne soit trop amorti lors de son passage. Ce faisant, le nouveau front peuple à une valeur de concentration légèrement supérieure à ce qu'il subsiste des instants antérieurs.

Il est de plus important de remarquer que ce temps est supérieur aux temps relevés dans la plume pour le troisième peuplement des métastables (2,48 μs au plus proche de la cible, 2,54 μs au plus proche de l'extrémité du capillaire). Cela implique donc directement que les troisièmes peuplements rapides observés dans la plume résultent de cette dynamique de propagation des fronts secondaire et ultérieurs.

Pour illustrer plus visuellement cette dynamique, la Figure V-42 montre un schéma faisant état des différents passages des fronts secondaire et ultérieurs, pour les positions correspondant aux différents temps observés. La colonne plasma est symbolisée en rose.

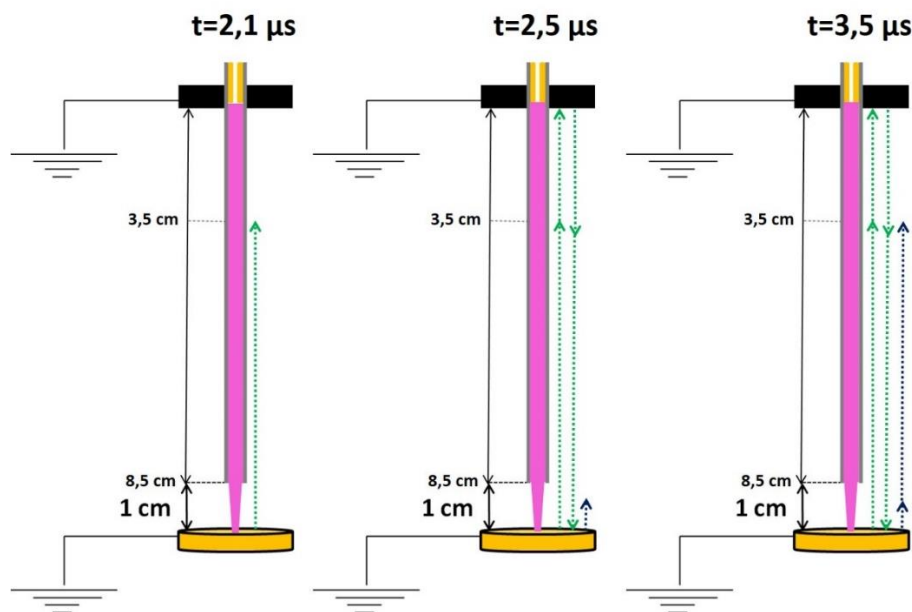


Figure V-42 : dynamique de propagation des fronts secondaire et ultérieurs dans la colonne plasma, liée au temps relevés sur les peuplements des métastables de l'hélium à 3,5 cm (18 kV, 1 kHz, polarité positive, cible 1 cm).

Nous rappelons que dans ces conditions, le front d'ionisation atteint la cible à l'instant $1,6 \mu\text{s}$. À cet instant, l'électrode interne est électriquement connectée à la cible et le front secondaire est initié quasi instantanément. Celui-ci se contre-propage jusqu'à atteindre la position 3,5 cm à l'instant $2,1 \mu\text{s}$ (symbolisé par l'extrémité de la flèche verte) observée sur l'évolution du second peuplement rapide des métastables et l'évolution de E_x et E_r à la même position. Cette description correspond à l'image de gauche. Après impact du front secondaire sur l'électrode interne, un front tertiaire est initié quasi instantanément en raison de la désadaptation d'impédance entre la colonne et l'électrode et se propage jusqu'à la cible. Compte tenu du faible laps de temps séparant les passages du front secondaire et tertiaire à la position 3,5 cm, la concentration reste trop élevée pour que l'on puisse voir une augmentation au passage du front tertiaire. Le front tertiaire continue sa propagation et atteint la cible vers $2,5 \mu\text{s}$ (image du centre, extrémité de la flèche verte). Un front quaternaire est alors initié et entame une nouvelle propagation vers l'électrode interne (symbolisé par la flèche bleue). Compte tenu du faible laps de temps entre l'arrivée du front tertiaire et le départ du front quaternaire dans la plume, il est difficile de déterminer l'instant exact durant lequel les métastables sont peuplés dans l'intervalle. Néanmoins, l'évolution des délais Δt_3 dans la plume (Figure V-33) et les pentes très raides de l'augmentation de la concentration (Figure V-32), indiqueraient la contre-propagation d'un front. L'image de droite montre que le front quaternaire atteint la position 3,5 cm au temps $3,5 \mu\text{s}$. L'évolution de la concentration de métastables atteste d'un faible peuplement lors de son passage.

Si nous cherchons à déterminer les vitesses de propagation des fronts aux différents instants décrits en Figure V-42, elles ne seraient a priori pas constantes. Elle seraient de l'ordre de $3 \cdot 10^7 \text{ cm/s}$ entre les temps 2,1 et $2,5 \mu\text{s}$ pour une distance parcourue de 13 cm ($3,5 \text{ cm} + 8,5 \text{ cm} + 1 \text{ cm}$) et de l'ordre de $6 \cdot 10^6 \text{ cm/s}$ entre 2,5 et $3,5 \mu\text{s}$, soit 6 cm parcourus en $1 \mu\text{s}$ environ. Ces ordres de grandeur sont réalistes par rapport à la vitesse calculée du front secondaire au cours de la première contre propagation ($1,4 \cdot 10^7 \text{ cm/s}$). D'après le modèle de [46], la densité électronique et la résistivité de la

colonne serait très dépendante de la tension à l'électrode interne, lorsqu'elle est connectée avec la cible métallique. Compte tenu du temps d'évolution de notre impulsion de tension, nous trouverions a priori des vitesses plus élevée lorsque la tension est à son maximum d'amplitude.

Par notre hypothèse de ligne désadaptée, reposant sur une considération purement électrique, nous sommes donc à même de décrire les différents instant des peuplements rapide des métastables de l'hélium dans la colonne plasma et l'évolution du champ électrique observé (capillaire et plume). Dans le modèle de [46], le « restrike » initié à la cible métallique est décrit, mais il n'est pas fait mention d'un « restrike » à l'électrode interne. Néanmoins, les auteurs ont précisé qu'ils ont traité leur électrode interne comme un diélectrique de conductivité nulle. Ce choix les empêcherait donc théoriquement d'observer un « restrike » supplémentaire à l'électrode interne et les allers-retours le long de la colonne, les auteurs ayant indiqué que l'intensité de ce « restrike » était d'autant plus importante que la permittivité relative du matériau était grande.

Il est important d'indiquer que la propagation du front quaternaire s'effectue à un temps où le courant de conduction est important (Figure V-38). L'évolution des délais Δt_3 des troisièmes peuplements rapides des métastables marque le passage d'un front, mais les signatures des fronts ultérieurs sur l'évolution de la concentration sont faibles. Dans cette phase de fort courant, l'essentiel de la production des métastables est alors essentiellement pilotée par la tension appliquée à l'électrode interne.

3.8 Cas du mélange hélium - azote

Dans la partie précédente, nous avons suspecté que les propriétés électriques de la colonne plasma influaient sur les dynamiques de propagations des fronts d'ionisation secondaire et ultérieurs. Nous avons étudié au chapitre IV que des mélanges hélium-azote étaient justement à même d'entraîner des changements des propriétés de la colonne et notamment de sa conductivité. Nous avons donc effectué des mélanges de faibles concentrations d'azote dans l'hélium, en configuration cible à 1 cm.

3.8.1 Peuplements des métastables de l'hélium et évolutions du champ électrique

La Figure V-43 illustre, dans le cas du jet libre, l'influence de l'ajout d'azote sur le temps de vie des métastables de l'hélium dans le capillaire. Les évolutions sont mesurées à la position 4,5 cm, à une tension appliquée de 12 kV en polarité positive.

La durée de vie des métastables de l'hélium est considérablement réduite par l'ajout d'azote, en raison du quenching sur les molécules N_2 . Nous rappelons qu'en hélium sans azote ajouté, nous avons mesuré une constante de temps de 3,9 μs dans le capillaire (Figure V-19). A 0,1 % d'azote, la constante de temps est de 0,77 μs . Elle est respectivement de 0,14 μs à 0,5 % de N_2 et 0,07 μs à 1,0 % de N_2 . Pour de telles concentrations d'azote, le temps de destruction devient comparable au

temps de peuplement et la concentration maximale de métastable atteinte lors du passage du front d'ionisation en est donc très affectée.

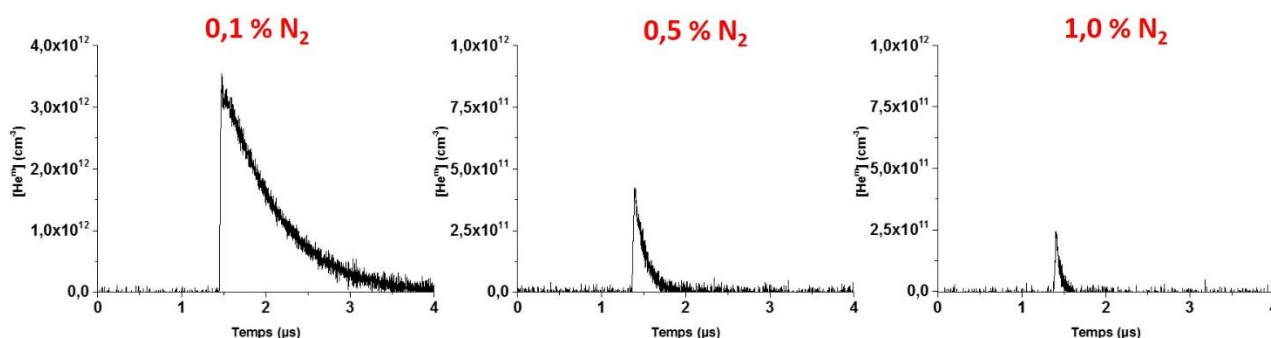


Figure V-43 : évolution de la concentration des métastables de l'hélium dans le capillaire (4,5 cm) en fonction de la concentration d'azote mélangée à l'hélium (12 kV, 1 kHz, jet libre).

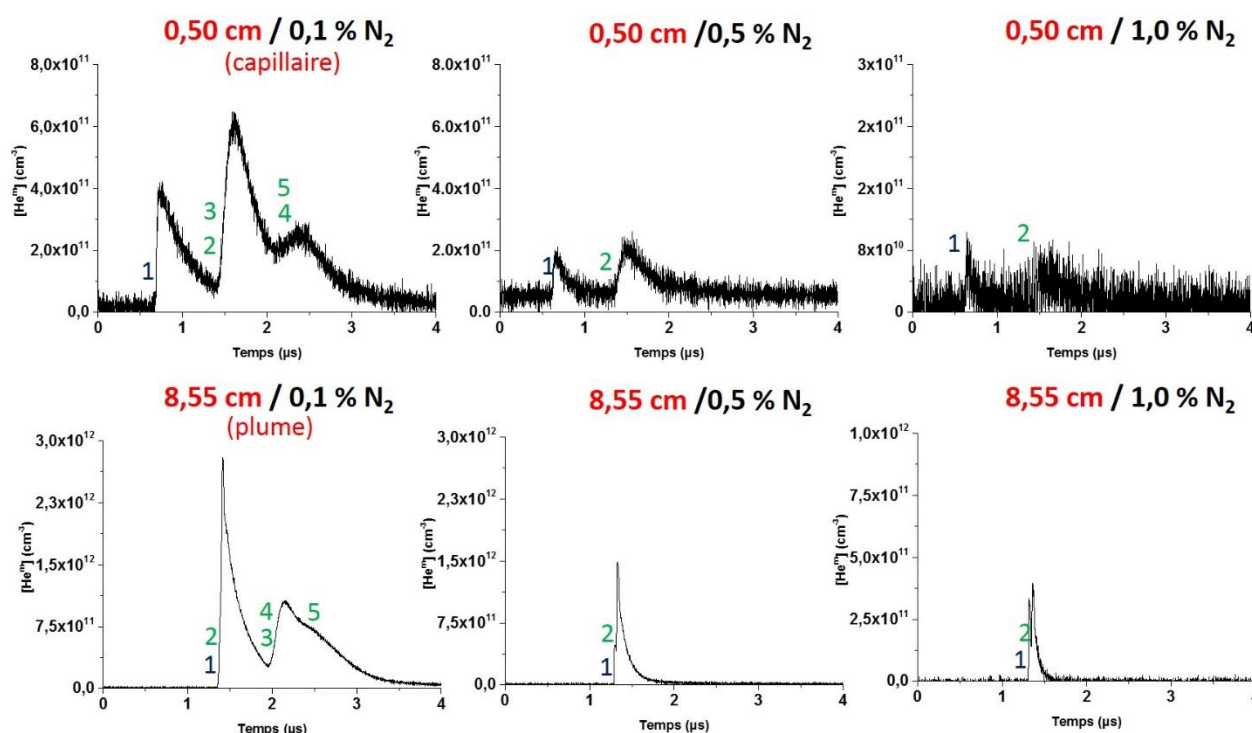
Pour illustrer l'évolution de la concentration des métastables de l'hélium à différentes concentrations d'azote en configuration cible 1 cm, nous avons sondé deux positions : dans le capillaire proche de la bague de masse (0,5 cm) et dans la plume plasma proche de la sortie du capillaire (0,5 mm après l'extrémité du capillaire, soit à 8,55 cm de la bague de masse). Nous traiterons principalement de la polarité positive, sachant que les phénomènes observés en polarité négative sont similaires.

Pour ces deux positions, la Figure V-44 illustre l'évolution de la concentration des métastables de l'hélium pour trois concentrations d'azote (0,1 %, 0,5 % et 1,0 %). La tension appliquée est de 18 kV.

À 0,1 % d'azote, trois peuplements sont visibles à la position 0,5 cm (0,68 μs , 1,44 μs et 2,25 μs). À la position 8,55 cm, nous pouvons voir plus tardivement encore un léger peuplement vers 2,5 μs . En suivant le même raisonnement qu'en section 3.7.4, il est possible de décrire l'évolution de l'ensemble des peuplements observés à ces deux positions. Le chiffre 1 en bleu marque le passage du front d'ionisation primaire. Le temps relevé est proche du temps d'initiation de la décharge à la position 0,5 cm (0,68 μs) et est proche du temps d'impact sur la cible à la position 8,55 cm (1,36 μs). Nous comptons ensuite les passages des fronts secondaire et ultérieurs pour chaque position, repérés par les chiffres en vert. Le laps de temps entre le passage du front primaire et le passage du front secondaire est très faible à 8,55 cm (~ 30 ns) et de 0,77 μs à 0,50 cm. De même, le laps de temps entre les passages consécutifs des fronts après impact sur une électrode (haute tension ou cible) est trop court pour en voir la signature sur les peuplements (2nd et 3^{ème} passage à 0,50 cm et 3^{ème} et 4^{ème} passage à 8,55 cm). Le peuplement le plus faible à 0,5 cm (2,25 μs) correspond au 4^{ème} et 5^{ème} passage. Le passage du front quinquénaire à la position 8,55 cm est visible par le léger peuplement à 2,5 μs .

À 0,5 % d'azote, seul deux peuplements sont visibles à 0,50 cm et 8,55 cm. La concentration des métastables est inférieure à 10^{12} cm^{-3} aux passages des fronts primaire et secondaire à 0,50 cm. Pour la même position, à 1,0 % d'azote, les concentrations mesurées sont à la limite de détection du dispositif et seul deux peuplements sont visibles dans la plume. Nous pouvons remarquer qu'en raison du temps de destruction très rapide des métastables à 0,5 % et 1,0 % d'azote, les intervalles

de temps à la position 8,55 cm entre les passages des fronts primaire et secondaire peuvent être mesurés précisément (30 ns à 0,5 % d'azote et 40 ns à 1,0 % d'azote).



1 : passage du front d'ionisation primaire à une position donnée

2,3, ... : passages des front secondaires et ultérieurs à une position donnée

Figure V-44 : évolution de la concentration des métastables de l'hélium dans le capillaire et dans la plume, pour plusieurs concentrations d'azote, en configuration cible 1 cm. Les différents peuplements sont numérotés par le passage d'un front à chacune des positions. (18 kV, 1 kHz, polarité positive)

La capacité à peupler les métastables de l'hélium des fronts secondaire et ultérieurs dépend donc fortement de la concentration d'azote. Nous savons par notre étude du chapitre IV que la concentration d'azote influe sur les propriétés de la colonne et notamment sa résistivité. Une colonne plus conductrice permettrait donc aux fronts de peupler les métastables sur une plus grande distance de propagation (environ 40 cm dans les conditions de la Figure V-44 à 0,1 % d'azote). À la même position sans azote (Figure V-25), on peut dénombrer trois passages de fronts, avec une concentration maximale de $7,5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ au troisième peuplement. Dans le cas 0,1 % d'azote, tous les fronts secondaires et ultérieurs peuplent à une valeur de concentration supérieure (maximum de $2,5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ au passage du front secondaire, six fois plus élevé que le second peuplement sans azote). En polarité négative, nous avons également dénombré cinq passages de fronts à la position 8,55 cm. Le front secondaire peuple également à une valeur de concentration élevée ($3,0 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$), deux fois supérieure à celle du même peuplement dans le cas sans azote (Figure V-22 avec $1,5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$).

À 0,5 % et 1,0 % d'azote, aucun front tertiaire n'est observé. Il est toutefois difficile à déterminer en l'état si la fonction de distribution en énergie des électrons se décale vers des valeurs de plus en plus basse au cours de la propagation (le front secondaire « refroidit progressivement ») ou s'il y a une

compétition directe entre les processus de peuplement et de destruction des métastables de l'hélium aux plus fortes concentrations d'azote.

Le Tableau V-1 résume les vitesses de propagation des fronts secondaire et ultérieurs (d'après les temps relevés en Figure V-44) :

% N ₂	0,1 %	0,5 %	1,0 %
Vitesse (cm/s) entre 2 (8,55 cm) et 2(3) (0,50 cm)	$1,3 \cdot 10^8 \leq v \leq 1,6 \cdot 10^8$	$1,0 \cdot 10^8 \leq v \leq 1,2 \cdot 10^8$	$4,0 \cdot 10^7 \leq v \leq 8,0 \cdot 10^7$
Vitesse (cm/s) entre 2(3) (0,50 cm) et 4(5) (0,50 cm)	$2,1 \cdot 10^7 \leq v \leq 2,4 \cdot 10^7$	X	X
Vitesse (cm/s) entre 4(5) (0,50 cm) et 5 (8,55 cm)	$2,3 \cdot 10^7 \leq v \leq 5,3 \cdot 10^7$	X	X

Tableau V-1 : évolution de la vitesse de propagation des fronts secondaire et ultérieurs pour plusieurs concentrations d'azote. Vitesses mesurées d'après les temps relevés sur les peuplements rapides en Figure V-44.

La vitesse de propagation des fronts secondaire et ultérieurs varie en fonction de la concentration d'azote. Pour le premier aller (front secondaire), elle est la plus élevée à 0,1 % d'azote, puis légèrement plus faible à 0,5 % et diminue significativement à 1,0 %. Toutes ces valeurs sont supérieures à la vitesse de propagation mesurée en polarité positive sans azote ($1,6 \cdot 10^7$ cm/s par le peuplement des métastables), avec une différence d'un ordre de grandeur comparée à celle du cas 0,1 % d'azote. Nous pouvons également remarquer qu'au cours de toute la propagation dans le cas 0,1 %, la vitesse n'est pas constante. La propagation est notablement plus rapide sur le premier aller. Dans le cas négatif à la même concentration, nous avons mesuré une vitesse de propagation du front secondaire encore plus élevée (entre $4,0 \cdot 10^8$ et $6,0 \cdot 10^8$ cm/s).

La Figure V-45 montre les évolutions des composantes longitudinale (Ex) et radiale (Er) du champ électrique pour les mêmes concentrations d'azote, à la position 4,5 cm. Des mesures ont également été effectuées aux positions 0,5 et 9,0 cm, mais la proximité de la bague de masse ou de la cible, suivant la position, ne facilite pas la lecture des composantes.

La concentration d'azote semble directement influencer sur les évolutions de Ex et Er après le passage du front d'ionisation primaire (1,1 μ s), avec des déformations nettement visibles sur les deux composantes. Hormis une baisse du maximum de Ex entre 0,1 et 0,5 % (7,0 kV/cm à 5,0 kV/cm), les deux composantes au passage du front d'ionisation primaire semblent peu influencées par la concentration d'azote.

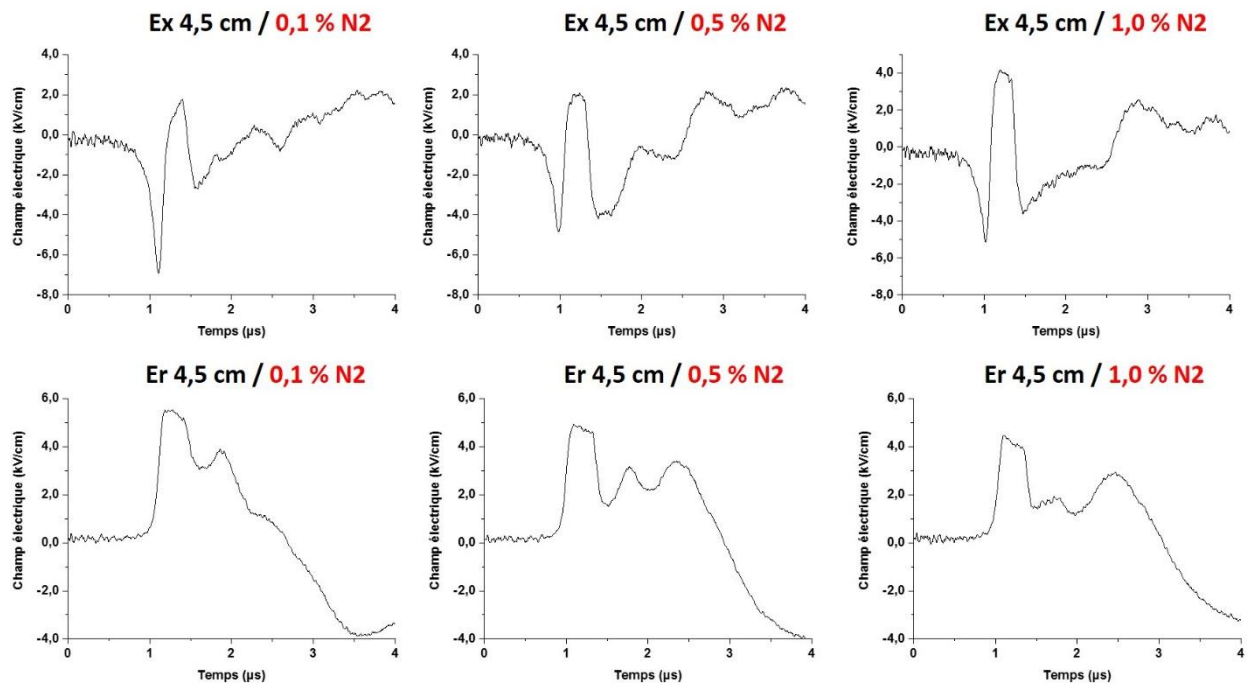


Figure V-45 : évolution des composantes longitudinales et radiales du champ électrique à la position 4,5 cm, pour plusieurs concentrations d'azote, en configuration cible à 1 cm (18 kV, 1 kHz, polarité positive).

Ces premières observations tendent à montrer que la vitesse de propagation des fronts secondaire et ultérieurs, ainsi que le champ électrique associé aux fronts, sont sensibles à la nature de la colonne. Nous pouvons donc supposer que la résistivité du milieu de propagation soit directement influente. Des mesures plus complètes seraient nécessaires pour corréler les évolutions des peuplements des métastables et les évolutions du champ observées le long du capillaire et de la plume, pour différentes concentrations d'azote mélangées à l'hélium.

3.8.2 Perspectives

Nous avons, dans la partie précédente, étudié le comportement des fronts par le peuplement des métastables de l'hélium. Dans le domaine visible, le contact du jet avec une cible pour des mélanges hélium-azote entraîne une émission de lumière très particulière du plasma dans le capillaire.

La Figure V-46 montre une photographie standard du jet en configuration cible 1,5 cm, lorsque 0,5 % d'azote est mélangé à l'hélium (temps de pose de 1/8 s, contraste d'origine). La tension appliquée est de 14 kV en polarité positive. La dynamique de propagation en imagerie ICCD (non filtrée) est également illustrée (20 ns d'intégration).

La moitié supérieure du capillaire est de couleur rose, la moitié inférieure de couleur violette. La lumière rose est également visible à la base de la plume, proche de la surface de la cible. L'imagerie ICCD rapide montre que de la lumière intense commence à apparaître dans le haut du capillaire, 100 ns après l'impact du front sur la cible, puis semble s'étendre progressivement jusqu'à la moitié

du capillaire, sur une échelle de temps μs . Contrairement à la lumière du front d'ionisation primaire, cette émission dans le capillaire perdure sur un temps μs . La répartition de cette émission μs coïncide avec la zone rose du capillaire observée sur la photographie. Cette dynamique tranche donc radicalement avec celle des mêmes conditions sans azote, présenté en Figure V-16, où la zone d'émission de lumière μs s'étendait uniquement dans la plume.

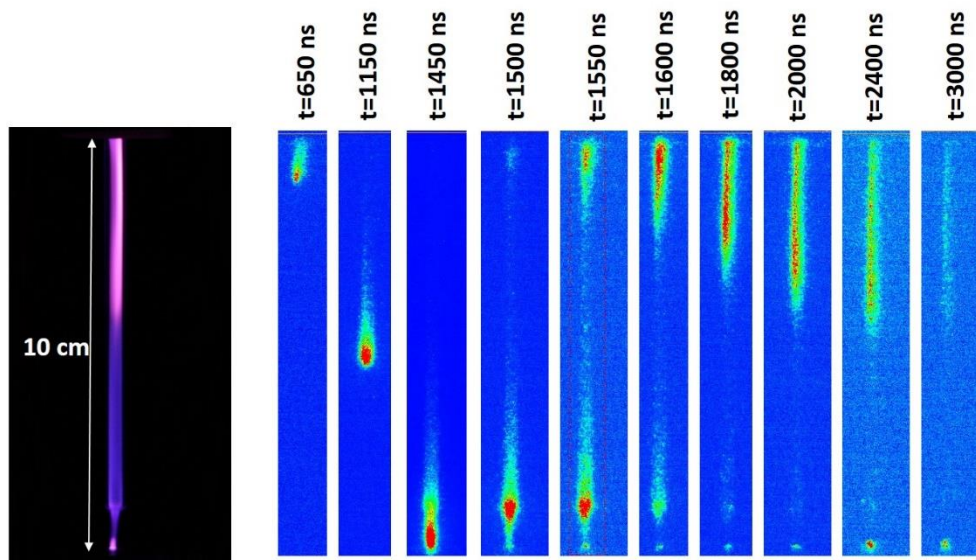


Figure V-46 : photographie standard du jet et dynamique de propagation du plasma (ICCD 20 ns) en configuration cible 1,5 cm avec 0,5 % d'azote (14 kV, 1 kHz, polarité positive).

La Figure V-47 montre un spectre d'émission du plasma (intégré) dans cette zone rose, à la position 3 cm après la bague de masse.

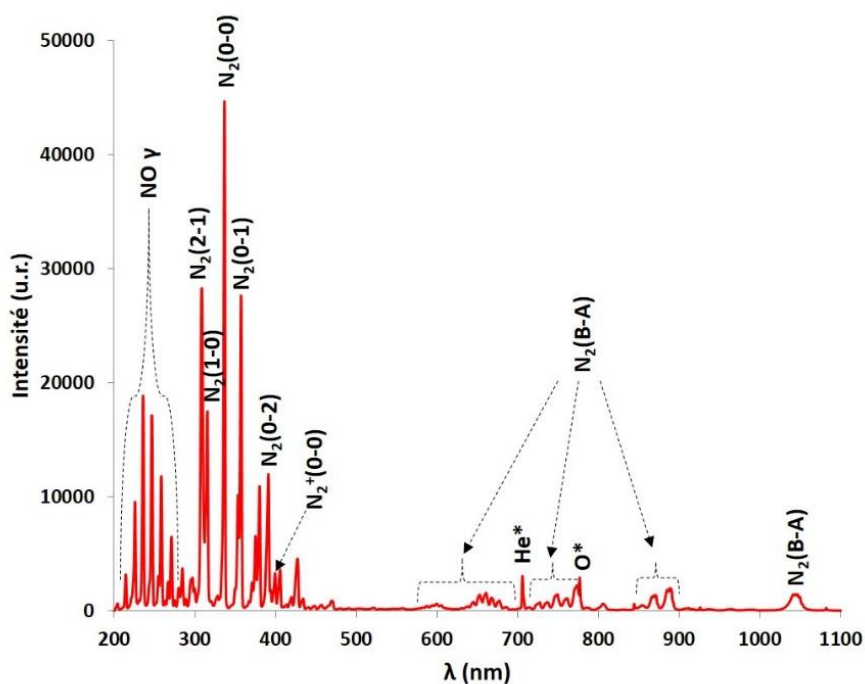


Figure V-47 : spectre d'émission du plasma dans le capillaire (à 3 cm de la bague de masse), conditions de la Figure V-46.

Le spectre présente des émissions lumineuses très intenses des bandes du second positif de l'azote et du NO γ (seconde espèce à l'émission la plus intense du spectre). Les émissions du premier positif de l'azote $N_2(B-A)$ sont également visibles, jusqu'alors uniquement observées dans la plume au contact de la cible, en hélium sans mélange. Nous avons par ailleurs observé que la répartition des zones roses du capillaire et de la plume est sensible à la concentration d'azote mélangée dans l'hélium. A 0,1 % d'azote, la totalité du capillaire est rose et dans la plume la zone rose s'étend sur 0,5 cm à partir de la surface de la cible (plume similaire au cas sans azote mélangée). En revanche, à 1,0 % d'azote, aucune lumière rose n'est visible dans la plume et seul la partie supérieure du capillaire est rose. Nous n'avons jamais observée ces types émissions roses en jet libre, ou lorsque la cible est un diélectrique.

Dans la continuité de nos observations et de nos conclusions sur les mécanismes de peuplement des métastables de l'hélium en présence de la cible, nous pouvons être tentés d'étendre le raisonnement à des espèces de plus basses énergies. Nous avons en effet montré que les fronts secondaire et ultérieurs s'atténuent au cours de la propagation, indépendamment de la présence de l'azote. Dès lors, nous pouvons supposer que la population électronique au voisinage des fronts se refroidie progressivement. Avec une majorité d'électrons suffisamment froids, il serait possible que les espèces $N_2(C,B A)$ soient également peuplées par collision électronique direct au passage des fronts dans la colonne plasma.

Nous devons également signaler que nous n'avons jamais mis en évidence un tel déséquilibre sur les émissions de NO γ dans la plume d'un jet d'hélium (sans mélange) au contact d'une cible, même aux plus fortes conditions de tension appliquée. Dans ces conditions de mélanges hélium azote en contact de la cible, il serait a priori possible que le métastable $N_2(A)$ soit notamment peuplé très efficacement par collision électronique. Dans la mesure où les transferts d'énergie de $N_2(A)$ vers NO (X) sont très efficaces pour peupler NO(A) (proximité des niveaux d'énergies), nous pourrions voir dans le déséquilibre de l'émission de NO γ un éventuel signe d'une forte production de $N_2(A)$.

Des mesures précises en imagerie ICCD filtrée et en spectroscopie d'émission résolue en temps seraient toutefois nécessaire pour confirmer ou infirmer que, dans ces conditions, les émissions $N_2(C-B)$ et $N_2(B-A)$ dans le capillaire et dans la plume suivent une dynamique de propagation précise. Des mesures en spectroscopie d'absorption sur les métastables d'azote serait également intéressantes pour mettre ou non en évidence le rôle de fronts ultérieurs au front d'ionisation primaire dans leurs peuplements, dans la continuité des études que nous avons effectuées sur ceux de l'hélium.

3.9 Résumé

L'impact du front d'ionisation sur la surface de la cible est suivi quasi instantanément de l'initiation (20 ns) et de la contre-propagation rapide ($\sim 2 \cdot 10^7$ cm/s) d'un front secondaire dans la colonne plasma, de la surface de la cible jusqu'à l'électrode interne. Ce front secondaire peuple également de manière rapide les métastables de l'hélium et est caractérisé par sa propre composante

longitudinale de champ électrique, ainsi que par l'annulation de la composante radiale établie suite à la propagation du front primaire. Contrairement au front d'ionisation primaire, le front d'ionisation secondaire s'amortit progressivement au cours de sa propagation. Par analogie avec un phénomène connu dans la propagation des signaux électriques dans une ligne, nous avons attribué l'origine de ce front secondaire à la conséquence de la désadaptation entre l'impédance de la colonne plasma (assimilable à une ligne de transmission) et l'impédance de la cible. De fait, la tension transmise par la colonne plasma subirait de multiples réflexions entre la cible et l'électrode interne. L'initiation du front secondaire correspond donc à la première réflexion sur la cible. Nous avons interprété l'origine de son amortissement, plus élevée en polarité négative qu'en polarité positive, par les différences de résistivité de la colonne (chute de potentiel a priori plus importante en polarité négative).

Chaque réflexion de la tension sur les électrodes (cible et électrode interne) initie donc un nouveau front d'ionisation, pouvant potentiellement peupler les métastables de l'hélium lors de son passage, s'il n'est pas trop amorti. Nous avons réussi à mettre en évidence dans le cas de la polarité positive la signature de quatre passages de fronts sur le peuplement des métastables dans le capillaire (front d'ionisation primaire puis fronts secondaire, tertiaire et quaternaire). En comparant avec les délais relevés dans la plume, cette hypothèse d'une dynamique d'aller et retour de fronts secondaires et ultérieurs est compatible avec tous les temps de peuplement relevés aux différentes positions de la colonne (capillaire et plume), ainsi qu'avec la baisse régulière de la concentration maximale des métastables atteinte (et de la raideur des pentes), en fonction de la distance de propagation. Ces évolutions s'accompagnent de plus d'allures caractéristiques sur les composantes du champ électrique, avec au moins trois augmentations bien distinctes sur la composante longitudinale, accompagnée de multiples déformations sur la composante radiale.

Par des mélanges hélium-azote à différentes concentrations, nous avons mis de plus en évidence que les propriétés de la colonne plasma (résistivité) étaient a priori très influentes sur la dynamique de propagation des fronts secondaire et ultérieurs. Les signatures des passages de 5 fronts dans la plume plasma et dans le capillaire ont été observées à 0,1 % d'azote en polarités positive et négative (front d'ionisation primaire puis fronts secondaire jusqu'à quinquénaire). Dans ces conditions (polarité positive présenté), la vitesse de propagation du front secondaire est d'un ordre de grandeur plus élevée que celle du cas sans azote (de l'ordre de 10^8 cm/s) et la concentration maximale atteinte au second peuplement est fortement augmentée (facteur 6). Pour de plus fortes concentrations d'azote (0,5 % et 1,0 %), le front secondaire ralentit (quelques 10^7 cm/s à 1,0 %) et aucun front tertiaire n'est visible. Une colonne plus conductrice (0,1% d'azote) permettrait donc d'avoir a priori des vitesses de propagation plus élevées des fronts secondaire et ultérieurs et un peuplement rapide des métastables de l'hélium sur de grandes distances de propagations (le front quinquénaire équivaut à 40 cm de propagation dans la colonne plasma).

L'initiation des fronts secondaire et ultérieurs peut donc être vue comme une réponse électrique du système. Cette dynamique entretient la colonne plasma, en ce sens qu'elle lui permet de maintenir une densité électronique et un degré d'ionisation élevé. Après un aller-retour dans la colonne plasma (trajet des fronts secondaire et tertiaire), celle-ci devient très conductrice et le courant de conduction s'écoulant à travers la cible commence à fortement augmenter (150 mA au

maximum dans nos conditions expérimentales). Le passage du front quaternaire dans la plume peut encore initier un peuplement rapide des métastables (délais Δt_3 , polarité positive) mais aux temps ultérieurs, l'essentiel de la production est alors maintenu et piloté par la tension μs appliquée à l'électrode interne. La décharge est alors proche d'une décharge de type glow. Norberg et al [46] ont montré qu'en raison du couplage électrique entre l'électrode haute tension et la cible par la colonne plasma, la tension appliquée influe directement sur les densités de toutes les espèces produites. L'essentiel des émissions de lumières μs de toutes les espèces dans la plume se produisent également durant cette phase.

4. Retour sur le cas du jet libre

Dans le cas du jet libre, aucune cible n'est présente à l'extrémité du capillaire, l'électrode haute tension n'est donc reliée électriquement à aucune autre électrode. Les émissions intenses des espèces excitées observées sur des échelles de temps μs , associées au fort courant de conduction ne peuvent donc pas se produire dans le cas du jet libre.

Néanmoins, l'hypothèse de la ligne désadaptée est également applicable au cas du jet libre. En effet, nous avons interprété l'origine des fronts secondaires et ultérieurs par la désadaptation d'impédance entre les électrodes (cible à la masse et électrode haute tension) et la colonne plasma. Dans le cas du jet libre, seule une électrode est présente (électrode haute tension) et la colonne plasma est toujours reliée à cette électrode. La définition de la ligne désadaptée est donc toujours applicable. La nuance est que dans ce cas, la ligne peut être considérée comme « ouverte », puisqu'aucune électrode n'est présente à son autre extrémité. Dans le cas d'une ligne désadaptée ouverte, les allers et retours de la tension à chaque extrémité de la ligne se produisent également.

La Figure V-48 montre l'évolution temporelle des composantes longitudinale et radiale du champ électrique en polarité positive, le long du capillaire (5,5 cm) et de la plume (9,4 cm).

Le passage du front d'ionisation primaire est visible à 1,5 μs (5,5 cm) et 1,8 μs (9,4 cm). Sur la composante E_x , de faibles augmentations sont également visibles à 1,9 μs (5,5 cm) et 2,3 μs (9,4 cm). Aux mêmes instants, les composantes radiales sont déformées. Ces légères augmentations sur E_x se produisent à 400 ns d'intervalle entre les deux positions. Cette évolution du champ pourrait donc être également interprétée comme une propagation, avec une vitesse de l'ordre de 10^7 cm/s, a priori dans l'ordre de grandeur de la vitesse de propagation du front secondaire, mesurée en présence de la cible. En revanche, la conductivité de la colonne est bien moins élevée en jet libre et on peut supposer que le front soit déjà très atténué à la première réflexion, contrairement au cas de l'impact sur la cible. Sur l'évolution de la concentration des métastables de l'hélium, nous n'avons jamais détecté la signature du passage de ce front sur les peuplements. Si tant est que le peuplement des métastables de l'hélium soit tout de même accessible au passage du front très amorti (faible amplitude du champ électrique), sa signature ne serait a priori pas visible sur l'évolution des concentrations. Le peuplement serait bien trop faible pour entraîner une augmentation de concentration supérieure à ce qu'il subsiste du passage du front d'ionisation primaire (temps de décroissance 3,9 μs).

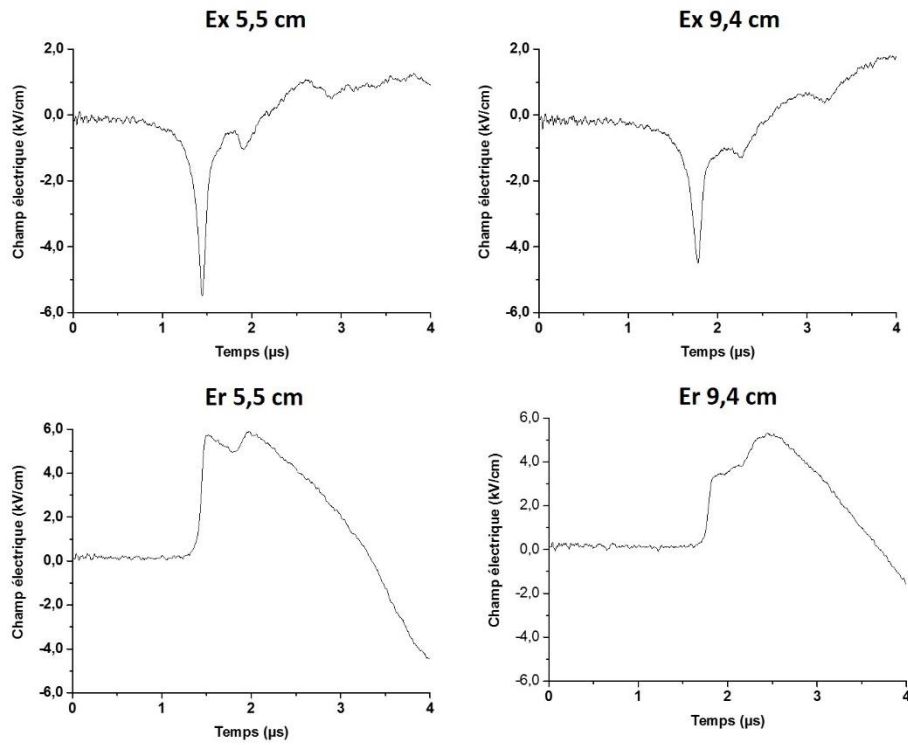


Figure V-48 : évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique le long du capillaire (5,5 cm) et de la plume (9,4 cm) en jet libre (18 kV, 1 KHz, polarité positive).

En revanche, des espèces aux plus basses énergies seraient potentiellement plus accessibles à ce front. Si l'on considère à nouveau les évolutions temporelles de N_2^{+*} et N_2^* dans la plume du jet libre en polarité positive (Figure V-13), nous pouvons voir une faible émission de lumière après le passage du front d'ionisation. Ces émissions sont illustrées en Figure V-49.

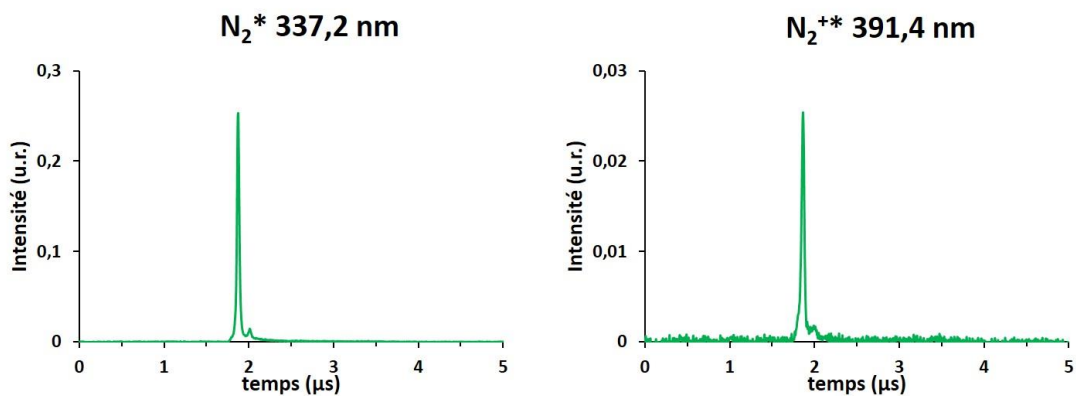


Figure V-49 : évolution des profils d'émissions lumineuses de N_2^* et N_2^{+*} dans la plume en jet libre (14 kV, 1 kHz, polarité positive).

Cette hypothèse nous permettrait donc de donner une interprétation à ces faibles peuplements en jet libre (également observés dans le capillaire). Nous avons également observé que des oscillations périodiques se produisent sur les composantes longitudinale et radiale du champ électrique en jet libre, de plus faibles amplitudes qu'en configuration cible à 1 cm. Les contributions des fronts secondaire et ultérieurs seraient donc faibles, bien moins importantes que lors du contact avec la cible, mais le mécanisme se produirait également en jet libre.

5. Conclusion

Une grande majorité d'études, souvent motivées par des applications biomédicales, ont été dédiées à la caractérisation physique des jets libres et à la quantification d'espèces réactives produites. Pour des traitements biomédicaux, notamment *in vivo*, le jet plasma n'est pas libre, puisqu'il est en contact avec la cible conductrice à traiter. Les premières études sur ce contact ont clairement montré son influence considérable sur la production d'espèces réactives dans la plume plasma, impliquant même des phénomènes assez énergétiques pour également influencer sur la production des métastables de l'hélium [39]. L'interaction d'un jet de plasma froid à pression atmosphérique avec une cible concerne donc potentiellement toutes caractérisations physiques nécessitant un contact du jet sur un objet conducteur (spectrométrie de masse, mesure de courant). Nombres d'applications biomédicales et de traitements de surfaces (solides ou liquides) sont également concernées, ce qui en fait donc une thématique d'étude très large.

Pour notre Plasma Gun μ s en hélium, nous avons étudié l'influence du contact avec une cible métallique (laiton), reliée à la masse, sur la globalité du jet. La concentration des métastables de l'hélium dans le capillaire et dans la plume est très sensible à la présence de la cible et à sa distance par rapport à l'extrémité du capillaire. Lorsque la cible est positionnée à 1 cm de l'extrémité du capillaire, la concentration maximale des métastables de l'hélium augmente quasi linéairement entre le début et la fin du capillaire (facteur 3 avec un maximum de l'ordre de $8 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ en fin de capillaire en polarité négative). Pour une cible située à 2 cm de l'extrémité du capillaire, cette augmentation quasi linéaire se produit toujours dans tout le capillaire en polarité positive et à partir de la moitié du capillaire en polarité négative. Les concentrations maximales en fin de capillaire sont plus faibles en comparaison de celle avec la cible située à 1 cm, de l'ordre de $5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$. Dans le cas du jet libre, les concentrations maximales évoluent très peu le long du capillaire et sont nettement plus faibles ($1 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ en polarité positive et $2 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ en polarité négative) qu'en présence de la cible. Dans toute la plume, l'augmentation du maximum de concentration est également très dépendant de la présence de la cible, avec notamment un ordre de grandeur en polarité négative entre le cas du jet libre ($\sim 10^{11} \text{ cm}^{-3}$) et celui de la cible à 1 cm ($\sim 10^{12} \text{ cm}^{-3}$).

Pour une cible située à 1 cm de l'extrémité du capillaire, nous avons corrélié les évolutions temporelles des peuplements des métastables de l'hélium avec celles des composantes longitudinales et radiales du champ électrique. Nous avons effectué les mesures sur toute la longueur entre la surface de la cible (dans la plume) et le début du capillaire (proche de l'électrode interne), pour les polarités positive et négative. Nous avons mis en évidence que le contact du front d'ionisation sur la cible était suivi, quasiment instantanément (moins de 20 ns), de l'initiation et de la contre-propagation rapide d'un front secondaire, de la surface de la cible jusqu'à l'électrode interne. Sa vitesse de propagation est plus élevée que celle du front d'ionisation primaire et de valeur plus élevée en polarité négative ($2,6 \cdot 10^7 \text{ cm/s}$) comparé à celle en polarité positive ($1,4 \cdot 10^7 \text{ cm/s}$). Cette contre propagation s'effectue dans la colonne plasma conductrice, laissée dans le sillage du front d'ionisation primaire, reliant électriquement les deux électrodes. Ce front secondaire est responsable des fortes augmentations des concentrations des métastables observées dans la plume et dans le capillaire. Il s'atténue progressivement au cours de sa contre

propagation et est caractérisé par sa propre composante longitudinale de champ électrique et par l'annulation de la composante radiale établie suite à la propagation du front primaire. Nous interprétons ce phénomène par la conséquence directe de la désadaptation entre l'impédance caractéristique de la colonne plasma et celles (« nulles ») des deux électrodes de part et d'autre. La tension transmise par la colonne plasma subirait donc des multiples allers et retours entre les deux électrodes, en s'amortissant progressivement. Chaque réflexion du signal sur une électrode initierait un nouveau front. La différence observée entre les polarités positive et négative, quant à la diminution du maximum de la concentration au second peuplement rapide des métastables le long du capillaire, peut donc s'interpréter par la chute de potentiel a priori plus élevée dans la colonne en polarité négative. En polarité positive, nous avons mis en évidence des peuplements par des fronts ultérieurs au front secondaire (jusqu'à quaternaire). Néanmoins, suite à la propagation des fronts secondaire et tertiaire, la colonne plasma, très conductrice, permet un fort afflux de courant de conduction à travers la cible (150 mA au maximum dans nos conditions expérimentales). À des temps ultérieurs au passage du front tertiaire, l'essentiel de la production des métastables est alors maintenue et pilotée par l'évolution microseconde de l'impulsion de tension. La décharge est alors proche d'une décharge de type glow. La production des espèces et l'excitation sont essentiellement gouvernées par la valeur de la tension appliquée [46].

Par des mélanges hélium-azote, nous avons montré que la dynamique de propagation des fronts secondaire et ultérieurs est a priori sensible aux propriétés de la colonne plasma (résistivité). À notamment 0,1 % d'azote (colonne plus conductrice qu'en hélium seul), la vitesse de propagation du front secondaire est d'un ordre de grandeur plus élevée (10^8 cm/s) que sans mélange et la concentration atteinte dans la plume au second peuplement est plus élevée également ($3 \cdot 10^{12}$ cm⁻³). Des peuplements des métastables de l'hélium jusqu'au front quinquinaire sont également visibles, ce qui représente une distance de propagation totale d'environ 40 cm dans la colonne plasma.

Dans la décharge, le front d'ionisation primaire est initié par une avalanche électronique initiale et la charge d'espace se propage. Il laisse dans son sillage une colonne plasma conductrice. Les initiations des fronts secondaires et ultérieurs résultent d'une réponse électrique, par le mécanisme de désadaptation d'impédance. Les conditions du déclenchement du mécanisme peuvent donc se résumer à la transmission d'un signal électrique entre deux électrodes en métal, par une colonne plasma conductrice. Ces conditions ne sont pas restrictives et sont donc susceptibles d'englober une très grande majorité de jets de plasma froid à pression atmosphérique en contact avec des cibles conductrices (solides, liquides, ou même plasma également pour l'interaction entre deux jets). La signature la plus visuelle, qui a par ailleurs été reportée pour plusieurs jets plasma, en serait sans doute la lueur rose visible dans la plume au contact de la cible, ces aspects de peuplements par collision électronique directe sur des espèces à plus basses énergies devant être approfondis. L'appréhension et la compréhension de ce mécanisme d'interaction est d'un intérêt fondamentale pour les applications, puisque le contrôle de la dynamique de propagation de ces fronts d'ionisation, notamment leurs atténuations dans le capillaire, a des répercussions immédiates sur les espèces excitées ou produites dans la plume. La forme de l'impulsion de tension, la longueur du capillaire, les propriétés électriques de la colonne, la distance à la cible et la nature de celle-ci sont autant de paramètres à prendre en compte pour de futures études, pour parfaire notre compréhension de

ces phénomènes et optimiser au mieux le contrôle de la production d'espèces réactives pour des applications biomédicales.

6. Bibliographie du chapitre V

- [1] G. Collet, E. Robert, a Lenoir, M. Vandamme, T. Darny, S. Dozias, C. Kieda, and J. M. Pouvesle, "Plasma jet-induced tissue oxygenation: potentialities for new therapeutic strategies," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 23, no. 1, p. 012005, 2014.
- [2] D. B. Graves, "The emerging role of reactive oxygen and nitrogen species in redox biology and some implications for plasma applications to medicine and biology," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 45, no. 26, p. 263001, 2012.
- [3] E. Robert, M. Vandamme, L. Brullé, S. Lerondel, A. Le Pape, and V. Sarron, "Perspectives of endoscopic plasma applications," *Clin. Plasma Med.*, vol. 1, no. 2, pp. 8–16, 2013.
- [4] M. Keidar, "Plasma for cancer treatment," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 24, no. 3, p. 033001, 2015.
- [5] K. Niemi, V. S. Der Gathen, and H. F. Döbele, "Absolute atomic oxygen density measurements by two-photon absorption laser-induced fluorescence spectroscopy in an RF-excited atmospheric pressure plasma jet," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 14, no. 2, pp. 375–386, 2005.
- [6] N. Knake, K. Niemi, S. Reuter, V. Schulz-Von Der Gathen, and J. Winter, "Absolute atomic oxygen density profiles in the discharge core of a microscale atmospheric pressure plasma jet," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 93, no. 13, pp. 2008–2010, 2008.
- [7] N. Knake, S. Reuter, K. Niemi, V. Schulz-von der Gathen, and J. Winter, "Absolute atomic oxygen density distributions in the effluent of a microscale atmospheric pressure plasma jet," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 41, no. 19, p. 194006, 2008.
- [8] S. Reuter, K. Niemi, V. Schulz-von der Gathen, and H. F. Döbele, "Generation of atomic oxygen in the effluent of an atmospheric pressure plasma jet," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 18, no. 1, p. 015006, 2008.
- [9] J. Waskoenig, K. Niemi, N. Knake, L. M. Graham, S. Reuter, V. Schulz-von der Gathen, and T. Gans, "Atomic oxygen formation in a radio-frequency driven micro-atmospheric pressure plasma jet," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 19, p. 045018, 2010.
- [10] J. S. Sousa, K. Niemi, L. J. Cox, Q. T. Algwari, T. Gans, and D. O'Connell, "Cold atmospheric pressure plasma jets as sources of singlet delta oxygen for biomedical applications," *J. Appl. Phys.*, vol. 109, no. 2011, pp. 1–8, 2011.
- [11] K. Takeda, M. Kato, F. Jia, K. Ishikawa, H. Kano, M. Sekine, and M. Hori, "Effect of gas flow on transport of O (3P_j) atoms produced in ac power excited non-equilibrium atmospheric-pressure O₂/Ar plasma jet," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 46, no. 46, p. 464006, 2013.
- [12] a van Gessel, S. van Grootel, and P. Bruggeman, "Atomic oxygen TALIF measurements in an atmospheric-pressure microwave plasma jet with in situ xenon calibration," *Plasma Sources*

- [13] C. Jiang and C. Carter, "Absolute atomic oxygen density measurements for nanosecond-pulsed atmospheric-pressure plasma jets using two-photon absorption laser-induced fluorescence spectroscopy," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 23, no. 6, p. 065006, 2014.
- [14] C. Wang and N. Srivastava, "OH number densities and plasma jet behavior in atmospheric microwave plasma jets operating with different plasma gases (Ar, Ar/N₂, and Ar/O₂)," *Eur. Phys. J. D*, vol. 60, no. 3, pp. 465–477, 2010.
- [15] N. Srivastava and C. Wang, "Effects of water addition on OH radical generation and plasma properties in an atmospheric argon microwave plasma jet," *J. Appl. Phys.*, vol. 110, no. 5, p. 1, 2011.
- [16] Q. Xiong, A. Y. Nikiforov, L. Li, P. Vanraes, N. Britun, R. Snyders, X. P. Lu, and C. Leys, "Absolute OH density determination by laser induced fluorescence spectroscopy in an atmospheric pressure RF plasma jet," *Eur. Phys. J. D*, vol. 66, no. 11, p. 281, 2012.
- [17] S. Yonemori, Y. Nakagawa, R. Ono, and T. Oda, "Measurement of OH density and air–helium mixture ratio in an atmospheric-pressure helium plasma jet," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 45, no. 22, p. 225202, 2012.
- [18] X. Pei, Y. Lu, S. Wu, Q. Xiong, and X. Lu, "A study on the temporally and spatially resolved OH radical distribution of a room-temperature atmospheric-pressure plasma jet by laser-induced fluorescence imaging," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 22, no. 2, p. 025023, 2013.
- [19] J. Voráč, P. Dvořák, V. Procházka, J. Ehlbeck, and S. Reuter, "Measurement of hydroxyl radical (OH) concentration in an argon RF plasma jet by laser-induced fluorescence," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 22, no. 2, p. 025016, 2013.
- [20] T. Verreycken, R. Mensink, R. Van Der Horst, N. Sadeghi, and P. J. Bruggeman, "Absolute OH density measurements in the effluent of a cold atmospheric-pressure Ar–H₂O RF plasma jet in air," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 22, p. 1, 2013.
- [21] A. Nikiforov, L. Li, N. Britun, R. Snyders, P. Vanraes, and C. Leys, "Influence of air diffusion on the OH radicals and atomic O distribution in an atmospheric Ar (bio)plasma jet," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 23, no. 1, p. 015015, 2014.
- [22] a F. H. van Gessel, K. M. J. Alards, and P. J. Bruggeman, "NO production in an RF plasma jet at atmospheric pressure," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 46, no. 26, p. 265202, 2013.
- [23] a F. H. van Gessel, B. Hrycak, M. Jasiński, J. Mizeraczyk, J. J. a M. van der Mullen, and P. J. Bruggeman, "Temperature and NO density measurements by LIF and OES on an atmospheric pressure plasma jet," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 46, no. 9, p. 095201, 2013.
- [24] a F. H. van Gessel and P. J. Bruggeman, "Thermalization of rotational states of NO A(2)Σ+(v = 0) in an atmospheric pressure plasma," *J. Chem. Phys.*, vol. 138, no. 20, p. 204306, 2013.
- [25] S. Reuter, J. Winter, S. Iseni, S. Peters, A. Schmidt-Bleker, M. Dünnebier, J. Schäfer, R. Foest, and K.-D. Weltmann, "Detection of ozone in a MHz argon plasma bullet jet," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 21, no. 3, p. 034015, 2012.
- [26] B. L. Sands and B. N. Ganguly, "Ozone generation in a kHz-pulsed He-O₂ capillary dielectric barrier discharge operated in ambient air," *J. Appl. Phys.*, vol. 114, no. 24, p. 243301, 2013.

- [27] S. Zhang, W. van Gaens, B. van Gessel, S. Hofmann, E. van Veldhuizen, A. Bogaerts, and P. Bruggeman, "Spatially resolved ozone densities and gas temperatures in a time modulated RF driven atmospheric pressure plasma jet: an analysis of the production and destruction mechanisms," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 46, no. 20, p. 205202, 2013.
- [28] J. Winter, M. Dünnebier, A. Schmidt-Bleker, A. Meshchanov, S. Reuter, and K.-D. Weltmann, "Aspects of UV-absorption spectroscopy on ozone in effluents of plasma jets operated in air," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 45, p. 385201, 2012.
- [29] B. Niermann, M. Böke, N. Sadeghi, and J. Winter, "Space resolved density measurements of argon and helium metastable atoms in radio-frequency generated He-Ar micro-plasmas," *Eur. Phys. J. D*, vol. 60, no. 3, pp. 489–495, 2010.
- [30] R. Bussiahn, E. Kindel, H. Lange, and K. Weltmann, "Spatially and temporally resolved measurements of argon metastable atoms in the effluent of a cold atmospheric pressure plasma jet," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 43, no. 16, p. 165201, 2010.
- [31] B. Niermann, R. Reuter, T. Kuschel, J. Benedikt, M. Böke, and J. Winter, "Argon metastable dynamics in a filamentary jet micro-discharge at atmospheric pressure," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 21, no. 3, p. 034002, 2012.
- [32] K. Niemi, J. Waskoenig, N. Sadeghi, T. Gans, and D. O'Connell, "The role of helium metastable states in radio-frequency driven helium-oxygen atmospheric pressure plasma jets : measurement and numerical simulation," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 20, p. 055005, 2011.
- [33] C. Douat, "Étude d'un micro-jet de plasma à pression atmosphérique," Université Paris Sud, 2014.
- [34] J. Winter, J. S. Sousa, N. Sadeghi, A. Schmidt-Bleker, S. Reuter, and V. Puech, "The spatio-temporal distribution of He metastable atoms in a MHz-driven helium plasma jet is influenced by the oxygen/nitrogen ratio of the surrounding atmosphere," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 24, p. 025015, 2015.
- [35] A. F. H. van Gessel, E. A. D. Carbone, P. J. Bruggeman, and J. J. A. M. van der Mullen, "Laser scattering on an atmospheric pressure plasma jet: disentangling Rayleigh, Raman and Thomson scattering," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 21, no. 1, p. 15003, 2012.
- [36] S. H. and J. S. S. and V. P. and G. M. W. K. and N. Sadeghi, "Electron properties in an atmospheric helium plasma jet determined by Thomson scattering," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 47, no. 43, p. 432001, 2014.
- [37] S. Hübner, S. Hofmann, E. M. van Veldhuizen, and P. J. Bruggeman, "Electron densities and energies of a guided argon streamer in argon and air environments," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 22, no. 6, p. 065011, 2013.
- [38] S. S. Ivković, G. B. Sretenović, B. M. Obradović, N. Cvetanović, and M. M. Kuraica, "On the use of the intensity ratio of He lines for electric field measurements in atmospheric pressure dielectric barrier discharge," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 47, no. 5, p. 055204, 2014.
- [39] K. Urabe, T. Morita, K. Tachibana, and B. N. Ganguly, "Investigation of discharge mechanisms in helium plasma jet at atmospheric pressure by laser spectroscopic measurements," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 43, p. 095201, 2010.

- [40] E. Marode, "The mechanism of spark breakdown in air at atmospheric pressure between a positive point and a plane. I. Experimental: Nature of the streamer track," *J. Appl. Phys.*, vol. 46, no. 1975, pp. 2005–2015, 1975.
- [41] K. V Kozlov, H.-E. Wagner, R. Brandenburg, and P. Michel, "Spatio-temporally resolved spectroscopic diagnostics of the barrier discharge in air at atmospheric pressure," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 34, no. 21, pp. 3164–3176, 2001.
- [42] Q. Xiong, A. Y. Nikiforov, M. Á. González, C. Leys, and X. P. Lu, "Characterization of an atmospheric helium plasma jet by relative and absolute optical emission spectroscopy," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 22, no. 1, p. 015011, 2013.
- [43] S. Yonemori and R. Ono, "Flux of OH and O radicals onto a surface by an atmospheric-pressure helium plasma jet measured by laser-induced fluorescence," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 47, no. 12, p. 125401, 2014.
- [44] D. Riès, G. Dilecce, E. Robert, P. F. Ambrico, S. Dozias, and J.-M. Pouvesle, "LIF and fast imaging plasma jet characterization relevant for NTP biomedical applications," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 47, no. 27, p. 275401, 2014.
- [45] O. Guaitella and a Sobota, "The impingement of a kHz helium atmospheric pressure plasma jet on a dielectric surface," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 48, no. 25, p. 255202, 2015.
- [46] S. A. Norberg, E. Johnsen, and M. J. Kushner, "Helium atmospheric pressure plasma jets touching dielectric and metal surfaces," *J. Appl. Phys.*, vol. 118, no. 1, p. 013301, 2015.
- [47] Y. Sakiyama and D. B. Graves, "Finite element analysis of an atmospheric pressure RF-excited plasma needle," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 39, pp. 3451–3456, 2006.
- [48] T. Gerling, A. V Nastuta, R. Bussiahn, E. Kindel, and K.-D. K.-D. Weltmann, "Back and forth directed plasma bullets in a helium atmospheric pressure needle-to-plane discharge with oxygen admixtures," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 21, no. 3, p. 034012, 2012.
- [49] E. Stoffels, a J. Flikweert, W. W. Stoffels, and G. M. W. Kroesen, "Plasma needle: a non-destructive atmospheric plasma source for fine surface treatment of (bio)materials," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 11, pp. 383–388, 2002.
- [50] Y. Sakiyama, N. Knake, D. Schröder, J. Winter, V. Schulz-von der Gathen, and D. B. Graves, "Gas flow dependence of ground state atomic oxygen in plasma needle discharge at atmospheric pressure," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 97, no. 15, p. 3pp, 2010.
- [51] O. a Emelyanov and M. V Shemet, "Single dielectric barrier discharge characteristics in needle-to-plane configuration," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 47, no. 31, p. 315201, 2014.
- [52] J. Hirschberg, T. Omaili, N. Mertens, A. Helmke, S. Emmert, and W. Viöl, "Influence of excitation pulse duration of dielectric barrier discharges on biomedical applications," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 46, p. 165201, 2013.
- [53] Y. C. Hong, S. C. Cho, J. H. Kim, and H. S. Uhm, "A long plasma column in a flexible tube at atmospheric pressure," *Phys. Plasmas*, vol. 14, no. 2007, pp. 1–5, 2007.
- [54] N. Jiang, A. Ji, and Z. Cao, "Atmospheric pressure plasma jets beyond ground electrode as charge overflow in a dielectric barrier discharge setup," *J. Appl. Phys.*, vol. 108, no. 3, p. 033302, 2010.

- [55] C. Zhang, T. Shao, R. Wang, Z. Zhou, Y. Zhou, and P. Yan, "A comparison between characteristics of atmospheric-pressure plasma jets sustained by nanosecond- and microsecond-pulse generators in helium," *Phys. Plasmas*, vol. 21, no. 10, p. 103505, 2014.
- [56] Q.-Y. Nie, C.-S. Ren, D.-Z. Wang, S.-Z. Li, J.-L. Zhang, and M. G. Kong, "Self-organized pattern formation of an atmospheric pressure plasma jet in a dielectric barrier discharge configuration," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 90, no. 22, p. 221504, 2007.
- [57] S. Kelly and M. M. Turner, "Generation of reactive species by an atmospheric pressure plasma jet," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 23, no. 6, p. 065013, 2014.
- [58] S. Kelly and M. M. Turner, "Power modulation in an atmospheric pressure plasma jet," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 23, no. 6, p. 065012, 2014.
- [59] P. Bruggeman and C. Leys, "Non-thermal plasmas in and in contact with liquids," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 42, no. 5, p. 053001, 2009.
- [60] S. A. Norberg, W. Tian, E. Johnsen, and M. J. Kushner, "Atmospheric pressure plasma jets interacting with liquid covered tissue: touching and not-touching the liquid," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 47, no. 47, p. 475203, 2014.
- [61] P. Lukes, E. Dolezalova, I. Sisrova, and M. Clupek, "Aqueous-phase chemistry and bactericidal effects from an air discharge plasma in contact with water: evidence for the formation of peroxyxynitrite through a pseudo-second-order post-discharge reaction of H_2O_2 and HNO_2 ," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 23, no. 1, p. 015019, 2014.
- [62] T. Belmonte, A. Hamdan, F. Kosior, C. Noel, and G. Henrion, "Interaction of discharges with electrode surfaces in dielectric liquids: application to nanoparticles synthesis," *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 47, p. 224016 (18 pp), 2014.
- [63] C. Douat, G. Bauville, M. Fleury, M. Laroussi, and V. Puech, "Dynamics of colliding microplasma jets," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 21, no. 3, p. 034010, 2012.
- [64] K. Fricke, H. Steffen, T. von Woedtke, K. Schröder, and K.-D. Weltmann, "High Rate Etching of Polymers by Means of an Atmospheric Pressure Plasma Jet," *Plasma Process. Polym.*, vol. 8, no. 1, pp. 51–58, 2011.
- [65] D. Mariotti, T. Belmonte, J. Benedikt, T. Velusamy, G. Jain, and V. Švrček, "Low-Temperature Atmospheric Pressure Plasma Processes for 'Green' Third Generation Photovoltaics," *Plasma Process. Polym.*, vol. 13, no. 1, pp. 70–90, 2016.
- [66] Z. Xiong and M. J. Kushner, "Atmospheric pressure ionization waves propagating through a flexible high aspect ratio capillary channel and impinging upon a target," *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 21, no. 3, p. 034001, 2012.

Conclusion générale

En l'espace d'une dizaine d'années, les jets de plasma froid à pression atmosphérique ont su s'imposer comme un outil pertinent pour les applications biomédicales. La simplicité de conception et d'utilisation de ces dispositifs, combinée à leur faculté à produire des espèces réactives, ont significativement contribué au développement rapide du domaine. Beaucoup d'efforts ont été entrepris dans le développement de diagnostics quantitatifs, pour mesurer la production d'espèces réactives dans la plume plasma d'un jet donné. Toutefois, la diversité des géométries de décharges, des sources d'alimentations électriques ou des conditions d'utilisations, rendent les comparaisons d'un jet à l'autre difficile.

Cette thèse a porté sur l'étude du jet de plasma froid à pression atmosphérique développé au GREMI, le Plasma Gun, alimenté par des impulsions de tensions microsecondes dans l'hélium. Nous avons étudié les mécanismes de décharge susceptibles d'affecter la production d'espèces réactives, dans des conditions approchantes d'applications biomédicales. La thèse s'articule en trois points principaux : l'étude de la modification de l'écoulement de l'hélium par plasma, l'étude de la propagation du plasma dans le capillaire diélectrique (en jet libre) et l'étude de l'interaction du plasma avec une cible conductrice. Ce dernier point est en particulier représentatif de tout jet plasma en traitement biomédical *in vivo* et tend à faire une distinction fondamentale avec le jet plasma « libre », sans obstacle entravant la plume.

Les premières études de la modification d'écoulement dans les jets de plasma froid à pression atmosphérique ont montré que le plasma favorisait l'apparition de la turbulence dans l'écoulement du gaz, par effet thermique. Ces études associaient donc au plasma un rôle destructeur sur l'écoulement. Notre étude sur le banc de striescopie de l'ISAE, dans des conditions typiques de traitements biomédicaux, à bas débit d'hélium, a mis en évidence un phénomène antagoniste : le plasma peut structurer le jet d'hélium et canaliser l'écoulement. Lorsque le jet d'hélium se développe hors du capillaire (orienté vers le bas) à bas débit (0,5 l/min), l'hélium, plus léger que l'air, est fortement contraint par la flottabilité et ne s'étend que 4 mm au-delà de la sortie du capillaire. Lorsque le plasma est activé, l'hélium est progressivement poussé vers la cible, à l'échelle temps de la milliseconde. Le plasma développe donc une force capable de contrer la flottabilité.

En étudiant en détail ce mécanisme, nous avons mis en évidence que le phénomène est très dépendant de la polarité de l'impulsion de tension (positive ou négative), de la présence d'une cible métallique à distance de l'extrémité du capillaire et également de la nature électrique de la cible (à la masse, flottante ou diélectrique). L'influence de la polarité et celle d'un corps conducteur à distance signent les effets d'une force qui ne peut être que de nature électrique. De manière similaire aux actuateurs plasma, le plasma génère un vent ionique. Des ions sont accélérés par le champ électrique du plasma et communiquent leur quantité de mouvement aux neutres. La

canalisation est beaucoup plus efficace en polarité négative qu'en polarité positive, car les ions négatifs, plus massifs et de plus longues durées de vies, participent de manière beaucoup plus efficace au transfert de quantité de mouvement vers les neutres. Cette observation a par ailleurs été rapportée dans plusieurs études sur les actuateurs plasma.

La canalisation ne se produit, de plus, que si la fréquence de répétition de l'impulsion de tension est suffisante. Les ions sont accélérés sur le temps de l'impulsion de tension ($\sim 10 \mu\text{s}$), par le champ électrique du plasma, et transfèrent leur quantité de mouvement aux neutres. Par inertie, ceux-ci se meuvent alors à l'échelle de temps de la milliseconde. La flottabilité s'oppose perpétuellement à cette inertie et ne peut être vaincue efficacement que si le temps entre deux impulsions est suffisamment court (au plus 1 ms entre chaque impulsion dans nos conditions expérimentales). En optimisant nos paramètres de décharge, nous avons également réussi à combiner les avantages de la polarité négative à construire un canal d'hélium parfaitement stable pour que le plasma en polarité positive s'y propage. Cette thématique d'optimisation des paramètres électriques fut aussi étudiée dans le cadre des actuateurs plasma.

Le degré de pénétration de l'air dans l'hélium, a priori dépendant de la canalisation, peut être critique pour la calibration de diagnostics de mesure quantitatifs et est susceptible d'influer fortement sur la production d'espèces réactives. Pour toutes applications nécessitant de connaître l'état de l'écoulement (test de contrôle en traitement biomédicale par exemple), la connaissance de ces propriétés est également importante.

Pour l'étude de la propagation du plasma le long du capillaire, en jet libre, nous avons suivi sa propagation par l'évolution temporelle et spatiale du champ électrique, données jusqu'alors uniquement accessibles par des modèles numériques. Deux composantes orthogonales du champ électrique ont été mesurées par une sonde électro-optique, à l'extérieur du capillaire, le long de celui-ci. À la lumière du front d'ionisation (repéré par imagerie ICCD rapide ou par tube photomultiplicateur et fibres optiques), est associée une composante de champ électrique longitudinale (dans la direction de sa propagation) et une composante radiale qui lui est perpendiculaire. La composante longitudinale est présente en aval du front d'ionisation et le précède de 4 cm environ. La composante radiale ne précède pas le front d'ionisation, sa brusque augmentation est synchrone avec le maximum de la composante longitudinale. Après le passage du front, la composante longitudinale diminue rapidement tandis que la composante radiale est maintenue sur une échelle de temps microseconde. Cette évolution est la signature directe de la transmission du potentiel appliqué à l'électrode interne par la colonne plasma. Le front d'ionisation reste connecté à l'électrode interne, par la colonne plasma conductrice.

Compte tenu de l'évolution microseconde de l'impulsion de tension, les évolutions des réactions cinétiques sont importantes pour les propriétés de la colonne plasma. Une étude expérimentale et numérique (modèle numérique développé par Anne Bourdon, François Péchereau et Pedro Viegas) nous a permis de mettre en évidence les propriétés de la colonne plasma dans la dynamique de propagation du front d'ionisation, dans le cas de mélanges hélium-azote, en impulsion de tension positive. Par des mélanges de faibles concentrations d'azote dans l'hélium (0,1 % - 1,2 %) nous avons

expérimentalement constaté des variations de vitesses de propagation du front d'ionisation, corrélées à de nettes évolutions des spectres d'émission du plasma. Pour les plus faibles concentrations, comparé au cas sans mélange, le front d'ionisation est plus homogène et sa vitesse de propagation plus importante. Grâce à un schéma cinétique ciblé (cinétique hélium-azote à 33 réactions), le modèle permet d'isoler les réactions influentes sur la propagation du front d'ionisation. Il montre qu'en fonction de la concentration d'azote, la vitesse du front d'ionisation résulte d'un couplage complexe entre la cinétique de la décharge, sa structure et la photoionisation. Aux différentes concentrations d'azote, les réactions cinétiques influent notamment sur la conductivité de la colonne. Aux faibles concentrations d'azote (0,1 %), les réactions Penning à deux et trois corps entretiennent notamment, par production importante de N_2^+ , une conductivité de colonne plus élevée qu'à 1 % d'azote (espèce $N_2(C)$ dominante).

Le modèle confirme également l'évolution temporelle du champ électrique mesurée à l'extérieur du capillaire, par un calcul à la même position. De ce bon accord, nous avons utilisé ce dernier pour prédire les valeurs du champ électrique à des positions où il est impossible de le mesurer expérimentalement. A l'intérieur du capillaire, localement au niveau du front d'ionisation, il est prédit que la valeur du champ électrique est nettement plus élevée que sur l'axe de symétrie du dispositif ou à l'extérieur du capillaire (de 30 kV/cm à 45 kV/cm) et est également sensible à la concentration d'azote.

Ces évolutions du champ électrique peuvent être importantes pour des mécanismes cellulaires sensibles à l'amplitude du champ électrique, comme l'électroporation ou la perméabilisation. D'autre part, l'augmentation constatée expérimentalement de l'émission du NO^* et l'allongement de la longueur de propagation du plasma sont également des propriétés potentiellement intéressantes pour les applications biomédicales.

Lors d'un traitement *in vivo*, le jet plasma est en contact avec une cible conductrice. Quelques équipes ont mis en évidence une forte augmentation de la production d'espèces réactives lors du contact de leur jet avec une cible conductrice, notamment OH et O. Pourtant, une grande majorité d'études, motivées par des applications biomédicales, sont effectuées en jet libre.

Lorsque le plasma est en contact avec une cible conductrice, la colonne plasma conductrice, laissée dans le sillage du front d'ionisation, joue un rôle fondamental. Nous avons étudié l'interaction du plasma avec une cible métallique reliée à la masse, par le couplage entre deux diagnostics : l'évolution de la concentration des métastables de l'hélium $He\ 2^3S$, mesurée par spectroscopie d'absorption par laser (banc optique du LPGP) et l'évolution du champ électrique, mesurée par sonde électro-optique. Les concentrations des métastables maximales atteintes dans le capillaire et dans la plume sont très dépendantes de la distance entre la cible et l'extrémité du capillaire. Dans nos conditions expérimentales, pour une distance de cible de 1 cm (18 kV en polarité négative) la concentration triple entre le début et l'extrémité du capillaire (maximum de 8.10^{12} cm^{-3} en polarité négative). En jet libre, il y a peu d'évolution le long du capillaire (proche de 2.10^{12} cm^{-3}). Dans la plume, la concentration est de l'ordre de 10^{11} cm^{-3} et d'un ordre de grandeur plus élevée avec la

cible à 1 cm. Les comportements observés en polarité positive, dans les mêmes conditions expérimentales, sont similaires.

Nous avons corrélié l'évolution temporelle du peuplement rapide des métastables de l'hélium et l'évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique, le long de la plume et du capillaire. Nous avons mis en évidence que l'impact du front d'ionisation « primaire » sur la surface de la cible est suivi, quasi instantanément, de la contre-propagation très rapide d'un front d'ionisation « secondaire » dans la colonne plasma ($2,6 \cdot 10^7$ cm/s en polarité négative dans nos conditions expérimentales).

Ce front est initié depuis la surface de la cible, à la base de plume, et se contre-propage jusqu'à l'électrode interne. Il est caractérisé par sa propre composante longitudinale de champ électrique et par l'annulation de la composante radiale, établie suite à la propagation du front primaire. C'est au passage du front secondaire, lors d'un second peuplement rapide, que les maxima des concentrations des métastables sont atteints. Ce front s'atténue progressivement au cours de sa contre-propagation, la concentration diminuant progressivement en se rapprochant de l'électrode interne. Ce mécanisme se produit pour des impulsions de tension négatives et des impulsions positives. Nous interprétons l'origine de ce front par la réflexion sur la cible de la tension transmise par la colonne plasma, cette dernière étant assimilable à une ligne de transmission désadaptée. Il y a donc désadaptation d'impédance entre l'impédance de la colonne plasma et celle la cible métallique (d'impédance « nulle » en comparaison).

Cette contre-propagation du front secondaire le long de la colonne est susceptible d'augmenter fortement sa conductivité. La colonne plasma conductrice réalise alors une jonction électrique efficace entre l'électrode interne et la cible métallique. La décharge évolue alors vers une décharge de type glow, la production des métastables est alors principalement pilotée par l'évolution microseconde de l'impulsion de tension, comme en atteste les évolutions des concentrations des métastables de l'hélium observées dans la plume. Ce mécanisme expliquerait l'évolution du courant mesurée aux bornes de la cible (amplitude maximale proche de 150 mA dans nos conditions expérimentales), synchrone avec les profils d'excitation observés en spectroscopie d'émission dans la plume, au contact de la cible. De fortes réémissions de durées microsecondes se produisent après le passage du front d'ionisation, notamment pour OH^* et NO^* . C'est durant cette phase qu'une forte production d'espèces réactives se produit.

Par ailleurs, la contre-propagation du front d'ionisation secondaire marque le démarrage d'une série de multiples réflexions entre l'électrode interne et la cible, engendrant l'initiation et la propagation de multiples fronts d'ionisations dans la colonne plasma, dans une dynamique d'allers et retours entre les deux électrodes. Ces fronts s'amortissent progressivement au cours de leurs propagations. Des faibles signatures des passages des fronts ultérieurs au front d'ionisation secondaire ont été observées (fronts tertiaire, quaternaire et quinquénaire), sur l'évolution de la concentration des métastables de l'hélium et l'évolution du champ électrique. Des variations de vitesse de propagation des fronts secondaire et ultérieurs, par mélanges de faibles concentrations d'azote dans l'hélium, en polarités positive et négative, ont été observées. La vitesse de contre-propagation du front secondaire la plus élevée mesurée est proche de $6 \cdot 10^8$ cm/s. Une colonne plasma plus conductrice

permettrait donc a priori aux fronts secondaire et ultérieurs de se propager plus rapidement et sur une plus longue distance.

La transition vers une décharge de type glow ne peut pas se produire si le jet est libre. Cela crée donc une distinction physique fondamentale entre un jet plasma libre et un jet plasma en contact avec une cible conductrice. Le contact du jet plasma avec une cible conductrice étant représentatif de tous traitements biomédicaux *in vivo*, la mesure de la production d'espèces réactives se doit d'être effectuée dans un cas où des phénomènes similaires sont susceptibles de se produire.

Les jets de plasma froid à pression atmosphérique présentent un étonnant contraste entre leur simplicité de conception et la richesse des phénomènes qu'ils arborent. Liés par leur capacité à pouvoir potentiellement considérablement affecter la production d'espèces réactives, les différents phénomènes étudiés au cours de cette thèse ne sont pas restrictifs à notre seul jet plasma. Avec la grande diversité des différents jets plasma présents de par le monde, l'identification et la compréhension de mécanismes communs, tels que la modification d'écoulement, le lien entre la cinétique réactionnelle et le champ électrique, ou la réponse au contact avec une cible conductrice, peut amener à une plus grande maîtrise de ces dispositifs. Par bien des aspects, ces études fondamentales restent nécessaires pour définir des conditions de traitements biomédicaux optimales, traitements un jour destinés à prolonger des vies de plusieurs années.

Annexe A : plasma et éclatement tourbillonnaire

Le but de cette annexe est de montrer que les instabilités hydrodynamiques observées dans notre jet, au chapitre III (parties 3 et 4), sont explicables par un seul et même phénomène hydrodynamique : l'éclatement tourbillonnaire. Cette physique est très riche et dépasse largement le cadre de notre étude. Le propos de cette annexe n'est pas de décrire analytiquement chaque phénomène, mais de montrer que la grande variété de comportements observés, qui semblent à première vue n'avoir aucun rapport entre eux, sont en fait autant de facettes d'un même phénomène. Une rapide introduction au formalisme sera décrite en première partie. L'originalité de l'approche réside dans le fait que les différents comportements observés peuvent être influencés et contrôlés, dans une certaine mesure, par des perturbations induites par le plasma.

1. Ondes de Kelvin et éclatement tourbillonnaire

Dans un écoulement tournant, des ondes inertielles apparaissent naturellement. Ces ondes sont dues à la force de Coriolis qui s'applique dans un référentiel tournant, perpendiculairement à l'axe de rotation.

Si au cœur de l'écoulement est imposée une frontière radiale (tourbillon ou écoulement en conduite), alors le cœur rotationnel du tourbillon agira comme un guide d'onde. On parle dans ce cas d'ondes de Kelvin. Les ondes de Kelvin peuvent être décrites dans le formalisme des modes normaux, le champ de vitesse est décomposable en modes de Fourier. En le reportant dans les équations du mouvement, on peut établir une relation de dispersion liant un nombre d'onde longitudinal k , un nombre d'onde azimutal m et une pulsation ω . À chaque valeur de m correspondra une infinité de modes, de pulsations ω bornées. La Figure A-1, issue de [1], représente de manière schématique la forme de trois ondes de Kelvin pour trois valeurs de m .

Les développements mathématiques sont complexes et nous ne rentrerons pas dans les détails du formalisme. Les solutions présentent notamment des bifurcations (au sens de la théorie des bifurcations dans les systèmes dynamiques), c'est-à-dire qu'un petit changement d'un paramètre physique entraîne une brusque réorganisation globale du système. Certaines de ces solutions sont notamment stationnaires. Le lecteur intéressé pourra se reporter à l'ouvrage de Saffman [2] sur les ondes de Kelvin et à la thèse de Leclaire [3] pour les écoulements tournants en conduite.

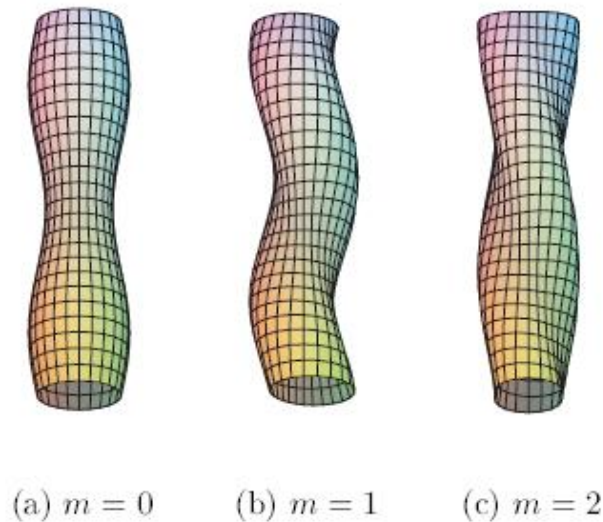


Figure A-1 : représentations schématiques d'une onde de Kelvin axisymétrique ($m=0$), hélicoïdale ($m=1$) et en double hélice ($m=2$) (issue de [1] figure 5.1 p.67)

La dynamique de l'éclatement tourbillonnaire dans les écoulements tournants en conduite s'inscrit dans ce formalisme. Un total de six formes a été répertoriées par Faler et Leibovitch [4]. La définition de l'éclatement tourbillonnaire peut varier suivant les auteurs, néanmoins une définition générale est la transformation d'un tourbillon mince en des formes tridimensionnelles [3]. Des phénomènes caractéristiques sont décrits, comme la présence d'une zone de recirculation, où l'écoulement circule en sens inverse le long du tourbillon (back flow ou reversal flow) [5]. Cette recirculation peut se faire notamment à grande échelle le long d'un vortex en forme de colonne (vortex colonnaire [6]). Des phénomènes périodiques (train d'ondes et onde solitaire) [7] peuvent également apparaître.

Il a été montré dans de nombreuses études expérimentales et numériques que l'éclatement tourbillonnaire est sensible au nombre de Reynolds, au nombre de Swirl (caractéristique d'un écoulement tournant) et dépend également fortement de la géométrie de la conduite [8]. Nous allons voir dans les parties suivantes que dans notre cas, les variations du paramètre capable de faire transiter l'écoulement d'un mode à un autre sont pilotées par le plasma.

2. Hélice, double hélice et colonne

La Figure A-2 montre un exemple de visualisation d'un éclatement tourbillonnaire en double hélice. L'image est issue de [9], de la fumée de tabac est injectée dans l'écoulement d'air pour le visualiser.

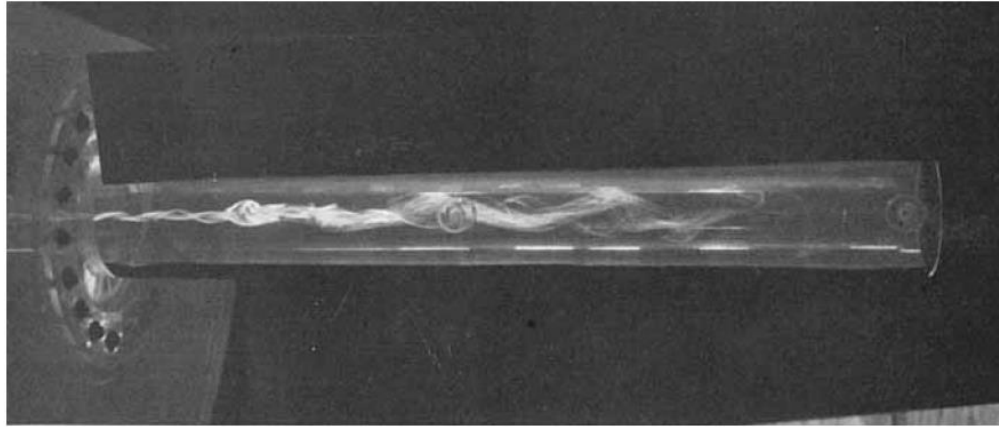


Figure A-2 : éclatement du vortex en double hélice (issue de [9], fig.3).

Dans le capillaire du Plasma Gun, nous avons observé une répartition similaire du plasma, en hélice ou double hélice. La Figure A-3 montre deux photographies du plasma dans le capillaire (exposées 2 secondes).

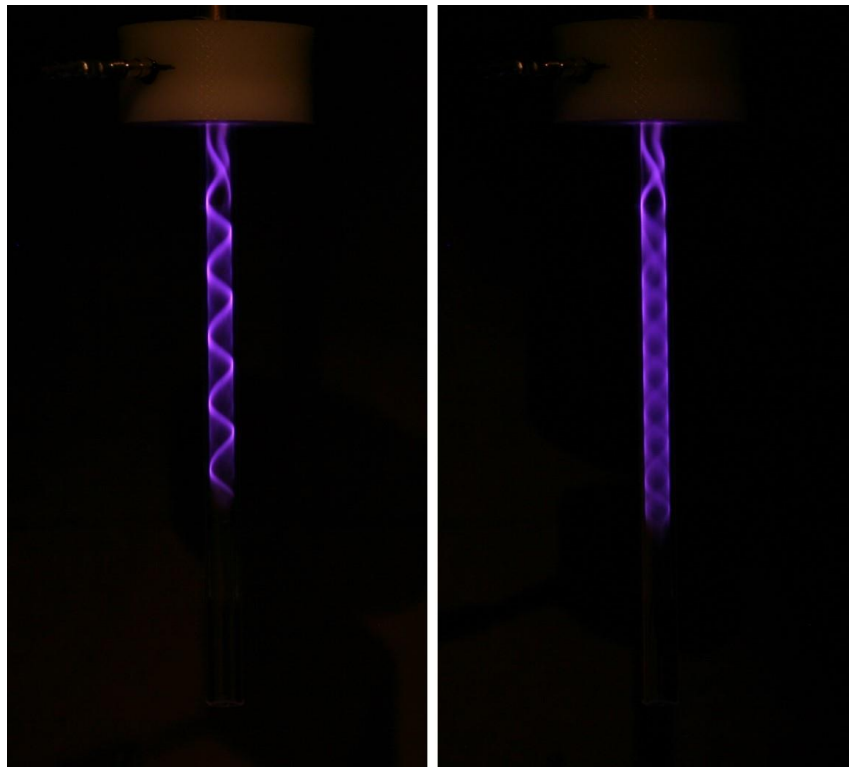


Figure A-3 : plasma en hélice (image de gauche) et double hélice (image de droite) dans le capillaire

Le débit d'hélium utilisé est de 2 l/min. Ces phénomènes apparaissent à basse tension appliquée, vers 6 kV. La fréquence de répétition est ici de 2 kHz. Ces figures sont parfaitement stables. On peut voir sur l'image de gauche un début de seconde hélice, se stoppant peu après le premier croisement. Sur l'image de droite, la seconde hélice est pleinement développée. La tension appliquée, entre le cas de l'hélice et celui de la double hélice, est très légèrement différente, plus élevée d'une centaine de volts pour la double hélice.

Nous avons publié dans [10] ce type de comportement du plasma dans le capillaire. La Figure A-4 montre l'influence de la fréquence de répétition, pour un débit d'hélium de 2 l/min et une tension appliquée de 6 kV.

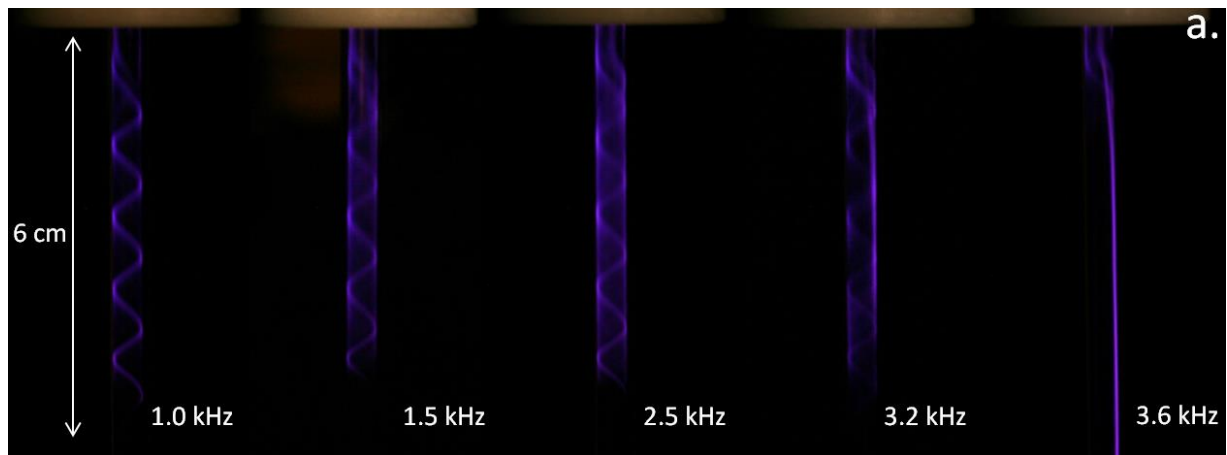


Figure A-4 : évolution graduelle d'une hélice simple en colonne par augmentation de la fréquence de répétition de l'impulsion de tension (publiée dans [10]).

À la fréquence 1 kHz, un vortex en hélice simple est présent dans le capillaire. Aux fréquences 1,5 et 2,5 kHz, un deuxième vortex entre en rotation et provoque cet aspect flou et diffus sur la photographie, tandis que le premier reste stable. À la fréquence 3,2 kHz, l'hélice est toujours présente et le deuxième vortex est stabilisé en colonne. À la fréquence 3,6 kHz (et jusqu'à 5 kHz), les deux vortex fusionnent en forme de colonne le long du capillaire. Ces figures sont parfaitement stables et il est possible de passer facilement de l'une à l'autre de manière instantanée, en jouant sur la valeur de la fréquence de répétition.

Ces modes et transitions ont été parfaitement décrits dans les études de l'éclatement tourbillonnaire, notamment par des modèles numériques (Figure A-5 issue de la revue [11]). Les vortex colonnaires ont également été observés expérimentalement (Figure A-6 de [9] et Figure A-7 (image de gauche) de [12]).

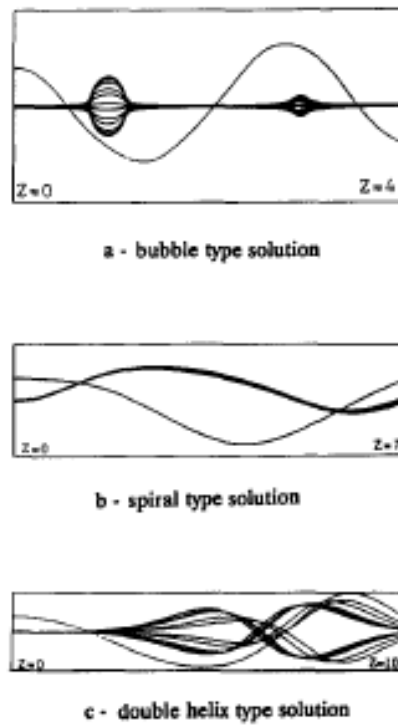


FIG. 43. Streak lines computed from small perturbation solutions of Ito *et al.*⁽⁵⁹⁾

Figure A-5 : simulation numérique calculant les lignes courant pour différents modes (issue de la revue [11], d'après un résultat de Ito et al)

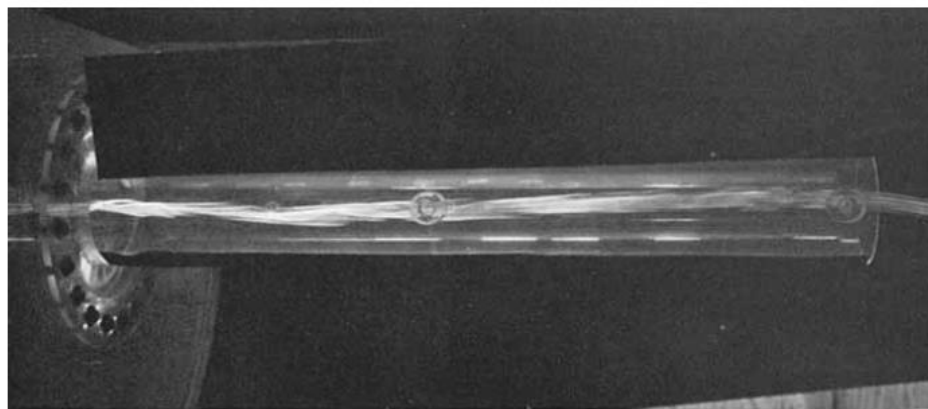


Figure A-6 : structure en colonne sans hélice (issue de [9], fig.2)

Le lien avec les comportements de l'écoulement observés dans l'éclatement tourbillonnaire nous amène à pondérer la conclusion de l'article [10], quant au seul rôle du plasma et du champ électrique dans l'apparition de ces phénomènes. Ces phénomènes peuvent exister indépendamment du plasma. Néanmoins, dans notre cas, les deux aspects hydrodynamiques et plasma interviennent dans les transitions observées. À chaque impulsion de tension, une perturbation est appliquée à l'écoulement, dont la fréquence est parfaitement contrôlable. La fréquence à laquelle les impulsions de tensions sont appliquées fait transiter l'éclatement entre différents modes.

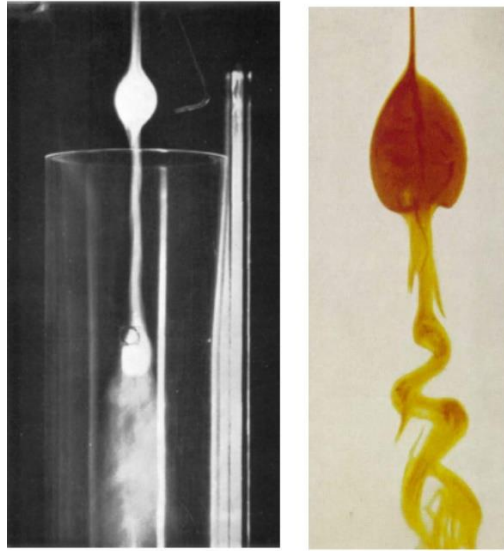


Figure A-7 : bulles de recirculation éclatant en colonne (image de gauche issue de [12]) et éclatant en hélice (image de droite issue de [13]).

Dans notre cas, des perturbations peuvent également être communiquées à distance, sans aucun contact physique, par l'intermédiaire du champ électrique du plasma environnant le capillaire, comme le montre la Figure A-8, (b), publiée dans [10].

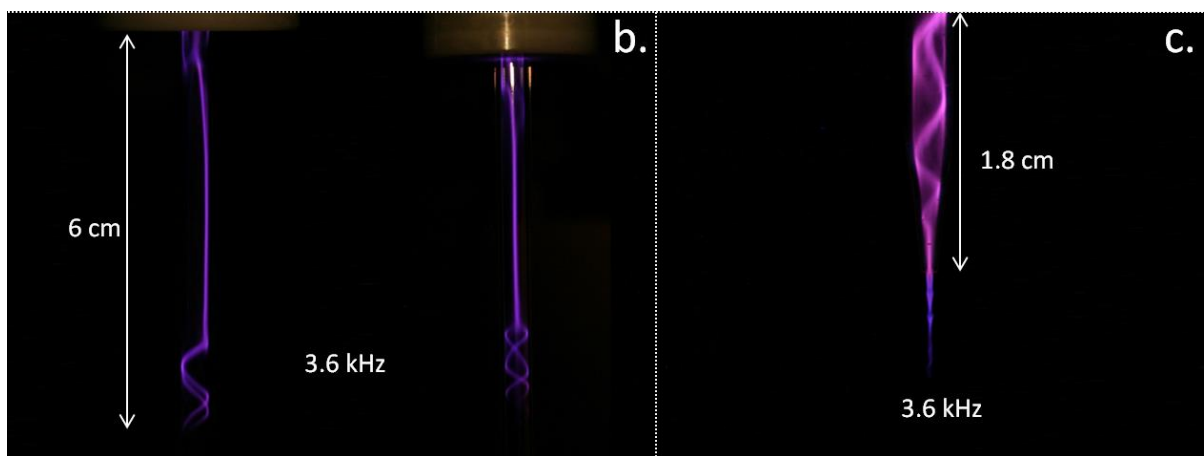


Figure A-8 : éclatement du vortex colonnaire en double hélice, en approchant une pointe à la masse à 5 cm du capillaire (vue de côté et de face) (b). Plume plasma en dard à la sortie d'un capillaire effilé (c).

Le champ électrique environne le plasma tout autour du capillaire, sur une distance de plusieurs centimètres. À la fréquence 3,6 kHz sur la Figure A-4, le plasma est en forme de colonne. Lorsque, dans ces conditions, une pointe reliée à la masse est approchée à quelques centimètres du capillaire (5 cm en b), alors la colonne éclate en double en hélice, à la hauteur de la pointe. La configuration est stable, nous avons pu photographier le phénomène sous deux angles de vue (de côté et de face). En jouant directement sur la distribution des lignes de champ électrique, des perturbations locales peuvent donc être transmises au système, de manière non intrusive. À notre connaissance, aucune étude n'a mis en évidence le couplage entre ce type d'instabilité hydrodynamique et le plasma.

La Figure A-8 (c) montre le développement de la plume plasma à la sortie d'un capillaire effilé de 1 mm de diamètre. Dans le capillaire, le plasma se développe en hélice. Dans la plume, une forme en « dard » (avec une hélice à l'extrémité) est observée.

3. « Dards » et ondes stationnaires

Par soucis de visibilité sur les photographies, nous avons étudié ce phénomène en travaillant avec du néon, qui produit un plasma beaucoup plus lumineux. Les mêmes phénomènes ont été observés dans l'hélium.

La Figure A-9 montre une vue agrandie de la plume plasma dans ces conditions ainsi qu'une comparaison avec des écoulements observés par Escudier, dans un jet d'air avec de la fumée en sortie de la vanne [14].

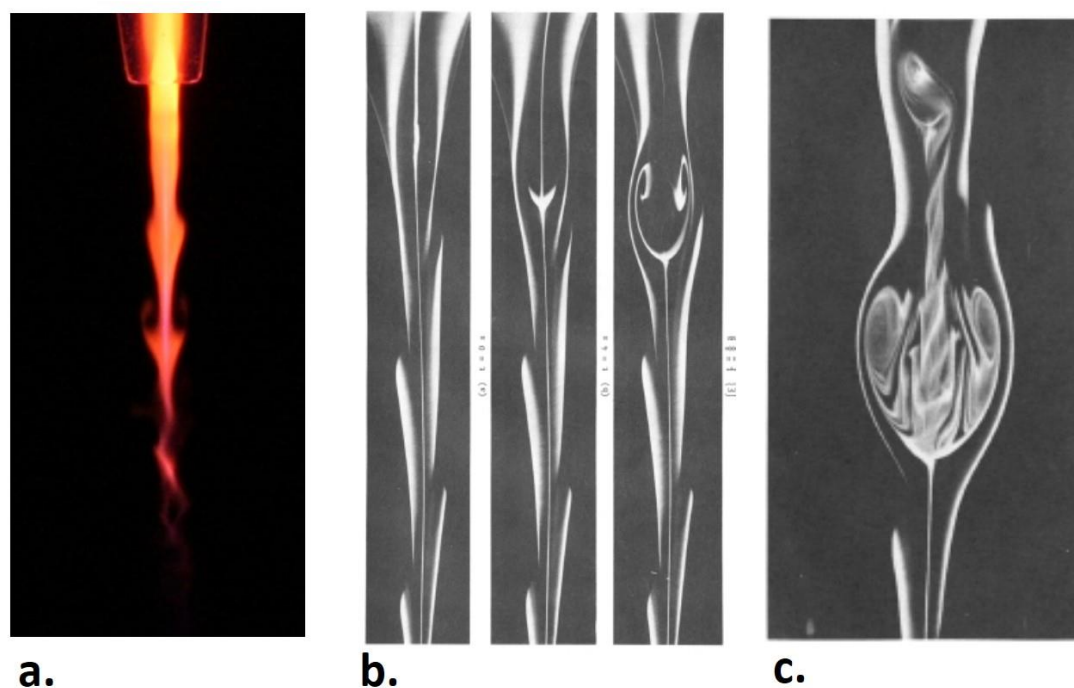


Figure A-9 : (a) plume plasma observée en sortie d'un capillaire effilé (1 mm de diamètre en sortie) , (b) formation d'un vortex de type bulle issue de [14], (c) structure de vortex en bulle stabilisée avec bulle stagnante issue de [14].

La plume plasma en (a) présente des formes stables en « dards » ou « flèches », avec une hélice à son extrémité. La littérature sur les écoulements tournants rapporte des observations similaires. Ce type de vortex est appelé vortex en bulle. En (b) est montrée une évolution progressive d'un écoulement tournant en sortie de vanne [14]. L'écoulement passe d'une forme en « zigzag » effilée, jusqu'à ce qu'une bulle de forme oblongue se forme. La structure stabilisée (« bulle stagnante ») est illustrée en (c), très similaire à ce qui observée en (a) sur la plume plasma. Sur (c), il est nettement visible qu'au cœur de la structure, l'écoulement est en rotation.

Escudier indique que des structures très similaires ont été observées par Lambourne (*The breakdown of certain types of vortex*, Aeronautical Research Council, 1965), mais se terminant par une forme en hélice.

Nous avons publié dans [15] l'observation de ces comportements dans la plume plasma (Figure A-10). La tension appliquée est de 14 kV.

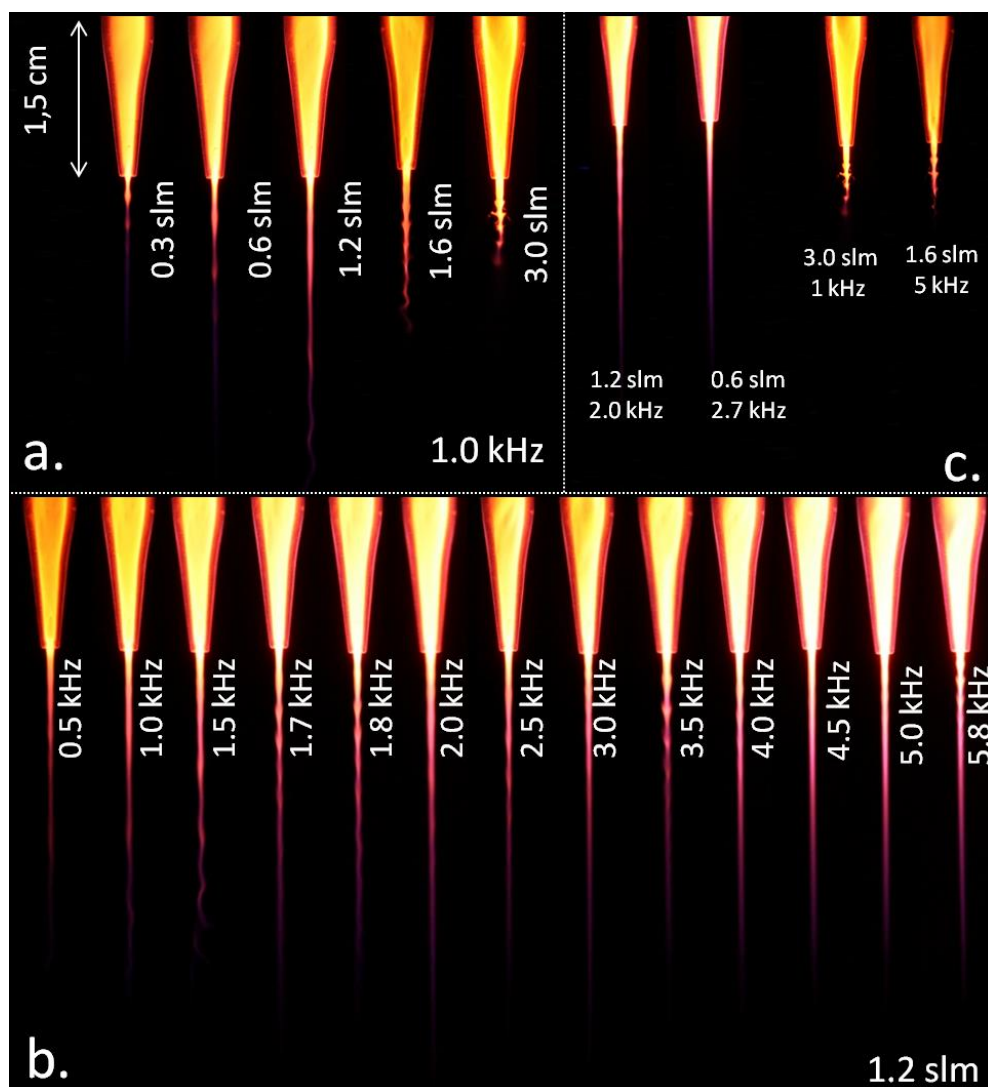


Figure A-10 : (a) Plumes plasma en fonction du débit à une fréquence fixée. (b) Plumes plasma en fonction de la fréquence à un débit fixé. (c) Plumes plasma similaires en fonction d'un couple débit-fréquence.

En (a), nous pouvons voir que la répartition des bulles et la forme de la plume est sensible au débit (0,3 l/min, 0,6 l/min). À 1,2 l/min, aucune bulle n'est visible, mais la plume est en forme d'hélice à son extrémité. Aux débits 1,6 et 3,0 l/min, les formes de plumes sont proches de celle décrite en Figure A-9.

En (b) est illustré qu'il est possible d'influer sur les formes observées dans la plume, par variation de la fréquence de répétition, à un débit fixé. Dans [15], sans faire encore le lien avec les écoulements tournants, nous avons, par l'observation de la répartition des bulles aux différentes fréquences, fait une analogie avec les modes stationnaires d'une corde vibrante à différentes harmoniques. Certains modes du vortex sont en effet des solutions harmoniques, présentant des ondes stationnaires.

Comme pour la Figure A-4 (hélice dans le capillaire), c'est la variation de la fréquence de répétition qui permet de transiter d'un mode à un autre.

En (c), nous montrons qu'il est possible pour un couple débit de gaz et fréquence de répétition donnée, d'obtenir des formes de plumes similaires. Cela montre donc que les formes observées dans la plume résultent d'un couplage entre les effets hydrodynamiques et les perturbations engendrées par le plasma.

Ces modes harmoniques ont été étudiés en détail dans les écoulements tournants. La Figure A-11 montre une comparaison entre quelques formes de plumes obtenues avec notre Plasma Gun et celles présentées dans l'étude de Keller et Escudier [16] pour un écoulement tournant (eau).

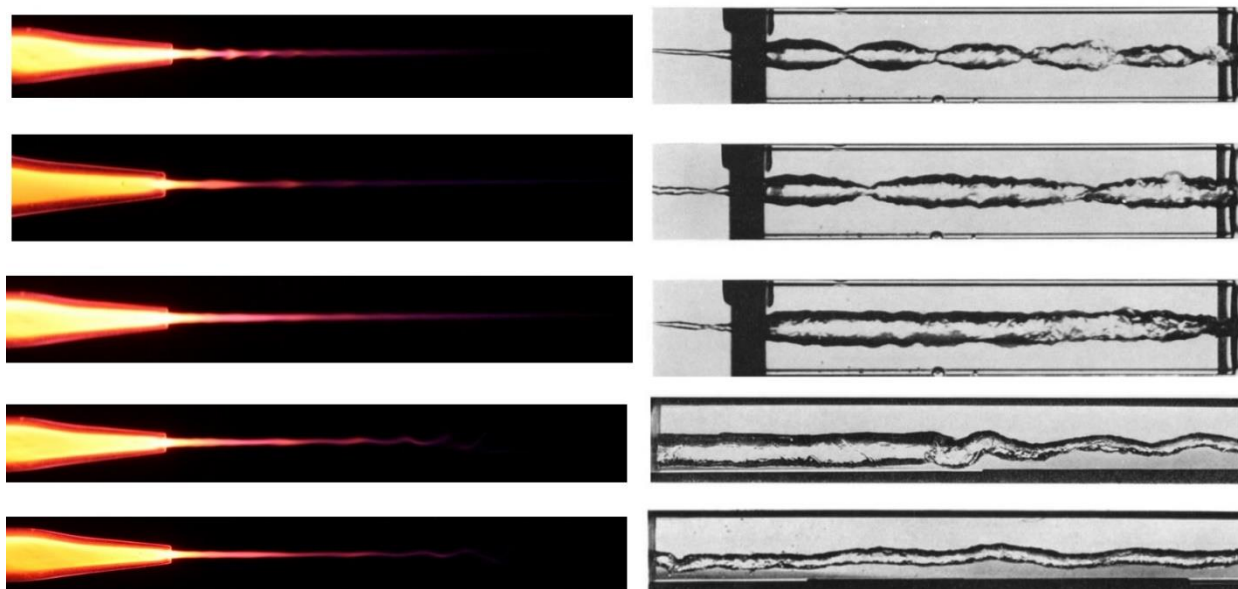


Figure A-11 : comparaison de plusieurs formes de plumes plasma avec des modes observés dans un écoulement tournant (eau).

Nous pouvons noter par ailleurs que des plumes plasma en « zigzag » de formes assez similaires à ce qui est présenté en Figure A-9 (b), ont été observées avec le même capillaire effilé.

Enfin, il est également possible d'observer ce type de plumes dans un capillaire de diamètre interne constant (4 mm). Pour obtenir une vitesse de l'écoulement approchant celle en sortie d'un capillaire de 1 mm diamètre, des débits bien supérieurs sont nécessaires. La Figure A-12 montre une plume plasma d'hélium en sortie d'un capillaire de section constante de 4 mm de diamètre interne. Le débit est proche de 10 l/min, la fréquence est de 1 KHz.



Figure A-12 : plume plasma en sortie d'un capillaire de 4 mm de diamètre interne pour un débit proche de 10 l/min et une fréquence de répétition de 1 KHz.

Sur la photographie, l'extrémité de la plume est floue. A l'œil, il est possible de voir que l'extrémité de la plume est en forme d'hélice en rotation rapide.

4. Recirculation à grande échelle

La circulation de l'écoulement le long d'un vortex colonnaire peut se faire en sens inverse de l'écoulement, de l'aval vers l'amont. Des zones de recirculation de grandes dimensions peuvent se développer dans toute la conduite, suivant la dimension du vortex [12].

Dans notre cas, si le vortex est de plus grande dimension que la longueur du capillaire, la partie du vortex dépassant du capillaire entraînera une aspiration d'air, lors de la remontée de l'hélium vers l'amont. Le mélange d'air et d'hélium sera alors entraîné jusqu'à l'électrode interne.

La Figure A-13 montre une représentation schématique du phénomène.

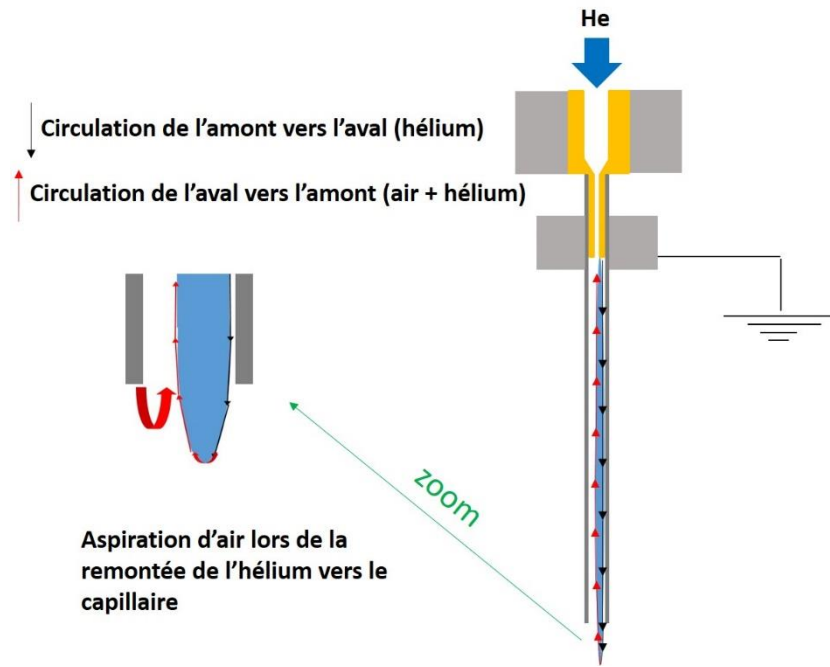


Figure A-13 : représentation schématique de la recirculation globale le long du vortex colonnaire, entraînant une aspiration d'air jusqu'à l'électrode interne.

La Figure A-14 illustre le phénomène avec un plasma d'hélium dans le capillaire. Chaque photographie est intégrée 1 s avec les mêmes conditions d'éclairage. La tension appliquée est de 4 kV et la fréquence de 1 kHz.

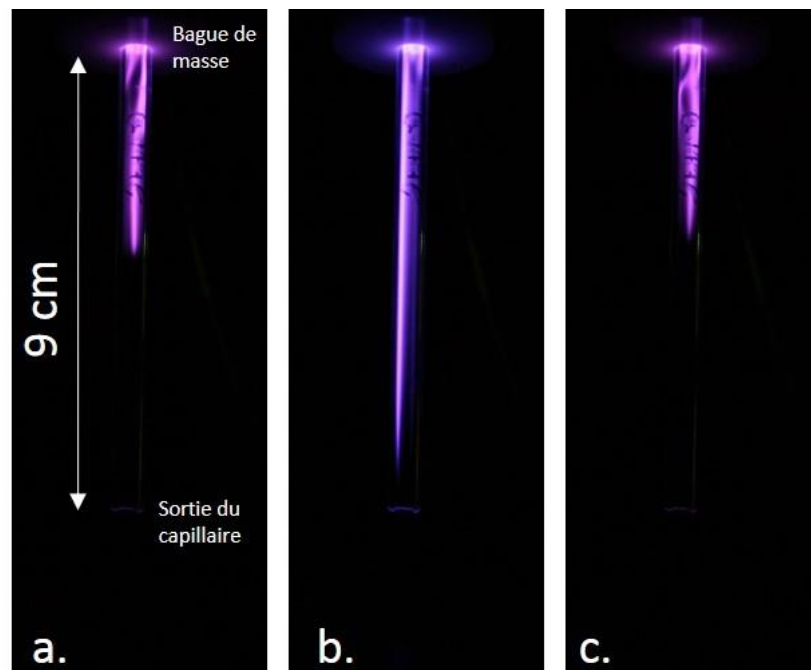


Figure A-14 : plasma d'hélium dans le capillaire (a et c) et en mélange air hélium par aspiration d'air jusqu'à l'électrode interne (b) (transitions pilotées par de faibles variations de débit, croissantes de a à c).

Entre (a) et (b), l'écoulement est dans une zone de transitions, pilotées par de faibles variations de débits (non mesurables avec le débitmètre utilisé). Le débit est d'environ 3 l/min. En (a), le vortex

colonnaire n'est pas présent, ou reste confiné dans le capillaire. En (b), il devient supérieur à la taille du capillaire. Un mélange air-hélium se produit dans la globalité du capillaire. Cela est visible par le changement de couleur de l'émission lumineuse (rose en hélium « pure » et violet en mélange) et par un allongement de la longueur de propagation du plasma. Cet allongement de la longueur de propagation du plasma a été constaté pour un mélange hélium-azote (chapitre IV partie 3). On peut supposer que l'azote, présent à 80 % dans l'air, provoque un phénomène similaire. À plus fort débit (c), le vortex colonnaire disparaît et l'air n'est plus aspiré. Cette disparition de la zone de recirculation, lorsque le nombre de Reynolds augmente, a été constaté dans l'étude des écoulements tournants [12].

Il est difficile d'estimer la quantité d'air mélangée à l'hélium. On peut supposer qu'elle est liée à l'extension spatiale du vortex colonnaire hors du capillaire. Ce phénomène se produit dans les gammes du régime intermittent identifiées au chapitre III (section 3.3). Pour des capillaires plus courts (5 cm et 3 cm), la quantité d'air mélangée à l'hélium peut être telle, que le plasma s'éteint pour certains débits d'hélium. Si le débit est suffisamment élevé, le vortex colonnaire disparaît et le plasma est ré-initié.

Pour une distance de propagation du plasma de la sortie du capillaire (tension appliquée 6,5 kV), il est également possible de faire se propager le plasma hors du capillaire, sans modifier la tension appliquée, en utilisant les mêmes débits qu'en Figure A-14 entre (a) et (b) (Figure A-15).

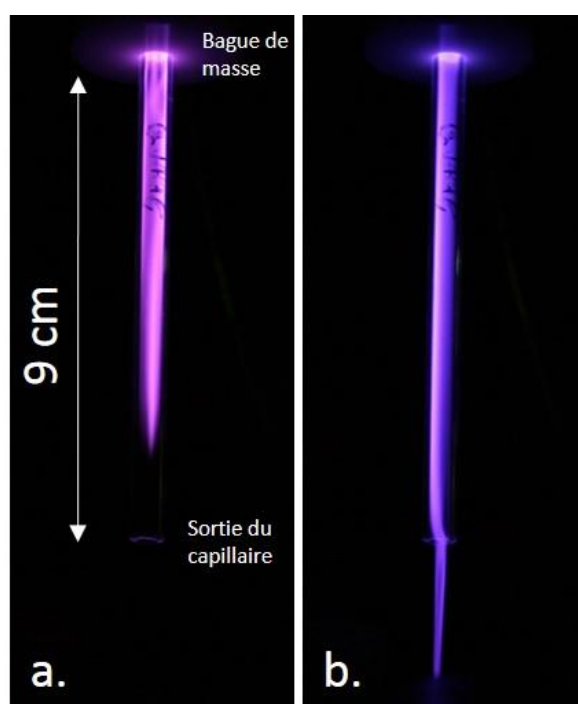


Figure A-15 : plasma d'hélium dans le capillaire (a) et d'air-hélium dans et en sortie du capillaire (b), pour les mêmes débits que la Figure A-14, mais à une tension appliquée plus élevée (6,5 kV).

L'allongement de la longueur de propagation par le mélange air-hélium en (b) est suffisant pour qu'une plume plasma apparaisse et se développe hors du capillaire. À la sortie du capillaire, Il est notamment visible que le plasma est plaqué sur un bord du capillaire.

Les écoulements tournants en conduite ont été notamment étudiés et utilisés pour la stabilisation des flammes et l'optimisation des mélanges dans les combustions. En utilisant les propriétés que confère notre géométrie d'injection à l'écoulement, nous sommes ici capables de favoriser naturellement une aspiration d'air, entraînant un mélange air-hélium dans le capillaire, sans l'aide d'aucun système mécanique. Dans une thématique de dépollution par plasma, il serait dès lors possible de mettre à profit de ces propriétés naturelles d'aspiration, pour traiter des volumes de gaz.

5. Phénomènes périodiques

Des phénomènes périodiques peuvent se retrouver dans la précession des hélices [9], ou la variation axiale de la position de l'éclatement de la bulle [13]. Chanaud [17], [18] avait observé des fréquences d'oscillations pour de faibles nombres de Reynolds, inférieurs à 300. Ces oscillations se faisaient à basse fréquence. Garg et Leibovitch [19] avaient trouvé des fréquences d'oscillations proches de 10 Hz et à 35 Hz. Chao et al avaient également observé cette fréquence de 35 Hz, ainsi que ces harmoniques [20]. Ils avaient montré que cette fréquence existait uniquement dans certaines régions de l'écoulement.

Nous avons procédé à des mesures de pression par sonde Pitot, tel que le montre la Figure A-16, mesures présentées en Figure A-17 (a) et en Figure A-18. Le capillaire mesure 3 cm, la sonde est placée à 5 mm de la sortie du capillaire. Le débit d'hélium utilisé est de 1385 ml/min, soit un Reynolds de 62.

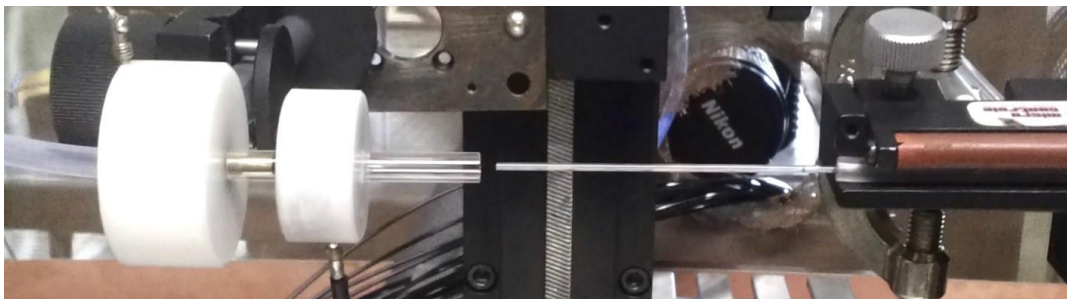


Figure A-16 : mesure des variations de pression par tube de Pitot à la sortie d'un capillaire de 3 cm.

Le dispositif n'est pas calibré et nous ne cherchons pas à remonter à une valeur exacte de la pression, ou de la vitesse de l'écoulement. En revanche, nous pouvons voir sur la Figure A-17 (a) que les fluctuations de pression sont parfaitement périodiques. Le signal est comparé en (b) à une mesure de Cassidy et al [9]. Cette mesure avait été réalisée à l'aide d'un anémomètre à fil chaud et d'une cellule à pression. Les fluctuations de vitesses correspondent à la courbe de dessus, la pression celle du dessous. La base de temps de l'oscilloscope sur la photographie n'était pas précisée, néanmoins il était précisé que ces phénomènes d'oscillations s'effectuaient également à basse fréquence.

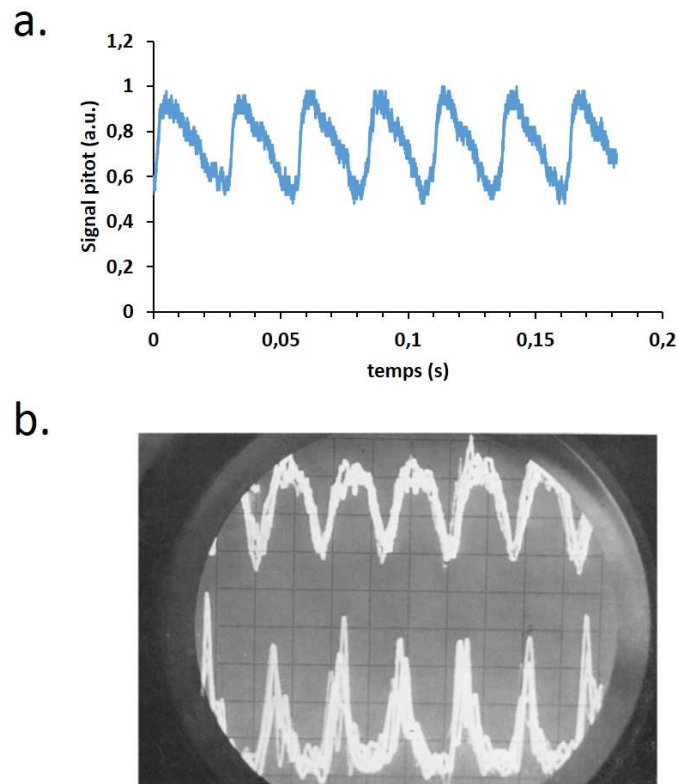


Figure A-17 : (a) : fluctuations de pression périodiques mesurées par tube de Pitot pour un Reynolds de 62 dans les conditions de la Figure A-16. (b) : comparaison avec l'allure des fluctuations de vitesse et de pression mesurées dans [9].

En comptant six périodes sur (a), nous trouvons une fréquence d'oscillation de 37 Hz. Cette valeur est proche de la valeur reporté par Chao et al [20].

La Figure A-18 montre l'évolution des signaux mesurés lorsque le plasma est activé, en comparaison du signal sans plasma, pour trois fréquences de répétition de l'impulsion de tension. La tension appliquée est choisie de façon à ce que le plasma ne sorte pas du capillaire. Elle est légèrement inférieure à 4 kV. Le débit d'hélium utilisé est le même qu'en Figure A-17.

Nous pouvons voir qu'en fonction de la fréquence de répétition de l'impulsion de tension, le signal mesuré évolue. À 30 Hz, nous pouvons notamment repérer une signature périodique, avec des diminutions abruptes. Ces signatures sont périodiques à une fréquence de 30 Hz, ce qui correspond donc à celle de la répétition de l'impulsion. À 40 Hz, ce qui est plus proche de la fréquence d'oscillation naturelle de l'écoulement, chaque maximum est plus piqué, comme si le système entraînait en résonance. À 20 Hz, ce qui correspond environ à la moitié de la fréquence d'oscillation naturelle de l'écoulement, environ une oscillation sur deux possède un maximum plus piqué.

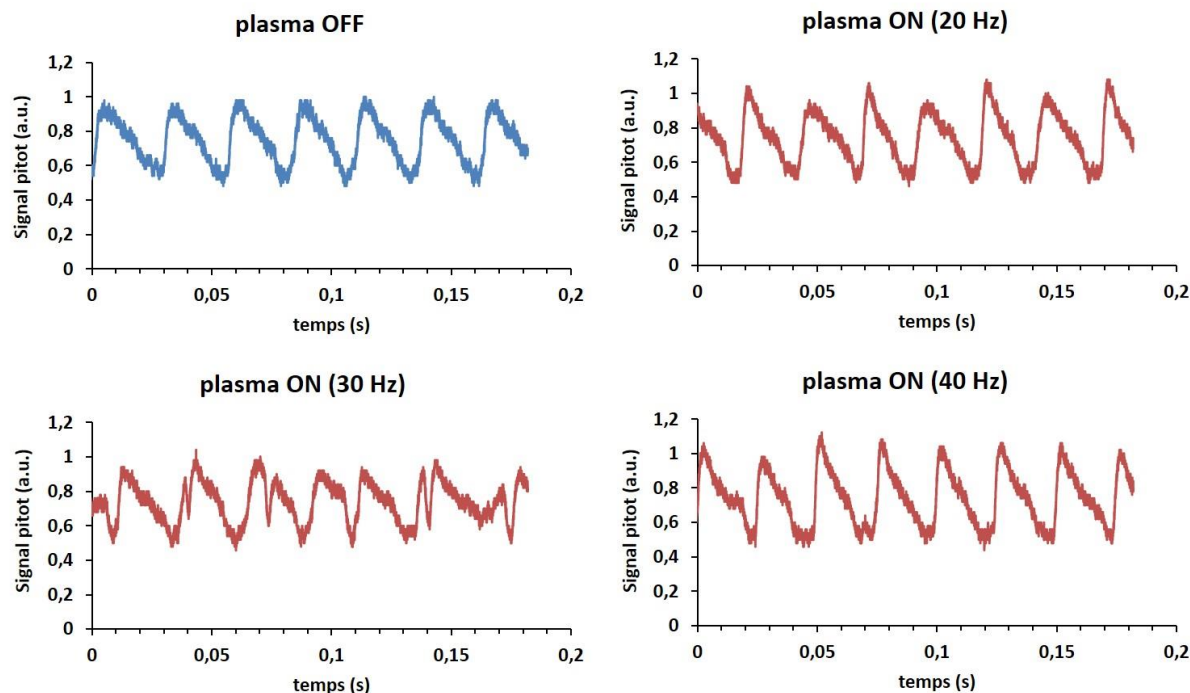


Figure A-18 : évolution de la fréquence d'oscillation naturelle de l'écoulement sans plasma et avec plasma, pour plusieurs fréquences de répétition de l'impulsion de tension.

Tout se passe donc comme si l'impulsion de tension génère, au niveau de l'électrode haute tension, une légère variation de pression qui se répercute sur la globalité de l'écoulement. Nous pouvons supposer, dès lors, que les perturbations du plasma transmises au fluide s'opèrent par ces variations de pression. Au même titre que des paramètres purement fluides (nombre de Reynolds), elles provoquent des bifurcations entre les différents modes de l'éclatement tourbillonnaire. Ces perturbations ont l'avantage d'être parfaitement contrôlables en fréquence d'application (fréquence de l'impulsion de tension), mais également en durée (durée de l'impulsion) et en amplitude (tension appliquée). Ce type d'excitation pourrait notamment permettre de comprendre plus en profondeur la physique de l'éclatement tourbillonnaire, en étudiant les réponses de l'écoulement à des perturbations qui ne seraient pas applicables autrement.

Si, a contrario, les comportements décrits de l'écoulement ne sont pas souhaités, par exemple pour des applications nécessitant un écoulement moins complexe dans le capillaire, il est également possible de se prémunir du phénomène d'éclatement tourbillonnaire. Deux solutions dans notre cas seraient possibles :

- Empêcher l'écoulement d'entrer en rotation en supprimant la partie conique de l'électrode interne avec un fond plat.
- Empêcher la formation d'un tourbillon de cœur rotationnel étroit par rapport au diamètre du capillaire (4 mm), en augmentant le diamètre de perçage dans l'électrode interne (ici 0,8 mm).

5. Bibliographie de l'annexe A

- [1] D. Fabre, "Instabilités et instationarités dans les tourbillons : Application aux sillages d'avions," Thèse de l'Université Paris VI, 2002.
- [2] P. G. Saffman, *Vortex Dynamics*. Cambridge University Press, 1992.
- [3] B. Leclaire, "Etude théorique et expérimentale d'un écoulement tournant dans une conduite," Thèse de l'Ecole Polytechnique, 2006.
- [4] J. H. Faler and S. Leibovich, "Disrupted states of vortex flow and vortex breakdown," *Phys. Fluids*, vol. 20, no. 9, p. 1385, 1977.
- [5] M. P. Escudier and J. Keller, "Recirculation in swirling flow - A manifestation of vortex breakdown," *AIAA J.*, vol. 23, no. 1, pp. 111–116, 1985.
- [6] S. Leibovich and K. Stewartson, "A sufficient condition for the instability of columnar vortices," *J. Fluid Mech.*, vol. 126, no. 1, p. 335, 1983.
- [7] S. Leibovich and D. A. Kribus, "Large-amplitude wavetrains and solitary waves in vortices," *J. Fluid Mech.*, vol. 216, pp. 459–504, 1990.
- [8] O. Lucca-Negro and T. O'Doherty, "Vortex breakdown: A review," *Prog. Energy Combust. Sci.*, vol. 27, no. 4, pp. 431–481, 2001.
- [9] J. J. Cassidy and H. T. Falvey, "Observations of unsteady flow arising after vortex breakdown," *J. Fluid Mech.*, vol. 41, no. 4, p. 727, 1970.
- [10] T. Darny, E. Robert, S. Dozias, and J. Pouvesle, "Helical Plasma Propagation of Microsecond Plasma Gun Discharges," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, vol. 42, no. 10, pp. 2506–2507, 2014.
- [11] J. M. Delery, "Aspects of vortex breakdown," *Prog. Aerosp. Sci.*, vol. 30, no. 1, pp. 1–59, 1994.
- [12] J. K. Harvey, "Some observations of the vortex breakdown phenomenon," *J. Fluid Mech.*, vol. 14, no. 4, p. 585, 1962.
- [13] T. Sarpkaya, "On stationary and travelling vortex breakdowns," *J. Fluid Mech.*, vol. 45, no. 3, p. 545, 1971.
- [14] M. Escudier, "Vortex breakdown: Observations and explanations," *Prog. Aerosp. Sci.*, vol. 25, no. 2, pp. 189–229, 1988.
- [15] T. Darny, E. Robert, D. Ries, S. Dozias, and J. M. Pouvesle, "Unexpected plasma plume shapes produced by a microsecond plasma gun discharge," *IEEE Trans. Plasma Sci.*, vol. 42, no. 10, pp. 2504–2505, 2014.
- [16] J. J. Keller and M. P. Escudier, "Theory and observations of waves on hollow-core vortices," *J. Fluid Mech.*, vol. 99, no. 3, p. 495, 1980.
- [17] R. C. Chanaud, "Experiments Concerning the Vortex Whistle," *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 35, pp. 953–960, 1963.
- [18] R. C. Chanaud, "Observations of oscillatory motion in certain swirling flows," *J. Fluid Mech.*, vol. 21, pp. 111–127, 1965.

- [19] a. K. Garg and S. Leibovich, "Spectral characteristics of vortex breakdown flowfields," *Phys. Fluids*, vol. 22, no. 11, p. 2053, 1979.
- [20] Y. C. Chao, J. H. Leu, Y. F. Hung, and C. K. Lin, "Downstream boundary effects on the spectral characteristics of a swirling flowfield," *Exp. Fluids*, vol. 10, no. 6, pp. 341–348, 1991.

Annexe B : plume plasma du jet libre en polarité négative et évolutions détaillées du champ électrique

1. Plume plasma en polarité négative (jet libre)

Nous avons, aux chapitres III et IV, évoqué l'aspect caractéristique de la plume plasma du jet libre, en polarité négative. Contrairement à la plume en polarité positive, la plume en polarité négative est plus courte, très stable et son diamètre diminue lorsque l'on s'éloigne de la sortie du capillaire.

La Figure B-1 montre une photographie de la plume plasma en polarité négative, ainsi que deux images ICCD (10 μ s d'intégration), pour une tension appliquée de 18 kV et un débit d'hélium de 2 l/min.

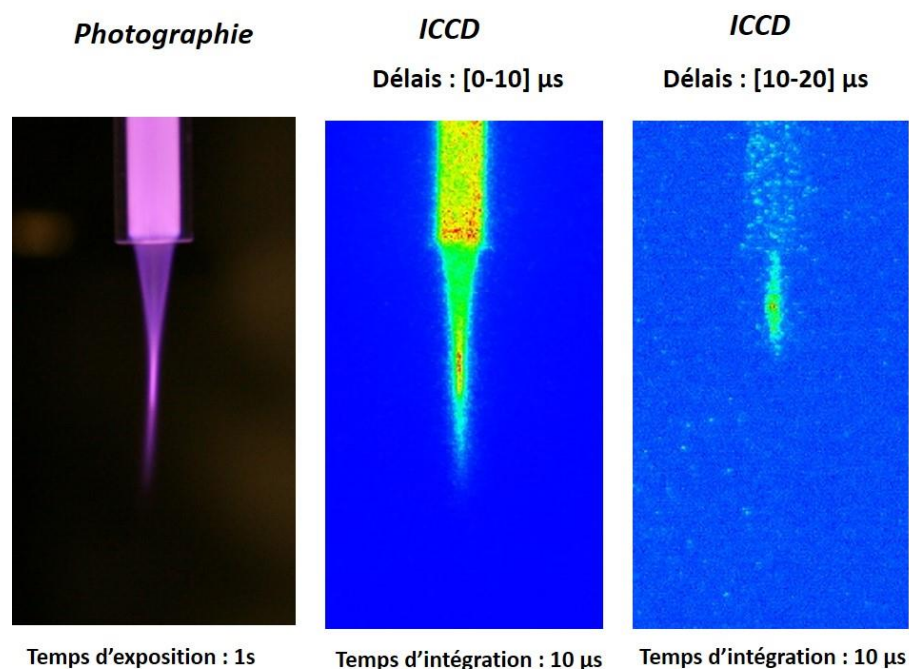


Figure B-1 : plume plasma du jet libre en polarité négative, vue en photographie classique (1 s d'exposition) et en imagerie ICCD rapide (10 μ s d'intégration), à deux délais par rapport au démarrage de l'impulsion de tension (18 kV, 1 kHz, 2l/min d'hélium).

Sur la photographie, nous pouvons voir que la plume est très fine et plus intense à son extrémité. Dans ces conditions, un très fin filament lumineux, légèrement plus intense, se distingue particulièrement bien à l'œil nu, de l'extrémité du capillaire jusqu'à partie la plus brillante de la plume, dans l'axe de symétrie du jet. Les faibles différences de contraste rend

ce filament difficile à mettre en valeur sur une photographie classique. L'imagerie ICCD intégrée entre 0 et 10 μs montre une répartition de la lumière similaire à ce qui peut être observé sur la photographie. Cette émission de lumière se produit donc dans le temps de l'impulsion de tension et intègre l'émission du front d'ionisation et la lumière de la colonne plasma. Pour des délais beaucoup plus longs, entre 10 et 20 μs , l'image ICCD de droite montre qu'une émission de lumière se produit dans la plume, étendue jusqu'à 5 mm de l'extrémité du capillaire. Pour un tel délai, la tension à l'électrode interne est très faible (environ de 100 V à 20 μs) et ne peut plus entretenir de plasma dans le capillaire.

Le fin diamètre du faisceau laser (48 μm), sur le banc optique d'absorption par laser du LPGP, nous a permis d'effectuer des déplacements très précis dans la plume plasma, dans ces conditions. À une position distante de 4,2 mm de l'extrémité du capillaire, la Figure B-2 montre l'évolution temporelle de la concentration des métastables de l'hélium, dans les mêmes conditions expérimentales que celles de la Figure B-1.

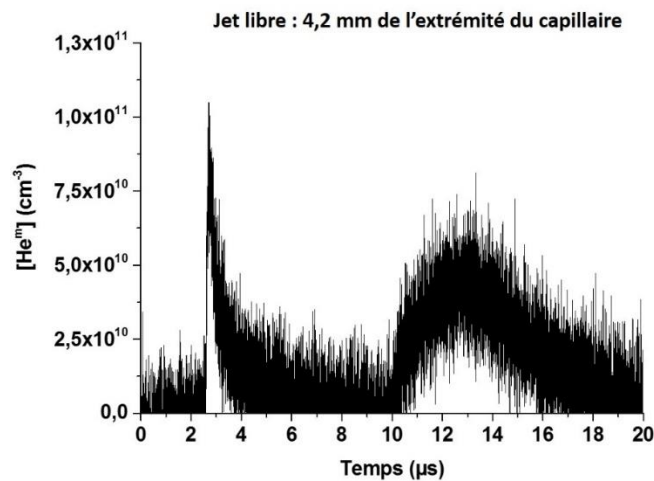


Figure B-2 : évolution de la concentration des métastables de l'hélium en jet libre, dans la plume en polarité négative, à 4,2 mm de l'extrémité du capillaire (18 kV, 1 kHz, 2l/min d'hélium).

Un peuplement des métastables de l'hélium se produit à un temps bien supérieur à celui dû à la propagation du front d'ionisation (2,7 μs , maximum proche de $1 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$). Ce peuplement tardif se produit entre 10 et 16 μs , ce qui est cohérent avec l'augmentation de la lumière observée en Figure B-1. Ces temps sont très largement supérieurs à tout ce que nous avons pu observer dans le jet en contact avec la cible. Le maximum de concentration atteint est proche de la limite de détection du dispositif, vers $6 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$.

Pour interpréter ce phénomène, nous devons nous référer à l'une de nos observations du chapitre III, consacré à la modification de l'écoulement (Figure III-41, section 6.1). Nous avons observé que le front d'ionisation en polarité négative, dans le canal d'hélium après la sortie du capillaire, ne pouvait initier le claquage de streamers dans l'air. Nous avons interprété ce phénomène par l'hypothèse d'un écrantage du champ local du front d'ionisation, par les ions négatifs de longues durées de vie (notamment NO_3^- , NO_2^- , O_2^-), présents dans le canal. Ces ions

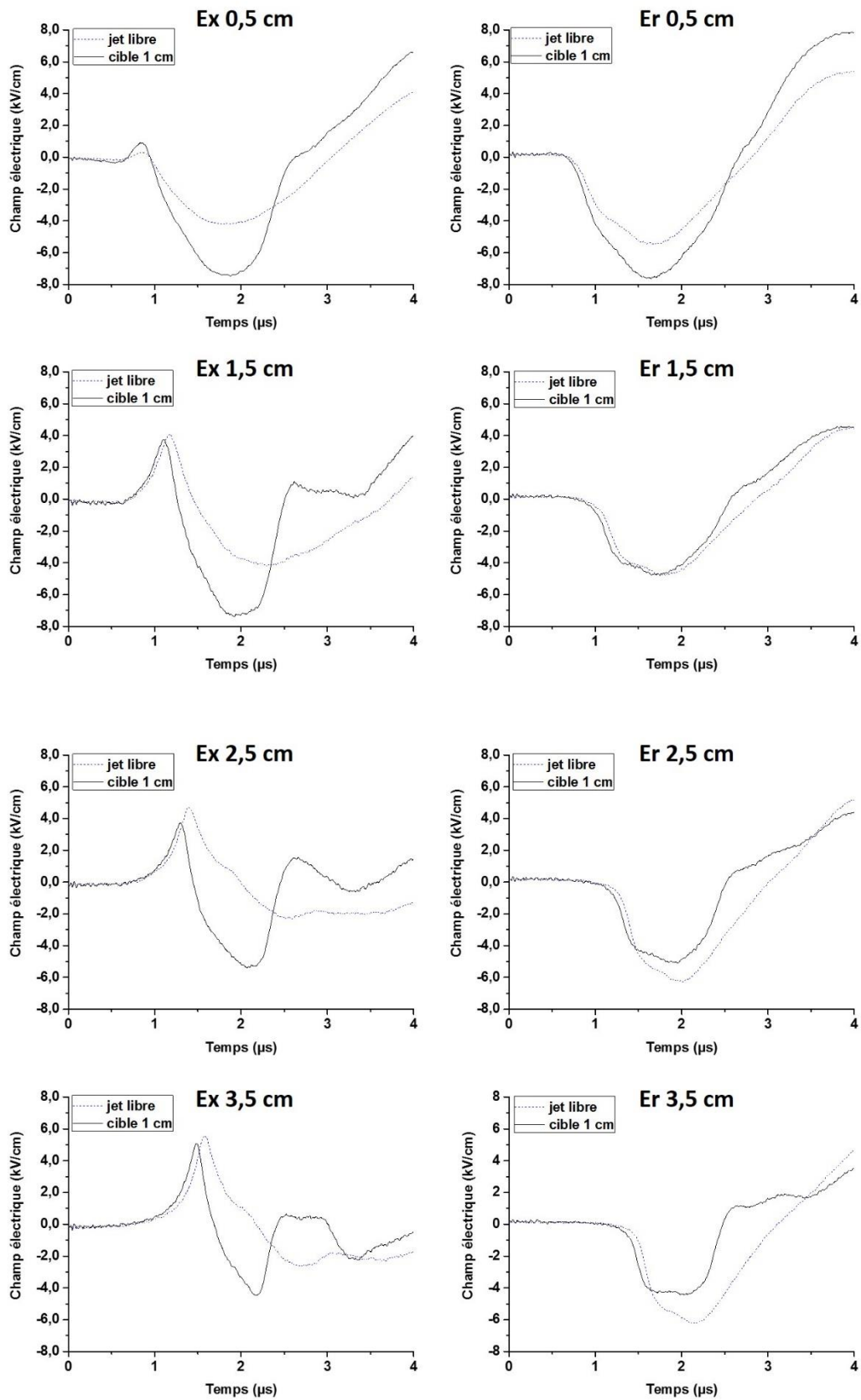
sont plus efficacement produits en polarité négative et sont nécessaires au mécanisme de canalisation. En plus de l'écrantage du champ du front d'ionisation, cette gangue d'ions négatifs de longue durée de vie pourrait, avec la génération d'ions positifs par le plasma à l'intérieur, induire une augmentation très locale du champ électrique par formations de dipôles électrostatiques et peupler à nouveau les métastables de l'hélium. Cette gangue d'ions négatifs pourrait également expliquer la forme de la fine plume observée en polarité négative (Figure B-1), par un mécanisme de focalisation électrostatique, tel que décrit par Schmidt-Bleker et al pour leur jet de plasma (« *Propagation mechanisms of guided streamers in plasma jets: the influence of electronegativity of the surrounding gas* », *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 24, no. 3, p. 035022, 2015). Dans le cas du Plasma Gun, le mécanisme de focalisation électrostatique se produirait donc naturellement dans la plume du jet libre d'hélium en polarité négative.

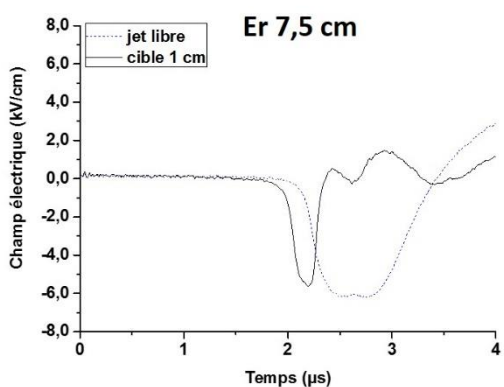
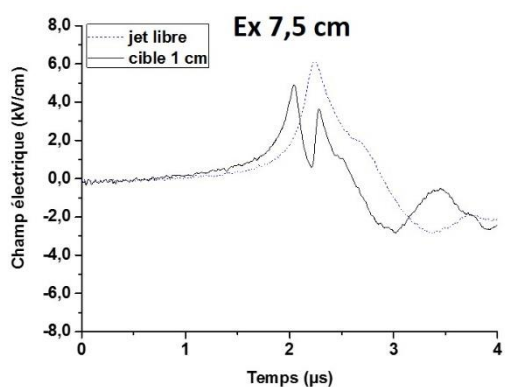
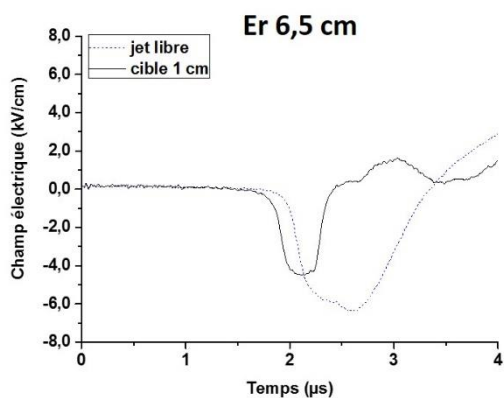
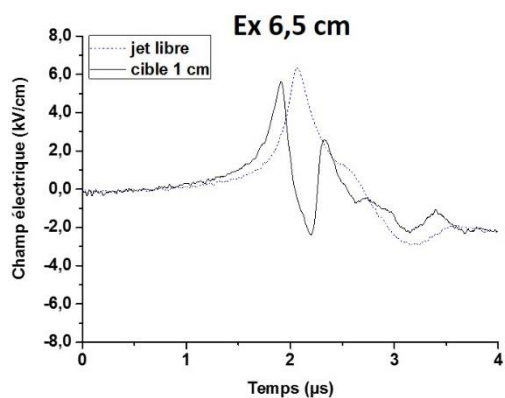
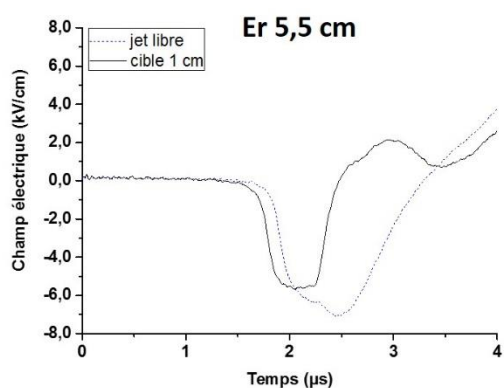
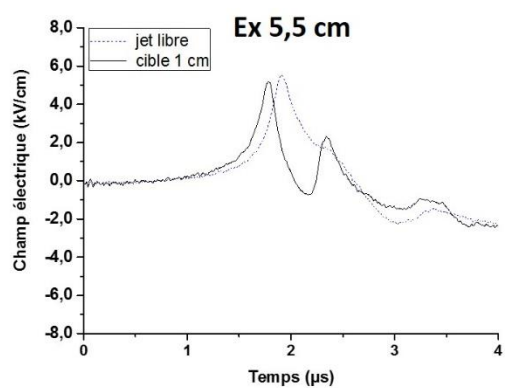
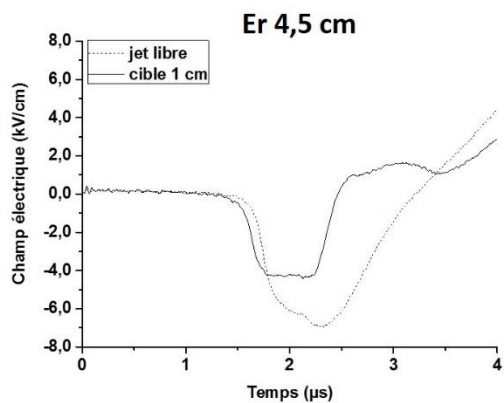
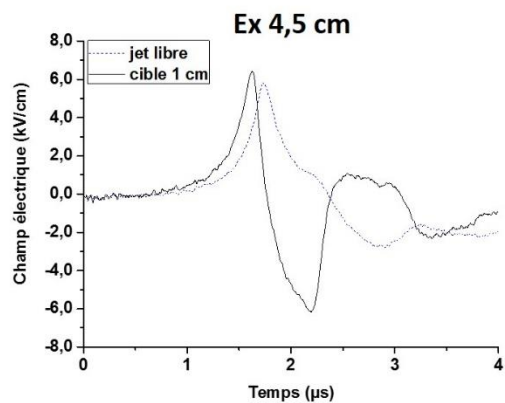
Ce champ électrique induit étant extrêmement local, il ne pourrait a priori exister en dehors de la gangue d'ions négatifs. La détection de ce champ à distance par la sonde électro optique serait donc a priori impossible. Une mesure dans la plume est difficilement envisageable, puisque placer la sonde dans la plume perturberait l'écoulement de l'hélium et cette structure risquerait d'être détruite. La mesure non intrusive de la concentration des métastables de l'hélium, par le peuplement très tardif, atteste en revanche sans ambiguïté possible de cette augmentation très local et tardive du champ électrique.

2. Evolutions détaillées du champ électrique en configurations cible à 1 cm et jet libre

La Figure B-3 et la Figure B-4 montrent les évolutions des composantes longitudinales et radiales du champ électrique tout le long du capillaire et de la plume. Elles ont été présentées en partie en section 3.4.2 du chapitre V (polarité négative) et en section 3.5.2 du chapitre V (polarité positive). La longueur du capillaire est de 8,5 cm (positions 9,0 et 9,4 cm le long de la plume plasma).

2.1 Polarité négative





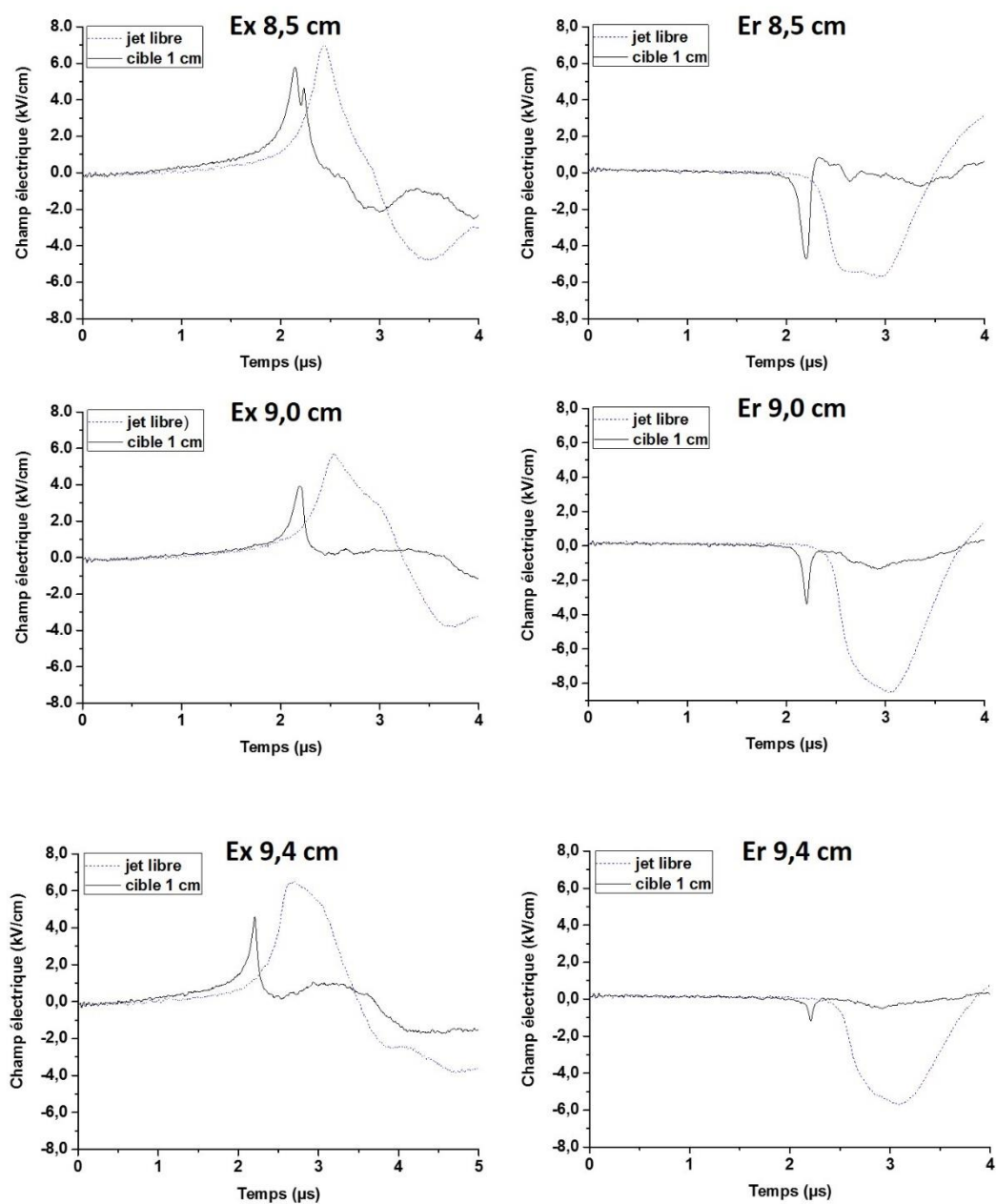


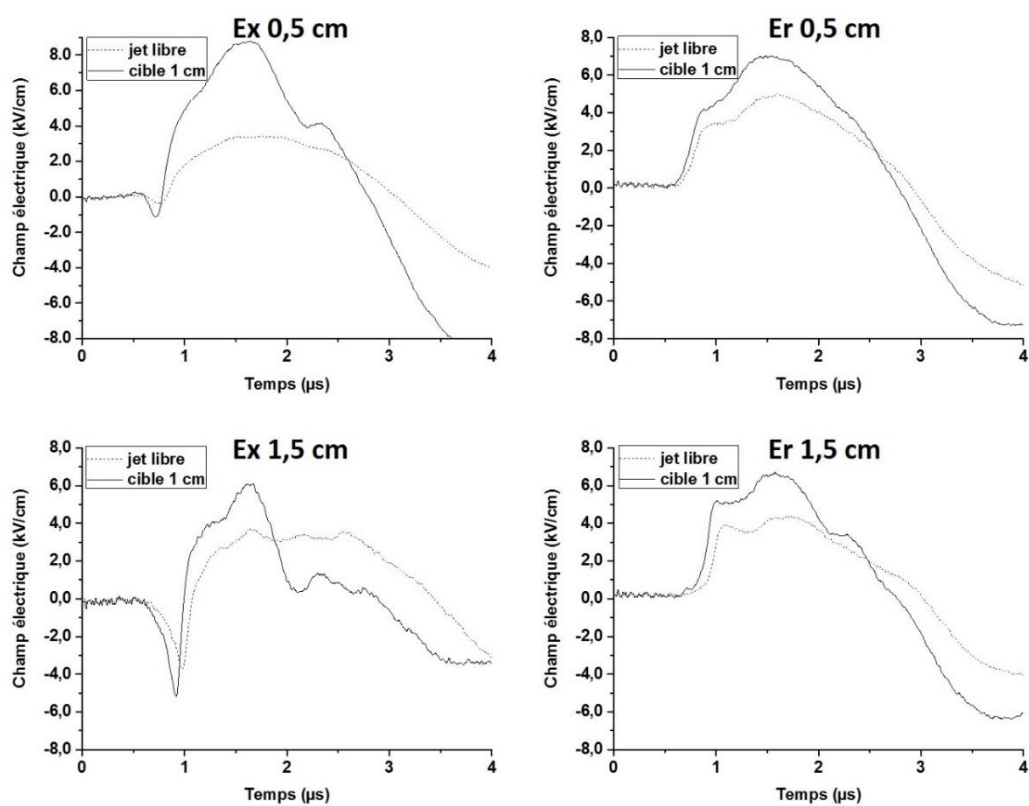
Figure B-3 : évolutions des composantes longitudinales et radiales du champ électrique le long du capillaire et de la plume, en configurations cible 1 cm et jet libre (18 kV, polarité négative)

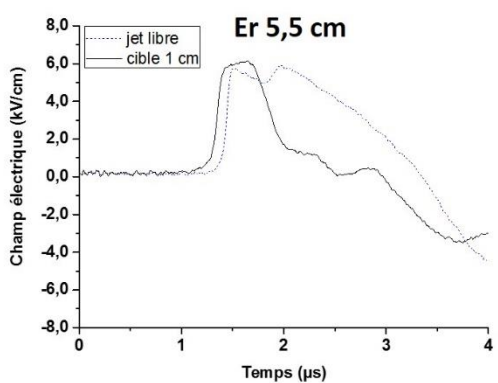
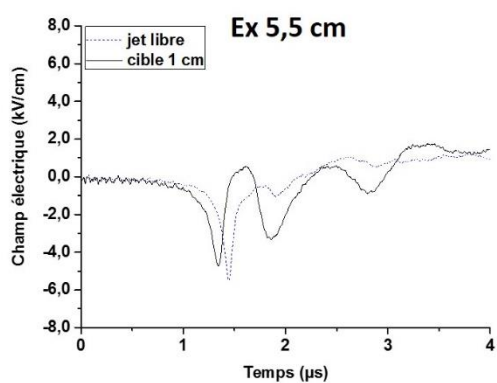
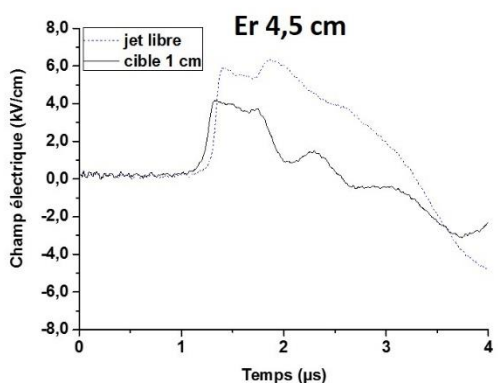
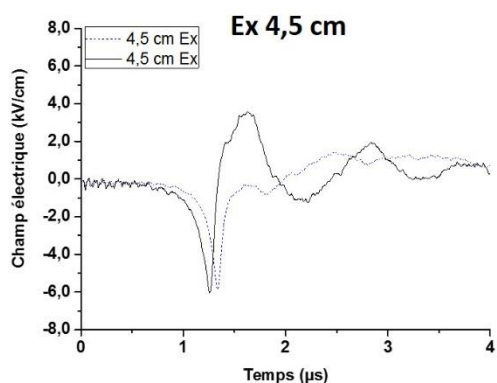
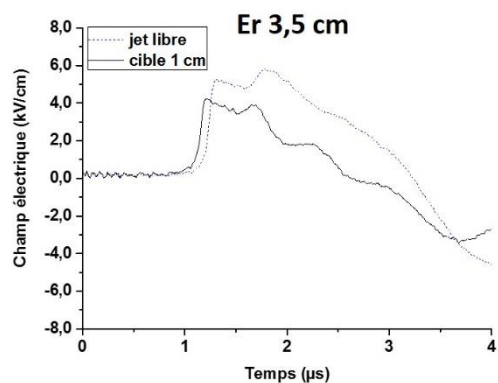
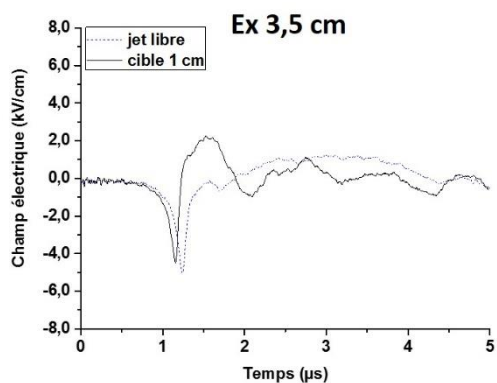
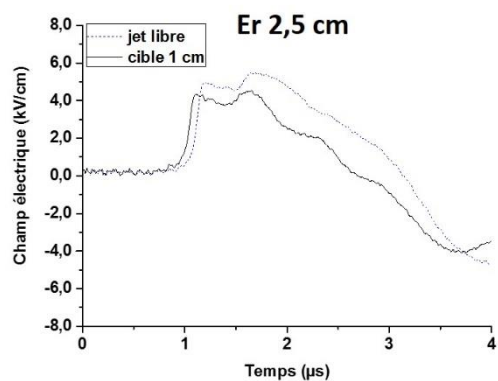
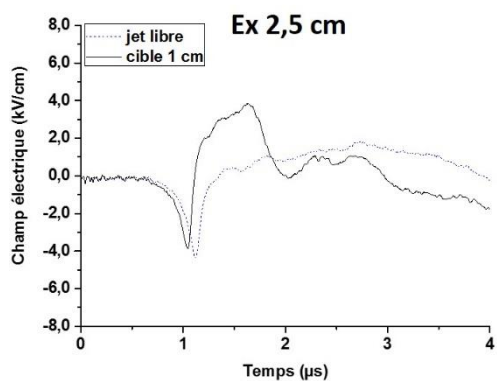
Tableau des valeurs mesurées :

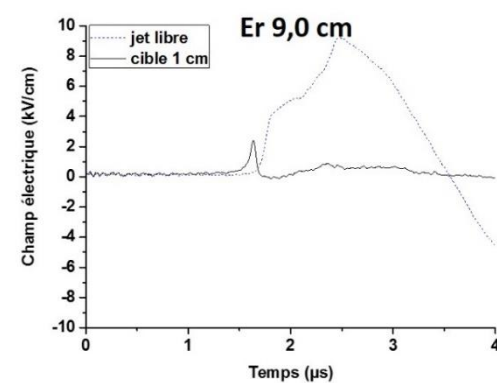
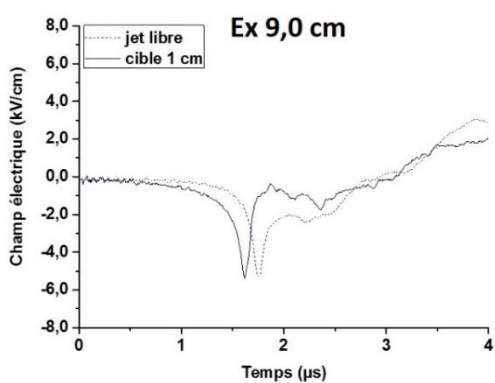
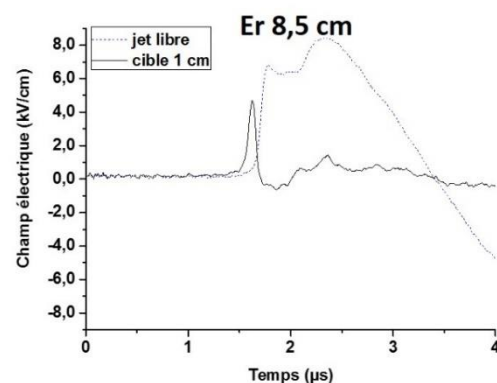
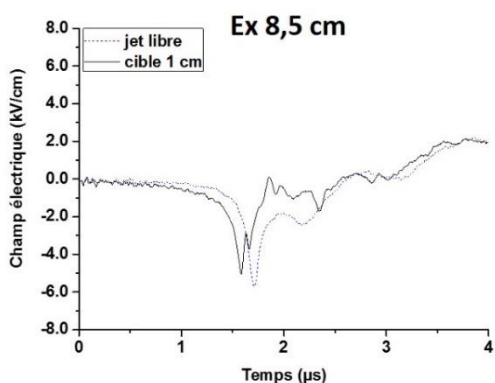
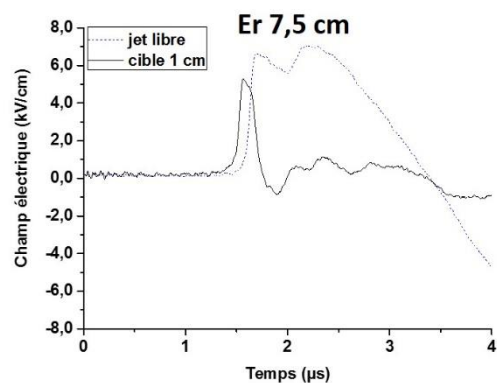
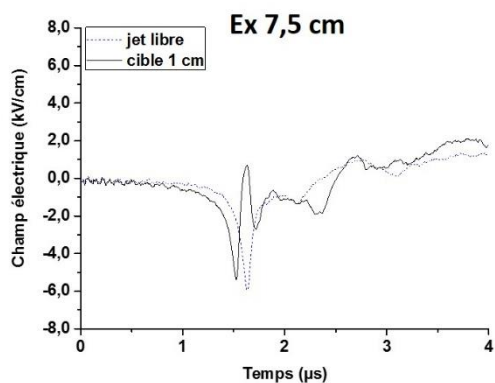
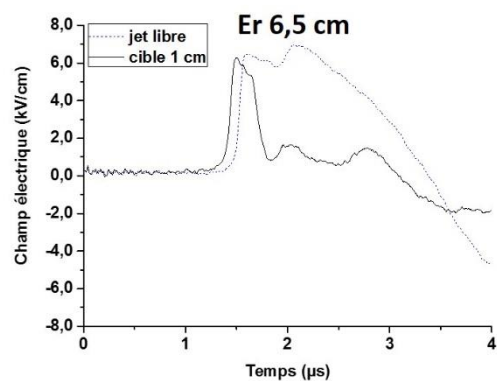
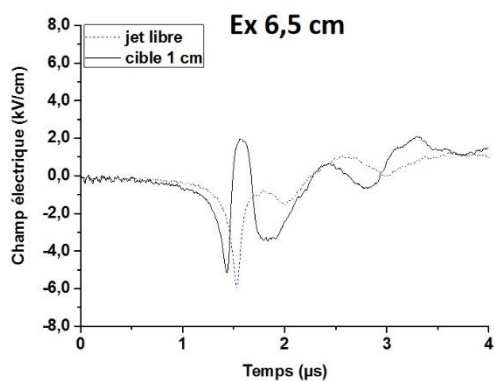
Position (cm)	Délais Δt_1 front primaire (μs)	Délais Δt_2 front secondaire (μs)
0,5	0,83	2,56
1,5	1,11	2,50
2,5	1,29	2,42
3,5	1,48	2,40
4,5	1,63	2,38
5,5	1,78	2,34
6,5	1,91	2,33
7,5	2,04	2,28
8	2,10	2,25
8,5	2,15	2,23
9	2,19	2,22
9,4	2,20	2,22

Tableau B-1 : délais des fronts d'ionisation primaire et secondaire le long du capillaire et de la plume en configuration cible à 1 cm (18 kV, polarité négative).

2.2 Polarité positive







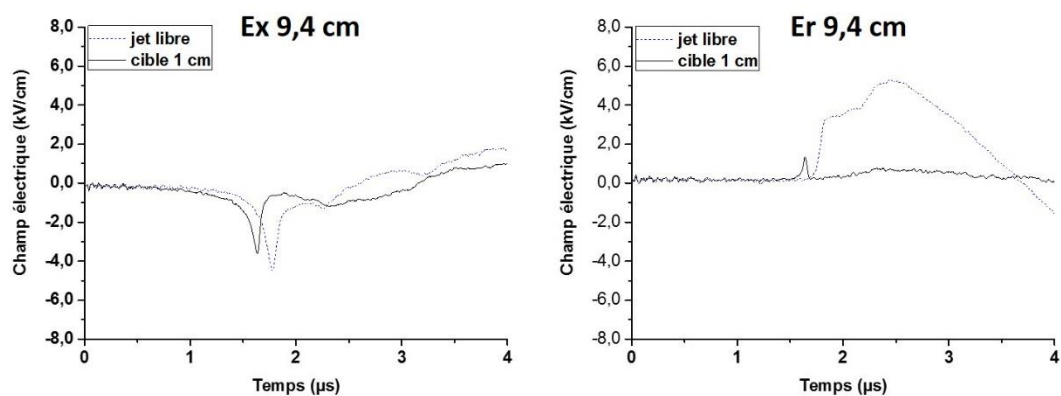


Figure B-4 : évolution des composantes longitudinales et radiales du champ électrique le long du capillaire et de la plume en configuration cible à 1 cm et jet libre (18 kV, polarité positive).

Tableau des valeurs mesurées :

Position (cm)	Délais $\Delta t_1'$ front primaire (μs)	Délais $\Delta t_2'$ front secondaire (μs)
0,5	0,72	2,22
1,5	0,92	2,14
2,5	1,05	2,03
3,5	1,16	2,00
4,5	1,26	1,88
5,5	1,34	1,83
6,5	1,43	1,79
7,5	1,52	1,72
8	1,56	1,71
8,5	1,58	1,66
9	1,62	1,64
9,4	1,63	1,64

Tableau B-2 : délais des fronts d'ionisation primaire et secondaire le long du capillaire et de la plume en configuration cible à 1 cm (18 kV, polarité positive)

Liste des figures :

Figure I-1 : principe de l'avalanche électronique primaire	17
Figure I-2 : principe de l'avalanche électronique secondaire	18
Figure I-3 : génération d'un champ de charge d'espace E_1 entre la charge négative (électrons mobiles) et la charge positive (ions fixes). (d'après [4]).	19
Figure I-4 : développement d'un streamer positif vers la cathode et représentation des lignes de champs en tête de streamer (d'après Raizer [4])	20
Figure I-5 : développement d'un streamer négatif vers l'anode et représentation des lignes de champs en tête de streamer (d'après Raizer [4])	20
Figure I-6 : nombre de publications par an entre 1988 et 2014 (issue de [22]).	23
Figure I-7 : quelques géométries de jets de plasma froid à pression atmosphérique (issue de [23], p.32).....	25
Figure I-8 : jet de plasma d'hélium de Walsh et al (issue de [58], fig.1)	26
Figure I-9 : propagation d'un plasma de néon dans un capillaire droit et un tuyau souple.....	27
Figure II-1 : photographie du Plasma Gun (a) et représentation schématique en coupe (b).....	39
Figure II-2 : schéma en coupe de la géométrie d'injection de l'hélium dans le capillaire par l'électrode interne.....	40
Figure II-3 : cible métallique en laiton reliée à la masse en contact avec la plume plasma	41
Figure II-4 schéma de l'alimentation électrique « abiopulse » du plasma Gun.....	42
Figure II-5 : évolution temporelle de l'impulsion de tension générée par l'abiopulse.....	43
Figure II-6 : émission de lumière du plasma dans le capillaire et dans la plume (intégrée par ICCD pendant 10 μ s) pour une impulsion de tension de polarité positive et une impulsion négative. La plume plasma est au contact d'une cible métallique située à 1,5 cm de l'extrémité du capillaire. .	44
Figure II-7 : mesure de la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire par des fibres optiques reliées à un tube photomultiplicateur	45
Figure II-8 : évolution du signal du PMT dans la configuration de fibres optiques présentée en Figure II-7 (tension appliquée 16 kV en polarité positive)	46
Figure II-9 : schéma des dimensions, de l'orientation et du placement de la sonde de champ le long du capillaire. 1. : sonde vue de profil ; 2. : sonde vue de dos ; 3. : représentation simplifiée de la sonde et positionnement le long du capillaire ; 4. : translation le long du capillaire.....	49
Figure II-10 : quelques niveaux d'énergie de l'atome d'hélium	51
Figure II-11 : montage optique d'absorption laser pour la mesure des métastables de l'hélium (réalisé d'après le schéma de la thèse de Claire Douat)	52

Figure II-12 : déplacement du plasma gun sur le banc optique d'absorption par laser (configuration avec cible ou jet libre)	53
Figure II-13 : schéma du montage optique de striescopie en configuration Z	55
Figure II-14 : banc optique de striescopie de l'ISAE	55
Figure II-15 : jet descendant d'hélium à un débit de 1 l/ min lorsque le capillaire est orienté vers le bas	56
Figure III-1 : contrôle d'écoulement par DBD. Le plasma est allumé sur l'image de droite et recolle l'écoulement sur l'aile (Issue de [5])	57
Figure III-2 : visualisation de l'écoulement de l'hélium par striescopie et de sa modification par le plasma. (issue de [8])	58
Figure III-3 : photographies de la plume plasma (violet) et de l'écoulement avec et sans plasma (en vert) à différents débits d'hélium (l/min). (issue de [9]).....	59
Figure III-4 : visualisation des jets d'hélium à différents débits avec et sans plasma. Colonne de gauche : jets sans plasma. Colonne au centre : jets avec plasma. Colonne de droite : plumes plasma. (issue de [10]).....	60
Figure III-5 : comparaison entre l'écoulement d'un jet d'hélium à un débit de 0,5 l/min (sans plasma) et une plume plasma au même débit (14 kV ,polarité positive), en contact avec une cible métallique située à 1 cm de l'extrémité du capillaire.	61
Figure III-6 : injection de l'hélium dans le capillaire par l'électrode interne	63
Figure III-7 : transitions entre régimes d'écoulements à vitesse d'écoulement croissante.	64
Figure III-8 : profil de vitesse parabolique de l'écoulement de Hagen-Poiseuille	66
Figure III-9 : schéma d'un jet d'hélium ascendant comportant trois régions distinctes.	67
Figure III-10 : écoulement d'un jet d'hélium pour trois débits lorsque le capillaire est orienté vers le bas (capillaire de longueur 10 cm et de diamètre interne 4 mm)	68
Figure III-11 : écoulement d'un jet d'hélium pour trois débits lorsque le capillaire est orienté vers le haut	69
Figure III-12 : régimes d'écoulement pour différents Reynolds en sortie d'un capillaire de 15 cm de longueur	70
Figure III-13 : évolution de l'écoulement au cours du temps (Reynolds 135) à la sortie d'un capillaire de 15 cm.	70
Figure III-14: évolution de l'écoulement au cours du temps (Reynolds 225) à la sortie d'un capillaire de 15 cm.	71
Figure III-15 : régimes d'écoulement pour différents Reynolds en sortie d'un capillaire de 10 cm de longueur	71
Figure III-16 : évolution de l'écoulement au cours du temps (Reynolds 135) à la sortie d'un capillaire de 10 cm.	72

Figure III-17 : régimes d'écoulement pour différents Reynolds en sortie d'un capillaire de 5 cm de longueur	73
Figure III-18 : évolution de l'écoulement au cours du temps (Reynolds 135) à la sortie d'un capillaire de 5 cm.	73
Figure III-19 : évolution de l'écoulement au cours du temps (Reynolds 90) à la sortie d'un capillaire de 5 cm.	74
Figure III-20 : formation d'une zone de recirculation en aval d'une marche et évolution de l'écoulement (d'après [15]).....	76
Figure III-21 : éclatement tourbillonnaire présentant une bulle de recirculation axisymétrique et une queue en spirale (issue de [20])	78
Figure III-22 : évolution de l'écoulement au cours du temps, avec plasma, à la sortie d'un capillaire de 10 cm (Reynolds 135). Le plasma ne se propage que sur les premiers centimètres du capillaire (4,5 kV en polarité positive).	80
Figure III-23 : transitions entre régimes d'écoulement provoquées par plasma pour deux débits d'hélium et deux longueurs de capillaire ((a) : 5 cm, (b) : 15 cm) (publié dans [24])	81
Figure III-24 : évolution de l'écoulement pour les 50 premières ms après activation du plasma (a) et évolution de la plume plasma ICCD (5 ms d'intégration) dans le même temps (b). : évolution de l'écoulement pour les 50 premières ms après extinction du plasma (c). (publié dans [24]).....	82
Figure III-25 : influence sur la longueur du jet d'une cible métallique à la masse, à 4 cm de l'extrémité du capillaire (10 kV, polarité négative)	83
Figure III-26 : influence sur la longueur du jet de la polarité de la tension appliquée (10 kV), pour une cible métallique à la masse située à 4 cm de l'extrémité du capillaire.....	84
Figure III-27 : influence sur la canalisation du jet de la polarité de la tension appliquée (10 kV), pour une cible métallique à la masse située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.	84
Figure III-28 : construction et évolution du canal d'hélium à une tension appliquée de 10 kV (fréquence 2 kHz) pour les polarités positive et négative. La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.....	86
Figure III-29 : construction et évolution du canal d'hélium à une tension appliquée de 14kV (fréquence 2 kHz) pour les polarités positive et négative. La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.....	87
Figure III-30 : destruction progressive du canal d'hélium après extinction du plasma (plasma ON : 14 kV ,2 kHz), pour les polarités positive et négative. La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.	88
Figure III-31 : influence de la fréquence de répétition de l'impulsion de tension sur la construction du canal d'hélium (14 kV, polarité négative). La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.	89

Figure III-32 : plume plasma (ICCD 1 ms) avec un canal d'hélium structuré (conditions Figure III-29,) en polarité positive et négative à une tension appliquée de 14 kV et une fréquence de 2 kHz. La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.....	91
Figure III-33 : influence de la tension appliquée sur la canalisation du jet d'hélium (2 kHz, polarité négative)). La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.	92
Figure III-34 : influence de la cible et de sa nature électrique sur la vitesse de poussée du jet, comparée au jet libre (14 kV, 2 kHz, polarité négative). La cible métallique est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.	95
Figure III-35 : influence d'une cible métallique à la masse et d'une cible métallique flottante sur l'évolution du canal, comparée au jet libre (14 kV, 2 kHz, polarité négative). La cible métallique est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.	96
Figure III-36 : influence de la distance de la cible métallique à la masse sur l'étalement de l'hélium (14 kV, 2 kHz, polarité négative).	97
Figure III-37 : influence de la nature de la cible (cible métallique à la masse et cible diélectrique) sur l'étalement de l'hélium. La cible est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.....	98
Figure III-38 : évolution du jet d'hélium à tension appliquée de 14kV en polarité négative (2 kHz), sur une vidéo cadencée à 1000 images/s. La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.	99
Figure III-39 : évolution du jet d'hélium à tension appliquée de 18kV (2 kHz), en polarité positive et négative. La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.	102
Figure III-40 : images ICCD du front d'ionisation en polarité positive (intégrées sur 50 ns) dans le jet d'hélium (visible par strioscopie), à l'impulsion correspondant aux temps 10 ms et 25 ms après démarrage du cycle. (18 kV, 2kHz, cible à 2cm). Des streamers se développent dans l'air entre l'extrémité du jet d'hélium et la cible.	103
Figure III-41 : images ICCD du front d'ionisation en polarité négative (intégrées sur 50 ns) dans le jet d'hélium (visible par strioscopie) à l'impulsion correspondant aux temps 10 ms et 25 ms après démarrage du cycle. (18 kV, 2kHz, cible à 2cm). Un streamer se développe dans l'air entre l'extrémité du jet et la cible, lorsque le jet est assez proche de la surface.....	103
Figure III-42 : image de gauche : plasma dans un canal non stabilisé, à la 50 ^{ème} impulsion positive. Image de droite : plasma à la 1 ^{ère} impulsion positive dans un canal stabilisé. Le canal de gaz est préalablement préparé par la répétition de 50 impulsions négatives La cible métallique à la masse est située à 2 cm de l'extrémité du capillaire.	104
Figure IV-1 : tracé vectoriel du champ électrique à une position donnée du front d'ionisation. Les vecteurs champs électriques sont représentés par une flèche noire sur la colonne de gauche. (issue de de [11] (p.5)).....	115
Figure IV-2 : schéma du positionnement et de l'orientation de la sonde de champ le long du capillaire du Plasma Gun.....	118

Figure IV-3 : configuration du Plasma Gun et du placement de la sonde pour mesurer l'évolution du champ électrique de l'électrode interne (Ex : composante longitudinale, parallèle au capillaire, Er : composante radiale, perpendiculaire au capillaire).	119
Figure IV-4 : évolution temporelle des composantes longitudinale (Ex) et radiale (Er) du champ électrique de l'électrode interne (sans plasma)	120
Figure IV-5 : évolution temporelle de la composante longitudinale du champ électrique pour trois positions le long du capillaire. Les pics du PMT indiquent le passage du front d'ionisation devant trois fibres optiques aux mêmes positions (16 kV, polarité positive). Les signes des composantes longitudinales sont inversés sur la figure.....	121
Figure IV-6 : évolution temporelle des composantes longitudinale et radiale du champ électrique pour trois positions de la sonde le long du capillaire (16 kV, polarité positive).....	122
Figure IV-7 : distribution des lignes équipotentielles du champ électrique dans une géométrie simplifiée de notre dispositif expérimental.	123
Figure IV-8 : évolution temporelle de la composante longitudinale du champ électrique pour dix positions de la sonde le long du capillaire (16 kV, polarité positive).....	124
Figure IV-9 : évolution temporelle de la composante radiale du champ électrique pour dix positions de la sonde le long du capillaire (16 kV, polarité positive).	125
Figure IV-10 : évolution temporelle de la composante longitudinale du champ électrique pour dix positions de la sonde le long du capillaire (16 kV, polarité négative).	127
Figure IV-11 : évolution temporelle de la composante radiale du champ électrique pour dix positions de la sonde le long du capillaire (16 kV, polarité négative).	128
Figure IV-12 : évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire en polarités positive et négative (16 kV).....	129
Figure IV-13 : image ICCD du plasma (intégrée 10 μ s) dans le cas d'une impulsion de tension de polarité positive ou négative (tension appliquée 16 kV, capillaire de 10 cm).	130
Figure IV-14 : évolution temporelle des composantes longitudinale et radiale du champ électrique pour deux positions de la sonde le long d'un capillaire de 40 cm (hélium, 16 kV, polarité positive). L'évolution de l'impulsion de tension est tracée en pointillés.	131
Figure IV-15 : évolution temporelle des composantes longitudinale et radiale du champ électrique pour une position légèrement inférieure et légèrement supérieure à la distance limite de propagation du plasma en lumière visible (33 cm) (hélium, 16 kV, polarité positive).	132
Figure IV-16 : évolution temporelle des composantes longitudinale et radiale du champ électrique pour trois positions de la sonde le long du capillaire (néon, 16 kV, polarité positive).....	133
Figure IV-17 : augmentation de la longueur de propagation du plasma par mélange d'une faible concentration d'azote dans l'hélium (0,1 % soit 1 ml/min de N ₂ pour 1000 ml/min de He)	136
Figure IV-18 : évolution de la lumière du PAPS dans le capillaire recueillie par une fibre optique et visualisée en imagerie rapide ICCD dans le cas hélium (i.e 0 % N ₂) et hélium + 0,1 % N ₂ . Les images sont intégrées 20 ns au même instant dans les deux cas.	137

Figure IV-19 : évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire pour l'hélium sans azote et avec 0,1 % d'azote.....	137
Figure IV-20 : images ICCD de la structure du front d'ionisation en fonction de la concentration d'azote dans l'hélium (20 ns d'intégration)	138
Figure IV-21 : évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire (entre 2 et 8 cm) en fonction de la tension appliquée pour l'hélium sans azote, avec 0,1 % d'azote et 0,2 % d'azote.....	139
Figure IV-22 : évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire (entre 2 et 8 cm) en fonction de la concentration d'azote pour deux tensions appliquées.	140
Figure IV-23 : signaux du PMT associés au passage du front d'ionisation devant les fibres optiques et évolution de l'impulsion de tension (10 kV et 16 kV appliquées, hélium sans azote et avec 0,1 % d'azote).....	141
Figure IV-24 : évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation le long capillaire (entre 2 et 5 cm et entre 5 et 8 cm) en fonction de la concentration d'azote (10 kV appliquée).	142
Figure IV-25 : évolution des spectres d'émission du plasma dans le capillaire pour différentes concentrations d'azote mélangées à l'hélium (16 kV appliquée).....	143
Figure IV-26 : évolution du rapport de l'intensité de l'émission de N_2^+ à 391,4 nm et du N_2 à 337,1 nm en fonction de la concentration d'azote mélangée à l'hélium.	144
Figure IV-27 : géométrie de décharge du modèle numérique, issue de [21].	145
Figure IV-28 : schéma du plasma gun en électrode haute tension externe, centré dans un cylindre métallique relié à la masse.....	146
Figure IV-29 : évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire (entre 2 et 8 cm) en fonction de la concentration d'azote pour deux tensions appliquées (géométrie électrode externe).....	147
Figure IV-30 : évolution de l'impulsion de tension et signaux du PMT associés au passage du front d'ionisation devant les fibres optiques (10 kV et 16 kV appliquées, hélium sans azote et avec 0,1 % d'azote, géométrie électrode externe).	148
Figure IV-31 : évolution de la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire entre 5 cm et 8 cm en fonction de la tension instantanée avec et sans azote (géométrie électrode externe).	149
Figure IV-32 : évolution de l'impulsion de tension et signaux du PMT associés au passage du front d'ionisation devant les fibres optiques en géométrie électrode interne lorsque la bague externe est à la masse ou flottante.....	150
Figure IV-33 : évolution de l'impulsion de tension et signaux du PMT associés au passage du front d'ionisation devant les fibres optiques dans la géométrie électrode interne (sans bague de masse) et externe. Les deux dispositifs sont placés au centre du cylindre relié à la masse.....	150
Figure IV-34 : schéma cinétique du modèle, issue de [21].	152

Figure IV-35 : évolution de la vitesse de propagation le long du capillaire pour différents taux de pré-ionisation initiaux (16 kV appliquée, 1000 ppm de N ₂) issue de [21].	154
Figure IV-36 : influence de la cinétique sur la vitesse de propagation du front d'ionisation le long du capillaire (16 kV appliquée, 1000 ppm d'azote), Issue de [21].	155
Figure IV-37 : réactions cinétiques additionnelles au schéma cinétique de référence. Issue de [21]	155
Figure IV-38 : comparaison des évolutions temporelles des composantes longitudinales et radiales du champ électrique mesurées expérimentalement et calculées par le modèle (16 kV, 0,1 % N ₂), Issue de [21].	157
Figure IV-39 : comparaison des évolutions temporelles des composantes longitudinale et radiale du champ électrique dans un cas sans et avec (0,1 %) azote (16 kV appliquée).	158
Figure IV-40 : résultats du modèle sur l'évolution du champ électrique le long du capillaire, sur l'axe de symétrie (a) et localement au front d'ionisation proche de la paroi (b) pour plusieurs concentrations d'azote. Issue de [21]	159
Figure IV-41 : images ICCD de la propagation du plasma dans le capillaire de 10 cm en hélium sans azote et avec 0,1 % d'azote, en polarité négative. Les images sont intégrées 20 ns aux mêmes délais.	161
Figure V-1 : plume plasma en contact avec une souris anesthésiée (photo Guillaume Collet) et plume plasma en jet libre	167
Figure V-2 : plumes plasma en contact avec la peau d'une souris (photo Guillaume Collet (a)), avec une cible métallique reliée à la masse (b) et avec une cible diélectrique (c). La tension appliquée est de 14 kV, le débit 1l/min (b et c) et 0,5 l/min (a). Temps de poses : 0,25 s (a et b) et 0,5 s (c)	168
Figure V-3 : évolution de l'intensité de l'émissions lumineuse de N ₂ * et N ₂ +* en polarités positive (a) et négative (b) à 1 mm de la surface de la cible (issue de [39] figure 14).	170
Figure V-4 : jet de plasma de Yonemori et al, en contact avec une peau de rat [43] (figure 4).	171
Figure V-5 : jet de plasma de Sakiyama et al [50] (fig.1).	171
Figure V-6 : jets de plasma d'hélium en interaction mutuelle (thèse de Claire Douat, [33] fig.5-12 p.166).	172
Figure V-7 : photographies des plumes plasma en configuration cible 1,5 cm (temps de pose 0,25s) et en jet libre (temps de pose 1 s) (14 kV, 1 kHz, polarité positive).	173
Figure V-8 : spectres d'émission dans la plume à 4 mm de la sortie du capillaire en configuration cible 1,5 cm et en jet libre (14 kV, 1 kHz, polarité positive).	174
Figure V-9 : spectres d'émission dans la plume à 4 mm de la sortie du capillaire en configuration cible 1,5 cm et en jet libre (14 kV, 1 kHz, polarité positive).	174
Figure V-10 : spectre d'émission de la plume plasma à 2 mm de la surface de la cible (14 kV, 1 kHz, polarité positive).	175

Figure V-11 : dynamique de la plume plasma (ICCD intégrée 20 ns) en configuration cible 1,5 cm (14 kV, 1 kHz, polarité positive).....	175
Figure V-12 : dynamique de la plume plasma (ICCD intégrée 20 ns) en configuration cible 1,5 cm (14 kV, 1 kHz, polarité négative).	176
Figure V-13 : émissions lumineuses de He^* , N_2^{+*} et N_2^* dans la plume plasma en configuration cible 1 cm et en jet libre. La zone de visée couvre 5 mm, sur la partie inférieure de la plume (14 kV, 1 kHz, polarité positive).	177
Figure V-14 : émissions lumineuses de O^* , OH^* et NO^* dans la plume plasma en configuration cible 1 cm. La zone de visée couvre 5 mm, sur la partie inférieure de la plume (14 kV, 1 kHz, polarité positive).	178
Figure V-15 : Plasma Gun en configurations jet libre et cible 1,5 cm, pour deux tensions appliquées (14 et 18 kV, 1 kHz, polarité positive).	179
Figure V-16 : dynamique de propagation du plasma (ICCD intégrée 20 ns) dans le capillaire et dans la plume en configuration cible 1,5 cm (14 kV, 1 kHz, polarité positive).....	179
Figure V-17 : spectres d'émission du plasma à travers le capillaire (à 5 cm de la bague de masse) en configurations cible 1 cm et en jet libre (14 kV, 1 kHz, polarité positive).	180
Figure V-18 : émission lumineuse de N_2^{+*} dans le capillaire (à 1 cm de la bague de masse) en configuration cible 1,5 cm et en jet libre. La zone de visée couvre 5 mm, (14 kV, 1 kHz, polarité positive).	181
Figure V-19 : évolution temporelle de la concentration des métastables de l'hélium dans le capillaire (4,5 cm de l'électrode de masse) en jet libre (18 kV, polarité négative, 1 kHz).	183
Figure V-20 : évolutions temporelles de la concentration des métastables de l'hélium pour trois positions dans le capillaire en configurations jet libre, cible 2 cm et cible 1 cm (18 kV, polarité négative, 1 kHz).	184
Figure V-21: évolution du maximum de concentration des métastables de l'hélium le long du capillaire en configurations jet libre, cible 2 cm et cible 1 cm (18 kV, polarité négative, 1 kHz).	185
Figure V-22 : évolutions temporelles de la concentration des métastables de l'hélium pour trois positions dans la plume plasma en configurations jet libre, cible 2 cm et cible 1 cm (18 kV, polarité négative, 1 kHz).	186
Figure V-23 : évolutions temporelles de la concentration des métastables de l'hélium pour trois positions dans le capillaire en configurations jet libre, cible 2 cm et cible 1 cm (18 kV, polarité positive, 1 kHz).	188
Figure V-24 : évolution du maximum de concentration des métastables de l'hélium le long du capillaire en configuration jet libre, cible 2 cm et cible 1 cm (18 kV, polarité positive, 1 kHz).	189
Figure V-25 : évolutions temporelles de la concentration des métastables de l'hélium pour trois positions dans la plume en configurations jet libre, cible 2 cm et cible 1 cm (18 kV, polarité positive, 1 kHz).	190

Figure V-26 : délais d'initiation des peuplements des métastables de l'hélium dans le capillaire et dans la plume, par rapport au démarrage de l'impulsion de tension (18 kV, 1kHz, polarité négative, cible 1 cm).	191
Figure V-27 : évolution des délais des trois peuplements des métastables de l'hélium dans le capillaire et dans la plume (18 kV, 1kHz, polarité négative, cible 1 cm).	192
Figure V-28 : comparaison des évolutions temporelles des composantes longitudinales et radiales du champ électrique le long du capillaire (5,5 cm), en configurations cible à 1 cm et jet libre (18 kV, 1 kHz, polarité négative).	194
Figure V-29 : évolution des délais du front d'ionisation primaire et du front secondaire, le long du capillaire et de la plume, déterminée par les évolutions des composantes longitudinales et radiales du champ électrique (18 kV, 1kHz, polarité négative, cible 1 cm).	195
Figure V-30 : évolution de la composante radiale du champ électrique dans la plume(9,4 cm) en configurations jet libre et cible 1 cm (18 kV, 1 kHz, polarité négative).	196
Figure V-31 : évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique à 9,4 cm, soit 1 mm au dessus de la surface de la cible (18 kV, 1 kHz, polarité négative, cible 1 cm).	197
Figure V-32 : délais d'initiation des peuplements des métastables de l'hélium dans le capillaire et dans la plume, par rapport au démarrage de l'impulsion de tension (18 kV, 1kHz, polarité positive, cible 1 cm).	198
Figure V-33 évolutions des délais des trois peuplements des métastables de l'hélium dans le capillaire et dans la plume (18 kV, 1kHz, polarité positive, cible 1 cm).	199
Figure V-34 : comparaison des évolutions temporelles des composantes longitudinales et radiales du champ électrique le long du capillaire (5,5 cm) en configurations cible à 1 cm et jet libre (18 kV ,1 kHz, polarité positive).....	200
Figure V-35 : évolution des délais du front d'ionisation primaire et du front secondaire le long du capillaire et de la plume, déterminée par les évolutions des composantes longitudinales et radiales du champ électrique (18 kV, 1kHz, polarité positive, cible 1 cm).	201
Figure V-36 : évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique à 9,4 cm, soit 1 mm au dessus de la surface de la cible (18 kV, 1 kHz, polarité positive, cible 1 cm).	201
Figure V-37 : évolution temporelle du courant, mesurée aux bornes d'une résistance de 100 Ohms, branchée en série sur la cible métallique reliée à la masse. L'impulsion de tension appliquée à l'électrode interne est également illustrée (18 kV, 1 KHz, polarité négative, cible 1 cm).....	202
Figure V-38 : évolution temporelle du courant, mesurée aux bornes d'une résistance de 100 Ohms, branchée en série sur la cible métallique reliée à la masse. L'impulsion de tension appliquée à l'électrode interne est également illustrée (18 kV, 1 KHz, polarité positive, cible 1 cm).....	203
Figure V-39 : évolution dans le capillaire (5,5 cm) de la concentration des métastables de l'hélium pour trois valeurs de tensions appliquées en polarité positive et négative (configuration cible à 1 cm).....	207

Figure V-40 : évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique dans le capillaire (3,5 cm) en configurations cible à 1 cm (18 kV, 1 kHz, polarité positive).	209
Figure V-41 : évolution de la concentration des métastables de l'hélium dans le capillaire (3,5 cm) en configuration cible 1 cm (18 kV, 1 kHz, polarité positive).	210
Figure V-42 : dynamique de propagation des fronts secondaire et ultérieurs dans la colonne plasma, liée au temps relevés sur les peuplements des métastables de l'hélium à 3,5 cm (18 kV, 1 kHz, polarité positive, cible 1 cm).	211
Figure V-43 : évolution de la concentration des métastables de l'hélium dans le capillaire (4,5 cm) en fonction de la concentration d'azote mélangée à l'hélium (12 kV, 1 kHz, jet libre).....	213
Figure V-44 : évolution de la concentration des métastables de l'hélium dans le capillaire et dans la plume, pour plusieurs concentrations d'azote, en configuration cible 1 cm. Les différents peuplements sont numérotés par le passage d'un front à chacune des positions. (18 kV, 1 kHz, polarité positive)	214
Figure V-45 : évolution des composantes longitudinales et radiales du champ électrique à la position 4,5 cm, pour plusieurs concentrations d'azote, en configuration cible à 1 cm (18 kV, 1 kHz, polarité positive).....	216
Figure V-46 : photographie standard du jet et dynamique de propagation du plasma (ICCD 20 ns) en configuration cible 1,5 cm avec 0,5 % d'azote (14 kV, 1 kHz, polarité positive).	217
Figure V-47 : spectre d'émission du plasma dans le capillaire (à 3 cm de la bague de masse), conditions de la Figure V-46.....	217
Figure V-48 : évolution des composantes longitudinale et radiale du champ électrique le long du capillaire (5,5 cm) et de la plume (9,4 cm) en jet libre (18 kV, 1 KHz, polarité positive).....	221
Figure V-49 : évolution des profils d'émissions lumineuses de N_2^* et N_2^{**} dans la plume en jet libre (14 kV, 1 kHz, polarité positive).	221
Figure A-1 : représentations schématisques d'une onde de Kelvin axisymétrique ($m=0$), hélicoïdale ($m=1$) et en double hélice ($m=2$) (issue de [1] figure 5.1 p.67).....	236
Figure A-2 : éclatement du vortex en double hélice (issue de [9], fig.3).	237
Figure A-3 : plasma en hélice (image de gauche) et double hélice (image de droite) dans le capillaire	237
Figure A-4 : évolution graduelle d'une hélice simple en colonne par augmentation de la fréquence de répétition de l'impulsion de tension (publiée dans [10]).	238
Figure A-5 : simulation numérique calculant les lignes courant pour différents modes (issue de la revue [11], d'après un résultat de Ito et al)	239
Figure A-6 : structure en colonne sans hélice (issue de [9], fig.2)	239
Figure A-7 : bulles de recirculation éclatant en colonne (image de gauche issue de [12]) et éclatant en hélice (image de droite issue de [13]).	240

Figure A-8 : éclatement du vortex colonnaire en double hélice, en approchant une pointe à la masse à 5 cm du capillaire (vue de côté et de face) (b). Plume plasma en dard à la sortie d'un capillaire effilé (c).....	240
Figure A-9 : (a) plume plasma observée en sortie d'un capillaire effilé (1 mm de diamètre en sortie) , (b) formation d'un vortex de type bulle issue de [14], (c) structure de vortex en bulle stabilisé avec bulle stagnante issue de [14].	241
Figure A-10 : (a) Plumes plasma en fonction du débit à une fréquence fixée. (b) Plumes plasma en fonction de la fréquence à un débit fixé. (c) Plumes plasma similaires en fonction d'un couple débit-fréquence.	242
Figure A-11 : comparaison de plusieurs formes de plumes plasma avec des modes observés dans un écoulement tournant (eau).....	243
Figure A-12 : plume plasma en sortie d'un capillaire de 4 mm de diamètre interne pour un débit proche de 10 l/min et une fréquence de répétition de 1 KHz.	244
Figure A-13 : représentation schématique de la recirculation globale le long du vortex colonnaire, entraînant une aspiration d'air jusqu'à l'électrode interne.	245
Figure A-14 : plasma d'hélium dans le capillaire (a et c) et en mélange air hélium par aspiration d'air jusqu'à l'électrode interne (b) (transitions pilotées par de faibles variations de débit, croissantes de a à c).	245
Figure A-15 : plasma d'hélium dans le capillaire (a) et d'air-hélium dans et en sortie du capillaire (b), pour les mêmes débits que la Figure A-14, mais à une tension appliquée plus élevée (6,5 kV).....	246
Figure A-16 : mesure des variations de pression par tube de Pitot à la sortie d'un capillaire de 3 cm.	247
Figure A-17 : (a) : fluctuations de pression périodiques mesurées par tube de Pitot pour un Reynolds de 62 dans les conditions de la Figure A-16. (b) : comparaison avec l'allure des fluctuations de vitesse et de pression mesurées dans [9].	248
Figure A-18 : évolution de la fréquence d'oscillation naturelle de l'écoulement sans plasma et avec plasma, pour plusieurs fréquences de répétition de l'impulsion de tension.	249
Figure B-1 : plume plasma du jet libre en polarité négative, vue en photographie classique (1 s d'exposition) et en imagerie ICCD rapide (10 μ s d'intégration), à deux délais par rapport au démarrage de l'impulsion de tension (18 kV, 1 kHz, 2l/min d'hélium).	253
Figure B-2 : évolution de la concentration des métastables de l'hélium en jet libre, dans la plume en polarité négative, à 4,2 mm de l'extrémité du capillaire (18 kV, 1 kHz, 2l/min d'hélium).	254
Figure B-3 : évolutions des composantes longitudinales et radiales du champ électrique le long du capillaire et de la plume, en configurations cible 1 cm et jet libre (18 kV, polarité négative)	258
Figure B-4 : évolution des composantes longitudinales et radiales du champ électrique le long du capillaire et de la plume en configuration cible à 1 cm et jet libre (18 kV, polarité positive).	262

Liste des tableaux :

Tableau III-1 : nombres de Reynolds et vitesse maximale associée de l'écoulement pour différents débits.....	65
Tableau III-2 : classement des régimes d'écoulement en fonction des nombres de Reynolds pour différentes longueurs de capillaire.	74
Tableau III-3 : taille de la zone de recirculation et longueur totale d'établissement pour différents débits (issue de [16])	77
Tableau IV-1 : évolution de la tension instantanée et des maxima des composantes longitudinale et radiale du champ électrique le long du capillaire (polarité positive).	126
Tableau IV-2 : évolution de la tension instantanée et des maxima des composantes longitudinale et radiale du champ électrique le long du capillaire (polarité négative).	128
Tableau IV-3 : caractéristique des puretés d'hélium ALPHAGAZ 1 et 2 (données Air Liquide)	145
Tableau IV-4 : variation du temps d'initiation de la décharge calculé par le modèle en fonction du taux de pré-ionisation pour deux valeurs de tensions appliquées. Variation du temps d'initiation mesurée expérimentalement pour les mêmes tensions appliquées (issue de [21]).....	153
Tableau IV-5 : temps d'initiation de la décharge en fonction de la concentration d'azote (modèle et géométrie expérimentale en électrode externe).	156
Tableau V-1 : évolution de la vitesse de propagation des fronts secondaire et ultérieurs pour plusieurs concentrations d'azote. Vitesses mesurées d'après les temps relevés sur les peuplements rapides en Figure V-44.	215
Tableau B-1 : délais des fronts d'ionisation primaire et secondaire le long du capillaire et de la plume en configuration cible à 1 cm (18 kV, polarité négative).	259
Tableau B-2 : délais des fronts d'ionisation primaire et secondaire le long du capillaire et de la plume en configuration cible à 1 cm (18 kV, polarité positive)	262

Étude de la production des espèces réactives de l'oxygène et de l'azote par décharge Plasma Gun à pression atmosphérique pour des applications biomédicales

En l'espace d'une dizaine d'années, les jets de plasma froid à pression atmosphérique ont su s'imposer comme un outil pertinent pour les applications biomédicales. La simplicité de conception et d'utilisation de ces dispositifs, combinée à leurs facultés de produire des espèces réactives (NO, OH, O ...), ont significativement contribué au développement rapide du domaine. Beaucoup d'efforts ont été entrepris dans le développement de diagnostics quantitatifs, pour mesurer la production des espèces réactives dans la plume plasma d'un jet donné. Toutefois, la diversité des géométries de décharge, des sources d'alimentations électriques ou des conditions d'utilisation, rendent les comparaisons d'un jet à l'autre difficiles. Cette thèse a porté sur l'étude du jet de plasma froid à pression atmosphérique développé au GREMI, le Plasma Gun (hélium, impulsion de tension microseconde). Nous avons étudié les mécanismes de décharge susceptibles de considérablement affecter la production d'espèces réactives, dans des conditions approchantes d'applications biomédicales. La thèse s'articule en trois chapitres principaux : l'étude de la modification de l'écoulement de l'hélium par plasma (par strioscopie) ; l'étude de la propagation du plasma dans le capillaire diélectrique (étude expérimentale et numérique de la dynamique de propagation rapide du plasma et de l'évolution du champ électrique en mélange hélium-azote) ; l'étude de l'interaction du plasma avec une cible conductrice (mesures dans le capillaire et dans la plume de l'évolution spatiale et temporelle de la concentration des métastables de l'hélium, corrélées à des mesures du champ électrique). Ce dernier point est en particulier représentatif de tout jet plasma en condition traitement biomédical *in vivo* et tend à faire une distinction fondamentale avec les mécanismes de décharge du jet plasma dit « libre », sans obstacle entravant la plume plasma.

Mots clés : jet de plasma froid à pression atmosphérique, onde d'ionisation, modification d'écoulement, champ électrique, cinétique réactionnelle hélium-azote, métastable de l'hélium atomique, espèces réactives

Study of oxygen and nitrogen reactive species production in atmospheric pressure Plasma Gun discharge for biomedical applications

Over the past ten years, the cold atmospheric pressure plasma jets (CAPPJ) became useful devices for biomedical applications. Their relatively simple design and use, combine with their ability to produce reactive species (NO, OH, O, ...), led to a rapid research growth in this field. A lot of studies have been devoted to quantitative diagnostics development for the reactive species production measurements in the plasma plume. However, it is difficult to compare one jet with another because of the huge variety of discharge geometries, electric power supplies or operating conditions. This thesis deals with the study of the CAPPJ developed in GREMI, the Plasma Gun (helium feeded, microsecond voltage pulse). We have studied discharge mechanisms which strongly impact the reactive species production in near target biomedical application conditions. This study is divided in three parts : the study of helium flow modifications induced by the plasma (strioscropy visualization); the study of plasma propagation inside dielectric capillary (experimental and numerical study of fast plasma propagation dynamic and electric field evolution for helium-nitrogen mixtures); the study of conductive target-plasma interaction (space and time resolved measurements inside the capillary and the plasma plume of helium metastable production, correlated with electric field evolution). The conductive target contact concerns any *in vivo* biomedical treatments. CAPPJ in front of such a conductive target leads to fundamentally different discharge mechanisms compare to the free jet case.

Keywords : Cold atmospheric pressure plasma jet, ionization wave, flow modification, electric field, helium-nitrogen reaction kinetic, atomic helium metastable, reactive species



Groupe de Recherches sur l'Énergétique des Milieux Ionisés. UMR 7344 CNRS / Université d'Orléans. 14 rue d'Issoudun, BP6744 45067 Orléans Cedex 2

