



PLASMAS FROIDS A LA PRESSION ATMOSPHERIQUE



UNIVERSITÉ
PERPIGNAN
VIA
DOMITIA



Françoise MASSINES

Francoise.massines@promes.cnrs.fr



SOMMAIRE : Plasmas froids à la pression atmosphérique

I - Introduction

II – Claquage d'un gaz à la pression atmosphérique

1. De l'avalanche électronique au streamer
2. Du streamer à la microdécharge

III – Plasmas froids à la pression atmosphérique

1. Décharge couronne
2. Décharge nano-impulsionnelle
3. Décharge contrôlée par barrière diélectrique

IV - Décharges diffuses à la pression atmosphérique

1. Micro hollow cathode
2. Couplage d'avalanche électronique
3. Claquage de Townsend, décharge de Townsend et luminescente
4. Décharge radiofréquence

V – Spécificité de la cinétique chimique à la pression atmosphérique

VI - Synthèse

Plasma à pression atmosphérique : où est la différence ?

P_{atm} = haute pression pour un plasma

- La fréquence de collision augmente avec n_n ($PV=n_nRT$) : $n_n = 2,5 \cdot 10^{19}/\text{cm}^3$
- Le libre parcours moyen, λ , des espèces diminue :

Electrons: $\lambda_e = 1 / n_n \cdot \sigma_n \approx 500 \text{ nm}$

La distance interélectrode de l'ordre du millimètre ou plus

⇒ Niveau d'ionisation en volume élevé

⇒ ionisation très rapide et localisée du gaz

⇒ électrons se thermalisent, chauffent le gaz

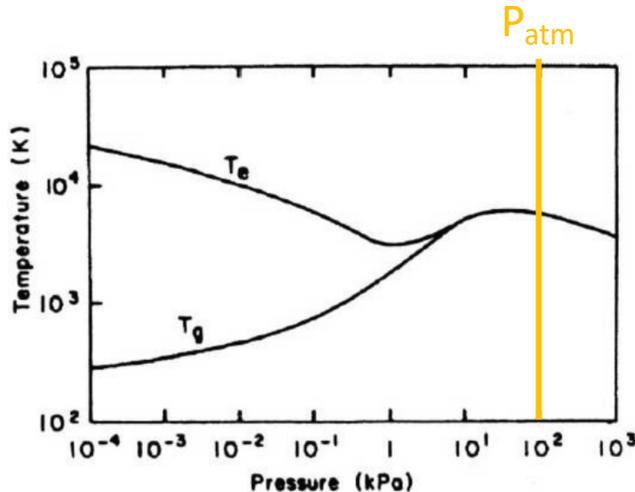
⇒ **arc électrique**

et pourtant



Plasma à pression atmosphérique : où est la différence ?

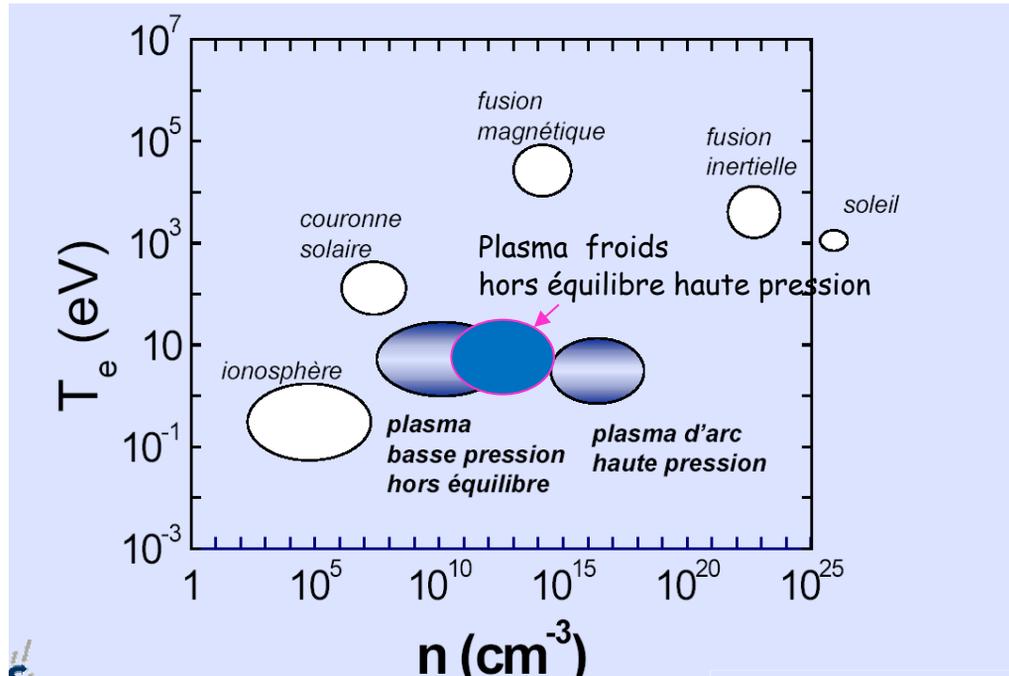
P_{atm} = haute pression pour un plasma



Plasma
thermique:
 $n_e/n_g > 5 \cdot 10^{-2}$

M.I. Boulos, P. Fauchais, E. Pfender, Thermal Plasmas: Fundamental And Applications. Volume I, Plenum Press, New York, ISBN: 0-306-44607-3, 1994, 452 pp.

Caractéristiques électroniques



Plasma froid si $n_e/n_g < 10^{-4}$

↳ $P_{\text{atm}}: n_n = 2,6 \cdot 10^{19} / \text{cm}^3 \rightarrow n_e < 10^{15} / \text{cm}^3$

Physique des décharges à P_{atm}

La pression atmosphérique est un point clef pour les applications pas pour la physique des décharges

~~Plasma à la pression atmosphérique~~

Produit (Distance interélectrode X Pression)



Distance cathode anode= gap
> mm



Libre parcours moyen des électrons
< μm

Nombre de collisions électroniques: ionisation en volume



Rapport entre la création des électrons en surface / volume
ionisation γ (Ion + cathode \rightarrow e) / ionisation α (e+A \rightarrow A⁺ + 2e)

SOMMAIRE : Plasmas froids à la pression atmosphérique

I - Introduction

II – Claquage d'un gaz à la pression atmosphérique

1. De l'avalanche électronique au streamer
2. Du streamer à la microdécharge

III – Plasmas froids à la pression atmosphérique

1. Décharge couronne
2. Décharge nano-impulsionnelle
3. Décharge contrôlée par barrière diélectrique

IV - Décharges diffuses à la pression atmosphérique

1. Micro hollow cathode
2. Couplage d'avalanche électronique
3. Claquage de Townsend, décharge de Townsend et luminescente
4. Décharge radiofréquence

V – Spécificité de la cinétique chimique à la pression atmosphérique

VI - Synthèse

Claquage du gaz

Observations expérimentales

Spécificité de la physique des décharges froides à la pression atmosphérique

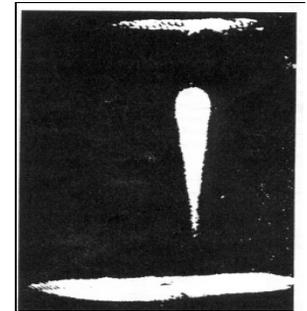
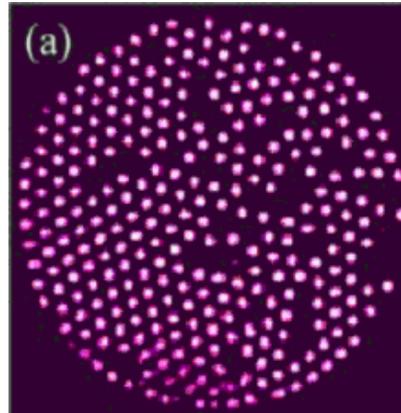
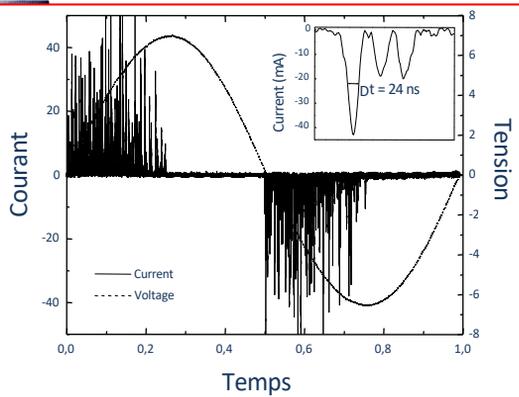
(Pression X Distance inter-électrodes) > 10^4 Pa.m , 10^{-1} Atm.cm ($\sim 100 \text{ Torr.cm}$)

$$P \propto N \propto 1/\lambda : d/\lambda \gg 1$$



Observations

- La décharge se développe en un temps très court (10ns)
→ avant que les ions aient pu atteindre la cathode
- La dynamique de la décharge est indépendante du type de matériau formant la cathode
- Un canal lumineux s'établit après le développement de la première avalanche électronique



H. Raether, Electron avalanches and breakdown in gases, Butterworths, London 1964

Claquage du gaz

Spécificité de la physique des décharges froides à la pression atmosphérique

(Pression X Distance inter-électrodes) > 10^{-1} Atm.cm (~100 Torr.cm)

$$P \propto N \propto 1/\lambda : d/\lambda \gg 1$$



Observations

- La décharge se développe en un temps très court (10ns)
→ avant que les ions aient pu atteindre la cathode
- La dynamique de la décharge est indépendante du type de matériau formant la cathode
- Un canal lumineux s'établit après le développement de la première avalanche électronique



Incompatible avec un claquage de Townsend contrôlé par α et γ

La contribution de la surface est négligeable

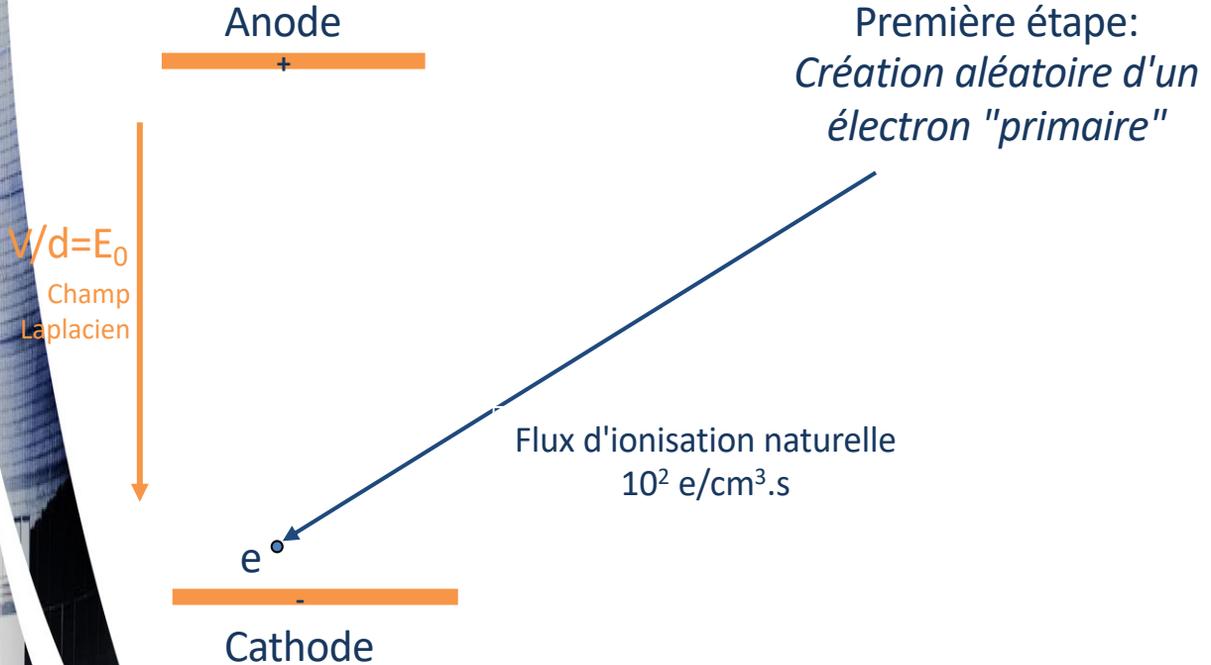


Théorie du "streamer": Loeb, Meek et Raether dans les années 40

Loeb L. B. 1960, Basic Processes of Gaseous Electronics, Univ. of California Press
Raether H 1964 Electron avalanches and Breakdown in Gases, Butterworth
Meek J. M and Craggs J. D., 1978, electrical Breakdown of Gases, Wiley

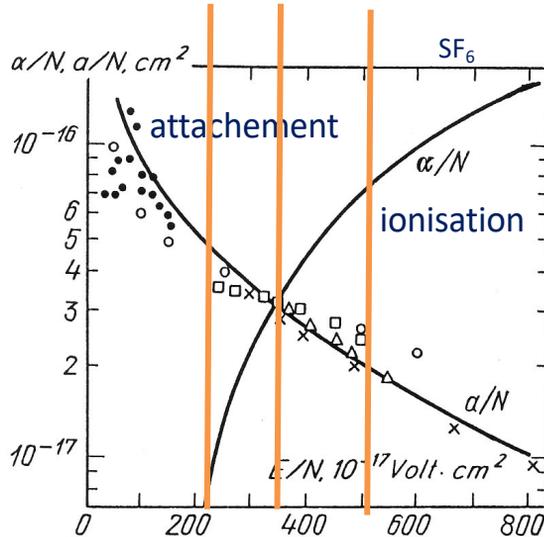
Comment la décharge s'amorce ?

1. Electron Primaire



Comment la décharge s'amorce ?

2. Avalanche Primaire



a : Coefficient attachement
 α : Coefficient d'ionisation

Première étape:
*Création aléatoire d'un
électron "primaire"*

Deuxième étape:
*Développement d'une
avalanche électronique
à partir de l'électron
"primaire"*

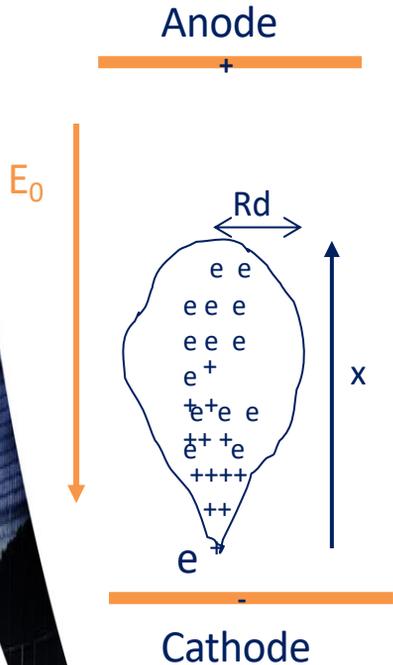


$$E_0/N > (E/N)_{\text{critique}} / \alpha/N > a/N$$

Dans l'air: 28 kV/cm
Dans SF₆: 83 kV/cm

Comment la décharge s'amorce ?

2. Avalanche Primaire



Première étape:
Création aléatoire d'un électron "primaire"

Deuxième étape:
Développement d'une avalanche électronique



$$E_0/N > (E/N)_{\text{critique}} / \alpha / N = a / N$$

$$N_e = \exp[(\alpha - a)x]$$

$$N_+ = \alpha / (\alpha - a) (N_e - 1) \quad N_- = a / (\alpha - a) (N_e - 1)$$

Ordres de grandeur

Electrons: $V_d = \mu_e E_0$

$$R_d \approx \sqrt{4D_e \tau} \quad \text{avec } \tau = x/V_d$$

Air, T_{amb} , P_{atm} : $\mu_e \approx 10^3 \text{ cm}^2/\text{V.s}$

→ Si $E_0 = 20 \text{ kV/cm}$ → $V_d = 20 \cdot 10^4 \text{ m/s} \Rightarrow 5 \text{ ns/mm}$

→ $D_e : 1 \text{ m}^2/\text{s} \Rightarrow \text{en } 5 \text{ ns } R_d = 150 \text{ } \mu\text{m}$

Comment la décharge s'amorce ?

3. Naissance du streamer (ou dard)

Yu. P. Raizer (Gas Discharge Physics)

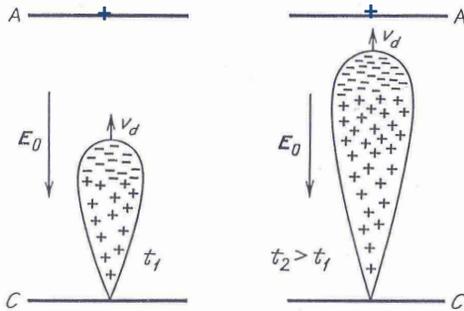


Fig. 12.1. Shape and charge distribution of an electron avalanche at two consecutive moments of time. Arrows indicate directions of external field E_0 and velocity of motion of the avalanche head,

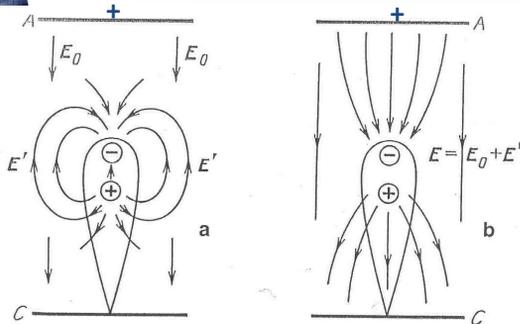


Fig. 12.3. Electric fields in a gap containing an electron avalanche. (a) Lines of force of the external field E_0 and of the field of space charge of the avalanche, E' , are shown separately. (b) lines of force of the resulting field $E = E_0 + E'$. Circles mark the centers of space charges

Yu. P. Raizer (Gas Discharge Physics)

E' : Champ de charge d'espace

N_e : Nombre d'électron

- Si N_e est suffisamment élevée
 $E' \approx E_0$
- Distorsion du champ électrique local
- Modification de la propagation de l'avalanche



Troisième étape:
Naissance du streamer

Comment la décharge s'amorce ?

3. Naissance du streamer

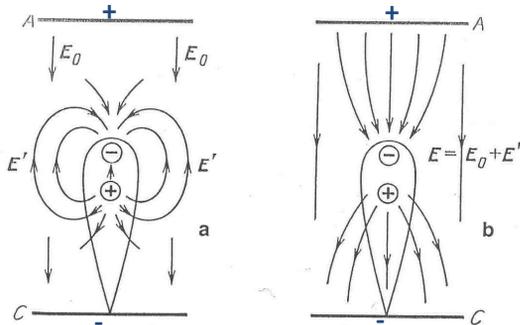


Fig. 12.3. Electric fields in a gap containing an electron avalanche. (a) Lines of force of the external field E_0 and of the field of space charge of the avalanche, E' , are shown separately. (b) lines of force of the resulting field $E = E_0 + E'$. Circles mark the centers of space charges

Yu. P. Raizer (Gas Discharge Physics)

Formation du streamer si $E' \approx E_0$

E' : Champ électrique dû à la charge d'espace dans l'avalanche primaire

E_0 : Champ Laplacien ou géométrique $E_0 = V/d$

Si on considère que les ions et les électrons sont 2 sphères de rayon R
 Le champ électrique à la surface s'écrit : $E' = eNe/4\pi\epsilon_0 R^2$ with $Ne = \exp[\alpha x]$

$$E_0 \approx E' = \frac{e}{4\pi\epsilon_0 r^2} \exp\left[\alpha \left(\frac{E_0}{P}\right) * x\right]$$

Critère de Meek

Comment la décharge s'amorce ?

3. Naissance du streamer

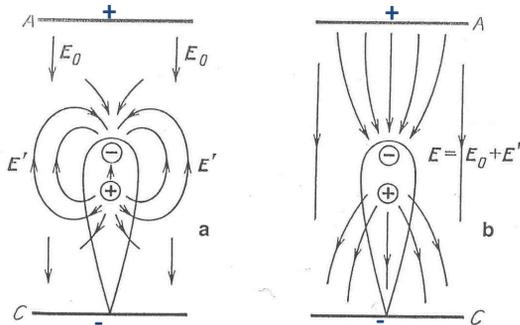


Fig. 12.3. Electric fields in a gap containing an electron avalanche. (a) Lines of force of the external field E_0 and of the field of space charge of the avalanche, E' , are shown separately. (b) lines of force of the resulting field $E = E_0 + E'$. Circles mark the centers of space charges

Yu. P. Raizer (Gas Discharge Physics)

Quelle est l'ordre de grandeur du nombre de charges nécessaire pour avoir $E'=E_0$?

$$Ne > 10^8, \alpha x \text{ 18-20}$$

$$Rd \approx 200 \mu\text{m}, \quad x \approx \text{mm}$$

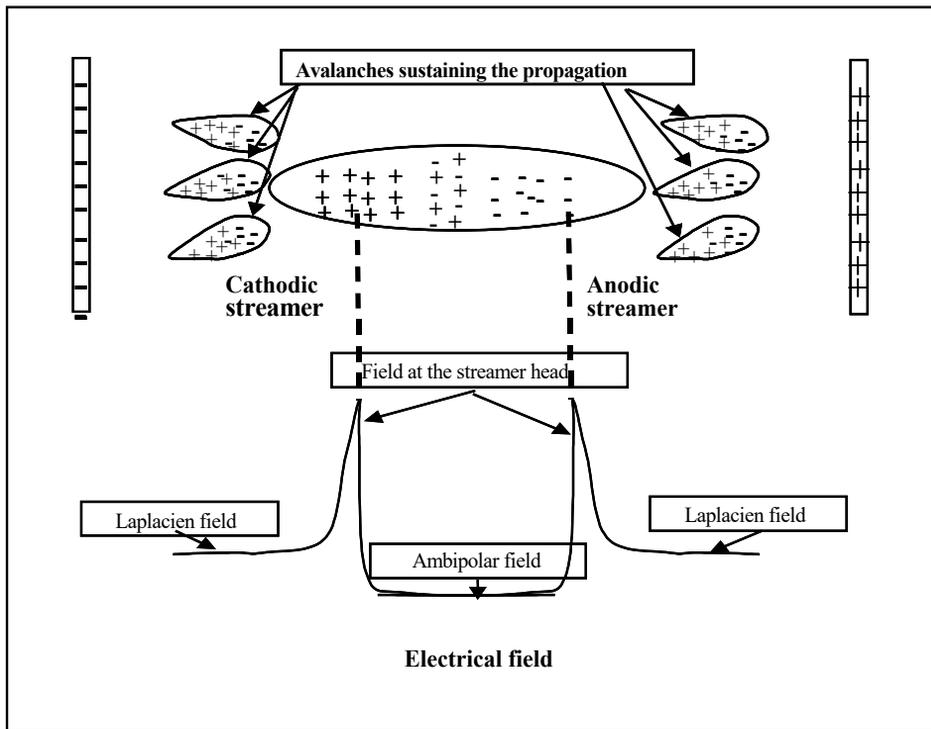
Si on considère que les ions et les électrons sont 2 sphères de rayon R
 Le champ électrique à la surface s'écrit : $E'=eNe/4\pi\epsilon_0 R^2$ with $Ne = \exp[\alpha x]$

$$E_0 \approx E' = \frac{e}{4\pi\epsilon_0 r^2} \exp\left[\alpha \left(\frac{E_0}{P}\right) * x\right]$$

Critère de Meek

Comment la décharge s'amorce

4. Propagation du streamer



K. Hassouni, Plasmas Froids, Génération, caractérisations et technologies, Publication. De l'Université. de Saint Etienne, 2005

Comment la décharge s'amorce ?

4. Propagation du streamer

Un streamer est un canal de décharge assez faiblement ionisé qui se propage très rapidement (v de l'ordre de 10^8 cm/s) vers une, ou vers les 2 électrodes

Streamer dirigé vers l'anode

Rôle dominant des électrons

Avalanches secondaires

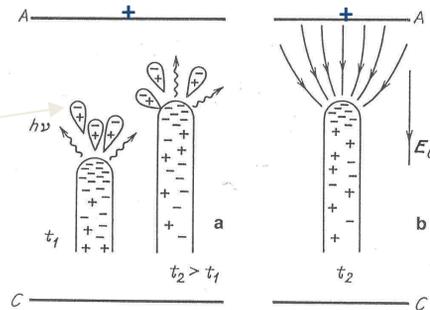


Fig. 12.6. Anode-directed streamer. (a) Photons and secondary avalanches in front of the streamer head at two consecutive moments of time. (b) Field in the vicinity of the head

Yu. P. Raizer (Gas Discharge Physics)

Le front d'ionisation se propage dans la même direction que les électrons
En tête le champ est très fort: propagation rapide
Les ions des avalanches secondaires forment un plasma avec les électrons du streamer

Comment la décharge s'amorce ?

4. Propagation du streamer

Streamer dirigé vers la cathode

Le front d'ionisation et les électrons se propagent dans des directions opposées

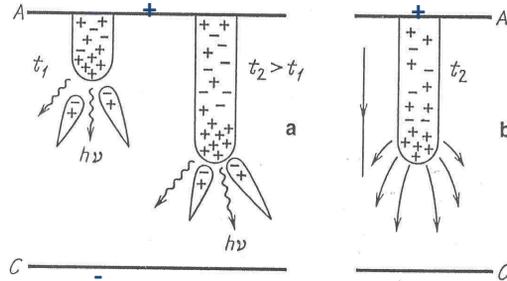


Fig. 12.5. Cathode-directed streamer. (a) Streamer at two consecutive moments of time, with secondary avalanches moving towards the positive head of the streamer; wavy arrows are photons that generate seed electrons for avalanches. (b) Lines of force of the field near the streamer head

Yu. P. Raizer (Gas Discharge Physics)

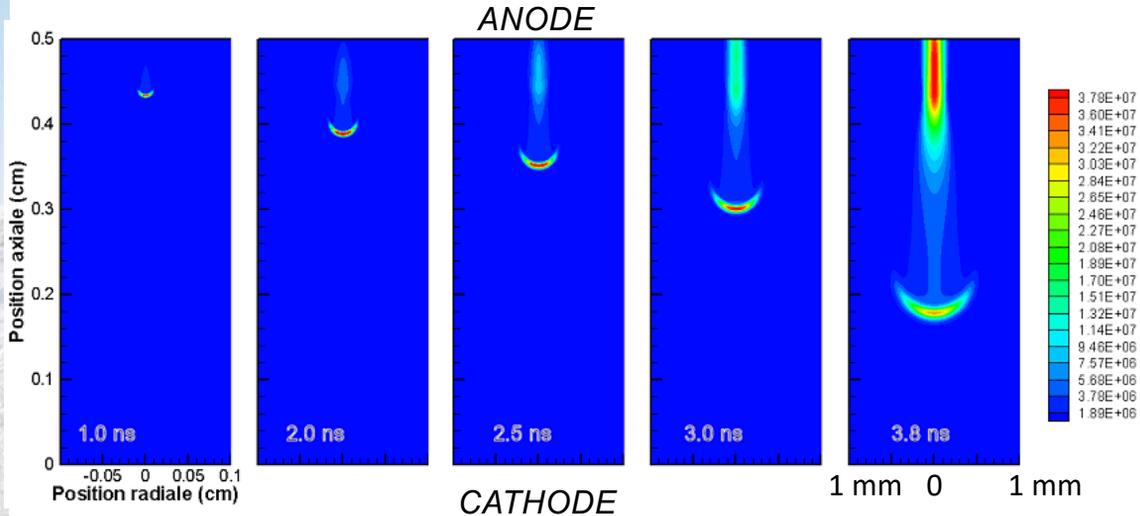
X. Lu et al. / Physics Reports 540 (2014) 123–166

- Rôle essentiel des photons qui par photo-ionisation ($h\nu_{N_2} > E_{iO_2}$) ou photo-émission (cathode), créent les électrons germes à l'origine des avalanches secondaires
- Rôle des charges des avalanches secondaires:
 - Les électrons rejoignent la partie positive du streamer pour former un plasma
 - Les ions forment une nouvelle charge d'espace positive qui est plus près de la cathode → propagation du streamer vers la cathode

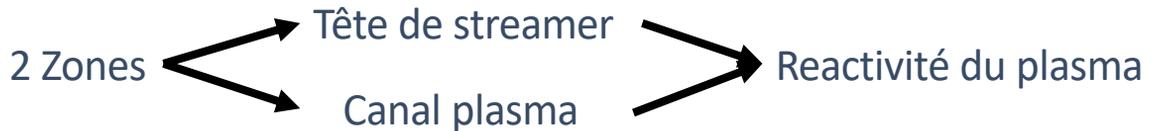
Comment la décharge s'amorce ?

4. Propagation du streamer

Distribution spatiale de la densité de puissance
pendant la propagation d'un streamer cathodique



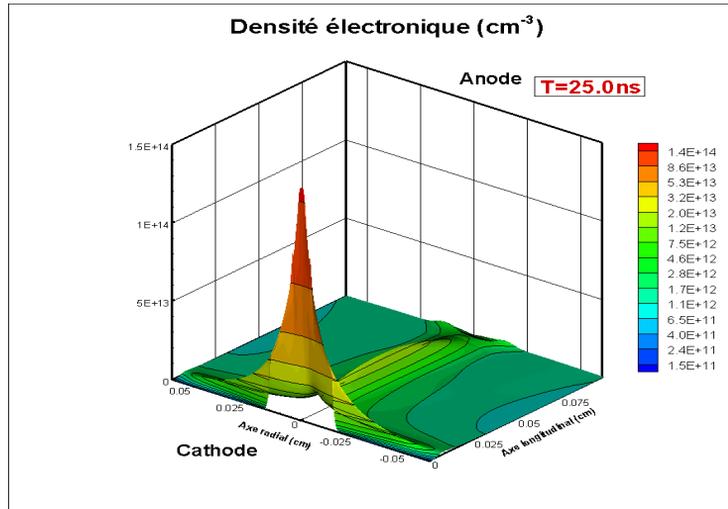
P. Ségur
LAPLACE
Toulouse
France



See also the extensive work of OKAZAKI Ken on
heat transfer in different atmospheric pressure non equilibrium discharges

Gas breakdown ?

4. Streamer propagation



*P. Ségur
Y. Cesses
LAPLACE
Toulouse
France*

- Quand le streamer atteint la cathode

Champ très fort entre la cathode et la charge d'espace positive

⇒ Forte émission d'électron secondaire par la cathode

Comment la décharge s'amorce?

5. Après le streamer

Streamer : propagation d'une onde d'ionisation vers les surfaces (10mA , 10^8cm/s)

Fin du streamer lorsque les surfaces sont atteintes



Les 2 électrodes sont connectées par un plasma faiblement ionisé ($\approx 10^{-5}$)



Le plasma de la micro-décharge est ambipolaire et la tension est appliquée au point de contact avec la cathode



Forte émission secondaire



Onde d'ionisation de la cathode vers l'anode, Onde de retour (10^9cm/s)



Chauffage du gaz, étincelle (10^4A/cm^2 , 100V/cm)

La décharge se transforme en Plasma thermique

Comment obtenir une décharge froide à pression atmosphérique?

5. Après le streamer

Streamer: propagation d'une onde d'ionisation vers les surfaces (10mA, 10^8 cm/s)
Fin du streamer lorsque les surfaces sont atteintes



Les 2 électrodes sont connectées par un plasma faiblement ionisé ($\approx 10^{-5}$)



Le plasma de la micro-décharge est ambipolaire et la tension est appliquée au point de contact avec la cathode



Forte émission secondaire



Onde d'ionisation de la cathode vers l'anode, Onde de retour (10^9 cm/s)



Chauffage du gaz, étincelle (10^4 A/cm², 100V/cm)

Plasma thermique

SOMMAIRE : Plasmas froids à la pression atmosphérique

I - Introduction

II – Claquage d'un gaz à la pression atmosphérique

1. De l'avalanche électronique au streamer
2. Du streamer à la microdécharge

III – Plasmas froids à la pression atmosphérique

1. Décharge couronne
2. Décharge nano-impulsionnelle
3. Décharge contrôlée par barrière diélectrique

IV - Décharges diffuses à la pression atmosphérique

1. Micro hollow cathode
2. Couplage d'avalanche électronique
3. Claquage de Townsend, décharge de Townsend et luminescente
4. Décharge radiofréquence

V – Spécificité de la cinétique chimique à la pression atmosphérique

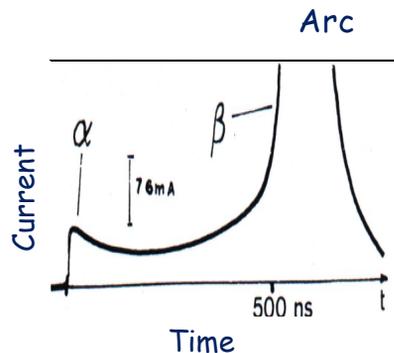
VI - Synthèse

Comment éviter la transition à l'arc?

5. Après le streamer

Stopper la décharge avant que le gaz soit chauffé

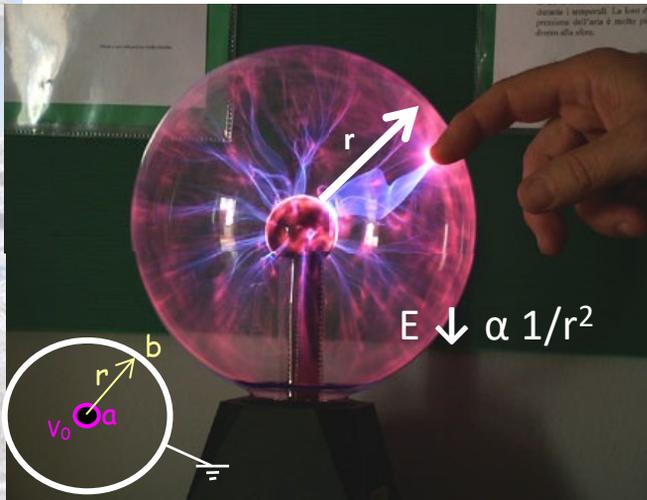
- **Configuration des électrode (applicateur):**
 - Forme : Décharge couronne
 - Conductivité: Décharge à Barrière Diélectrique
- **Alimentation électrique:**
 - Tension impulsionnelle : Décharge nanoimpulsionnelle



CORONA DISCHARGE

DECHARGE COURONNE ou CORONA

Décharge couronne: Une electrode \ll gap



$$E(r) = abV_0 / r^2(b - a)$$

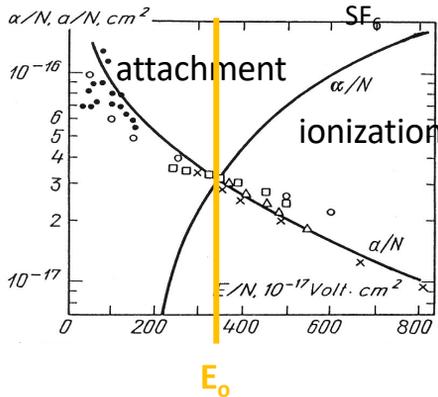
Le champ électrique est beaucoup plus fort près de la petite électrode

- C'est une solution tant que la tension est assez faible...
- C'est une solution pour diminuer la tension de claquage

Comment éviter la transition à l'arc ?

DECHARGE COURONNE ou CORONA

Décharge couronne: Une electrode \ll gap



J. Reece Roth (Industrial Plasma Engineering)

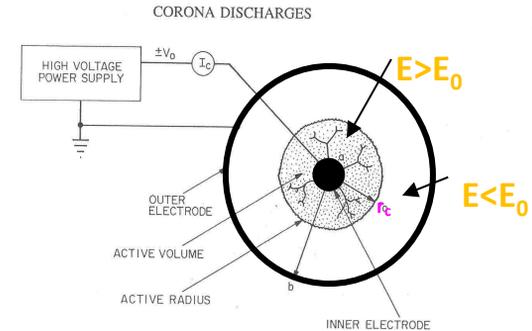


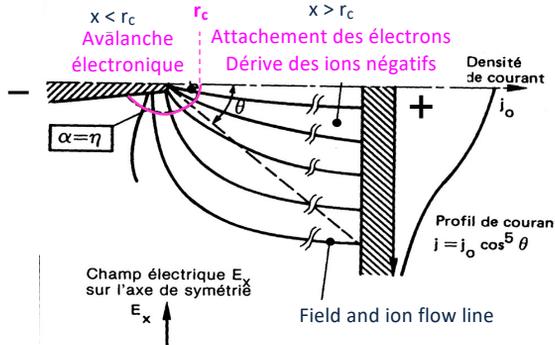
Figure 8.13 Phenomenology of corona generated by a fine wire of radius a located on the axis of a grounded cylinder of radius b .

- C'est une solution tant que la tension est assez faible...
- C'est une solution pour diminuer la tension de claquage

Comment éviter la transition à l'arc ?

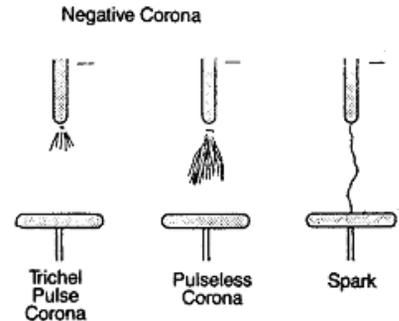
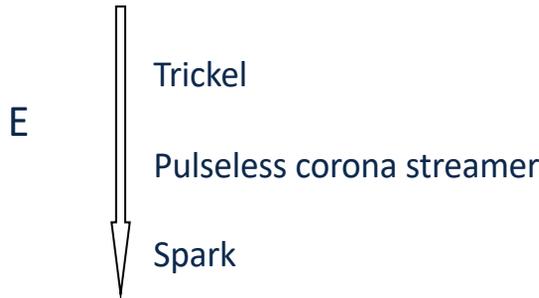
DECHARGE COURONNE ou CORONA

Corona négatif: la plus petite electrode est negative (cathode)



Si l'électrode de petit rayon de courbure est négative:

- $r < r_c$: $a > a$: avalanches électroniques
- $r > r_c$: $a < a$: formation d'ions négatifs par attachement des électrons et dérive des ions vers l'anode



Comment éviter la transition à l'arc ?

DECHARGE COURONNE ou CORONA

Corona positif : la petite electrode est positive (anode)

- 1) $r < r_c$: $a > a$: electrons font des avalanches puis des streamers
- 2) Si des ions négatifs sont formés par attachement, ils dérivent vers l'anode : Townsend breakdown and glow corona

NATO asi series "Non thermal plasma technologies for pollution control"

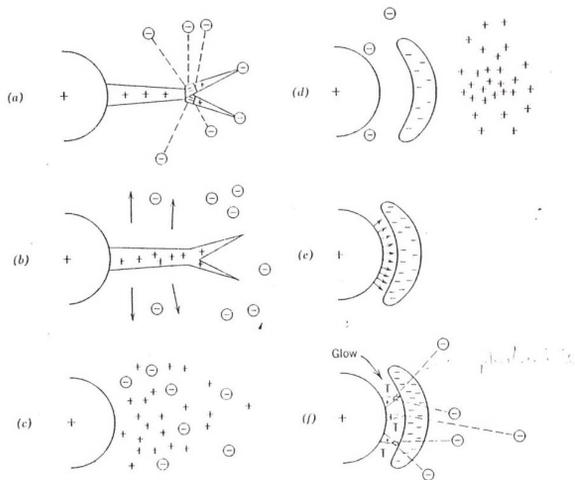
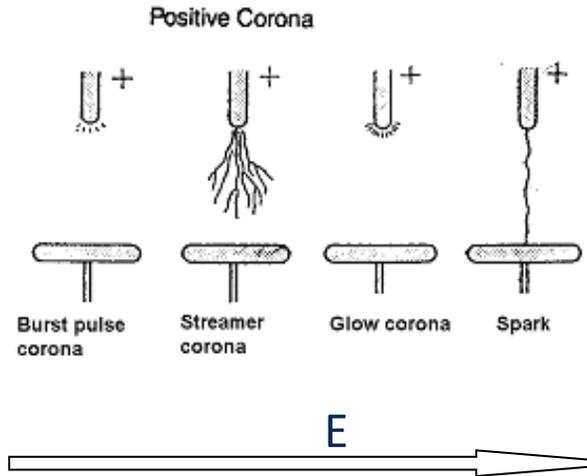


Fig. 11.14 Schematic diagrams showing the streamer-glow transition: (a) streamer growth; (b) attenuation of a streamer; (c) drifting of positive and negative ions; (d) formation of negative-ion space charge; (e) the creation of locally high field and Townsend breakdown (T); (f) new supply of negative ions.

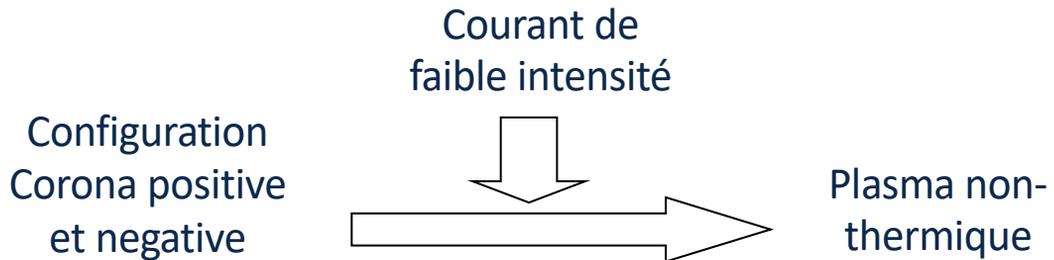


Comment éviter la transition à l'arc ?

DECHARGE COURONNE ou CORONA

CONFIGURATION CORONA :

- Tension de claquage plus faible qu'en plan/plan
- Evite la transition à l'arc si la forme des électrodes, l'espace gazeux et l'amplitude de la tension sont bien choisis.



Solutions pour accroître le courant sans produire d'étincelle:

- Décharge nano-pulsée
- Décharge contrôlée par barrière diélectrique

Comment éviter la transition à l'arc ?

Tension impulsionnelle répétitive

La transition du streamer à l'étincelle implique un échauffement du gaz qui nécessite environ 500ns

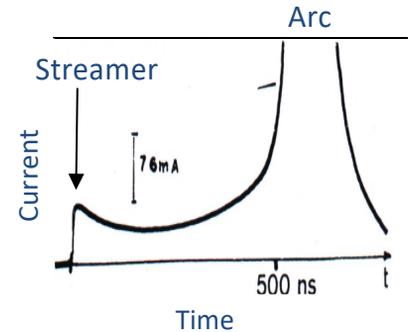
Impulsion de tension durée $< 500\text{ns}$



transition à l'arc évitée entre 2 électrodes métallique

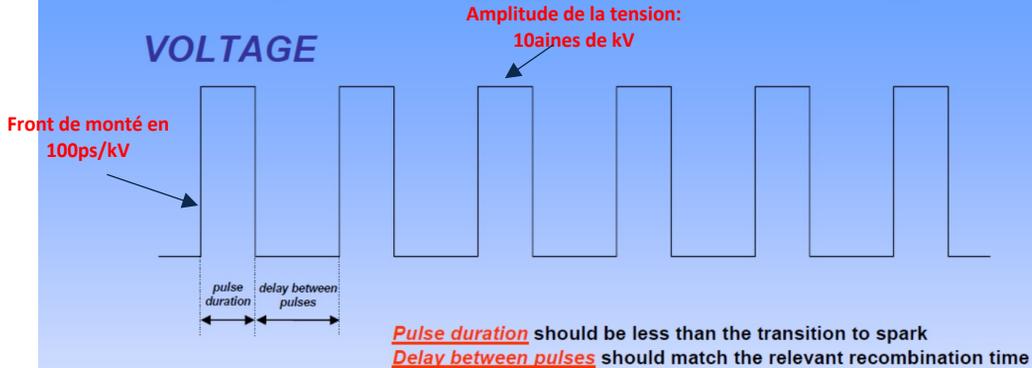


Ne et Te augmentent

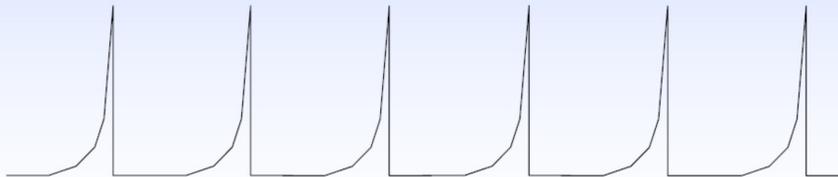


E. Marode, *The mechanism of spark breakdown in air at atmospheric pressure between a positive point and a plane. I. experimental : nature of the streamer track*, Journal of applied physics, **46** (5), 1975

Repetitively pulsed discharges

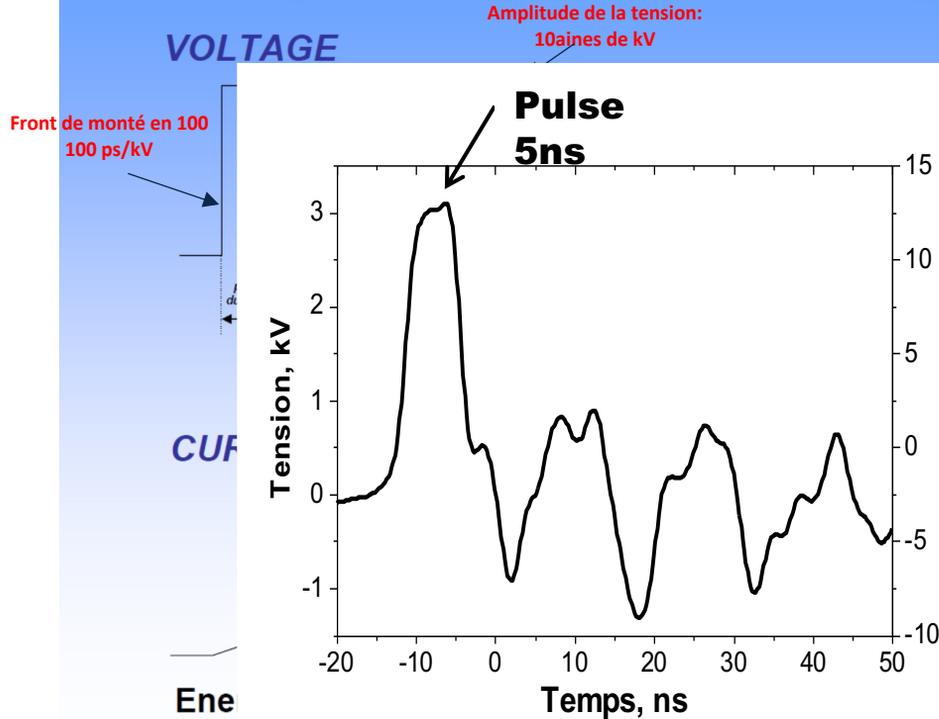


CURRENT



**Energy deposition per pulse is very small
(3 mJ for 5 kV / 10 ns pulses).**

Repetitively pulsed discharges

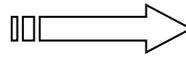


Ch. Laux, journées du réseau plasmas froids 2006

Comment éviter la transition à l'arc ?

Tension impulsionnelle répétitive

Large over-voltage



Increase the mean energy of electrons

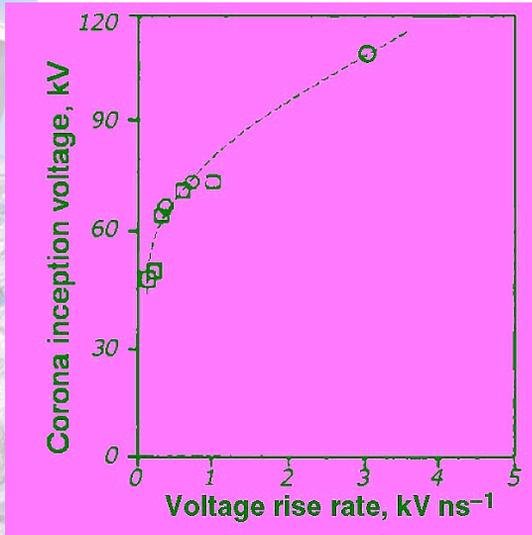
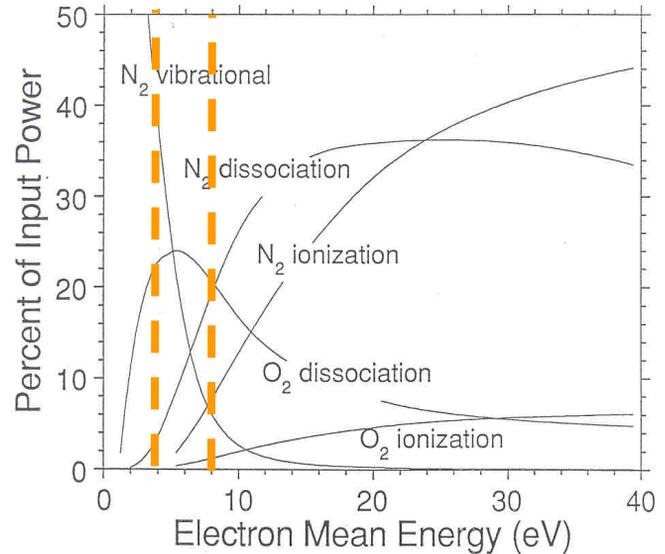


Figure 5. Corona inception voltage as a function of the voltage rise rate.

A. Fridman, J. Phys. D:Appl. Phys. 38(2005)R1-24



Y. P. Raizer, *Gas discharge physics*, Springer Verlag, Berlin, New York, 1991

Phénomènes induits par les pulses dans l'air



Mini-PAC

Dissociation de O_2 ultrarapide (20 ns)

Chauffage ultrarapide (20 ns) modéré (< 1000 K)

Chauffage « lent » (100 μs) modéré (< 1000 K)

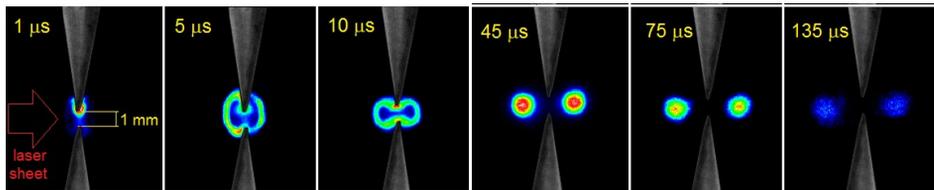
Ondes de choc et expansion toroïdale

Fraction de l'énergie électrique déposée

35%

20%

45%



**Voltage slope higher and higher
Pulse duration sub-nanoseconds**

SOMMAIRE : Plasmas froids à la pression atmosphérique

I - Introduction

II – Claquage d'un gaz à la pression atmosphérique

1. De l'avalanche électronique au streamer
2. Du streamer à la microdécharge

III – Plasmas froids à la pression atmosphérique

1. Décharge couronne
2. Décharge nano-impulsionnelle
3. **Décharge contrôlée par barrière diélectrique**

IV - Décharges diffuses à la pression atmosphérique

1. Micro hollow cathode
2. Couplage d'avalanche électronique
3. Claquage de Townsend, décharge de Townsend et luminescente
4. Décharge radiofréquence

V – Spécificité de la cinétique chimique à la pression atmosphérique

VI - Synthèse

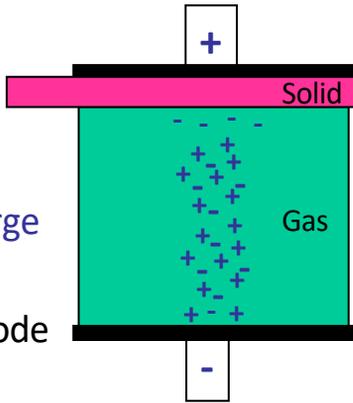
Comment éviter la transition à l'arc?

Décharge contrôlée par barrière diélectrique, DBD

Diélectrique solide

Décharge

Electrode



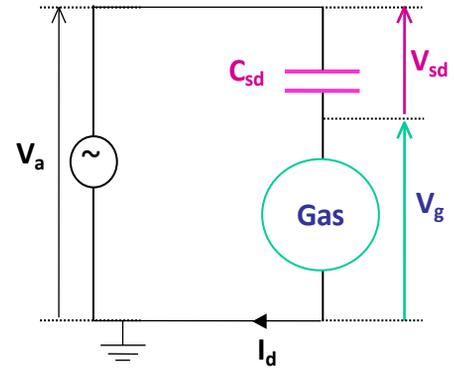
$$V_{sd} = V_0 + \int I_d \cdot dt / C_{sd}$$

$$C_{sd} = \epsilon \epsilon_0 S / e$$

V_g

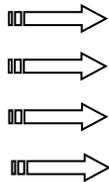
$$V_a = V_g + V_{sd}$$

$$C_{ds} = \epsilon_0 \epsilon_r S / d$$



Quand $I_d \nearrow \Rightarrow V_{sd} \nearrow \Rightarrow V_g \searrow \Rightarrow$ arrêt de la décharge

Diélectrique



Décharge transitoire auto-entretenue

Pas de transition à l'arc

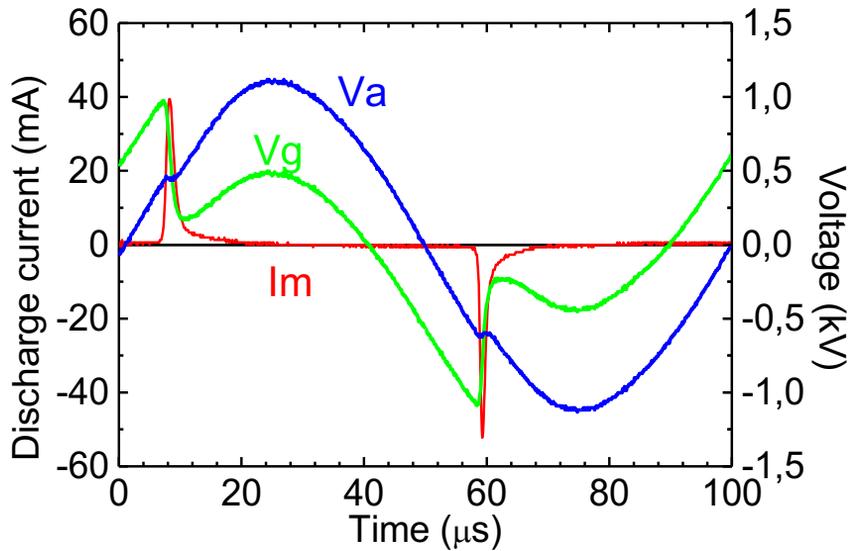
Plasma froid pour de forte valeur du produit P_{xd}

Décharge robuste

Comment éviter la transition à l'arc?

Décharge contrôlée par barrière diélectrique, DBD

DBD luminescente dans He : exemple de forme de la tension gaz



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

➤ Cds charge



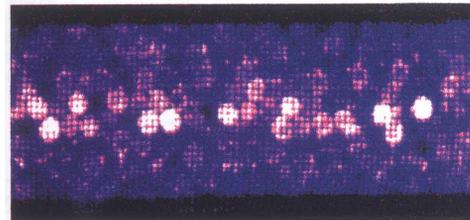
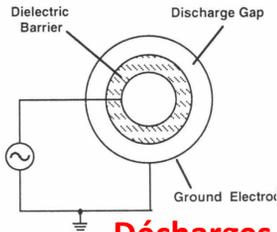
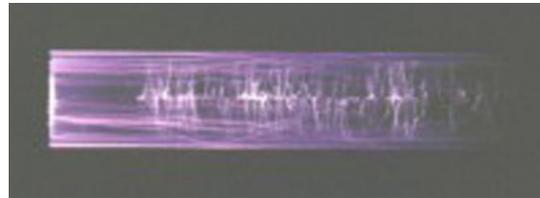
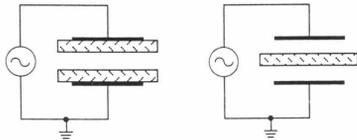
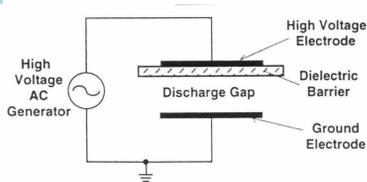
Vg diminue



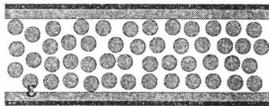
la décharge s'éteint

Décharge contrôlée par barrière diélectrique, DBD

Caractéristiques



Décharges de surface



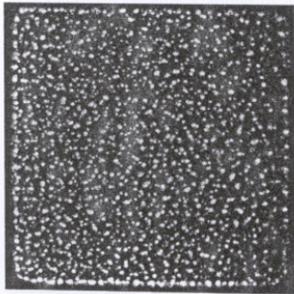
Beaucoup de configurations possibles

Décharge contrôlée par barrière diélectrique, DBD

Caractéristiques

Caractéristiques d'une DBD

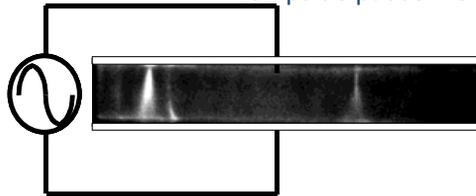
Temps de pause: 20 ms



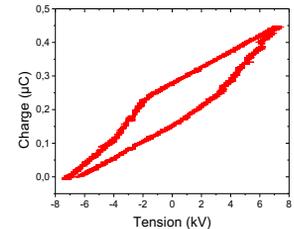
Vue de dessus

Photographies

Temps de pause: 10ns

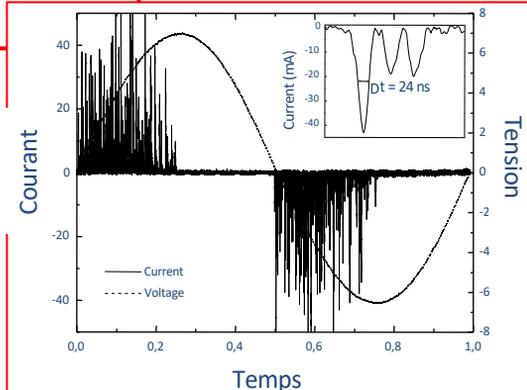


Vue de coté



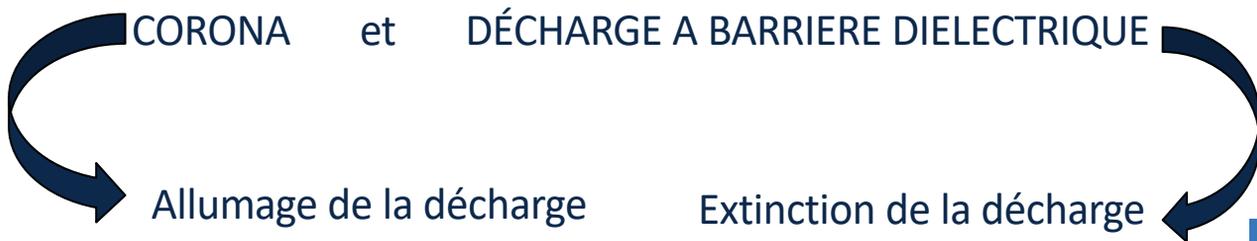
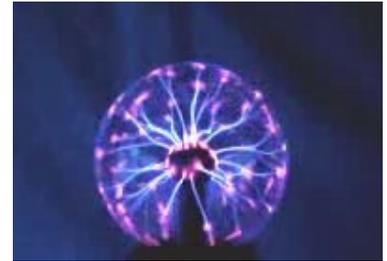
Courbes de Lissajous :
énergie déposée

- Décharge localisée : $\approx 300 \mu\text{m}$ de diamètre
- Décharge très courte : $< 100\text{ns}$
- $\text{Ne}=\text{Ni} \approx 10^{14}/\text{cm}^3$
- $\text{N} = 210^{19} /\text{cm}^3$: Taux d'ionisation $\approx 10^{-5}$
- $T_{\text{gaz}} : 200\text{-}400 \text{ K}$
- $E_{\text{électrons}} : 1 \text{ à } 10 \text{ eV}$



Décharge contrôlée par barrière diélectrique, DBD

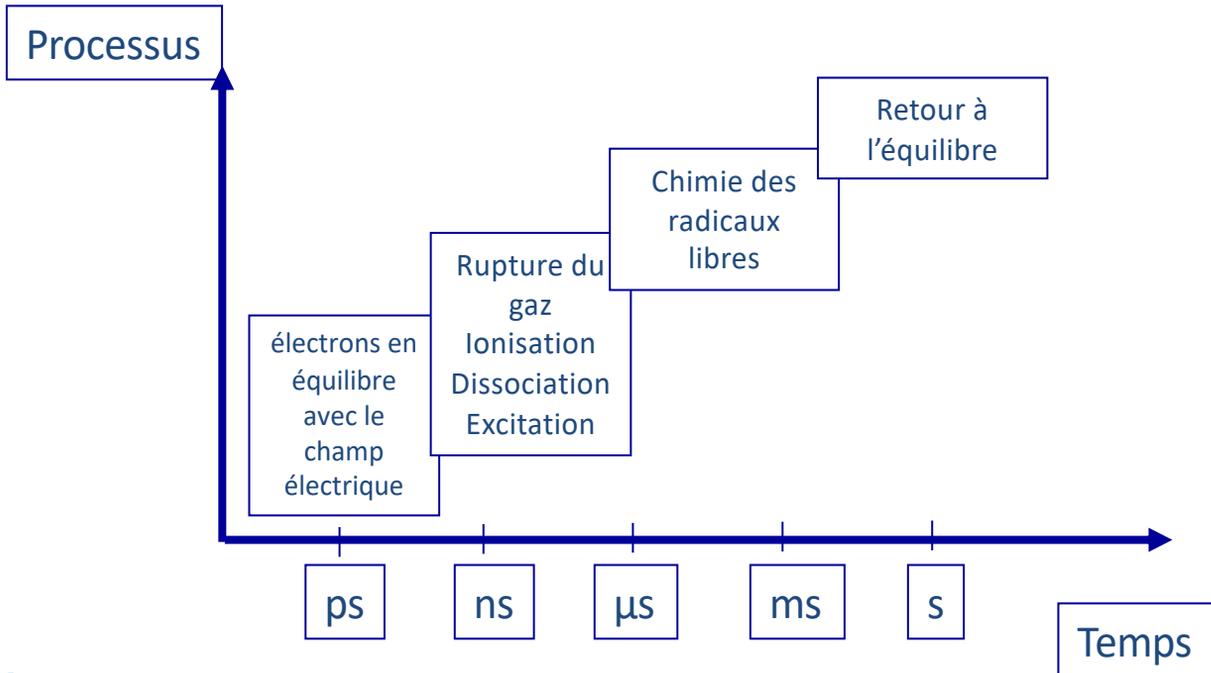
Caractéristiques



Décharge contrôlée par barrière diélectrique, DBD

Caractéristiques

Temps caractéristiques



Décharge contrôlée par barrière diélectrique, DBD

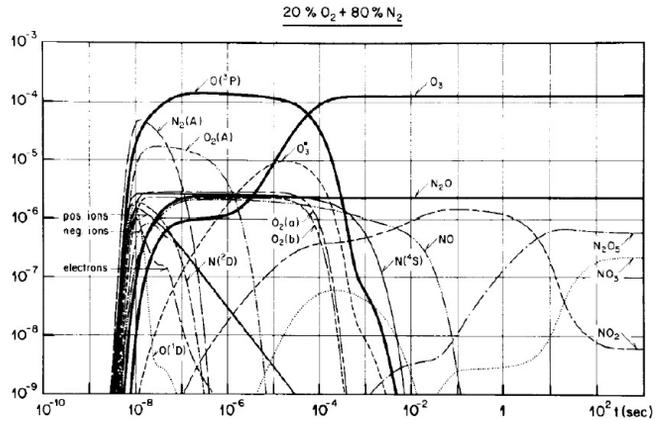
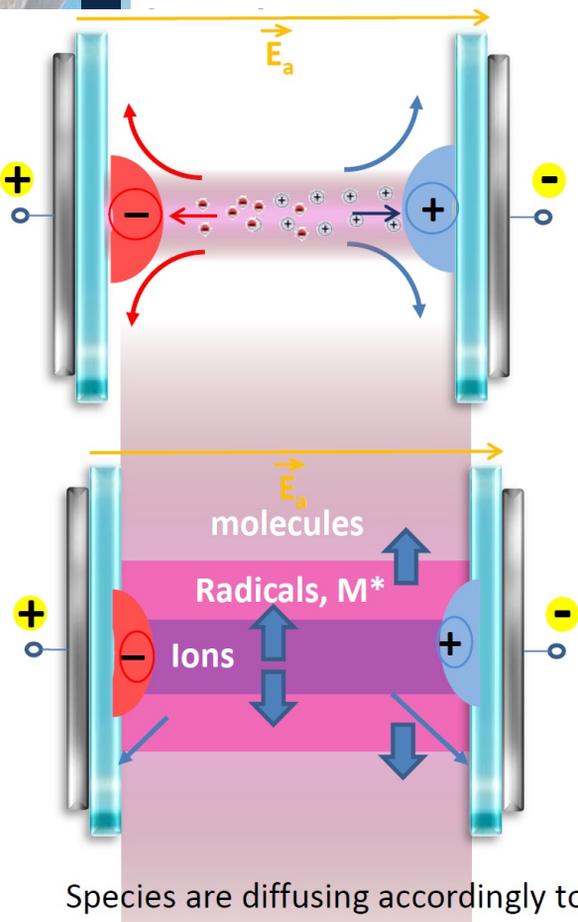
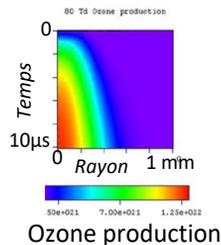
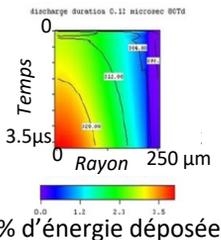


Fig. 11. The chemical reactions initiated by a microdischarge in "air" [18].

Need to take into account spatial gradient and many order of magnitude in time



Species are diffusing accordingly to their life time

Décharge contrôlée par barrière diélectrique, DBD

Caractéristiques

Micro-décharges aléatoirement distribuées

☺ : une solution pour réaliser une chimie à peu près homogène

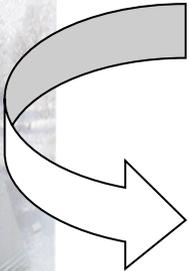
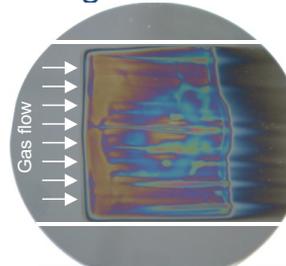
- Micro-décharge: 100ns
- Taux de répétition de l'ordre de : 50μs (10kHz)
- Temps de process : 1s (20 000 demie-période)

☹ : Contrôle de l'énergie moyenne intégrée dans le temps et l'espace n'est pas toujours suffisant:

- **Différentes chimies :**

- dans le canal de décharge et dans la zone de diffusion
- dans des filaments d'énergie différente
- aux endroits où la fréquence de répétition des décharges est différente

**Intérêt des décharges froides
Homogènes, diffuses, sans streamer
à la pression atmosphérique**



SOMMAIRE : Plasmas froids à la pression atmosphérique

I - Introduction

II – Claquage d'un gaz à la pression atmosphérique

1. De l'avalanche électronique au streamer
2. Du streamer à la microdécharge

III – Plasmas froids à la pression atmosphérique

1. Décharge couronne
2. Décharge nano-impulsionnelle répétitive
3. Décharge contrôlée par barrière diélectrique

IV - Décharges diffuses à la pression atmosphérique : pas de streamer

1. Micro hollow cathode
2. Couplage d'avalanche électronique
3. Claquage de Townsend, décharge de Townsend et luminescente
4. Décharge radiofréquence

V – Spécificité de la cinétique chimique à la pression atmosphérique

VI - Synthèse

Décharge homogènes à la pression atmosphérique

Comment éviter la formation d'un streamer localisé?

**Mécanismes qui aident à obtenir un claquage du gaz sans streamer ou un plasma de grand volume
à la pression atmosphérique ?**



Décharge homogènes à la pression atmosphérique

Comment éviter la formation d'un streamer localisé?

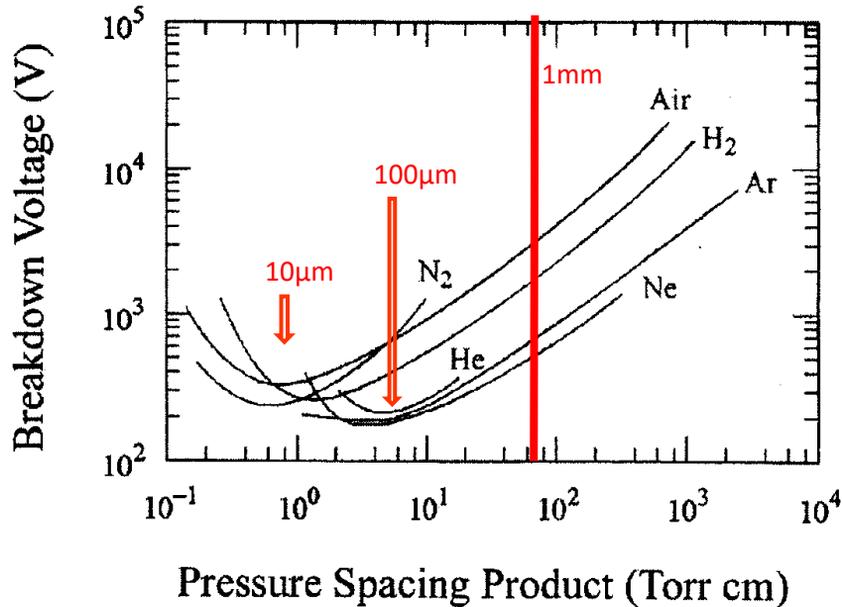
Quatre solutions:

1. Diminuer suffisamment la distance interélectrode pour que l'avalanche primaire ne puisse pas atteindre la taille critique (faible Pxd) : MHCD
2. Coupler les avalanches primaires : interactions conduisant à un plasma de grand volume: pré-ionisation et surtension
3. Claquage de Townsend : avant que le champ soit suffisant pour qu'une avalanche de grande dimension se forme → pas de streamer → pas de microdécharge
4. Décharge RF en mode α

Comment éviter la formation d'un streamer localisé?

Gap micrométrique

Transition pour (**Pression X distance**) $> 10^4 \text{ Pa}\cdot\text{m} \sim 10^{-1} \text{ Atm}\cdot\text{cm} \sim 70 \text{ Torr}\cdot\text{cm}$
P a N a 1/l : d/l >>1



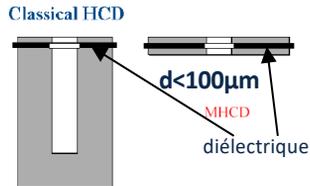
$$F = q \cdot E$$
$$E = V/d$$

Le produit $P \times d$ associé à la transition entre le claquage de Townsend et le claquage de streamer n'est pas une valeur bien définie

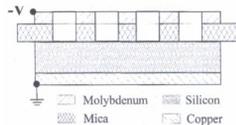
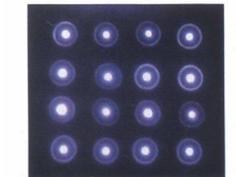
Comment éviter la formation d'un streamer localisé?

Gap micrométrique: Micro-hollow cathode discharge

Hollow Cathode Discharge Geometries



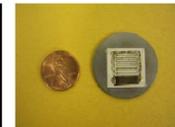
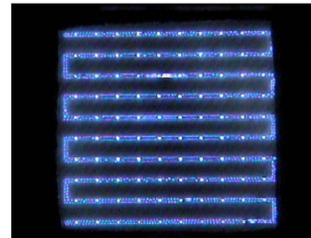
Karl H. Schoenbach et al., Plasma Sources Science and Technology, 6, 468 (1997).



W. Shi et al., *IEEE Trans. Plasma Sci.* 27, 17 (1999)

K. H. Shoenbach, *J. Vac. Sci. & Tech. A: Vac., surf, and Films*, Jul. 2003, 21 (4) pp. 1260

Micro-plasma like Micro-hollow cathode (MHCD)



Xenon
200 Torr, 60 mA

Gas gap $< 100 \mu\text{m}$:

==> Les avalanches électroniques ne peuvent pas atteindre la taille critique pour localiser le champ électrique

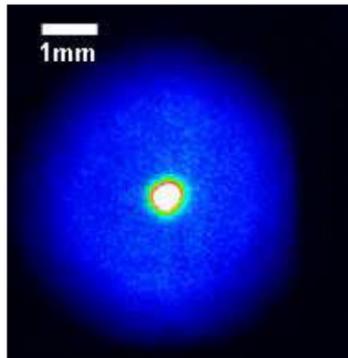
==> Pas de streamer

==> Forte contribution des parois

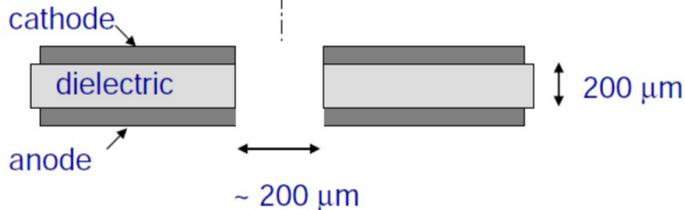
==> Low pressure plasmas physics

MHCD

MicroHollow Cathode Discharge : MHCD



- Low voltage operation (~ 200 V in RG's, 400 V in oxygen-containing mixtures)
- DC stable at 100's kW/cm³
- DC stable at atmospheric pressure
- Concepts for scaling to higher volumes :
 - arrays of MHCDs
 - 3-electrode systems



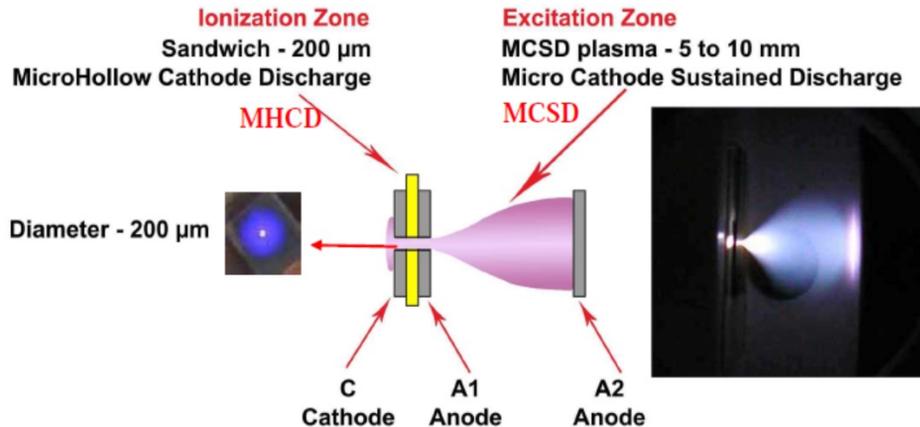
Developed originally by KH Schoenbach et col at Old Dominion Univ in USA

MHCD

MicroHollow Cathode Discharge: MHCD

Micro-Cathode Sustained Discharges: MCSD

R.H. Stark and K.H. Schoenbach J. Appl. Phys. 85, 2075 (1999)



Traitement effluents gazeux: C. Jiang et al, IEE Trans. Plasma Sci. 31, 782 (2005)

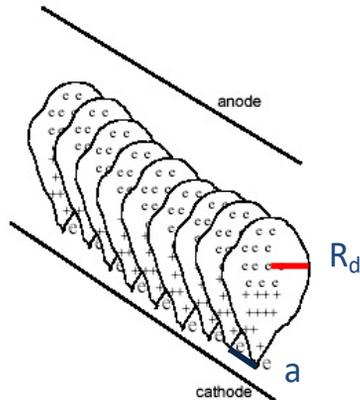
Production de $\text{O}_2(a^1\Delta_g)$: J. Santos Sousa et al, Appl. Phys. Lett. (2008)

J. Santos Sousa et al, Eur. Phys J.: Appl. Phys. (2009)

Comment éviter la formation d'un streamer localisé?

Couplage des avalanches primaires

Couplage des avalanches électroniques :
beaucoup d'avalanche électroniques simultanées



Preionisation + HT : De nombreuses avalanches se développent en même temps
Si elles se recouvrent avant la transition au streamer, la décharge est homogène

Condition de recouvrement des avalanches ?

Quand les avalanches atteignent la taille critique (x_c), que $N_{ec}=10^8$: $R_{dc} < a/2$, a distance entre 2 e_{primaires}

Si N_{e0} est la densité de préionisation : $a = N_{e0}^{-1/3}$

$R_{dc} \approx 100\mu\text{m}$

$N_{e0} \approx 10^6/\text{cm}^3$

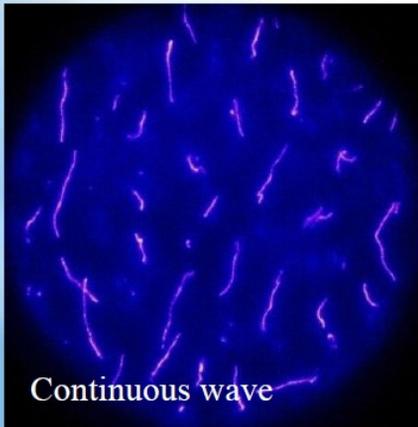
Comment éviter la formation d'un streamer localisé?

Couplage des avalanches primaires

Continuous (sinusoidal)

Rise time: ~ 1 V / nsec
Sinusoidal wave

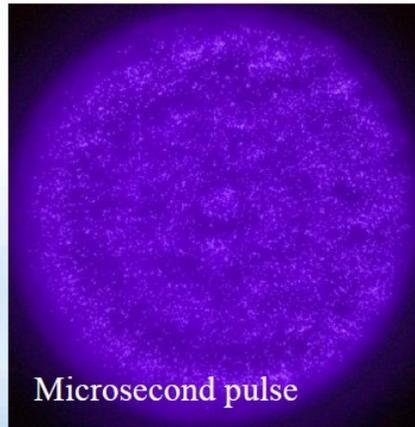
Filament temperature:
350-450K



Microsecond-pulsed

Rise time: ~ 5 V / nsec
Pulse duration: ~ 2 μ sec

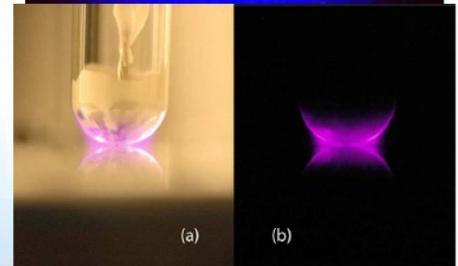
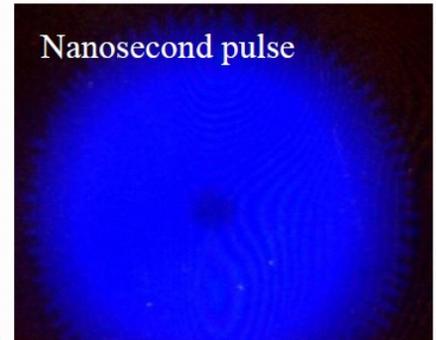
Filament temperature:
320-420K



Nanosecond-pulsed

Rise time: $\sim 3,000$ V / nsec
Pulse duration: ~ 40 nsec

Rotational temperature:
 ~ 300 K



Drexel Plasma Institute

H. Ayan *et al*, J. Phys. D: Appl. Phys. **42** (2009) 125202

Comment éviter la formation d'un streamer localisé?

Claquage de Townsend

Principe :

Obtenir un claquage du gaz pour un champ inférieur au champ de développement d'une avalanche de taille critique

⇒ obtenir un claquage de Townsend

Moyens:

- γ : Augmenter la contribution de l'émission d'électrons secondaires à la cathode avant et pendant le claquage
- α : Diminuer la vitesse d'ionisation dans le gaz afin que les ions puissent atteindre la cathode

Comment éviter la formation d'un streamer localisé?

Claquage de Townsend

Si γ augmentent, $d\alpha/dE$ lente et V_c faible \implies claquage de Townsend

Comment augmenter l'émission d'électrons secondaires ?

Emission d'électrons à la cathode dépend:

- **Augmenter le coefficient d'émission secondaire, γ :**

- Choix du matériau qui constitue la cathode :

- Oxyde : MgO

- Isolant chargé négativement

- **Diélectrique sur chaque électrode:**

Quand le diélectrique est sur l'anode il se charge en électrons. A l'alternance suivante l'électrode est la cathode et l'émission secondaire est exacerbée en début de décharge lorsque la décharge s'amorce.

- **Augmenter le flux de particules pouvant induire l'émission d'électrons secondaires :** effet mémoire : espèces à longue durée de vie et réactions secondaires produisant des ions, des photons :
contrainte sur la fréquence de répétition de la décharge i.e. fréquence de la tension.

Comment éviter la formation d'un streamer localisé?

Claquage de Townsend

Ralentir l'ionisation du gaz pour laisser le temps aux ions de dériver à la cathode:
Ionisation en plusieurs étape : Ionisation Penning

Ex : décharge luminescente à la pression atmosphérique dans He/air

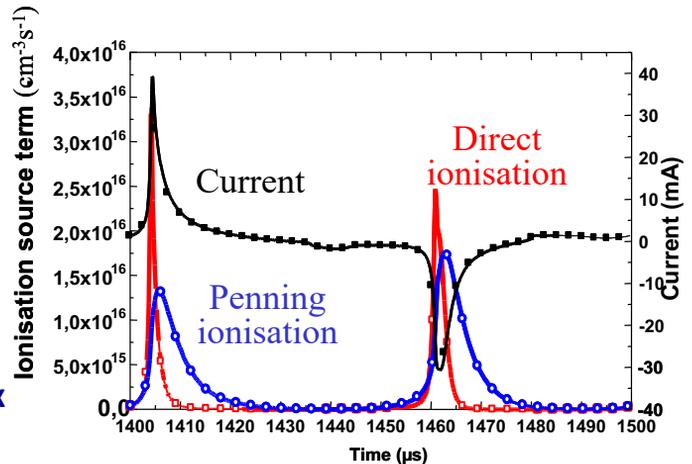
Comparaison de l'importance de l'ionisation directe et de l'ionisation Penning
Modèle fluide 1D (P. Ségur)

Ionisation directe
 $e + He \Rightarrow He^+ + 2 e$

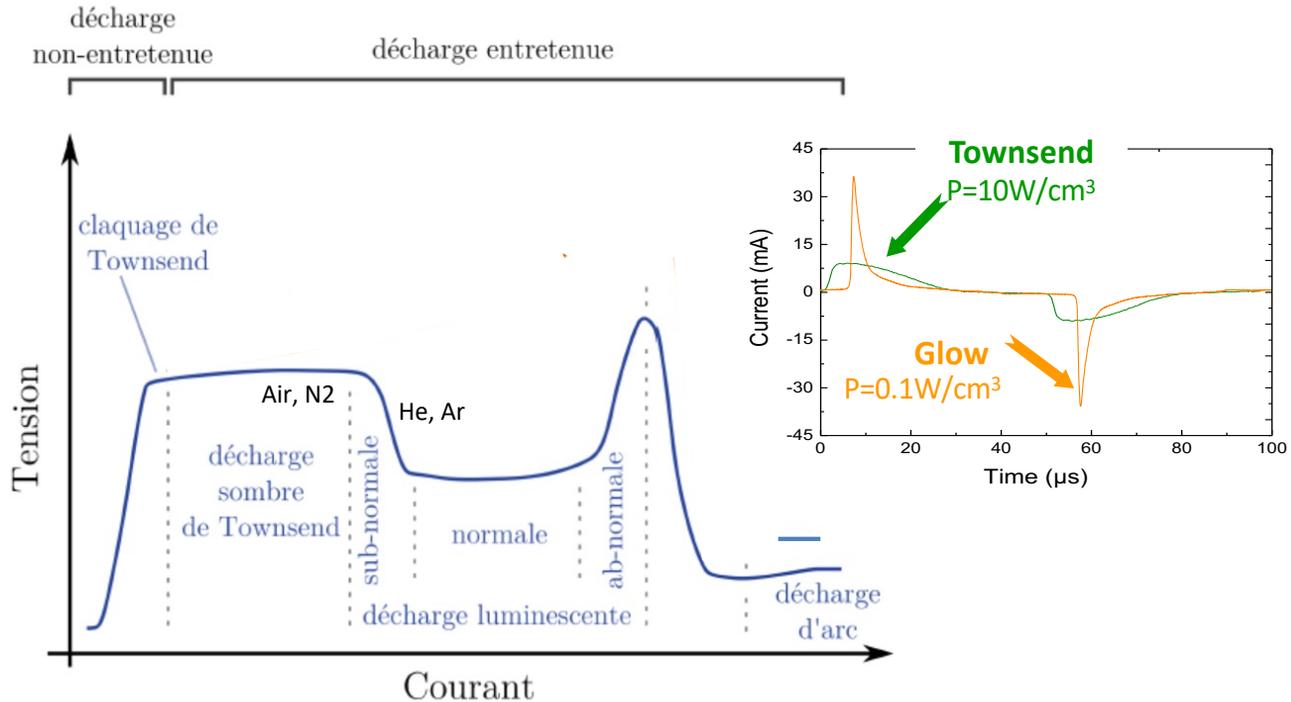
Ionisation Penning
 $e + He \Rightarrow He^*$

$He^* + N_2 \Rightarrow N_2^+ + e + He$

Contrainte sur le mélange gazeux

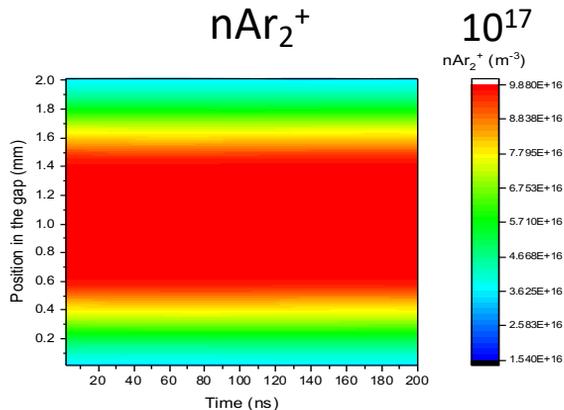
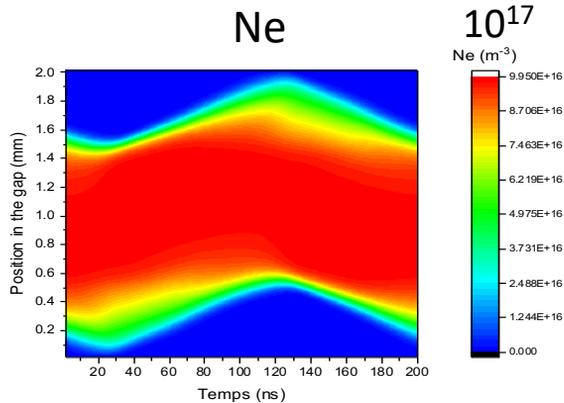


Caractéristique courant – tension continue

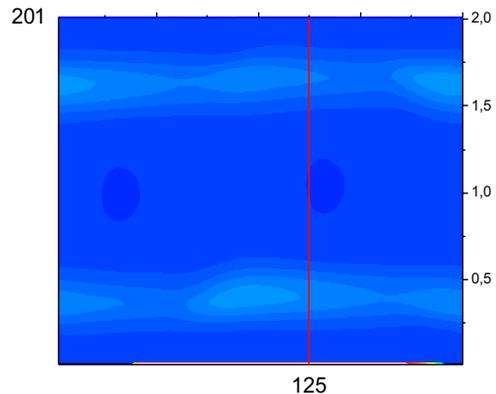


DECHARGE RF : Homogène à Patm

- En mode α la décharge RF est homogène, un plasma de volume défini par les ions se forme.
- En mode γ la décharge se contracte en revanche en RF-BF la décharge est homogène et associe forte densité d'électrons et flux d'ions à la cathode.

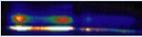
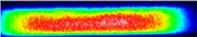
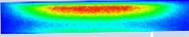


Terme source
des électrons (m^3s^{-1})



PLASMAS A PRESSION ATMOSPHERIQUE

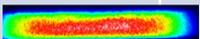
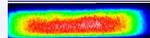
Comparaison des DBDs diffuses

Density (cm ⁻³)	10 ⁷	10 ⁸	10 ⁹	10 ¹⁰	10 ¹¹	10 ¹²	10 ¹³	10 ¹⁴	10 ¹⁵
Max Ne	Townsend			Glow		Glow like		FDBD	
									
				Glow RF		Nano-répétitive			
									

- Les décharge lumineuse (glow) ne fonctionnent que dans les mélanges Penning, les autres décharges fonctionnent dans l'air
- La densité d'électrons et leur énergie peuvent être variés sur une très grande plage en ne changeant que la forme de l'excitation

PLASMAS A PRESSION ATMOSPHERIQUE

Comparaison des DBDs

Density (cm ⁻³)	10 ⁷	10 ⁸	10 ⁹	10 ¹⁰	10 ¹¹	10 ¹²	10 ¹³	10 ¹⁴	10 ¹⁵
Max Ne	Townsend 			Glow 	Glow like 			FDBD 	
				Glow RF 			Nano-répétitive 		
Carrier gas metastable			RF 	Glow 		Townsend 			

- ✓ Maximum ionization level is related to the current amplitude
- ✓ Maximum power also depends on the discharge duration

DBD homogènes	Townsend	Glow BF	Glow RF	Glow like	Nano-répétitive	VHF (150MHz)
Power W/cm ²	10	1	50	10	20	10

SOMMAIRE : Plasmas froids à la pression atmosphérique

I - Introduction

II – Claquage d'un gaz à la pression atmosphérique

1. De l'avalanche électronique au streamer
2. Du streamer à la microdécharge

III – Plasmas froids à la pression atmosphérique

1. Décharge couronne
2. Décharge nano-impulsionnelle répétitive
3. Décharge contrôlée par barrière diélectrique

IV - Décharges diffuses à la pression atmosphérique

1. Micro hollow cathode
2. Couplage d'avalanche électronique
3. Claquage de Townsend, décharge de Townsend et luminescente
4. Décharge radiofréquence

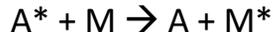
V – Spécificité de la cinétique chimique à la pression atmosphérique

VI - Synthèse

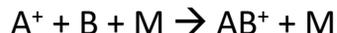
- A pression atmosphérique toutes les réactions qui implique le gaz principal sur le niveau fondamental (M) sont dominantes

En particulier, c'est le cas

- des réactions de 'quenching' :



- des réactions à 3 corps :



⇒ Lampes à excimère

⇒ Ozone

Décharges froides à la pression atmosphérique

Applications

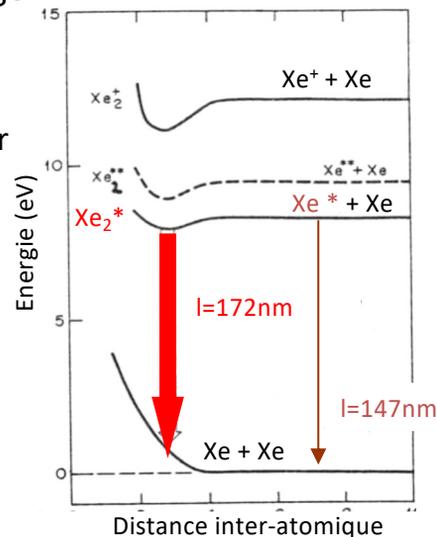
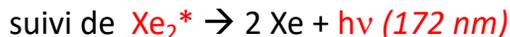
ATMOSPHERIC PRESSURE CHEMISTRY

Réactions à 3 corps: formation d'excimer

Influence sur les états excités présents dans la décharge

Génération d'excimers dans les lampes UV ou VUV

Ex : dimère de gaz rare – cas d'une décharge dans le Xénon pur



→ Le chemin cinétique dominant (1 ou 2) dépend de la pression de travail

<http://gaphyor.lpgp.u-psud.fr/index-fr.html>

Réactions à 3 corps

Influence sur les états excités présents dans la décharge

Génération d'excimères dans les lampes UV ou VUV

Ex : dimère de gaz rare – cas d'une décharge dans le Xénon pur



$$v_1 = 1.10^4 \text{ s}^{-1}$$

$$k_2 = 2.10^{-32} \text{ cm}^6 \cdot \text{s}^{-1}$$

A 1 mbar, $[\text{Xe}] = 2,6.10^{16} \text{ cm}^{-3}$:

$$v_1 = 1.10^4 \text{ s}^{-1} \gg v_2 = k_2 * [\text{Xe}]^2 \approx 1.10^1 \text{ s}^{-1}$$

→ émission principalement à 147 nm

A 1000 mbar, $[\text{Xe}] = 2,6.10^{19} \text{ cm}^{-3}$:

$$v_1 = 1.10^4 \text{ s}^{-1} \ll v_2 = k_2 * [\text{Xe}]^2 \approx 1.10^7 \text{ s}^{-1}$$

→ émission principalement à 172 nm

Décharges froides à la pression atmosphérique

Applications

ATMOSPHERIC PRESSURE CHEMISTRY

Réactions à 3 corps

Influence sur les états excités présents dans la décharge

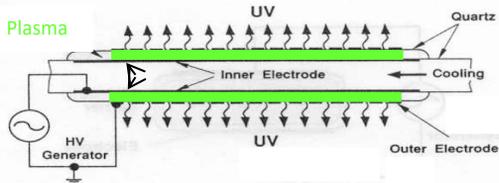
Génération d'excimères dans les lampes UV ou VUV

Ex.: dimère de gaz rare – cas d'une décharge dans le Xénon pur

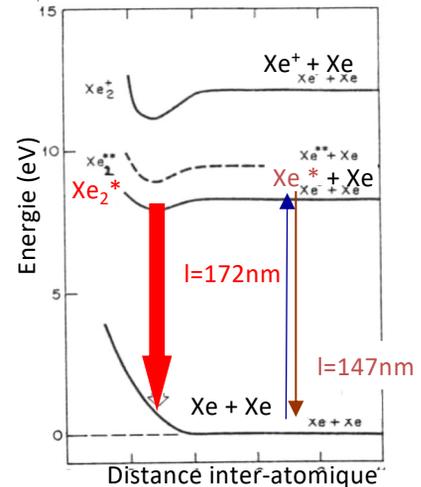
Intérêt des hautes pressions :

Le rayonnement à 147 nm peut être autoabsorbé, pas celui à 172 nm !!!

➔ Lampe a fort rendement VUV à hautes pressions



➔ Photo emission



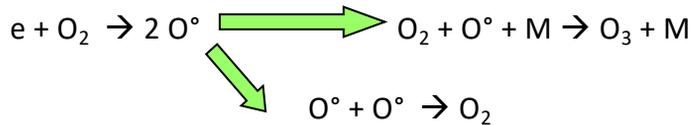
Décharges froides à la pression atmosphérique

Applications

ATMOSPHERIC PRESSURE CHEMISTRY

Réactions à 3 corps

Influence sur le chemin cinétique



- ✓ Traitement de l'eau
- ✓ Pâte à papier



Qq MW \rightarrow qq centaines de kg d'ozone/h

SOMMAIRE : Plasmas froids à la pression atmosphérique

I - Introduction

II – Claquage d'un gaz à la pression atmosphérique

1. De l'avalanche électronique au streamer
2. Du streamer à la microdécharge

III – Plasmas froids à la pression atmosphérique

1. Décharge couronne
2. Décharge nano-impulsionnelle répétitive
3. Décharge contrôlée par barrière diélectrique

IV - Décharges diffuses à la pression atmosphérique

1. Micro hollow cathode
2. Couplage d'avalanche électronique
3. Claquage de Townsend, décharge de Townsend et luminescente
4. Décharge radiofréquence

V – Spécificité de la cinétique chimique à la pression atmosphérique

VI - Synthèse

SYNTHESE

Décharges à la pression atmosphérique

- Pour des $P_{xd} > 50 \text{ Torr.cm}$ (fonction du gaz) la contribution de l'émission secondaire devient faible comparée à l'ionisation du gaz → **claquage de type streamer**.
 - Développement d'une avalanche électronique qui crée 10^8 électrons et ions
 - Champ de charge d'espace égal au champ appliqué
 - Onde d'ionisation vers l'anode
 - Onde d'ionisation vers la cathode résultant de la formation d'avalanches secondaires
 - Le streamer se transforme en microdécharge lorsque les 2 électrodes sont connectées puis en étincelle lorsque le courant augmente
- Le produit P_{xd} pour lequel la transition Townsend / streamer est observée dépend des conditions expérimentales.

SYNTHESE

Plasmas froids à la pression atmosphérique

- Pour maintenir le gaz froid à la pression atmosphérique il faut interrompre la décharge avant qu'elle transite à l'arc:
 - Excitation impulsionnelle (<500ns)
 - Courbure d'une des électrodes faible par rapport à l'espace interélectrode pour que le champ varie très rapidement dans l'espace interélectrode
 - décharge couronne
 - Diélectrique solide dans le passage du courant entre les 2 électrodes dont la charge fait chuter la tension appliquée sur le gaz
 - Décharge contrôlée par barrière diélectrique

SYNTHESE

Décharge Contrôlée par Barrière Diélectrique (DBD)

- **Décharge contrôlée par barrière diélectrique**
 - Sont des décharges froides robustes obtenues dans des configurations très variées.
 - Ont beaucoup d'applications : la **chimie dans le gaz** (Ozone, dépollution, combustion ...), le **traitement de surface** (activation de surface polymère, nettoyage de métaux, stérilisation, dépôt de couches minces ...), les **sources de lumière** en particulier UV et VUV qui utilisent les excimères ainsi que les sources planes de grandes dimensions, au contrôle de l'écoulement, à la combustion...
 - Sont normalement constituées de **microdécharges**.
 - Peuvent être homogènes lorsque l'excitation est nanoimpulsionnelle, Radio Fréquence, basse fréquence dans des conditions qui permettent un claquage de Townsend.
 - Ont une densité électronique maximale qui varie de entre **10^8 et $10^{15}/\text{cm}^3$** suivant le régime de décharge défini par la nature de la surface, la fréquence et l'amplitude de la tension, et la nature du gaz.
 - Une puissance de **$10\text{W}/\text{cm}^2$ ou $100\text{W}/\text{cm}^3$** peut être atteinte avec une **DBD homogène**.

SYNTHESE

Cinétique chimique à la pression atmosphérique

Du fait de la pression c'est à dire de la forte densité du gaz:

- L'ionisation dans le volume du gaz est importante
 - claquage de streamer
 - chauffage du gaz
- La cinétique chimique est relativement spécifique
 - Les réactions impliquant le gaz dans son état fondamental sont dominantes
 - Faire très attention lors de l'utilisation d'un schéma cinétique développé pour une décharge à basse pression :
 - * Vérifier que des approximations gênantes pour une utilisation à haute pression n'ont pas été faites: les réactions à 3 corps, réactions de quenching,... peuvent devenir dominantes. La formation d'excimères et des photons VUV qu'ils peuvent émettre, ne peuvent pas être négligés ainsi que celle de métastables et donc des réactions Penning, les ions peuvent aussi être différents.
 - * Rajouter toutes les réactions faisant intervenir les espèces dans leur niveau fondamental.
- Le libre parcours moyen des radicaux est aussi très faible et le couplage décharge écoulement fondamental.

CONCLUSION

- Des plasmas froids très différents sont générés à la pression atmosphérique
- Dans des configurations qui ne sont limitées que par l'imagination et sans cesse diversifiées grâce à l'évolution des générateurs (très forte tension, pico secondes) et des moyens de fabrication (fabrication additive, techniques microélectronique pour la miniaturisation).
- La frontière entre plasma hors équilibre et thermique devient diffuse.
- Les domaines d'application se multiplient aussi.

PLASMAS A PRESSION ATMOSPHERIQUE

BIBLIOGRAPHIE

Plasma Chemistry and Plasma Processing, Vol. 23, No. 1, March 2003 (© 2003)

Invited Review

Dielectric-barrier Discharges: Their History, Discharge Physics, and Industrial Applications

Ulrich Kogelschatz¹

Eur. Phys. J. Appl. Phys. 47, 22805 (2009)
DOI: 10.1051/epjap/2009064

THE EUROPEAN
PHYSICAL JOURNAL
APPLIED PHYSICS

Regular Article

Recent advances in the understanding of homogeneous dielectric barrier discharges

F. Massines^{1,a}, N. Gherard^{2,3}, N. Naudé^{2,3}, and P. Séguin^{2,3}

OPEN ACCESS

IOF Publishing

Plasma Sources Science and Technology

Plasma Sources Sci. Technol. 26 (2017) 053001 (29pp)

<https://doi.org/10.1088/1361-6595/aa8426>

Topical Review

Dielectric barrier discharges: progress on plasma sources and on the understanding of regimes and single filaments

Ronny Brandenburg

JOURNAL OF APPLIED PHYSICS 119, 243304 (2016)



Transition from Townsend to radio-frequency homogeneous dielectric barrier discharge in a roll-to-roll configuration

R. Bazinette,^{1,2} J. Paillot,² and F. Massines^{1,a}

¹CNRS-PROMES, Rambla de la Thermodynamique, 66100 Perpignan, France

²SIAME, Université de Pau et des Pays de l'Adour, Pau, France

(Received 8 February 2016; accepted 25 May 2016; published online 29 June 2016)

Livre : Yu. P. Raizer « Gas Discharge Physics » (Springer)

PLASMA PROCESSES
AND POLYMERS

Volume 9, Issue 11-12

December 2012

Pages 1041-1073

Review Full Access

Atmospheric Pressure Low Temperature Direct Plasma Technology: Status and Challenges for Thin Film Deposition

Francoise Massines ✉, Christian Sarra-Bournet, Fiorenza Fanelli, Nicolas Naudé, Nicolas Gherardi

PLASMAS A PRESSION ATMOSPHERIQUE

BIBLIOGRAPHIE

Japanese Journal of Applied Physics 60, 040501 (2021)
<https://doi.org/10.35848/1347-4065/ab6e2>

STAP REVIEW

Mechanistic understanding of cold atmospheric plasma applications



Review of numerical simulation of atmospheric-pressure non-equilibrium plasmas: streamer discharges and glow discharges

OPEN ACCESS

IOP Publishing

Plasma Sources Science and Technology

Plasma Sources Sci. Technol. 26 (2017) 053001 (28pp)

<https://doi.org/10.1088/1361-6586/aa6428>

Topical Review

Dielectric barrier discharges: progress on plasma sources and on the understanding of regimes and single filaments

Ronny Brandenburg

IOP Publishing
J. Phys. D: Appl. Phys. 46 (2013) 464001 (28pp)

JOURNAL OF PHYSICS D: APPLIED PHYSICS
[doi:10.1088/0022-3727/46/46/464001](https://doi.org/10.1088/0022-3727/46/46/464001)

Atmospheric pressure discharge filaments and microplasmas: physics, chemistry and diagnostics

Peter Bruggeman^{1,2} and Ronny Brandenburg^{1,3}

Review

Plasma Processes and Polymers

Arc-Free Atmospheric Pressure Cold Plasma Jets: A Review

Mounir Laroussi,^{*} Tamer Akan

Plasma Process. Polym. 2007, 4, 777–788
© 2007 WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim



DOI: 10.1002/ppap.200700066

OPEN ACCESS

IOP Publishing

Plasma Sources Science and Technology

Plasma Sources Sci. Technol. 31 (2022) 053001 (48pp)

<https://doi.org/10.1088/1361-6595/ac51a9>

Topical Review

Physics of plasma jets and interaction with surfaces: review on modelling and experiments

Pedro Viegas^{1,2,*}, Elmar Slikboer^{1,3}, Zdenek Bonaventura²,
Olivier Guaitella¹, Ana Sobota⁴ and Anne Bourdon¹

Physics Reports 540 (2014) 123–166



Contents lists available at ScienceDirect

Physics Reports

journal homepage: www.elsevier.com/locate/physrep



Guided ionization waves: Theory and experiments

X. Lu^{3,4}, G.V. Naidis⁵, M. Laroussi⁶, K. Ostrikov^{4,6}

