



HAL
open science

Etude numérique et expérimentale de la détection et la formation de poussières carbonées dans un plasma radio fréquence en mélange Ar/C₂H₂

Simon Dap

► **To cite this version:**

Simon Dap. Etude numérique et expérimentale de la détection et la formation de poussières carbonées dans un plasma radio fréquence en mélange Ar/C₂H₂. Autre [cond-mat.other]. Université de Lorraine, 2012. Français. NNT : 2012LORR0084 . tel-01749293

HAL Id: tel-01749293

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01749293>

Submitted on 29 Mar 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

Étude numérique et expérimentale de la détection et la
formation de poussières carbonées dans un plasma radio
fréquence en mélange Ar/C₂H₂

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 15 Octobre 2012

pour l'obtention du titre de

Docteur de l'Université de Lorraine

(Physique)

par

Simon DAP

Composition du jury

- Président :* T. BELMONTE, Directeur de Recherche CNRS, IJL, Université de Lorraine
- Rapporteurs :* L. BOUFENDI, Professeur des Universités, GREMI, Université d'Orléans
A. COPPALLE, Professeur des Universités, INSA, Université de Rouen
- Examineurs :* C. ARNAS, Chargée de Recherche au CNRS, PIIM, Aix-Marseille Université
C. GRISOLIA, Ingénieur, IRFM, CEA-Cadarache
- Directeur de thèse :* J. BOUGDIRA, Professeur des Universités, IJL, Université de Lorraine
- Co-directeur de thèse :* D. LACROIX, Professeur des Universités, LEMTA, Université de Lorraine

Institut Jean Lamour – UMR CNRS 7198

Département de Chimie et de Physique des Solides et Surfaces

Equipe Expériences et Simulations des Plasmas Réactifs - Interactions plasma-surface et
Traitement des Surfaces



Mis en page avec la classe thloria.

" Tin Tin Tin! "
Renaud

À Justin

Remerciements

C'est grâce au travail, au soutien et à l'aide de nombreuses personnes que les résultats présentés dans ce manuscrit ont pu être réalisés. Je tiens donc à les en remercier.

J'ai effectué mon travail de thèse au sein de deux laboratoires : l'Institut Jean Lamour (IJL), département CP2S, équipe ESPRITS et le LEMTA, dans l'équipe Transfert Radiatif (devenue groupe Énergie, opération scientifique 1 "THOMAS"). Je tiens donc en premier lieu à remercier Jamal Bougdira et Gérard Jeandel pour m'avoir si bien accueilli au sein de ces deux structures. J'ai eu la chance de pouvoir y travailler dans d'excellentes conditions, tant sur le plan purement professionnel que relationnel.

Mes remerciements vont également aux membres du jury : Thierry Belmonte, Laïfa Boufendi, Alexis Coppalle, Cécile Arnas et Christian Grisolia, pour avoir accepté d'évaluer mon travail. J'ai eu l'occasion d'apprécier la pertinence de leurs analyses qui m'ont notamment permis d'améliorer certains points du manuscrit.

Je souhaiterais remercier les personnes qui m'ont encadré au cours de ces trois années : Jamal Bougdira et Robert Hugon du côté IJL et David Lacroix au LEMTA. J'ai toujours pu compter sur eux, que ce soit pour des questions scientifiques ou matérielles. Ils ont toujours été présents dans les moments difficiles et c'est grâce à eux que cette thèse a pu se dérouler dans de très bonnes conditions. Je tiens particulièrement à rappeler l'engagement de Robert Hugon alias Bobby, l'homme de l'ombre qui n'apparaît pas de manière officielle dans l'encadrement de ma thèse...et pourtant. A vous trois, un très grand merci.

Je tiens à remercier avec une attention toute particulière Ludovic de Pouques et Jean-Luc Briançon (alias JLB) pour leur grande implication à mes côtés. J'ai beaucoup appris de vous deux, et pas seulement en physique. Les sciences culinaires notamment ont souvent fait l'objet de nos conversations du lundi matin concernant les repas du week-end passé, et du vendredi après-midi concernant ceux du week-end à venir. Le lapin aux pruneaux et la tarte au citron n'auront plus le même goût désormais...

Merci à tous les membres de l'équipe 201-FST pour les très bons moments passés ensemble et dont l'apothéose fût, à n'en pas douter, ce magnifique séjour (de travail bien sûr) à Martimpré. Je commence par les anciens : Mohammed Belmahi alias Momo, dans le rôle du chef, Frédéric Brochard alias Freddy Mercure (celui qui fait monter la température) qui m'a fait connaître l'équipe lors de mon stage de M1, Damien Genève et Jean-Luc

Vasseur et ses lasers. Je continue avec mes collègues de Bureau, un joyeux mélange de doctorant/ATER/Post-doc. Simon Bulou alias Bubulle et ses rillettes. Sache que le vide que tu as laissé suite à ton départ ne s'est jamais refermé (surtout pour Momo). Sébastien Bardin le renard des surfaces tapis dans l'ombre à l'orée du Bois. Vous le connaissez plus probablement sous le nom de Framboisier Goudinov. Sportif, sentimental (fan inconditionnel de J.J. Goldman et F. Cabrel), sympa, sachez Mesdames qu'il est toujours célibataire. J'ajoute par ailleurs qu'il a supporté mon caractère pendant trois années consécutives ce qui fait de lui un être exceptionnellement patient. Thomas Bieber, alias Justin (prononcez à l'anglaise), dont le charme prend toute sa dimension après quelques bières. On dit alors de lui qu'il est Just-in-Bieber. Je n'oublierai pas de sitôt son soutien lors de cette fameuse conférence à Garmisch... Xavier Glad, nouveau doctorant, toujours de bonne humeur et dont le cardigan ressemble étrangement à...une serpillière. On attend tous le jour où il se décidera enfin à s'habiller comme un homme (un vrai), mais comme il le dit si bien : "ça marche!". Merci pour ta bonne humeur quotidienne. Je n'oublie pas les nouveaux doctorants qui nous ont rejoint récemment et que je n'ai malheureusement pas eu le temps de bien connaître : Mickaël Desecures, Amanda Thouvenin et Andreï Shalpegin. Enfin, je souhaite remercier Yan Peng pour avoir ouvert la voie sur la thématique plasma poussieux et avoir ainsi posé les premiers jalons me permettant d'avancer.

Je remercie également tous les membres du groupe énergie du LEMTA. Pascal Boulet, toujours accompagné de sa formidable bonne humeur très contagieuse. Gilles Parent, Bernard Monod et Jérôme Muller, les gardiens de la cryo toujours prêts à rendre service, j'ai eu l'occasion de le vérifier à plusieurs reprises. Sébastien Fumeron, avec qui j'ai eu de longues et passionnantes discussions. Merci pour cette ouverture, entre autres, au monde de l'histoire et de la sociologie. Voilà une porte ouverte que je ne suis pas prêt de refermer. Merci et bienvenue à Konstantinos Termentzidis alias Kostas, que j'ai eu la chance de rencontrer quelques semaines avant mon départ. Sans oublier la fougue de la jeunesse magnifiquement incarnée au cours de l'âge d'or par Zoubir Acem (un peu limite pour la jeunesse mais bon), Sullivan Lechêne, Issiaka Traoré, Julien Tissot et Lionel Trovalet (et ses Vietnamiens), la relève étant assurée par Jonathan Gerardin (malgré son exil sudiste), Valentin Jean, et Benjamin Le Corre.

En attendant l'unification, l'équipe 201 est toujours répartie sur deux sites, la 201-FST n'étant que la partie immergée de l'iceberg. La majeure partie de l'équipe est constituée par la 201-Mines. Même si cette situation ne m'a pas permis de les fréquenter aussi assidûment que je l'aurais souhaité, j'ai (heureusement) eu l'occasion de bien les connaître lors des nombreux séminaires et congrès vécus ensemble. Merci donc à Thierry Belmonte, Grégory Marcos, Gérard Henrion, Thierry Czerwiec, Cédric Noël, Thomas Gries, Julien Martin, Amer Melhem, Ahmad Hamdam... et tous les autres.

Mes remerciements vont également aux stagiaires dont j'ai eu la chance de participer à l'encadrement : Xavier Glad, Tarek Azeroual, Tudorel Oancea et Jonathan Parmentier. Leur aide a été très précieuse et a incontestablement participé à l'avancement des travaux réalisés au cours de cette thèse.

Il serait absurde de prétendre que la recherche, notamment scientifique, n'est le fruit du travail que d'une poignée de chercheurs. Ce serait oublier le rôle essentiel joué par de nombreuses autres personnes à de multiples niveaux. Je pense notamment aux secrétaires : Nathalie Brenon, Sophie Klein et Valérie Tamburini, et aux femmes de ménages : Jojo (l'unique, la vraie) et Christelle pour ne citer qu'elles.

Tout expérimentateur sait à quel point l'aide apportée par les techniciens et les ingénieurs est précieuse. Sans eux, la réalisation et l'entretien des différents dispositifs expérimentaux seraient très compliqués, et dans de nombreux cas impossibles. Un grand merci donc aux camarades de l'atelier, j'ai nommé les doigts d'or, Dominique Mulot et Jean-Georges Musso ainsi qu'à Luc Moreau.

Que faire lorsque le disque dur contenant vos résultats de thèse ne fonctionne plus ou que votre PC refuse de démarrer la veille de votre présentation ? Les solutions s'appellent Christian Causse, Nicolas Rogier ou encore Christian Senet. Merci à la cellule info !

J'ai eu à plusieurs reprises l'occasion d'apprécier le grand professionnalisme de Ludovic Mouton du SCMEM. Merci pour ces séances MEB associées à ces longues discussions. Une fois de plus, des moments sympathiques. . .

Cette thèse n'aurait pas été la même sans ces repas à l'Inist partagés notamment avec Sébastien Bardin, Sébastien Fumeron, JLB, Christelle Brochard, Eric Faudot, Valérie Brien, Frédéric Brochard. Juste à titre indicatif, les numéros de carte de ces derniers sont respectivement 216, 588 et 576. . .ça peut servir.

Au cours de ces trois années, j'ai eu la chance de rencontrer, de discuter et de travailler avec de nombreuses autres personnes, que cela concerne la recherche ou l'enseignement. Je tiens donc à remercier, pour toute l'aide qu'ils ont pu m'apporter : Fabrice Patisson, Gaël Maranzana, Maxime Mikikian, Isabelle Boucher, Stéphane Heuraux, Philippe Pigéat, Thomas Easwarakhanthan, Brice Vincent, Didier Rouxel, Van-Son N'Guyen, Jean François Pautex, Cécile Voinot. . .

Je pense aussi aux autres collègues doctorants dont je n'ai pas encore parlé jusqu'à présent : David Coulette, Jordan Cavalier, Guillaume Boussein, Aurélie Inglebert, Emilie Stevler, Amandine Duluard. . .

Combien de journées de travail se sont-elles prolongées autour d'une bière à la cafet' chez Philippe et Maïté ? La réponse la plus précise que je puisse faire est : un certain nombre. . . Merci à vous deux.

Merci aussi aux amis de tous horizons. La liste serait trop longue sans compter qu'un oubli pourrait heurter certaines susceptibilités. Ils se reconnaîtront de toute façon, même si je doute qu'ils lisent un jour ces quelques lignes.

Enfin, et j'ai gardé le meilleur pour la fin, un immense merci à ma famille et en parti-

culier à mon père Jean-Marc, ma mère Françoise et ma grande petite sœur Lucile. Pour tout ce qu'ils m'ont toujours donné...

Table des matières

Remerciements	iii
Introduction générale	xiii
Chapitre 1 Introduction	3
1.1 Émergence de la thématique des plasmas poussiéreux	3
1.1.1 La découverte par Irving Langmuir	4
1.1.2 Les poussières en astrophysique	4
1.1.3 Les poussières dans l'industrie micro-électronique	5
1.1.4 Les poussières et leurs applications	6
1.2 Fusion par confinement magnétique, interaction plasma-paroi et formation de poussières	7
1.2.1 Introduction : la fusion thermonucléaire contrôlée	7
1.2.2 Formation des poussières dans les tokamaks	9
1.2.3 Problèmes liés à la présence de poussières dans les tokamaks	12
1.2.4 Diagnostics pour l'étude et la caractérisation des poussières	14
1.2.5 Capture et extraction des poussières dans les tokamaks	14
1.3 Conclusion et positionnement de notre étude	15
Chapitre 2 Dispositif expérimental, diagnostics et méthodes d'analyses des résultats	19
2.1 Réacteur radiofréquence capacitif.	19
2.1.1 Description de l'enceinte	19
2.1.2 Injection et pompage des gaz	19
2.1.3 Source plasma	21
2.1.4 Procédure de nettoyage du réacteur	23
2.2 Diagnostics in-situ	23

2.2.1	Mesure de la tension d'auto-polarisation	23
2.2.2	Mesures d'extinction d'un faisceau lumineux	24
2.2.3	Acquisition vidéo, étude de la dynamique des poussières	26
2.3	Microscopie électronique à balayage	28
2.4	Analyse des films réalisés à la caméra rapide	28
2.4.1	Détection et suivi automatiques des poussières : algorithme TRACE	28
2.4.2	Étude des ondes de poussières	33
2.5	Conclusion	36

Chapitre 3 Mesures d'extinction du rayonnement dans un plasma poussiéreux 37

3.1	Introduction	37
3.2	Diffusion et absorption d'une onde électromagnétique par des particules.	37
3.2.1	Généralités sur le phénomène de diffusion	37
3.2.2	Théorie de Mie et propriétés radiatives	39
3.2.3	Extinction et loi de Beer-Lambert	47
3.3	Détermination de la granulométrie des particules : présentation de la méthode inverse.	48
3.4	Simulation complète du diagnostic optique : code Monte Carlo de lancer de rayons.	51
3.5	Validation de la méthode inverse	52
3.5.1	Paramètres des simulations	53
3.5.2	Reconstruction de la distribution en taille des particules	55
3.5.3	Influence de la distribution initiale des marcheurs	59
3.5.4	Autres distributions de particules	59
3.5.5	Inversion en présence d'un bruit de mesure	61
3.6	Application à l'expérience	62
3.6.1	Comparaison avec des clichés MEB	62
3.6.2	Influence du jeu d'indice optique utilisé	64
3.7	Conclusion	65

Chapitre 4 Développement d'une méthode d'extraction des poussières 69

4.1	Introduction	69
4.2	Formation et piégeage des poussières au sein de la décharge	71
4.2.1	Forces agissant sur une poussière	71

4.2.2	Formation et piégeage des poussières au sein de la décharge	75
4.3	Dispositif expérimental utilisé pour la collection des poussières	78
4.4	Résultats	80
4.4.1	Protocole expérimental	80
4.4.2	Résultats obtenus	80
4.4.3	Photographies MEB des particules collectées	87
4.4.4	Influence de la pression	93
4.5	Conclusion	96
Chapitre 5 Étude des ondes de densité de poussières au sein des gaines		97
5.1	Généralités sur les ondes de poussières	97
5.1.1	Introduction	97
5.1.2	Auto-excitation des ondes acoustiques de poussières	101
5.1.3	Conditions d'existence des ondes de poussières	102
5.1.4	Résumé	103
5.2	Conditions d'observation des ondes de poussières	104
5.2.1	Apparition des ondes de poussières	104
5.2.2	Principe des expériences réalisées	105
5.3	Ondes de densité de poussières dans la gaine anodique	106
5.3.1	Les premiers instants après l'injection d'acétylène.	106
5.3.2	Évolution des propriétés des ondes de densité de poussières en fonction de la distance à l'électrode.	108
5.3.3	Évolution des propriétés des ondes de densité de poussières en fonction de la pression.	116
5.3.4	Évolution des propriétés des ondes de densité de poussières en fonction de la puissance RF.	118
5.4	Ondes de densité de poussières dans la gaine cathodique	121
5.4.1	Description générale	121
5.4.2	Disparition des ondes de densité de poussières et formation d'un cristal	125
5.5	Conclusion	127
Chapitre 6 Influence des ondes de densité de poussières sur le processus d'agglomération des poussières		129
6.1	Introduction	129

6.2	Étude bibliographique de la formation des poussières et des agglomérats.	129
6.2.1	Modèle classique de croissance des poussières dans un plasma poussiéreux	129
6.2.2	Étude bibliographique sur la morphologie des agglomérats de particules.	131
6.3	Étude expérimentale du processus de croissance des poudres.	134
6.3.1	Protocole expérimental	134
6.3.2	Tendance générale	135
6.3.3	Description détaillée	137
6.3.4	Discussion et interprétation des résultats	146
6.4	Étude de la morphologie des agglomérats.	151
6.4.1	Étude morphologique basée sur les films réalisés à la caméra rapide.	151
6.4.2	Étude morphologique basée sur la microscopie à balayage électronique	151
6.5	Influence des conditions expérimentales sur le processus d'agglomération	152
6.5.1	Définition des paramètres morphologiques	152
6.5.2	Influence de la pression et de la puissance RF	154
6.6	Régime cyclique de formation des poussières	157
6.7	Conclusion	160
Annexe A ANNEXE 1		161
A.1	Grandeurs caractéristiques : pulsation plasma, longueur de Debye et charge d'une poussière	161
A.1.1	Pulsation plasma	161
A.1.2	Longueur de Debye électronique et ionique	161
A.2	Généralités sur les décharges Radio-fréquence	162
A.2.1	Amorçage de la décharge	162
A.2.2	Auto-polarisation de la cathode, loi des aires et structure de la décharge	162
A.2.3	Mécanismes d'entretien d'une décharge RF capacitive	165
A.3	Paramètres des poussières	166
A.3.1	Charge d'une poussière	166
A.3.2	Écrantage d'une poussière : longueur de Debye généralisée	171
Annexes		161

Annexe B ANNEXE 2	173
Liste des acronymes	177
Liste des symboles	179
Liste des constantes physiques	181
Liste des figures	183
Bibliographie	189

Introduction générale

Les plasmas poussiéreux font l'objet d'intenses recherches depuis le début des années 1980. Ils sont rencontrés dans plusieurs domaines tels que l'astrophysique ou l'industrie micro électronique utilisant des procédés plasma. Par ailleurs, les recherches menées dans le contexte de la fusion thermonucléaire contrôlée par confinement magnétique ont révélé que d'importantes quantités de poussières étaient produites au sein des réacteurs à fusion. Ces poussières sont issues de l'érosion des parois, soumises aux flux de particules et de chaleur provenant du plasma. Elles posent d'importants problèmes de sécurité, notamment liés à la radioactivité du tritium qu'elles contiennent et peuvent en outre nuire au confinement du plasma et au rendement de la machine. Leur étude s'avère donc particulièrement nécessaire, notamment dans la perspective du développement du réacteur international ITER.

L'étude présentée dans ce manuscrit est au confluent des domaines de recherche évoqués précédemment et présente deux objectifs principaux :

- Le premier est relatif au développement de méthodes de diagnostics in-situ dédiées à la détection des poussières. Une méthode inverse a ainsi été développée pour permettre d'estimer les tailles et les densités des poussières à partir de mesures d'extinction. Ces mesures, réalisées dans le domaine visible, fournissent des informations sur les particules de tailles nanométriques. Par ailleurs, l'outil d'analyse numérique de données vidéos TRACE [1], dédié à la détection et au suivi automatique des poussières, a été adapté afin de fournir de nouvelles informations comme par exemple la surface ou la géométrie des particules. Ce type de diagnostic est sensible à des tailles de poussières supérieures à environ 10 micromètres. Enfin, une technique d'extraction des poussières utilisant la force de thermophorèse a été développée pour permettre leur extraction du plasma et leur étude ex-situ.
- Le second objectif se consacre à l'étude des mécanismes de formation des poussières, et en particulier d'agglomérats pouvant comporter plusieurs milliers de particules nanométriques. Elle est rendue possible grâce à l'existence d'ondes de poussières qui apparaissent spontanément au sein des nuages de poussières et leur fournissent l'énergie cinétique suffisante pour s'agglomérer.

Les travaux présentés dans ce manuscrit sont consacrés à l'étude de poussières carbonées, produites in-situ dans une décharge radio fréquence à partir d'acétylène. Ce choix de matériau est justifié par différents aspects. Dans le cadre des recherches menées sur la fusion, une partie de la paroi interne d'ITER (divertor) pourrait être constituée de carbone.

Le carbone présente également un intérêt certain dans le domaine des nanotechnologies. Malgré tout, le choix du matériau ne constitue pas un obstacle puisqu'une part importante des résultats présentés doit pouvoir être transposée au cas de poussières constituées d'un matériau différent.

La structure adoptée pour le développement de l'étude est la suivante.

Le chapitre 1 reprend brièvement, dans une première partie, l'émergence et le développement historique de la thématique des plasmas poussiéreux. Le contexte particulier de la fusion thermonucléaire est ensuite explicité plus en détail.

Le chapitre 2 est dédié à une description du dispositif expérimental. Le réacteur et les diagnostics utilisés au cours de cette étude y sont présentés. Enfin, le fonctionnement de certaines méthodes numériques utilisées pour le traitement des résultats expérimentaux est explicité.

Le chapitre 3 est consacré au diagnostic optique d'extinction. Au début de ce chapitre, les principes physiques sur lesquels repose ce diagnostic sont brièvement décrits. Suite à cette première partie, le fonctionnement de la méthode inverse, utilisée pour déterminer les tailles et les densités de particules à partir des mesures d'extinction, est présenté. La dernière partie de ce chapitre s'attache à vérifier la validité des résultats obtenus et à explorer les limites des outils développés. Ce diagnostic sera largement utilisé dans la suite de l'étude.

Le chapitre 4 présente une méthode d'extraction des poussières basée sur l'utilisation de la force de thermophorèse ("doigt froid"). En préalable à l'étude, les différentes forces agissant sur les poussières seront décrites afin d'appréhender les phénomènes de piégeage des poudres dans la décharge. Les résultats expérimentaux obtenus seront ensuite présentés.

Le chapitre 5 est consacré à l'étude de phénomènes dynamiques affectant les poussières. Il s'agit en particulier d'étudier les ondes de poussières se propageant au sein des nuages de poudres présents dans les gaines de la décharge. Leurs caractéristiques en fonction des conditions expérimentales seront déterminées.

Le chapitre 6 explore les conséquences des ondes de poussières étudiées au chapitre 5 sur le processus d'agglomération des poussières. Nous verrons également que ce processus d'agglomération soutenu permet l'existence de régimes cycliques de formation des poudres.

Ce manuscrit s'achèvera par une conclusion générale, suivie des perspectives faisant suite à l'étude présentée.

Introduction générale

Les plasmas poussiéreux font l'objet d'intenses recherches depuis le début des années 1980. Ils sont rencontrés dans plusieurs domaines tels que l'astrophysique ou l'industrie micro électronique utilisant des procédés plasma. Par ailleurs, les recherches menées dans le contexte de la fusion thermonucléaire contrôlée par confinement magnétique ont révélé que d'importantes quantités de poussières étaient produites au sein des réacteurs à fusion. Ces poussières sont issues de l'érosion des parois, soumises aux flux de particules et de chaleur provenant du plasma. Elles posent d'importants problèmes de sécurité, notamment liés à la radioactivité du tritium qu'elles contiennent et peuvent en outre nuire au confinement du plasma et au rendement de la machine. Leur étude s'avère donc particulièrement nécessaire, notamment dans la perspective du développement du réacteur international ITER.

L'étude présentée dans ce manuscrit est au confluent des domaines de recherche évoqués précédemment et présente deux objectifs principaux :

- Le premier est relatif au développement de méthodes de diagnostics in-situ dédiées à la détection des poussières. Une méthode inverse a ainsi été développée pour permettre d'estimer les tailles et les densités des poussières à partir de mesures d'extinction. Ces mesures, réalisées dans le domaine visible, fournissent des informations sur les particules de tailles nanométriques. Par ailleurs, l'outil d'analyse numérique de données vidéos TRACE [1], dédié à la détection et au suivi automatique des poussières, a été adapté afin de fournir de nouvelles informations comme par exemple la surface ou la géométrie des particules. Ce type de diagnostic est sensible à des tailles de poussières supérieures à environ 10 micromètres. Enfin, une technique d'extraction des poussières utilisant la force de thermophorèse a été développée pour permettre leur extraction du plasma et leur étude ex-situ.
- Le second objectif se consacre à l'étude des mécanismes de formation des poussières, et en particulier d'agglomérats pouvant comporter plusieurs milliers de particules nanométriques. Elle est rendue possible grâce à l'existence d'ondes de poussières qui apparaissent spontanément au sein des nuages de poussières et leur fournissent l'énergie cinétique suffisante pour s'agglomérer.

Les travaux présentés dans ce manuscrit sont consacrés à l'étude de poussières carbonées, produites in-situ dans une décharge radio fréquence à partir d'acétylène. Ce choix de matériau est justifié par différents aspects. Dans le cadre des recherches menées sur la fusion, une partie de la paroi interne d'ITER (divertor) pourrait être constituée de carbone.

Le carbone présente également un intérêt certain dans le domaine des nanotechnologies. Malgré tout, le choix du matériau ne constitue pas un obstacle puisqu'une part importante des résultats présentés doit pouvoir être transposée au cas de poussières constituées d'un matériau différent.

La structure adoptée pour le développement de l'étude est la suivante.

Le chapitre 1 reprend brièvement, dans une première partie, l'émergence et le développement historique de la thématique des plasmas poussiéreux. Le contexte particulier de la fusion thermonucléaire est ensuite explicité plus en détail.

Le chapitre 2 est dédié à une description du dispositif expérimental. Le réacteur et les diagnostics utilisés au cours de cette étude y sont présentés. Enfin, le fonctionnement de certaines méthodes numériques utilisées pour le traitement des résultats expérimentaux est explicité.

Le chapitre 3 est consacré au diagnostic optique d'extinction. Au début de ce chapitre, les principes physiques sur lesquels repose ce diagnostic sont brièvement décrits. Suite à cette première partie, le fonctionnement de la méthode inverse, utilisée pour déterminer les tailles et les densités de particules à partir des mesures d'extinction, est présenté. La dernière partie de ce chapitre s'attache à vérifier la validité des résultats obtenus et à explorer les limites des outils développés. Ce diagnostic sera largement utilisé dans la suite de l'étude.

Le chapitre 4 présente une méthode d'extraction des poussières basée sur l'utilisation de la force de thermophorèse ("doigt froid"). En préalable à l'étude, les différentes forces agissant sur les poussières seront décrites afin d'appréhender les phénomènes de piégeage des poudres dans la décharge. Les résultats expérimentaux obtenus seront ensuite présentés.

Le chapitre 5 est consacré à l'étude de phénomènes dynamiques affectant les poussières. Il s'agit en particulier d'étudier les ondes de poussières se propageant au sein des nuages de poudres présents dans les gaines de la décharge. Leurs caractéristiques en fonction des conditions expérimentales seront déterminées.

Le chapitre 6 explore les conséquences des ondes de poussières étudiées au chapitre 5 sur le processus d'agglomération des poussières. Nous verrons également que ce processus d'agglomération soutenu permet l'existence de régimes cycliques de formation des poudres.

Ce manuscrit s'achèvera par une conclusion générale, suivie des perspectives faisant suite à l'étude présentée.

Chapitre 1

Introduction

Ce chapitre introductif propose un aperçu des différentes thématiques scientifiques dans lesquelles interviennent les plasmas poussiéreux et qui ont participé à l'émergence de cette branche de la physique des plasmas. De part le caractère pluridisciplinaire des travaux présentés dans ce manuscrit, une seule étude bibliographique préliminaire reprenant l'intégralité des thèmes abordés est apparue inappropriée. En conséquence, une introduction permettant de situer le contexte et d'apporter les informations essentielles à la compréhension du lecteur sera proposée en début de chaque chapitre.

1.1 Émergence de la thématique des plasmas poussiéreux

Au sens large, un plasma désigne un gaz partiellement ou totalement ionisé. Il est donc constitué d'électrons et d'ions libres et éventuellement d'atomes (ou molécules) neutres dans le cas où l'ionisation n'est pas totale. On peut ainsi le considérer comme le quatrième état de la matière après les états solide, liquide et gazeux, le passage d'un état physique à l'autre s'effectuant grâce à un apport d'énergie au système. Le terme "plasma" fut utilisé pour la première fois par Irving Langmuir en 1928 pour désigner un gaz ionisé, par analogie avec le plasma sanguin.

Les propriétés physiques d'un plasma, différent de celles d'un gaz de part la nature des interactions mises en jeu entre les particules. Dans un plasma, les interactions sont de nature coulombienne en raison de la présence de charges électriques à l'échelle microscopique (ions et électrons).

On a coutume de distinguer deux types de plasmas selon leur degré d'ionisation :

- les plasmas "froids" qui correspondent aux plasmas réalisés en laboratoire sont faiblement ionisés. Leur comportement hydrodynamique est ainsi très similaire à celui d'un gaz. En revanche, leur comportement électromagnétique diffère fortement en raison de la présence des particules chargées (électrons et ions). Ce type de plasma est couramment utilisé dans diverses applications comme par exemple l'éclairage ou le traitement de surface...

- les plasmas “chauds” sont des plasmas fortement ionisés. Ils sont naturellement présents dans l’univers et y représentent plus de 99 % de la matière connue. Ils composent notamment les étoiles. Ce type de plasma fait l’objet de nombreuses études, en particulier dans les domaines de l’astrophysique et de la fusion thermonucléaire.

La présence de poussières au sein d’un plasma peut en modifier singulièrement les propriétés. Dans un plasma composé uniquement d’ions positifs et d’électrons, les particules les plus mobiles (électrons) sont chargées négativement tandis que les particules les plus lentes (ions) sont chargées positivement. Dans un plasma poussiéreux également appelé plasma complexe, la situation peut être grandement modifiée par la présence des poussières, très massives et fortement chargées négativement. Les plasmas poussiéreux ont fait l’objet de nombreuses études depuis le début des années 80 et constituent aujourd’hui une branche à part entière de la physique des plasmas. La présente section s’attache à décrire l’émergence de cette thématique.

1.1.1 La découverte par Irving Langmuir

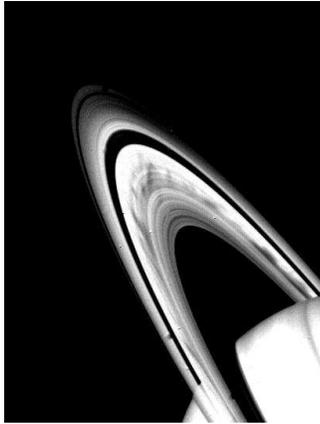
Dans une communication de 1924 [2], Irving Langmuir rapporta la première observation de la présence de poussières au sein d’un plasma.

La décharge utilisée par Langmuir était produite entre un disque métallique (anode) et un filament de tungstène (cathode), l’enceinte en pyrex contenant de l’argon à une pression de quelques Torr. Le filament était initialement chauffé par circulation d’un courant, permettant ainsi l’émission d’électrons par effet thermique. En diminuant le courant dans le filament, cette émission d’électrons s’atténua. Pour compenser ce manque d’électrons, la différence de potentiel entre l’anode et la cathode fut augmentée pour fournir aux ions l’accélération nécessaire à l’émission d’électrons γ par impact ionique sur le filament. La forte énergie cinétique acquise par les ions lors de leur impact sur le filament eu également pour conséquence de le pulvériser conduisant à la formation de particules de tungstène. Ces particules furent observées par Irving Langmuir par diffusion de lumière solaire focalisée. Dès cette époque, il émit l’hypothèse que ces particules devaient être chargées négativement par collections d’électrons et entourées d’une région à charge d’espace positive appelée gaine ionique [3].

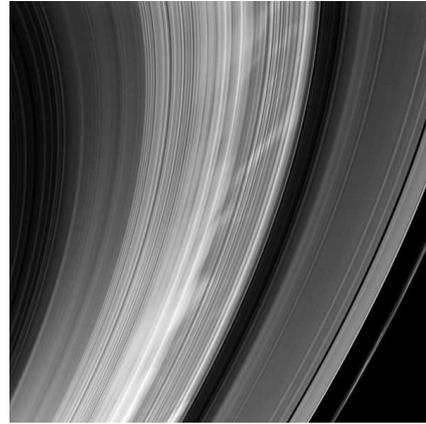
1.1.2 Les poussières en astrophysique

Malgré la découverte précoce de Langmuir, le domaine des plasmas poussiéreux ne fit l’objet d’un réel intérêt qu’à partir du début des années 1980. Le programme *Voyager* de la NASA ayant pour but d’explorer les planètes lointaines du système solaire débuta en 1977. Les sondes *Voyager 1* et *2* fournirent des images des anneaux de Saturne qui révélèrent un phénomène particulier. Lors de la phase d’approche de Saturne par la sonde, des bandes sombres appelées *spokes* (figure 1.1) se propageant radialement au sein de l’anneau B de Saturne furent observées. En s’éloignant de la planète, ces bandes apparurent comme plus lumineuses que leur environnement. Ce comportement révèle la véritable nature du

phénomène observé : les *spokes* sont composés de poussières qui diffusent la lumière solaire préférentiellement vers l'avant. On comprendra par la suite (voir par exemple [4, 5]) que l'origine du mouvement de ces poussières se trouve dans le fait qu'elles sont chargées et ainsi sensibles à la magnétosphère de Saturne.



(a) Phase d'approche, bandes sombres.



(b) Phase d'éloignement, bandes blanches.

Figure 1.1 – *Spokes dans l'anneau B de Saturne.*

Le domaine de l'astrophysique au sens large est confronté à la présence de poussières. Celles-ci sont présentes et étudiées dans de multiples circonstances et environnements. On les rencontre par exemple dans les queues des comètes qui dispersent de grandes quantités de poussières dans l'espace interstellaire [6]. Elles composent également la majeure partie des disques protoplanétaires formés autour des jeunes étoiles et constituent ainsi les précurseurs à la formation des planètes du futur système [7, 8]. De nombreuses études sont également menées sur l'atmosphère de Titan, satellite le plus imposant de Saturne et qui pourrait ressembler à la Terre primitive. Elle est composée principalement d'azote mais également de méthane. Des aérosols y sont formés à partir des tholins, substance organique produite grâce à l'action du rayonnement solaire UV sur les molécules de l'atmosphère de Titan. En tentant de reproduire ces tholins en laboratoire dans des décharges plasma [9, 10], les scientifiques espèrent faire avancer nos connaissances sur l'origine de la vie sur Terre.

1.1.3 Les poussières dans l'industrie micro-électronique

Vers la fin des années 1980, une nouvelle découverte a été à l'origine de l'extension de la thématique des plasmas poussiéreux à une autre communauté scientifique. La technologie plasma est largement utilisée dans l'industrie de la micro-électronique. Elle permet le dépôt de films minces ou encore la gravure de motifs sur des substrats. Cette technique permet d'atteindre de remarquables finesses de gravure des semi-conducteurs en augmentant le rapport d'aspect. Elle est notamment à l'origine de l'amélioration continue des

performances des micro-processeurs (loi de Moore [11]) grâce à l'augmentation du nombre de transistors par unité de surface.

La fabrication de tels objets nécessite des précautions drastiques de manière à limiter au maximum la pollution des substrats. Cependant malgré l'amélioration croissante de la propreté des environnements de production (salles blanches), une pollution de leur surface par de petites particules était régulièrement constatée. L'origine de cette pollution, jusque là attribuée à la phase de manipulation des substrats à l'air, fut découverte par Gary Selwyn (IBM) en 1989 [12]. Alors qu'il effectuait des mesures de fluorescence induite par laser (FIL), il observa une diffusion du faisceau laser. Des particules de poussière en suspension dans le plasma au-dessus du substrat en étaient les responsables (figure 1.2). Dès lors, cette découverte stimula de nombreuses recherches dans le domaine des plasmas poussiéreux de laboratoire [13, 14, 15, 16]. Comprendre les mécanismes de formation de ces particules ainsi que les forces agissant sur celles-ci et déterminant leur piégeage furent au cœur des études menées par la suite.

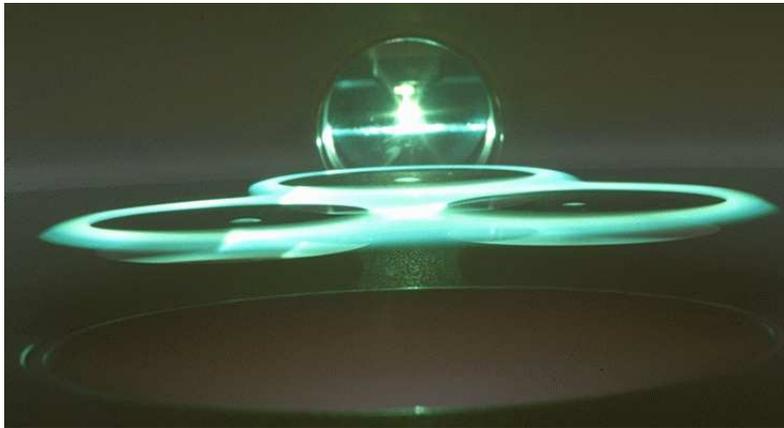


Figure 1.2 – *Poussières en suspension illuminées par un faisceau laser.*

1.1.4 Les poussières et leurs applications

Les poussières ne sont pas systématiquement nuisibles et leur présence est parfois recherchée pour diverses applications. Les procédés plasma permettent la synthèse de particules dont les tailles peuvent être contrôlées jusqu'à des échelles de quelques nanomètres et dont la composition chimique peut être maîtrisée [17, 18]. Avec le développement des nanotechnologies et des matériaux composites, les applications potentielles sont de plus en plus nombreuses : fonctionnalisation de surface, amélioration des propriétés mécaniques des matériaux, fonctionnalisation de microparticules pour des applications pharmaceutiques et médicales, fabrication de pigments, lubrifiants. . .

Par ailleurs, les procédés plasmas permettent de fabriquer aisément des nano-cristaux semi-conducteurs [19, 20].

Ceci s'explique principalement par deux effets :

- les particules produites sont chargées négativement ce qui réduit leur tendance à s’agglomérer,
- les particules sont portées à des hautes températures lorsqu’elles sont présentes en volume dans le plasma [21, 22], ce qui permet leur cristallisation.

Ces nano-cristaux trouvent de nombreuses applications potentielles notamment pour les cellules photovoltaïques ou encore les éléments de circuits électroniques.

Enfin, les poussières peuvent être utilisées comme diagnostics dans les plasmas. Il est par exemple possible de sonder les champs électriques locaux en étudiant leur position d’équilibre au sein du plasma [23] ou encore de déterminer les flux d’énergie en utilisant ces particules comme des calorimètres [24].

Un autre grand domaine de la physique des plasmas a été rapidement confronté, au cours de son émergence, à la formation de poussières. Il s’agit des plasmas de fusion, réalisés dans de grands réacteurs toroïdaux appelés tokamaks et auxquels la section suivante est dédiée.

1.2 Fusion par confinement magnétique, interaction plasma-paroi et formation de poussières

1.2.1 Introduction : la fusion thermonucléaire contrôlée

Contexte énergétique

L’augmentation croissante de la consommation énergétique mondiale, l’amointrissement de plus en plus soutenu des ressources fossiles ainsi que les problèmes environnementaux liés au réchauffement climatique imposent à l’humanité la recherche de nouvelles sources d’énergie, abondantes et non polluantes. La réponse à ce nouveau défi n’est pas unique et passe probablement par une combinaison de différentes solutions. Les énergies renouvelables telles que l’hydraulique, l’éolien ou l’énergie solaire constituent des alternatives intéressantes et déjà largement utilisées. Malheureusement ces installations sont généralement limitées, notamment en terme de puissance électrique. Elles constituent donc d’excellents moyens de production locaux d’énergie. Les évolutions démographiques indiquent cependant que la population mondiale s’urbanise et se concentre ainsi de plus en plus dans des régions à très forte densité de population et donc à forte demande énergétique. Cela nécessite le développement de moyen de production lourds, capables de fournir d’importantes quantités d’énergie. Une des possibilités envisagées pour répondre à ce besoin est l’utilisation de la fusion thermonucléaire contrôlée.

Généralités sur la fusion thermonucléaire

A l’inverse de la fission qui repose sur la fragmentation d’un noyau atomique lourd (uranium, plutonium...), la réaction de fusion repose sur la fusion de deux noyaux atomiques légers (hydrogène...).

Jusqu'à présent l'Homme n'a réussi à reproduire cette réaction que de manière incontrôlée (bombe H).

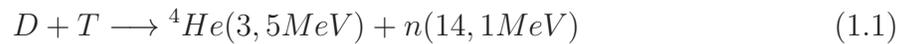
La réaction de fusion est naturellement à l'œuvre dans l'univers, au sein des étoiles. L'énorme masse des étoiles permet aux forces colossales de gravitation de confiner la matière (plasma) portée à très haute température grâce à l'énergie dégagée par les réactions de fusion, et ainsi de conserver la structure de l'astre. Sur Terre, l'Homme ne dispose pas de cette possibilité.

Deux types de confinement du plasma sont alors envisageables :

- la fusion par confinement magnétique (FCM) où le plasma est confiné loin des parois du réacteur à l'aide de champs magnétiques,
- la fusion par confinement inertiel (FCI) où une onde de choc générée par une impulsion laser de très haute puissance permet le déclenchement des réactions de fusion.

Nous ne nous intéresserons dans ce chapitre qu'à la fusion par confinement magnétique.

La principale réaction de fusion envisagée est celle d'un noyau de deuterium (D) avec un noyau de tritium (T). Cette réaction s'écrit :



Il est ensuite nécessaire de convertir l'énergie cinétique des neutrons de 14,1 MeV en chaleur, puis en électricité par l'intermédiaire d'une turbine.

Une grande énergie cinétique est nécessaire pour vaincre l'énorme répulsion électrostatique des noyaux atomiques (tous deux chargés positivement). Cette énergie cinétique est obtenue en portant le combustible D-T à des températures extrêmes (10 keV soit environ 100 millions de degrés). A ces températures, la matière est totalement ionisée : on parle de plasma chaud par opposition aux plasmas froids de laboratoire pour lesquels les températures des espèces ionique et électronique sont basses.

Ces températures sont obtenues grâce au chauffage du plasma par diverses méthodes parmi lesquelles :

- le chauffage par injection d'atomes neutres énergétiques qui redistribuent leur énergie cinétique aux particules du milieu par collisions,
- le chauffage par ondes radio-fréquence basé sur des effets de résonance onde/particules.

Approche historique de la fusion : des prémices à ITER

Dès 1946, un brevet portant sur une "machine à fusion" de géométrie torique fut déposé par Thomson et Blackman au Royaume-Uni. Ceux-ci prévoyaient déjà l'utilisation d'ondes radiofréquence pour générer un courant dans le plasma.

Au début des années 50, plusieurs nations parmi lesquels l'URSS, les USA, l'Angleterre, l'Allemagne ou encore la France débutent indépendamment des recherches. Le contexte de la guerre froide limite cependant les communications entre les communautés de chercheurs des différents pays.

Les premiers échanges scientifiques sur ce sujet sont permis en 1958 grâce à la conférence "Atoms for peace".

En 1968, des chercheurs russes annoncent avoir obtenu des performances encore inégalées

jusqu'alors grâce à l'utilisation d'une configuration tokamak (tokamak T3). Par la suite plusieurs autres grands tokamaks seront construits à travers le monde : JT-60 (Jap. 1985), DIII-D (E-U 1986), JET (E-U en Ang. 1988), Tore Supra (Fr. 1988), ASDEX Upgrade (All. 1990) ...

L'année 1985, marque la naissance du projet ITER ("International thermonuclear experimental reactor"), collaboration internationale visant à démontrer la faisabilité du contrôle de la fusion thermonucléaire. Cette collaboration compte alors parmi ses membres les États-Unis, l'URSS, l'Europe et le Japon. Un accord pour la construction d'une installation expérimentale est signé en 1992. Malgré la décision des États-Unis de se retirer de la coopération en 1998, celle-ci se poursuit et en 2001, la conception définitive d'ITER est arrêtée. Les États-Unis, la Chine et la Corée du Sud rejoignent l'organisation en 2003. La décision de construire ITER en France, sur le site de Cadarache, est prise en 2005, année au cours de laquelle l'Inde se joint au projet. Désormais, ITER est géré par l'*ITER Organization* depuis 2007, date à laquelle l'Accord ITER est entré en vigueur.

1.2.2 Formation des poussières dans les tokamaks

Confinement magnétique

Lorsqu'une particule chargée se déplace en présence d'un champ magnétique, elle suit une trajectoire hélicoïdale en s'enroulant autour des lignes de champ magnétique. On parle de mouvement cyclotron. C'est cette caractéristique qui est exploitée dans le cadre de la FCM afin de confiner les ions et les électrons du plasma. Dans un tokamak, la géométrie du champ magnétique est complexe. Elle est obtenue grâce à la combinaison de deux composantes :

- La composante axiale est créée par les bobines toroïdales disposées autour de la chambre. Elle n'est cependant pas suffisante au confinement des particules chargées. Celles-ci sont en effet soumises à des dérives dues notamment à la courbure des lignes de champ et aux inhomogénéités du champ magnétique.
- La composante poloïdale est créée par le fort courant circulant dans le plasma. Elle permet de compenser les effets de dérive énoncés précédemment.

Les lignes de champ résultant de cette combinaison sont hélicoïdales, comme illustré par le schéma présenté figure 1.3. Elles s'enroulent autour de surfaces toriques appelées surfaces magnétiques.

Grâce à cette configuration magnétique, le plasma est donc confiné au centre de la chambre. En périphérie de celle-ci, la structure magnétique est différente. Après la dernière surface magnétique fermée (DSMF ou LCFS pour "last close flux surface"), les lignes de champ magnétique ne se referment plus sur elles-mêmes mais intersectent les parois du réacteur. Il en résulte que des particules du plasma sont amenées en contact direct avec les composants faisant face au plasma (CFP). La région située entre le cœur du plasma et la paroi (cf figure 1.4(a)) est appelée *Scrape of layer* (SOL). Elle est le siège des interactions plasma-paroi. La reconnexion des lignes de champ magnétique avec les parois étant inévitable, on a cherché à maîtriser au mieux cet aspect afin de minimiser au mieux

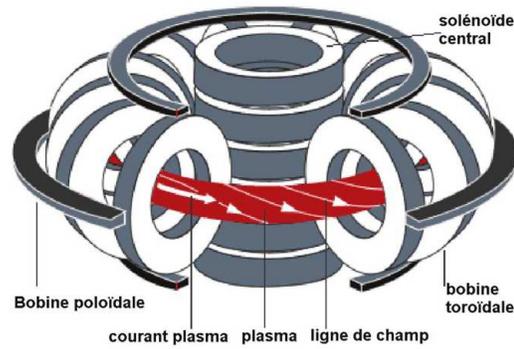


Figure 1.3 – Génération du champ magnétique dans un tokamak.

l'endommagement des CFP par les particules du plasma. Deux configurations ont alors été mises au point :

- Dans la configuration à limiteur (Tore Supra...), la dernière surface magnétique fermée s'appuie de manière tangente sur le limiteur.
- Dans la configuration à divertor (JET, ASDEX...), des bobines supplémentaires permettent de modifier la topologie du champ magnétique en bas de la chambre en créant un point X où la composante poloidale du champ s'annule (cf figure 1.4(a)). Les lignes de champ de la dernière surface magnétique fermée se prolongent loin du plasma et se reconnectent sur des plaques appelées plaques de neutralisation situées dans le bas de la machine. L'intérêt principal de cette configuration est qu'elle permet de maintenir les CFP loin du plasma central, réduisant ainsi les risques de contamination du plasma par des poussières. C'est cette configuration qui a été retenue pour le tokamak ITER.

La photographie 1.4(b) représente l'intérieur du tokamak JET à l'arrêt (à gauche) et en fonctionnement (à droite).

Les composants précédemment décrits, qu'il s'agisse du divertor ou du limiteur, sont très exposés aux agressions du plasma.

Phénomènes de transport et instabilités pouvant conduire à la formation de poussières

Malgré le confinement magnétique du plasma, d'importants flux de particules du plasma vers les parois sont observés. Plusieurs effets sont responsables de ce transport.

- Les collisions entre particules leur permettent de passer d'une ligne de champ magnétique à une autre. On parle alors de *transport néo-classique*
- Certaines instabilités du plasma sont à l'origine d'un transport dit *anormal*. Un type d'instabilité en particulier est à l'origine d'importants flux de particules vers les parois et se révèle ainsi très dommageable : il s'agit des ELM's (pour *Edge Localized Mode*) [26]. Ces instabilités se produisent lorsque le tokamak fonctionne en régime de haut confinement (H-mode) [27]. Ce régime de confinement, particulièrement

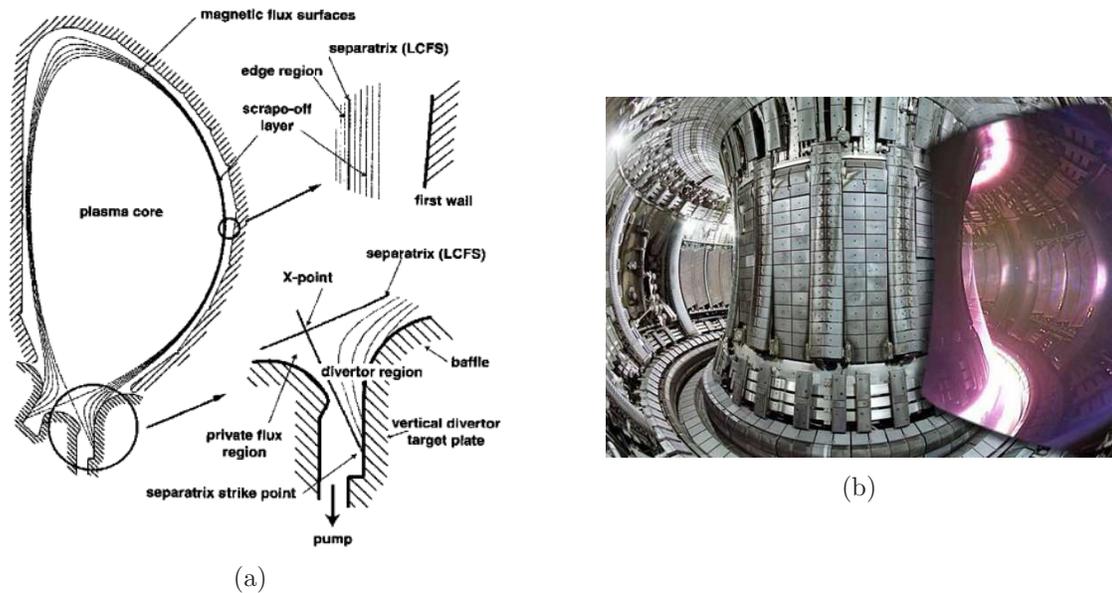


Figure 1.4 – (a) Schéma de la configuration divertor (coupe poloïdale d'un tokamak) d'après [25] et (b) vue intérieure du tokamak JET.

performant, se traduit par l'existence d'une zone de fort gradient de densité et de température des particules à proximité de la paroi. Un ELM correspond à une relaxation quasi-périodique de cette barrière qui se traduit par la libération d'une grande quantité d'énergie et de particules en direction de la paroi.

Malgré les efforts engagés pour tenter de gérer au mieux ces phénomènes, ceux-ci ne peuvent être définitivement évités et doivent donc être pris en compte dans la conception des futurs réacteurs à fusion.

La formation des poussières

Lors du fonctionnement du réacteur, les parois sont soumises à des flux de particules énergétiques importants.

Certains sont permanents, comme par exemple au niveau du divertor ou du limiteur. Les matériaux composant les parois doivent donc être très résistants à l'érosion et permettre une bonne évacuation de la chaleur déposée. A titre d'exemple, le limiteur de Tore Supra (France) est soumis à des flux thermiques de l'ordre de 15 MW/m^2 soit l'équivalent de l'exposition subie par le bouclier thermique d'une navette spatiale en entrée dans l'atmosphère.

Ces dépôts d'énergie sont à l'origine d'une érosion des parois qui fait intervenir différents mécanismes :

- L'érosion chimique [28] est particulièrement importante en plasma d'hydrogène et lorsque les parois sont faites de carbone en raison de la grande affinité carbone-hydrogène. Elle devient négligeable pour des parois métalliques.
- La pulvérisation physique [29] est due à l'impact des ions sur la paroi. Une partie de leur forte énergie cinétique lors de l'impact est transférée au matériau permettant

l'extraction d'atomes de la surface.

D'autres flux sont déposés sur les parois au cours d'évènements brefs comme par exemple lors des ELM's, lors de déplacements verticaux du plasma (VDE) qui l'amènent en contact avec la paroi ou lors de l'apparition d'arcs électriques. Dans ces conditions, l'importante quantité d'énergie apportée peut conduire à une fusion (formation et éjection de gouttelettes) ou une sublimation des matériaux composant les CFP [30].

Ces différents processus sont à l'origine de la formation de poussières. Celles-ci peuvent être de tailles et de morphologies variées comme l'indique la figure 1.5. On y distingue des particules sphériques, des agglomérats, des flocons...

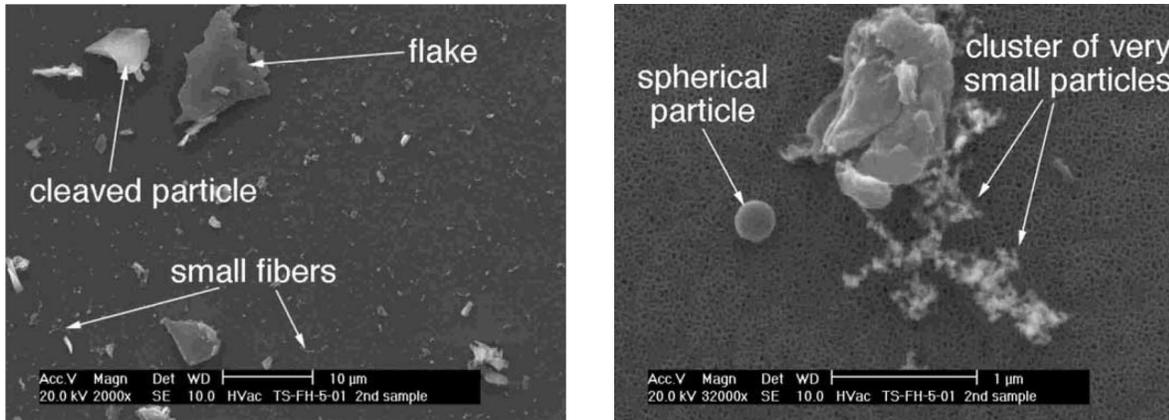


Figure 1.5 – Images TEM de poussières collectées en tokamak [31].

La morphologie des particules sphériques carbonées formées dans les tokamaks est similaire à celle que l'on peut observer pour des particules produites en volume dans des décharges RF à partir de molécules d'hydrocarbures [32]. Les études réalisées en plasmas de laboratoire peuvent donc s'avérer utiles pour aider à la compréhension des mécanismes de formation de certaines poussières dans les tokamaks [33].

La formation des flocons s'explique quant à elle par un processus d'érosion-déposition [34]. Une partie de la matière érodée se redépote sur les parois dans les zones froides du réacteur formant ainsi des couches appelées couches co-déposées. Ces couches peuvent s'écailler sous l'effet de contraintes thermiques ou mécaniques conduisant à la formation de flocons.

1.2.3 Problèmes liés à la présence de poussières dans les tokamaks

La présence de poussières dans les tokamaks a de multiples effets néfastes [35].

- La migration des poussières dans le plasma de cœur peut provoquer d'importantes pertes d'énergie par Bremsstrahlung (rayonnement de freinage).

Ce rayonnement est émis lorsqu'une particule chargée est accélérée. Il a donc lieu en permanence au sein des tokamaks, même en l'absence de poussières. Cependant, l'intensité du rayonnement émis dépend directement des charges électriques portées par les particules. Dans le cas d'un plasma d'hydrogène sans impuretés, les ions ne portent qu'une seule charge élémentaire ($Z=1$), limitant de ce fait l'importance du phénomène. En revanche, la migration de poussières dans le plasma de cœur suivie de leur ionisation se traduit par l'avènement dans cette région d'éléments à grand numéro atomique Z correspondant aux éléments entrant dans la composition des CFP. La quantité d'énergie rayonnée par Bremsstrahlung peut alors devenir très importante ($\propto Z$). Certains scénarios prévoient ainsi qu'une production importante de poussières puisse aller jusqu'à provoquer l'arrêt des réactions de fusion.

Une manière de limiter les pertes d'énergie par Bremsstrahlung, est d'utiliser des éléments présentant un faible numéro atomique Z .

- La présence de poussières dans les tokamaks pose également des problèmes vis-à-vis de la rétention du combustible D-T. Ce phénomène est particulièrement marqué pour des poussières constituées de carbone, en raison de sa grande réactivité avec l'hydrogène (et ses isotopes). Outre des diminutions de rendement, cette rétention est problématique en terme de radioactivité liée au tritium ($t_{1/2} \simeq 12,3$ ans). La redéposition des poussières sur les parois peut ainsi conduire à une contamination radioactive de l'enceinte.

- Il existe également des risques d'explosion liés à la présence de poussières [31], en cas d'une remise à l'air brutale et accidentelle de l'enceinte (afflux d'oxygène), ou de fuites d'eau. Ces risques sont particulièrement importants si les poussières sont constituées de Béryllium.

Les différents problèmes évoqués précédemment impactent directement sur le choix des matériaux utilisés pour la fabrication des CFP [31].

Un élément à faible numéro atomique comme le carbone présente l'avantage de limiter les pertes d'énergie par Bremsstrahlung. En outre, le carbone permet une bonne évacuation de la chaleur et ne fond pas aux hautes températures (il se sublime). Ses principaux défauts sont liés à son fort taux d'érosion (érosion chimique) et à sa grande capacité de rétention du tritium.

Le tungstène au contraire est beaucoup plus résistant à l'érosion et résiste bien aux hautes températures grâce à son point de fusion élevé ($\simeq 3000^\circ\text{C}$). Cependant, son fort numéro atomique est problématique vis-à-vis du Bremsstrahlung.

Le béryllium quant à lui pose des problèmes relatifs à sa forte réactivité avec l'oxygène et à sa grande toxicité.

Différents types de matériaux susceptibles d'être utilisés pour les parois d'ITER sont ainsi testés : carbone, tungstène, béryllium. . . Il semblerait cependant qu'à l'heure actuelle, le tungstène soit pressenti comme le matériau principal entrant dans la composition des parois d'ITER. Seule une partie du divertor pourrait être constituée de carbone.

1.2.4 Diagnostics pour l'étude et la caractérisation des poussières

La caractérisation des poussières produites au sein des tokamaks est rendue possible grâce à l'utilisation de nombreux diagnostics in-situ et ex-situ.

Les diagnostics in-situ permettent d'obtenir des informations sur les densités, les vitesses et les trajectoires des poussières dans la chambre. En voici une liste non exhaustive :

- Les mesures d'extinction laser [36] permettent d'obtenir une estimation de la densité de poussières présentes le long du trajet du faisceau lumineux. Elles peuvent également apporter des informations sur la taille des particules. Cette méthode est adaptée à la détection de particules de petites tailles (de quelques dizaines de nanomètres à quelques microns) en raison des longueurs d'onde utilisées (de l'ordre du micromètre). Cependant en raison de la diversité et de la complexité des morphologies des particules produites, ces estimations se révèlent parfois hasardeuses. Un autre inconvénient de ce diagnostic est le caractère local de sa mesure.
- L'imagerie rapide [37, 38] permet de recueillir des informations sur les lieux de formation et les trajectoires des particules dans la chambre. Celles-ci sont incandescentes car chauffées par le plasma. Elles sont donc visibles grâce à la lumière qu'elles émettent et apparaissent comme des points lumineux. Ce diagnostic est sensible à des tailles de particules supérieures à celles sondées par les mesures d'extinction. Cependant leur véritable dimension est difficile à déterminer en raison de la grande variabilité de leur luminosité en fonction de nombreux paramètres (composition chimique, paramètres plasma. . .).
- L'utilisation de collecteurs de poussières permet d'obtenir des informations supplémentaires. Les poussières sont capturées lors de leur impact dans un aérogel [39, 40]. La profondeur et l'angle de pénétration dans le gel renseigne sur la vitesse et la trajectoire suivie par les poussières. Des analyses permettant de déterminer la composition chimique des poussières ainsi collectées peuvent également être entreprises.

Lors des phases d'arrêt de la machine, des poussières sont collectées en vue d'effectuer des analyses ex-situ. Diverses techniques de spectroscopie (infrarouge, Raman, Spectrométrie photoélectronique X, diffraction des rayons X. . .) sont ainsi utilisées pour déterminer la composition chimique des poussières. Les techniques de microscopie (MEB, TEM. . .) permettent quant à elles d'obtenir des informations sur leur morphologie.

1.2.5 Capture et extraction des poussières dans les tokamaks

La formation de poussières dans les tokamaks apparaît comme inévitable. Le développement de méthodes d'extraction des poussières s'avère donc particulièrement approprié. Ces procédures pourraient être réalisées directement pendant la phase d'opération ou lors de phases spécifiquement dédiées au nettoyage. Cette thématique en est à ses débuts cependant certaines options techniques ont d'ores et déjà été envisagées. Celles-ci sont pour la plupart issues du domaine des plasmas froids poussiéreux [41].

On peut par exemple envisager d'utiliser une petite électrode polarisée afin d'attirer et de piéger les poussières au voisinage de l'électrode. La tension appliquée peut être positive continue [42] ou encore alternative de type radiofréquence [43].

Une autre solution envisagée est de faire appel à la force de thermophorèse qui naît des gradients de température au sein du gaz. Les poussières sont alors attirées vers une surface refroidie. Remarquons que même en l'absence de l'utilisation d'un tel dispositif, la force de thermophorèse est déjà à l'œuvre au sein des tokamaks et joue déjà un rôle significatif dans le transport des poussières.

1.3 Conclusion et positionnement de notre étude

Ce premier chapitre introductif a permis d'illustrer le caractère pluridisciplinaire et les multiples domaines d'applications des plasmas poussiéreux : astrophysique, industrie micro-électronique, nanotechnologies, plasmas de fusion... Malgré la diversité de ces thématiques, certaines études trouvent des intérêts communs à ces différents domaines.

Dans le cadre des recherches sur la fusion, les études réalisées sur des réacteurs de laboratoire (plasma froid) constituent une approche complémentaire des expériences réalisées sur grands instruments. Ces expériences présentent l'intérêt d'être peu onéreuses et leur répétabilité permet une exploration fine de multiples aspects :

- étude des processus d'érosion des parois dans des conditions de plasma de bord des tokamaks,
- étude des mécanismes de formation de poussières en volume au sein du plasma,
- mise au point de méthodes de diagnostic,
- développement de méthode de piégeage des poussières (pièges électrostatiques, doigts froids...)

Le travail de thèse retranscrit dans ce manuscrit a pour objectif d'explorer certains mécanismes particuliers de formation des poussières au sein du plasma. Ceux-ci ont lieu dans les gaines de la décharge, et sont dus à la présence d'ondes de poussières. En préalable à l'étude même, il a été nécessaire de concevoir un nouveau réacteur et de mettre au point des méthodes de diagnostic permettant de caractériser les poussières. Le chapitre 2 décrit en détail le dispositif expérimental utilisé.

L'ensemble des diagnostics et des méthodes numériques développés dans cette étude est étroitement lié aux moyens mis en œuvre sur les grands instruments : mesures d'extinction lumineuse, imagerie rapide, capture des poussières par thermophorèse...

L'étude de la population de poussières submicroniques est réalisée grâce à des mesures d'extinction d'un faisceau lumineux. La détermination des tailles et des densités des poussières à partir des mesures expérimentales a nécessité le développement d'une méthode inverse. La mise au point de cette méthode fait l'objet du chapitre 3. Ce diagnostic s'avère cependant incapable de fournir des informations sur des poussières de tailles supérieures à 1 micromètre, en raison de la gamme de longueurs d'onde utilisées. Des poussières de grande dimension nécessitent donc de faire appel à un autre diagnostic : l'imagerie rapide. Les acquisitions réalisées sont basées sur l'utilisation d'un faisceau laser plan pour illuminer les poussières, et d'une caméra rapide pour les filmer. Les films obtenus contiennent ainsi de nombreuses informations sur la population de poussières. Le code TRACE, initialement dédié au suivi des poussières, a été utilisé pour l'obtention de ces informations. Il a été modifié au cours de cette étude afin de permettre une mesure des tailles et des

caractéristiques géométriques des poussières. L'utilisation de l'imagerie rapide se révèle également particulièrement efficace pour l'étude de la propagation des ondes de poussières au sein des gaines. Le traitement de ces données a nécessité le développement d'autres outils numériques, également présentés au chapitre 2. Afin de pouvoir étudier en détails la morphologie des poussières et des agglomérats formés, une méthode d'extraction des poussières a dû être développée (cf chapitre 4). Elle se base sur l'utilisation de la force de thermophorèse pour collecter les poussières sur une surface froide sur laquelle est placée un substrat. Celui-ci peut ensuite être récupéré pour pratiquer des analyses ex-situ (MEB).

Les outils précédemment décrits ont ensuite été largement utilisés dans le cadre des études menées. Celles-ci s'articulent en deux parties. La première partie, qui fait l'objet du chapitre 5, se consacre à l'étude des ondes de poussières au sein des gaines anodique et cathodique. Les caractéristiques de ces ondes en fonction des conditions expérimentales ont été déterminées, à l'aide des mesures d'extinction et de l'imagerie rapide. La seconde partie, qui fait l'objet du chapitre 6, s'inscrit dans le prolongement de l'étude précédente. Elle est dédiée à l'étude de l'influence des ondes de poussières sur leur processus d'agglomération. Il est établi que grâce à l'énergie cinétique transférée par les ondes aux poussières, celles-ci sont en mesure de s'agglomérer. Ce processus est notamment à l'origine de la formation de "super-agglomérats" pouvant comporter plusieurs milliers de particules primaires. Cette dernière étude a été rendue possible grâce à l'utilisation conjointe des mesures d'extinction, de l'imagerie rapide couplée à l'analyse numérique (code TRACE), et de la méthode d'extraction des poussières associée à la microscopie MEB.

Le schéma présenté figure 1.6 illustre la structure de ce travail de thèse, tel qu'il a été décrit précédemment.

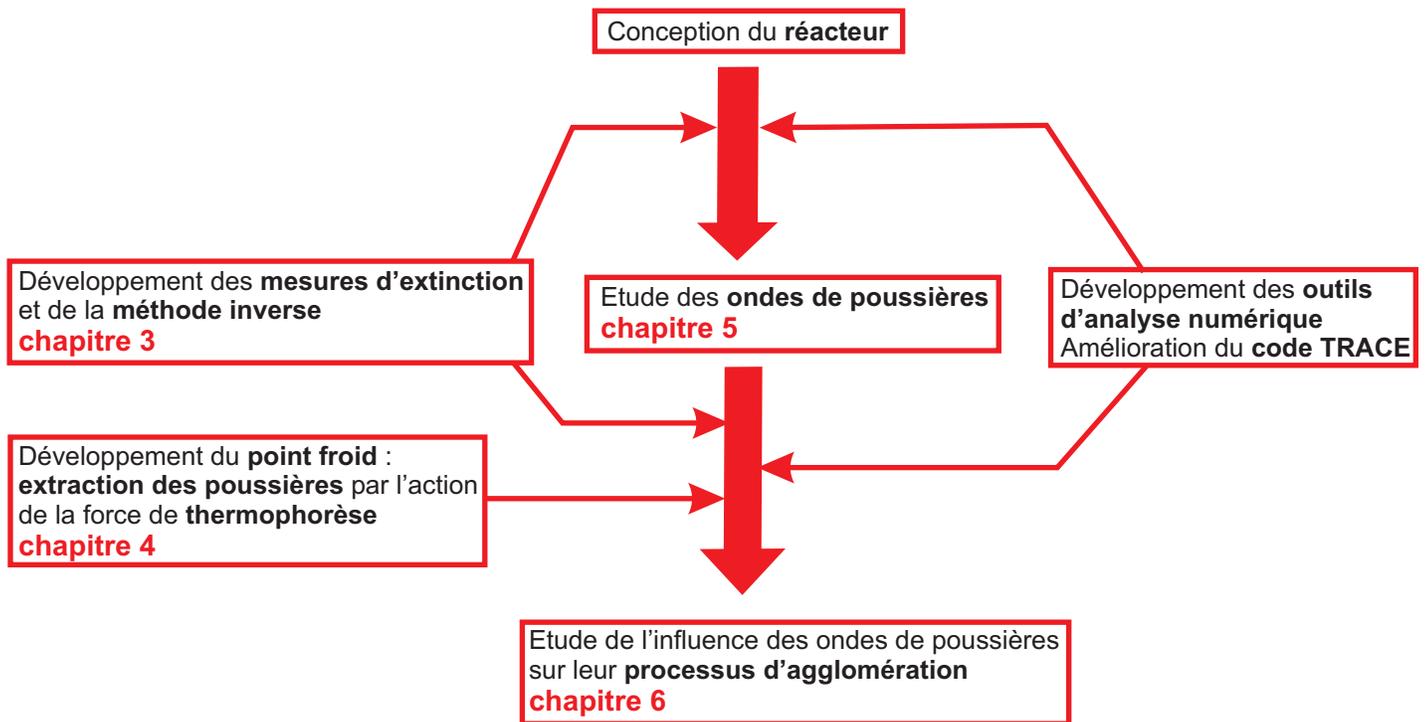


Figure 1.6 – Structure générale de l'étude.

Chapitre 2

Dispositif expérimental, diagnostics et méthodes d'analyses des résultats

2.1 Réacteur radiofréquence capacitif.

2.1.1 Description de l'enceinte

Le réacteur utilisé lors des études expérimentales est représenté sur les schémas et la photographie présentés figure 2.1 et 2.2. Il a été conçu au cours de ce travail de thèse sur la base du réacteur précédemment utilisé lors de la thèse de Yan Peng [44]. Il est constitué d'une enceinte cylindrique en acier inoxydable de diamètre 36,5 cm et de hauteur 36 cm. Une chemise amovible en acier inoxydable protège les parois de la chambre des dépôts de poussières. Huit hublots en verre (KB7) situés à mi-hauteur sont répartis autour de l'enceinte tous les 45 degrés. Ils peuvent être remplacés si besoin par des hublots en quartz afin de permettre des mesures du rayonnement ultraviolet (UV). Une ouverture supplémentaire (DN 40) située 5,5 cm en-dessous du couvercle supérieur peut être utilisée pour l'instrumentation.

2.1.2 Injection et pompage des gaz

Introduction des gaz

L'introduction des gaz est située sur le dessus de la chambre (cf figure 2.2(a)). Les principaux gaz utilisés lors des expériences réalisées sont l'argon et l'acétylène (C_2H_2) dont les caractéristiques sont données dans les tableaux 2.1 et 2.2.

Des débitmètres massiques permettent de fixer l'injection des gaz :

- pour l'argon : AERA FC-7700CU avec un débit maximal de 100 sccm,
- pour l'acétylène : AERA FC-R7700CD avec un débit maximal de 10 sccm.

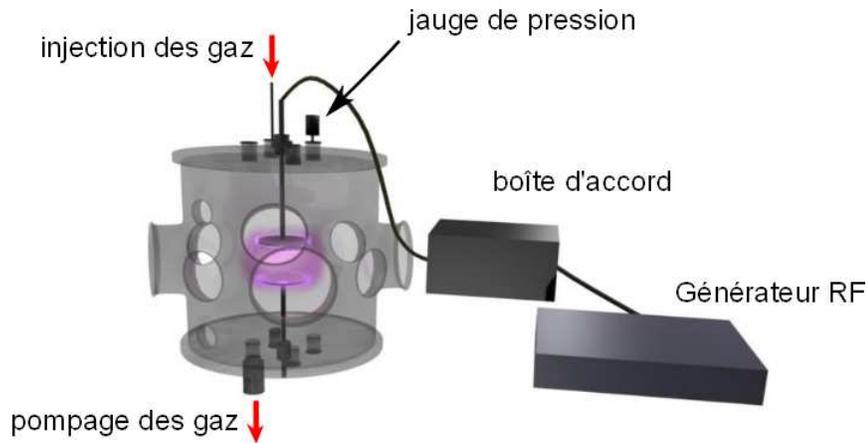
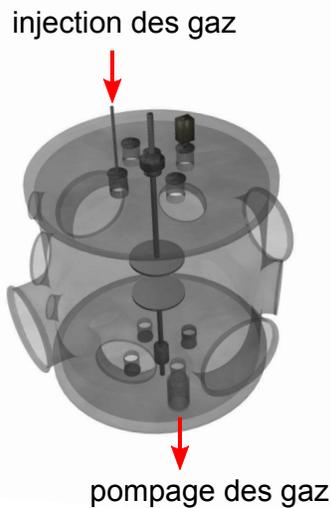


Figure 2.1 – Schéma du dispositif.



(a) Injection et pompage des gaz.



(b) Photographie du réacteur.

Figure 2.2 – Réacteur utilisé lors des expériences.

Système de pompage

Une pompe à palette (Oerlikon Leybold Vaccum TRIVAC D 25 B) d'un débit volumique de $25 \text{ m}^3/\text{h}$ permet de réaliser un vide primaire ($P \simeq 10^{-3} \text{ Torr}$) dans l'enceinte. Elle est munie d'un filtre à particules (Leybold AS 8-16) afin d'éviter la pollution par les poussières produites dans le réacteur. Le pompage des gaz est réalisé par le dessous de la chambre (cf figure 2.2). Une vanne de laminage placée entre la chambre et la pompe permet d'ajuster le débit de pompage. Une vanne à boisseau sphérique est utilisée en fin d'expérience pour rétablir la pression atmosphérique dans l'enceinte par injection de l'air ambiant.

CO ₂	< 100 ppb
CO	< 100 ppb
Total C _n H _m	< 100 ppb
O ₂	< 100 ppb
N ₂	< 300 ppb
H ₂ O	< 500 ppb
H ₂	< 100 ppb

N ₂ env	< 0,3 %
H ₂ S	1 ppm
PH ₃	< 1 ppm

Tableau 2.2 – Acétylène AAS 27.

Tableau 2.1 – Alphagaz 2 Argon.

Mesure de la pression

La pression est mesurée à l'aide d'une jauge de Pirani (Balzers TPG 250) située sur le dessus du réacteur. Il s'agit d'une jauge "logarithmique" capable de mesurer une pression dans la gamme $[5 \times 10^{-4} \text{ mbar}; 1000 \text{ mbar}]$. Elle est reliée à un boîtier d'acquisition (Balzers TPG 252). Un oscilloscope (Lecroy WaveRunner 64XI) peut y être raccordé pour réaliser l'enregistrement automatique de la pression.

Temps de résidence moyen des espèces

Le temps de résidence moyen des espèces t_{res} dans le réacteur s'écrit :

$$t_{res} = \frac{V P}{Q P_0} = \frac{L60\pi R^2}{Q[sccm]} \times \frac{P[Torr]}{760} \times \frac{300}{T[K]} \quad (2.1)$$

avec V le volume total de l'enceinte cylindrique de rayon R et de longueur L . Q est le débit total du mélange gazeux. P est la pression totale dans l'enceinte et P_0 la pression atmosphérique. T est la température du gaz.

Les dimensions de l'enceinte sont données au paragraphe 2.1.1. Pour une expérience typique se déroulant à $P=200 \text{ mTorr}$ avec un débit total de gaz injecté $Q=14 \text{ sccm}$, à une température $T=300\text{K}$, on obtient :

$$t_{res} = \frac{36 \times 60 \times \pi \times 18,25^2}{14} \times \frac{200 \cdot 10^{-3}}{760} \times \frac{300}{300} \simeq 42\text{s} \quad (2.2)$$

2.1.3 Source plasma

Générateur et boîte d'accord

La décharge utilisée est de type capacitive radio fréquence (RF). Un générateur Dressler Cesar 133 est utilisé pour fournir la puissance RF à la fréquence de 13,56 MHz. Il est capable de délivrer une puissance RF maximale de 300 W. Les puissances utilisées lors des expériences présentées dans cette étude sont principalement comprises dans la gamme $[10 \text{ W}; 50 \text{ W}]$. Ce générateur peut être réglé en tension, en puissance transmise ou en

puissance réfléchiée. Une sortie RS-232 permet de le commander à l'aide d'un ordinateur. Pour se faire, le programme "RF generator", écrit sous Labview, a été mis au point au laboratoire.

Une boîte d'accord est placée entre le générateur RF et le plasma (cf figure 2.3(a)). Elle est en configuration L : une capacité C_2 en parallèle, et une capacité C_1 (appelée capacité de blocage) ainsi qu'une inductance L placées en série. Le plasma étant une charge variable, son rôle est d'adapter automatiquement l'impédance du système (boîte d'accord + plasma) à celle du générateur (50Ω), en jouant sur les valeurs des capacités C_1 et C_2 . La puissance transmise au plasma est alors optimale.

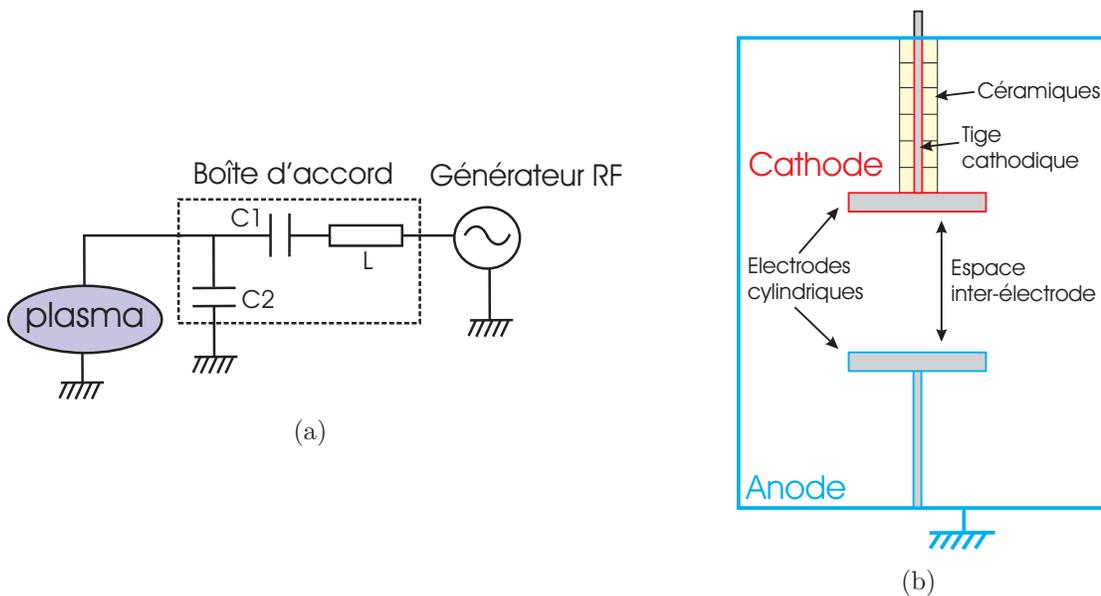


Figure 2.3 – Schéma du circuit électrique et de la configuration des électrodes.

Configuration des électrodes

La cathode est l'électrode supérieure du dispositif (cf figure 2.3(b)). Elle est polarisée par la tension RF délivrée par le générateur. Elle est constituée :

- d'une électrode cylindrique,
- d'une tige en acier inoxydable, connectée d'une part à l'électrode cylindrique et d'autre part au générateur RF via la boîte d'accord.

Des tiges cathodiques de différentes longueurs peuvent être utilisées en fonction des besoins de l'expérience. Des électrodes cylindriques de différents diamètres peuvent être utilisées. Des électrodes de hauteur 1 cm et de diamètre 5 cm ont été utilisées pour la majorité des expériences de cette étude. Des cylindres creux de diamètre externe 3 cm en céramique (alumine) sont placés autour de la tige cathodique.

L'anode est l'électrode inférieure du dispositif. Elle est reliée à la masse. Elle est constituée :

- d'une électrode cylindrique de conception identique à celle utilisée à la cathode,
- d'une tige en acier inoxydable, connectée d'une part à l'électrode cylindrique et d'autre part à la masse,
- des parois de l'enceinte, connectées à la masse.

La longueur de la tige anodique peut être adaptée selon l'expérience. L'espace entre les électrodes peut être ajusté. Il est de 6,5 cm dans la majorité des cas présentés dans cette étude.

Les deux électrodes, cathode et anode, ne présentent pas la même surface : la cathode est constituée de la tige et d'une électrode cylindrique tandis que l'anode est constituée d'une électrode cylindrique et des parois du réacteur. En conséquence, le montage est qualifié d'asymétrique. La surface de l'anode étant supérieure à celle de la cathode, il en résulte l'apparition d'une tension continue négative à la cathode, appelée tension d'auto-polarisation et notée V_{bias} . Des commentaires permettant d'expliquer l'origine de V_{bias} sont présentés en annexe [A](#).

2.1.4 Procédure de nettoyage du réacteur

Les poussières produites lors des expériences réalisées se déposent en divers endroits du réacteur, nécessitant son nettoyage entre deux expériences. La procédure utilisée est la suivante :

- Le réacteur est remis à l'air à froid. La chemise de protection et les céramiques sont sablées dans une cabine microbilleuse. Elles sont ensuite nettoyées au méthanol.
- Les parties exposées aux dépôts de la chambre du réacteur sont nettoyées au méthanol : hublots, couvercle, tige anodique...
- Les électrodes sont nettoyées par polissage, puis en utilisant du méthanol.

Le vide est ensuite réalisé dans l'enceinte. La durée nécessaire pour atteindre un vide de l'ordre de 10^{-3} Torr est d'environ une heure. Un plasma d'hydrogène peut être réalisé pour parfaire le nettoyage. Après cette étape, un temps d'attente est observé de manière à laisser refroidir le réacteur.

Une fois ces différentes étapes accomplies, une nouvelle expérience peut être réalisée.

2.2 Diagnostics in-situ

Les principaux diagnostics in-situ utilisés au cours des expériences réalisées sont décrits dans cette section.

2.2.1 Mesure de la tension d'auto-polarisation

La valeur absolue de la tension d'auto-polarisation $|V_{bias}|$ augmente avec la densité électronique (cf annexe [A](#)) pour une configuration expérimentale donnée (espace inter-électrode, pression ...). On peut s'en convaincre à l'aide de la figure [2.4\(a\)](#) qui représente

l'évolution de $|V_{bias}|$ avec la puissance RF, P_{RF} .

Lorsque des poussières sont immergées dans un plasma, elles collectent des électrons (cf annexe) diminuant ainsi la valeur absolue de la tension d'auto-polarisation $|V_{bias}|$ à la cathode. Ceci est clairement illustré par la figure 2.4(b). Lorsque l'acétylène est injecté dans la décharge à $t=0$ s, des poussières sont formées dans le plasma. La collection d'électrons par les poussières est responsable d'une baisse de $|V_{bias}|$ d'une valeur de 290 V à environ 120 V.

Le suivi temporel de la valeur de la tension d'auto-polarisation apporte donc des informations sur la quantité de poussières produites au sein du plasma et constitue donc un diagnostic pour notre étude.

Le relevé de la tension d'auto-polarisation est directement réalisé par le générateur. Il est ensuite enregistré par l'ordinateur grâce au programme "RF generator". Le relevé des puissances transmise et réfléchi, ainsi que de la position de capacités C_1 et C_2 est également effectué. Le taux d'acquisition est fixé à 1 Hz.

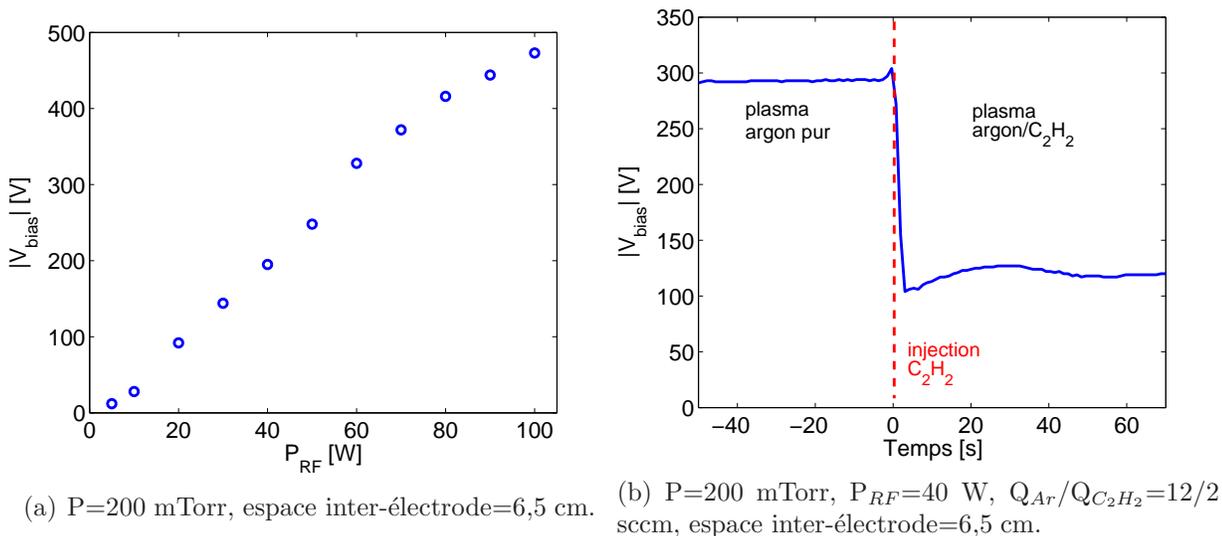


Figure 2.4 – Évolution de $|V_{bias}|$ (a) en fonction de P_{RF} et (b) lorsque des poussières apparaissent dans la décharge.

2.2.2 Mesures d'extinction d'un faisceau lumineux

La caractérisation de la population de particules constitue un point central de notre étude. La taille et la densité des poussières présentes sont en particulier des données importantes. Une méthode de mesure permettant d'estimer ces paramètres consiste à mesurer l'atténuation d'un faisceau lumineux traversant le nuage de particules. La figure 2.5 illustre le principe de la mesure d'extinction.

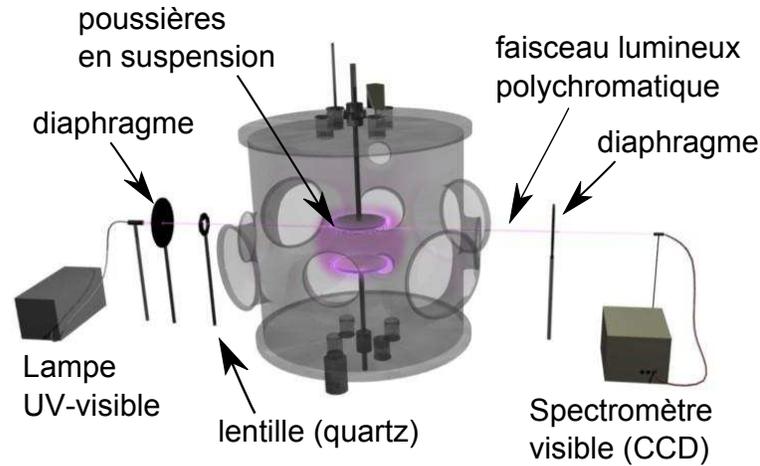


Figure 2.5 – Principe des mesures d’extinction réalisées.

Une lampe (DH2000-BAL Deuterium Tungsten Halogen Light Source - Ocean Optics) est utilisée pour générer un faisceau lumineux polychromatique. Deux ampoules, une halogène et une deuterium, sont utilisées simultanément dans la lampe afin de couvrir un intervalle de longueur d’onde allant du proche UV (250-300 nm) au proche infrarouge (900-1100 nm).

Une fibre optique P600-2-SR (Ocean Optics) de diamètre 600 microns transparente dans l’UV, transmet l’intensité lumineuse de la lampe source vers un système de collimation constitué de deux lentilles plan-convexes. Un faisceau lumineux relativement parallèle est ainsi émis. Pour corriger la divergence du faisceau obtenu, une lentille quartz est utilisée. Un diaphragme est placé entre le premier système de lentilles et la lentille de correction, dans le plan focale de cette dernière.

Les hublots situés de part et d’autre de la chambre sont en quartz de manière à maximiser la transmission lumineuse, en particulier aux courtes longueurs d’onde.

Le faisceau lumineux se propage à travers le plasma. Une partie de l’intensité lumineuse est absorbée et diffusée par les poussières en suspension dans le plasma.

Une fibre optique (Avantes FC-UV200-2-SR de diamètre 200 microns) placée de l’autre côté de la chambre collecte la lumière transmise. Un diaphragme est placé entre le hublot de sortie et la fibre optique de détection afin de limiter la collection des photons émis par le plasma.

La lumière transmise est ensuite analysée à l’aide d’un spectromètre équipé d’un capteur CCD de 2048 pixels (AvaSpec-2048). Ce dernier possède une résolution spectrale de 0,8 nm (FWHM). Il autorise l’acquisition d’un spectre complet dans la gamme de longueurs d’onde [200 nm ; 1100 nm] à des fréquences relativement élevées. Celle-ci est fixée à 1 Hz au cours des expériences réalisées. Chacun de ces points de mesure est issu d’une moyenne réalisée sur 4 acquisitions. Le temps d’intégration pour chaque ouverture est fixé à une

valeur comprise entre 100 et 200 ms.

L'estimation de la densité et de la taille des poussières formées à partir de ces mesures nécessite l'utilisation d'une méthode inverse. Le chapitre 3 est dédié au diagnostic d'extinction et à la méthode d'inversion utilisée.

2.2.3 Acquisition vidéo, étude de la dynamique des poussières

Éclairage des poussières

L'étude de la dynamique des poussières au sein du plasma est effectuée grâce à des acquisitions vidéos.

Un faisceau laser plan est utilisé pour illuminer les poussières afin de pouvoir les observer. Le laser utilisé est un Z-LASER Z40M18B-F-640-lp10. Il émet à une longueur d'onde de 639 nm avec une puissance de 40 mW (classe 3B). Le module laser génère une ligne d'environ 175 mm à une distance de 1m (divergence du faisceau plan). Sa focalisation peut être ajustée grâce à une lentille Powell lp10 intégrée. Il est monté sur un support Z-LASER H6-M18. Lorsqu'elle est correctement ajustée, l'épaisseur du faisceau laser est de l'ordre de quelques centaines de micromètres.

Le plan laser est positionné verticalement et passe par le centre de chaque électrode de manière à réaliser une coupe verticale de l'espace inter-électrode. Les poussières contenues dans le plan du laser diffusent la lumière ce qui permet leur visualisation. Le schéma présenté figure 2.6 permet d'illustrer le montage expérimental.

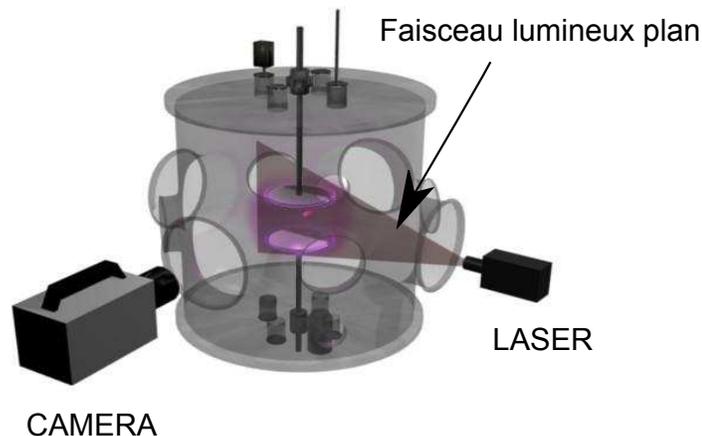


Figure 2.6 – Schéma de principe des acquisitions vidéo.

Acquisition vidéo

Les caméras utilisées sont en règle générale placées de manière à former un angle de 90 degrés avec le plan laser. Deux types de dispositifs d'acquisition ont ainsi été utilisés :

- Un appareil photo numérique standard (FUJIFILM FINEPIX AX250) permet d'étudier le comportement des poussières sur des temps longs en réalisant des films sur toute la durée de l'expérience. Sa résolution est de 14 MégaPixels et son taux d'acquisition de 30 images/seconde.
- Une caméra rapide (Photron FASTCAM-SA1) est utilisée pour étudier les phénomènes rapides ayant lieu sur des temps courts. Les images produites par la caméra sont en noir et blanc et codées sur 8 bits. La cadence maximale d'acquisition de la caméra est de 675 000 images/seconde pour une résolution maximale de 64×64 pixels. A plus basse cadence d'acquisition, la résolution maximale autorisée par la caméra est de 1024×1024 pixels. Lors des expériences réalisées, la résolution généralement adoptée fut de 748×496 pixels et la cadence d'acquisition de 5000 images/seconde. Ce choix de paramètres résulte d'un compromis entre : 1) l'étendue spatiale de la zone filmée et la cadence d'acquisition nécessaire d'une part et 2) l'espace mémoire disponible d'autre part. La mémoire vive de la caméra est de 8 GB. Elle peut être partitionnée afin de réaliser plusieurs films indépendants.

Deux objectifs différents peuvent être utilisés avec la caméra rapide :

- Un objectif 50 mm (Nikon Nikkor 50 mm f/1.2) permet de filmer une zone étendue de la décharge englobant les deux électrodes.
- Un objectif macro de 200 mm (Nikon AF Micro-Nikkor 200 mm F/4D IF-ED) permet quant à lui de filmer avec un fort grossissement des zones localisées : gaine cathodique ou anodique. C'est cet objectif qui a été principalement utilisé au cours des études réalisées.

Des bagues allonges (12, 20 et 36 mm) peuvent être utilisées afin d'augmenter le grossissement.

Le contrôle de la caméra est exécuté à l'aide du logiciel PFV Photron FASTCAM Viewer.

Le déclenchement de la caméra peut être manuel ou provoqué par un signal TTL. Un générateur de fonction (YOKOGAWA FG 120) a parfois été utilisé pour déclencher l'acquisition de la caméra de manière périodique.

Une mire est placée dans le plan focal de la caméra avant chaque expérience et une image de référence est enregistrée. Elle permet de déterminer l'échelle spatiale pour les films réalisés. Un pixel correspond à environ $25 \mu\text{m}$ pour la majorité des expériences.

2.3 Microscopie électronique à balayage

Lors de certaines expériences, des poussières formées dans le plasma sont collectées sur des substrats de silicium. Pour ce faire, une technique d'extraction des poussières basée sur l'utilisation de la force de thermophorèse a été mise au point. Cette technique fait l'objet du chapitre 4. Les échantillons ont ensuite été observés au microscope électronique à balayage. Ces analyses ont été effectuées au service commun de microscopie de l'université de Lorraine. Le microscope utilisé est un Hitachi FEG S4800 possédant une résolution de 1 nm. Ces analyses apportent essentiellement deux types d'informations.

- Elles renseignent sur la taille des particules formées et permettent ainsi une comparaison avec les données obtenues par le biais des mesures d'extinction.
- Elles permettent d'observer la morphologie des poussières et agglomérats formés. Ces informations peuvent être utiles notamment pour l'interprétation des mécanismes de formation de ces poussières.

Un exemple de photographie MEB de poussières est présenté figure 2.7.

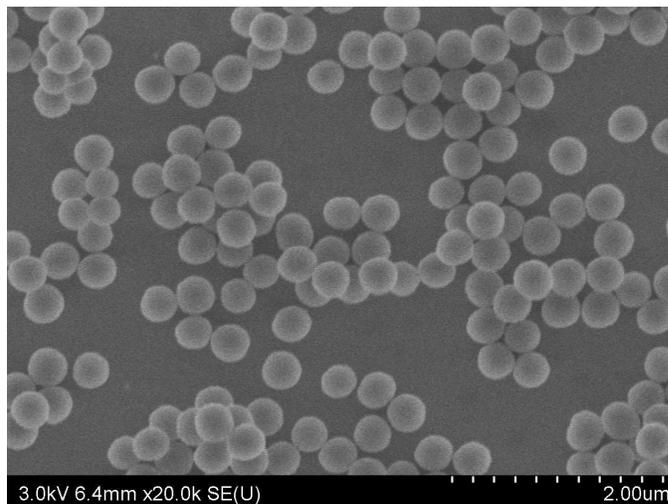


Figure 2.7 – Exemple de photographie MEB.

2.4 Analyse des films réalisés à la caméra rapide

2.4.1 Détection et suivi automatiques des poussières : algorithme TRACE

L'algorithme TRACE (“TRAcking and Classification of pin-point Events”) est dédié à la détection, au suivi et à la caractérisation de poussières présentes sur les images de film. Il a été développé au sein du laboratoire, principalement au cours de la thèse de Sébastien Bardin [1]. Une version détaillée du fonctionnement du code peut y être trouvée. Les études présentées dans ce manuscrit ont nécessité le développement d'une version

modifiée de TRACE, utilisée afin d’obtenir des informations de différentes natures. Parmi celles-ci on peut notamment citer :

- le comptage des particules présentes sur les images,
- la mesure de leur surface apparente,
- la détermination de leurs caractéristiques géométriques (hauteur, largeur . . .),
- le suivi de leurs positions successives (trajectoires),
- le calcul des vitesses des particules,
- les évènements de collision particule-particule. . .

Dans cette section, le principe général du fonctionnement de TRACE sera décrit. Une première partie sera dédiée à la détection des *particules potentielles* (points lumineux pouvant correspondre à une particule). Dans une seconde partie, la méthode de détermination des surfaces des particules sera explicitée. Enfin, le suivi des poussières fera l’objet d’une troisième partie.

Détection des *particules potentielles* (points lumineux)

Les analyses sont réalisées image par image. Celles-ci ont une résolution de 768×496 pixels. Les images sont découpées en zones de 64×16 pixels comme indiqué sur le schéma présenté figure 2.8. Chacune de ces zones est ensuite analysée de manière indépendante. Un pixel est considéré comme une *particule potentielle* si son intensité lumineuse I_{pp} obéit simultanément à 4 conditions :

- Sa valeur doit correspondre à un **maximum local**.
- Sa valeur doit être supérieure à un **seuil global** : $I_{pp} > ThrGlob$.
ThrGlob est fonction des valeurs de l’intensité moyenne et de la déviation standard de la zone considérée.
- Sa valeur doit être supérieure à un **seuil régional** : $I_{pp} > ThrReg$.
ThrReg est défini sur une boîte de 16×16 pixels centrée sur le pixel d’intérêt. Le seuil régional est fonction des valeurs des pixels d’intensités minimum et maximum.
- Sa valeur doit être supérieure à un **seuil local** : $I_{pp} > ThrLoc$.
ThrLoc est défini sur une boîte de 7×7 pixels centrée sur le pixel d’intérêt. Le seuil local est une fonction discrète du seuil régional et de l’intensité du pixel d’intérêt.

Deux paramètres additionnels doivent également être définis :

- Un premier paramètre correspond au “niveau de bruit” des images. C’est un seuil en deçà duquel un pixel lumineux est considéré comme du bruit. Pour les films réalisés dans cette étude, le niveau de bruit est très bas et le seuil est fixé à 2, l’intensité maximale étant de 256 (convertisseur 8 bits). Cela signifie que pour un fond totalement noir (valeur du pixel égale à 0), un pixel pourra être considéré comme une particule si son intensité lumineuse I_{pix} satisfait à l’inégalité $I_{pix} > 2$.
- Un second paramètre correspond à la distance minimale que l’on considère pouvoir exister entre deux particules. Si deux *particules potentielles* sont séparées par une

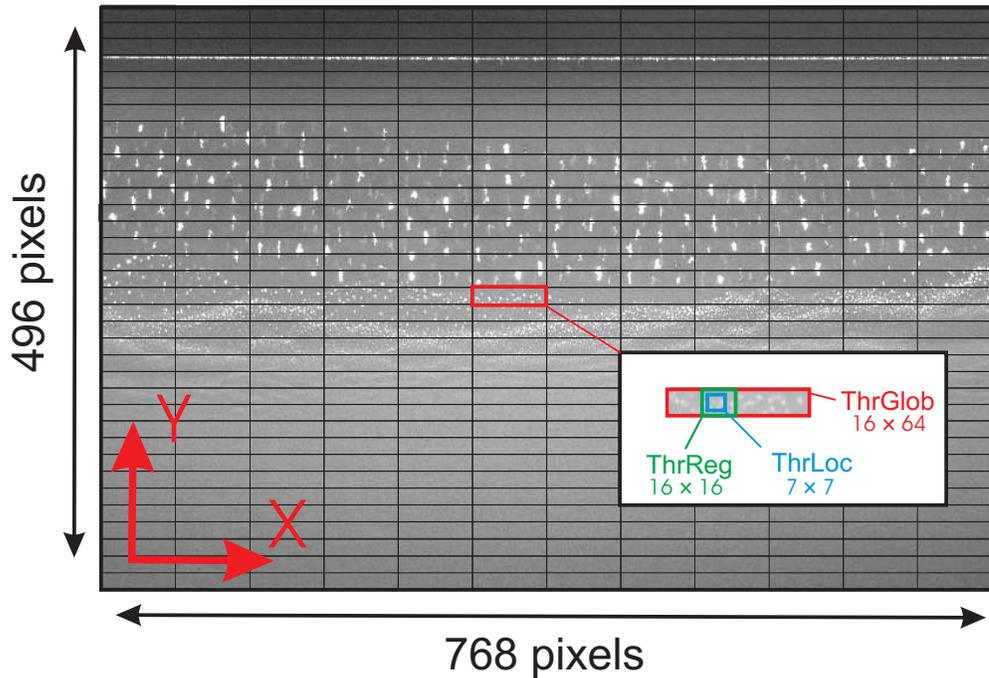


Figure 2.8 – Principe du seuillage lors de la phase de détection des particules potentielles.

distance inférieure à ce paramètre, elles sont considérées comme faisant partie de la même particule.

Les paramètres précédents doivent être ajustés et testés par l'utilisateur au cours d'une phase préliminaire. Une fois cette phase effectuée, ils peuvent être conservés identiques d'une expérience à l'autre, les conditions de luminosité et de contraste de chacune d'entre elles étant relativement similaires.

L'ensemble des pixels répondant aux 4 critères énoncés précédemment sont répertoriés et constituent l'ensemble des *particules potentielles*.

Détermination des surfaces des particules

L'étape suivante consiste à déterminer la surface apparente de chaque *particule réelle*, à partir des *particules potentielles* et pour chacune des images du film.

Un pixel voisin du pixel d'intérêt (*particule potentielle*) est considéré comme faisant partie de la particule si son intensité lumineuse I_{pix} est supérieure à un **seuil d'appartenance**.

La valeur de ce dernier est fonction de deux paramètres :

- de l'intensité du pixel d'intérêt I_{pp} (*particule potentielle*) multipliée par un coefficient C_{pp} (avec $C_{pp} < 1$) : $I_{pp} \times C_{pp}$,
- de l'intensité lumineuse moyenne I_{moy} dans une zone de 10×10 autour du pixel testé, multipliée par un coefficient C_{moy} (avec $C_{moy} > 1$) : $I_{moy} \times C_{moy}$.

L'analyse des résultats présentés dans ce manuscrit a été réalisée avec les coefficients $C_{pp}=0,15$ et $C_{moy}=1,3$.

L'espace entourant la particule est ensuite balayé et on vérifie, pour chaque pixel, si son intensité I_{pix} est supérieure au seuil d'appartenance. L'exploration est réalisée de proche en proche de manière à pouvoir s'adapter à des géométries particulières de particules (particules ramifiées par exemple).

Une fois cette étape réalisée, il est nécessaire de supprimer les doublons. Il existe en effet de nombreux cas pour lesquels plusieurs *particules potentielles* font en réalité partie de la même *particule réelle*. Ces situations sont particulièrement rencontrées en présence de grandes particules, comprenant plusieurs maxima locaux d'intensité, et ainsi plusieurs *particules potentielles*.

L'élimination des doublons est rendue possible grâce à la connaissance des surfaces apparentes. Deux cas de figure, illustrés par la figure 2.9 se présentent alors :

- Les surfaces mesurées (S_1, S_2, \dots) à partir de différentes *particules potentielles* (p_1, p_2, \dots) se recouvrent totalement. Il ne s'agit donc que d'une seule et même *particule réelle* de surface $S=S_1=S_2=\dots$
- Les surfaces mesurées (S_1, S_2, \dots) à partir de différentes *particules potentielles* (p_1, p_2, \dots) se recouvrent partiellement. Ceci est dû au caractère spécifique et local du seuillage. Il ne s'agit donc que d'une seule et même *particule réelle*. On lui attribue alors la surface $S=\max(S_1, S_2, \dots)$. La manière idéale de procéder serait de réaliser l'union des différentes surfaces S_i . Cependant, cette technique nécessite de conserver en mémoire toutes les positions des pixels composant les surfaces S_i ce qui s'avère très rétrograde en temps de calcul et place mémoire. En outre, l'erreur commise est généralement minime car les surfaces S_i ne diffèrent que peu entre elles.

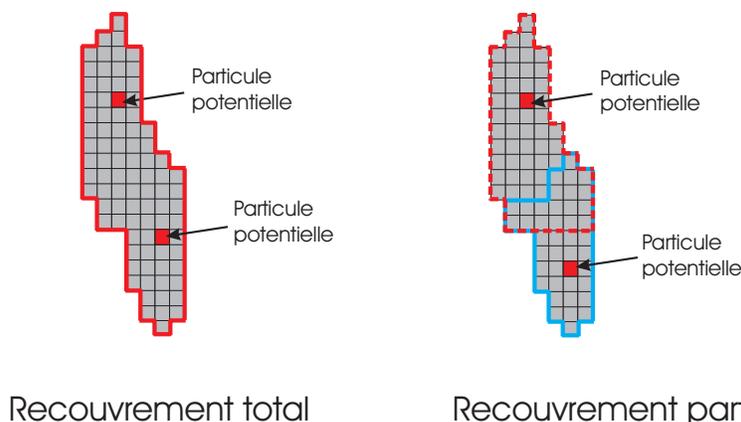


Figure 2.9 – Recouvrements des surfaces de deux poussières.

Une fois les *particules réelles* identifiées, et leurs surfaces connues, les positions de celles-ci sont repérées par la position de leur barycentre.

L'étape suivante consiste au suivi de ces *particules réelles* dans le temps (d'une image à l'autre) et dans l'espace.

Suivi des particules

Deux paramètres doivent au préalable être définis avant de réaliser le suivi des particules :

- La vitesse maximale des particules. Ce paramètre est exprimé en terme de pixels par pas de temps d'acquisition Δt . Il correspond à la distance maximale que peut parcourir une particule entre deux images successives. Lors de l'analyse des films réalisés dans cette étude, il a été fixé à 4. Si une particule se déplace de plus de 4 pixels entre deux images successives¹, ces deux positions ne pourront pas être raccordées entre elles d'une image à l'autre. Ce paramètre doit être fixé en tenant compte de la densité de particules. Si il est choisi trop grand, on risque de reconnecter entre elles des trajectoires correspondant à des particules différentes.
- Le nombre d'images pendant lesquelles on s'autorise à perdre une particule avant de la retrouver, sans considérer que se soit une nouvelle particule. Ce cas de figure peut être rencontré notamment lorsqu'une particule sort du plan du faisceau laser avant d'y pénétrer à nouveau. Il a été fixé à 0, en raison de la bonne qualité des films réalisés lors des expériences.

Une fois ces paramètres définis, le suivi des particules est effectué.

En comparant les positions des *particules réelles* détectées d'une image à l'autre, un grand nombre de combinaisons permettant de relier leurs positions successives sont possibles. La détermination des trajectoires des particules repose sur le principe de minimisation de la distance quadratique totale parcourue par les particules entre deux images successives.

A l'issue de la procédure de suivi, on dispose pour chaque *particule réelle* d'une liste contenant l'ensemble de ses positions successives à chaque instant. Pour permettre l'exploitation des résultats, de multiples informations relatives à chaque particule sont répertoriées. En voici une liste non exhaustive :

1. position (x,y) à laquelle la particule est détectée pour la première fois
2. instant à laquelle la particule est détectée pour la première fois
3. position (x,y) à laquelle la particule est détectée pour la dernière fois
4. instant à laquelle la particule est détectée pour la dernière fois
5. durée du suivi de la particule
6. position verticale la plus haute atteinte par la particule (selon y)
7. position verticale la plus basse atteinte par la particule (selon y)
8. longueur de déplacement cumulé
9. longueur de déplacement horizontal cumulé (selon x)
10. longueur de déplacement vertical cumulé (selon y)
11. surface moyenne de la particule. Celle-ci peut en effet changer en fonction de l'orientation de la particule dans l'espace, de son éclairage par le laser, de son environnement...

1. la largeur d'un pixel est généralement de l'ordre de 25 μm et la cadence d'acquisition est de 5000 fps. La vitesse maximale est donc de l'ordre de 50 $\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$

12. vitesse moyenne horizontale de la particule
13. vitesse moyenne verticale de la particule

Ces informations permettent une classification des particules facilitant le traitement statistique des données.

2.4.2 Étude des ondes de poussières

Une partie des travaux présentés dans ce manuscrit est dédiée à l'étude de la propagation des ondes de densité de poussières. Celles-ci apparaissent au sein des nuages de poussières piégées dans les gaines de la décharge comme l'illustre la photographie présentée figure 2.10. Les ondes se propagent du plasma en direction de l'électrode. Cette section a pour objectif de décrire deux méthodes dédiées à l'étude des ces phénomènes ondulatoires :

- une méthode permettant de récapituler la propagation des ondes au sein d'un diagramme appelé "periodgram",
- une méthode permettant de mesurer les paramètres locaux des ondes de poussière : fréquence, longueur d'onde et vitesse de phase.

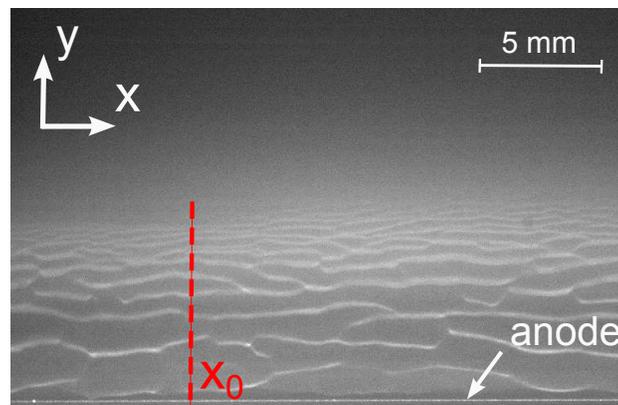


Figure 2.10 – Ondes de poussières dans la gaine anodique. Les fronts d'onde, correspondant à des zones de forte densité de poussières submicroniques, apparaissent comme des bandes lumineuses en raison de l'éclairage par la lumière laser.

Représentation de la propagation des ondes : le periodgram

Afin d'être en mesure de retranscrire précisément la dynamique spatiale et temporelle des phénomènes étudiés grâce à la caméra rapide, il est nécessaire de disposer d'un mode de représentation adéquat : le periodgram. Cette dénomination est utilisée notamment par Nosenko *et al* [45].

En considérant que la propagation des ondes se fait suivant une symétrie cylindrique, il est possible de s'affranchir de la dimension spatiale horizontale des images issues des

films. Cela revient à considérer que les fronts d'ondes se propagent verticalement tout en restant parallèles à l'électrode).

Selon l'hypothèse précédente, la propagation de l'onde peut être décrite à l'aide de trois dimensions :

- une dimension spatiale,
- une dimension temporelle,
- un dimension correspondant à l'intensité lumineuse.

A chaque pixel de position (x, y) d'une image (instant t) correspond une intensité lumineuse $I(x, y, t)$.

La méthodologie employée pour la construction du periodgram est donnée dans la suite. Elle s'appuie sur le schéma présenté figure 2.11.

- Premièrement, on détermine les fluctuations lumineuses en soustrayant à chaque pixel de l'image sa valeur moyennée dans le temps : $\tilde{I}(x, y, t) = I(x, y, t) - \langle I(x, y, t) \rangle_t$.
- On sélectionne ensuite pour chaque image du film (repérée par le temps t) une fine bande verticale de pixels centrée sur x_i , située dans la partie centrale de l'image (pour éviter les effets de bord) et de largeur horizontale 3 pixels.

On obtient donc trois colonnes : $\tilde{I}(x_{i-1}, y, t)$, $\tilde{I}(x_i, y, t)$ et $\tilde{I}(x_{i+1}, y, t)$.

- Afin de réduire le bruit de mesure, l'intensité lumineuse est moyennée sur ces trois colonnes pour ne former in fine plus qu'une seule colonne : $\tilde{I}'(y, t) = \left\langle \tilde{I}(x, y, t) \right\rangle_x = \frac{1}{3} \sum_{j=i-1}^{i+1} \tilde{I}(x_j, y, t)$.

- On juxtapose ensuite les colonnes $\tilde{I}'(y, t)$ ainsi obtenues pour chacune des images les unes à côté des autres.

On obtient ainsi une figure dont la dimension verticale correspond à l'axe vertical de l'image y et l'axe horizontal est la dimension temporelle t . L'échelle de couleur représente les fluctuations de l'intensité lumineuse moyenne des pixels de la colonne $\tilde{I}'(y, t)$.

Une telle représentation est reproduite figure 2.11. Elle illustre la propagation d'ondes acoustiques de poussières dans la gaine anodique. Les fronts d'ondes s'y propagent du haut vers le bas. Ils apparaissent alors sur le periodgram comme des bandes diagonales dont la valeur de la pente correspond à la vitesse de propagation du front d'onde considéré. La distance verticale séparant deux bandes diagonales est la longueur d'onde tandis que la distance horizontale donne la période de l'onde.

Ce type de représentation sera largement utilisé au cours des études présentées dans ce manuscrit.

Détermination des paramètres des ondes de poussières

Les paramètres des ondes (fréquence, longueur d'onde et vitesse de phase) peuvent varier en fonction de la position y dans la gaine. La méthode présentée ici permet de

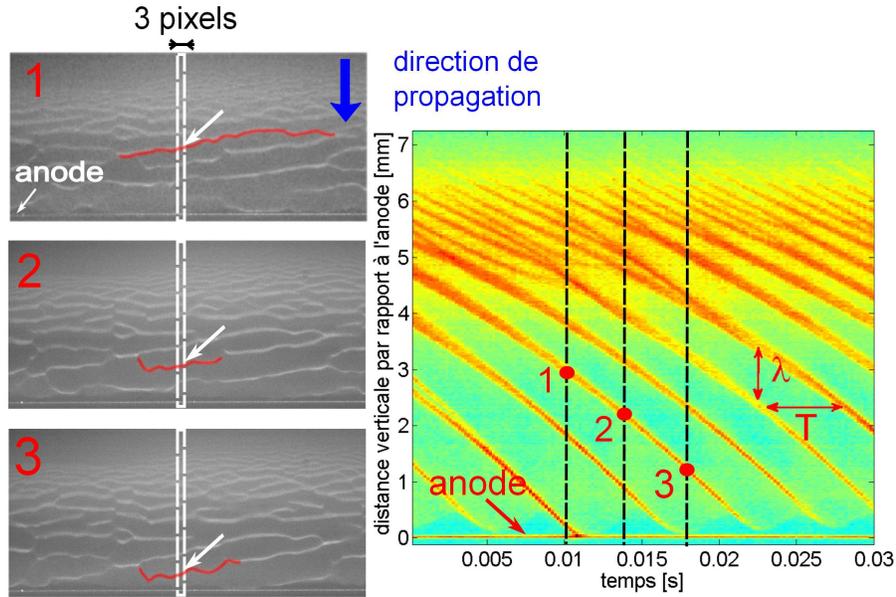


Figure 2.11 – *Periodogram représentant la propagation des ondes de poussière dans la gaine anodique.*

déterminer ces paramètres moyens en fonction de y pour une position horizontale $X = X_0$ donnée. On utilise pour cela les fluctuations d'intensité lumineuse $\tilde{I}(y, t)$ à la position X_0 (cf figure 2.10).

- La fréquence de passage des fronts d'onde $f_p(y)$ est déterminée à l'aide d'une transformée de fourier de $\tilde{I}(y, t)$.
- La longueur d'onde $\lambda(y)$ est déterminée à l'aide de la méthode décrite dans la suite. Cette description s'appuie sur le schéma proposé figure 2.12. Des bandes horizontales d'épaisseur (verticale) DY sont définies. Elles sont centrées sur différentes positions verticales Y_0 . Une longueur d'onde moyenne est ensuite déterminée pour chacune d'entre elles. Pour se faire, on estime la distance (verticale, selon y) séparant les maxima locaux de $\tilde{I}(y, t)$. Ceux-ci sont repérés par annulation de la dérivée $\left(\frac{\partial \tilde{I}(y, t)}{\partial y}\right)_t$. Une longueur d'onde est attribuée à une bande donnée si le milieu du segment qu'elle constitue est contenu dans cette bande (cf schéma). Une moyenne est ensuite calculée pour chacune des bandes.
- La vitesse de phase $v(y)$ est déterminée en considérant que : $v(y) = f_p(y) \times \lambda(y)$.

En raison de son principe de fonctionnement basé sur le calcul de moyennes, la méthode présentée a tendance à lisser les données obtenues. Il convient donc de rester prudent lors de l'interprétation des résultats obtenus en prenant cet effet de lissage en considération. Cependant, des comparaisons entre des mesures effectuées manuellement et les résultats fournis par la méthode ont montré son bon fonctionnement.

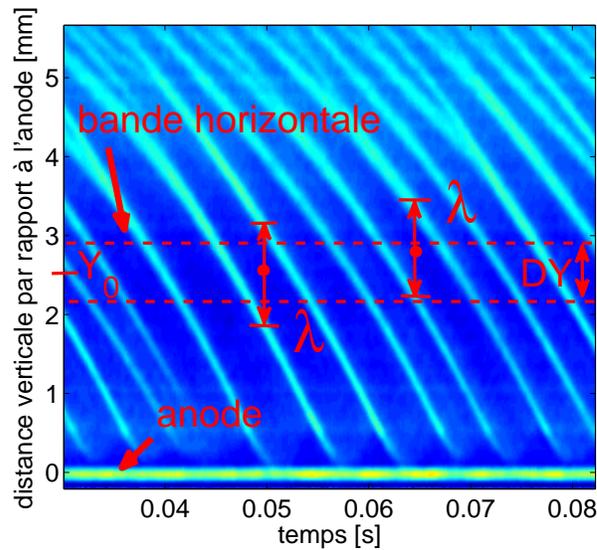


Figure 2.12 – Schéma de principe pour la détermination des longueurs d'onde.

2.5 Conclusion

Afin de pouvoir mener à bien notre étude sur les plasmas poussiéreux Ar/C₂H₂, un nouveau réacteur RF ainsi que de nouveaux diagnostics in-situ ont été développés. Des mesures d'extinction d'un faisceau lumineux, associées à une méthode inverse, permettent de suivre l'évolution de la population de poussières submicroniques. Le développement de cette méthode est présenté au chapitre 3. Pour étudier des poussières de tailles supérieures (à partir de $\simeq 10\mu\text{m}$), un faisceau laser ainsi qu'une caméra rapide sont utilisés conjointement. Les films ainsi obtenus sont ensuite analysés à l'aide du code TRACE pour obtenir des informations telles que la trajectoire, le nombre, la taille, ou encore la forme des poussières. Pour cela, le code TRACE a été amélioré au cours de ce travail de thèse. Les films réalisés permettent également d'étudier des phénomènes tels que la propagation d'ondes de poussières. Pour retranscrire et déterminer les caractéristiques de ces ondes, des méthodes numériques ont été mises au point. Enfin, la mesure de la tension d'auto-polarisation de la décharge permet d'apporter des informations supplémentaires sur les poussières formées.

Une méthode d'extraction des poussières a également été mise au point, et fait l'objet du chapitre 4. Des dépôts de poussières peuvent ainsi être réalisés lors des expériences ce qui permet leur analyse ex-situ, notamment au moyen de la microscopie MEB.

L'ensemble des outils expérimentaux et numériques développés au cours de ce travail de thèse permet d'étudier en détail la formation des poussières au sein du plasma.

Chapitre 3

Mesures d’extinction du rayonnement dans un plasma poussiéreux : expériences, modèles et méthode inverse

3.1 Introduction

Une des difficultés dans l’étude des plasmas poussiéreux réactifs est liée à la connaissance de la granulométrie des poussières présentes. En effet, celle-ci est en perpétuelle évolution puisque les poussières sont produites directement in-situ par injection de gaz réactif. Il est donc souhaitable de disposer d’une méthode permettant de déterminer localement et à un instant donné les tailles et les densités des particules (poussières carbonées). Les diagnostics optiques non intrusifs sont particulièrement adaptés à ce type de mesure et sont largement utilisés. Ils sont généralement basés sur l’interaction d’un faisceau lumineux traversant le nuage de particules en suspension avec celles-ci. Une partie du rayonnement incident est alors absorbée et diffusée par les particules. Il est possible de déterminer les caractéristiques et la granulométrie des particules, par exemple en analysant la lumière diffusée à différents angles ou la lumière transmise en incidence directe. C’est cette dernière technique communément appelée “mesure d’extinction” qui a été utilisée au cours de cette étude.

3.2 Diffusion et absorption d’une onde électromagnétique par des particules.

3.2.1 Généralités sur le phénomène de diffusion

Le phénomène de diffusion de la lumière se rencontre dans divers cas de figure. Il peut être provoqué par la présence d’atomes, de molécules ou encore de particules au sein du milieu dans lequel l’onde lumineuse se propage. D’une manière générale, c’est la

présence d'inhomogénéités au sein du milieu propagatif qui en est à l'origine. La matière, à petite échelle est composée de charges électriques discrètes qui forment des dipôles : noyaux atomiques et électrons. On conçoit donc aisément que le champ électrique oscillant d'une onde électromagnétique se propageant dans un milieu puisse amener ces charges électriques à osciller et donc à absorber l'énergie de l'onde. Comme une charge électrique en oscillation rayonne, cette énergie absorbée est ré-émise dans le milieu sous forme d'une onde électromagnétique se propageant dans une nouvelle direction. Dans la pratique on distingue deux mécanismes lors de l'interaction d'une onde électromagnétique avec un milieu semi-transparent. D'une part la diffusion qui se traduit par la modification de la direction de propagation de l'onde incidente et d'autre part l'absorption qui caractérise la diminution de l'énergie de l'onde incidente. Ces deux mécanismes pris ensemble définissent l'extinction du rayonnement. C'est le concept général de la diffusion lumineuse tel qu'il est proposé par Bohren et Huffman [46]. Il est intéressant de noter que selon cette définition, les phénomènes optiques bien connus de réfraction de réflexion ou de diffraction découlent directement des phénomènes décrits précédemment. L'origine du phénomène de diffusion est donc intimement lié à la nature du milieu dans lequel se propage le rayonnement. Il dépend également de la géométrie du système considéré.

La figure 3.1 représente l'interaction d'une onde électromagnétique avec des particules sphériques et s'inspire d'une représentation proposée par Modest [47].

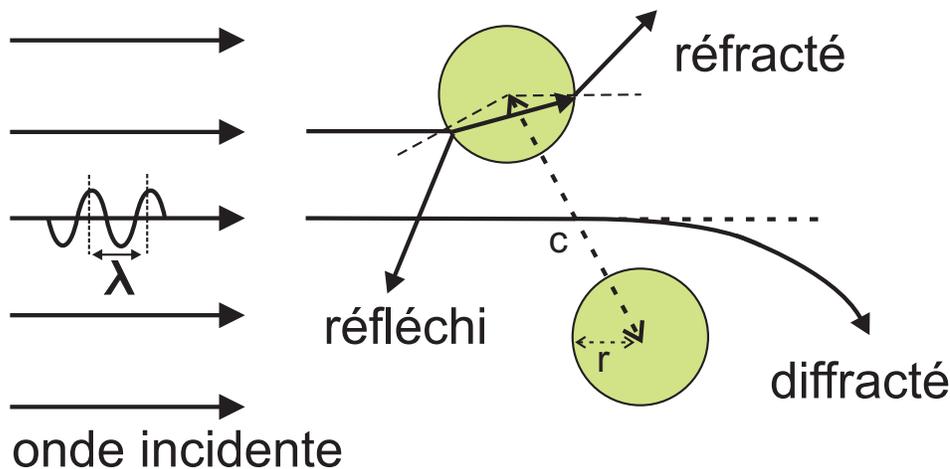


Figure 3.1 – Schéma représentant l'interaction d'une onde électromagnétique avec des particules sphériques.

Dans notre étude, nous nous intéressons à une suspension de particules solides. Le phénomène de diffusion dépendra donc de la nature du matériau constituant ces particules, de leur forme mais également de la répartition de ces particules dans l'espace les unes par rapport aux autres.

Afin de caractériser la diffusion, on décrit les propriétés radiatives du milieu à l'aide de trois paramètres adimensionnels :

- l'indice complexe de réfraction relatif à la nature du matériau constituant les particules : $m = n - ik$

- le rapport entre la distance moyenne entre deux particules diffusantes et la longueur d'onde λ du rayonnement incident : $\frac{c}{\lambda}$
- le paramètre de taille : $\alpha = \frac{2\pi r}{\lambda}$, où r représente le rayon de la particule diffusante.

L'indice complexe de réfraction m nous sera utile pour le calcul des propriétés optiques des particules carbonées. Celles-ci sont explicitées au paragraphe 3.2.2. La partie réelle n est appelée indice de réfraction. Elle représente le facteur de réduction de la vitesse de phase de la lumière dans le matériau considéré. La partie imaginaire $-k$ est appelée coefficient d'absorption et permet la prise en compte de l'atténuation de l'onde dans les milieux absorbants. L'indice optique est généralement fonction de la longueur d'onde du rayonnement considéré.

Le rapport c/λ permet quant à lui de préciser si la diffusion se fait de manière indépendante ou non. Un rapport $c/\lambda \gg 1$ caractéristique de milieux peu denses est synonyme de diffusion indépendante. Cela signifie que les particules sont suffisamment éloignées les unes des autres pour que leurs interactions soient négligées. De ce fait les propriétés optiques d'un ensemble de telles particules pourront être obtenues à travers l'étude d'une particule unique. Dans le cas contraire, on parlera de diffusion dépendante. Ainsi pour des milieux denses, une particule diffusera le champ diffusé par d'autres particules.

Enfin, le paramètre de taille α indique dans quel régime de diffusion nous nous trouvons. Pour des particules sphériques, on distingue ainsi trois domaines de diffusion différents :

- Pour $\alpha \ll 1$, c'est à dire pour des particules très petites au regard de la longueur d'onde, la diffusion peut être décrite à l'aide de la théorie de Rayleigh. En première approximation, on peut considérer que la diffusion est isotrope.
- Dans le cas opposé où $\alpha \gg 1$, c'est à dire pour des grandes particules comparativement à la longueur d'onde, on peut utiliser les lois de l'optique géométrique et de la diffraction. La diffusion est alors principalement orientée vers l'avant.
- Enfin, dans le cas intermédiaire, la situation est plus délicate et ne peut être décrite qu'à l'aide d'une théorie plus complexe dérivant de la résolution des équations de Maxwell appelée théorie de Mie.

La théorie de Mie peut en réalité s'utiliser quelle que soit la valeur de α , mais par commodité on lui préfère les méthodes de Rayleigh ou de l'optique géométrique qui sont beaucoup moins lourdes à mettre en œuvre dans leurs domaines d'application respectifs. Ces dernières correspondent en fait aux deux formes asymptotiques de la théorie de Mie.

3.2.2 Théorie de Mie et propriétés radiatives

Théorie de Mie

Afin de pouvoir décrire le comportement optique des particules vis-à-vis d'un rayonnement incident, il est nécessaire de connaître leurs propriétés radiatives. Dans notre étude nous nous sommes limités à l'utilisation de la théorie de Mie pour le calcul de ces pro-

priétés. Celle-ci fut formalisée en 1908 par Gustav Mie et fait suite aux travaux de Lorenz durant les années 1890. Elle est pour cette raison également appelée théorie de Lorenz-Mie. Par la suite, Debye y apporta plusieurs améliorations. Le lecteur intéressé pourra se référer à l'ouvrage de Kerker [48] qui reprend historiquement l'émergence de cette théorie.

Nous ne reprendrons pas le développement de la théorie de Mie dans ce manuscrit mais nous contenterons d'en donner le principe tout comme son cadre d'application. Plusieurs ouvrages de référence la décrivent en détails [46, 48, 49] et Modest [47] en résume les principales caractéristiques. Le code numérique permettant le calcul des propriétés radiatives de particules par le biais de la théorie de Mie a été développé par Anthony Collin [50] selon la méthode proposée par Bohren et Huffman [46].

La théorie de Mie est basée sur une résolution rigoureuse des équations de Maxwell dans le cas particulier de l'interaction d'une onde électromagnétique avec une particule parfaitement sphérique, homogène et isotrope. Cette limite de validité constitue donc une approximation importante dans notre étude : nous considérons que les particules étudiées sont sphériques et homogènes. Précisons que des extensions de la théorie de Mie permettent son application à des particules sphériques non homogènes (particules possédant un cœur et une enveloppe) ou encore à des cylindres infinis (milieux fibreux).

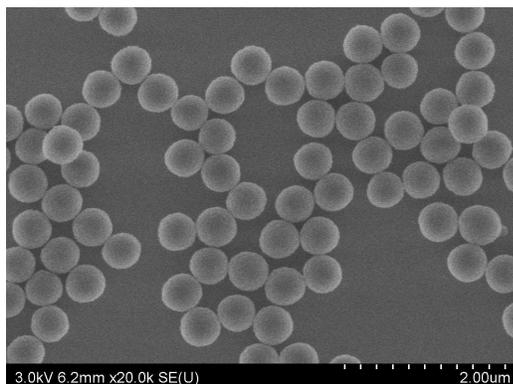
Les photographies MEB présentées figure 3.2 indiquent que jusqu'à des tailles de quelques centaines de nanomètres, les particules formées ont une géométrie très proche de la sphère. L'état de surface de ces particules n'est en revanche pas lisse mais présente des irrégularités qui donnent à ces poussières un aspect de "chou-fleur". Sur la figure 3.2(b), on peut distinguer l'intérieur d'une de ces particules. Celui-ci est plein et ne présente pas de trous. La morphologie et la structure des particules formées sont donc suffisamment proches de celles d'une sphère pour que l'utilisation de la théorie de Mie soit justifiée. L'état de surface particulier des particules nous impose cependant de rester prudent quant aux résultats obtenus.

Les poussières de tailles plus importantes ont une structure très différente tel que l'on peut le voir sur la figure 3.3. Ce sont des agglomérats constitués de particules sphériques dont le rayon de giration peut être de plusieurs centaines de micromètres. Leur comportement optique est donc bien différent de celui d'une simple sphère de rayon équivalent, particulièrement aux courtes longueurs d'onde. Il est en effet possible qu'un photon en interaction avec un tel agglomérat soit diffusé plusieurs fois au sein même de celui-ci par différentes particules primaires le constituant.

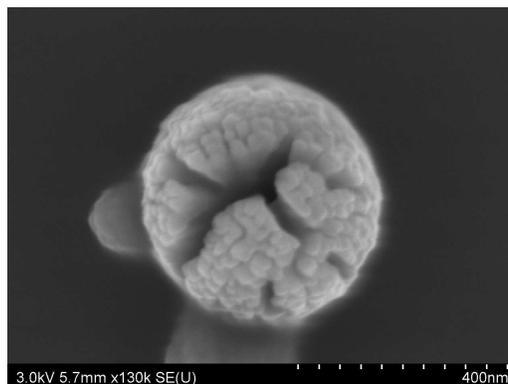
Une extension de la théorie de Mie appelée *T-matrix* [51] est couramment employée pour déterminer les propriétés optiques de tels agglomérats. Elle permet de prendre en compte les interactions entre les ondes diffusées par les différentes particules primaires composant l'agglomérat. Le développement de la *T-matrix* commence avec les travaux de Waterman entre 1965 et 1971 [52]. D'autres techniques existent, comme par exemple la DDA (*Discrete Dipole Approximation*), qui consiste à approximer un milieu continu par un ensemble de dipôles couplés. Une particule de forme quelconque peut ainsi être décomposée en un ensemble de points qui se polarisent sous l'action du champ électrique local. Un des inconvénients de cette méthode réside dans les temps de calculs et l'espace mémoire qu'elle nécessite [53].

Dans cette étude, nous nous sommes bornés à l'utilisation de la théorie de Mie dans sa forme originale. Il en résulte notamment que les effets de diffusion multiple au sein d'un ag-

glomérats ne sont pas pris en compte. Cette approximation se justifie par le fait que de tels agglomérats sont généralement peu nombreux et localisés dans des régions particulières de la décharge et pour des conditions expérimentales précises. Dans le domaine du spectre visible, étant donné la grande taille de ces agglomérats, l'interaction photons/matière sera principalement sensible à la taille des particules primaires composant ces agglomérats plutôt qu'aux agglomérats eux-mêmes. En effet, l'efficacité d'extinction devient de plus en plus faible à mesure que la taille de la particule considérée devient grande par rapport à la longueur d'onde utilisée.



(a) Photographie MEB montrant un ensemble de particules de forme sphérique.



(b) Photographie MEB montrant une particule de type "chou-fleur". L'intérieur de la particule est plein.

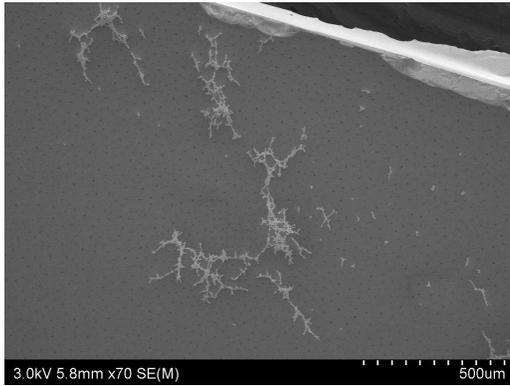
Figure 3.2 – Photographies MEB de particules carbonées obtenues en plasma argon/acétylène. Leur forme générale est proche de la sphère. La surface des particules peut présenter un aspect irrégulier dont le motif évoque celui d'un chou-fleur.

Indices optiques

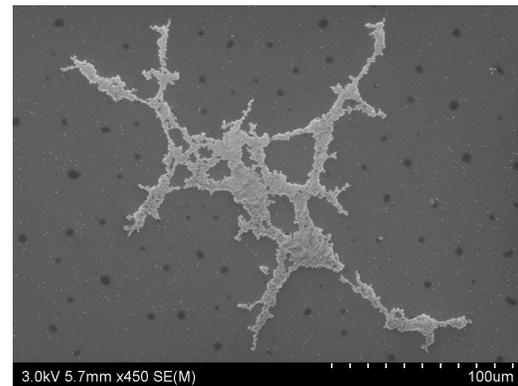
Les indices optiques complexes utilisés pour le calcul des propriétés radiatives sont issus de la littérature. Plusieurs jeux d'indices optiques différents ont été testés au cours de notre étude, dans le visible [54, 55, 56, 57, 58] et l'infrarouge [54, 59, 55, 60, 56]. Ils se différencient les uns des autres principalement par :

- la méthode utilisée pour la synthèse du matériau étudié
- la technique de caractérisation expérimentale : mesure en transmission, en réflexion, ellipsométrie
- les modèles et considérations théoriques utilisés pour le calcul des indices optiques à partir des données expérimentales

Les poussières formées expérimentalement sont produites à partir de la dissociation de molécules d'acétylène C_2H_2 . Dans ces conditions, elles sont généralement constituées de carbone sous forme amorphe et contiennent également une certaine quantité d'hydrogène. Dans la littérature, ce type de matériau est communément désigné par l'acronyme HAC (hydrogenated amorphous carbon) et par le sigle $a-C :H$. Plusieurs travaux [61, 57, 62]



(a) Photographie MEB montrant un ensemble d'agglomérats.



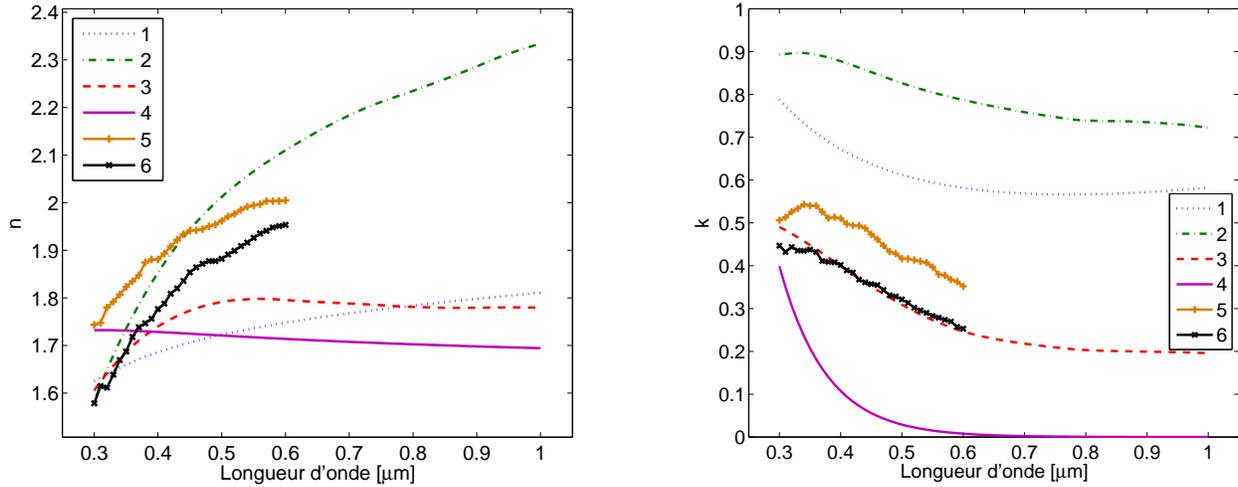
(b) Photographie MEB d'un agglomérat.

Figure 3.3 – Photographies MEB d'agglomérats. Ceux-ci sont constitués de particules dont le diamètre est de quelques centaines de nanomètres. Leur rayon de giration peut atteindre plusieurs centaines de micromètres.

ont mis en évidence le fait que les indices optiques de ces matériaux dépendent principalement de leur teneur en hydrogène et sont relativement indépendants de leur procédé de synthèse (“perte de l’effet mémoire”). En règle générale, plus la teneur en hydrogène du matériau est grande et plus les indices de réfraction n et d’absorption k sont faibles. Pour s’en convaincre, on peut se référer aux figures 3.4(a) et 3.4(b). Celles-ci représentent respectivement les indices optiques de réfraction et d’absorption proposés par différents auteurs. Les correspondances entre les courbes présentées et les méthodes de synthèse des échantillons concernés sont présentées dans le tableau 3.1. La comparaison deux à deux des jeux d’indices 2 et 3 ainsi que 5 et 6, confirme la diminution des indices n et k avec l’augmentation de la teneur en hydrogène. Celle-ci est directement liée à la méthode de fabrication utilisée. Les indices optiques sont souvent déterminés en se basant sur des analyses de films minces constitués du matériau déposé. Cependant, Hong et Winter [62] ont montré que les indices optiques des particules formées à partir de gaz réactifs (méthane et acétylène) varient au cours de la croissance de ces particules. Pour des petits diamètres ($d < 65$ nm), celles-ci présentent une forte composante graphitique et ne contiennent que peu d’hydrogène ce qui implique des indices de réfraction et d’absorption importants. Les auteurs imputent ce double phénomène de graphitisation et de déshydrogénation à la forte température des particules atteinte à ces petites tailles. Ils expliquent que la répartition sur un faible nombre de molécules de l’énergie libérée par les recombinaisons électron-ion, les impacts ioniques et les réactions chimiques (enthalpies de réaction) à la surface des particules en soient à l’origine. Lorsque les particules croissent en taille, le taux d’hydrogène qu’elles incorporent augmente, provoquant la diminution des indices optiques du matériau constituant les particules.

La connaissance des indices optiques est donc un point sensible sur lequel il convient d’être critique en particulier lors de leur utilisation au cours de notre étude. Le manque de connaissances quant à leur valeur exacte incite à rester prudent vis-à-vis des résultats

obtenus. L'influence des indices optiques sur les résultats expérimentaux présentés dans ce rapport est évaluée au paragraphe 3.6.2



(a) Exemples d'indice de réfraction.

(b) Exemples d'indice d'absorption.

Figure 3.4 – Indices optiques de réfraction et d'absorption proposés par différents auteurs dans le domaine visible et proche IR.

numéro	référence	procédé de synthèse utilisé
1	[54]	combustion d'un mélange propane-oxygène
2	[56]	plasma d'arc entre deux électrodes de carbone amorphe en atmosphère argon (ACAR)
3	[56]	plasma d'arc entre deux électrodes de carbone amorphe en atmosphère hydrogène (ACH2)
4	[57]	DC PECVD (<i>Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition</i>) en atmosphère méthane
5	[58]	décharge RF en atmosphère acétylène/hydrogène avec comme proportions respectives 1/2,5
6	[58]	décharge RF en atmosphère acétylène/hydrogène avec comme proportions respectives 1/10

Tableau 3.1 – Résumé des différents jeux d'indices optiques utilisés dans le domaine visible et proche IR.

Propriétés radiatives d'une particule

Grâce à l'utilisation de la théorie de Mie et à la connaissance des indices optiques du matériau composant les particules, il devient possible de calculer leurs propriétés radiatives.

Les premières grandeurs optiques déterminées sont les efficacités de diffusion $Q_{diff}(r, \lambda)$ et d'absorption $Q_{abs}(r, \lambda)$ qui permettent respectivement de quantifier la part du rayonnement incident qui est diffusé et absorbé par une particule. Elles sont définies pour une longueur d'onde λ et un rayon de particule r donnés. On définit également le facteur d'efficacité d'extinction $Q_{ext}(r, \lambda)$. Celui-ci est particulièrement adapté lorsque l'on cherche à déterminer l'atténuation d'un faisceau lumineux se propageant à travers une suspension de particules. Cette atténuation étant causée à la fois par la diffusion et l'absorption, il n'est pas nécessaire de différencier les deux phénomènes. La notion d'extinction permet de les considérer simultanément. On a donc :

$$Q_{ext}(r, \lambda) = Q_{diff}(r, \lambda) + Q_{abs}(r, \lambda) \quad (3.1)$$

La figure 3.5 représente les efficacités d'extinction pour différentes tailles de particules et différentes longueurs d'onde. Elles ont été calculées à l'aide de la théorie de Mie et en utilisant les indices optiques tirés de [56] pour l'échantillon ACH2 (jeu d'indice n°3 du tableau 3.1).

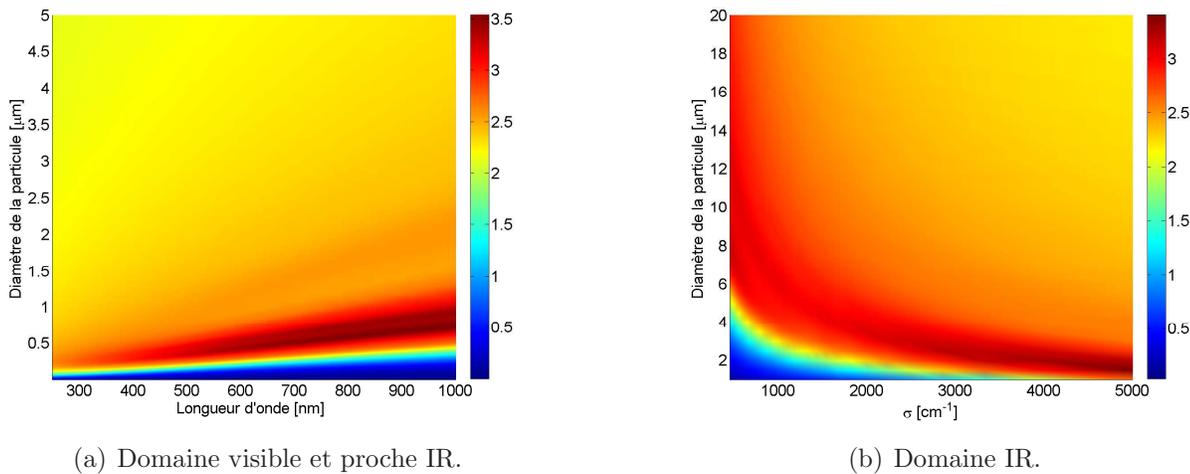


Figure 3.5 – Efficacités d'extinction obtenues par le calcul de Mie et en utilisant les indices optiques tirés de [56] pour le matériau ACH2.

Les sections efficaces correspondantes $C_{diff}(r, \lambda)$, $C_{abs}(r, \lambda)$ et $C_{ext}(r, \lambda)$ sont obtenues en multipliant les efficacités par la section de la particule sphérique. On obtient :

$$C_{diff}(r, \lambda) = \pi r^2 Q_{diff}(r, \lambda) \quad (3.2)$$

$$C_{abs}(r, \lambda) = \pi r^2 Q_{abs}(r, \lambda) \quad (3.3)$$

$$C_{ext}(r, \lambda) = \pi r^2 Q_{ext}(r, \lambda) \quad (3.4)$$

Afin de caractériser complètement le comportement de diffusion d'une particule, une nouvelle propriété optique reste à définir. Nous avons déjà défini la quantité totale d'énergie diffusée par une sphère Q_{diff} . Cette quantité ne tient cependant pas compte de la

direction selon laquelle elle se propage. Pour une particule sphérique, l'énergie électromagnétique est diffusée symétriquement selon l'angle azimutal Ψ . En revanche, elle dépend de l'angle polaire θ . Cette dépendance selon θ est apportée par la fonction de phase de diffusion $F(r, \lambda, \eta)$ où $\eta = f(\Psi, \theta)$ est l'angle de diffusion, c'est-à-dire l'angle entre les directions incidente et diffusée. La figure 3.6 représente l'allure des fonctions de phase pour les trois régimes de diffusion décrits au paragraphe 3.2.1.

Les figures 3.5 et 3.6 illustrent bien la forte dépendance des propriétés optiques des particules en fonction de leur taille vis-à-vis de la longueur d'onde considérée (paramètre α). Si la particule est petite par rapport à la longueur d'onde ($\alpha \ll 1$), la diffusion se fait de manière presque isotrope (figure 3.6(a)). On parle alors de diffusion Rayleigh. Plus la particule est grande par rapport à la longueur d'onde et plus la diffusion s'oriente vers l'avant. Pour une particule très grande devant la longueur d'onde ($\alpha \gg 1$), la diffusion est très orientée vers l'avant. Les lois de l'optique géométrique s'appliquent alors. La situation intermédiaire correspond au domaine de Mie et la théorie de Mie doit être utilisée pour décrire le comportement optique de telles particules.

D'une manière générale, l'extinction devient importante lorsque la taille de la particule est du même ordre que la longueur d'onde. Ainsi, si les particules d'intérêt ont une taille inférieure à la centaine de nanomètres, il faudra utiliser un rayonnement UV pour les détecter efficacement. Le domaine visible est adapté à l'étude des particules dont la taille est de l'ordre de quelques centaines de nanomètres. Pour des particules micrométriques, le rayonnement infrarouge devient le plus adapté. Cette forte dépendance du comportement optique des particules en fonction du paramètre α peut être utilisée afin de les identifier. C'est le principe des mesures réalisées dans cette étude.

Propriétés radiatives d'un ensemble de particules

Cas d'une monodispersion

Considérons maintenant une monodispersion de particules de diamètre r réparties en volume avec une densité volumique N . Si l'on considère que le milieu est suffisamment peu dense pour pouvoir considérer la diffusion comme indépendante et négliger les effets de diffusion multiple, les coefficients spectraux volumiques de diffusion σ , d'absorption κ et d'extinction β s'écrivent respectivement :

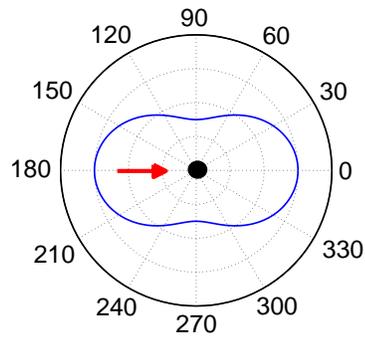
$$\sigma(\lambda) = \pi r^2 N Q_{diff}(r, \lambda) \quad (3.5)$$

$$\kappa(\lambda) = \pi r^2 N Q_{abs}(r, \lambda) \quad (3.6)$$

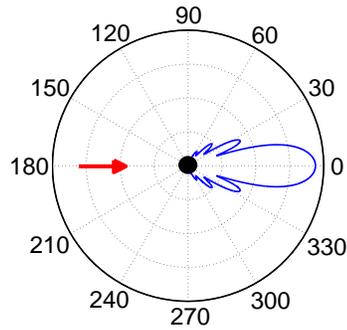
$$\beta(\lambda) = \pi r^2 N Q_{ext}(r, \lambda) \quad (3.7)$$

On considère de cette manière que les effets de chaque particule composant l'ensemble sont additifs. Concernant la fonction de phase, puisqu'elle est identique pour chaque particule, elle restera la même pour l'ensemble.

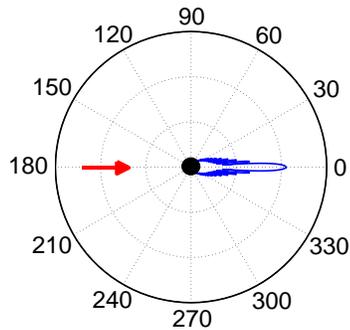
Cas d'une polydispersion



(a) Domaine de Rayleigh. Échelle radiale linéaire. $\alpha = 0, 1$.



(b) Domaine intermédiaire (domaine de Mie). Échelle radiale logarithmique. $\alpha = 10$.



(c) Domaine de l'optique géométrique. Échelle radiale logarithmique. $\alpha = 50$

Figure 3.6 – Fonctions de phase pour les trois régimes de diffusion différents. Les indices optiques utilisés pour leur calcul sont issus de [56] et concernent le matériau ACH2.

Dans notre étude nous sommes confrontés à des polydispersions de particules c'est à dire à des ensembles formés de particules de rayons r et de densités volumiques $N(r)$.

Si l'on considère que les particules peuvent prendre une taille quelconque, $N(r)$ devient continue et est appelée fonction de distribution en taille des particules. En considérant la diffusion multiple comme négligeable, les coefficients spectraux volumiques s'écrivent alors sous la forme d'une intégrale de Fredholm du premier ordre :

$$\sigma(\lambda) = \int_0^{\infty} \pi r^2 N(r) Q_{diff}(r, \lambda) dr \quad (3.8)$$

$$\kappa(\lambda) = \int_0^{\infty} \pi r^2 N(r) Q_{abs}(r, \lambda) dr \quad (3.9)$$

$$\beta(\lambda) = \int_0^{\infty} \pi r^2 N(r) Q_{ext}(r, \lambda) dr \quad (3.10)$$

On peut également définir une fonction de phase moyenne de diffusion pour la distribution de particules. Celle-ci renseigne alors sur le comportement diffusif moyen du milieu contenant les particules. Elle se calcule de la manière suivante :

$$F(\lambda, \eta) = \frac{\int_0^{\infty} C_{diff}(r, \lambda) N(r) F(r, \lambda, \eta) dr}{\int_0^{\infty} C_{diff}(r, \lambda) N(r) dr} \quad (3.11)$$

3.2.3 Extinction et loi de Beer-Lambert

Les mesures réalisées dans cette étude sont communément appelées mesures d'extinction. La figure 3.7 en illustre le principe. Un faisceau lumineux est émis par la source S. Il se propage ensuite à travers le nuage de particules. Le rayonnement transmis est ensuite collecté par le détecteur placé en D. Dans les expériences réalisées, la source lumineuse est polychromatique. $I_0(\lambda)$ est l'intensité lumineuse du faisceau à la longueur d'onde λ lorsqu'il est émis par la source tandis que $I(\lambda)$ représente son intensité après son parcours à travers le nuage de particules. Les particules du milieu agissent en diffusant et en absorbant en partie l'intensité lumineuse incidente provoquant l'atténuation (extinction) du faisceau. Afin de quantifier cette atténuation, on peut définir la transmittance $Tr(\lambda)$ à la longueur d'onde λ qui s'exprime simplement comme le rapport de l'intensité lumineuse incidente par l'intensité lumineuse émergente du milieu :

$$Tr(\lambda) = \frac{I(\lambda)}{I_0(\lambda)} \quad (3.12)$$

Comme $I(\lambda) < I_0(\lambda)$ on aura $Tr(\lambda) < 1$. On peut également définir l'absorbance $Abs(\lambda)$:

$$Abs(\lambda) = -\log_{10} \left(\frac{I(\lambda)}{I_0(\lambda)} \right) = -\log_{10} (Tr(\lambda)) \quad (3.13)$$

Pour un faisceau lumineux parcourant une distance L à travers le nuage de particules et si on considère que le milieu est suffisamment peu dense pour pouvoir négliger la diffusion multiple, la transmittance peut s'écrire

$$Tr(\lambda) = \exp(-\beta(\lambda)L) \quad (3.14)$$

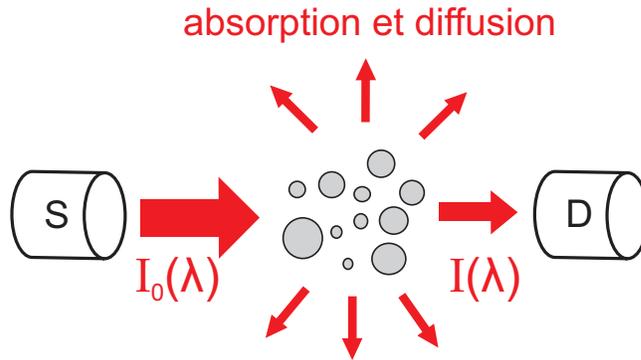


Figure 3.7 – Schéma de principe de la mesure d'extinction.

et l'absorbance sous la forme

$$Abs(\lambda) = \frac{\beta(\lambda)L}{\ln(10)} \quad (3.15)$$

Cette dernière expression est connue sous le nom de loi de Beer-Lambert.

Remarque : En écrivant la transmittance sous cette forme, nous avons fait l'hypothèse que tout photon diffusé s'échappe du milieu et est par conséquent définitivement perdu. Celui-ci ne pourra pas être collecté au détecteur. Cette hypothèse n'est valable que si la densité de particules est faible et que la surface du détecteur est petite.

La validité de cette hypothèse n'est assurée que pour des faibles densités de particules et dépend fortement de la configuration géométrique de l'expérience. En particulier, la surface du détecteur constitue un paramètre important et doit rester suffisamment faible.

3.3 Détermination de la granulométrie des particules : présentation de la méthode inverse.

Notre objectif est d'obtenir à partir des mesures d'extinction expérimentales une estimation des tailles des particules présentes ainsi que de leurs densités respectives. Comme nous l'avons vu au paragraphe 3.2.2.0, les propriétés optiques des particules dépendent fortement de leur taille vis-à-vis de la longueur d'onde utilisée. Ainsi, en mesurant l'extinction sur une large plage de longueurs d'onde, on augmente la quantité d'informations disponibles pour identifier les particules qui en sont responsables. L'extinction constitue donc en quelque sorte la signature d'une population de particules.

Il est désormais nécessaire de résoudre le problème inverse : retrouver la population (la distribution de particules) correspondant à cette signature (l'extinction aux différentes longueurs d'onde). Les méthodes dédiées à la résolution de ce type de problème sont qualifiées de méthodes inverses. Les méthodes d'inversion classiques sont souvent basées sur l'utilisation de lois connues comme par exemple la loi log-normale pour représenter la distribution en taille des particules [46]. Ceci permet de réduire le nombre de variables

utilisées dans la procédure d'inversion ce qui diminue grandement sa complexité ainsi que les temps de calcul nécessaires. Si on reprend l'exemple de la loi log-normale, il suffit de connaître le diamètre moyen, l'écart type et la densité totale pour décrire complètement la distribution en taille des particules. Cependant cette hypothèse est restrictive, notamment si la distribution réelle est de nature multimodale.

L'intérêt principal de la méthode utilisée dans cette étude réside dans le fait qu'elle ne nécessite de faire aucune hypothèse concernant la forme de la distribution en taille des particules. C'est une méthode itérative, basée sur une approche de marche au hasard de type Monte Carlo qui s'inspire directement de celle publiée par Ligon *et al* [63]. La suite de ce paragraphe est dédiée à la description de son fonctionnement.

L'espace des tailles des particules est discrétisé. Celles-ci sont donc réparties selon M sections de même largeur δ_r centrées sur des rayons représentatifs r_i compris entre r_{min} et r_{max} . Le coefficient d'extinction spectral (équation 3.10) peut donc être réécrit de manière discrète :

$$\beta(\lambda) = N_0 \sum_{i=1}^M \bar{C}_{ext}(r_i, \lambda) f(r_i) \quad (3.16)$$

avec

$$\bar{C}_{ext}(r_i, \lambda) = \frac{1}{\delta_r} \int_{r_i - \delta_r/2}^{r_i + \delta_r/2} Q_{ext}(r, \lambda) \pi r^2 dr \quad (3.17)$$

la section efficace d'extinction moyennée sur la section i (les tailles de particules sont repérées par l'indice i). Les facteurs d'efficacité d'extinction Q_{ext} utilisés sont obtenus grâce au calcul de Mie. $f(r_i) \equiv f_i$ est la fonction de probabilité discrète en taille des particules pour le rayon r_i et N_0 est la densité totale de particules. La fonction de distribution discrète en taille des particules correspond donc à $f \times N_0$.

Le domaine spectral est lui aussi discrétisé en J longueurs d'onde λ_j (repérées par l'indice j). On obtient ainsi à partir de l'équation 3.16 un ensemble de J équations linéaires du type

$$\beta_j = N_0 \sum_{i=1}^M (\bar{C}_{ext})_{ji} f_i \quad (3.18)$$

Le principe général de la méthode est basé sur la comparaison entre le coefficient volumique spectral d'extinction issu du calcul et son homologue expérimental β_j . Ce dernier est obtenu d'après la loi de Beer-Lambert 3.14 :

$$\beta_j = \frac{-1}{L} \ln(T r_j) \quad (3.19)$$

Le fonctionnement de la méthode est basée sur le déplacement aléatoire de "marcheurs" (walkers) dont le nombre total est défini par N_{tot} . Ceux-ci sont répartis entre les différentes sections et peuvent se déplacer de l'une à l'autre. Afin de décrire cette répartition, on définit le vecteur (nw) . Ainsi le nombre de marcheurs présents dans la section i est donné par l'élément $(nw)_i$. Ces explications sont illustrées par un schéma présenté figure 3.8.

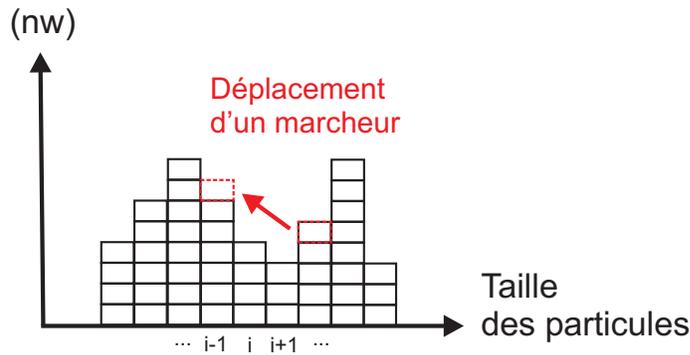


Figure 3.8 – Schéma de principe de la procédure d'inversion. Le déplacement d'un marcheur d'une section à l'autre permet de faire évoluer la distribution en taille des particules. Le nombre de marcheurs par classe est donné par le vecteur (nw)

La valeur de la fonction de probabilité pour la taille correspondant à la section i s'exprime donc comme $(nw)_i/N_{tot}$. Son expression générale est donnée par :

$$f = \frac{(nw)}{N_{tot}} \quad (3.20)$$

L'exécution de la procédure d'inversion débute par son initialisation. Différentes distributions initiales peuvent être utilisées pour répartir les N_{tot} marcheurs. L'influence de la distribution initiale des marcheurs sur le résultat final de la procédure a été testée (cf §3.5.3). Il a été observé que la procédure converge vers des résultats très similaires quelque soit la manière dont sont initialement distribués les marcheurs. En revanche, le temps nécessaire à la convergence dépend fortement de la distribution initiale. Par défaut, les N_{tot} marcheurs sont répartis de manière uniforme entre les différentes sections. Le coefficient d'extinction initial moyen par particule s'écrit donc :

$$\beta_j^0 = \frac{1}{N_{tot}} \sum_{i=1}^M (\bar{C}_{ext})_{ji} (nw)_i \quad (3.21)$$

et la densité totale de particules correspondante peut être calculée en utilisant :

$$N_0^2 = \frac{1}{J} \sum_{j=1}^J \left(\frac{\beta_j}{\beta_j^0} \right)^2 \quad (3.22)$$

L'erreur relative entre les données expérimentales et numériques peut être évaluée grâce au calcul du résidu R , donné par

$$R = \frac{1}{J} \sum_{j=1}^J \sqrt{\frac{(\beta_j - N_0 \beta_j^0)^2}{\beta_j^2}} \quad (3.23)$$

Précisons que l'utilisation de l'équation 3.23 n'est pas exclusive pour le calcul du résidu et que d'autres expressions peuvent être utilisées.

Au cours du processus d'inversion, de nombreuses itérations sont réalisées au cours desquelles un marcheur est déplacé d'une position à une autre, modifiant ainsi la fonction de probabilité en taille des particules. A chaque itération, le tirage d'un nombre aléatoire permet de déterminer la section de laquelle va être extraite le marcheur. Le tirage d'un second nombre aléatoire est ensuite effectué pour déterminer sa classe d'arrivée. A chaque déplacement ainsi réalisé, le résidu R est réévalué grâce à l'équation 3.23. Si sa nouvelle valeur est inférieure à la précédente, le déplacement est accepté. Dans le cas contraire, le déplacement est annulé et le marcheur retrouve sa position initiale. R a donc fonction de critère d'acceptation pour le déplacement d'un marcheur.

La procédure précédemment décrite est répétée tant que R n'a pas atteint une valeur seuil fixée par l'utilisateur. R a donc pour seconde fonction celle de critère de convergence. Il est également possible de fixer un nombre maximum d'itérations n_{iter} réalisables afin de s'assurer que les temps de calcul restent raisonnables.

3.4 Simulation complète du diagnostic optique : code Monte Carlo de lancer de rayons.

Afin d'estimer la validité de la méthode d'inversion décrite au paragraphe 3.3 il est nécessaire de l'appliquer sur des cas tests. Nous ne disposons malheureusement pas d'une connaissance précise des tailles et des densités des poussières observées expérimentalement. Par ailleurs, leurs propriétés optiques demeurent partiellement inconnues et en particulier leurs indices optiques. On ne peut donc pas s'appuyer directement sur l'expérience pour valider la méthode d'inversion.

Pour atteindre cet objectif, nous avons utilisé un second code numérique permettant de simuler une mesure d'extinction dans un plasma poussiéreux. Les premières versions de ce code furent développées durant la thèse de Yan Peng [44] et ont déjà fait l'objet de plusieurs communications scientifiques [64, 65]. Le lecteur pourra s'y référer pour en avoir une description détaillée. Nous nous contenterons dans ce manuscrit d'en donner les principales caractéristiques.

Ce code numérique repose sur l'utilisation d'une méthode Monte-Carlo de lancer de rayons dont le principe est illustré par la figure 3.9. Des quanta (paquets de photons) sont émis depuis des positions aléatoires de la source lumineuse. Ceux-ci se propagent ensuite au sein du volume d'étude. Il est composé d'un cylindre représentant la chambre du réacteur utilisé lors des expériences. Au cœur de celui-ci, on définit une zone (également cylindrique) représentant le nuage de particules piégées sous la cathode (dans la gaine cathodique). Seul ce volume de l'enceinte est considéré comme optiquement actif (absorption et diffusion). Ses propriétés radiatives y sont considérées comme homogènes. Elles sont calculées à l'aide de la théorie de Mie et en utilisant les relations 3.8 et 3.11 dans le cas général d'une polydispersion de particules. Lorsque les quanta pénètrent dans cette zone, ils sont susceptibles de subir des événements de diffusion et de voir une partie de leur énergie absorbée. L'occurrence d'un événement de diffusion et le cas échéant sa nouvelle direction de propagation sont déterminées à l'aide du tirage de nombres aléatoires et des propriétés

radiatives préalablement calculées.

On considère ainsi qu'un quantum est diffusé après avoir parcouru une distance l_{diff} dans le milieu actif. Posons R_n le nombre aléatoire tiré et compris entre 0 et 1, l_{diff} se calcule alors comme :

$$l_{diff} = \frac{-1}{\sigma_\lambda} \ln(R_n) \quad (3.24)$$

De même sa nouvelle direction de propagation est calculée d'après la fonction de phase cumulée moyenne de la polydispersion. L'absorption qu'aura subi le quantum se calcule d'après la distance totale qu'il a parcouru dans le milieu actif. Si E_0 est l'énergie qu'un quantum possède initialement en sortie de la source et E l'énergie de ce même quantum lorsqu'il émerge du milieu actif après y avoir parcouru une distance totale L_{abs} , on a :

$$E = E_0 \exp(-\kappa_\lambda L_{abs}) \quad (3.25)$$

Pour être détecté, un quantum doit émerger du milieu actif avec une position et une direction de propagation telles qu'il impacte la surface du détecteur tout en restant contenu dans l'angle solide d'ouverture. Il apporte alors sa contribution énergétique E à l'énergie totale détectée. Si le détecteur est de même dimension que la source et placé directement en face de celle-ci, la transmittance se calcule aisément en utilisant la relation 3.12 et s'exprime comme :

$$Tr = \frac{I}{I_0} = \frac{\Sigma E}{\Sigma E_0} \quad (3.26)$$

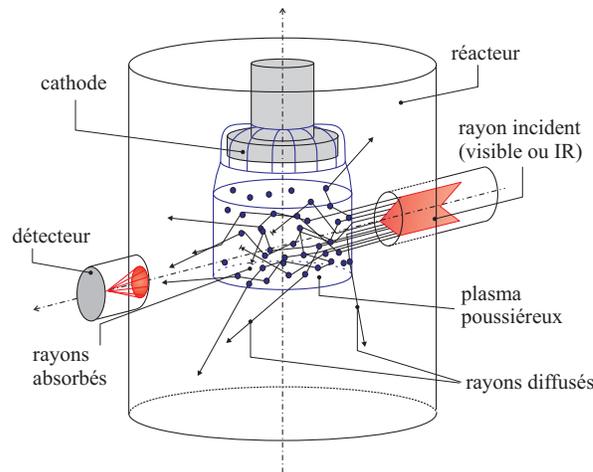


Figure 3.9 – Schéma de principe du code de Monte Carlo de lancer de rayons.

3.5 Validation de la méthode inverse

L'utilisation du code numérique décrit précédemment permet de tester la procédure d'inversion décrite à la section 3.3. Les résultats qu'il fournit sont considérés comme étant

la solution exacte et sont utilisés comme référence. La méthode d'inversion est ensuite appliquée sur les solutions de référence afin de retrouver les distributions initiales des particules.

3.5.1 Paramètres des simulations

La gamme de longueurs d'onde utilisée s'étend de 250 nm à 1 μm dans le domaine visible et proche IR, la méthode inverse doit rester sensible à des tailles de particules appartenant à cet intervalle. Nous avons donc utilisé trois distributions de particules (distributions *I*, *II* et *III*) centrées respectivement sur des tailles de 150, 300 et 800 nm de diamètre afin de balayer l'intervalle précédent. Elles suivent une distribution de Gauss et leur écart type est fixé à 20 nm. L'espace des diamètres des particules est discrétisé en $M=100$ classes de 10 nm de large réparties linéairement entre $d_{min}=10$ nm et $d_{max}=1\mu\text{m}$. Chacune des trois distributions utilisées est dotée de la même fraction volumique de particules $f_v = 3 \times 10^{-6}$. Le choix de cette valeur provient du fait qu'elle permet d'obtenir des transmittances du même ordre de grandeur que celles obtenues expérimentalement dans les situations où la densité de particules est la plus forte, ce qui constitue le cas le plus critique et donc le plus pertinent à étudier. Les distributions de particules utilisées sont présentées figure 3.10. La discrétisation spectrale est effectuée en utilisant $J = 76$ longueurs d'onde réparties entre $\lambda_{min}=250$ nm et $\lambda_{max}=1\mu\text{m}$. Les indices optiques utilisés sont ceux fournis par Zubko *et al* [56] pour le matériau ACH2.

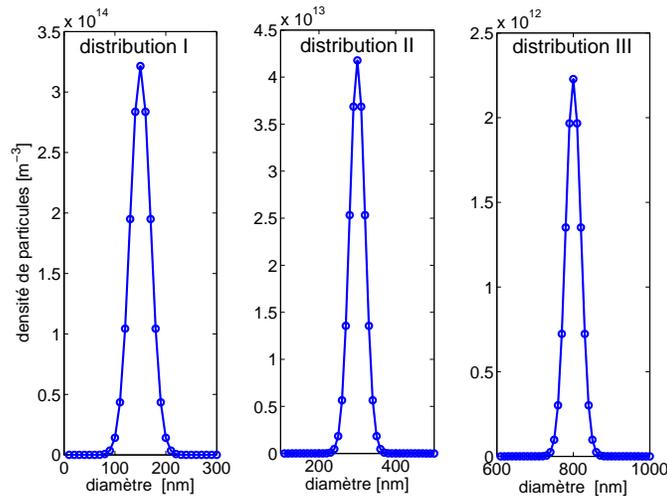


Figure 3.10 – Distributions en taille de particules utilisées pour les simulations. Distribution *I* : $\bar{d} = 150$ nm, distribution *II* : $\bar{d} = 300$ nm, distribution *III* : $\bar{d} = 800$ nm

Les paramètres géométriques définis dans le code de suivi de rayons sont les suivants : le diamètre du faisceau diagnostique est fixé à 2 mm, le rayon de l'enceinte à 25 cm et le diamètre de la zone active (nuage de particules représenté par un cylindre) à 5 cm. Cette dernière valeur correspond à la situation expérimentale où les électrodes utilisées ont un diamètre de 5 cm. On considère donc que l'extinction du faisceau lumineux est

principalement causée par les poussières piégées au sein des gaines autour des électrodes, et en particulier dans le cas cathodique. Cette hypothèse est justifiée par les observations expérimentales réalisées notamment au chapitre 4. La contribution à l'extinction des poussières situées hors des gaines et le long du trajet du faisceau est donc négligée. Le dernier paramètre restant à définir est l'angle solide de détection c'est-à-dire l'angle maximum (par rapport à la normale à la surface du détecteur) avec lequel un quantum atteignant la surface du détecteur sera collecté. Les simulations ont montré que ce paramètre n'a aucune influence sur les résultats tant qu'il n'est pas pris inférieur à 1° . Ceci s'explique simplement par le fait que la distance entre le détecteur et la zone active est grande devant la dimension de la zone active. Autrement dit, si un quantum atteint la surface du détecteur c'est nécessairement avec un angle d'incidence très faible, inférieur à l'angle solide de collection de celui-ci. Nous avons donc fixé arbitrairement l'angle solide du détecteur à 90° (on intègre sur tout l'espace avant).

L'influence du nombre de marcheurs utilisés dans la méthode inverse ainsi que du nombre d'itérations effectuées a été étudié. Cette étude préliminaire a été réalisée avec la distribution II. La figure 3.11(a) présente l'évolution du résidu R final en fonction du nombre total N_{tot} de marcheurs utilisés pour un nombre total d'itérations fixé à $n_{iter}=10^6$. La figure 3.11(b) quant à elle représente l'évolution du résidu R final en fonction du nombre total d'itérations n_{iter} réalisées pour un nombre de marcheurs fixé à $N_{tot}=10^4$.

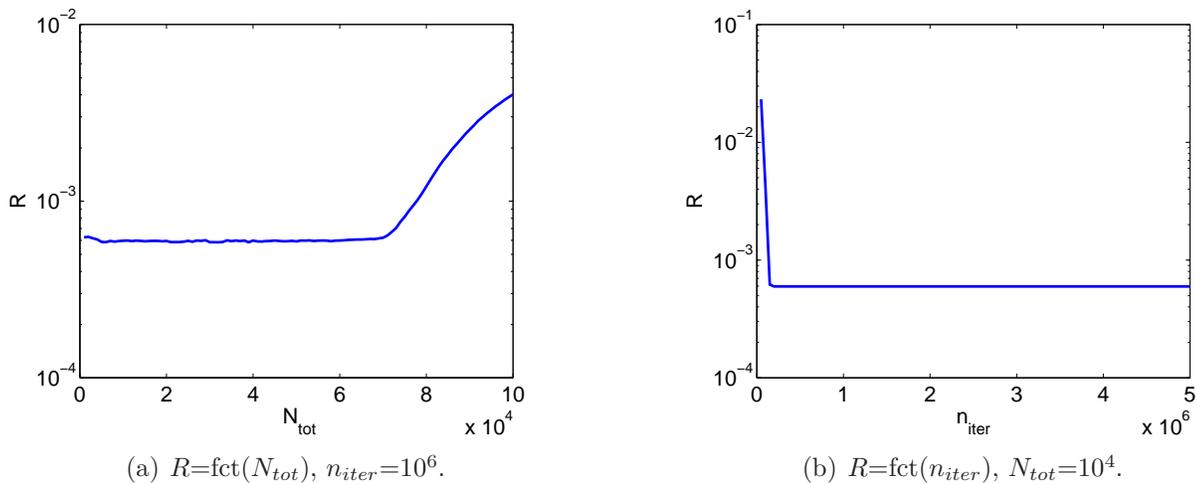


Figure 3.11 – Influence du nombre total de marcheurs N_{tot} et du nombre total d'itérations n_{iter} sur le résidu final de l'inversion.

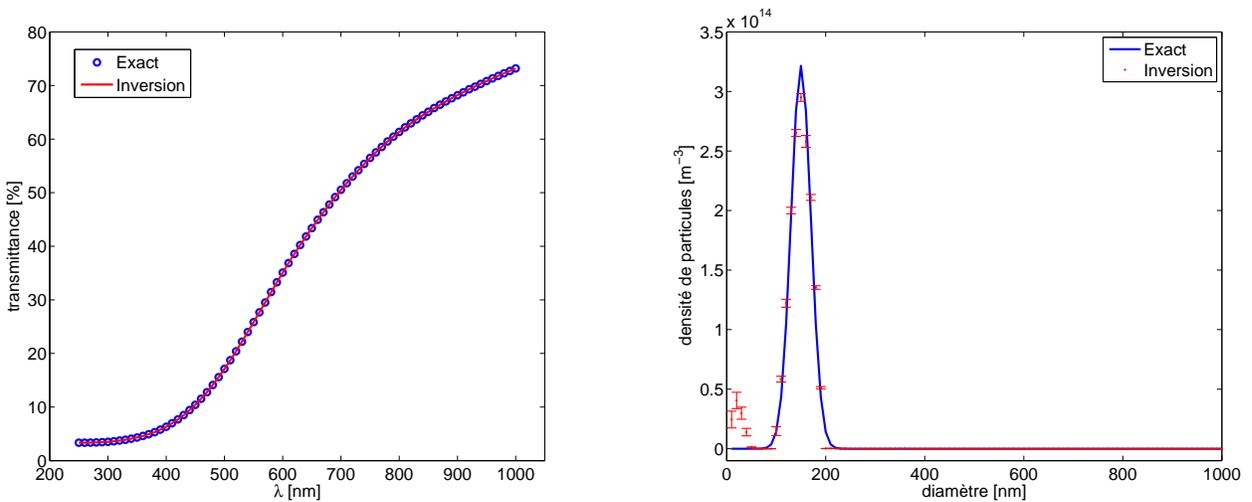
On observe sur la figure 3.11(a) que tant que le nombre total de marcheurs reste inférieur à une certaine valeur, le résidu final demeure faible et constant. En revanche si on augmente trop ce nombre, le résidu final augmente de manière importante. La figure 3.11(b) indique qu'au delà d'un certain nombre d'itérations réalisées le résidu R devient constant. La méthode a convergé et toute itération supplémentaire devient inutile. Ces observations indiquent que plus le nombre de marcheurs utilisés est grand, et plus le nombre d'itérations qui doit être réalisé pour conduire à un résultat correct est important.

Le nombre d'itérations doit être suffisamment grand pour permettre à chaque marcheur de se déplacer un nombre suffisant de fois avant de trouver une position satisfaisante dans l'espace des tailles des particules.

Le nombre total de marcheurs détermine la résolution en densité de particules. Plus il est important et plus on est capable de décrire finement une distribution en taille. Ceci est particulièrement vrai dans le cas de polydispersions où co-existent des particules de petites tailles en grand nombre et des particules plus volumineuses et généralement beaucoup moins nombreuses. Cependant l'augmentation du nombre de marcheurs est associée à une augmentation du nombre d'itérations nécessaires et donc à une augmentation du temps de calcul. Les études suivantes sont réalisées avec un nombre total $N_{tot}=10^4$ de marcheurs et un nombre maximum $n_{iter}=10^6$ d'itérations.

3.5.2 Reconstruction de la distribution en taille des particules

Les résultats des simulations obtenus en appliquant le code de suivi de rayon sur les populations de particules définies par les distributions *I*, *II* et *III* sont respectivement présentés figures 3.12, 3.13 et 3.14. Y figurent également les transmittances obtenues grâce à l'utilisation de la méthode d'inversion. On peut constater une excellente concordance entre les transmittances exactes (initiales) et les transmittances retrouvées par la méthode inverse (Beer-Lambert).



(a) Transmittance exacte obtenue par la méthode de suivi de rayon (cercles) et retrouvée par la méthode d'inversion (trait continu).

(b) Distribution de particule exacte (trait continu) et retrouvée par la méthode inverse (symboles)

Figure 3.12 – Comparaison des transmittances et des distributions de particules exactes et obtenues par la méthode d'inversion. Distribution *I*. $R=4,72 \times 10^{-4}$

Les figures 3.12(b), 3.13(b) et 3.14(b) présentent la comparaison entre les distributions de particules initiales et retrouvées par la méthode inverse. Pour chaque cas, 10 inversions ont été réalisées en prenant soin de changer le germe de la séquence de nombres

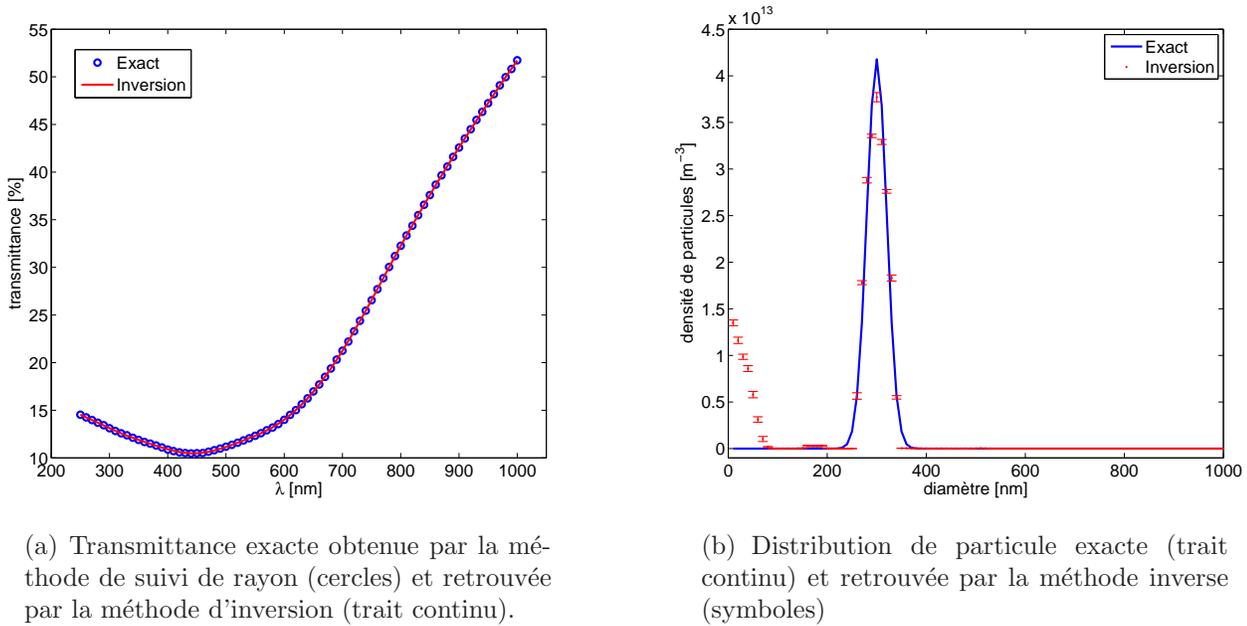


Figure 3.13 – Comparaison des transmittances et des distributions de particules exactes et obtenues par la méthode d'inversion. Distribution II. $R=5,9 \times 10^{-4}$

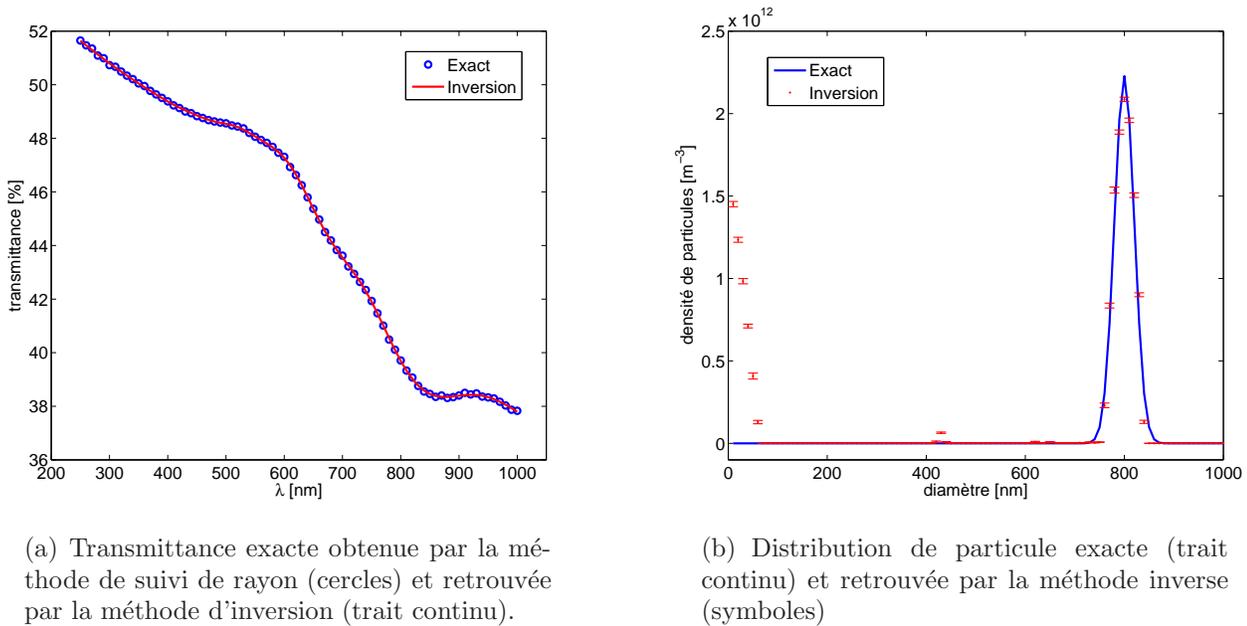


Figure 3.14 – Comparaison des transmittances et des distributions de particules exactes et obtenues par la méthode d'inversion. Distribution III. $R=6,48 \times 10^{-4}$

aléatoires utilisés pour chacune d'entre elles. Les distributions présentées correspondent à une moyenne entre ces 10 distributions. La dispersion (écart-type) des densités trouvées

autour des valeurs moyennes est indiquée par les barres d'erreur.

Comme on peut le constater, les distributions en taille retrouvées par la méthode inverse sont en bon accord avec les distributions exactes. Ainsi pour les distributions *I*, *II* et *III* respectivement, 99,79%, 99,72% et 99,49% du volume total de particules est correctement réparti. Les fractions volumiques totales obtenues valent quant à elles $2,99 \times 10^{-6}$, pour les distributions *I* et *II* et $2,98 \times 10^{-6}$ pour la distribution *III* ce qui est très proche de la fraction volumique exacte (3×10^{-6}). La méthode inverse permet donc d'identifier avec précision les distributions en taille de particules responsables de l'extinction du faisceau lumineux.

On observe cependant de manière systématique l'apparition d'une population de particules aux petits diamètres, généralement inférieurs à 100 nm. On peut vérifier facilement que la présence de ces particules a un effet très limité sur les transmittances calculées. Leur présence s'apparente ainsi à un artefact de la méthode d'inversion, très probablement lié au manque de sensibilité de la méthode vis-à-vis des très petites tailles de particules. Celles-ci sont en effet en régime de diffusion Rayleigh, où les effets liés à l'absorption sont dominants par rapport à ceux liés à la diffusion. Ces effets sur l'atténuation du rayonnement sont essentiellement relatifs à la masse totale des particules considérées. Ces petites particules ne représentant qu'une très faible fraction de la masse totale de particules, cela explique que leur impact soit négligeable. Celles-ci doivent être considérées comme une limite de la méthode. Pour pallier cet effet indésirable déjà évoqué dans [63], il serait nécessaire d'utiliser des données d'extinction à des longueurs d'onde inférieures à 250 nm. Il est cependant difficile de travailler à ces courtes longueurs d'onde. Ceci s'explique en grande partie par les difficultés expérimentales induites par l'utilisation de rayonnement dans le domaine UV (source lumineuse, fenêtres, spectromètre...).

Comme nous l'avons expliqué au paragraphe 3.2.3, l'utilisation d'une méthode inverse basée sur une loi de type Beer-Lambert nécessite de faire certaines hypothèses. En particulier, il est nécessaire que le nombre de photons détectés lors de la mesure d'extinction, et ayant subi au cours de leur parcours un ou plusieurs événements de diffusion, soit le plus petit possible (nul dans le cas idéal). Ainsi seuls les photons ayant traversé le milieu en ligne droite atteignent le détecteur. Dans le cas contraire, on parle de renforcement par diffusion. La figure 3.15 représente pour chaque longueur d'onde la fraction de quanta détectés et ayant diffusés. Il apparaît ainsi que moins de 0.01% des quanta détectés ont subi un ou plusieurs événements de diffusion. L'utilisation d'une loi de type Beer-Lambert est donc parfaitement justifiée. Pour s'en assurer et vérifier que le renforcement par diffusion vers l'avant ou par diffusion multiple est négligeable, la transmittance a été calculée à partir de la distribution exacte *II* de trois manières différentes. La première utilise une loi de type Beer-Lambert, la seconde est basée sur l'utilisation du code de suivi de rayon et la dernière utilise cette même méthode mais sans prendre en compte les quanta diffusés. Les résultats correspondants sont présentés figure 3.16. Les transmittances calculées par les deux méthodes sont en excellent accord, les quanta diffusés vers l'avant (et donc détectés) ne contribuent que de manière marginale à l'intensité totale détectée.

Dans le cas où le renforcement par diffusion vers l'avant deviendrait plus significatif, il serait nécessaire de corriger cet effet en modifiant les coefficients spectraux d'extinction

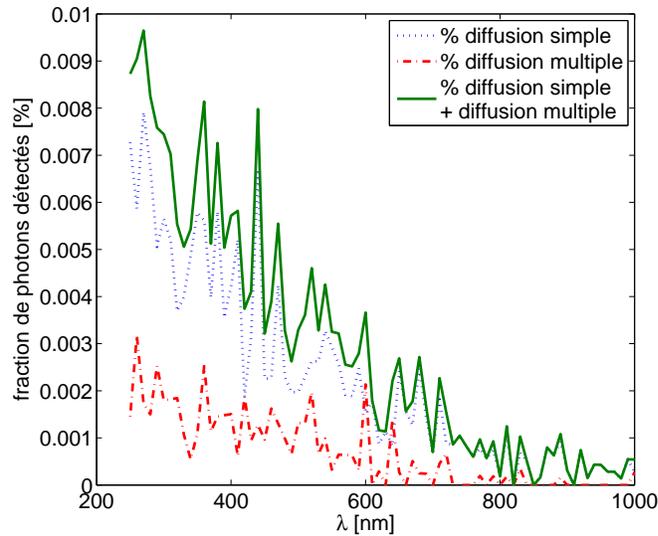


Figure 3.15 – Informations statistiques sur les évènements de diffusion subis par les quanta détectés lors de la simulation de suivi de rayon effectuée pour la distribution II.

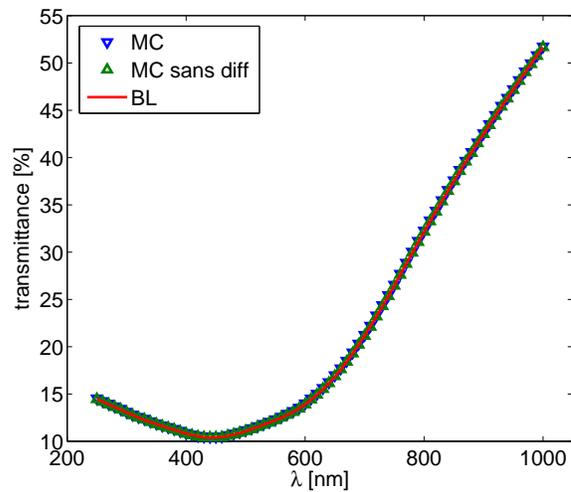


Figure 3.16 – Transmittance calculée pour la distribution II : loi de Beer-Lambert (trait continu), suivi de rayon avec et sans considérer les photons diffusés (triangles).

comme cela est expliqué dans [63]. Deepak et Box détaillent dans [66] et [67] comment calculer ces corrections. Celles-ci sont fortement dépendantes de la configuration expérimentale utilisée et en particulier de la surface du détecteur, de son cône d'ouverture, de son angle solide d'acceptance ainsi que de la distance le séparant du milieu diffusant. Étant donné que dans notre dispositif expérimental le détecteur présente une petite surface et qu'il est placé à plus de 25 cm du milieu diffusant, les photons diffusés vers l'avant ont une probabilité très faible d'être collectés. Par ailleurs, les diamètres des particules

étant relativement faibles comparés aux longueurs d'ondes considérées, la diffusion n'est pas très orientée vers l'avant.

3.5.3 Influence de la distribution initiale des marcheurs

Les résultats obtenus par des procédures itératives telles que celle décrite ici peuvent présenter une dépendance vis-à-vis des conditions initiales. Pour explorer cet effet, la procédure d'inversion a été appliquée au cas de la distribution *II* pour différentes répartitions initiales des marcheurs. Trois distributions initiales des marcheurs différentes ont été considérées :

- les N_{tot} marcheurs sont distribués de manière uniforme entre les différentes classes,
- les N_{tot} marcheurs sont placés dans la dernière classe (particules de diamètre 1 micron),
- les N_{tot} marcheurs sont répartis sur toute la gamme de tailles de particules suivant une loi gaussienne.

Les résultats obtenus sont présentés figure 3.17.

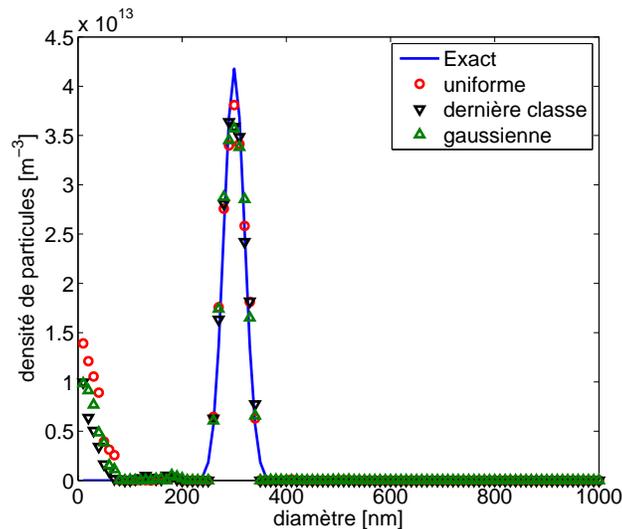


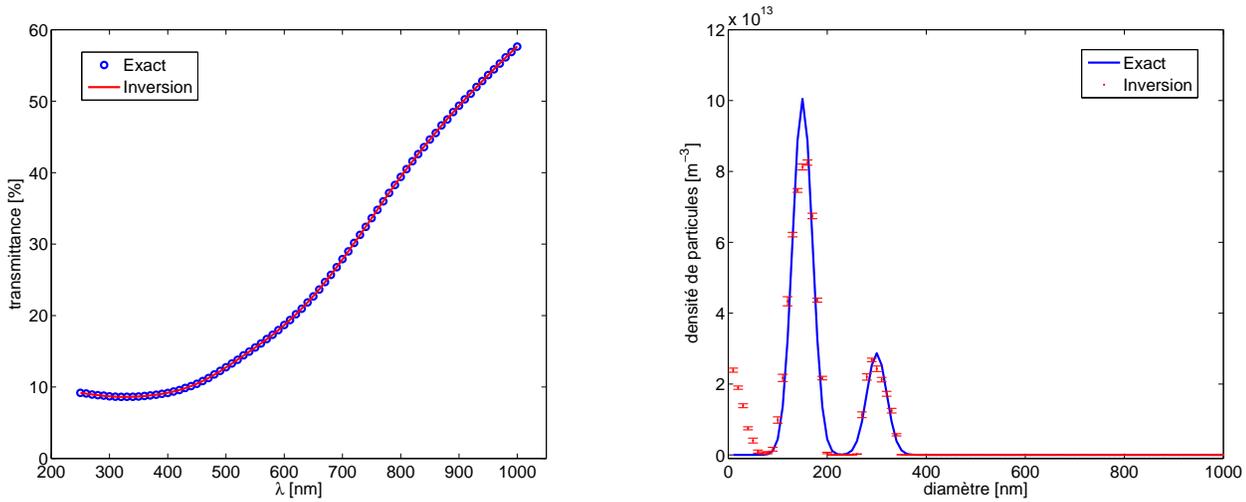
Figure 3.17 – Influence de la distribution initiale des marcheurs.

Comme on peut le constater, la distribution initiale des marcheurs n'a que peu d'influence sur le résultat final de la procédure d'inversion. Celle-ci converge vers la distribution *II*. On note également la persistance des particules apparaissant aux petits diamètres. Ces résultats illustrent la robustesse de la méthode. Celle-ci converge vers une solution unique, indépendamment des conditions initiales.

3.5.4 Autres distributions de particules

Les situations précédentes considèrent des distributions simples, de nature gaussienne. Afin de vérifier si la méthode inverse était toujours apte à fournir des résultats corrects

pour des allures de distributions plus complexes, elle a été appliquée à une distribution à deux modes. Celle-ci présente à nouveau une fraction volumique totale de 3×10^{-6} mais elle est désormais répartie entre les distributions *I* et *II* à raison de 30% et 70% respectivement. La transmittance calculée par la méthode de suivi de rayon et celle obtenue par la méthode d'inversion sont présentées figure 3.18(a). Les distributions, initiale et retrouvée par inversion, sont présentées figure 3.18(b).



(a) Transmittance exacte obtenue par la méthode de suivi de rayon (cercles) et retrouvée par la méthode d'inversion (trait continu).

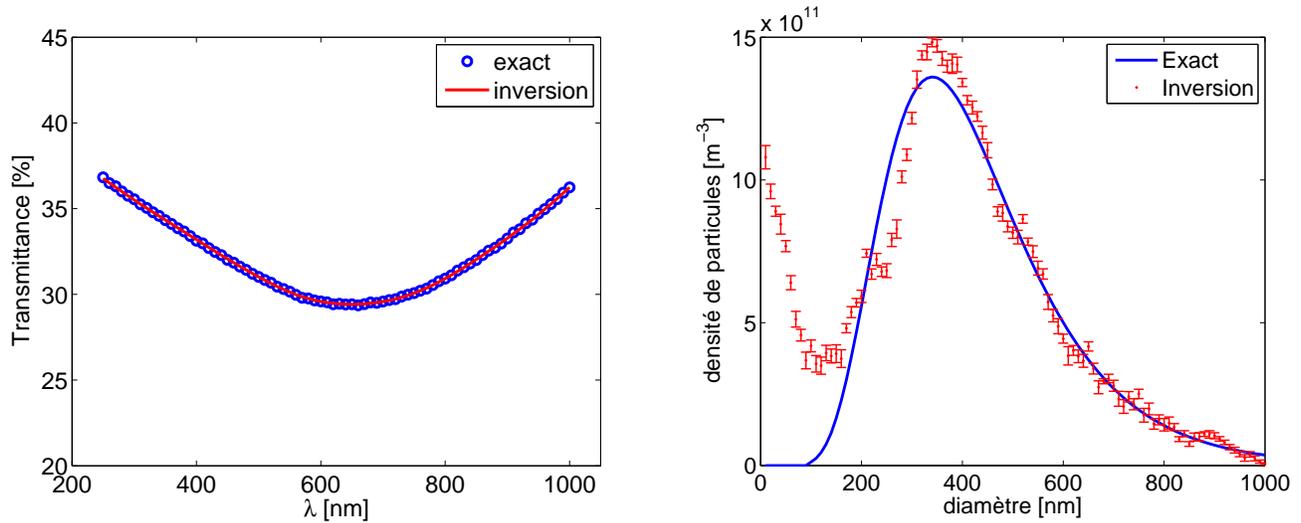
(b) Distribution de particule exacte (trait continu) et retrouvée par la méthode inverse (symboles). $R=6,09 \times 10^{-4}$

Figure 3.18 – Application de la méthode inverse au cas d'une population de particules à deux modes.

Dans ce dernier cas, la fraction volumique totale obtenue grâce à la méthode inverse est de $2,99 \times 10^{-6}$. Elle est donc à nouveau très proche de la valeur exacte. Par ailleurs, 99,72% de ce volume est correctement réparti.

La méthode inverse a également été testée sur une distribution log-normale qui s'étend sur une large plage de tailles de particules. La fraction volumique totale est à nouveau de 3×10^{-6} . Les résultats obtenus pour cette distribution de particules sont représentés figure 3.19.

Ici encore, les résultats obtenus sont satisfaisants, la distribution en taille de particules retrouvée est proche de la distribution originale et la fraction volumique totale obtenue est de $2,996 \times 10^{-6}$. On observe à nouveau l'apparition de particules à des diamètres inférieurs à 100 nm. Celles-ci ne représentent cependant qu'environ 0,2% de la fraction volumique totale.



(a) Transmittance exacte obtenue par la méthode de suivi de rayon (cercles) et retrouvée par la méthode d'inversion (trait continu).

(b) Distribution de particule exacte (trait continu) et retrouvée par la méthode inverse (symboles). $R=6,5199 \times 10^{-4}$

Figure 3.19 – Application de la méthode inverse au cas d'une population de particules de type log-normale.

3.5.5 Inversion en présence d'un bruit de mesure

Jusqu'à présent, les données d'extinction qui ont été traitées étaient toutes issues d'un calcul numérique préalable exact, et donc non bruitées. Cette situation n'est cependant pas représentative d'une situation expérimentale réelle pour laquelle des bruits de mesures peuvent perturber les données obtenues. L'objectif de cette section est d'étudier l'impact du bruit de mesure sur les résultats fournis par la méthode inverse.

Pour se faire, l'extinction du faisceau lumineux a été calculée à l'aide du code de lancer de rayon pour une distribution de Gauss analogue à la distribution *II* mais avec une fraction volumique totale de 1.5×10^{-6} .

Un bruit blanc est ensuite directement appliqué aux transmittances exactes Tr en % afin d'obtenir les transmittances bruitées Tr_{bruit} . Cette opération est traduite par l'équation 3.27 :

$$Tr_{bruit} = Tr + \sigma \times N \quad (3.27)$$

avec N un nombre choisi aléatoirement selon une loi normale et σ l'amplitude du bruit.

Des tests ont été effectués pour deux valeurs de σ , 2 et 5. Les résultats obtenus sont présentés figure 3.20.

Malgré la présence du bruit blanc, les distributions en taille de particules obtenues restent centrées sur des tailles proches de la valeur exacte. Pour les comparer, nous utilisons le diamètre de Sauter défini par l'équation 3.28 :

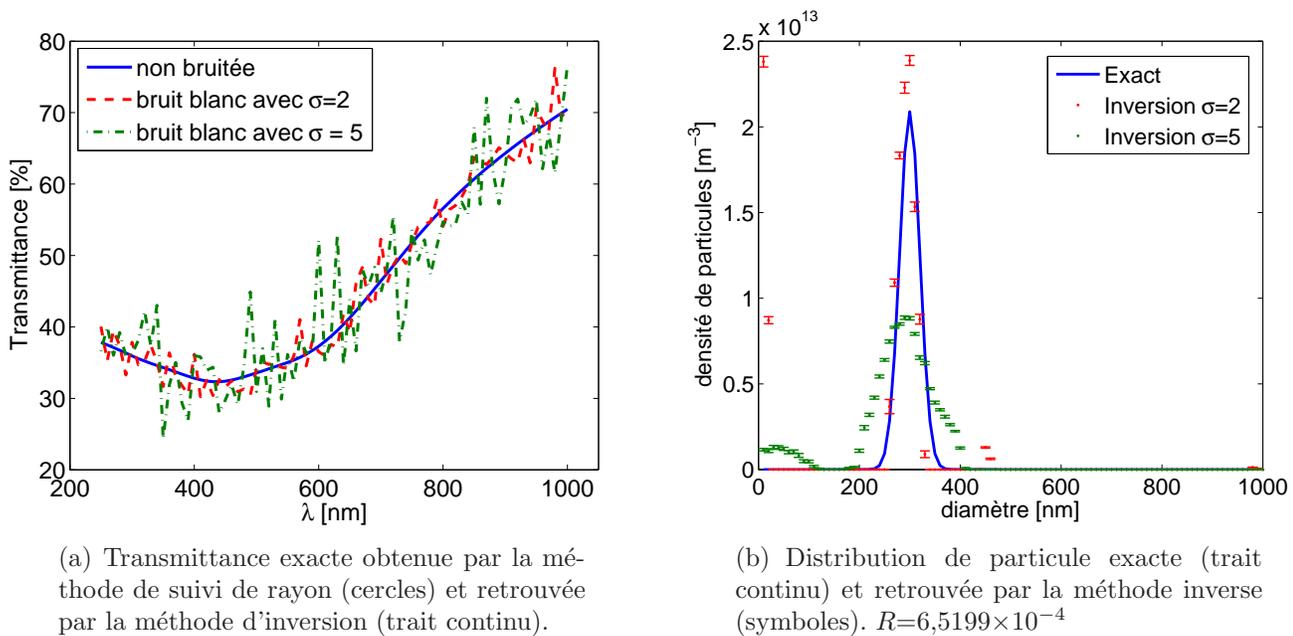


Figure 3.20 – Application de la méthode inverse sur des données d'extinction bruitées.

$$d_{Sauter} = \frac{\sum_i N_i d_i^3}{\sum_i N_i d_i^2} \quad (3.28)$$

Celui-ci sera largement utilisé dans la suite de cette étude. Le diamètre de Sauter de la distribution initiale est de 303 nm (différent de 300 nm en raison de la discrétisation en taille). Pour les distributions obtenues par le biais de la méthode inverse, les diamètres de Sauter valent respectivement 313 nm et 308 nm pour $\sigma=2$ et $\sigma=5$. On observe en revanche un élargissement des distributions obtenues en présence de bruit. Ainsi pour $\sigma=2$, la fraction volumique totale retrouvée est de 1.56×10^{-6} mais seule une fraction volumique de 1.39×10^{-6} est répartie dans l'intervalle [230 nm ; 370 nm]. Cette tendance s'accroît pour $\sigma=5$. La fraction volumique totale est de 1.54×10^{-6} avec une fraction volumique comprise dans l'intervalle [230 nm ; 370 nm] égale à 1.3×10^{-6} .

3.6 Application à l'expérience

3.6.1 Comparaison avec des clichés MEB

Afin de tester la cohérence des résultats fournis par la méthode inverse, celle-ci a été appliquée à des mesures d'extinction expérimentales. Les résultats présentés dans ce paragraphe sont issus d'une expérience réalisée à 60 mTorr dans un mélange argon/ C_2H_2 . La vanne de laminage située entre l'enceinte et la pompe est en position fermée. Le plasma est allumé en argon pur, puis l'acétylène est injecté pendant une minute avec un débit de

1 sccm. La puissance RF est fixée à $P_{RF}=10$ W.

Un substrat de silicium est placé sur la surface de l'anode. Les poussières s'y déposent pendant l'expérience et lors de l'arrêt du plasma, réalisé 10 minutes après l'injection de l'acétylène. L'échantillon obtenu est ensuite analysé au MEB. La figure 3.21 présente un exemple de photographie MEB de poussières produites. Les tailles des particules sont mesurées à l'aide de ces photographies. Plusieurs clichés MEB sont ainsi réalisés afin que l'ensemble des mesures effectuées soit statistiquement représentatif de la population réelle de particules.

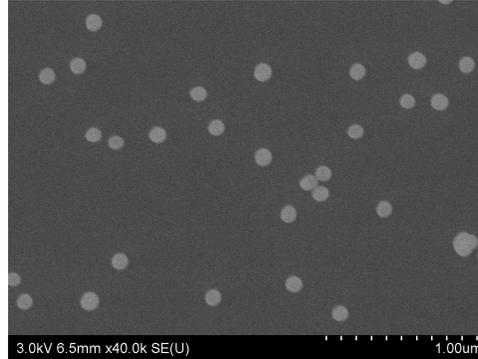


Figure 3.21 – Photographie MEB des poussières produites.

Des mesures d'extinction ont également été réalisées pendant toute la durée de l'expérience. Pour la procédure d'inversion, $J=61$ longueurs d'onde réparties entre 300 et 900 nm ont été considérées. L'espace des diamètres des particules est discrétisé en $M=100$ classes de 10 nm de large réparties linéairement entre $d_{min}=10$ nm et $d_{max}=1\mu\text{m}$. Le nombre total de marcheurs est fixé à $N_{tot}=10^4$ et le nombre maximum d'itérations à $n_{iter}=15\times 10^5$. Chaque procédure d'inversion est répétée 5 fois et on considère le résultat moyen. Le jeu d'indices optiques utilisé correspondant au jeu n°3 du tableau 3.1.

La figure 3.22(a) présente une comparaison entre la transmittance expérimentale et la transmittance retrouvée par la méthode inverse. Ces données sont issues d'une mesure d'extinction réalisée au temps $t=60$ s après l'injection de l'acétylène. La distribution en taille normalisée correspondante, obtenue grâce à la méthode inverse, est présentée figure 3.22(b). La distribution en taille normalisée obtenue par le biais des photographies MEB est également représentée pour permettre la comparaison.

La distribution obtenue à l'aide de la méthode inverse est constituée d'une population de particules dont le diamètre moyen est d'environ 120 nm. Cette population reste présente sur les résultats obtenus durant toute la durée de l'expérience.

La distribution obtenue à l'aide des clichés MEB, est constituée de deux populations : une population majoritaire centrée sur $d_1=100$ nm et une population minoritaire centrée sur $d_2=150$ nm.

Les populations déterminées à l'aide des deux méthodes précédentes sont donc composées de particules de tailles semblables. Cependant, on peut noter que la véritable distribution

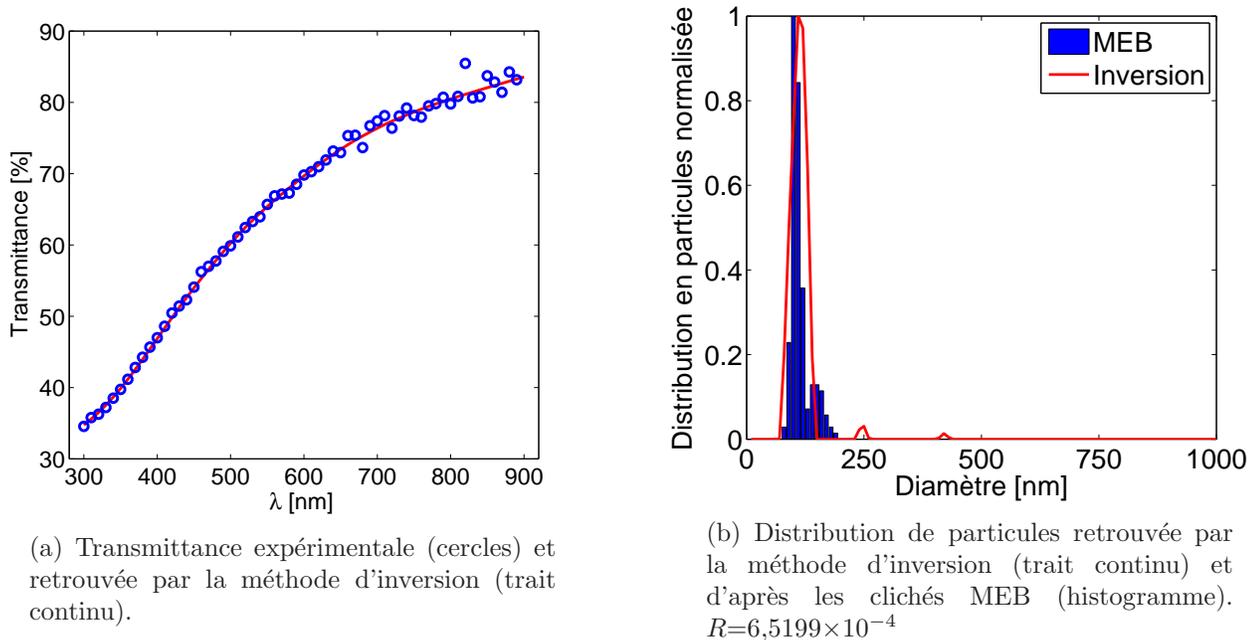


Figure 3.22 – Application de la méthode inverse sur des données expérimentales.

en taille déterminée à l'aide des photographies MEB, fait intervenir deux populations proches l'une de l'autre. Ce détail n'est pas observé sur les populations obtenues à l'aide de la méthode inverse qui semble donc limitée en résolution.

3.6.2 Influence du jeu d'indice optique utilisé

Comme cela a été expliqué précédemment, nous ne disposons pas d'une connaissance précise des indices optiques des poussières. Pour cette raison, nous sommes amenés à utiliser des indices optiques issus de la littérature. Ceci peut constituer un obstacle important dans la mesure où les propriétés radiatives des poussières sont fortement dépendantes des indices optiques utilisés pour leur calcul. L'influence du jeu d'indices optiques utilisé sur les résultats fournis par la méthode inverse doit donc être estimée.

Pour se faire, la procédure d'inversion a été appliquée à des données expérimentales en utilisant les propriétés radiatives calculées à l'aide de 4 jeux d'indices optiques différents. Ceux-ci correspondent aux 4 premières références présentées dans le tableau 3.1. L'expérience choisie pour cette étude comparative a été réalisée dans les conditions expérimentales suivantes : $P=200$ mTorr, $P_{RF}=25$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm. Le temps $t=0$ s correspond à l'instant auquel l'acétylène est injecté. Des mesures d'extinction sont réalisées chaque seconde durant l'expérience. Les paramètres utilisés pour la méthode inverse sont identiques à ceux donnés au paragraphe 3.6.1.

La figure 3.23 présente les résultats fournis par la méthode inverse pour les différents jeux d'indices optiques utilisés.

Comme on peut le constater, les résultats obtenus diffèrent nettement selon le jeu

jeu d'indice	D_{Sauter} [nm]	N_{tot} [$\times 10^{14}$ m $^{-3}$]	f_v [$\times 10^{-6}$]
1	219	4,7	1,82
2	184	7,5	1,52
3	289	3,9	2,47
4	382	1,9	2,85

Tableau 3.2 – Influence du jeu d'indices optiques utilisé sur le diamètre de Sauter D_{Sauter} , la densité totale N_{tot} et la fraction volumique f_v à $t=74$ s.

d'indices optiques utilisé. Afin d'illustrer ces différences, le tableau 3.2 reprend les résultats obtenus à $t=74$ s pour le diamètre de Sauter D_{Sauter} , la densité totale en particule N_{tot} et la fraction volumique f_v . On remarque ainsi par exemple que D_{Sauter} et f_v sont environ 2 fois supérieurs pour le jeu d'indice n°4 comparé au n°2. L'ordre dans lequel s'ordonnent les résultats obtenus correspond à celui des indices optiques n et k moyens utilisés (cf figure 3.4). Plus le matériau composant les particules est absorbant et diffusant, et plus la densité et la fraction volumique en particules sont faibles.

On observe cependant que malgré ces différences, les tendances temporelles observées sont similaires quelque soit le jeu d'indices optiques utilisé : les phases d'augmentation ou de diminution de taille ou de densité des particules sont systématiquement retrouvées.

3.7 Conclusion

Une méthode inverse permettant d'identifier les populations de particules à partir de mesures d'extinction lumineuse a été présentée dans ce chapitre. Elle a été validée grâce à l'utilisation d'un code de suivi de rayon permettant de simuler le diagnostic d'extinction. La méthode inverse permet de retrouver avec une bonne précision les distributions en taille de particules responsables de l'extinction du faisceau lumineux utilisé comme diagnostic.

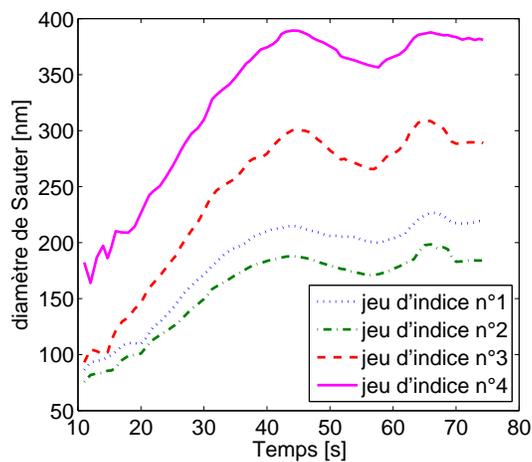
En raison de la configuration expérimentale utilisée, les renforcements par diffusion vers l'avant et par diffusion multiple peuvent être ignorés.

L'apparition de particules de petites tailles, généralement inférieures à 100 nm, est fréquemment observée dans les distributions en taille de particules retrouvées par la méthode inverse. Ces particules sont un artefact de la méthode et doivent par conséquent être ignorées lors de l'exploitation des résultats.

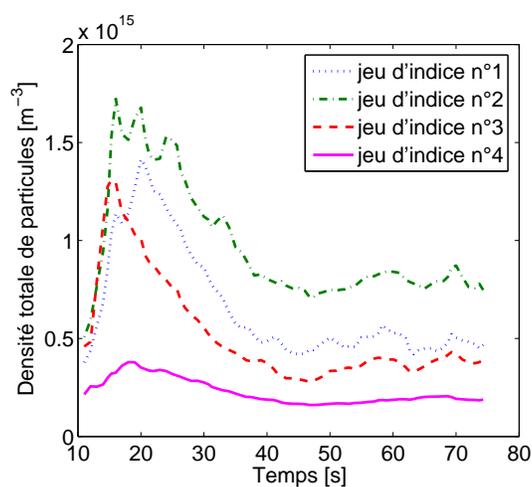
Lorsque les données d'extinction sont bruitées, la distribution en taille de particules obtenue grâce à la méthode inverse s'élargit par rapport à la distribution réelle. Cependant, son diamètre moyen demeure correct.

La méthode inverse a également été appliquée à des données expérimentales. Cela a permis de tester l'influence du jeu d'indices optiques utilisés pour le calcul des propriétés radiatives des particules. Les résultats fournis par la méthode inverse dépendent fortement du jeu d'indices optiques utilisé. Malgré cela, les tendances observées lors de l'évolution de la population de particules sont similaires. Le jeu d'indice optique n°3 (tableau 3.1) semble fournir des tailles de particules proches de celles mesurées expérimentalement grâce au

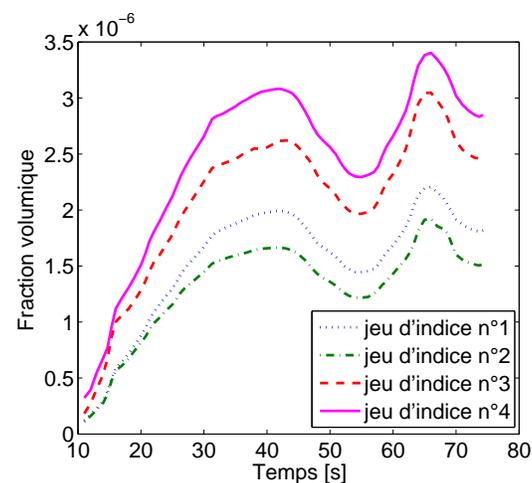
MEB. Ce jeu d'indice optique sera utilisé pour les applications ultérieures présentées dans la suite de cette étude.



(a) Diamètre de Sauter.



(b) Densité totale de particules.



(c) Fraction volumique en particules.

Figure 3.23 – Influence du jeu d'indices optiques utilisé sur les résultats fournis par la méthode inverse.

Chapitre 4

Développement d'une méthode d'extraction des poussières par l'action de la force de thermophorèse

4.1 Introduction

Ce chapitre est dédié à une technique d'extraction des poussières hors de la décharge, basée sur l'utilisation de la force de thermophorèse.

La présence de gradients de température au sein de la phase gazeuse est avérée dans la plupart des plasmas de décharge. Il en résulte que la force de thermophorèse associée à ces gradients de température existe de manière quasi-systématique dès lors que des poussières sont présentes dans le plasma. Dans la plupart des cas, cette force est cependant négligeable en raison des faibles gradients de température rencontrés. Les forces liées aux champs électriques ou aux flux ioniques sont en général dominantes.

Des gradients de température du gaz peuvent également être imposés pour les besoins de l'expérience. Ceux-ci peuvent être créés en chauffant ou en refroidissant des éléments situés à l'intérieur de la chambre. Ainsi, en adaptant les conditions expérimentales et la valeur du gradient de température, la force de thermophorèse peut devenir importante et contribuer de manière significative au bilan des forces agissant sur une particule. Jellum *et al* [14] ont été les premiers à étudier les effets de la force de thermophorèse sur les poussières. Ils ont montré que cette dernière pouvait être utilisée afin de contrôler la répartition des poudres au sein de la décharge. De multiples applications potentielles en découlent.

- Rothermel *et al.* [68] ont utilisé la force de thermophorèse pour compenser la gravité, ce qui offre la possibilité de mener de nouvelles expériences. A titre d'exemple, Schwabe *et al.* [69] ont ainsi contrôlé la position verticale du nuage de poussières grâce à l'application d'un gradient de température. Le nuage de poussières a été amené jusqu'au sein de la gaine autour de l'électrode supérieure dans le but d'étu-

dier les ondes acoustiques de poussières apparaissant dans un tel environnement (cf chapitre 5).

- La force de thermophorèse peut être utilisée afin de limiter la pollution par les poudres de certaines zones de la décharge, en les collectant [14, 70] ou en les confinant dans des zones particulières [71].
- Dans le cas d'une population polydisperse, la force de thermophorèse peut servir à séparer les poussières selon leurs tailles [72, 71, 73].
- Il est également possible de contrôler la forme du nuage de poussière [72, 71, 73]. Cela offre la possibilité de former des structures de poussières organisées et d'en étudier la stabilité.
- ...

Les nombreuses possibilités offertes par l'utilisation de gradients de température contrôlés ont motivé le développement d'une technique permettant l'extraction des poussières de la décharge. Cette méthode doit à terme répondre à trois objectifs principaux.

- En premier lieu, elle a pour but de limiter la pollution des parois du réacteur par les poussières produites. Cela nécessite d'étudier l'influence des conditions expérimentales sur la collection des poudres. Une telle méthode trouve des applications pratiques immédiates, notamment dans le domaine de l'industrie micro-électronique afin d'empêcher la contamination des wafers. Elle est aussi d'un intérêt certain dans le cadre des machines à fusion de type tokamak. Il a été observé que les zones froides de ces réacteurs constituaient des lieux privilégiés pour l'accumulation des poussières. Il est donc important d'étudier les conditions de piégeage des poussières afin de pouvoir l'influencer et le favoriser dans les zones où la présence de poussières est la moins néfaste.
- Cette technique d'extraction peut également être utilisée comme un diagnostic. Certaines poussières étant piégées dans des zones spécifiques de la décharge, cela complique grandement leur collection et donc leur analyse ex-situ. Cette limitation doit être contournée par cette méthode.
- Enfin, la technique développée offre la possibilité de réaliser des dépôts de particules sur une surface. L'utilisation de la force de thermophorèse offre un meilleur contrôle du processus de dépôt. En particulier, la taille des particules déposées doit pouvoir être contrôlée.

Ce chapitre présente les premiers résultats obtenus lors de la mise au point de cette technique. Afin de pouvoir appréhender les mécanismes mis en jeu lors de l'extraction des poussières, il est au préalable nécessaire de comprendre la formation et le piégeage des poussières au sein de la décharge.

La première partie de ce chapitre est donc dédiée à la description des forces auxquelles sont soumises les poussières au sein du plasma.

Ceci permet d'expliquer, dans la seconde partie de ce chapitre, comment sont formées et piégées les poudres au sein de la décharge.

Le dispositif utilisé pour l'extraction des poussières est décrit dans une troisième partie. Enfin, les résultats obtenus et les interprétations associées sont présentés.

4.2 Formation et piégeage des poussières au sein de la décharge

4.2.1 Forces agissant sur une poussière

- **Force de gravité** : \vec{F}_g

Si l'on considère une particule sphérique de rayon r_d et de masse volumique ρ , celle-ci s'écrit :

$$\vec{F}_g = \frac{4}{3}\pi\rho r_d^3 \vec{g} \quad (4.1)$$

avec \vec{g} le vecteur représentant l'accélération gravitationnelle terrestre. La force de gravité est donc proportionnelle à r_d^3 .

- **Force électrique** : \vec{F}_E

Une poussière immergée dans un plasma acquiert une charge électrostatique Q_d due à la collection de particules plasma (cf chapitre 2). En conséquence, celle-ci est sensible à la présence d'un champ électrique \vec{E} . Elle subit en conséquence une force électrique \vec{F}_E donnée par :

$$\vec{F}_E = Q_d \vec{E} \quad (4.2)$$

En considérant (cf annexe A) que $Q_d = 4\pi\epsilon_0 r_d (V_f - V_p)$, on obtient que la force électrique s'exerçant sur la particule considérée est proportionnelle à r_d .

- **Force de frottement des ions** : \vec{F}_i

Les poussières sont également soumises à une force de frottements due aux ions du plasma. Celle-ci peut prendre des proportions significatives lorsque la particule est immergée dans une zone présentant un flux ionique important (dans une gaine par exemple). Elle se compose de deux contributions [74] :

– la force liée à la collection des ions, dont l'expression est la suivante :

$$F_i^{coll} = \pi r_d^2 n_i m_i V_i^2 v_i \left(1 - \frac{2e\Phi_d}{m_i v_i^2} \right) \quad (4.3)$$

avec

- n_i et m_i la densité et la masse des ions
- v_i la vitesse dirigée des ions (dans un champ électrique par exemple)
- $V_i = \sqrt{(v_i^2 + v_{i,th}^2)} = \sqrt{v_i^2 + \frac{8k_B T_i}{m_i \pi}}$ la "vitesse totale" des ions
- $\Phi_d = V_f - V_p$ est le potentiel de la surface de la poussière relativement au potentiel plasma

– la force liée aux collisions coulombiennes dont l'expression est donnée par :

$$F_i^{coul} = 2\pi b_0^2 n_i m_i V_i^2 v_i \ln \left(\frac{b_0^2 + \lambda_{De}^2}{b_0^2 + b_c^2} \right) \quad (4.4)$$

avec

- b_0 le paramètre d'impact telle que la déflexion de l'ion se fasse à un angle de 90° par rapport à la direction d'incidence
- λ_{De} la longueur de Debye électronique
- b_c le paramètre d'impact limite tel qu'en dessous de sa valeur, l'ion est collecté

La force de frottement ionique $F_i = F_i^{coll} + F_i^{coul}$ peut être considérée comme proportionnelle à r_d^2 .

• **Force de frottement des neutres : \vec{F}_n**

Lorsque les atomes (molécules) de gaz neutres et les poussières présentent une vitesse d'entraînement relative, ces dernières subissent une force de frottement également appelée force résistive des neutres [74]. De telles situations peuvent être rencontrées lorsque les poussières sont animées d'un mouvement directif sous l'action d'autres forces ou lorsque un écoulement de gaz est présent au sein du réacteur (injection des gaz, pompage).

On distingue deux régimes différents selon la valeur du paramètre s donné par l'expression suivante :

$$s = \frac{|\vec{v}_d - \vec{v}_n|}{\sqrt{2} V_n} \quad (4.5)$$

avec

- \vec{v}_d la vitesse dirigée de la poussière
- \vec{v}_n la vitesse dirigée des neutres (flux de gaz par exemple)
- $V_n = \sqrt{(v_n^2 + v_{n,th}^2)} = \sqrt{v_n^2 + \frac{8k_B T_n}{m_n \pi}}$ la "vitesse totale" des neutres

La condition $s \ll 1$ est généralement satisfaite dès lors que le gaz est à température ambiante et que les flux de gaz liés à l'écoulement ne sont pas trop importants. En effet, la vitesse thermique des neutres a une valeur $v_{th,n} \simeq 400 \text{ m.s}^{-1}$ si l'on considère une température de $T=300 \text{ K}$, ce qui représente une valeur considérable.

Dans ce cas, l'expression de la force de frottement des neutres est :

$$\vec{F}_n = -\frac{8}{3} \sqrt{2\pi} r_d^2 m_n n_n V_n \left(1 + \alpha_{ac} \frac{\pi}{8}\right) (\vec{v}_d - \vec{v}_n) \quad (4.6)$$

avec

- m_n la masse des neutres
- n_n la densité de neutres
- α_{ac} un coefficient compris entre 0 et 1. $\alpha_{ac}=0$ correspond à une réflexion spéculaire des atomes de gaz sur la surface de la poussière tandis que $\alpha_{ac}=1$ correspond à une réflexion diffuse parfaite.

• **Force de thermophorèse : \vec{F}_{Th}**

Lorsqu'un gradient de température est présent au sein de la phase gazeuse, les poussières immergées subissent une force appelée force de thermophorèse. Cette dernière trouve son origine dans la différence de quantité de mouvement transférée par les atomes (ou molécules) de gaz à la poussière entre les côtés chaud et froid. L'énergie cinétique des atomes de gaz neutres augmentant avec la température, la quantité de mouvement qu'ils transfèrent lors des collisions neutre-poussière est plus importante pour la face de la

particule exposée à la zone présentant une température supérieure. Cela se traduit par l'apparition d'une force nette pour la particule comme illustré par le schéma de la figure 4.1.

Elle est proportionnelle à r_d^2 (surface de la particule) et est dirigée dans la direction opposée au gradient de température.

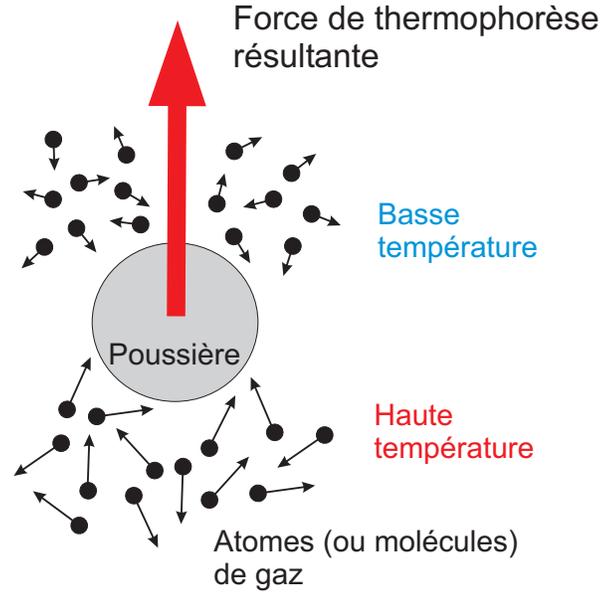


Figure 4.1 – Schéma illustrant le principe de la force de thermophorèse.

Le libre parcours moyen entre les atomes neutres composant la phase gazeuse se calcule, si l'on considère une distribution des vitesses maxwellienne, à l'aide de l'expression suivante :

$$\lambda = \frac{1}{\sqrt{2}\sigma n} = \frac{k_B T}{\sqrt{2} P \sigma} \quad (4.7)$$

avec

- $k_B = 1,3807 \times 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$
- $T \simeq 300 \text{ K}$ est la température en Kelvin
- P est la pression en Pascal
- $\sigma = 134 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ est la section efficace de collision tirée de la référence [75]

Les pressions de travail lors des expériences réalisées sont autour de 100 mTorr. Le calcul du libre parcours moyen des atomes de gaz d'après la relation 4.7 donne une valeur d'environ $166 \mu\text{m}$.

Les poussières formées ont en général un diamètre de quelques centaines de nanomètres. Le nombre de Knudsen Kn permet de caractériser le régime d'écoulement de gaz aux abords de la poussière (en terme de continuité de la phase gazeuse). Son expression est $Kn = \frac{\lambda}{r_d}$. Si l'on considère des particules de rayon $r_d = 250 \text{ nm}$, le nombre de Knudsen

correspondant vaut alors $Kn \simeq 665 \gg 1$. Un grand nombre de Knudsen est caractéristique du régime moléculaire libre dans lequel les particules se comportent en suivant la théorie cinétique des gaz. Il est raisonnable de considérer que ce dernier est rencontré dans la plupart des expériences réalisées d'après la valeur de Kn calculée précédemment. Ce régime est à opposer au régime continu caractérisé par un faible nombre de Knudsen, pour lequel le gaz peut être considéré comme une phase continue et dans lequel les particules obéissent aux loi de la diffusion brownienne.

Dans le régime moléculaire libre, l'expression de la force de thermophorèse est la suivante [76] :

$$\vec{F}_{Th} = -\frac{32}{15} r_d^2 \frac{k_{Tr}}{v_{th,n}} \overline{\nabla T_n} \quad (4.8)$$

avec $v_{th,n}$ la vitesse thermique des neutres.

Si le gaz est monoatomique,

$$k_{Tr} = \frac{15}{4} \frac{k_B}{m_n} \mu_{ref} \left(\frac{T}{T_{ref}} \right)^\nu \quad (4.9)$$

avec

- m_n la masse des atomes neutres (argon en l'occurrence)
- $T_{ref}=273$ K, $\mu_{ref}=2,117 \times 10^5$ Pa.s, $\nu=0,81$ pour l'argon.

Récapitulatif :

Le tableau 4.1 présente un récapitulatif des différentes forces agissant sur les poussières ainsi que de leur orientation et de leur dépendance en fonction du rayon r_d des poussières.

Force	orientation	dépendance en r_d
Force électrique : \vec{F}_E	direction de \vec{E} mais sens opposé (poussières chargées négativement)	$\propto r_d$
Force de frottement ionique : \vec{F}_i	sens du flux ionique $\vec{\Gamma}_i \Leftrightarrow$ sens de \vec{E}	$\propto r_d^2$
Force de gravité : \vec{F}_g	direction et sens de \vec{g}	$\propto r_d^3$
Force de frottement des neutres : \vec{F}_n	direction de $(\vec{v}_d - \vec{v}_n)$ mais sens opposé	$\propto r_d^2$
Force de thermophorèse : \vec{F}_{th}	direction de $\overline{\nabla T_n}$ mais sens opposé	$\propto r_d^2$

Tableau 4.1 – Tableau récapitulatif des forces agissant sur les poussières.

4.2.2 Formation et piégeage des poussières au sein de la décharge

Dans les expériences réalisées, les poussières sont créées grâce à l'injection d'acétylène (C_2H_2). La dissociation des molécules d'acétylène lors des collisions électrons-molécules, forme diverses espèces ioniques et radicalaires très réactives. Parmi ces espèces, il a été montré que l'ion C_2H^- jouait un rôle particulièrement important [77, 78]. S'en suivent de nombreuses réactions chimiques par le biais desquelles sont formées les premières particules de taille nanométrique. La chimie des plasmas Argon/acétylène constitue un vaste champ d'études, toujours ouvert, dont les travaux présentés ici ne font pas l'objet. C'est la raison pour laquelle les détails des mécanismes chimiques liés à la formation de ces nanoparticules ne sont pas présentés².

Cas cathodique

Avec la configuration expérimentale utilisée, une importante quantité de poussières est piégée au sein de la gaine cathodique comme indiqué sur le schéma et la photographie présentés respectivement figure 4.2(a) et (b). Sur la photographie, les poussières apparaissent en rouge par diffusion de la lumière émise par le laser.

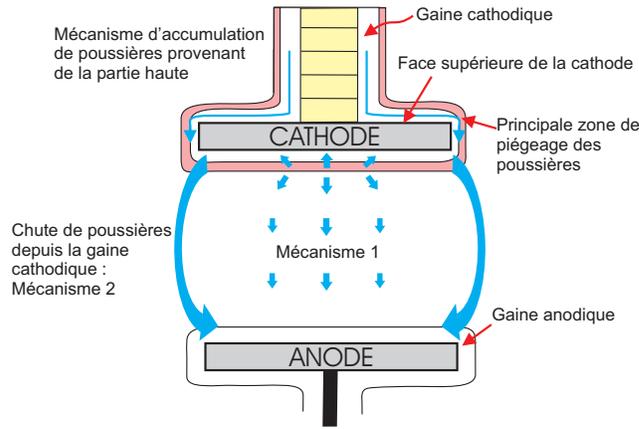
La majeure partie des études réalisées s'intéresse aux poussières présentes sous l'électrode. Il arrive cependant fréquemment qu'une partie des poussières présentes dans cette zone provienne de la région située au-dessus de l'électrode (cf schéma 4.2(a)). En effet, une quantité importante de particules est produite le long de la tige cathodique et reste piégée au-dessus de la face supérieure de la cathode.

Les mesures d'extinction et les observations visuelles indiquent qu'une quantité importante de poussières est déjà présente dans la gaine cathodique quelques secondes seulement après l'injection d'acétylène. Ces poussières sont piégées grâce à l'équilibre entre les différentes forces agissant sur elles, comme représenté sur le schéma de la figure 4.3.

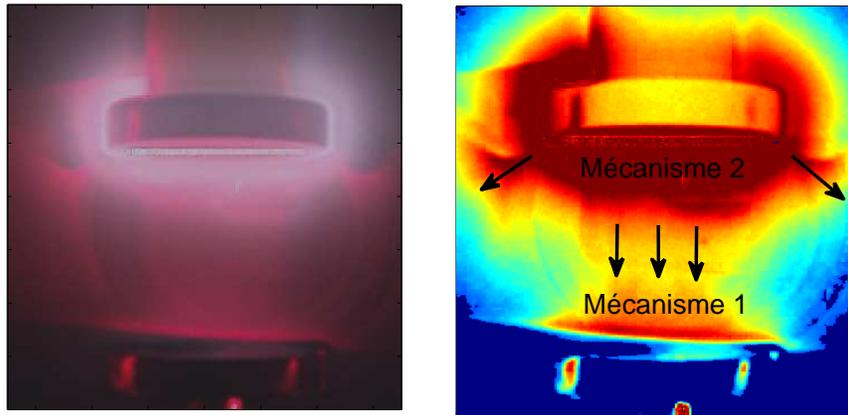
La force de gravité et la force due au champ électrique cathodique sont toutes deux dirigées vers le bas. Elles tendent donc à extraire les poussières de la gaine cathodique. La force de frottement ionique est quant à elle dirigée vers l'électrode. C'est elle qui permet le maintien des poussières au sein de la gaine cathodique. Elle peut donc prendre des valeurs significatives puisqu'elle suffit à elle seule à contre-balancer les effets des deux forces précédentes. Ces grandes valeurs sont obtenues grâce au flux ionique important dirigé vers la cathode. Il est provoqué par le champ électrique régnant dans la gaine cathodique (lui-même lié à la tension d'auto-polarisation).

Dans la description précédente, il n'est fait référence qu'à la composante continue du champ électrique. Les poussières sont en effet trop massives (leur pulsation ω_{pd} est trop faible) pour répondre à des variations du champ électrique se produisant à 13,56 MHz. En

2. Le lecteur intéressé pourra se référer à l'article de J. Benedikt [79] pour plus d'informations.



(a) Schéma.



(b) Photographie originale et composante rouge en échelle de couleur logarithmique artificielle.

Figure 4.2 – Formation des poussières dans la décharge.

conséquence, dans la suite de ce manuscrit, lorsque la notion de force électrique agissant sur les poussières sera abordée, il ne sera question que des composantes continues des champs et des potentiels.

Cas anodique

Les forces agissant sur les particules au sein de la gaine anodique et permettant leur piégeage, sont également représentées sur la figure 4.3.

La différence majeure entre les cas cathodique et anodique est le caractère respectivement dé-piégeant et piégeant du champ électrique vis-à-vis de la gravité. Ainsi, si celui-ci a tendance à limiter le piégeage des particules dans la gaine cathodique, il le favorise au contraire dans la gaine anodique, permettant ainsi aux poussières de léviter au-dessus de

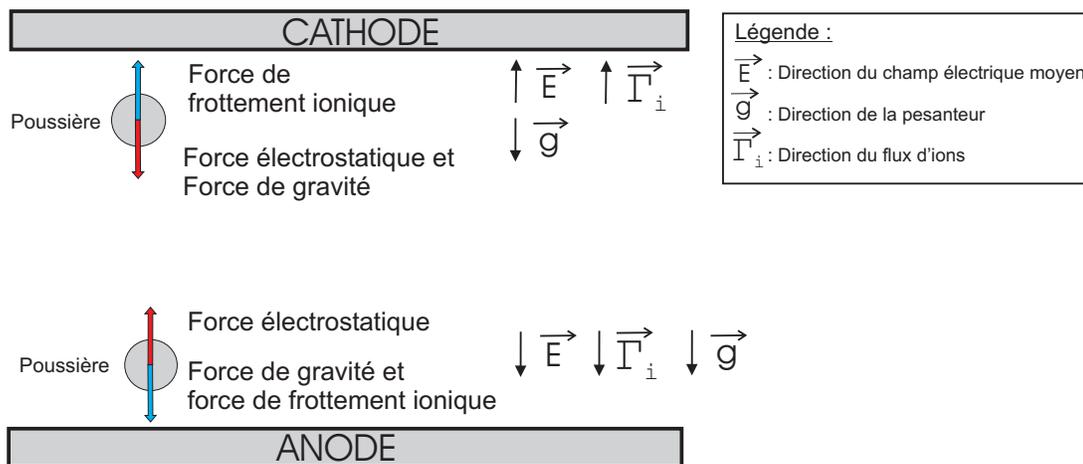


Figure 4.3 – Schéma des forces agissant sur les poussières dans les gaines cathodique et anodique.

l'électrode. La force de gravité et la force associée au flux ionique sont dirigées vers le bas.

Les premières particules à apparaître dans la gaine anodique y ont probablement été formées à partir des molécules de C_2H_2 . Cependant par la suite, une partie des poussières formées dans la zone cathodique remplit progressivement l'espace inter-électrode sous l'action de la gravité. Ceci se traduit par un afflux important de poussières dans la gaine anodique qui viennent renforcer la population déjà présente (mécanisme 1 sur la figure 4.2(a)). Sur des temps plus longs, il arrive que des particules initialement piégées dans la gaine cathodique en soient expulsées et rejoignent ainsi la région anodique (mécanisme 2 sur la figure 4.2(a)). Ces deux mécanismes sont également visibles sur la photographie présentée figure 4.2(b). Ils prennent parfois une telle ampleur qu'ils peuvent alors être considérés comme les mécanismes dominant d'apport de matière à l'anode.

Espace inter-électrode et périphérie de la décharge

Le piégeage des poussières se produit essentiellement aux abords des gaines (cathodique et anodique), là où se trouvent des champs électriques et des flux ioniques importants. On peut qualifier ce piégeage de fort.

Des poussières sont cependant également observées à d'autres endroits de la décharge : dans l'espace inter-électrode et en périphérie de la décharge. Celles-ci sont visibles sur la photographie présentée figure 4.4.

Dans ces régions de la décharge, les poussières ne sont pas sujettes à un piégeage aussi fort que celui rencontré dans les gaines.

Dans l'espace inter-électrode, elles sont soumises principalement à la gravité, le champ

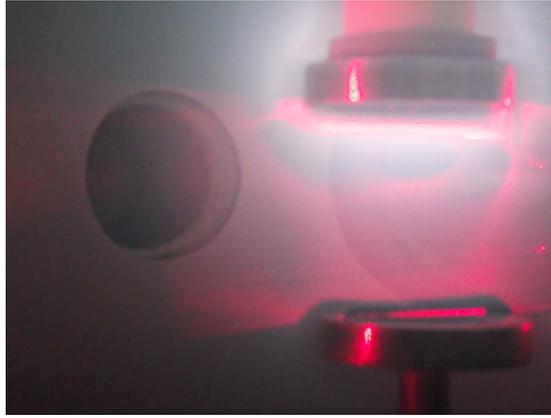


Figure 4.4 – *Poussières présentes dans l'espace inter-électrodes et en périphérie de la décharge.*

électrique étant très faible. Elles ont donc tendance à s'accumuler au-dessus de l'anode, maintenues in-fine à leur position d'équilibre par les répulsions électrostatiques exercées par les poussières situées en-dessous.

Si la densité de poussières devient trop importante, celles-ci commencent à se disperser latéralement et sont alors observées en périphérie de la décharge. Lorsqu'elles sont présentes à cette position, la gravité les entraîne progressivement vers le bas de la chambre.

4.3 Dispositif expérimental utilisé pour la collection des poussières

Cette section présente une brève description du dispositif utilisé pour collecter les poussières lors des expériences.

Le dispositif expérimental utilisé est présenté figure 4.5.

Il s'agit d'un tube métallique en acier inoxydable, de diamètre externe 1 cm, fermé à une extrémité. Il est inséré latéralement dans la chambre du réacteur, un joint torique assurant l'étanchéité du dispositif. Le tube est utilisé en position verticale. Il est placé à environ 2,5 cm de la paroi et 14,5 cm du centre du réacteur. Sa position éloignée du cœur de la décharge permet d'éviter de perturber le plasma. Deux substrats de silicium permettant la collection des poussières en vue d'analyses ex-situ peuvent être placés sur le tube, l'un en position haute et l'autre en position basse. Pour se faire, un méplat a été réalisé le long du tube. Les substrats sont découpés de manière à former des bandes d'environ 5 mm de largeur et 4,5 cm de hauteur, et sont maintenus sur le méplat à l'aide de languettes métalliques.

Afin de refroidir le tube, de l'azote liquide ($T=77$ K) est injecté. Un gradient de température est ainsi établi au sein du gaz. Les poussières sont alors attirées et collectées par

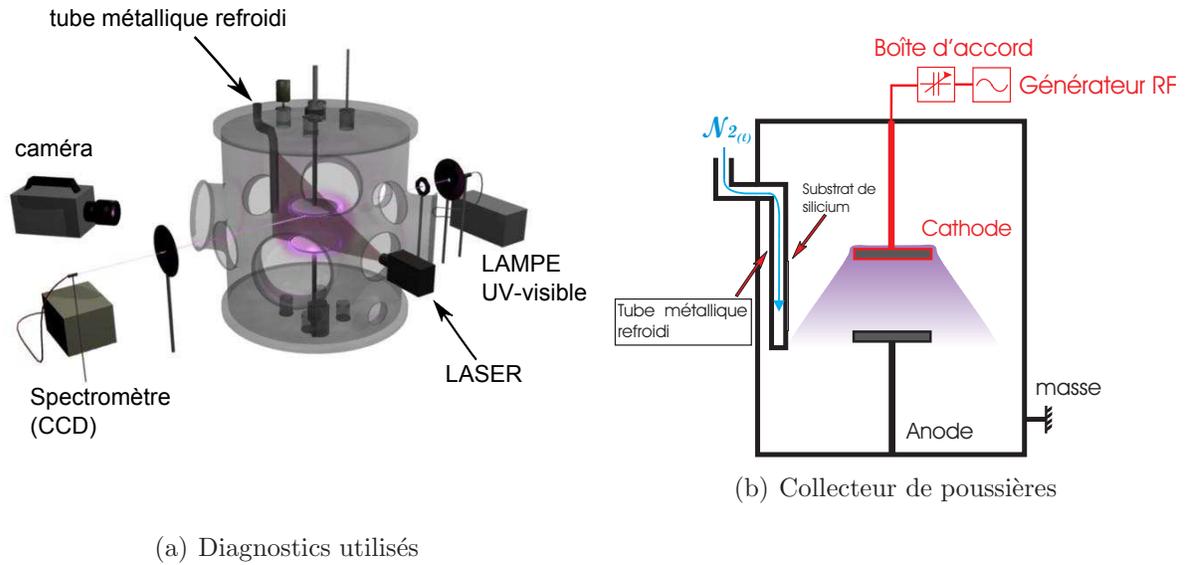


Figure 4.5 – Schémas du dispositif expérimental.

le tube froid. Le schéma présenté figure 4.6 représente les forces agissant sur les poussières une fois le tube refroidi. Pour des particules présentes dans les gaines de la décharge, la force de thermophorèse s'ajoute à la force électrique pour extraire ces particules piégées en s'opposant à la force de frottement ionique (en négligeant la gravité). Les poussières présentes en dehors des gaines (espace inter-électrode, périphérie de la décharge) sont essentiellement soumises à la force de thermophorèse.

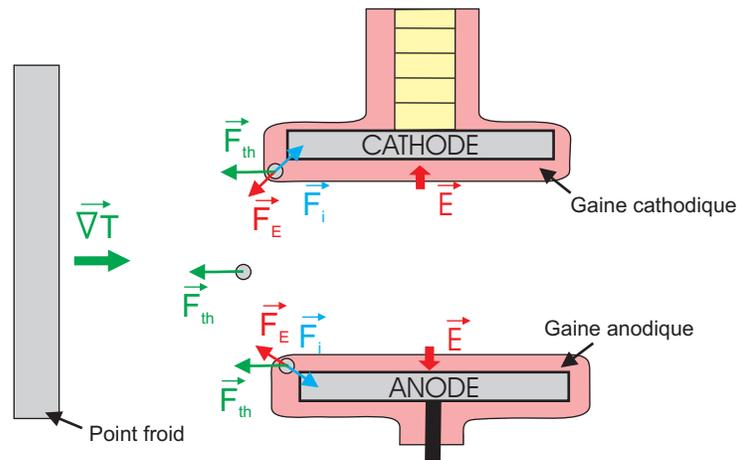


Figure 4.6 – Schéma des forces agissant sur les poussières en présence du point froid.

Une fois l'expérience terminée, il est nécessaire d'attendre plusieurs heures avant de remettre la chambre du réacteur à l'air. Ce délai est nécessaire afin d'éviter la condensation

de l'humidité ambiante, ce qui provoque l'apparition de givre sur les échantillons les rendant inexploitable.

Dans la suite de ce manuscrit, ce dispositif sera appelé point froid.

4.4 Résultats

4.4.1 Protocole expérimental

Cette section est dédiée à l'étude détaillée d'une expérience de collection des poussières par le point froid. Pour cette expérience, la pression d'argon dans l'enceinte est de 100 mTorr et la puissance $P_{RF}=10$ W.

Au début de l'expérience, la vanne de pompage des gaz est fermée. L'argon est ensuite injecté dans la chambre jusqu'à la pression de travail. Son injection est alors interrompue. Cela permet de s'affranchir de l'influence du flux de gaz lié à l'injection et au pompage des gaz. La force de frottement des neutres sur les poussières, liée à l'écoulement du gaz, peut en effet perturber le mouvement des poussières et rendre plus difficile leur extraction.

Les diagnostics in-situ utilisés sont :

- la mesure de la tension d'auto-polarisation,
- des mesures d'extinction, le faisceau lumineux sonde passe à travers la gaine cathodique et la fréquence d'acquisition est de 1 Hz,
- l'utilisation d'un appareil photo numérique pour filmer le déroulement de l'expérience,
- la caméra rapide pour filmer l'extraction des poudres.

Le déroulement de l'expérience suit les étapes suivantes :

- $t=0$ s : début de l'expérience.
- $t=30$ s : début de l'acquisition de la tension d'auto-polarisation.
- $t=60$ s : allumage de la décharge (argon).
- $t=180$ s : début des mesures d'extinction (détermination de $I_0(\lambda)$).
- $t=240$ s : l'acétylène est injecté dans le plasma avec un débit $Q_{C_2H_2}=1$ sccm.
- $t=300$ s : arrêt de l'injection d'acétylène.
- $t=840$ s : injection de l'azote liquide dans le tube métallique.

Une fois l'expérience terminée, les échantillons obtenus sont récupérés et analysés au MEB.

4.4.2 Résultats obtenus

L'évolution de la valeur absolue de la tension d'auto-polarisation est présentée figure 4.7.

Grâce à la méthode inverse développée au chapitre 3, les données issues des mesures d'extinction ont permis de déterminer la densité totale et le diamètre de Sauter des particules présentés figure 4.8. La fraction volumique en particules du milieu a également été déterminée et représentée figure 4.9. Ces deux informations sont complémentaires dans la mesure où la densité totale de particules renseigne uniquement sur le nombre sans tenir compte de la taille des particules concernées. Un changement minime dans la densité totale de particules peut ainsi se traduire par une variation importante de la fraction volumique et inversement.

Sur chacun des graphiques présentés, sont également indiqués des numéros utilisés pour désigner différentes phases. Ce découpage n'est cependant pas strict et les frontières délimitant ces phases sont en réalité relativement diffuses. Les commentaires ci-dessous s'appuient sur ces différentes phases afin d'expliquer les résultats obtenus.

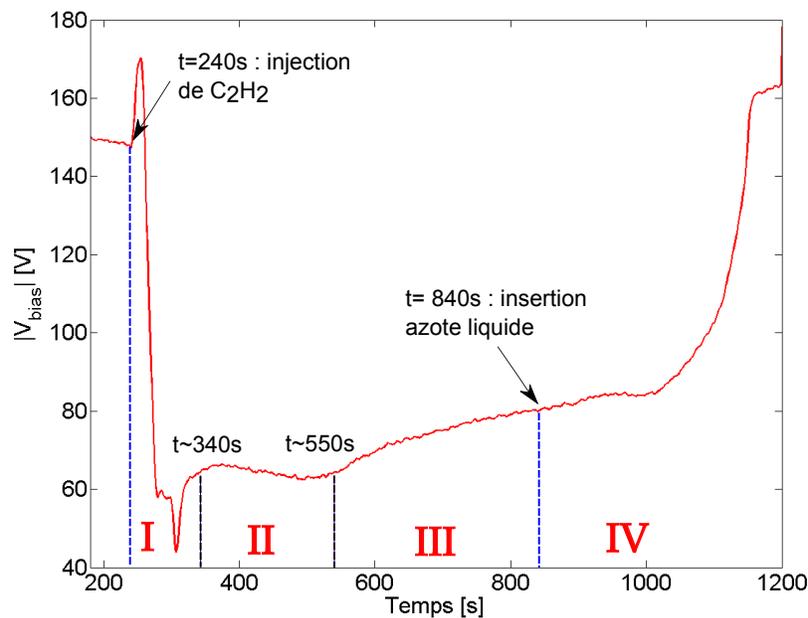


Figure 4.7 – Évolution de la tension d'auto-polarisation (valeur absolue).

• Phase I : accumulation et croissance des particules

Les mesures d'extinction indiquent que la densité de poussières et la fraction volumique augmentent rapidement et fortement. Ceci est corroboré par la chute de $|V_{bias}|$ qui illustre l'intensification du phénomène de collection d'électrons par les poudres. Le diamètre de

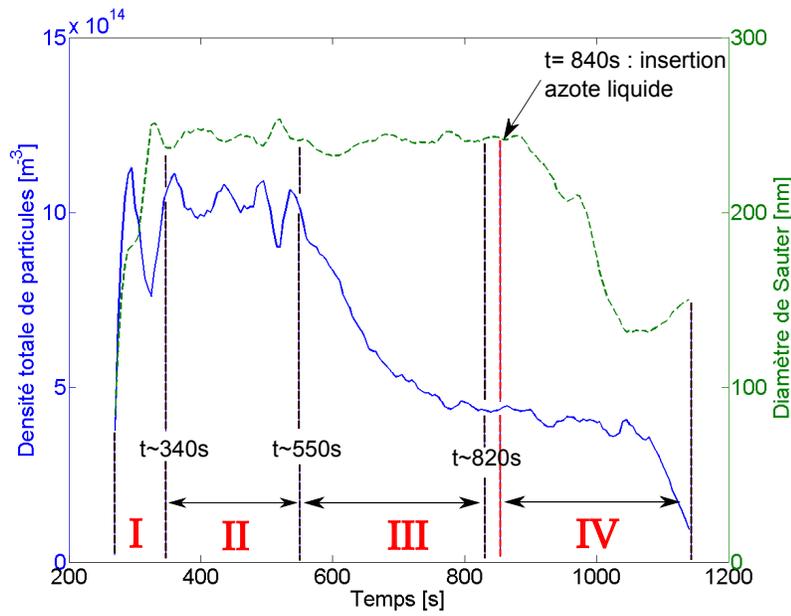


Figure 4.8 – Évolutions de la densité totale et du diamètre de Sauter des poussières.

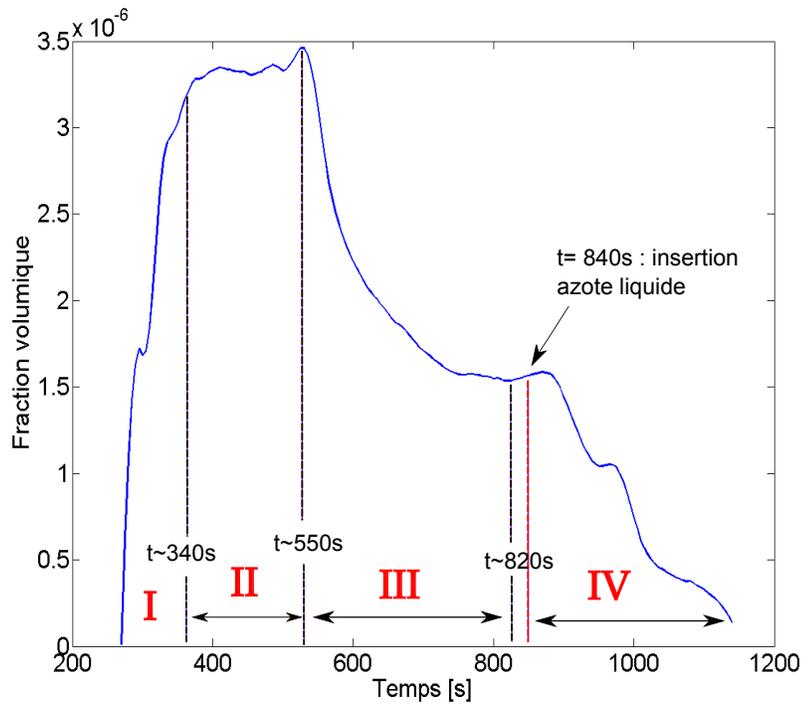


Figure 4.9 – Évolution de la fraction volumique en particules.

Sauter augmente également pendant cette phase indiquant que des particules de plus en plus grosses sont présentes.

- **Phase II : formation de grosses particules**

Les observations visuelles indiquent que des poussières de plus en plus massives sont présentes, en particulier au sein de la gaine cathodique (électrode supérieure) comme le montre la photographie présentée figure 4.10. Celle-ci est extraite d'un film réalisé à la caméra rapide à $t=425$ s. En revanche, la densité de poussières, le diamètre de Sauter et la fraction volumique ne présentent pas d'évolutions globales significatives. La tension d'auto-polarisation est quasiment stationnaire.

- **Phase III : chute de particules hors de la gaine cathodique**

La densité de particules mesurée par extinction décroît tout comme la fraction volumique de particules. La valeur de $|V_{bias}|$ augmente, indiquant que le nombre d'électrons libres est en augmentation. Les films réalisés durant cette période montrent que des particules quittent la gaine cathodique ce qui explique les tendances observées précédemment. La figure 4.11 illustre cette chute de particules. On distingue deux cas de figure :

- des petites particules chutent depuis la gaine cathodique vers la région centrale (mécanisme 1 sur la figure 4.2(a))
- de grosses particules sont expulsées latéralement de la gaine cathodique (mécanisme 2 sur la figure 4.2(a)).

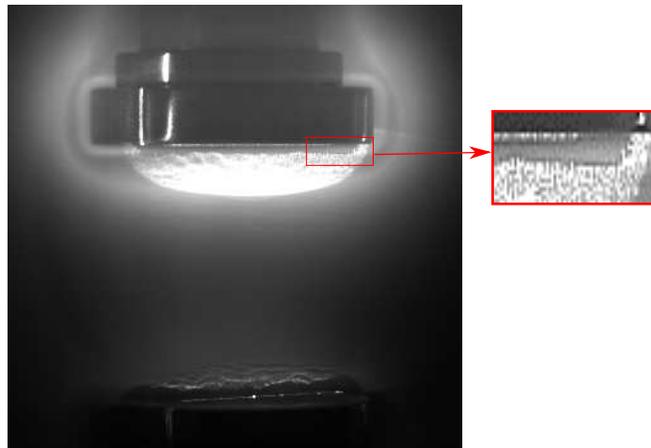


Figure 4.10 – *Poussières présentes dans la décharge.*

A l'issue de cette phase ($t > 780$ s), un quasi-équilibre est atteint. L'azote liquide peut donc être introduit dans le tube métallique pour réaliser la collection des poussières (phase IV).

- **Phase IV : extraction des particules**

L'insertion de l'azote liquide dans le tube métallique débute à $t=840$ s. Le gradient de

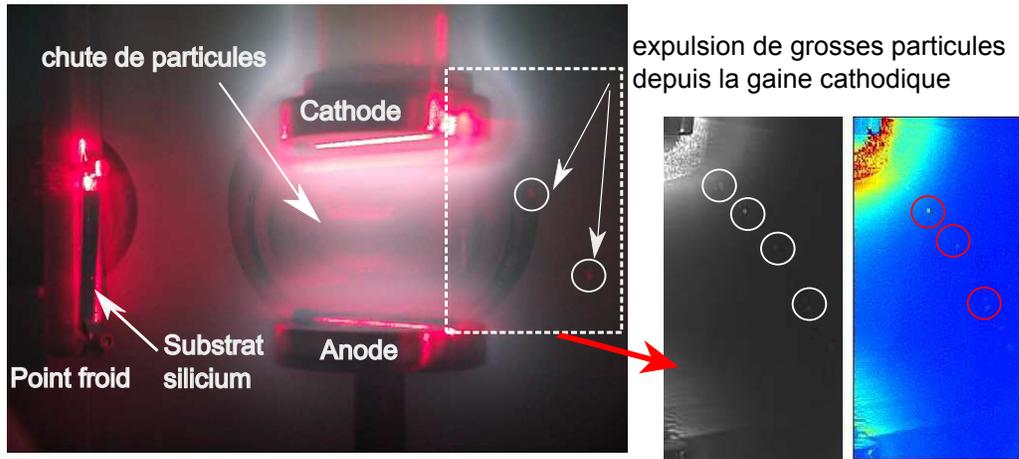


Figure 4.11 – Expulsion de poudres hors de la gaine cathodique.

température s'établit alors au sein de la phase gazeuse. La figure 4.12 représente trois photographies prises à différents instants de l'expérience. Afin de faire ressortir davantage la présence des particules, la composante rouge des images originales a aussi été représentée, en échelle de couleur logarithmique artificielle. Ces images permettent de rendre compte de la déformation du nuage de poussières sous l'action de la force de thermophorèse.

- La première photographie (figure 4.12(a)) est prise avant l'insertion de l'azote liquide. La majeure partie des poudres est confinée dans les gaines et minoritairement dans l'espace inter-électrode. On distingue également quelques poussières présentes en périphérie de la décharge.
- La seconde photographie (figure 4.12(b)) est prise peu de temps après l'insertion de l'azote liquide dans le tube. Des poussières sont présentes dans toute la zone allant de la région centrale au point froid. C'est la force de thermophorèse, dirigée de la région centrale vers le point froid qui est responsable de cette déformation du nuage de poudres³ (cf figure 4.6).
- La troisième photographie illustre la situation observée 1 minute après l'insertion de l'azote liquide. Les particules sont fortement attirées dans la zone froide. On observe en particulier leur extraction de la gaine cathodique et la collection des grosses poussières décrites précédemment (cf figure 4.10).

La disparition des poussières, collectées par le point froid, est à l'origine de la remontée de la tension d'auto-polarisation à une valeur proche de sa valeur initiale. A cet instant, plus aucune poussière n'est observée au sein des gaines ou de l'espace inter-électrode. Elles ont toutes été collectées par le point froid et seule une faible quantité de poussières s'est déposée sur l'anode ou en bas du réacteur. Les parois de ce dernier ne présentent pas

3. Parfois, même en l'absence du point froid, des poudres peuvent être présentes dans cette région. Cependant cette condition n'est rencontrée que lorsque la quantité de poussières dans la décharge est importante (par exemple dans les cas où l'actéylène est injecté en continu).

de dépôt de particules. Jellum *et al.* [14] ont rapporté l'existence de particules difficiles à extraire et restant piégées dans l'espace inter-électrode, mais cette situation n'est pas observée dans la présente étude.

Il apparait donc qu'une telle expérience est marquée par la succession de différentes phases. Celles-ci ont été décrites dans la première partie de ce paragraphe. La suite de cette section s'attache à une description plus fine du mécanisme d'extraction des poudres après le refroidissement du point froid (phase IV).

Mécanisme d'extraction des poussières

Une fois l'azote liquide injecté, la collection des poussières débute de manière progressive avant de s'accélérer à partir de $t=1045$ s. La valeur de $|V_{bias}|$ augmente lentement dans un premier temps, puis cette augmentation s'accélère (à partir de $t=1045$ s). La densité de poussières présentes dans la gaine cathodique, après avoir diminué lentement, chute de manière significative, elle aussi à partir de $t=1045$ s.

En ce qui concerne la fraction volumique, son comportement est différent. Elle diminue rapidement peu de temps après l'insertion de l'azote liquide. Ces tendances coïncident avec la baisse du diamètre de Sauter observé dès $t=880$ s. Cette baisse s'explique probablement par le fait que les particules présentant les tailles les plus importantes sont extraites de la gaine cathodique en premier. Elles sont en effet plus sensibles que leurs homologues de petite taille à la force de thermophorèse en raison de leur surface supérieure (la force de thermophorèse est proportionnelle à r_d^2).

Le délai observé avant la collection des poudres peut être expliqué de la manière suivante :

- Lorsque l'azote liquide est injecté, le tube commence à se refroidir. Un gradient de température s'établit rapidement au sein du gaz.
- Les poussières présentes dans le plasma ressentent donc une force de thermophorèse les attirant vers les zones les plus froides, en l'occurrence vers le point froid. Le nuage de poussières se déforme alors progressivement.
- Au fur et à mesure que des poussières sont extraites de la décharge et collectées au point froid, le nombre d'électrons libres augmente. Il en résulte que la tension d'auto-polarisation augmente elle aussi (en valeur absolue), amplifiant du même coup le champ électrique de la gaine cathodique.
- La force électrique agissant sur les particules est dé-piégeante (cf §4.2 et figure 4.6). Ainsi plus la valeur de $|V_{bias}|$ est importante et plus il est aisé d'extraire les particules de la gaine cathodique. Au fur et à mesure que des poussières sont extraites, la collection des suivantes est par conséquent amplifiée.

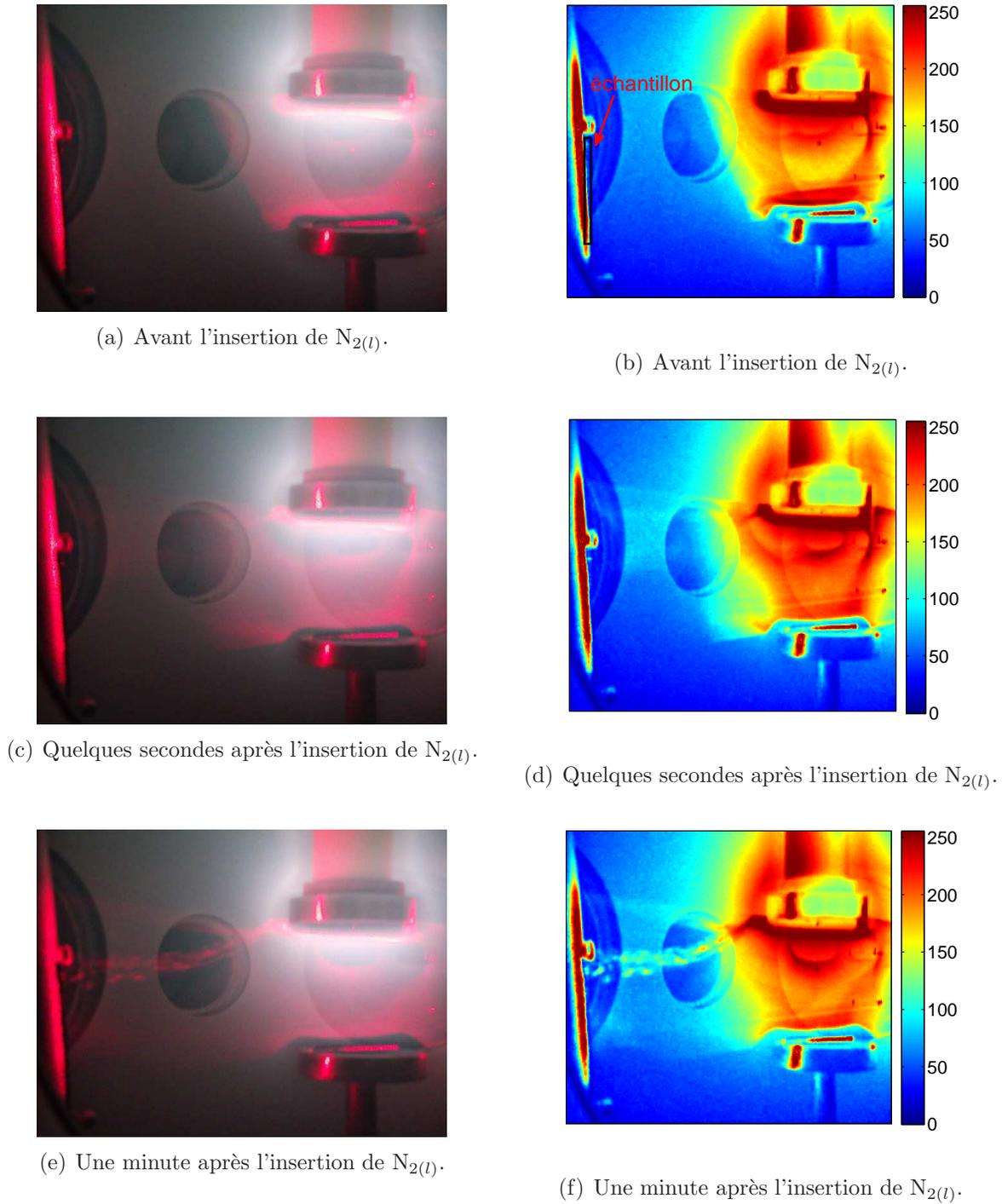


Figure 4.12 – Comportement des poussières avant et après le refroidissement du tube. Photographie originale (à gauche) et composante rouge en échelle de couleur logarithmique artificielle (à droite).

Ce phénomène de rétro-action, résumé sur le schéma de la figure 4.13(a), explique pourquoi la vitesse d'extraction des particules augmente avec le temps.

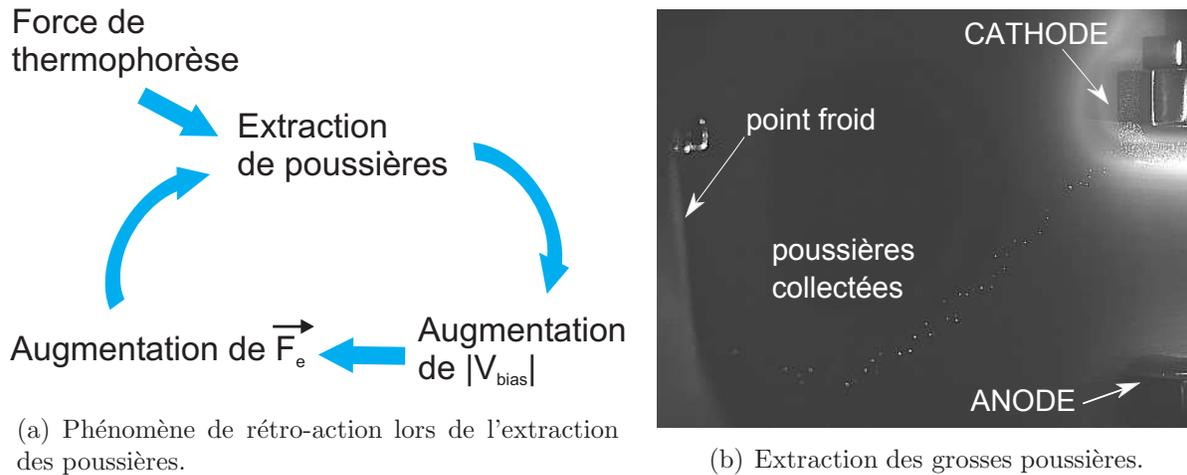


Figure 4.13 – *Extraction des poussières de la gaine cathodique.*

Pour se convaincre de l'importance de la force électrique dans l'extraction des particules, on peut observer les trajectoires des grosses particules en partance de la gaine cathodique vers le point froid (figure 4.13(b)). On peut constater que les particules sont expulsées à l'extrémité de la gaine cathodique. A cet endroit, le champ électrique est plus intense que sous l'électrode en raison de la présence de l'angle de l'électrode (effet de pointe). Ces poussières sont donc extraites de la gaine cathodique, grâce à la force de thermophorèse et à la force électrique, qui agissent conjointement et en opposition à la force de frottement ionique.

Au cours des explications précédentes, il a été considéré que la force de thermophorèse était responsable du mouvement des poussières vers le point froid et de leur collection par ce dernier. Il pourrait également être envisagé que le gradient de température soit suffisamment fort pour induire au sein du gaz des mouvements convectifs pouvant entraîner les poussières [14]. Cependant aucun mouvement de ce type n'a été observé expérimentalement. Il aurait pu être observé visuellement par le biais des poussières qui jouent alors le rôle de traceur pour la phase gazeuse. Cette hypothèse a été vérifiée en estimant le nombre de Rayleigh R_a . La valeur obtenue étant de l'ordre de l'unité, cela semble confirmer le rôle négligeable joué par la convection. Ceci peut s'expliquer en partie par la faible densité de la phase gazeuse dans la chambre du réacteur.

La technique d'extraction utilisée permet donc de collecter la quasi totalité des poussières présentes dans la décharge. Celles-ci sont conduites des différentes zones de la décharge vers le point froid grâce à la force de thermophorèse.

4.4.3 Photographies MEB des particules collectées

La figure 4.14 présente un exemple de substrat de silicium initialement placé sur le point froid et récupéré à la fin d'une expérience. Sa surface est couverte d'un dépôt inhomogène de poussières.

Les poussières présentes en surface du substrat ont été observées au microscope électronique à balayage. Des exemples de photographies MEB sont donnés figure 4.15.

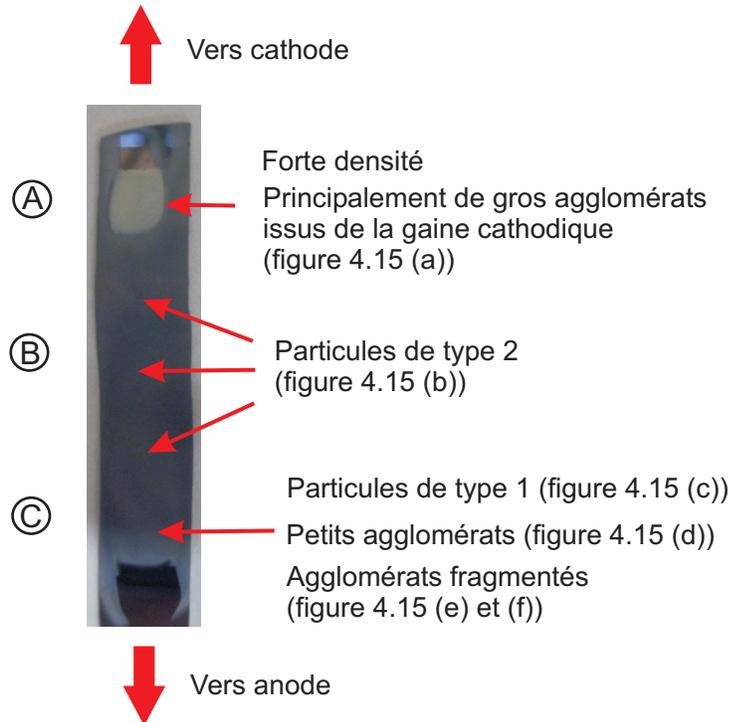
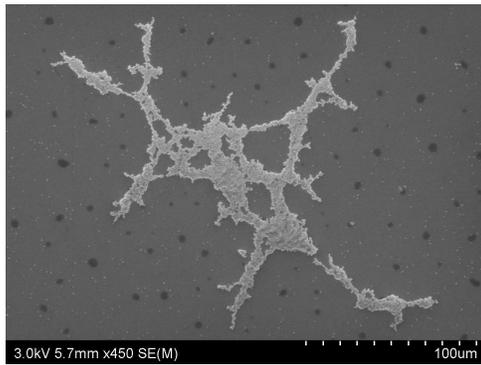


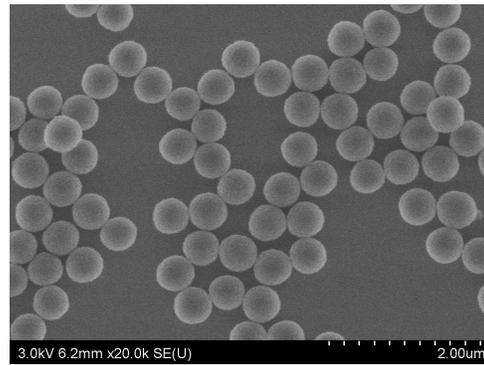
Figure 4.14 – Photographie d'un substrat placé au point froid et recouvert de poudres.

Ces observations révèlent que la population de poussières se compose de différents types de particules :

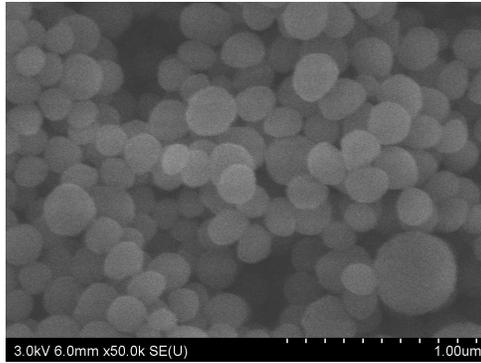
1. De gros agglomérats, dont les dimensions peuvent être de plusieurs centaines de micromètres, et formés par agglomération de milliers de particules primaires, sont présents dans la région A du substrat. Ces particules primaires sont essentiellement des particules de type 1 et parfois de type 2 (voir dans la suite). La figure 4.15(a) en donne un exemple. Ces agglomérats correspondent aux grosses particules décrites précédemment et dont le nombre devient significatif durant la phase II de l'expérience (cf §4.4.1). Ces particules sont également celles observées lors de leur extraction figure 4.13. La formation de ces agglomérats fait appel à des mécanismes particuliers qui font l'objet du chapitre 6 de cette étude. Elle a lieu dans la gaine cathodique ce qui explique que ces agglomérats ne sont généralement observés que dans la partie haute du substrat, cette région étant située plus proche de la cathode que le reste de l'échantillon.



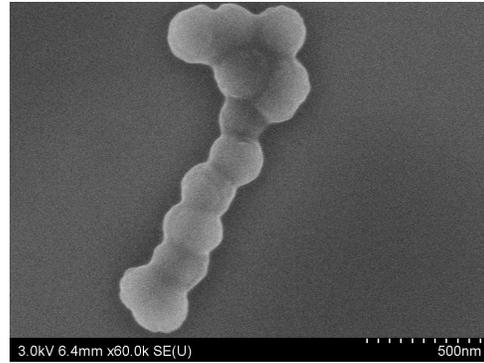
(a) Agglomérat de grande taille.



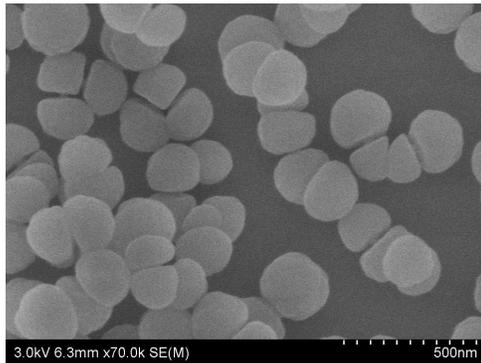
(b) Particules de type 2.



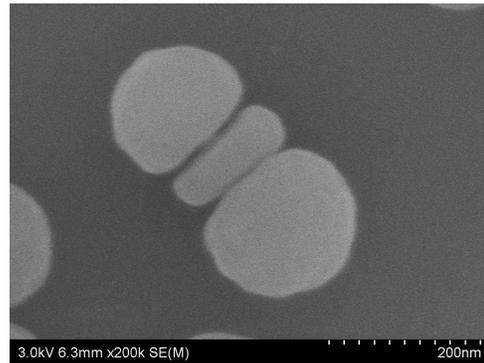
(c) Particules de type 1.



(d) Petit agglomérat.



(e) Particules présentant une structure particulière.



(f) Particule présentant une structure particulière.

Figure 4.15 – Photographies MEB de particules collectées au point froid.

2. Des particules individuelles, parfaitement sphériques qui recouvrent de vastes zones du substrat (figure 4.14, région B) et dont la population est mono dispersée. Leur diamètre est de quelques centaines de nanomètres, selon les conditions expérimentales. Un exemple est proposé figure 4.15(b).
3. Des particules individuelles présentes dans la région C, dont la forme est proche de la sphère et dont le diamètre est généralement de quelques centaines de nanomètres. Ces particules sont relativement dispersées en taille (figure 4.15(c)).
4. De petits agglomérats formés d'un petit nombre de particules primaires (particules

de type 1 essentiellement et parfois de type 2) dont un exemple est donné figure 4.15(d). Ceux-ci sont généralement observés dans la partie basse du substrat.

Les photographies présentées figures 4.15 (e) et (f) montrent des particules qui présentent une structure particulière.

Sur la photographie 4.15 (e), on peut observer des groupements de trois particules dont la forme est complémentaire. Les contours que se présentent ces particules s'adaptent parfaitement les uns aux autres. Cela suggère que ces trois particules étaient regroupées auparavant en un seul et même agglomérat. La photographie 4.15 (f) représente une autre particule pour laquelle des remarques similaires peuvent être faites. La partie centrale présente une forme très hétérogène, elle est allongée et de faible épaisseur. De part et d'autre sont situées deux particules plus massives, dont le contour extérieur dessine un cercle tandis que la face intérieure semble plate. On peut raisonnablement supposer que ces trois parties distinctes ont pu être unifiées au préalable.

Lors de l'agglomération de deux particules, un pont est progressivement formé entre elles, par exemple par frittage [80] qui se caractérise par un déplacement de matière entre les deux particules initiales par diffusion solide [81, 82]. Si le frittage est complet, on retrouve une sphère en finalité. Le schéma présenté figure 4.16 reprend les différentes étapes de formation d'un pont. Dans notre cas, le dépôt d'ions et radicaux carbonés au point de contact entre grains joue probablement un rôle important dans sa formation.

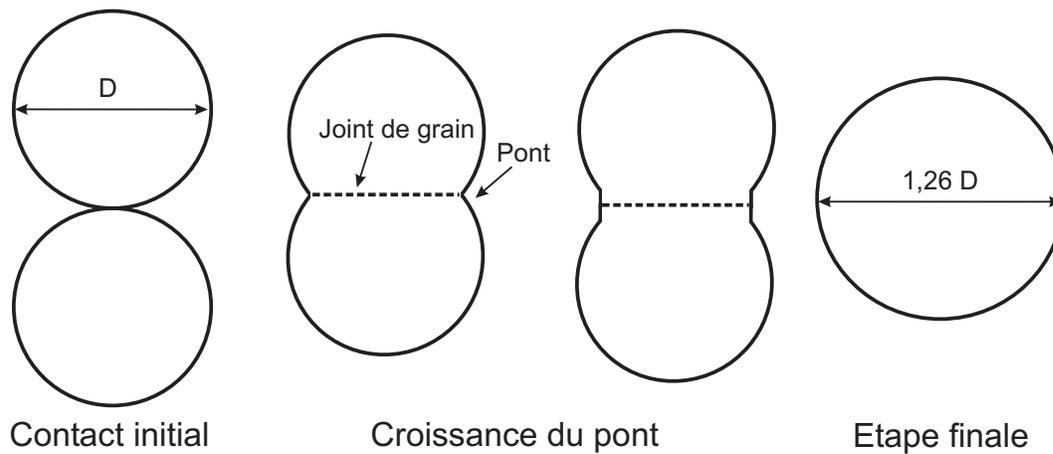


Figure 4.16 – Frittage de deux particules sphériques.

Les observations précédentes laissent supposer que ces structures soient issues d'agglomérats qui se sont fragmentés à un temps donné. Une hypothèse permettant d'expliquer cet effet est illustrée par la figure 4.17. Les agglomérats étaient probablement unifiés lorsqu'ils se sont déposés sur le substrat froid. Avec l'augmentation de la température, de 77 K à la température ambiante, le substrat s'est dilaté. Les particules primaires sphériques composant les agglomérats sont restées attachées au substrat à leur point de contact. Avec la dilatation de celui-ci, des ruptures ont eu lieu entre les différentes particules primaires,

au niveau des endroits les plus fragiles : les joints de grain. Les agglomérats auraient ainsi été fragmentés. Il est également possible que certains agglomérats se soient disloqués lors de leur impact sur le substrat. L'importante énergie cinétique acquise par les agglomérats pourrait leur avoir été transmise par la force de thermophorèse, le gradient de température étant considérable. Par ailleurs, ils sont éjectés de la gaine cathodique par le champ électrique avec une vitesse importante.

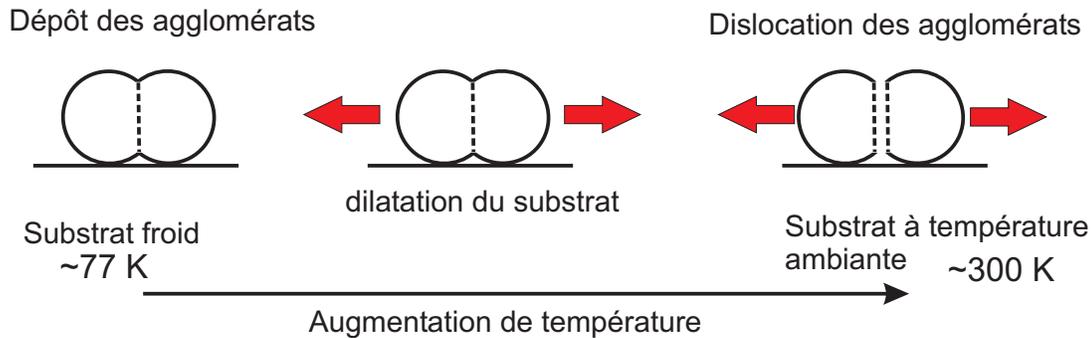


Figure 4.17 – Dislocation des agglomérats lors de la montée en température du substrat.

Ces observations offrent donc des indices sur le mode de formation des poudres au sein de la décharge. Des particules sphériques de quelques centaines de nanomètres de diamètre peuvent s'agglomérer entre elles. Lorsque l'évènement d'agglomération a eu lieu récemment, les agglomérats résultants présentent une forme caractéristique. Au fil du temps, la formation de ponts entre les particules primaires efface progressivement l'aspect initial de l'agglomérat en gommant les discontinuités dans la structure. L'accrétion de radicaux et d'ions carbonés se traduit par un nouvel apport de matière et peut donc également participer à cet effet de "lissage". Le petit agglomérat représenté figure 4.15 (c) est un bel exemple de ce phénomène.

La formation d'un pont entre deux particules nécessite un déplacement progressif de la matière. Celui-ci n'est possible que si la température de la particule est suffisamment élevée. Cette condition peut être aisément rencontrée dans une décharge RF où la température des particules peut être importante [22]. Ces hautes températures résultent d'un équilibre entre les flux thermiques reçus et émis par la poussière. Le bombardement de la surface des particules par les ions et les électrons du plasma, les recombinaisons électron-ion ou entre molécules dissociées à la surface des particules, sont les principaux mécanismes responsables du chauffage des poussières. Celles-ci restituent de l'énergie au plasma par radiation, conduction et convection.

En revanche, le substrat étant en contact direct avec le tube métallique contenant l'azote liquide ($T=77$ K), sa température est très basse. La probabilité pour que les agglomérats observés aient été formés en surface sur le substrat est donc faible. Ceux-ci ont vraisemblablement été formés en volume au sein du plasma.

L'origine des particules de type 2, parfaitement sphériques et mono dispersées reste à expliquer. En effet ces particules sont peu observées au sein des agglomérats. Par ailleurs,

elles ne sont que très rarement détectées lors des mesures d'extinction réalisées à hauteur de gaine cathodique. Enfin, elles ne sont jamais observées sur les dépôts de poudres réalisés à l'anode.

Ces particules sont en revanche observées sur la quasi totalité de la surface des échantillons analysés (figure 4.14). La faible densité de ces particules explique qu'elles ne soient que rarement empilées les unes sur les autres, ce qui permet d'obtenir des couches de simple épaisseur (figure 4.15).

En observant les films réalisés au cours des expériences, une corrélation a pu être établie entre la position des particules collectées sur le substrat, et leur position dans la chambre au moment de leur collection. Il apparaît ainsi que ces particules sont parmi les premières à être collectées et qu'elles étaient présentes à proximité du point froid avant l'insertion de l'azote liquide. Elles proviennent probablement de l'espace inter-électrode.

Certaines de ces particules sont ainsi situées en périphérie de la décharge, où elles tombent lentement sous l'effet de la gravité (cf §4.2.2.0). Leur forme sphérique prononcée peut s'expliquer par leur temps de séjour important dans le plasma qui leur permet de collecter en quantité, radicaux, ions et molécules carbonées présents au sein du plasma.

Cette hypothèse est appuyée par d'autres expériences similaires à celles reportées ici mais pour lesquelles le tube métallique est refroidi avant l'injection d'acétylène dans le plasma. Dans ces conditions, les poudres sont capturées par le point froid plus tôt au cours de leur formation. La population de particules de type 2 n'est alors plus observée. Les poussières collectées sur le substrat sont de tailles très diverses et leur surface ne présente pas l'aspect lisse et régulier des particules de type 2 comme on peut le voir sur la photographie MEB présentée figure 4.18. De telles morphologies sont observées pour de faibles temps de séjour des particules au sein du plasma, ces temps courts ne permettant pas la réorganisation de la surface. Ces observations confirment l'influence du temps de séjour des particules dans le plasma sur leur morphologie.

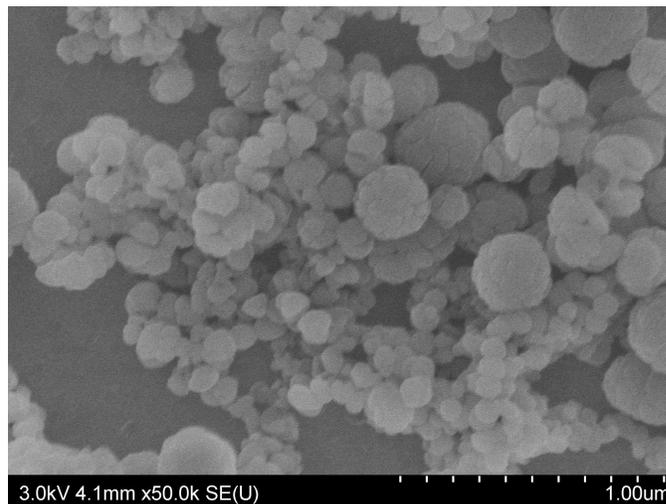


Figure 4.18 – Exemple de particules collectées lorsque le tube est refroidi avant l'injection d'acétylène.

La faible densité de particules présentes limite leur agglomération ce qui explique leur faible incorporation au sein des agglomérats. Elle pourrait par ailleurs expliquer qu'elles ne soient pas observées sur les substrats placés sur l'anode.

Enfin, cette faible densité de particules le long du trajet du faisceau lumineux utilisé pour les mesures d'extinction explique qu'elles ne soient que rarement détectées au cours des différentes expériences.

Cette technique d'extraction permet donc de collecter les poudres produites de manière différenciée. Les particules issues de la gaine cathodique (agglomérats) sont capturées en haut du substrat. Les particules issues de la gaine anodique sont quant à elles collectées à l'extrémité basse du substrat. La partie intermédiaire de l'échantillon est quant à elle recouverte d'une fine épaisseur de particules sphériques présentant une surface lisse et une distribution en taille étroite. Ces particules proviennent probablement du milieu de la décharge.

4.4.4 Influence de la pression

Une série d'expériences a été effectuée afin de tester l'influence de la pression sur la collection des poudres par le point froid. Les conditions expérimentales sont les suivantes : $P_{RF}=10$ W, $Q_{C_2H_2}=1$ sccm pendant une minute, azote liquide inséré 10 minutes après l'injection d'acétylène. Quatre expériences ont été réalisées pour des pressions de 60, 100, 150 et 200 mTorr. La valeur de la pression est choisie en injectant une quantité plus ou moins grande d'argon au début de l'expérience. Aucun pompage des gaz n'est effectué.

Parmi les tendances observées au cours de cette systématique, deux d'entre elles sont particulièrement marquées. Il s'agit de l'évolution du temps de collection des poudres avec la pression, et de l'évolution du diamètre moyen des particules de type 2.

Temps de collection des poudres

Le temps nécessaire à l'extraction des poudres hors de la décharge est défini de deux manières différentes, selon le diagnostic utilisé pour le déterminer.

- Pour les mesures de $|V_{bias}|$: c'est la durée séparant le moment où l'azote liquide est injecté et le moment où la valeur de $|V_{bias}|$ retrouve sa valeur initiale, c'est-à-dire en plasma d'argon pur. On l'appelle T_{bias} .
- Pour les mesures d'extinction : c'est la durée séparant le moment où l'azote liquide est injecté et le moment où la densité totale de poussières atteint 5% de sa valeur maximale. On l'appelle T_{ext} .

Les résultats obtenus pour ces deux mesures du temps d'extraction des poudres sont présentés figure 4.19.

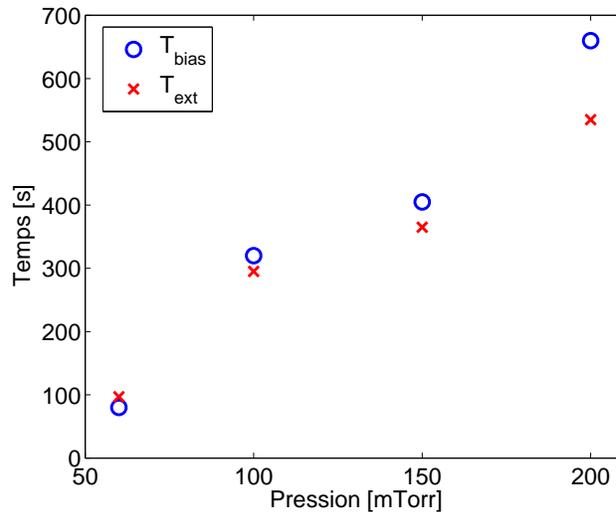


Figure 4.19 – Temps nécessaire à l'extraction des poudres en fonction de la pression.

T_{bias} et T_{ext} ont des valeurs similaires, en particulier pour les trois premiers points de mesure. Le temps nécessaire pour permettre l'extraction des poudres hors de la décharge augmente avec la pression.

Une baisse de l'intensité de la force de thermophorèse paraît peu crédible pour expliquer une telle tendance car celle-ci ne dépend pas de la pression. Travailler à plus haute pression signifie diminuer le rapport E/P, ce qui dans cette gamme de paramètres se traduit par une diminution de l'ionisation. Il en résulte que la valeur de $|V_{bias}|$ est diminuée, affaiblissant du même coup le champ électrique moyen dans la gaine cathodique. Ceci est illustré par la figure 4.20 sur laquelle l'évolution de $|V_{bias}|$ en fonction de la pression est présentée, pour une puissance fixée à 25 W.

Comme expliqué au §4.2, la force électrique joue en faveur de l'extraction des poudres hors des gaines (figure 4.6). Ainsi, en travaillant à plus haute pression et à puissance fixe, l'expulsion des poudres sous l'effet de la force électrique est moins marquée, rendant plus difficile la collection des poussières par le point froid.

Par ailleurs, la migration des poudres, de leur position initiale vers la zone froide de la chambre, est entravée par les forces de frottement des neutres. Ces forces dépendent directement de la densité de neutres. Elles deviennent donc plus importantes à plus haute pression, pénalisant ainsi l'extraction des poussières. De plus, le profil du gradient de température doit probablement être modifié en fonction de la pression.

Taille des particules sphériques mono-disperses (type 2)

La figure 4.21(a) présente l'évolution du diamètre de Sauter des particules de type 2 en fonction de la pression. Pour déterminer ces valeurs, la taille de nombreuses particules

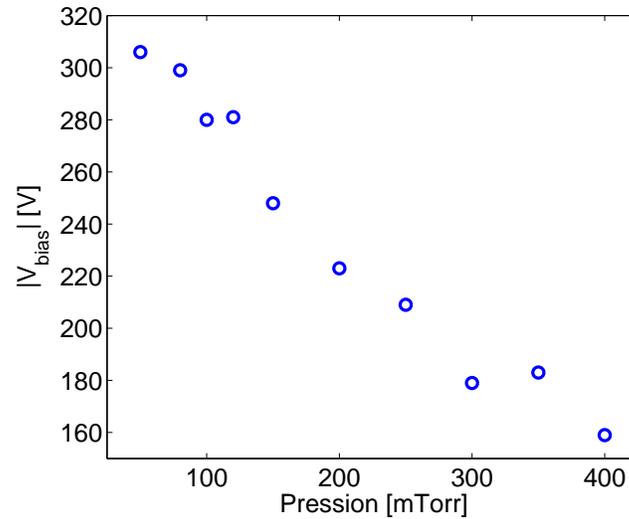


Figure 4.20 – Évolution de $|V_{bias}|$ en fonction de la pression. $P_{RF}=25$ W.

(au minimum 100) a été mesurée à l'aide des clichés réalisés au MEB sur les dépôts. Un exemple de distribution en taille obtenu est présenté figure 4.21(b). Il correspond à l'expérience réalisée à 100 mTorr.

On observe que le diamètre de Sauter des particules de type 2 augmente avec la pression. Cette tendance peut être attribuée à l'augmentation du temps de séjour de ces particules dans le plasma (cf § précédent), ce qui les autorise à croître davantage. En particulier, cela permet à la phase de croissance par accréation de molécules, radicaux et ions carbonés sur la surface des particules, de se prolonger sur une longue période, ce qui confère aux particules leur aspect sphérique et leur surface lisse. La pression pourrait également avoir une influence sur la production d'ions et de radicaux carbonés par dissociation de l'acétylène, en modifiant les caractéristiques des électrons (n_e et T_e). On peut cependant supposer que l'impact de cet effet sur la taille des particules de type 2 est négligeable en raison du fait qu'une quantité limitée d'acétylène est injecté pendant une période de seulement une minute, et qu'un temps d'attente de 10 minutes est ensuite respecté. Il est donc probable que la totalité des molécules d'acétylène soit dissociée au cours de chacune des expériences réalisées aux différentes pressions.

Le dispositif utilisé permet donc de produire des particules sphériques calibrées monodispersées. La taille des particules formées peut être contrôlée simplement en ajustant la pression dans l'enceinte.

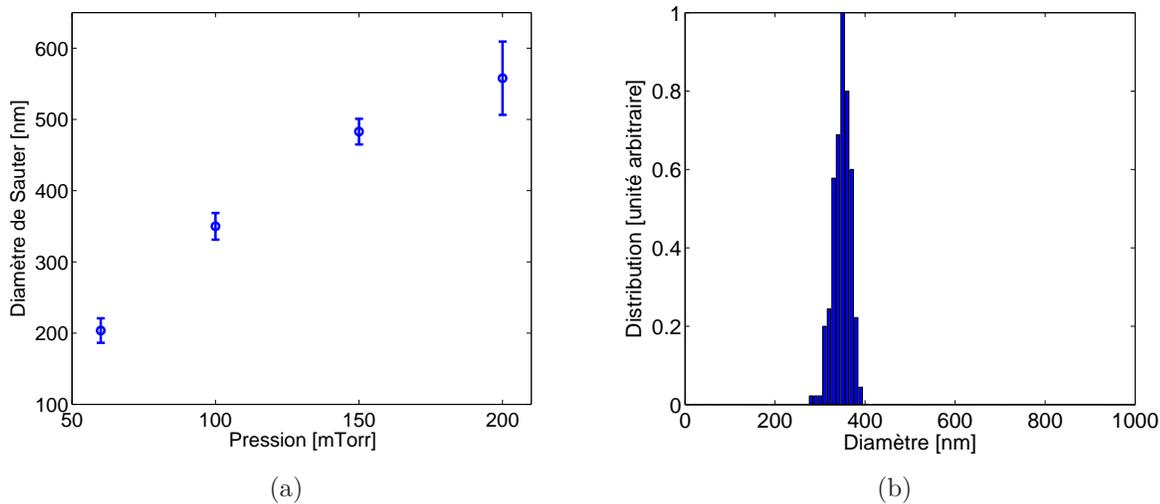


Figure 4.21 – (a) Évolution du diamètre de Sauter des particules de type 2 en fonction de la pression, obtenue grâce aux clichés MEB et (b) exemple de distribution en taille mesurée au MEB (100 mTorr).

4.5 Conclusion

Dans ce chapitre, une méthode permettant d'extraire les poussières du plasma a été mise au point. Elle repose sur l'utilisation de la force de thermophorèse afin d'induire un mouvement des particules vers une zone froide de la chambre. Cette zone froide est créée grâce à un tube métallique refroidi à l'azote liquide et situé à proximité de la paroi du réacteur. Les particules se déposent sur le tube métallique sur lequel un substrat peut être placé, autorisant leur récupération afin de procéder à des analyses ex-situ.

Cette technique s'est révélée efficace puisqu'elle permet d'extraire la grande majorité des poudres initialement présentes dans la décharge. Un délai entre le refroidissement du tube et la dé-pollution complète de la décharge est cependant nécessaire. La durée de cette période augmente nettement avec la pression dans l'enceinte.

La capture des poussières se fait de manière différenciée. La position des poussières collectées sur le substrat dépend de leur lieu de formation et de piégeage dans la décharge. Les poussières issues des gaines cathodique et anodique sont collectées respectivement aux extrémités haute et basse du substrat. Les poussières situées entre la paroi et la zone centrale (périphérie de la décharge) recouvrent une large zone au centre du substrat. Les analyses effectuées au MEB sur cette dernière population de poussières ont révélé qu'elles étaient sphériques et mono-dispersées. La surface de ces particules apparaît régulière et lisse. Le diamètre de ces particules, de quelques centaines de nanomètres, peut être contrôlé en ajustant la pression dans l'enceinte.

A terme, un dispositif similaire pourrait être utilisé afin de déposer des particules sphériques calibrées sur une surface.

Chapitre 5

Étude des ondes de densité de poussières au sein des gaines

5.1 Généralités sur les ondes de poussières

Dans cette première partie, une étude bibliographique sommaire est présentée. Elle permet d'appréhender les concepts basiques des ondes de poussières.

5.1.1 Introduction

D'une manière générale, un plasma permet la propagation de différents types d'ondes. Il est généralement composé de deux types d'espèces chargées, électrons et ions, dont les mobilités sont très différentes ($m_e \ll m_i$). Il en résulte que différents types d'ondes faisant intervenir l'une ou l'autre, ou même les deux espèces, peuvent exister. Nous nous intéressons ici uniquement au cas des ondes dites longitudinales, c'est-à-dire pour lesquelles la direction de propagation (indiquée par le vecteur d'onde \vec{k}) est parallèle au champ électrique \vec{E} de l'onde. Pour une onde plasma électronique (également appelée onde de Langmuir) les ions sont considérés comme immobiles et seuls les électrons sont mis en mouvement par le champ électrique, permettant ainsi la propagation de l'onde à relativement hautes fréquences ($\omega_{pi} < \omega < \omega_{pe}$, avec ω_{pe} et ω_{pi} les pulsations plasma électronique et ionique). A des fréquences plus basses ($\omega \leq \omega_{pi}$), les ions sont capables de réagir aux perturbations de champ électrique et donnent alors naissance à un autre type d'ondes communément appelées ondes acoustiques ioniques. De plus, si la température électronique est grande devant la température ionique ($T_e \gg T_i$), la grande agitation thermique des électrons empêche l'amortissement du mouvement des ions et l'onde acoustique ionique peut se propager.

La présence de poussières au sein du plasma a pour conséquence l'apparition de nouveaux types d'ondes. On distingue alors deux cas :

1. Le premier cas correspond à une modification d'un mode existant en plasma non poussiéreux. Ainsi, les ondes acoustiques ioniques de poussières ("dust ion acoustic wave" dont l'acronyme correspondant est "DIAW") sont une modification des

ondes acoustiques ioniques telles qu’elles ont été énoncées précédemment (voir par exemple [74]). La collection d’électrons par les poussières se traduit par une baisse de la densité électronique qui engendre une augmentation de la longueur de Debye électronique $\lambda_{D,e}$. Le champ électrique de l’onde qui naît des déplacements des charges s’en trouve amplifié provoquant une augmentation de la vitesse de phase de l’onde, par rapport aux ondes acoustiques ioniques classiques.

2. Le second cas est un nouveau type d’onde mettant en jeu les poussières elles-mêmes. Deux sous-catégories peuvent alors être observées selon que les poussières interagissent entre elles directement (a) ou indirectement (b) :

(a) **Les “dust lattice waves” (“DLW(s)”)** correspondent au cas où les poussières interagissent de manière directe entre elles. Dans ce mode, les perturbations se propagent de proche en proche grâce aux fortes interactions électrostatiques entre les poussières elles-mêmes. On parle de régime fortement couplé. Ce type d’onde est particulièrement rencontré dans les plasmas poussiéreux où de grosses poussières sont organisées en cristal.

(b) **Les ondes de densité de poussières (“DDW(s)”) et les ondes acoustiques de poussières (“DAW(s)”)** mettent en jeu des interactions indirectes entre les poussières par le biais des ions et des électrons libres restant. On dit que les poussières sont faiblement couplées. Lorsque les poussières se déplacent autour de leur position d’équilibre, elles perturbent les ions et les électrons voisins. Ces derniers influencent alors à leur tour les poussières. C’est la raison pour laquelle on décrit souvent ces ondes en disant que les poussières sont responsables de l’inertie du mode, tandis que les autres particules du plasma sont responsables du couplage.

Une poussière ne peut répondre à une sollicitation périodique de pulsation ω que si celle-ci est inférieure ou égale à la pulsation caractéristique des poussières ω_{pd} . Leur masse étant très grande devant celles des particules du plasma ($m_e \ll m_i \ll m_d$), la fréquence caractéristique ω_{pd} est très inférieure à celle des ions et des électrons ($\omega_{pd} \ll \omega_{pi} \ll \omega_{pe}$). Les fréquences et les vitesses de phase de ces ondes sont donc très inférieures à leurs homologues “classiques” qui concernent directement les espèces du plasma (ondes acoustiques ioniques par exemple). Typiquement, les vitesses de propagation de ce type d’ondes sont de l’ordre de 10 cm.s^{-1} et les fréquences varient de quelques dizaines à quelques centaines de Hertz. Les longueurs d’onde correspondantes ont des dimensions de l’ordre du centimètre ou du millimètre.

La différence entre les DDWs et les DAWs est liée à la présence d’un champ électrique externe E important. Celui-ci met alors en mouvement les espèces chargées (ions, poussières et électrons), influençant la propagation de l’onde. On parle alors de DDWs. La situation contraire, obtenue pour un faible champ électrique, correspond aux DAWs. Comme nous le verrons par la suite, le flux d’ions entraînés par le champ électrique peut jouer un rôle important dans l’excitation des ondes de poussières (cf §5.1.2). Le critère permettant de déterminer si les ondes de poussières doivent être considérées comme des

DDWs ou des DAWs peut donc s'exprimer en terme de vitesse d'entraînement des ions.

On distingue alors deux situations :

- Si la vitesse d'entraînement des ions est inférieure à leur vitesse thermique : $u_{i0} < \underline{v_{i,th}}$

Cette situation fut étudiée par Rosenberg [83], qui retrouva avec une approche cinétique la relation de dispersion obtenue par Rao *et al.*, et par D'Angelo et Merlino [84] avec une approche fluide. Dans ces conditions, l'onde est de nature acoustique (DAW) et u_{i0} peut être négligée dans la relation de dispersion. Celle-ci s'écrit alors dans le cas non-collisionnel :

$$\omega^2 = k^2 \frac{\omega_{pd}^2 \lambda_D^2}{1 + k^2 \lambda_D^2}, \quad (5.1)$$

avec ω la pulsation de l'onde, k le module du vecteur d'onde et λ_D la longueur de Debye linéarisée, généralement assimilable à la longueur de Debye ionique $\lambda_{Di} = \sqrt{\epsilon_0 k_B T_i / n_{i0} e^2}$.

Dans l'hypothèse des grandes longueurs d'onde, la vitesse de phase de l'onde s'écrit donc :

$$C_{DAW} = \omega_{pd} \lambda_D. \quad (5.2)$$

La vitesse de propagation de l'onde est limitée par la capacité des poussières à réagir aux perturbations, d'où la présence du terme ω_{pd} . La transmission du mouvement entre les poussières est principalement assurée par la compression des ions, ce qui explique l'apparition, dans l'expression de C_{DAW} , de la longueur de Debye ionique caractérisant l'écrantage des poussières.

Ce mode est plus facilement amorti comparativement aux DDWs, principalement par les collisions avec les neutres (cf §5.1.3). Les calculs de D'Angelo et Merlino indiquent également que l'attachement des électrons aux poussières favorise l'apparition des DAWs. Dans la littérature, il est dit que le mode est d'autant plus instable que la densité d'électrons libres est faible. La présence de ces derniers a donc un caractère stabilisant pouvant même conduire à l'amortissement des DAWs [84].

- Si la vitesse d'entraînement des ions est supérieure à leur vitesse thermique : $u_{i0} > \underline{v_{i,th}}$

Le mouvement des ions ne peut pas être négligé et l'onde ne peut pas être considérée comme acoustique. Ce cas est rencontré dans de nombreuses conditions expérimentales, en particulier dans les gaines, où des champs électriques importants sont présents. La relation de dispersion, dont le calcul est donné à l'annexe B, s'écrit alors [85] :

$$1 - \sum_{j=i,e,d} \frac{\omega_{pj}^2}{(\omega - ku_{j0})(\omega - ku_{j0} + i\nu_{jn}) - k^2 v_{j,th}^2} = 0, \quad (5.3)$$

avec u_{j0} la vitesse d'entraînement de l'espèce j (ion, électron ou poussière), ν_{jn} la fréquence de collision de l'espèce j avec les neutres et $v_{j,th}$ la vitesse thermique de l'espèce j .

Dans ce cas, la vitesse de phase de l'onde est plus complexe à déterminer et ne peut être décrite à l'aide d'une expression analytique. Cependant, comme l'a suggéré A. Piel [86], elle peut être approchée par l'expression 5.4

$$C_{DDW} = \omega_{pd} \lambda_{D,eff} , \quad (5.4)$$

où $\lambda_{D,eff}$ est une longueur de Debye effective tenant compte de la vitesse dirigée u_{i0} des ions. Son expression est donnée par l'équation 5.5 :

$$\lambda_{D,eff} = \lambda_{De} \left(\frac{k_B T_i + m_i u_{i0}^2}{k_B T_e + k_B T_i + m_i u_{i0}^2} \right)^{\frac{1}{2}} . \quad (5.5)$$

Cette relation permet de comprendre qualitativement l'effet d'une augmentation de u_{i0} . Lorsque u_{i0} devient très grand, $\lambda_{D,eff}$ tend vers la longueur de Debye électronique $\lambda_{De} = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T_e}{n_e e^2}}$. Seuls les électrons participent à l'effet d'écran. Le faible temps d'interaction des ions dû à leur grande vitesse, réduit considérablement leur capacité à écranter les poussières.

La propagation de l'onde est donc différente du cas acoustique. En particulier, sa fréquence et sa vitesse de propagation sont supérieures au cas acoustique. Ce sont ces considérations qui ont conduit certains auteurs [86] à adopter une nouvelle dénomination pour cette onde afin de la différencier du cas acoustique : l'onde de densité de poussières ("DDW(s)").

La prédiction théorique de l'existence des ondes acoustiques de poussières, avant même qu'elles ne soient observées expérimentalement, fût faite en 1990 par Rao *et al.* [87]. L'établissement des relations de dispersion des DDWs et des DAWs est donné à l'annexe B. Dans une publication parue en 1994, Chu *et al.* [88] rapportent la première observation expérimentale d'oscillations de poussières formées dans un plasma RF magnétisé contenant un mélange $\text{SiH}_4/\text{O}_2/\text{Ar}$. D'Angelo identifia dans un commentaire [89] paru l'année suivante le phénomène observé par Chu *et al.* comme étant une manifestation des ondes acoustiques de poussières.

Ces ondes peuvent apparaître spontanément, c'est à dire sans être forcées par l'expérimentateur (on parle d'auto-excitation, cf par exemple [90]) ou être artificiellement excitées. Dans ce dernier cas, plusieurs méthodes ont été utilisées : excitation par impacts de gaz [91], polarisation basse fréquence d'une électrode [92], pression radiative générée par impacts laser [93]... Les expériences dans lesquelles les ondes de poussières sont générées artificiellement ont un intérêt certain puisqu'elles offrent la possibilité de remonter expérimentalement à la relation de dispersion (voir par exemple [94]). Pour une fréquence d'excitation fixée par l'expérimentateur, celui-ci peut mesurer la longueur d'onde et la

vitesse de propagation des fronts d’onde pour caractériser complètement la propagation de celle-ci. Ce type de travaux a permis de valider certaines théories établies sur la propagation des ondes acoustiques de poussières et ainsi de vérifier la véracité des relations de dispersion établies (voir par exemple [95]). La synchronisation des ondes de poussières avec la fréquence d’excitation n’est cependant pas systématiquement réalisée. Au cours de certaines de ces expériences [92] pour lesquelles les DAWs étaient excitées artificiellement, il a été observé la superposition du mode naturel (auto-excité) et du mode forcé (excitation externe). Par ailleurs, si la différence entre la fréquence du mode naturel et la fréquence d’excitation est trop importante, des ondes peuvent apparaître avec des fréquences qui sont des harmoniques de la fréquence d’excitation [96, 97].

L’investigation des mécanismes permettant d’expliquer l’auto-excitation des ondes acoustiques de poussières constitue un point fondamental. Le paragraphe suivant présente brièvement et de manière non exhaustive les principales théories actuellement avancées sur ce point.

5.1.2 Auto-excitation des ondes acoustiques de poussières

• Instabilité de flux ions-poussières

Une des principales causes susceptible de déclencher l’apparition d’ondes de poussières est appelée instabilité de flux ions-poussières. Cette instabilité est similaire aux instabilités de courant dans les plasmas dits “classiques” comme les instabilités de Buneman [98]. En présence d’un champ électrique, les ions (positifs) sont accélérés dans une direction et les poussières (négatives) dans l’autre, en raison de leur charge de signe opposé. Les électrons jouent un rôle mineur, notamment en raison du fait qu’ils sont en grande partie collectés par les poussières. Les vitesses relatives entre les ions et les poussières sont à l’origine de l’instabilité. La source d’énergie libre permettant l’entretien de l’onde provient du flux ionique.

Les situations expérimentales sont nombreuses (gaine, colonne positive...) dans lesquelles un champ électrique externe et le flux d’ions qui lui est associé sont présents dans une partie de la décharge. C’est la raison pour laquelle l’instabilité de flux (de courant) ions-poussières est souvent mise en avant (voir par exemple [99, 100, 69, 45]) comme étant l’explication la plus probable pour l’excitation des ondes acoustiques de poussières observées dans leurs expériences.

• Forces externes dépendantes de la charge et fluctuations de charge

Dans un article paru en 2000 [101], Fortov *et al.* suggèrent que l’instabilité de flux ions-poussières n’est parfois pas suffisante pour expliquer l’existence de DAWs spontanément excités. Plusieurs effets (frottements poussières-neutres, variation de la charge des poussières...) devraient en effet conduire à un amortissement des DAWs dans les conditions expérimentales employées. Les auteurs suggèrent qu’un mécanisme additionnel doit avoir lieu afin de permettre leur entretien. Ils proposent que les fluctuations de charge subies par les poussières lors du passage de l’onde provoquent une amplification de cette dernière permettant ainsi son maintien. Cette amplification est due à l’effet cumulé de la force électrostatique liée au champ électrique externe, et des fluctuations de charge des poussières

provoquées par le passage de l'onde. Ces fluctuations sont causées par les modifications locales des densités ionique et électronique. Comme la force électrostatique dépend de la charge des poussières, une variation de la charge peut causer une variation de la force électrostatique. Celle-ci peut alors conduire à une amplification du mouvement des poussières (provoquée initialement par le champ électrique de l'onde).

- **Fluctuations aléatoires de densité**

Un autre mécanisme physique mis en avant par Zobnin *et al.* [102] et Fortov *et al.* [103] pourrait, dans certaines conditions, être responsable des DAWs. Dans ces études expérimentales, les poussières sont mises en suspension grâce au champ électrique ambipolaire qui règne en périphérie du plasma. En fonction de la pression de travail, des DAWs sont observées si la densité de poussières et le champ électrique sont suffisamment élevés. L'origine supposée de l'instabilité réside dans des fluctuations aléatoires de densité de poussières. Ces fluctuations se propagent de proche en proche dans le nuage de poussières et sont amplifiées par le champ électrique ambipolaire. L'amplification étant sélective selon la fréquence des fluctuations, il ne subsiste in-fine qu'un mode de propagation correspondant aux ondes acoustiques de poussières observées.

5.1.3 Conditions d'existence des ondes de poussières

- Pour qu'une onde acoustique de poussières puisse exister, la densité de poussières présentes dans le milieu doit être suffisamment élevée. Cette notion de seuil en densité de particules a été reportée par de nombreux auteurs (cf par exemple [103]).

- Dans les plasmas froids de laboratoire, les espèces neutres sont généralement majoritaires en raison des faibles taux d'ionisation. Il en résulte que la principale cause à l'origine de la dissipation d'énergie des DAWs (DDWs) est liée aux collisions neutres-poussières. Pour observer des ondes acoustiques de poussières il est donc nécessaire de travailler à une pression inférieure à une certaine valeur seuil, pour limiter leur amortissement. Comme nous l'avons expliqué au paragraphe 5.1.2, si l'on admet que les DAWs (DDWs) sont provoquées par une instabilité de flux ions-poussières, leur existence est conditionnée par la présence d'un champ électrique suffisamment fort. Dans ce cas, la valeur du seuil en pression est relative à la valeur du champ électrique qui règne dans la zone considérée et vice versa. Il devient donc possible de définir un domaine de stabilité du couple (E_0, P_0) (où E_0 représente la valeur du champ électrique et P_0 la pression) pour lequel aucune onde acoustique de poussières ne peut exister. Ce travail a été entrepris par Merlino dans [104] et les résultats qu'il a obtenus sont présentés figure 5.1. Les courbes représentent les frontières théoriques du domaine de stabilité. Un couple (E_0, P_0) situé au-dessus d'une courbe signifie que les conditions qui s'y rapportent sont telles que des DAWs ne peuvent pas exister.

Les conditions (E_0, P_0) pour lesquelles des DAWs ont été observées par plusieurs groupes de recherche sont également représentées sur le graphique. Elles sont indiquées

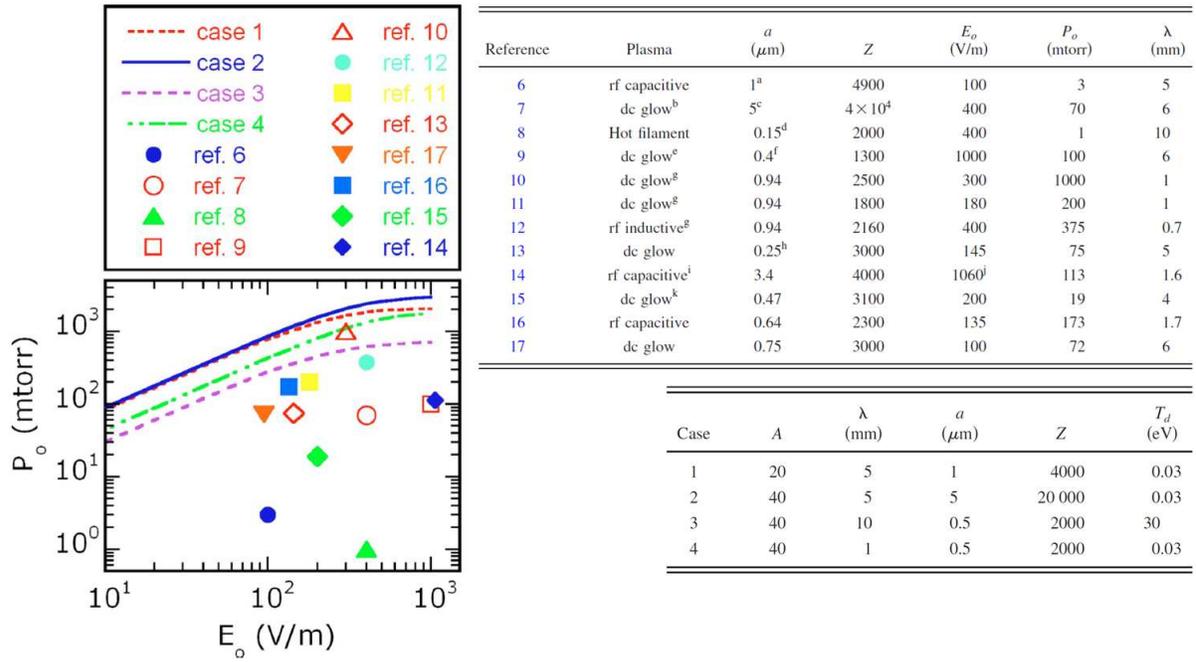


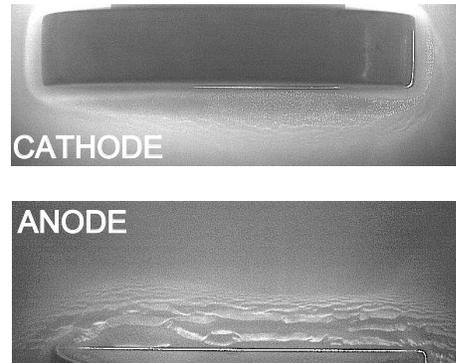
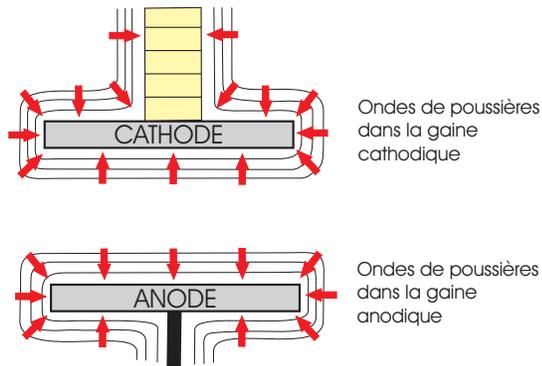
Figure 5.1 – Domaine d’existence des DAWS dans le plan (E_0, P_0) [104].

par les différents symboles. On remarque que toutes ces conditions s’inscrivent dans le domaine situé en-dessous des courbes théoriques, appelé domaine d’instabilité.

La prise en compte des collisions avec les espèces neutres dans les calculs théoriques et les interprétations physiques des résultats obtenus est donc d’une grande importance.

5.1.4 Résumé

La présence de poussières au sein d’un plasma peut être à l’origine de l’existence de nouveaux types d’ondes. Parmi elles, figurent les ondes acoustiques de poussières (DAWs). Dans ce mode, l’inertie est assurée par les poussières tandis que la propagation de la perturbation est assurée majoritairement par les ions. Les mécanismes permettant l’excitation des DAWs constituent encore à l’heure actuelle une question importante. Dans de nombreux cas cependant, l’instabilité de flux ions-poussières apparaît comme la cause la plus probable de l’excitation des DAWs. Elle est causée par la différence entre la vitesse acquise par les ions et les poussières dans un champ électrique. La valeur du champ électrique permettant l’apparition des DAWs dépend de la pression du gaz. Il est également nécessaire que le milieu soit suffisamment dense en poussières. Pour de grandes vitesses d’entraînement des ions dans le champ électrique, la nature des ondes acoustiques est modifiée. On parle alors d’ondes de densité de poussières (DDWs).



(a) Schéma de la décharge indiquant la localisation des ondes de poussières. Les flèches rouges indiquent leur sens de propagation.

(b) Photographie.

Figure 5.2 – Localisation des ondes de poussières dans la décharge.

5.2 Conditions d'observation des ondes de poussières

Cette section a pour objectif de décrire de manière très générale les conditions dans lesquelles sont observées les ondes de poussières dans notre étude. En outre, elle permet de définir le contexte de l'étude et de reprendre certains points fondamentaux nécessaires à la compréhension des résultats.

5.2.1 Apparition des ondes de poussières

Les ondes de poussières apparaissent généralement dans deux zones distinctes de la décharge : les gaines cathodique (électrode supérieure) et anodique (électrode inférieure). Ces régions sont caractérisées par l'existence d'un champ électrique moyen permanent, à l'origine de flux d'ions dirigés du plasma vers les électrodes, comme représenté sur la figure 5.2(a). Notons que cette direction est également celle dans laquelle se propagent les ondes de poussières. Il apparaît donc que la présence d'un champ électrique, ainsi que du flux d'ions associé, soit un élément nécessaire à l'apparition des ondes de poussières dans nos conditions expérimentales. Le mécanisme d'instabilité flux ions-poussières (cf paragraphe 5.1.2) semble donc la cause la plus probable pour l'excitation des ondes de poussières dans nos expériences. Les vitesses atteintes par les ions au sein des gaines sont importantes et supérieures à leur vitesse thermique : $u_{i0} > v_{i,th}$. Nous ferons donc référence aux ondes de poussières en utilisant la terminologie "onde de densité de poussières" (DDW(s)) dans la suite de ce manuscrit.

L'accumulation rapide de poussières au sein de la gaine cathodique permet aux ondes de densité de poussières d'apparaître rapidement après l'injection d'acétylène. Ce délai est en revanche plus prononcé dans le cas anodique en raison de l'apport différé en particules

d'une part, et de la plus faible valeur du champ électrique d'autre part. Cette dernière caractéristique constitue une différence majeure entre les cas cathodique et anodique :

- L'anode étant reliée à la masse, son potentiel est nul et la chute de potentiel au sein de la gaine est directement liée au potentiel plasma dont la valeur est typiquement inférieure à quelques dizaines de volts. En considérant une épaisseur comprise entre quelques millimètres et un centimètre (voir figure 5.11 §5.3.3), le champ moyen résultant est de l'ordre de 10 V.cm^{-1} .
- Dans le cas cathodique, le potentiel moyen de l'électrode est égal à la tension d'auto-polarisation, typiquement la centaine de volts. En considérant toujours une longueur de gaine de l'ordre du centimètre, cela conduit à une valeur moyenne du champ électrique autour de 100 V.cm^{-1} , soit un ordre de grandeur de plus qu'à l'anode.

Ainsi pour une puissance de 25 W, une pression de 300 mTorr et un débit de C_2H_2 injecté de 2 sccm, les DDWs apparaissent environ 10 secondes après l'injection d'acétylène au sein de la gaine cathodique et environ 20 secondes dans le cas anodique. Ces observations sont en accord avec l'existence d'un seuil en densité de poussières pour un champ E et une pression P fixés, au-dessous duquel aucune onde de poussières ne peut exister (cf paragraphe 5.1.3). Ce seuil en densité est d'autant plus élevé que le rapport $\frac{E}{P}$ est faible.

5.2.2 Principe des expériences réalisées

Mode opératoire

La grande majorité des expériences réalisées suit le même mode opératoire. Premièrement, un plasma d'argon pur est créé. L'acquisition des différents diagnostics, comme par exemple les mesures électriques ou optiques, est ensuite démarrée de manière synchronisée. Un temps d'attente est imposé afin de garantir l'établissement d'un plasma stable. Puis l'acétylène est injecté dans le plasma pour former les poussières.

Plan de l'étude

Comme expliqué au paragraphe 5.2.1, les gaines cathodique et anodique diffèrent par de multiples aspects : intensité du champ électrique, formation et piégeage des poussières. . . Il est donc nécessaire d'étudier les DDWs rencontrées dans ces deux milieux séparément. L'étude expérimentale des DDWs se présentera donc en deux parties.

- La première est consacrée au cas anodique, pour lequel l'étude des DDWs est moins compliquée que le cas cathodique : pas de phénomène transitoire, faible modulation de l'intensité lumineuse émise par le plasma, champ électrique plus faible, évolution de la population de particules plus progressive, etc. . ., autorisant ainsi l'étude de l'influence des différents paramètres sur les caractéristiques des DDWs.
- La seconde partie est consacrée à la région cathodique, cas beaucoup plus complexe.

5.3 Ondes de densité de poussières dans la gaine anodique

Cette section est dédiée à l'étude des DDWs au sein de la gaine anodique. En particulier, l'influence des différents paramètres expérimentaux sur les propriétés des DDWs est explorée. Le premier point s'intéresse aux premiers instants qui suivent l'injection d'acétylène. Ensuite, l'évolution des caractéristiques des DDWs en fonction de la distance à l'électrode est abordée. Les deux derniers points concernent l'influence de la pression et de la puissance RF sur les propriétés des DDWs.

5.3.1 Les premiers instants après l'injection d'acétylène.

Après que l'acétylène ait été injecté, on remarque qu'un délai est nécessaire avant de voir apparaître les DDWs au sein de la gaine anodique (cf §5.2). Ce délai correspond au temps nécessaire pour que suffisamment de poussières se soient accumulées.

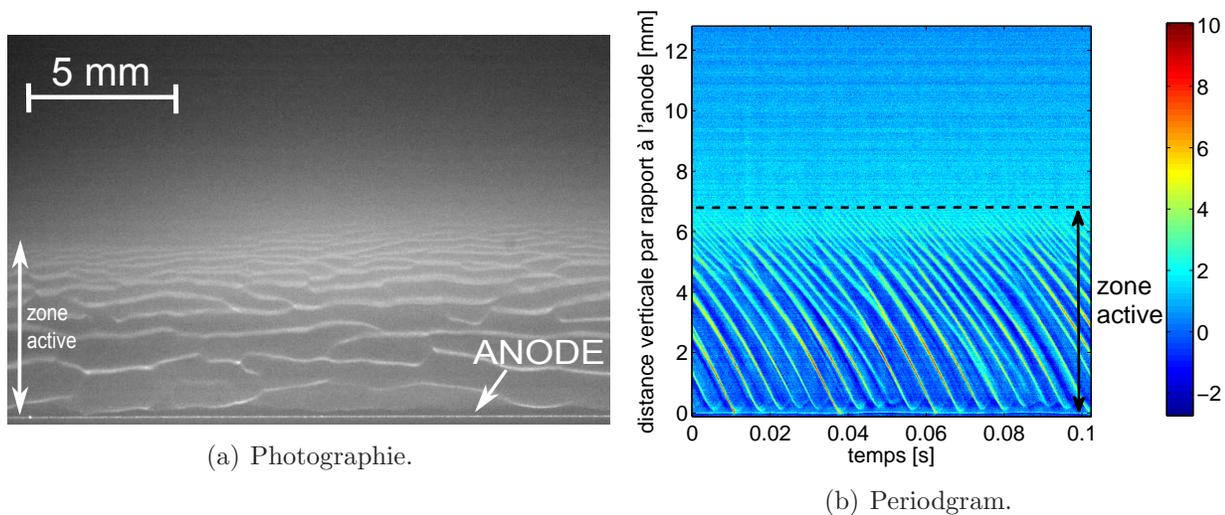


Figure 5.3 – Ondes de densité de poussières au sein de la gaine anodique à $t=60$ s. Conditions expérimentales : $P=270$ mTorr, $P_{RF}=25$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm.

Un exemple de DDWs se propageant au sein de la gaine anodique est illustré par la figure 5.3. Une photographie permettant de visualiser les fronts d'onde tels qu'ils peuvent apparaître expérimentalement est donnée figure 5.3(a). Elle est issue d'un film réalisé à $t=60$ s après l'injection d'acétylène. Afin de rendre compte de la propagation des fronts d'onde à travers la gaine, la dynamique spatiotemporelle des DDWs peut être représentée à l'aide de graphiques appelés periodgrams. La technique permettant leur réalisation est

décrite en détail au chapitre 2 §2.4.2. La figure 5.3(b) représente un periodgram issu du même film. Il a été réalisé, ainsi que les autres periodgrams présentés dans cette étude, à proximité du centre de l'électrode, afin de limiter l'influence des conditions aux limites (effets de bords de l'électrode).

La région dans laquelle les DDWs sont observées sera appelée "zone active" dans cette étude. Elle est définie comme la distance séparant les premiers fronts d'onde observables de la surface de l'anode. Son évolution temporelle est indiquée par la figure 5.4. Elle a été obtenue grâce aux films réalisés à l'aide de la caméra rapide. Celle-ci augmente de manière très importante au début de l'expérience. Le temps $t=0$ s correspond à l'instant où l'acétylène est injecté dans la décharge. Cette brusque augmentation s'achève à $t=40$ s environ et l'épaisseur de la zone active atteint alors une valeur stationnaire comprise entre 6,5 et 7 mm.

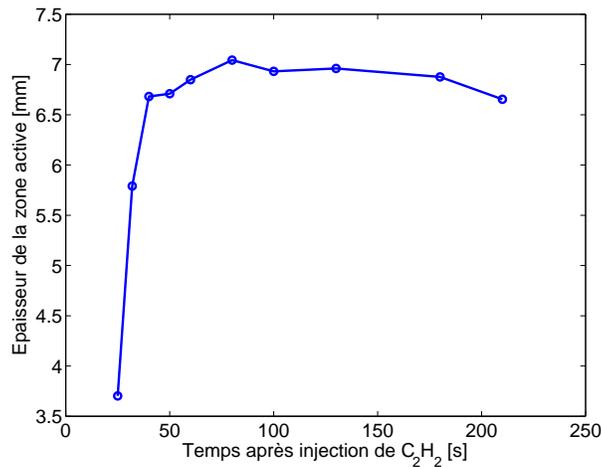


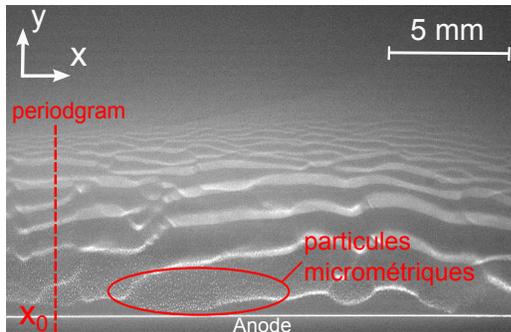
Figure 5.4 – Évolution temporelle de l'épaisseur de la zone active. Conditions expérimentales : $P=260$ mTorr, $P_{RF}=25$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm.

La zone active étant caractérisée par la présence de DDWs, elle doit nécessairement répondre à deux conditions : un champ électrique moyen E suffisamment important (à la pression P de l'expérience), et une densité de poussières suffisante. L'augmentation de son épaisseur entre $t=0$ s et $t=40$ s peut donc s'expliquer par le processus d'accumulation de poussières au sein de la gaine anodique issues de la région cathodique (cf chapitre 4). La valeur constante qu'elle présente à partir de $t=40$ s est relative à la taille de la gaine anodique, où règne un champ E faible mais suffisamment intense pour exciter les DDWs.

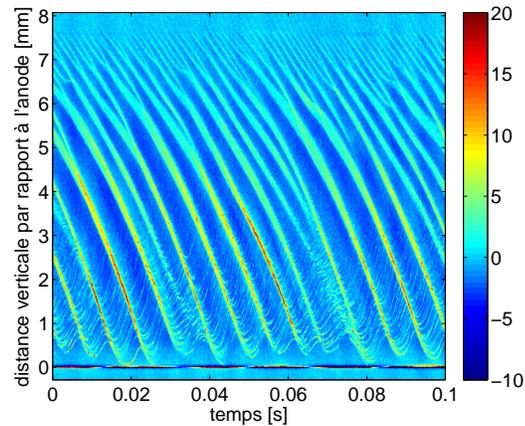
5.3.2 Évolution des propriétés des ondes de densité de poussières en fonction de la distance à l'électrode.

Présentation des résultats

Les propriétés des DDWs varient en fonction de la position dans la gaine, comme on peut le remarquer sur la photographie et le periodgram présentés figure 5.5.



(a) Photographie. La ligne rouge indique la position utilisée pour déterminer le periodgram.



(b) Periodgram.

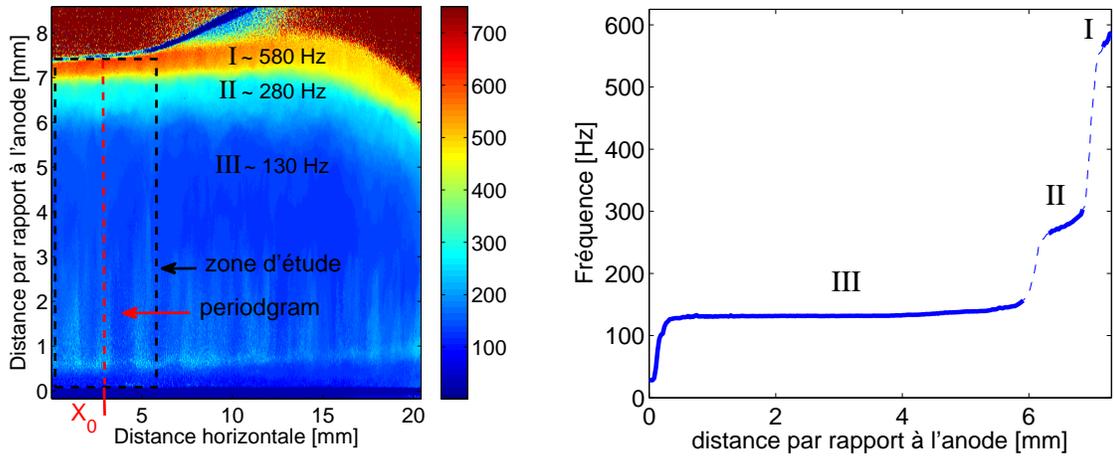
Figure 5.5 – Ondes de densité de poussières au sein de la gaine anodique à $t=120$ s. Conditions expérimentales : $P=240$ mTorr, $P_{RF}=25$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm.

A la vue de ces résultats, quelques observations peuvent être faites :

- Au début de la zone active (7,5 mm de l'anode environ), les fronts d'onde apparaissent très rapprochés les uns des autres, ce qui se traduit par une petite longueur d'onde. La fréquence y est importante.
- A proximité de l'anode, la longueur d'onde est significativement plus grande et la fréquence nettement plus faible. Par ailleurs, on peut observer que les fronts d'onde accélèrent en se rapprochant de l'électrode. Nous reviendrons sur ce point par la suite. On remarque également sur le periodgram la présence de trajectoires appartenant à des particules micrométriques présentes à proximité de l'électrode (visibles sur la photographie). Celles-ci sont emportées vers l'anode par les fronts d'onde descendant, puis remontent verticalement avant d'être interceptées par un nouveau front d'onde.
- Dans la région intermédiaire ($y > 4$ cm), on constate sur le periodgram que de nombreux fronts d'onde se regroupent les uns avec les autres de manière systématique. De plus, les fronts d'ondes s'affinent à mesure qu'ils progressent vers l'anode et leur amplitude augmente.

Une détermination quantitative de l'évolution de la fréquence, de la longueur d'onde et de la vitesse des DDWs, s'avère désormais nécessaire. Les résultats obtenus sont présentés dans la suite. Enfin, le mécanisme de regroupement des fronts d'onde sera étudié plus en détail.

- Les fréquences de passage des fronts d'onde à une position donnée (également appelées fréquences de défilement), nommées f_p , ont été déterminées pour toute la zone filmée. Pour ce faire, l'évolution temporelle des fluctuations de l'intensité lumineuse $\tilde{I}(x, y, t)$ de chaque pixel de l'image a été déterminée : $\tilde{I}(x, y, t) = I(x, y, t) - \langle I(x, y, t) \rangle_t$. Une transformée de Fourier lui a ensuite été appliquée. On sélectionne alors pour chaque spectre obtenu la fréquence principale (pic d'amplitude maximale). Les résultats obtenus sont présentés figure 5.6(a).



(a) Fréquence principale des fluctuations lumineuses de chaque pixel de l'image. (b) Evolution de la fréquence moyenne en fonction de la distance à l'anode.

Figure 5.6 – *Évolution de f_p en fonction de la position.*

Comme on peut le constater sur cette figure, la répartition spatiale des fréquences change à mesure que l'on se déplace suivant l'axe horizontal. Ces changements sont provoqués par une inhomogénéité de la répartition des poussières au sein de la gaine anodique. Elle est causée par un piégeage non uniforme des poussières qui résulte probablement de la configuration particulière du champ électrique aux bords de l'électrode. Les études menées par la suite le sont donc pour une zone restreinte indiquée sur la figure 5.6(a) (rectangle pointillés noir). Cette zone est située entre le centre de l'anode qui correspond approximativement à $X=0$ mm, et $X \simeq 5$ mm. La ligne rouge indique la position $X_0 \simeq 2,5$ cm à laquelle fût fait le periodgram de la figure 5.5(b).

Verticalement, on distingue principalement trois régions au sein desquelles f_p est à peu près constante :

- Région *I* : entre approximativement 7,4 et 7 mm de distance de l’anode, $f_p \simeq 580$ Hz,
- Région *II* : entre 7 et 6,3 mm, $f_p \simeq 280$ Hz,
- Région *III* : de 6,3 mm jusqu’aux environs de l’anode, $f_p \simeq 130$ Hz.

Ces différentes régions sont marquées par des frontières relativement nettes. Afin de mieux les faire apparaître, les fréquences des pixels d’une même ligne horizontale ont été moyennées de manière à obtenir un profil de fréquences selon l’axe vertical Y . Les résultats obtenus sont présentés figure 5.6(b).

Les positions où sont observés la majorité des regroupements de fronts d’onde (figure 5.5(b)) coïncident avec les positions où sont situées les transitions entre deux domaines de fréquence. C’est donc le mécanisme de regroupement des fronts d’onde qui permet ces changements de fréquence. Elle est ainsi divisée par un facteur deux, à deux reprises, et à chaque fois sur seulement quelques dixièmes de mm. Ceci semble indiquer que le regroupement des fronts d’onde se fait préférentiellement deux à deux.

Ce comportement particulier contraste avec une propagation d’onde linéaire. Dans ce contexte, seule la célérité peut être modifiée par des évolutions des caractéristiques du milieu (dans le cas où celui-ci est dispersif). Un tel changement induit alors une modification de la longueur d’onde mais la fréquence de l’onde demeure inchangée. La propagation des DDWs au sein de la gaine se révèle donc fortement non-linéaire et la valeur de f_p dépend directement du phénomène de regroupement des fronts d’onde. Pour cette raison, il est préférable de conserver la distinction entre la fréquence de passage des fronts d’onde à une position donnée f_p et la fréquence f_{DDW} des DDWs telle qu’elle est définie dans une relation de dispersion. Dans notre situation, la propagation de l’onde ne peut être décrite à l’aide d’une relation de dispersion.

- La longueur d’onde λ et la période T ont été déterminées en fonction de la distance à l’anode en utilisant les fluctuations d’intensités lumineuses $\tilde{I}(y, t)$ à la position X_0 . La technique utilisée à cet effet est décrite au chapitre 2 §2.4.2. La discrétisation spatiale dans la direction verticale a été choisie comme $DY=2$ pixels $\simeq 54\mu\text{m}$. La vitesse de phase des DDWs est déduite des mesures précédentes en considérant que $C_{DDW} = \lambda/T = \lambda \times f_p$. En raison de son principe de fonctionnement basé sur le calcul de moyennes, la méthode utilisée a tendance à lisser les résultats obtenus. Cet effet est particulièrement important au niveau des frontières entre les différentes régions précédemment décrites, où se produisent la majorité des regroupements de fronts d’onde. Pour cette raison, on ne conserve pas les points de mesure situés à proximité des frontières.

Les résultats obtenus pour la longueur d’onde λ et la vitesse de phase C_{DDW} sont présentés figure 5.7.

La longueur d’onde augmente au fur et à mesure que l’on se rapproche de l’anode (figure 5.7(a)). Les transitions entre les régions *III-II* et *II-I* s’expliquent par le mécanisme

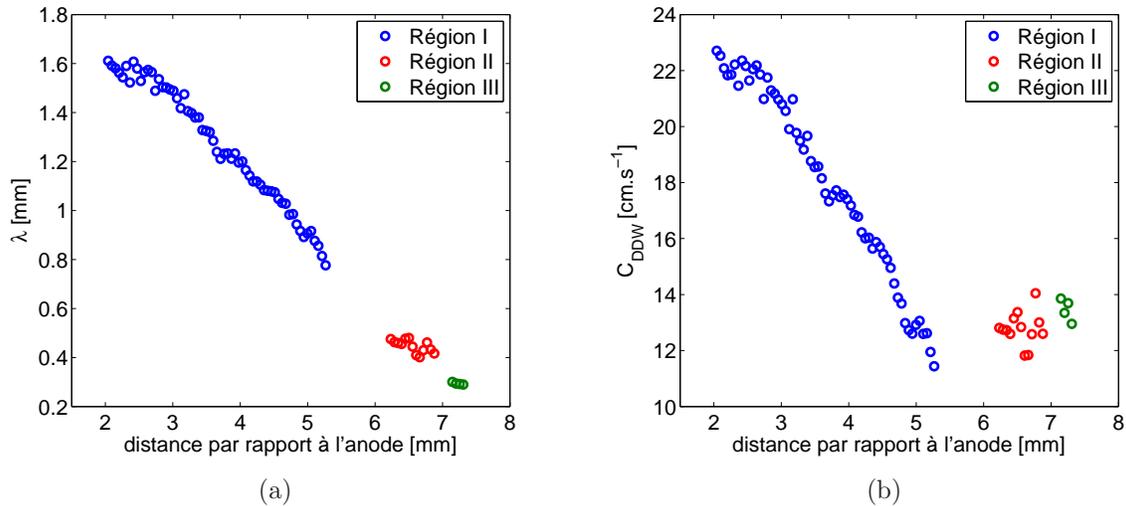


Figure 5.7 – Évolution de la longueur d’onde λ et de la vitesse de propagation C_{DDW} des DDWs à travers la gaine anodique.

de regroupement des fronts d’onde, qui a principalement lieu dans la partie supérieure de la zone active. La longueur d’onde est ainsi pratiquement divisée par deux à chaque transition. La région *I* est caractérisée par une accélération des fronts d’onde en direction de l’anode qui se traduit par l’augmentation de λ et C_{DDW} .

- Le regroupement des fronts d’onde a un impact majeur sur les paramètres des DDWs. Il est donc nécessaire d’en approfondir la description. La figure 5.8 présente un periodgram correspondant à une expérience réalisée à plus basse pression que précédemment : $P=170$ mTorr. On a également représenté l’évolution temporelle de l’intensité totale de l’image $I_{tot}=\sum_{x,y} I(x,y,t)$. Celle-ci varie de manière périodique et on peut remarquer qu’une augmentation de I_{tot} correspond à l’arrivée d’un front d’onde à proximité de l’anode. Cette simultanéité a été observée dans la totalité des expériences réalisées. Ces variations d’intensité lumineuse semblent correspondre à des variations de l’émission du plasma plutôt qu’à des variations de la lumière diffusée par les poussières. Celles-ci se traduisent en effet sur les periodgrams par des bandes parfaitement verticales, ce qui ne pourrait s’expliquer par un mouvement des poussières en raison de leur inertie.

Lorsqu’un front d’onde se rapproche de l’anode, les poussières qui le composent “voient” un champ électrique externe⁴ E croissant et la force électrique F_E associée à E qui s’exerce sur elles augmente. L’anode constitue donc une frontière pour les DDWs que l’on peut qualifier de condition à la limite “fixe”. Le front d’onde incident se fragmente alors sous l’action du champ électrique anodique comme on peut le constater sur la photographie présentée figure 5.9. Une grande partie des poussières qui composaient le front d’onde remonte alors brusquement pour reprendre leur position d’équilibre au sein de la gaine.

4. par opposition au champ électrique de l’onde

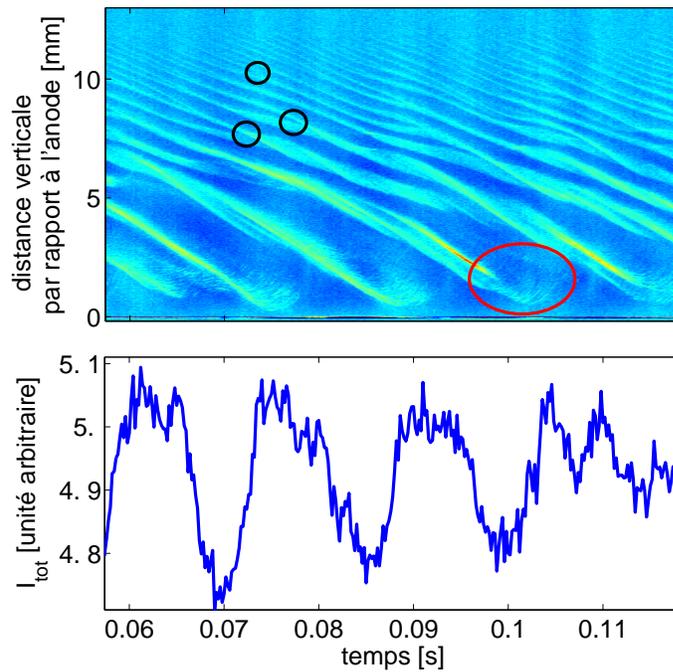


Figure 5.8 – *Periodogram et intensité lumineuse totale de l'image I_{tot} . Conditions expérimentales : $P=170$ mTorr, $P_{RF}=25$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm.*

Certaines de ces poussières peuvent être observées sur le periodogram de la figure 5.8 (cf cercle rouge) et sont également visibles sur la figure 5.5. On peut par ailleurs observer que les regroupements des fronts d'onde se produisent principalement lors de l'arrivée d'un front d'onde à l'anode (cf ronds noirs figure 5.8). Ils ont lieu simultanément aux différentes positions dans la gaine.

La figure 5.9(b) présente un agrandissement du periodogram de la figure 5.8 permettant de mieux rendre compte du comportement de deux fronts d'onde lors de leur regroupement. Le premier d'entre eux (position inférieure) ralentit et s'élargit simultanément. Ces effets sont beaucoup moins marqués pour le second. Lorsque la distance séparant les deux fronts d'onde devient suffisamment faible sous l'effet de l'élargissement du premier, le second front d'onde accélère. Il rattrape alors le premier et les deux fronts d'onde fusionnent.

Le phénomène qui a été décrit précédemment est particulièrement visible à basse pression. Il est cependant plus difficile à distinguer pour des pressions plus importantes, par exemple sur le periodogram de la figure 5.5 correspondant à une expérience réalisée à 240 mTorr. Bien que les regroupements de fronts d'onde aient toujours lieu à des positions précises, ils ne se produisent plus aux instants où un front d'onde atteint l'électrode. La figure 5.10 présente un periodogram issu d'une expérience réalisée à 320 mTorr. Comme on peut le constater, la pression est telle que le regroupement systématique n'a plus lieu. La majorité des fronts d'onde conservent leur intégrité au cours de leur propagation vers l'électrode. Seuls quelques regroupements sont parfois observés, mais de manière

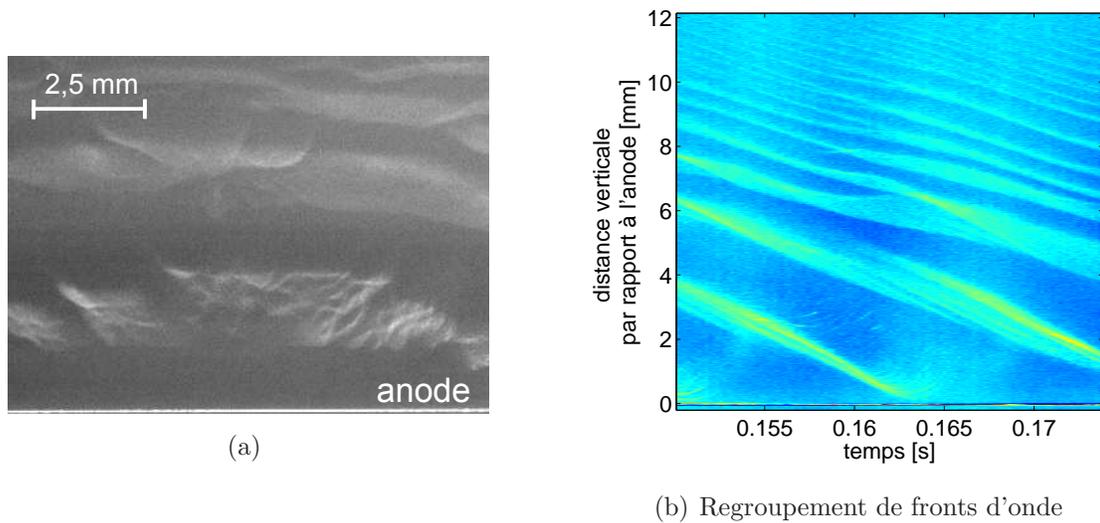


Figure 5.9 – (a) Fragmentation d'un front d'onde arrivant à l'anode (b) agrandissement sur le periodgram de la figure 5.8.

irrégulière dans le temps et dans l'espace. La fréquence de défilement des fronts d'onde f_p évolue donc de manière progressive à travers la zone active. Elle ne présente plus de discontinuités comme c'est le cas à plus basse pression.

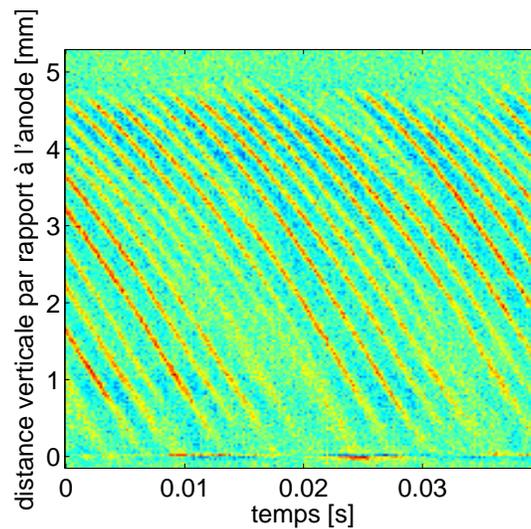


Figure 5.10 – Periodgram réalisé à $t=60s$. Conditions expérimentales : $P=320$ mTorr, $P_{RF}=25W$, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm.

Discussion des résultats

- Domaines de fréquences et regroupement des fronts d'onde :

Comme cela a été expliqué précédemment, la fréquence de défilement des fronts d'onde f_p présente une distribution particulière suivant l'axe vertical. Ces fréquences sont constantes sur des domaines délimités par des frontières nettes. Celles-ci sont le lieu privilégié d'un mécanisme de regroupement des fronts d'onde qui se fait principalement deux à deux. Il en résulte que les fréquences f_p diffèrent approximativement d'un facteur 2 d'un domaine à l'autre pour l'expérience considérée.

A notre connaissance, seuls Menzel *et al.* [105] ont déjà observé l'existence de domaines de fréquence causés par des regroupements de fronts d'onde. Les auteurs ont imputé ce phénomène à l'hétérogénéité du milieu. Ce dernier a été considéré comme un ensemble d'oscillateurs couplés (oscillateurs de van der Pol) permettant la propagation des oscillations (DDWs) [106]. Chaque oscillateur représente alors une couche du milieu poussiéreux dont l'extension spatiale est de l'ordre de la longueur d'onde. Afin de traduire l'hétérogénéité spatiale, des fréquences propres différentes ont été choisies pour chaque oscillateur. La modélisation a montré que les oscillateurs pouvaient se synchroniser les uns aux autres sur une certaine longueur, formant ainsi un domaine de fréquence constante. Cependant, cette synchronisation ne peut se faire que lorsque la fréquence de la perturbation n'est pas trop différente de celle des oscillateurs, le système accumulant une certaine contrainte. Lorsque cette condition n'est plus satisfaite, à partir d'une certaine position, la fréquence est brutalement modifiée pour retrouver une valeur proche des fréquences propres des oscillateurs à cette position. Ce changement de fréquence est permis grâce au regroupement des fronts d'onde appelés "défauts topologiques" et situés à la frontière entre deux domaines. Cependant, dans ces travaux, les transitions entre les domaines de fréquences sont progressives car chaque front d'onde ne se regroupe pas systématiquement avec un autre. Dans notre cas, les fréquences caractéristiques peuvent différer d'un facteur 2 entre deux domaines adjacents. Il a par ailleurs été observé que l'arrivée d'un front d'onde à l'anode et le phénomène de regroupement des fronts d'onde étaient simultanés à basse pression. Ces considérations nous conduisent donc à examiner d'autres effets susceptibles d'expliquer ces observations.

La propagation d'une onde dans un milieu est fortement affectée par les frontières le délimitant. La présence d'une condition à la limite contraignante (anode) joue donc un rôle important sur la propagation des DDWs au sein de la gaine anodique. On peut en particulier envisager une réflexion de l'onde par le champ électrique de l'anode. L'observation d'une onde réfléchie à l'extrémité d'un nuage de poussières a déjà été rapportée par Thomas *et al.* [107] et par Pilch *et al.* [96]. Cependant, aucun front d'onde se propageant de l'anode en direction du plasma n'a été observé lors de nos expériences. Il semble donc peu probable que les regroupements des fronts d'onde puissent s'expliquer par des perturbations occasionnées par une onde réfléchie.

La coïncidence entre l'arrivée d'un front d'onde à l'anode et sa destruction, les fluctuations d'intensité lumineuse du plasma, et le regroupement des fronts d'onde (à basse pression) suggère un mécanisme de nature différente. Lorsqu'un front d'onde est détruit lors de son arrivée à l'anode, les poussières qui le composaient sont repoussées vers le haut de la gaine. Ceci provoque une nouvelle répartition des charges dans la gaine qui est ainsi perturbée. Cela se traduit par une augmentation de l'intensité lumineuse émise par

le plasma qui correspond probablement à une augmentation du champ électrique moyen E dans la gaine. Le profil de potentiel à travers la gaine pourrait donc être significativement modifié. Les poussières qui participent à la propagation des DDWs sont sensibles au champ électrique de l'onde mais également au champ E externe. Lorsque celui-ci augmente, la force électrostatique associée F_E qui agit sur les poussières augmente également provoquant le ralentissement des fronts d'onde et leur élargissement. Ces effets sont plus marqués pour des positions inférieures au sein de la gaine, où le gradient moyen de potentiel est plus prononcé. Ceci pourrait expliquer que lors du regroupement de deux fronts d'onde, le premier d'entre eux subisse davantage ces effets. Le second front d'onde bénéficie alors probablement du surplus de densité de poussières engendré par l'étalement du premier front d'onde. Sa vitesse de propagation est ainsi augmentée et il rejoint le front d'onde précédent. Par ailleurs, l'étalement du premier front d'onde se traduit par une baisse du champ électrique associé, ce qui favorise son regroupement avec le front d'onde suivant.

Le phénomène précédent est particulièrement prononcé lorsque la pression est faible. En revanche, à plus haute pression, les regroupements de fronts d'onde n'ont plus lieu simultanément à toutes les positions dans la gaine. Ceci pourrait s'expliquer par le fait qu'à basse pression, chaque front d'onde arrivant à l'anode représente une quantité importante de poussières (1 front d'onde sur 2 en 6 mm). Lorsqu'il se disloque, la perturbation engendrée est plus importante et l'effet occasionné sur le profil de potentiel est plus marqué et présente un caractère instantané. De plus, le retour des poussières à une position plus haute dans la gaine est facilité par la baisse des frottements avec les neutres. À l'inverse lorsque la pression augmente, la perturbation liée à la disparition de ce front d'onde est moins marquée (1 front d'onde sur 10 en 5 mm) et plus progressive.

- Évolution de C_{DDW} :

Pour expliquer l'augmentation de C_{DDW} en direction de l'anode qui caractérise la région *III*, il est nécessaire d'en connaître la dépendance vis-à-vis des différents paramètres. L'expression de C_{DDW} (déjà explicitée au §5.1.2), est rappelée par l'équation 5.6 :

$$C_{DDW} = \omega_{pd} \lambda_{D,eff} \quad (5.6)$$

où $\lambda_{D,eff}$ est une longueur de Debye effective tenant compte de la vitesse dirigée u_{i0} des ions et $\omega_{pd} = \sqrt{\frac{n_d Q_d^2}{\epsilon_0 m_d}}$.

La vitesse de propagation des DDWs dépend donc de deux paramètres : ω_{pd} et $\lambda_{D,eff}$. Il est donc nécessaire de comprendre comment chacun d'eux évolue à travers la zone active.

Dans la gaine anodique, les poussières sont piégées sous l'action de différentes forces (cf chapitre 4) : $F_g(r_d^3)$ et $F_i(r_d^2)$ dirigées vers l'anode, et $F_E(r_d)$ dirigée vers le plasma (pour des poussières chargées négativement). L'orientation et la dépendance de ces différentes forces en fonction du rayon r_d des poussières indiquent que plus celles-ci sont grosses, plus elles doivent se trouver proches de l'électrode. Précisons que ce raisonnement ne tient pas compte des variations du champ électrique moyen E et de la charge Q_d des poussières à travers la gaine. En se rapprochant de l'anode, E doit augmenter et Q_d

doit diminuer (baisse de la densité électronique). Cependant, les conclusions précédentes semblent confirmées par la présence des plus grosses poussières à proximité de l'anode sur la figure 5.5.

Concernant la densité de poussières $n_d(y)$, nous ne disposons pas d'informations permettant d'établir clairement son évolution à travers la gaine. Les mesures d'extinction ne possèdent pas une résolution spatiale suffisante vis-à-vis de l'échelle des phénomènes étudiés. On peut cependant supposer que le champ électrique répulsif limite l'accumulation de poussières dans la partie basse de la gaine, à proximité de l'électrode.

Les tendances précédentes : diminution de Q_d et augmentation de m_d , sont en faveur d'une diminution de ω_{pd} en direction de l'anode. Il reste encore à déterminer l'évolution de $\lambda_{D,eff}$.

L'accélération des ions à travers la gaine diminue leur capacité à écranter les poussières, ce qui provoque une augmentation de $\lambda_{D,eff}$ (cf équation 5.5 §5.1.2). Par ailleurs, un autre effet qui n'apparaît pas directement dans l'expression de $\lambda_{D,eff}$ (qui considère $n_e=n_i=cste$) est la baisse de densité ionique à travers la gaine qui a également pour effet de diminuer l'écrantage et donc d'augmenter la longueur de Debye. Cette dernière augmente ainsi sous l'action conjuguée des deux effets précédents.

Les considérations précédentes suggèrent donc que l'augmentation de la longueur de Debye domine la diminution de ω_{pd} , et est ainsi responsable de l'augmentation de C_{DDW} en direction de l'électrode.

5.3.3 Évolution des propriétés des ondes de densité de poussières en fonction de la pression.

Les propriétés des DDWs ont été déterminées en fonction de la pression dans l'enceinte. La puissance RF a été fixée à 25 W pour l'ensemble de ces expériences. Les paramètres des DDWs ont été déterminés à $t=60$ s après l'injection de l'acétylène. La figure 5.11 donne l'évolution de la dimension de la zone active en fonction de la pression. Celle-ci diminue lorsque la pression augmente. Elle passe ainsi d'une valeur de plus de 12 mm à 170 mTorr à moins de 4 mm à 515 mTorr. Au-delà d'une pression d'environ 550 mTorr, on n'observe plus de DDWs au sein de la gaine anodique.

La condition d'existence des DDWs, expliquée au paragraphe 5.1.3, dépend de la valeur du rapport E/P . Une pression trop importante empêche le développement des DDWs, l'énergie apportée par le flux ionique étant dissipée lors des collisions avec les neutres. Les DDWs n'apparaissent donc qu'à une position plus proche de l'électrode. Les variations de la taille de la zone active avec la pression suivent donc l'évolution de la taille de la gaine.

Les évolutions des différents paramètres des DDWs avec la pression sont présentées figure 5.12. Ils ont été mesurés pour une gamme de pressions allant de 80 à 400 mTorr. Ces paramètres ont été déterminés dans la région de la gaine où leur variation est la plus modérée (région III pour l'étude précédente), ce qui correspond à une position située à

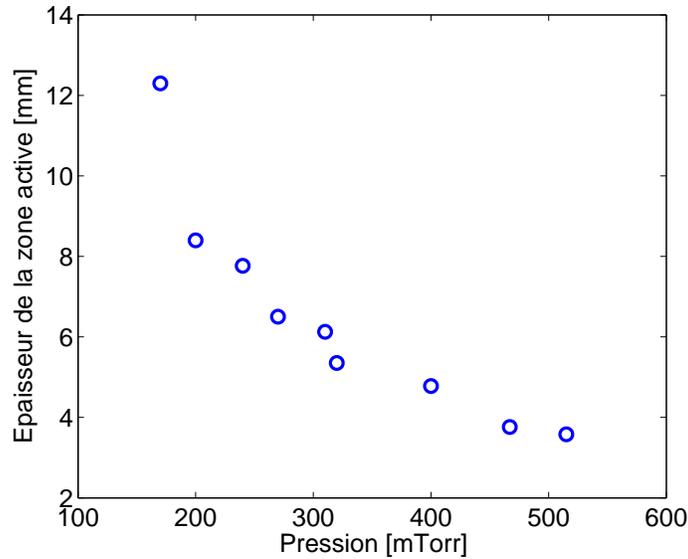


Figure 5.11 – Évolution de l'épaisseur de la zone active en fonction de la pression.

environ 2,5 mm de l'anode. La technique utilisée est la même qu'au §5.3.2. En deçà de 80 mTorr, l'étude est rendue difficile car la taille de la zone active devient trop importante. Au-delà de 400 mTorr, la résolution spatiale devient limitante, les grandeurs caractéristiques telles que la taille de la zone active ou la longueur d'onde devenant trop petites.

A l'aide de la figure 5.12(a), on constate que la fréquence des DDWs augmente avec la pression dans toute la gamme de valeurs explorées, d'abord progressivement pour des pressions inférieures à 300 mTorr, puis plus rapidement pour des pressions supérieures. L'existence de ces deux tendances peut s'expliquer par la disparition des regroupements systématiques de fronts d'onde lorsque la pression augmente (cf §5.3.2). Il a ainsi pu être établi que pour une pression de 320 mTorr, leur nombre était quasiment nul. Les fréquences f_p (fréquence de défilement des fronts d'onde) mesurées au début de la zone active et à proximité de l'électrode présentent donc une différence relativement faible comparativement au cas des basses pressions où elles peuvent différer d'un facteur 4 sous l'effet des regroupements.

La figure 5.12(b) indique que la vitesse de propagation C_{DDW} des DDWs diminue lorsque la pression augmente. Cet effet est directement lié aux collisions avec les neutres. On peut s'en convaincre en calculant à l'aide de la relation de dispersion des DDWs (cf §5.1.2, équation 5.3) et pour une fréquence fixée, la valeur de la vitesse de propagation des DDWs. La pression peut également avoir une influence sur la charge portée par les poussières [103]. Lorsque la pression diminue, le flux d'ions à la surface de la particule diminue également ce qui a pour conséquence d'augmenter la charge $|Q_d|$ des poussières [108]. Comme $C_{DDW} \propto \omega_{pd} \propto Q_d$, il en résulte que C_{DDW} augmente.

Des tendances d'évolution similaires ont été observées par Ticos *et al* dans [100].

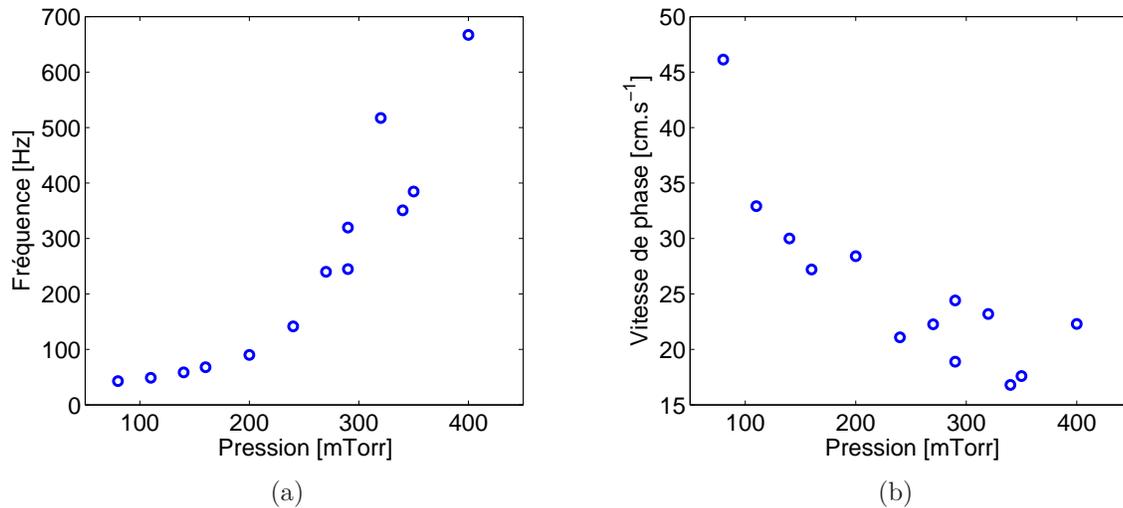


Figure 5.12 – Évolution de (a) la fréquence f_p et (b) la vitesse de propagation des DDWs en fonction de la pression.

5.3.4 Évolution des propriétés des ondes de densité de poussières en fonction de la puissance RF.

Afin d'étudier l'influence de la puissance RF sur les propriétés des DDWs, la pression dans l'enceinte a été fixée pour l'ensemble des expériences à 230 mTorr. Les débits d'argon et d'acétylène ont été ajustés respectivement à 12 et 2 sccm. La détermination des paramètres des DDWs a été effectuée grâce aux films réalisés avec la caméra rapide, qui fût déclenchée, pour chaque expérience, 150 s après l'injection d'acétylène. Les puissances RF étudiées sont réparties de 20 W à 100 W par pas de 20 W.

L'épaisseur de la zone active, c'est-à-dire de la région dans laquelle des DDWs ont été observées ne présente pas de variation significative en fonction de la puissance. Elle est de l'ordre de 8,5 mm. Les mécanismes de regroupement des fronts d'onde se produisent de manière similaire d'une expérience à l'autre et sont semblables à l'expérience présentée au §5.3.2 et réalisée à 240 mTorr (figure 5.5). Le regroupement des fronts d'onde est donc essentiellement déterminé par la pression.

Les résultats obtenus pour la fréquence et la vitesse de phase sont présentés figure 5.13. Les mesures présentées ont été effectuées à 2,5 mm de distance de l'anode.

Comme on peut le constater sur la figure 5.13, la fréquence et la vitesse de phase de l'onde augmentent avec la puissance RF. Avant d'expliquer ces tendances, il est préalablement nécessaire de comprendre l'influence des différents paramètres physiques sur ces caractéristiques.

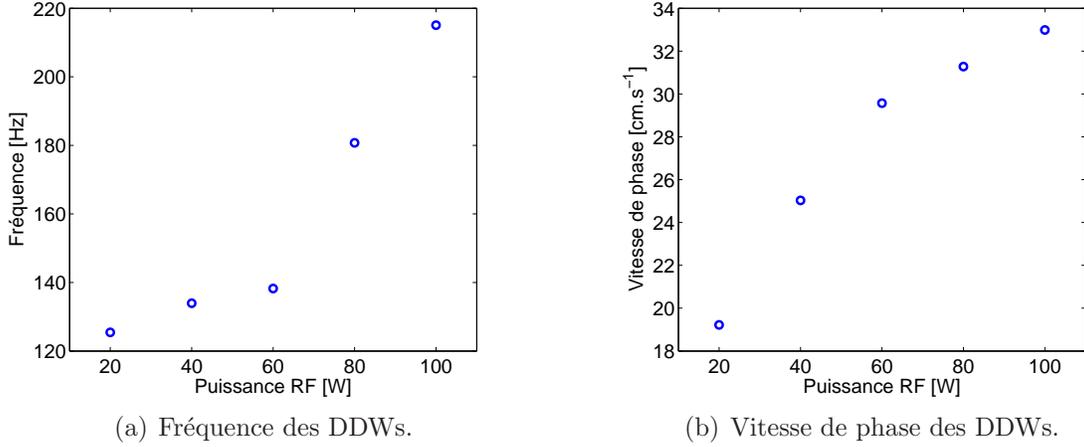


Figure 5.13 – Propriétés des DDWs en fonction de la puissance RF. Conditions expérimentales : $P=230$ mTorr, $P_{RF}=[20;100]$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm.

La fréquence des DDWs, lorsqu'elles sont auto-excitées, dépend directement de la pulsation plasma des poussières ω_{pd} (cf par exemple [109]). Cette dépendance s'interprète par le fait que les DDWs sont, par définition, des ondes mettant en jeu le déplacement de poussières au voisinage de leurs positions d'équilibre. L'inertie des poussières, qui caractérise leur capacité à répondre à une sollicitation périodique est donc un facteur déterminant expliquant les fréquences observées.

On rappelle que pour une onde de densité de poussière, la vitesse de propagation s'écrit : $C_{DDW} = \omega_{pd}\lambda_{D,eff}$. Pour expliquer les tendances observées figure 5.13, il faut donc déterminer comment évoluent ω_{pd} et $\lambda_{D,eff}$.

L'équation 5.7 rappelle l'expression de ω_{pd} :

$$\omega_{pd} = \sqrt{\frac{n_d Q_d^2}{\epsilon_0 m_d}} \quad (5.7)$$

avec n_d la densité de poussière, Q_d la charge moyenne portée par une poussière et m_d la masse d'une poussière.

La charge portée par une poussière peut s'exprimer par $Q_d = 4\pi\epsilon_0 r_d \Phi_d \propto r_d$ avec r_d le rayon de la poussière et Φ_d le potentiel flottant auquel se place la surface de la poussière relativement au potentiel du plasma (cf annexe A). La masse m_d d'une poussière est quant à elle proportionnelle à r_d^3 . On a donc $\omega_{pd} \propto \sqrt{\frac{n_d}{r_d}} \Phi_d$ et $C_{DDW} \propto \sqrt{\frac{n_d}{r_d}} \Phi_d \lambda_{D,eff}$.

A l'aide des mesures d'extinction, les évolutions de la densité totale de particules et du diamètre de Sauter en fonction de la puissance RF ont pu être déterminées. Les résultats obtenus sont présentés figure 5.14(a). L'évolution de la tension d'auto-polarisation (en valeur absolue) est donnée figure 5.14(b).

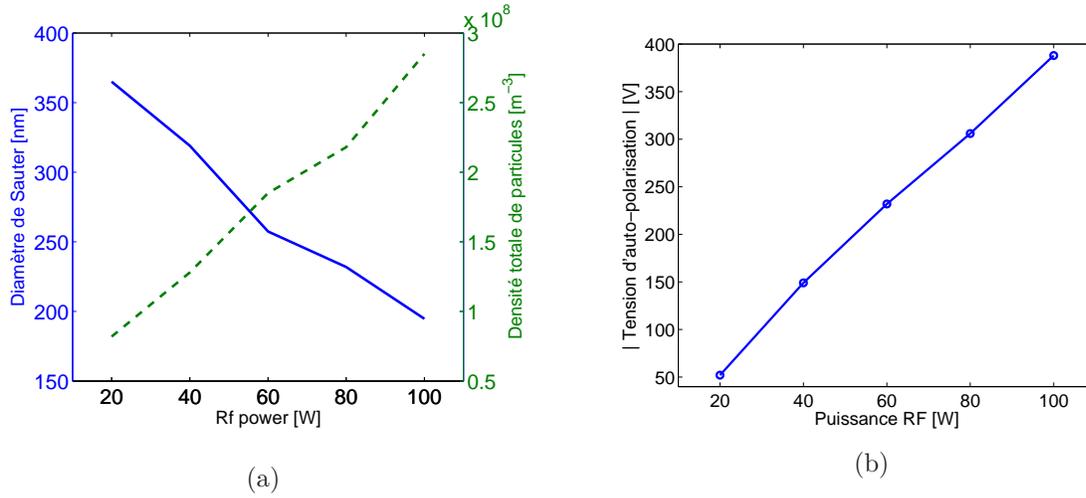


Figure 5.14 – Évolutions en fonction de P_{RF} (a) du diamètre de Sauter et de la densité totale de particules; (b) de la tension d'auto-polarisation $|V_{bias}|$ à $t=150$ s après l'injection d'acétylène.

Avec l'augmentation de la puissance RF, les poussières ont une taille moins importante et leur densité augmente. Pour comprendre cet effet, il est nécessaire de revenir à l'explication du mécanisme responsable de la formation des poudres au sein de la décharge, développée au chapitre 4 §4.2.2. La majorité des poussières présentes dans la gaine anodique sont issues de la zone cathodique. Lorsque la puissance RF est augmentée, la tension d'auto-polarisation augmente également (en valeur absolue). Ceci a pour effet d'amplifier la valeur du champ électrique moyen régnant au sein de la gaine cathodique et ressenti par les poussières. On peut raisonnablement admettre l'existence pour une poussière apparaissant à cet endroit d'une taille critique en deçà de laquelle elle est expulsée sous l'effet du bilan des forces agissant sur elle et en particulier de la force électrique (cf schémas chapitre 4 figure 4.2). Ainsi, plus la puissance RF sera grande, et plus cette taille critique sera faible. Les particules formées seront expulsées en direction de la gaine anodique plus tôt au cours de leur croissance. Elles seront ainsi plus nombreuses et plus petites. Le rapport $\frac{n_d}{r_d}$ augmente donc avec la puissance RF.

Les évolutions de Φ_d et de $\lambda_{D,eff}$ ne peuvent être déterminées en raison du manque de mesures adéquat. Cependant, il est possible d'en discuter la tendance. Une augmentation de P_{RF} se traduit par une augmentation de l'ionisation au sein de la décharge. Les densités plasma (ions et électrons) sont donc plus importantes à haute puissance. Cet effet est conforté par l'augmentation de $|V_{bias}|$ (qui dépend indirectement de la densité électronique) avec P_{RF} . Par analogie, la différence de potentiel Φ_d entre la surface de la poussière et le plasma devrait également croître. On peut donc en conclure que les augmentations simultanées du rapport $\frac{n_d}{r_d}$ et de Φ_d sont responsables d'une augmentation de ω_{pd} . Ceci explique les évolutions de la fréquence des DDWs avec la puissance RF.

Une augmentation des densités plasma avec P_{RF} aurait pour conséquence une diminution de la longueur de Debye effective $\lambda_{D,eff}$.

Il y a donc deux effets en compétition susceptibles d'influencer l'évolution de la vitesse de

phase des DDWs avec la puissance RF : d'une part l'augmentation de ω_{pd} et d'autre part la diminution de $\lambda_{D,eff}$. L'augmentation observée de la vitesse de phase des DDWs avec P_{RF} ne peut donc s'expliquer que par l'augmentation de ω_{pd} , effet qui semble dominant par rapport aux évolutions de $\lambda_{D,eff}$.

Au cours de leurs expériences, Fortov *et al* [103] n'ont pas observé de variations significatives des paramètres des ondes acoustiques de poussières en fonction de la puissance RF. Bien que leurs conditions expérimentales soient différentes de celles de cette étude, cet effet pourrait s'expliquer par le fait qu'ils travaillaient avec des poussières calibrées.

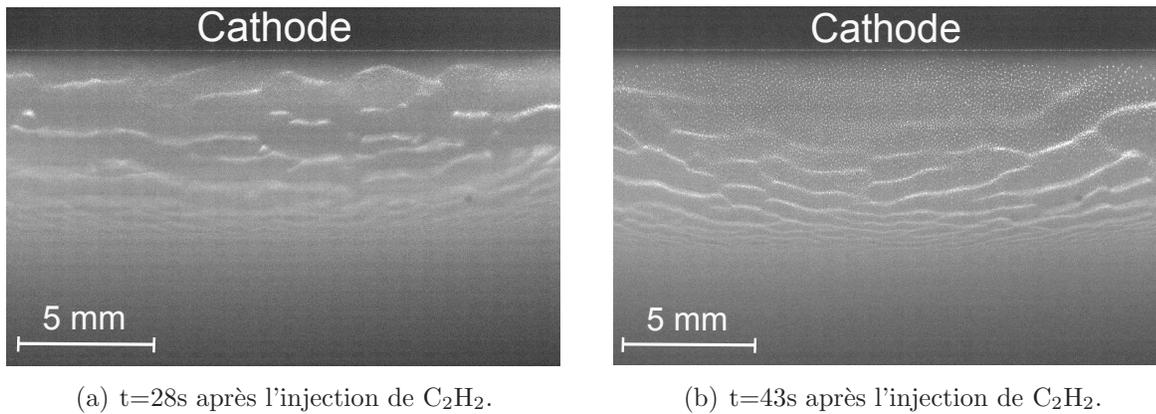
5.4 Ondes de densité de poussières dans la gaine cathodique

5.4.1 Description générale

- Sur la figure 5.15, deux images illustrent le phénomène d'ondes de densité de poussières dans la gaine cathodique. La première d'entre elles (figure 5.15(a)) correspond à une photographie prise 28 s après l'injection d'acétylène tandis que la seconde (figure 5.15(b)) l'a été à 43 s. Les fronts d'onde se propagent verticalement en direction de l'électrode (vers le haut). Comme on peut le remarquer, les fronts d'onde apparaissent comme des bandes homogènes continues car formés par de nombreuses particules trop petites (submicroniques) pour pouvoir être discernées individuellement. Une différence notable distinguant ces deux clichés est la présence sur le second d'une importante quantité de particules plus grosses (micrométriques) issues de l'agglomération de petites particules entre elles. Ces agglomérats sont suffisamment gros pour être discernés individuellement. Ils sont similaires à ceux observés au chapitre 3 sur les photographies MEB. Ils sont situés sous l'électrode, au-dessus des particules plus petites et apparaissent progressivement avec le temps (certains sont déjà présents sur la première photographie mais leur nombre est faible). Les mécanismes à l'origine de leur apparition feront l'objet du chapitre suivant.

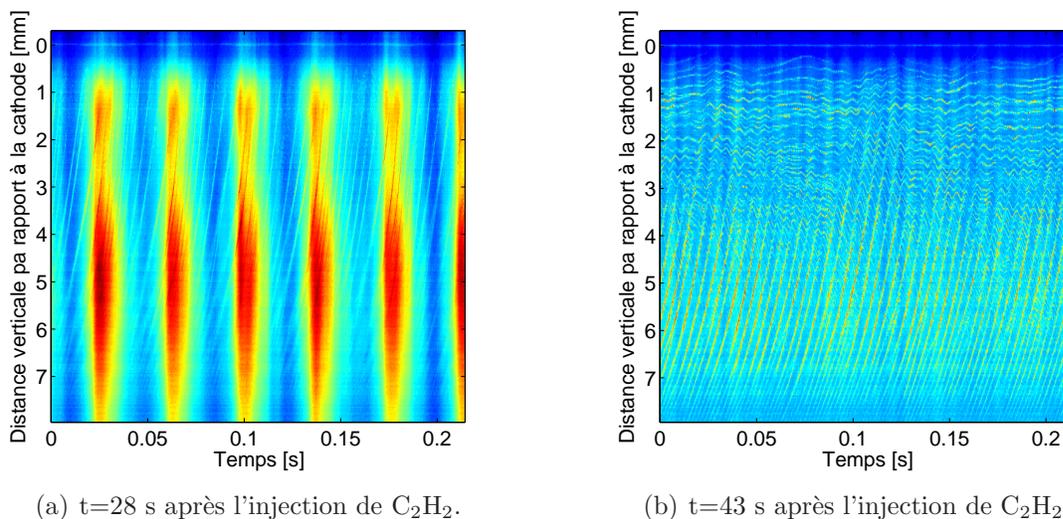
- Afin de retranscrire également la dimension temporelle du phénomène, les periodgrams correspondant aux films dont sont extraites les photographies de la figure 5.15 sont présentés respectivement figure 5.16 (a) et (b).

Sur le periodgram représenté figure 5.16(a), on peut observer que l'intensité lumineuse émise par le plasma est fortement modulée à une fréquence d'environ 24 Hz. Des périodes de forte luminosité, caractérisées par de larges bandes verticales, succèdent ainsi à des périodes de faible luminosité. On retrouve également sur le periodgram la présence de fronts d'onde correspondant aux DDWs et qui apparaissent comme de fines bandes diagonales. Les fluctuations lumineuses basse fréquence (F_{BF}) se traduisent par une modification des caractéristiques des DDWs. La localisation où les fronts d'onde apparaissent, leur vitesse


 (a) $t=28$ s après l'injection de C_2H_2 .

 (b) $t=43$ s après l'injection de C_2H_2 .

Figure 5.15 – Ondes de poussières dans la gaine cathodique. Conditions expérimentales : $P=200$ mTorr, $P_{RF}=10$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm.


 (a) $t=28$ s après l'injection de C_2H_2 .

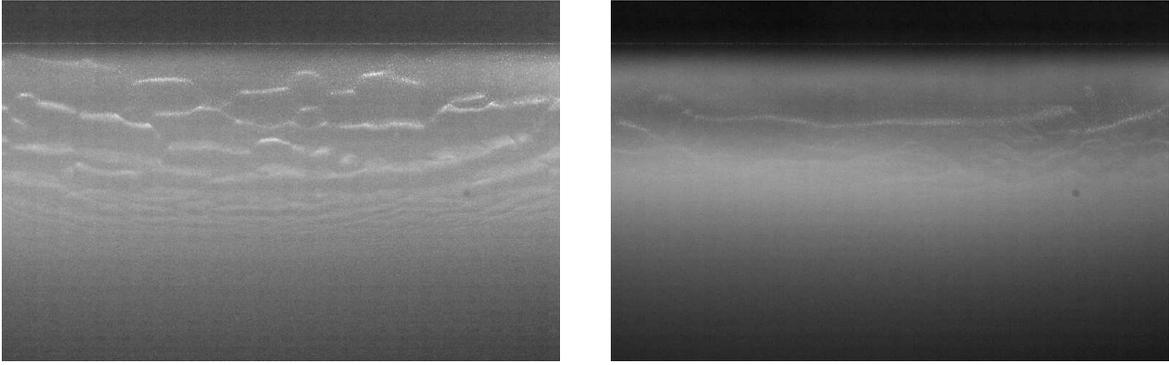
 (b) $t=43$ s après l'injection de C_2H_2 .

Figure 5.16 – Periodgrams montrant un exemple de DDWs dans la gaine cathodique. Conditions expérimentales : $P=200$ mTorr, $P_{RF}=10$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm.

de propagation ainsi que leur fréquence de défilement et la longueur d'onde les caractérisant sont fortement perturbées. Par conséquent, une étude fine des DDWs au sein de la gaine cathodique devient trop compliquée en présence de ces fluctuations lumineuses.

Le phénomène précédemment décrit est généralement transitoire et disparaît lorsque la quantité de poussières submicroniques au sein de la gaine cathodique devient trop faible. On peut s'en convaincre à l'aide de la figure 5.16(b), qui représente un periodgram réalisé 16 secondes plus tard.

Les F_{BF} se traduisent également par une modification notable de la position d'équilibre des poussières. On peut le constater à l'aide des photographies présentées figure 5.17 et qui correspondent respectivement à une période de forte (a) et de faible (b) luminosité. Lors des périodes de faible luminosité, le nuage de poussières est étendu verticalement tandis qu'il occupe un espace plus faible lors des périodes de forte luminosité.



(a) Période de faible luminosité (contraste modifié). (b) Période de forte luminosité (contraste modifié).

Figure 5.17 – Photographies du nuage de poussières en présence des F_{BF} .

L’origine exacte des F_{BF} n’est pas établie. Celles-ci se produisent indifféremment lorsque les capacités de la boîte d’accord sont autorisées ou non à s’adapter. Cependant, le fait que ces fluctuations disparaissent lorsque la quantité de poussières submicroniques devient trop faible, et le fait qu’elles se traduisent par une modification importante de la répartition des poussières dans la gaine semble indiquer qu’elles sont liées à une modification périodique de l’impédance de la décharge et donc du couplage de la puissance RF au plasma. Celle-ci peut en effet être fortement perturbée par la présence d’une grande quantité de poussières piégées au sein de la gaine cathodique. Lorsque la puissance RF est correctement transférée au plasma, l’ionisation est importante tout comme le champ électrique moyen dans la gaine cathodique (grande valeur de $|V_{bias}|$). Le nuage de poussières est ainsi “comprimé” par les forces électrique F_E et de frottement ionique F_i , et occupe un espace réduit. L’effet inverse est observé lorsqu’une faible fraction de la puissance RF est transmise au plasma.

- Sur la figure 5.16(b), les fronts d’onde correspondant aux DDWs apparaissent comme de fines bandes diagonales et sont caractérisés par une fréquence d’environ 230 Hz.

On observe également que les grosses particules présentes dans la partie haute de la gaine cathodique sont mises en mouvement par le champ électrique des DDWs autour de leur position d’équilibre, ce qui se traduit par des trajectoires sinusoïdales [69]. Afin de mieux décrire ce comportement, un periodogram correspondant à une autre expérience est présenté figure 5.18. L’espace y a été découpé en deux régions :

- La région 1 correspond à la partie basse de la gaine. Seules des particules submicroniques y sont présentes.
- La région 2 est située entre la région 1 et la cathode. Elle est occupée par les grosses particules micrométriques. Ces particules ont grossi au fil du temps et leur nombre a globalement diminué. Leur charge électrique est ainsi devenue de plus en plus importante leur permettant de repousser les particules submicroniques sous-jacentes. Une frontière de plus en plus nette est donc apparue entre les deux populations de

particules. Il n'est cependant pas exclu que des particules submicroniques soient tout de même présentes dans la région 2, comme peuvent parfois l'indiquer les mesures d'extinction (non présentées ici).

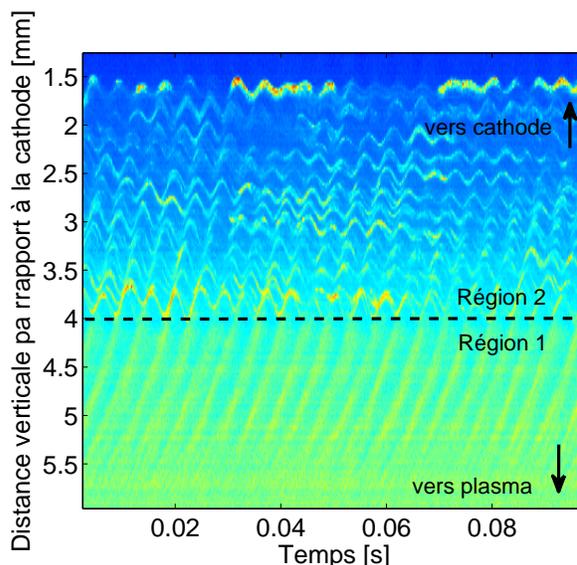


Figure 5.18 – *Periodogram illustrant la mise en mouvement des particules micrométriques par les DDWs. Conditions expérimentales : $P=180$ Torr, $P_{RF}=25$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm. $t=150$ s après l'injection de C_2H_2 .*

Dans le cas présent, la propagation des ondes en direction de la cathode ne semble pas être perturbée par l'interface entre les deux régions. Le mouvement semble transmis sans discontinuité. On peut donc supposer que la nature de l'onde reste inchangée : les DDWs continuent à se propager dans la région 2. Il est donc probable que des poussières submicroniques soient toujours présentes au sein de la région 2.

Dans certaines conditions expérimentales, la taille (et donc la charge) des particules de la région 2 est suffisamment importante pour repousser la totalité des particules submicroniques et leur interdire l'accès à la région 2. La frontière entre les deux régions est alors très nette, comme on peut l'observer sur la figure 5.19(a). Les particules de la région 2 situées à l'interface sont alors mises en mouvement par les DDWs se propageant au sein de la région 1 (cf periodogram figure 5.19(b)). On remarque cependant que les grosses poussières, trop massives, ne répondent pas directement à la perturbation exercée par chaque front d'onde. Le mouvement se transmet ensuite aux particules supérieures mais sur une faible distance. Seul un petit nombre d'entre elles est concerné par ce mécanisme. Ce cas de figure semble différent du précédent où les mouvements ondulatoires de la région 1 étaient transmis à la région 2 sans changements notables. Dans cette nouvelle situation, il est probable qu'un nouveau mode de propagation de nature similaire aux DLWs soit excité dans la région 2 grâce à l'énergie transmise par les DDWs à l'interface.

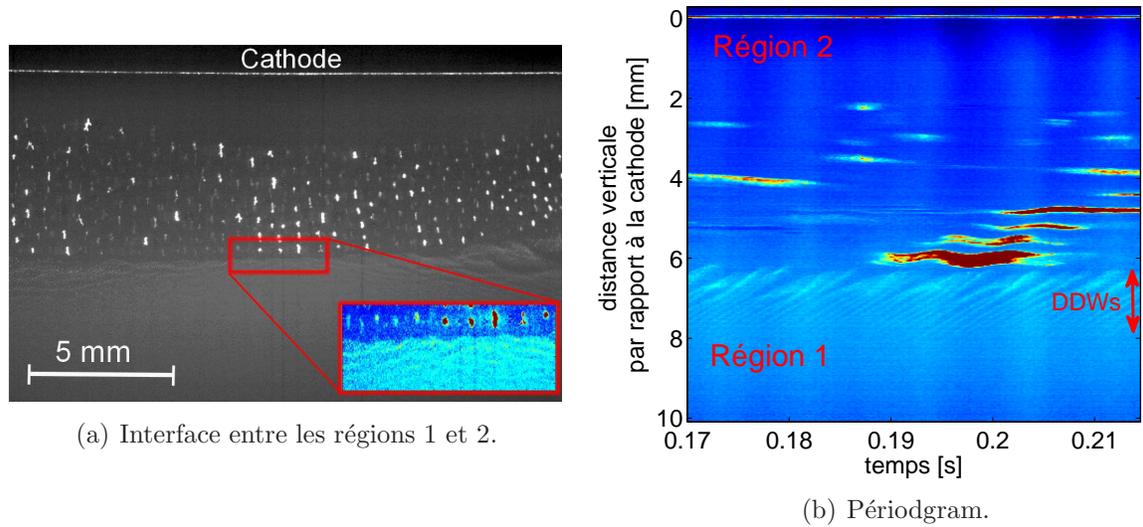


Figure 5.19 – Milieu poussiéreux présentant deux phases. Conditions expérimentales : $P=100$ mTorr, $P_{RF}=10$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm. $t=44$ s après l'injection de C_2H_2 .

5.4.2 Disparition des ondes de densité de poussières et formation d'un cristal

Les ondes DDWs peuvent rester présentes au sein des gaines pendant des temps très longs. Dans le cas anodique, leur disparition n'a jamais été observée tant que l'injection d'acétylène était maintenue. En cas d'interruption de celle-ci, elles ont pu être encore observées sur des durées de l'ordre de 15 minutes, tant que des poussières submicroniques restaient piégées au sein de la gaine.

Dans le cas cathodique, elles sont rarement observées de manière continue pendant plus de quelques minutes. La disparition des DDWs de la gaine cathodique est rencontrée dans deux situations expérimentales différentes :

- si le nombre de particules micrométriques devient trop important. La gaine cathodique est alors remplie de particules de tailles micrométriques (la région 1 telle qu'elle est définie figure 5.18 n'existe plus). La densité de particules submicroniques y est alors très faible.
- si l'injection d'acétylène est interrompue. L'arrêt de l'injection est alors suivi d'une baisse importante de la densité de particules submicroniques. Cela suggère que les pertes de ces particules (par agglomération ou parce que celles-ci quittent la gaine cathodique) ne sont plus compensées par de nouveaux apports.

Ce dernier cas est illustré par la figure 5.20. Cette expérience correspond à celle dont les résultats sont présentés sur la figure 5.18.

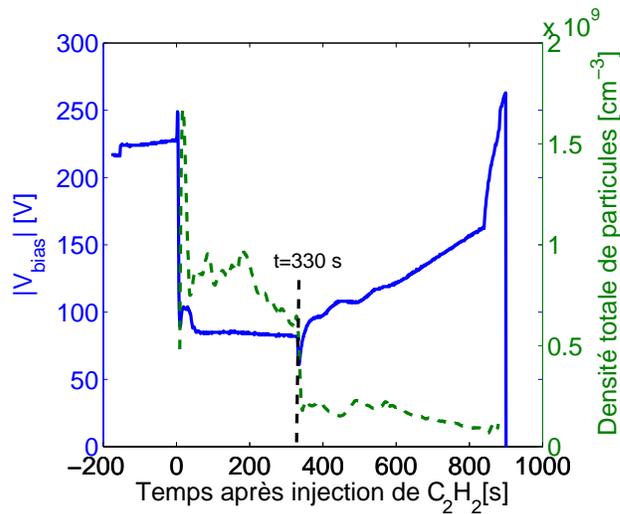


Figure 5.20 – Évolution de la tension d’auto-polarisation (valeur absolue) et de la densité totale de particules en fonction du temps. L’injection d’acétylène est interrompue à $t=330$ s.

Lorsque l’injection d’acétylène est interrompue à $t=330$ s, on observe que celle-ci est immédiatement suivie d’une modification de la valeur de la tension d’auto-polarisation. Ceci a pour effet de modifier les conditions de piégeage des poussières, ce qui conduit à la perte d’une quantité significative de poussières.

Par la suite, la densité de poussières ne cesse de diminuer et la valeur absolue de la tension d’auto-polarisation d’augmenter. La gaine cathodique se vide progressivement des poussières submicroniques restantes et ne subsistent bientôt plus que les particules micrométriques. Ces dernières forment une structure organisée et leur agitation est très faible : les DDWs ont disparu de la gaine cathodique. Cette situation est illustrée par l’image présentée figure 5.21. La présence des particules submicroniques à de fortes densités apparaît donc comme une condition nécessaire à l’existence des ondes de densité de poussières.

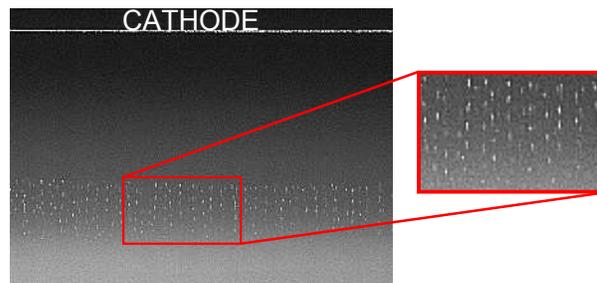


Figure 5.21 – Image représentant un arrangement de particules micrométriques. Elles sont alignées verticalement. Le film a été réalisé 7 minutes après l’arrêt de l’injection d’acétylène.

Sur la figure 5.21, on peut remarquer un alignement des particules selon l'axe vertical. Les particules présentent une forme allongée et sont orientées verticalement dans le sens de la longueur. Celle-ci peut être estimée comme étant comprise entre 100 et 150 microns. Ces chiffres sont à considérer avec précaution étant donné que l'on observe la lumière diffusée par les particules et non pas directement les particules elles-mêmes. L'orientation verticale préférentielle des particules allongées a été observée quelle que soit la longueur des particules et les conditions expérimentales utilisées.

L'orientation de telles particules de forme allongée dans un environnement de type gaine électrostatique a été étudiée notamment par Annaratone *et al.* [110] et Ivlev *et al.* [111]. En raison de leur morphologie et de l'environnement anisotrope qui les entoure, ces particules sont chargées de manière non homogène [112] et présentent donc un dipôle, un quadrupôle, etc... Leur orientation dans le champ électrique E serait donc déterminée par un équilibre entre les couples exercés sur toute leur longueur par différentes forces : force électrique, interaction dipôle- E , interaction quadrupôle- E ... Les auteurs ont estimé que l'effet de la force ionique était négligeable. Dans nos conditions cependant, il est probable que la situation soit différente et qu'elle puisse jouer un rôle dans l'orientation des particules, étant donné que celles-ci sont maintenues dans la gaine par son action.

L'alignement vertical des particules les unes par rapport aux autres pourrait être expliqué par l'existence entre elles d'une force attractive comme l'a montré Lampe *et al.* [112]. Cette dernière est liée à la présence du flux d'ions supersoniques au sein de la gaine. Lorsque les ions passent à proximité d'une poussière fortement chargée négativement, leurs trajectoires sont modifiées (courbées) et le flux d'ions crée un sillage en aval de la particule [113]. Ce dernier est caractérisé par une zone à charge d'espace positive, dans laquelle la densité ionique est augmentée. Elle est située juste en aval de la particule : le flux d'ions est focalisé. Il en résulte un champ électrique orienté de telle manière que la force électrostatique subie par une poussière située en aval de la première aurait tendance à la maintenir à proximité. G. Lapenta [114] a proposé que la force subie par la particule située en aval ne soit pas principalement de nature électrostatique mais soit majoritairement causée par la focalisation du flux d'ions. La nature de la force serait directement liée aux transferts de quantité de mouvement qui ont lieu lors des collisions coulombiennes ions-poussières.

Les particules sont donc organisées de manière régulière les unes par rapport aux autres : elles forment un cristal. Les interactions définissant cette structure sont anisotropes. Dans la direction verticale, une force attractive liée à un effet de focalisation du flux d'ions permet l'alignement des particules. Dans la direction horizontale, les poussières interagissent entre elles de manière électrostatique et se repoussent.

5.5 Conclusion

Dans ce chapitre, une étude des ondes de densité de poussières (DDWs) a été réalisée. Les DDWs apparaissent spontanément dès lors qu'une densité de poussières submicro-

niques suffisante est présente. Leur existence est également conditionnée par la présence d'un champ électrique suffisamment important expliquant qu'elles ne soient observées qu'au sein des gaines anodique et cathodique.

Lors de la propagation des DDWs à travers la gaine anodique, un comportement particulier a été mis en évidence. Il a été observé que les fronts d'onde se regroupent entre eux au cours de leur déplacement en direction de l'anode, conduisant ainsi à une diminution de la fréquence apparente de l'onde. Ce phénomène de regroupement est plus régulier à basse pression, où il est observé de manière systématique à des positions précises dans la gaine. Ce phénomène pourrait s'expliquer par une perturbation du profil de potentiel à travers la gaine lorsqu'un front d'onde arrivant à l'anode est disloqué sous l'effet du champ électrique anodique. Il en résulte l'existence de domaines de fréquences répartis dans l'espace. A très basse pression, le champ électrique semble fortement modifié dans l'ensemble de la gaine conduisant à un regroupement simultané des fronts d'onde. Lorsque la pression est plus importante, le regroupement systématique et simultané des fronts d'onde n'est plus observé.

Une fois ce phénomène particulier mis en évidence, les propriétés des DDWs dans la gaine anodique ont pu être déterminées en fonction des conditions expérimentales. Il a été déterminé qu'une augmentation de la pression avait pour conséquence d'augmenter la fréquence des DDWs en raison de la diminution du nombre de regroupements de fronts d'onde. Leur vitesse de propagation est par ailleurs diminuée, réduisant ainsi considérablement la longueur d'onde. De plus, une augmentation de la fréquence des DDWs et de leur vitesse de phase a pu être constatée avec l'augmentation de la puissance RF. Cet effet peut être imputé aux évolutions de la granulométrie des poussières avec la puissance RF. Lorsque la puissance RF est augmentée, la taille des poussières diminue et leur densité augmente.

L'étude des DDWs au sein de la gaine cathodique est rendue plus complexe comparativement au cas anodique en raison de l'existence d'un phénomène particulier, généralement observé de manière transitoire. Le nuage de poussières est animé d'un mouvement périodique de contraction/expansion qui modifie considérablement son épaisseur. Les propriétés des DDWs s'en trouvent grandement modifiées. Ces phases de contraction/expansion pourraient être expliquées par des variations périodiques de l'impédance de la décharge et donc du couplage de la puissance RF au plasma.

Lorsque l'injection d'acétylène est interrompue, ou lorsque toutes les particules submicroniques ont quitté la gaine cathodique, on observe l'existence d'une structure composée de grosses particules, généralement linéaires, orientées verticalement et alignées les unes au-dessus des autres. Cette structure est similaire à celle d'un cristal. Elle est le résultat des interactions anisotropes entre les poussières dans les directions parallèle et perpendiculaire au champ électrique.

Chapitre 6

Influence des ondes de densité de poussières sur le processus d'agglomération des poussières

6.1 Introduction

Le chapitre 5, est majoritairement consacré à l'étude de deux phénomènes dynamiques concernant les nuages de poussières au sein des gaines cathodique et anodique. Dans le cas cathodique, on observe la superposition d'un mode transitoire qui se caractérise par une succession de périodes de compression/expansion du nuage de particules et d'un mode permanent relatif à la propagation d'ondes de densité de poussières (DDWs). Le nuage de poussières présent dans la gaine anodique est quant à lui sujet uniquement aux DDWs. Au cours de cette étude, il a été fait mention de la présence simultanée de poussières de dimensions très différentes lorsque l'acétylène avait été injecté depuis un temps suffisamment long (de une à quelques dizaines de secondes en fonction des conditions expérimentales). Ainsi, coexistent des particules de dimensions submicroniques et des agglomérats de tailles micrométriques. Ces dernières sont principalement rencontrées au sein de la gaine cathodique bien qu'elles soient également observées à l'anode sur des temps plus longs et dans des proportions moindres. Ce chapitre est dédié à l'étude du mécanisme particulier de formation de ces agglomérats de grandes dimensions.

6.2 Étude bibliographique de la formation des poussières et des agglomérats.

6.2.1 Modèle classique de croissance des poussières dans un plasma poussiéreux

Les processus de formation des poussières dans les plasmas poussiéreux ont été largement étudiés durant les années 90. La revue de Watanabe [115] offre une bonne description de l'état actuel des connaissances dans ce domaine. Elle s'intéresse particulièrement à la

formation des poussières dans les plasmas réactifs (gaz noble/silane). Elle est donc en bon rapport avec l'étude développée, bien que le gaz réactif utilisé soit de l'acétylène. On considère principalement trois phases distinctes caractérisant la croissance des particules.

Phase 1 : nucléation

La première phase est généralement appelée phase de nucléation. Lorsque l'acétylène est injecté, les collisions entre les électrons et les molécules de C_2H_2 permettent l'apparition d'une large variété d'espèces chimiques ioniques, neutres et radicalaires très réactives, présentes en grande concentration. Les mécanismes chimiques ayant lieu entre ces diverses molécules et conduisant in fine à l'apparition de particules submicroniques sont encore à l'étude à l'heure actuelle. Les particules formées à l'issue de cette première phase ont un diamètre de quelques nanomètres. Au fur et à mesure que celles-ci sont accumulées au sein du plasma, la charge électronique moyenne qu'elles portent diminue (cf [116] et annexe A) et pour des concentrations en particules importantes (de l'ordre de la densité plasma), un grand nombre d'entre elles sont neutres.

Phase 2 : agglomération

La seconde phase de croissance est caractérisée par un processus d'agglomération entre les particules. Celle-ci est rendue possible principalement par la forte densité de poussières (le taux d'agglomération étant proportionnel à la densité de particules élevée au carré) associée à la faiblesse des répulsions coulombiennes entre particules (celles-ci ne sont que peu ou pas chargées) [117]. Par ailleurs, le processus de charge d'une particule étant de nature discrète [118], certaines d'entre elles peuvent porter des charges de signes opposés, ce qui favorise leur agglomération. Cet effet est renforcé si on tient compte de phénomènes tels que l'émission électronique secondaire [119] qui peut être provoquée par exemple par émission de champ, par impact électronique ou par impact de photons UV [120]. Le taux de croissance des particules au cours de cette phase est particulièrement rapide. Ceci s'accompagne d'une baisse importante de la densité de particules. L'augmentation de la taille des particules associées à la baisse de leur densité provoque une augmentation significative de la charge électronique qu'elles portent (la probabilité qu'une particule soit chargée positivement tend vers 0). Cela se traduit par un renforcement des répulsions coulombiennes entre particules. Cet effet associé à la baisse de leur mobilité a pour conséquence d'inhiber l'agglomération entre particules, mettant ainsi un terme à cette phase de croissance. A l'issue de cette phase, la morphologie des poussières formées est caractéristique du mécanisme d'agglomération. On peut alors distinguer les différentes particules primaires composant l'agglomérat. Le diamètre caractéristique des agglomérats est compris entre 100 nm et 1 micromètre.

Phase 3 : accrétion

La troisième phase de croissance, parfois désignée comme phase d'accrétion, est assurée par le collage de diverses espèces chimiques (molécules ioniques, neutres et radicaux) sur la surface de la particule. Ce mécanisme est caractérisé par une croissance très lente et

progressive de la taille des particules, par opposition à la phase précédente. Il a également une conséquence morphologique importante pour les particules. Leur forme irrégulière provoquée par le processus d'agglomération est lissée et l'aspect visuel de la particule s'apparente alors à celui d'une sphère [121].

Une quatrième phase de croissance a parfois été décrite par certains auteurs, et peut conduire à la formation de particules de grandes dimensions (de l'ordre de la centaine de micromètres) par agglomération [121, 122]. Dans les travaux précédents, les auteurs mettent en avant l'existence d'une force attractive appelée force d'ombrage ("shadowing force") susceptible dans certaines conditions de vaincre la répulsion électrostatique entre deux particules [112]. Cette force est directement liée au bombardement des poussières par les espèces neutres et ioniques. Si l'on ne considère qu'une seule particule isolée, les flux à sa surface sont isotropes. En revanche, dans le cas de deux particules proches l'une de l'autre, une partie des ions (ou des neutres) qui entrent en collision avec la première particule est interceptée et ne rencontre donc pas la seconde. Pour des atomes neutres, le calcul est aisé puisqu'ils se déplacent en ligne droite. En revanche le calcul est plus complexe lorsque l'on considère des ions puisque les collisions sont de nature coulombienne induisant des trajectoires courbes. Un ion pourra ainsi échanger de la quantité de mouvement avec les deux grains. Ces considérations ne sont valides que si l'on suppose que les ions (ou les neutres) ne subissent pas d'autres collisions que celles avec les poussières. Il faut donc que la distance entre les deux poussières considérées soit inférieure au libre parcours moyen des ions (ou des neutres). Par ailleurs, pour que cette force attractive supplante la force répulsive coulombienne, il est nécessaire que les charges portées par les poussières soient écrantées sur une courte distance (faible λ_{Di}) par les ions du plasma, ce qui suppose que la densité ionique soit importante. L'effet de la force d'ombrage se ressent donc principalement pour des plasmas denses à faible pression. Une autre théorie permettant d'expliquer l'agglomération de grosses particules entre elles et basée sur des considérations proches des précédentes a également été développée [123, 124]. Celle-ci considère l'influence mutuelle que deux poussières séparées par une courte distance exercent l'une sur l'autre. Lorsqu'une poussière ressent le champ électrique produit par une poussière voisine, elle se polarise. Il en résulte que les flux d'ions à sa surface deviennent asymétriques. La poussière est ainsi poussée vers sa voisine, et réciproquement, ce qui peut conduire à l'agglomération des deux particules. Ce modèle est désigné par l'acronyme PIFA ("polarization-induced ion flux asymmetry").

6.2.2 Étude bibliographique sur la morphologie des agglomérats de particules.

L'objectif de ce paragraphe est de décrire brièvement les théories de formation d'agglomérats de diverses géométries. Dans une première partie, l'intérêt se portera principalement sur les mécanismes classiques considérés dans les aérosols ou dans les suies de combustion par exemple. Une seconde partie traitera du cas plus spécifique de l'agglomération en milieu plasma, où les particules sont fortement chargées.

Régimes d'agglomération

On distingue principalement trois régimes d'agglomération entre particules [81] : l'agglomération limitée par la diffusion, l'agglomération balistique et l'agglomération limitée par la réaction. La formation d'agglomérats dans ces trois régimes différents a été largement étudiée à l'aide de simulations numériques. La structure d'un tel agglomérat est généralement décrite à l'aide de sa dimension fractale D_f . Ce nombre adimensionnel peut théoriquement prendre des valeurs comprises entre 1 pour un agglomérat parfaitement linéaire, et 3 pour une sphère compacte. La dimension fractale est liée au nombre de particules primaires N de rayon a qui composent un agglomérat, par la formule 6.1 :

$$N = k_f \left(\frac{R_g}{a} \right)^{D_f} \quad (6.1)$$

avec R_g le rayon de giration de l'agglomérat et k_f une constante proche de l'unité, appelée facteur de structure. Les caractéristiques des différents régimes, ainsi que la morphologie des agglomérats résultants, sont brièvement présentées dans la suite. La figure 6.1 donne des exemples de formes d'agglomérats.

Agglomération limitée par la diffusion

L'agglomération limitée par la diffusion est généralement repérée par l'acronyme anglais "DLA" pour "Diffusion Limited Aggregation". Dans ce régime, le temps caractéristique d'agglomération est dicté par la probabilité que deux particules ont d'entrer en collision au gré de leurs mouvements aléatoires (mouvement Brownien par exemple). Lorsqu'une collision a lieu, elle donne naissance à un agglomérat formé des deux particules précédentes. Ce mécanisme conduit à la formation d'agglomérats à structure lâche, de faible dimension fractale ($D_f \simeq 2,5$). Il est également possible de considérer l'agglomération entre deux agglomérats (clusters) déjà existants. On parle alors de "DLCA" pour "Diffusion-Limited Cluster Aggregation". Ce dernier mécanisme conduit à la formation d'agglomérats encore moins compacts ($D_f \simeq 1,8$), que l'on peut qualifier d'agglomérats en chaîne.

Agglomération balistique

Dans ce régime d'agglomération, le libre parcours moyen des particules est considéré comme grand devant leurs dimensions caractéristiques. Leurs trajectoires sont donc considérées comme linéaires. Les particules primaires qui entrent en collision avec un agglomérat vont pouvoir pénétrer profondément la structure de ce dernier. Il en résulte des agglomérats à structure compacte ($D_f \simeq 3$). Si l'on considère non plus les collisions de particules primaires avec un agglomérat mais celles d'agglomérats en chaîne entre eux, ceci va aboutir à la formation de structures éparses ($D_f \simeq 1,95$).

Agglomération limitée par la réaction

Ce régime d'agglomération diffère fondamentalement des précédents. Le temps caractéristique d'agglomération est déterminé par la probabilité que deux particules amenées à se rencontrer ont de s'agglomérer. Autrement dit, toutes les collisions ne conduisent pas nécessairement à l'attachement des particules (leur probabilité de collage est inférieure à 1). Ce processus conduit à la formation d'agglomérats plus compacts que les précédents ($D_f \simeq 3$). Si l'on considère l'agglomération de clusters entre eux, on parlera de "RLCA" pour "Reaction-Limited Cluster Aggregation". La dimension fractale de tels agglomérats est de l'ordre de $D_f \simeq 2,09$.

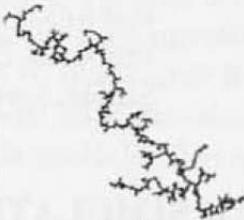
	Reaction-limited	Ballistic	Diffusion-limited
Particle-cluster	 $D_f = 3.00$	 $D_f = 3.00$	 $D_f = 2.50$
Cluster-cluster	 $D_f = 2.09$	 $D_f = 1.95$	 $D_f = 1.80$

Figure 6.1 – Structure des agglomérats en fonction du régime d'agglomération [81].

Formation d'agglomérats en milieu plasma

En milieu plasma, les poussières sont en règle générale fortement chargées négativement. Leur mouvement est donc particulièrement influencé par leur environnement (champs électriques, flux ioniques...). Les répulsions électrostatiques entre les particules jouent un rôle important qui se traduit souvent par une inhibition du processus d'agglomération (cf partie 6.2.1). Ainsi, pour que deux particules s'agglomèrent, il est nécessaire qu'elles vainquent leur répulsion électrostatique, ce qui n'est possible que si leur vitesse relative est suffisante. Cette condition est parfois satisfaite expérimentalement puisque certains auteurs ont reporté l'observation de tels agglomérats lors de leurs expériences (voir par exemple [125]).

Huang *et al.* [126, 127] se sont intéressés à leur formation au sein du plasma à l'aide de simulations numériques. Selon ces auteurs, un certain nombre de poussières acquièrent une énergie cinétique suffisante pour s'agglomérer grâce à la force de frottement ionique.

Ce mécanisme a donc lieu principalement pour des particules entrant dans la gaine et entraînées par le flux d'ions. Cependant, celles-ci sont peu nombreuses dans ce cas, expliquant le faible taux d'agglomération. Celui-ci augmente néanmoins avec la puissance RF. En effet, une augmentation de la puissance RF se traduit par des champs électriques plus intenses et donc par des flux d'ions plus importants, ce qui a pour conséquence d'accélérer davantage les poussières [126]. Les auteurs ont également étudié les effets de la vitesse et de la taille des particules primaires sur la forme des agglomérats [127]. Cette dernière dépend selon eux directement du ratio entre énergie cinétique et énergie coulombienne. Les résultats qu'ils ont obtenus sont les suivants :

- L'énergie cinétique des particules détermine la taille finale de l'agglomérat. Celle-ci augmente avec la vitesse des particules et la taille des particules primaires.
- Plus les particules primaires sont petites et plus la vitesse requise est importante (faible masse).
- De petites particules avec une faible vitesse d'approche auront tendance à former des agglomérats de type filaments. Ceci s'explique par le fait qu'une particule approchant d'un agglomérat linéaire par une extrémité ressent une plus faible répulsion électrostatique que si elle approchait latéralement. Pour une telle particule, les charges portées par les particules primaires composant le cœur de l'agglomérat sont en bonne partie écrantées par le plasma. La particule en approche ne ressent donc que les répulsions exercées par les particules primaires situées aux extrémités. Les extrémités des filaments sont donc des lieux d'agglomération privilégiés, ce qui explique leur forme allongée. Ce type d'agglomérats est similaire à ceux formés en DLCA pour des particules primaires neutres.
- A l'inverse plus l'énergie cinétique des particules incidentes sera forte (grosses particules animées d'une vitesse importante) et plus la structure de l'agglomérat sera compacte. Ce type de structure s'apparente au régime balistique pour des particules neutres.

6.3 Étude expérimentale du processus de croissance des poudres.

6.3.1 Protocole expérimental

L'étude présentée dans cette section a pour objectif d'explicitier le mécanisme particulier à l'origine de la formation des gros agglomérats au sein de la gaine cathodique, observés au chapitre 4 sur les photographies MEB, et au chapitre 5 sur les photographies provenant des films réalisés à la caméra rapide. Les résultats présentés dans la suite sont issus d'une expérience réalisée avec une pression partielle d'argon égale à 100 mTorr. Afin de limiter l'influence des flux de gaz sur les poussières, aucun pompage des gaz n'est effectué. Les flux de gaz peuvent en effet déformer notablement le nuage de poussières et provoquer la chute de particules hors de la gaine cathodique. Le débit d'acétylène est de 2 sccm et l'instant auquel débute son injection est utilisé comme référence temporelle. La puissance RF est fixée à 10 W.

Afin d'étudier la dynamique de la population des plus grosses particules, 14 acquisitions

ont été réalisées à l'aide de la caméra rapide, déclenchée toutes les 5 secondes après l'injection de l'acétylène. La cadence d'acquisition a été fixée à 5000 images/seconde et la résolution choisie est de 748×496 pixels. Chacun des films dure 1073 images et ne représente donc qu'environ 0,2 seconde d'acquisition. On considère donc que ce qui est observé sur un film donné est représentatif de la situation à l'instant où a été déclenché l'enregistrement. Lorsqu'on s'intéresse au comptage des particules, celui-ci est réalisé pour chaque image du film et une moyenne est effectuée.

L'analyse des films a été effectuée grâce à l'utilisation de l'algorithme TRACE décrit au chapitre 2. Celui-ci est à même de détecter et de suivre automatiquement le déplacement des particules de poussières, pourvu que celles-ci présentent une taille suffisante pour être discernables individuellement. Ce code est par ailleurs capable de calculer la surface apparente que présente chacune des particules détectées.

Pour qu'une particule soit observable de manière individuelle à l'aide de la caméra rapide, il est nécessaire que sa taille soit de plusieurs micromètres. Si l'on se réfère à la photographie MEB présentée figure 4.15 du chapitre 4, des particules d'une telle taille sont en réalité constituées par agglomération de particules submicroniques et seront donc qualifiées d'agglomérats dans la suite du développement de ce chapitre.

Afin d'étudier l'évolution de la population de particules submicroniques, des mesures d'extinction ont également été réalisées dans la gaine cathodique. Les caractéristiques de cette population de particules ont ensuite été déterminées, comme précédemment, à l'aide de la méthode d'inversion développée au chapitre 3.

Cette étude expérimentale fait appel à plusieurs diagnostics dont sont extraits, pour chacun d'entre eux, de multiples informations. L'analyse de ces résultats s'avère par conséquent complexe. Afin de faciliter leur présentation et leur interprétation, cette étude est subdivisée en deux parties. La première est une description des résultats obtenus. La seconde partie est consacrée à l'interprétation des résultats et propose un modèle permettant d'expliquer la formation des agglomérats de particules submicroniques au sein de la gaine cathodique.

6.3.2 Tendances générales

Les premiers résultats présentés sont ceux obtenus à partir des mesures d'extinction et concernent donc la population de particules submicroniques. Sur la figure 6.2(a) sont représentées les évolutions du diamètre de Sauter ainsi que de la valeur absolue de la tension d'auto-polarisation au cours de l'expérience. La densité totale et la fraction volumique en particules du milieu sont présentées figure 6.2(b).

La figure 6.2(a) indique que le diamètre de Sauter des particules submicroniques augmente tout au long de l'expérience. La densité de particules augmente quant à elle jusqu'à $t=28$ s environ, puis diminue jusqu'à la fin de l'expérience. Cette diminution se fait en deux phases qui s'étendent respectivement dans les intervalles $t=[28 \text{ s}; 51 \text{ s}]$ et $t=[51 \text{ s}; 71 \text{ s}]$. A la fin de la première phase, la baisse de densité est lente et progressive. Au contraire, le début de la seconde phase est marqué par une accélération notable de la baisse de

densité. On retrouve également ces tendances sur la fraction volumique totale en particules ainsi que sur le diamètre de Sauter (en particulier la seconde phase). Ces tendances s'accompagnent d'une augmentation progressive de $|V_{bias}|$. Celle-ci peut s'expliquer par le fait que les particules sont de plus en plus grosses et de moins en moins nombreuses, minimisant de ce fait la collection d'électrons par les poussières (cf annexe A §A.3.1).

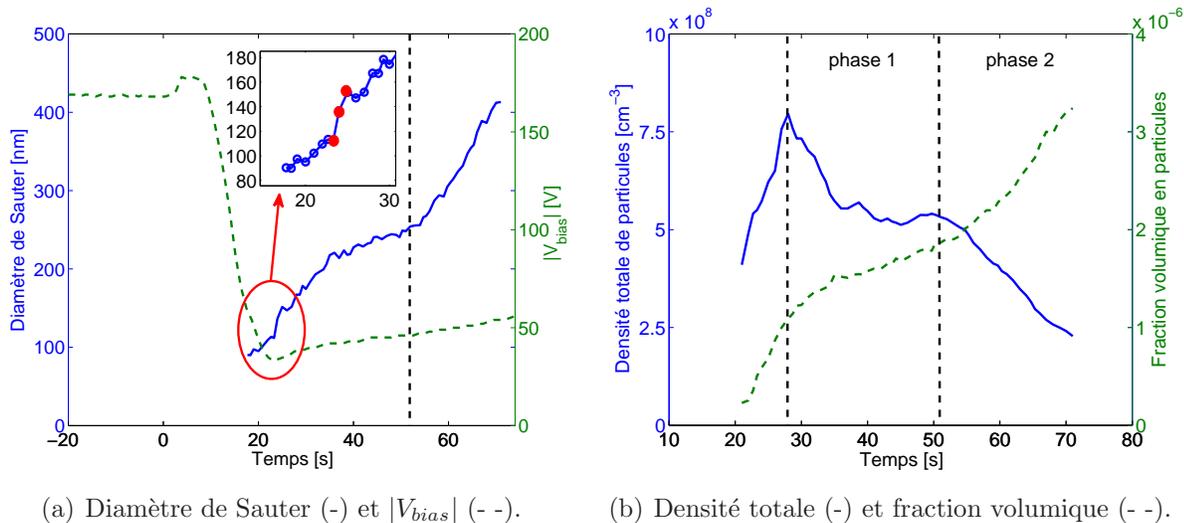


Figure 6.2 – Évolution de la population de particules submicroniques.

Les résultats suivants sont issus des films réalisés à la caméra rapide et concernent donc majoritairement la population d'agglomérats. La figure 6.3(a) représente le nombre de particules détectées par le code numérique en fonction du temps après l'injection d'acétylène. Les repères rouges sur la figure indiquent les instants auxquels ont été réalisés les films desquels sont extraites les images de la figure 6.4. La figure 6.3(b) représente l'évolution au cours du temps de la surface totale présentée par l'ensemble des agglomérats.

La figure 6.3(a) indique que le nombre d'agglomérats présents au sein de la gaine cathodique augmente de manière significative avec le temps. Il convient de préciser que ces résultats ne tiennent pas compte de la taille des particules considérées. La surface totale cumulée des agglomérats est elle-aussi en augmentation durant toute la durée de l'expérience (figure 6.3(b)).

Les évolutions temporelles de ces deux grandeurs sont également marquées par la succession des deux phases explicitées précédemment. Au cours de la phase 1, de $t=26$ s à $t=51$ s, le nombre d'agglomérats et leur surface totale augmentent modérément. La phase 2 s'étend de $t=51$ s à $t=71$ s. Elle est caractérisée par une croissance soutenue de ces paramètres.

Cette augmentation du nombre d'agglomérats se vérifie sur les photographies de la figure 6.4.

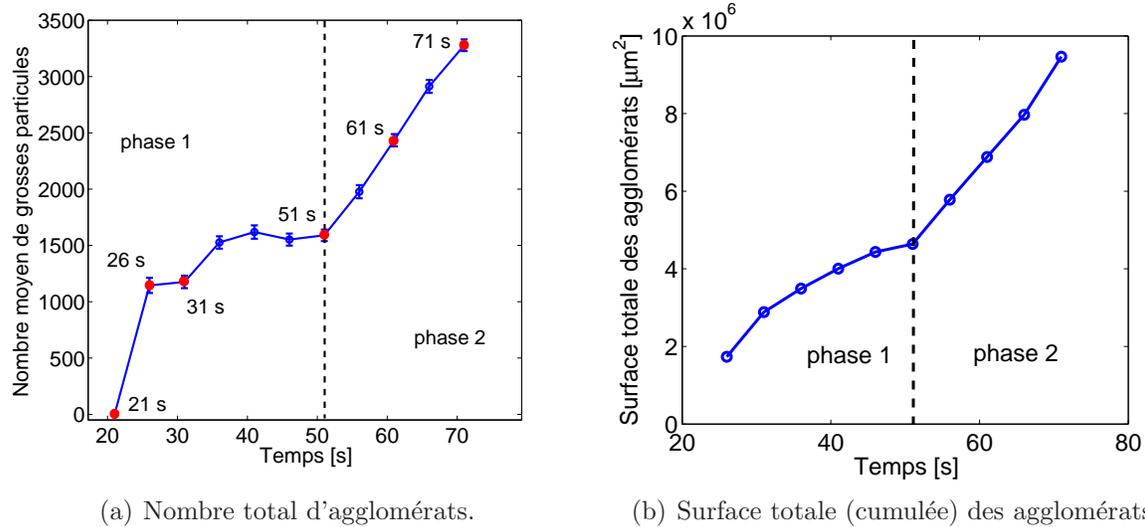


Figure 6.3 – Évolution du nombre total d'agglomérats et de la surface totale cumulée que représentent ces agglomérats.

Les données représentées figure 6.3 sont idéales pour décrire des tendances globales concernant la population d'agglomérats. Cependant une description plus fine de cette population nécessite de disposer des distributions en taille des agglomérats. Étant données les morphologies particulières que peuvent présenter de tels agglomérats, on a choisi de représenter cette distribution en fonction de la surface apparente de chacun des agglomérats. Les résultats obtenus sont présentés figure 6.5. En observant conjointement les photographies de la figure 6.4 et les distributions en taille de la figure 6.5, on remarque qu'un nombre croissant de gros agglomérats apparaît avec le temps au sein de la gaine.

La vitesse moyenne des agglomérats a été déterminée, indépendamment de leur taille, pour chacun des films réalisés. Le résultat obtenu est présenté figure 6.6. On constate que la vitesse moyenne des agglomérats diminue au cours du temps.

Dans la suite de cette partie, le déroulement de l'expérience est repris plus en détail.

6.3.3 Description détaillée

Avant $t \simeq 26$ -28 s :

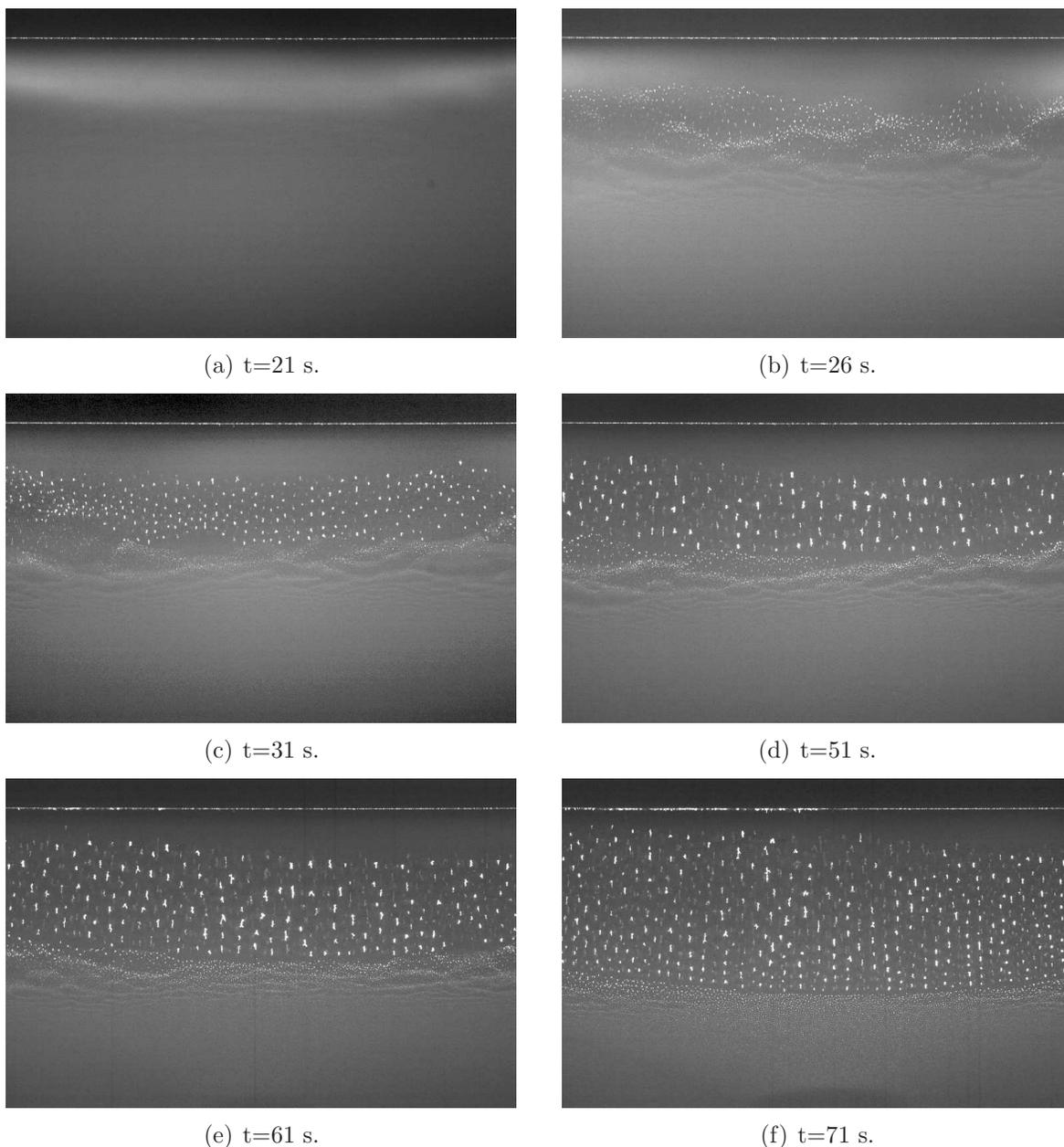


Figure 6.4 – Images du nuage de poussières dans la gaine cathodique en fonction du temps après l'injection de l'acétylène.

- La densité de particules submicroniques présentes au sein de la gaine cathodique augmente, tout comme le diamètre de Sauter et la fraction volumique en particules (figure 6.2). On observe en particulier une augmentation soudaine du diamètre de Sauter à partir de $t \simeq 23$ s (cf zoom sur la figure 6.2(a)). Afin de mieux comprendre ce phénomène, on a représenté figure 6.7 les distributions en taille de particules obtenues grâce à l'inversion des coefficients d'extinction expérimentaux pour les temps $t=23$ s, 24 s et 25 s (points rouges sur la figure 6.2(a)). Les transmittances expérimentales et recalculées lors de la procédure d'inversion sont également représentées sur les figures.

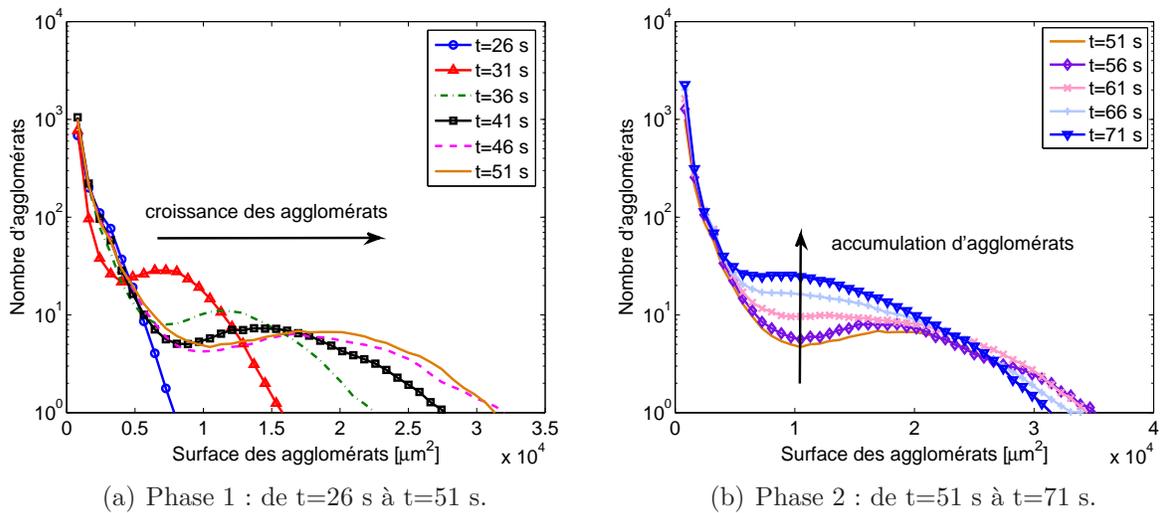


Figure 6.5 – Distributions en taille (surface) des agglomérats.

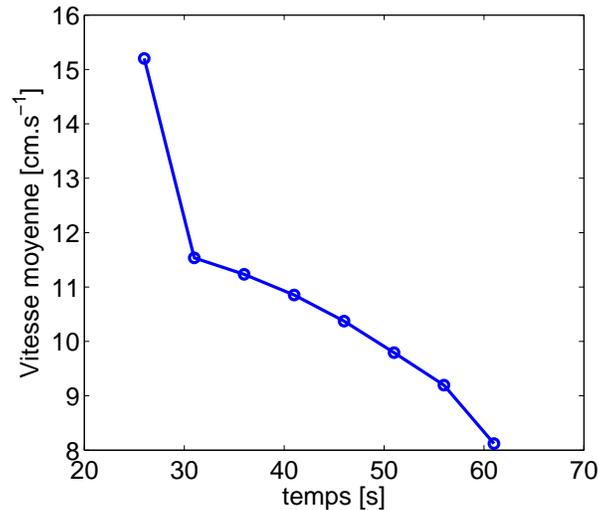


Figure 6.6 – Évolution temporelle de la vitesse moyenne des agglomérats.

Ces résultats indiquent qu'à $t=23$ s, la population de particules ne présente qu'un mode centré sur $d=110$ nm environ. A partir de $t=24$ s, deux effets sont observés qui expliquent l'augmentation constatée du diamètre de Sauter :

- la population précédente de particules s'élargit vers des diamètres supérieurs,
- une nouvelle population de particules apparaît entre 200 et 240 nm.

Cette nouvelle population de particules persiste sur les distributions en taille obtenues pour $t>25$ s. Elle se décale cependant vers des diamètres supérieurs.

- On ne distingue encore aucun agglomérat sur la photographie prise à $t=21$ s (figure 6.4(a)). En revanche, des DDWs sont présentes au sein de la gaine cathodique. Celles-ci se propagent au sein de la population de particules submicroniques.

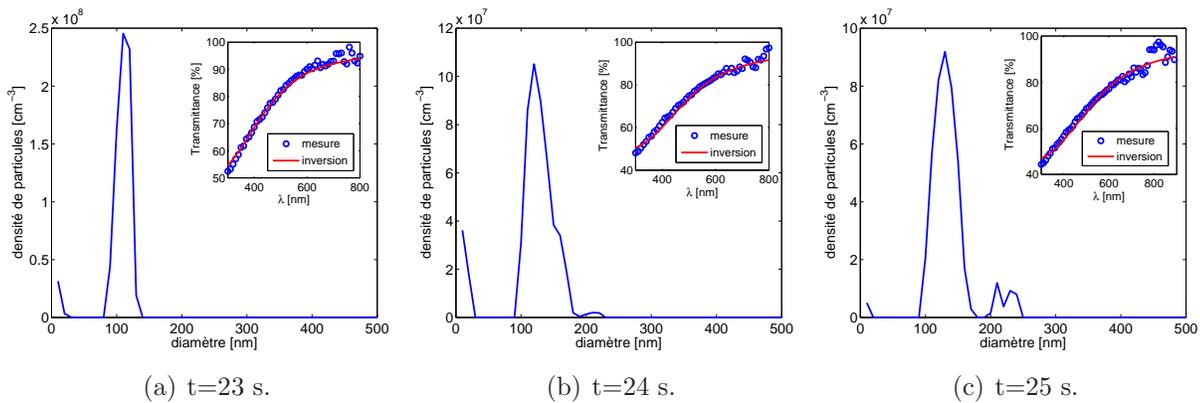


Figure 6.7 – Distributions en taille des particules submicroniques d'après les mesures d'extinction.

A partir de $t \simeq 26-28$ s, début de la phase 1 :

- A partir de $t \simeq 28$ s, la densité de particules submicroniques diminue rapidement jusqu'à environ $t = 36$ s (figure 6.2(a)). A partir de cet instant, la baisse de densité est moins marquée. La fraction volumique en particules, ainsi que le diamètre de Sauter, continuent d'augmenter (figure 6.2(b)). La quantité totale de matière carbonée au sein de la gaine cathodique est donc en augmentation mais celle-ci se répartit sur des tailles de particules importantes, expliquant ainsi la baisse de densité totale observée.

- Cette phase est marquée par l'apparition des premiers agglomérats (photographie 6.4(b)). Leur nombre à cet instant est déjà significatif puisqu'il dépasse les 1300 particules détectées. La distribution présentée figure 6.5(a) indique que ces agglomérats sont initialement de petite taille.

- On peut observer dans la partie basse de l'image des fronts d'onde correspondant aux ondes de densité de poussières. Ces fronts d'onde apparaissent comme des bandes lumineuses continues. Ils correspondent à des zones de forte densité de poussières submicroniques. Ils se propagent en direction de la cathode en entraînant avec eux les agglomérats situés sur leur parcours. Ce phénomène a été décrit plus en profondeur au chapitre 5. La distribution des vitesses des agglomérats en fonction de leur taille (surface), pour le temps $t = 26$ s, est présentée figure 6.8(a). Les agglomérats, alors de petite taille, possèdent une vitesse importante. Celle-ci est comprise entre 8 cm.s^{-1} et 18 cm.s^{-1} pour la majorité d'entre eux et leur vitesse moyenne est de 15 cm.s^{-1} (figure 6.6).

Les agglomérats sont ainsi emportés par les DDWs jusqu'à des positions situées à proximité de la cathode. Leur mouvement est alors interrompu par le champ électrique cathodique qui les accélère dans le sens inverse. Ceux-ci redescendent alors avec une

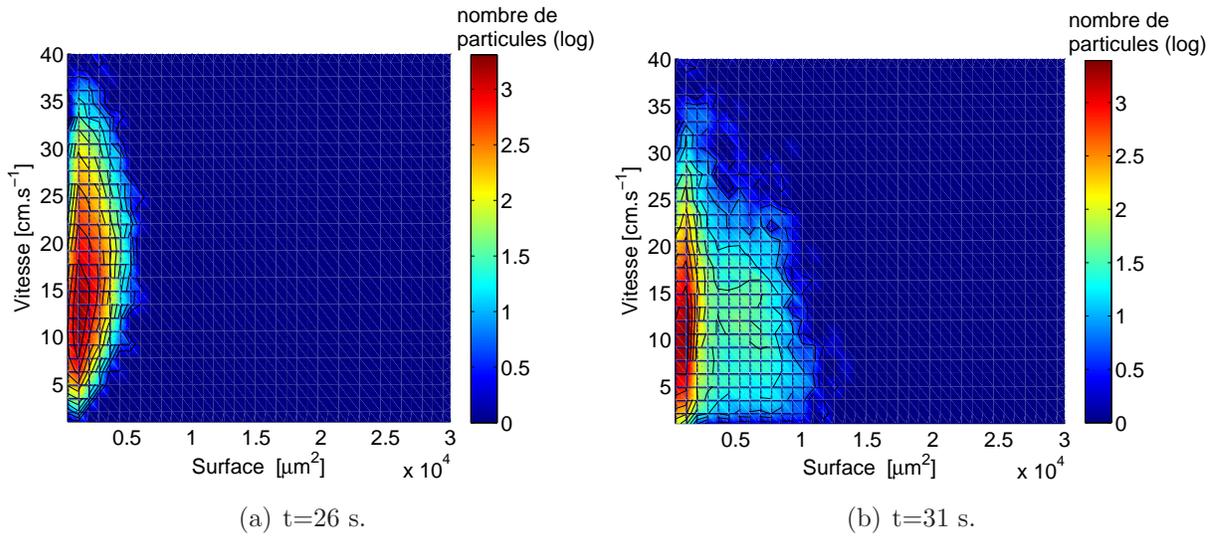


Figure 6.8 – Distributions des vitesses des agglomérats.

vitesse importante transmise par l'accélération liée au champ cathodique, jusqu'à ce qu'ils rencontrent le front d'onde suivant. C'est au cours des phases de descente que leur vitesse est la plus élevée comme l'indique la figure 6.9(a). Afin de rendre compte de la dynamique décrite précédemment, un periodgram correspondant à la situation observée à t=26 s est présenté figure 6.9(b).

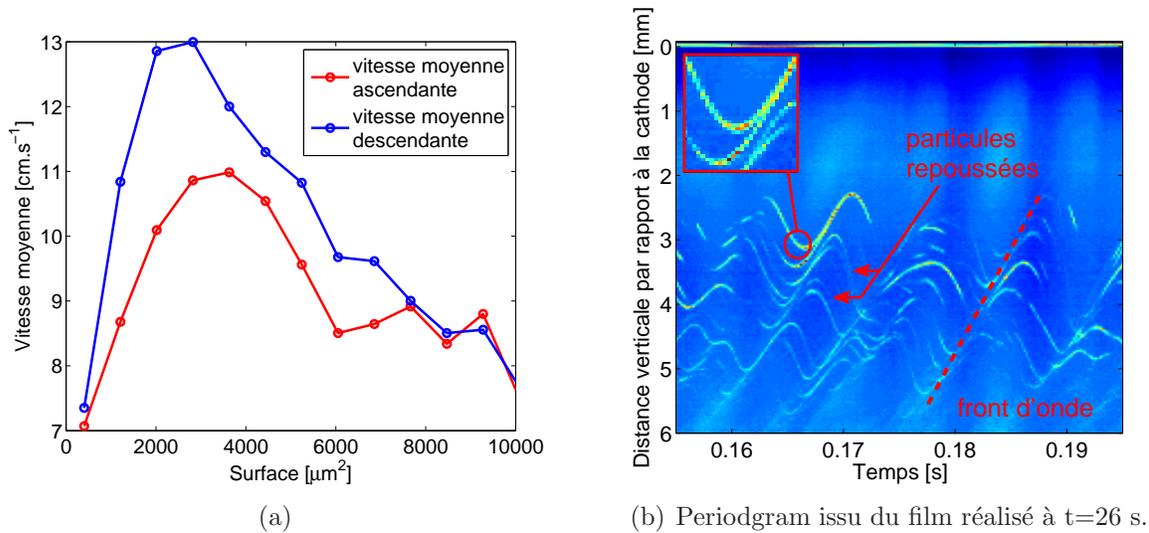


Figure 6.9 – (a) Vitesses moyennes descendante et ascendante des agglomérats à t=36 s et (b) periodgram issu du film réalisé à t=26 s.

Les interactions entre agglomérats se produisent de la manière suivante :

- La majeure partie des agglomérats descendants décélère à l'approche du front d'onde suivant. Cette décélération est provoquée par les interactions entre les poussières descendantes et celles du front d'onde ascendant. Ces agglomérats sont alors incorporés à ce dernier et reprennent un mouvement ascendant.
- La majorité des poussières du front d'onde montant est éjectée par les poussières descendantes sous l'effet des interactions électrostatiques. Elles quittent le front d'onde pour rejoindre le front d'onde inférieur et sont emportées à nouveau, d'où le mouvement sinusoïdale observé. Lors de ce processus, certains agglomérats entrent en contact direct l'un avec l'autre au cours d'une collision. Il arrive parfois que cela conduise à l'agglomération des deux agglomérats initiaux. Un exemple d'un tel évènement est visible sur le zoom du periodgram de la figure 6.9(b).

Les interactions mettent en jeu des forces électrostatiques répulsives importantes mais également de grandes vitesses relatives (si l'on compare les particules montantes et descendantes). Dans certains cas, l'importante énergie cinétique apportée par chacun des agglomérats leur permet de vaincre leur répulsion électrostatique mutuelle. Ils peuvent alors se rapprocher suffisamment pour que des forces attractives à courte portée deviennent significatives, et supplantent leur répulsion coulombienne conduisant à leur agglomération. Ce mécanisme original d'agglomération a été étudié pour la première fois en 2010 par Du *et al.* [128]. Lors du rapprochement des deux particules, des moments dipolaires sont induits et ont pour conséquence l'apparition d'une force attractive entre les deux particules. Les interactions de van der Waals (vdW), deviennent également de plus en plus importantes au fur et à mesure que les deux particules se rapprochent. Les auteurs proposent qu'une force attractive supplémentaire existe, et qui s'applique conjointement aux interactions précédentes. Elle est liée à la discrétisation de la charge portée en surface par les particules : les électrons attachés à une particule sont séparés par une certaine distance. Si au niveau du point de contact, une seule des particules présente un électron, une force attractive apparaît. En revanche, si un électron est attaché au point de contact sur chacune des particules, la force est répulsive.

A partir de $t \simeq 31$ s :

- On distingue désormais nettement trois tailles de particules différentes (image 6.4(c)) :
 - des particules submicroniques composant les fronts d'onde visibles dans la région inférieure,
 - des agglomérats de petite taille qui sont mis en mouvement par les fronts d'onde montants,
 - des agglomérats de grosse taille situés dans la partie haute.
- L'existence des deux populations d'agglomérats apparaît clairement sur la distribution en taille correspondante présentée figure 6.5(a).
- Les agglomérats massifs situés dans la partie haute répondent eux aussi à la propagation des ondes. Les fronts d'onde incidents (composés alors d'agglomérats de petite taille et probablement aussi de petites particules submicroniques) mettent en mouvement les

gros agglomérats situés le plus en bas. Ceux-ci entrent alors en collision (coulombienne) avec leurs homologues situés plus haut et la perturbation se propage. De plus amples détails portant sur ce phénomène peuvent être trouvés dans le chapitre 5.

Entre $t=26$ s et $t=31$ s, la vitesse moyenne des agglomérats a nettement diminué (figure 6.6). Elle n'est plus que de $11,5 \text{ cm.s}^{-1}$ à $t=31$ s. La distribution des vitesses des agglomérats à $t=31$ s est représentée figure 6.8(b). La majorité des petits agglomérats ont une vitesse comprise entre 6 cm.s^{-1} et 15 cm.s^{-1} . Les plus gros agglomérats, situés dans la partie haute de la gaine (à proximité de la cathode), possèdent également des vitesses du même ordre. En particulier, une part importante de la population de gros agglomérats possède des vitesses comprises entre 10 cm.s^{-1} et 15 cm.s^{-1} .

- Malgré leur taille imposante, ces gros agglomérats peuvent ainsi être amenés à entrer en contact direct l'un avec l'autre. Ces événements sont rares et les collisions sont la plupart du temps de nature purement coulombiennes. Cependant, de telles collisions ont pu être observées. L'une d'elle en particulier s'est traduite par un événement d'agglomération. La figure 6.10 représente les trajectoires des deux agglomérats, leur collision, et la trajectoire de l'agglomérat résultant. Les coordonnées spatiales (x et y, mouvement plan) sont données en pixels. Le temps (troisième dimension) est indiqué en secondes. Cet exemple est issu d'une autre expérience dont les caractéristiques sont indiquées dans la légende de la figure.

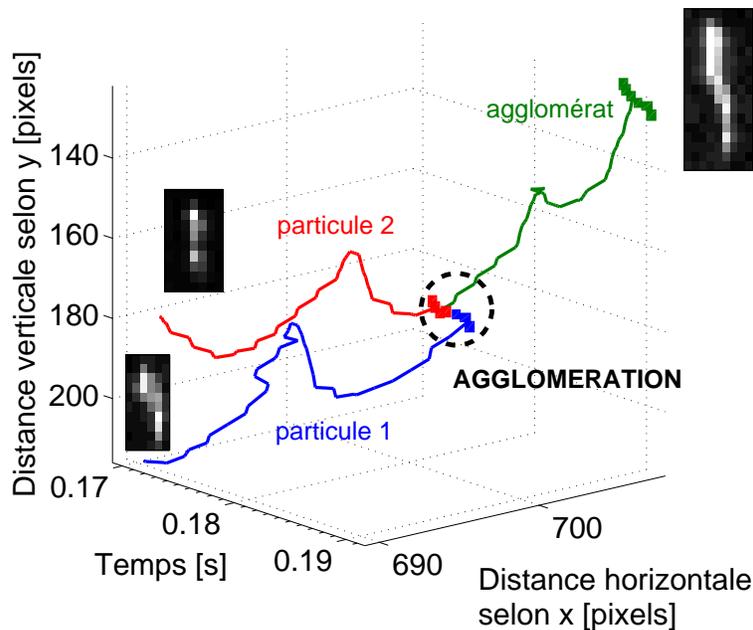


Figure 6.10 – Évènement d'agglomération entre deux agglomérats. Conditions expérimentales : $P=100 \text{ mTorr}$, $P_{RF}=25W$.

Il est très délicat d'avoir la certitude que les collisions observées conduisent réellement à une agglomération entre particules. Cependant, lors des évènements présentés ici, la forme de l'agglomérat résultant apparaît clairement comme issue de la combinaison des formes des deux agglomérats initiaux. De plus, le déplacement de l'agglomérat résultant a pu être suivi sur plusieurs images. L'intégrité de celui-ci peut donc être confirmée avec une fiabilité certaine.

- Les agglomérats de petite taille ne pénètrent que faiblement la zone où sont présents les gros agglomérats. Les fortes répulsions électrostatiques les en empêchent. Le même constat peut être fait en ce qui concerne les particules submicroniques, bien qu'il soit plus difficile d'en juger, celles-ci n'apparaissant pas comme des entités individuelles mais comme un fond continu.

En fonction de leur taille, les particules sont donc réparties différemment au sein de la gaine cathodique. Les plus grosses particules (agglomérats) sont situées à proximité de la cathode et les plus petites en lisière de gaine. Un gradient de taille est donc présent et dirigé du plasma vers l'électrode. Celui-ci est maintenu par le biais des interactions électrostatiques entre les particules. Cette différenciation dans la taille des particules provient de leur processus de formation, comme expliqué précédemment. Il semble également que le bilan des forces agissant sur elles soit en accord avec cette répartition, puisque celle-ci est conservée au cours de l'expérience.

- Au fil du temps, et comme l'attestent les photographies de la figure 6.4 et les distributions en tailles de la figure 6.5(a), la taille des agglomérats augmente. Cette phase de croissance s'étend de $t \simeq 26$ s à $t \simeq 51$ s environ. Elle correspond à la **phase 1**.

A partir de $t \simeq 51$ s, phase 2 :

- Le début de la deuxième phase est marqué par une accélération de la baisse de densité des particules submicroniques (figure 6.2(a)). Celle-ci est corrélée avec une intensification de l'accroissement de la fraction volumique en particules et de leur diamètre de Sauter.

- Cette nouvelle phase, appelée **phase 2**, est marquée par le développement de la population de petits agglomérats dans la partie basse du nuage de poudres et dont le nombre ne cesse d'augmenter jusqu'à la fin de l'expérience. Cette production de nouveaux agglomérats est particulièrement visible sur les distributions présentées figure 6.5(b). Elle est responsable de l'importante augmentation du nombre total d'agglomérats qui débute à $t = 51$ s, visible sur la figure 6.3(a). La surface totale présentée par les agglomérats augmente elle aussi de manière plus soutenue dès le début de la deuxième phase (figure 6.3(b)).

- La figure 6.11 représente les distributions en vitesse des agglomérats pour les temps $t = 51$ s et $t = 56$ s. Les petits agglomérats, situés dans la partie basse de la gaine, ont une vitesse moyenne de 12 cm.s^{-1} environ. Les agglomérats les plus imposants, situés dans la partie haute de la gaine (photographies 6.4(d), (e) et (f)) ne sont plus en mesure de répondre aux perturbations propagées par les ondes de poussières, probablement en rai-

son de leur masse trop importante. Ils possèdent une vitesse très faible, de l'ordre de 2 cm.s^{-1} . Leur faible agitation leur permet de commencer à s'organiser en lignes verticales (cf chapitre 5 section 5.4.2). Cet alignement est particulièrement visible sur l'image 6.4(f).

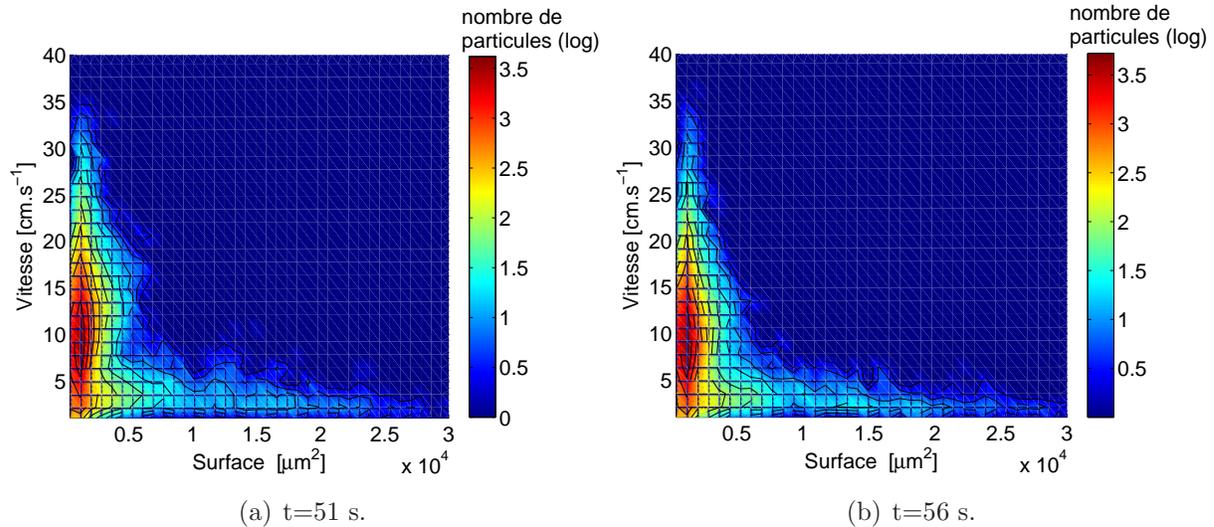


Figure 6.11 – Distributions en vitesse des agglomérats.

- Ces gros agglomérats constituent ainsi une frontière pour les petits agglomérats participant à la propagation des DDWs. La grande majorité d'entre eux est repoussée à l'approche des grosses particules. La situation est analogue à celle observée au début de l'expérience (à $t=26 \text{ s}$ par exemple), le champ électrostatique généré par ces gros agglomérats jouant le rôle du champ électrique cathodique. Cette frontière est observée de plus en plus bas dans la gaine au fur et à mesure que la quantité de gros agglomérats augmente. Cet effet est particulièrement visible sur la figure 6.12 qui représente le profil des vitesses moyennes des agglomérats à travers la gaine pour différents instants. On observe un décalage vers le bas de la gaine de la vitesse maximale au cours du temps. A $t=26 \text{ s}$ par exemple, la vitesse maximale est de 18 cm.s^{-1} et elle est atteinte à proximité de la cathode. Au contraire, à $t=56 \text{ s}$, les gros agglomérats situés à proximité de la cathode possèdent une faible vitesse tandis que les agglomérats situés à 8 mm de la cathode sont les plus rapides. Leur vitesse moyenne n'est cependant plus que de 12 cm.s^{-1} . Cette tendance s'explique par plusieurs phénomènes :

- les particules amenées à proximité de la cathode par les DDWs acquièrent des vitesses descendantes importantes car elles sont repoussées par le fort champ électrique,
- la vitesse de phase des DDWs diminue en s'éloignant de la cathode. Les particules emportées par les DDWs acquièrent donc des vitesses ascendantes plus importantes à proximité de la cathode, et plus faibles au début de la gaine.

- Lorsque les agglomérats au voisinage de la cathode deviennent trop gros, ils ne sont plus en mesure de répondre aux sollicitations des DDWs. Ils ne sont donc plus amenés à proximité de l'électrode, ni repoussés par son champ électrique et deviennent immobiles.

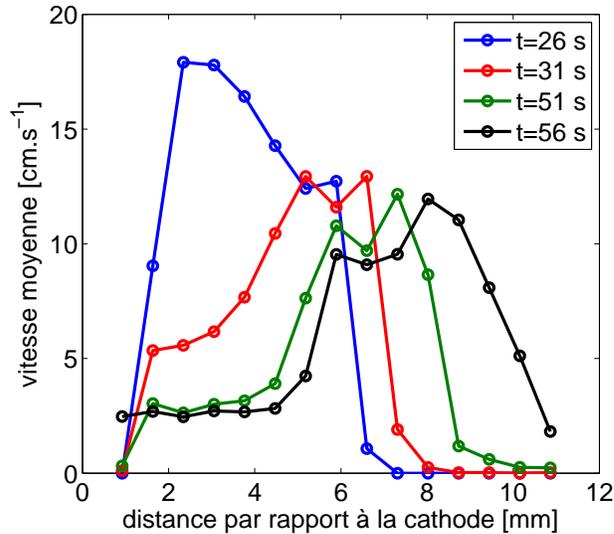


Figure 6.12 – Profils des vitesses moyennes des agglomérats à travers la gaine à différents instants.

- Sur le dernier film effectué à $t=71$ s (photographie 6.4(f)), des DDWs de faible amplitude sont encore observées aux extrémités latérales inférieures du nuage de poussières. Dans le reste du nuage, les agglomérats sont quasiment immobiles.

6.3.4 Discussion et interprétation des résultats

Au cours du paragraphe précédent, les évolutions des populations de particules submicroniques et des agglomérats au sein de la gaine cathodique ont été décrites. Cependant aucun modèle précis de la formation de ces agglomérats n'a été proposé. Ce dernier point est l'objet de cette section.

Certains termes utilisés dans l'explication qui suit nécessitent d'être au préalable clairement définis de manière à faciliter la compréhension du lecteur :

- particule : désigne une particule submicronique. Cette dénomination ne repose que sur cette considération de taille. Ces particules ne sont pas observables individuellement à la caméra rapide. Leur présence n'est détectée que par le biais des mesures d'extinction. Si le résultat de l'agglomération de plusieurs particules submicroniques entre elles est un agglomérat de taille submicronique, celui-ci restera dénommé comme une particule submicronique et non comme un agglomérat.

- agglomérat : désigne un ensemble de particules agglomérées visible sur les images réalisées à la caméra rapide. Les plus petites particules visibles avec cette méthode sont de l'ordre d'une dizaine de micromètres. Il existe donc une gamme de tailles de particules comprise entre 1 et 10 microns environ qui demeure invisible avec les diagnostics utilisés.

Dans la suite, la succession des différentes phases caractéristiques observées lors de l'expérience précédente sont reprises et interprétées. Les explications proposées sont illustrées par le schéma présenté figure 6.14.

Entre $t=0$ s et $t \simeq 26-28$ s :

Au cours de cette période, des poussières de taille submicronique sont accumulées au sein de la gaine cathodique. Ces particules ont un diamètre d'environ 100 nm d'après les mesures de transmittance. Lorsque leur densité devient suffisante, des DDWs apparaissent. Celles-ci sont observées pour la première fois sur le film réalisé à $t=21$ s. L'apparition des DDWs est suivie quelques secondes plus tard par l'apparition de nouvelles particules submicroniques dont le diamètre est de l'ordre de 200 nm (cf figure 6.7).

La simultanéité des deux phénomènes laisse supposer que les DDWs jouent un rôle dans la formation de ces nouvelles particules. Les poussières emportées par les fronts d'onde peuvent acquérir localement des vitesses importantes. Ainsi, au cours d'une collision, celles-ci peuvent présenter des vitesses relatives importantes. Ceci leur permet de vaincre leurs répulsions électrostatiques et de se rapprocher suffisamment l'une de l'autre pour que les forces attractives à courte portée (vdW, polarisation et discrétisation de la charge) permettent leur agglomération. Les fortes densités de poussières dans les zones de compression (fronts d'onde) et le brassage des particules résultant des DDWs sont également des facteurs pouvant catalyser le processus d'agglomération.

Les agglomérats constitués d'un petit nombre de particules, tels qu'ils ont pu être observés au chapitre 4, ont probablement été créés par ce phénomène.

Entre $t \simeq 26-28$ s et $t \simeq 51$ s : phase 1

Le début de cette phase est marqué par l'apparition des premiers agglomérats sur le film réalisé à $t=26$ s. Leur formation est rendue possible grâce aux DDWs qui favorisent grandement l'agglomération particule-particule comme expliqué précédemment. Ainsi, la baisse de la densité totale de particules submicroniques se poursuit et leur diamètre de Sauter augmente (cf figure 6.2).

Pendant toute la durée de cette phase, le nombre total d'agglomérats varie peu (cf figure 6.3(a)). En revanche leur taille augmente continûment (cf figure 6.5(a)). Cette croissance peut être imputée à l'action conjointe de deux mécanismes :

- Les collisions agglomérat-particule : les agglomérats déjà formés collectent des poussières submicroniques. Cette collection peut se faire lorsque les agglomérats sont emportés par les fronts d'onde caractérisés par de fortes densités de poussières submicroniques. Ces dernières acquièrent en effet localement des vitesses importantes

grâce au champ électrique de l'onde. En particulier, les circonstances les plus favorables pour l'agglomération agglomérat-particule sont rencontrées lorsque l'agglomérat rencontre le front d'onde montant sous-jacent lors de son mouvement descendant (après avoir été emporté par le front d'onde précédent). La vitesse relative des agglomérats vis-à-vis des particules est alors maximale. De ce fait, l'effet pénalisant des répulsions électrostatiques est grandement atténué grâce aux importantes énergies cinétiques des poussières. Ainsi, dès lors qu'un agglomérat voit sa surface augmenter, sa probabilité de collecter des petites particules augmente encore et la poursuite de sa croissance est assurée (effet de surface).

- Les collisions agglomérat-agglomérat : elles conduisent les agglomérats déjà formés à s'agglomérer entre eux. De tels événements d'agglomération ont été observés (cf figures 6.9 et 6.10). Ils se produisent lorsque la vitesse relative des deux agglomérats est maximale. La situation correspondant à ce cas de figure est rencontrée lorsqu'un agglomérat animé d'un mouvement descendant ayant quitté un front d'onde, rencontre un agglomérat animé d'un mouvement ascendant emporté par le front d'onde suivant.

La taille des agglomérats augmente ainsi au cours de la phase 1. Cependant, au cours de leur croissance, leur masse devenant de plus en plus importante, ces agglomérats sont de moins en moins aptes à se laisser emporter par les fronts d'onde (cf figure 6.12). Les vitesses relatives au cours des collisions entre poussières sont donc de plus en plus faibles. Par ailleurs, avec l'augmentation de leur taille, la charge électronique qu'ils portent augmente, amplifiant de ce fait les répulsions électrostatiques entre poussières. Il en résulte que les collisions agglomérat-particule et agglomérat-agglomérat pouvant conduire à un événement d'agglomération sont de plus en plus rares. Le bénéfice de l'effet de surface n'est plus suffisant pour maintenir la croissance. Ceci explique que la baisse de densité des particules submicroniques soit de moins en moins soutenue à la fin de la première phase (figure 6.2).

Ces observations conduisent à définir une notion de taille limite (maximale) pour les agglomérats. Une fois cette taille atteinte, ils sont trop lourds pour continuer à se mouvoir et l'importante charge qu'ils portent se traduit par de fortes interactions électrostatiques. Ils s'organisent en cristal et leur taille cesse d'évoluer. Lorsque les agglomérats de la première population ont cette taille limite, une nouvelle population d'agglomérats apparaît. Ceci marque le début de la seconde phase.

Remarque :

La structure finale des agglomérats peut être observée grâce aux photographies MEB présentées figure 6.17. La figure 6.13 propose deux zooms d'une photographie MEB similaire à celle présentée figure 4.15(d) au chapitre 4. Elles permettent de mieux visualiser la nature des particules submicroniques composant un agglomérat. On observe que ces particules submicroniques ont des aspects très similaires à ceux observés au chapitre 4. Elles semblent elles-mêmes formées par une agglomération préalable de particules submicroniques entre elles, confortant ainsi les explications avancées précédemment. Deux exemples entourés en rouge illustrent particulièrement bien cet aspect.

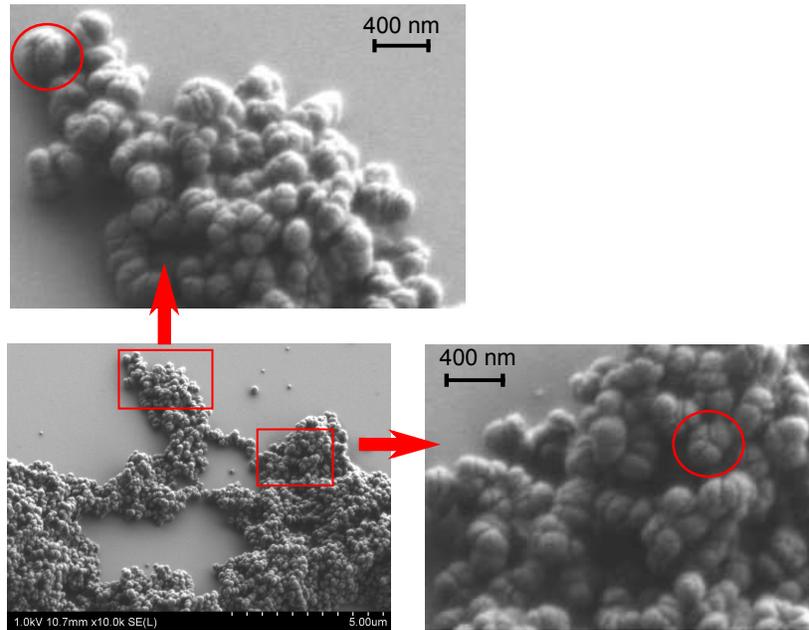


Figure 6.13 – Zoom d'une photographie MEB d'un agglomérat.

Entre $t \simeq 51$ s et $t \simeq 71$ s : phase 2

La première population d'agglomérats a achevé sa croissance. Ces gros agglomérats sont peu mobiles (figures 6.11 et 6.12) et fortement chargés. Ils définissent une frontière pour les poussières plus petites situées en-dessous. Celles-ci ne sont plus en mesure d'accéder à l'espace situé à proximité de la cathode, elles sont confinées dans la partie basse de la gaine cathodique. Des DDWs sont toujours observées dans cette partie du nuage de poudres (cf figures 6.4 (d) et (e)). Les gros agglomérats de la population 1 ne collectent plus les petits agglomérats ni les particules submicroniques comme lors de la phase 1. Cela permet une nouvelle phase d'agglomération des particules sous l'effet des DDWs dans la partie basse de la gaine cathodique, selon les mécanismes définis précédemment. Il en résulte l'apparition d'une nouvelle population d'agglomérats ($S \simeq 10^4 \mu\text{m}^2$) comme on peut l'observer sur les distributions en taille présentées figure 6.5(b). Au fur et à mesure que ces agglomérats sont formés, la zone active (zone de production de ces petits agglomérats) s'éloigne de la cathode. L'apparition de cette nouvelle population est responsable de l'augmentation du nombre total d'agglomérats et de leur surface totale cumulée (figure 6.3). Le phénomène de collection des particules submicroniques par les gros agglomérats s'étant arrêté, celles-ci s'agglomèrent à nouveau de manière soutenue entre elles (cf figure 6.2). Cela explique l'importante augmentation du diamètre de Sauter dès le début de cette phase.

Cette seconde population d'agglomérats n'atteint cependant pas la taille limite observée pour la population 1 ($S \simeq 3 \times 10^4 \mu\text{m}^2$). A la fin de l'expérience (photographie à $t=71$

s, figure 6.4(f)), seules des DDWs de faible amplitude sont présentes, et uniquement aux extrémités latérales du nuage de poussières (là où des particules submicroniques sont encore présentes). Ceci est dû au fait que les agglomérats occupent une grande partie de la gaine cathodique, empêchant ainsi les poussières submicroniques de demeurer piégées au sein de la gaine (cf chapitre 5). Les conditions (champ électrique, pression, taille et densité des poussières. . .) sont alors telles que les DDWs ont disparu dans cette région. Il n'y a donc plus de particules submicroniques, ni le moteur (les DDWs), nécessaires pour assurer la croissance des agglomérats. La taille de ceux-ci reste donc la même.

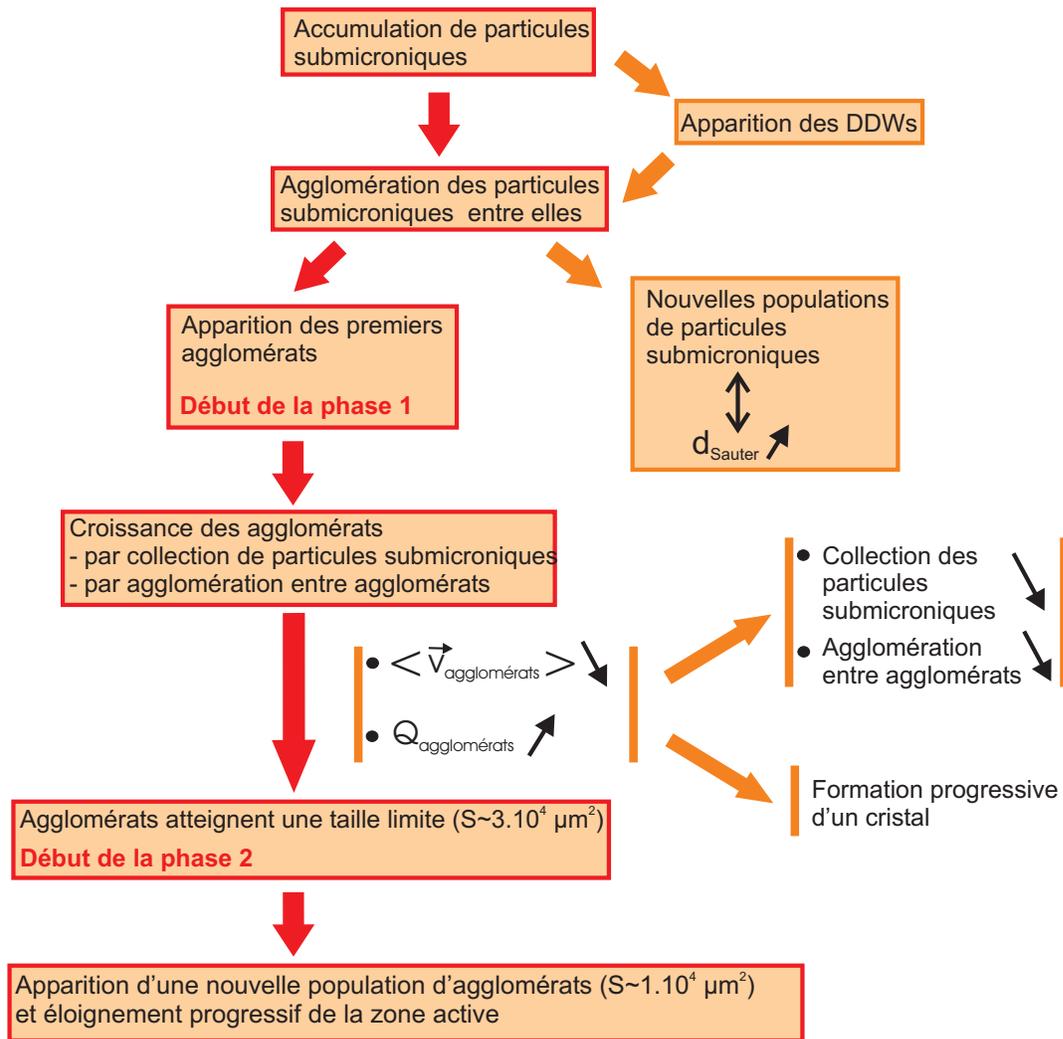


Figure 6.14 – Schéma récapitulant la formation des agglomérats.

6.4 Étude de la morphologie des agglomérats.

6.4.1 Étude morphologique basée sur les films réalisés à la caméra rapide.

La figure 6.15 présente un exemple d'agglomérats tels qu'ils peuvent être observés à l'aide de la caméra rapide lors d'une expérience réalisée à $P=120$ mTorr et $P_{RF}=25$ W.

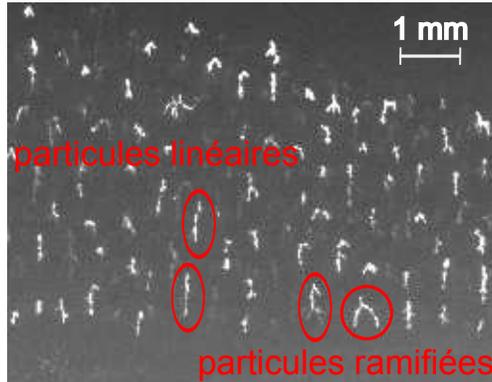


Figure 6.15 – Particules dans la gaine cathodique. $P=120$ mTorr, $P_{RF}=25$ W, $Ar/C_2H_2=12/2$ sccm, $t=60$ s après injection de C_2H_2 .

Comme on peut le remarquer sur ces images, ces particules sont de diverses géométries. Certaines sont linéaires et peuvent atteindre des longueurs très importantes, supérieures au millimètre. Des particules d'une telle longueur sont susceptibles de se déformer, se plier, se courber, au gré de leur mouvement au sein de la gaine comme on peut le voir sur la figure 6.16. D'autres particules présentent également une structure ramifiée (figure 6.15).

6.4.2 Étude morphologique basée sur la microscopie à balayage électronique

L'idéal pour comprendre comment de telles particules peuvent être formées, est d'accéder directement à leur structure grâce à l'utilisation de la microscopie (MEB). Cela nécessite de collecter ces particules au cours d'une expérience ce qui implique certaines précautions. En effet, lors de la coupure de la décharge, la grande majorité de ces particules massives est expulsée de la gaine et tombe aléatoirement dans diverses zones de la chambre, ou est attirée et collectée par la cathode. Afin d'être en mesure d'extraire ces particules, la technique développée au chapitre 4, qui fait appel à l'utilisation du point froid, a été employée. Le protocole expérimental utilisé est le suivant. La pression dans l'enceinte a été fixée à 130 mTorr et le débit d'argon à 12 sccm. La puissance RF est de

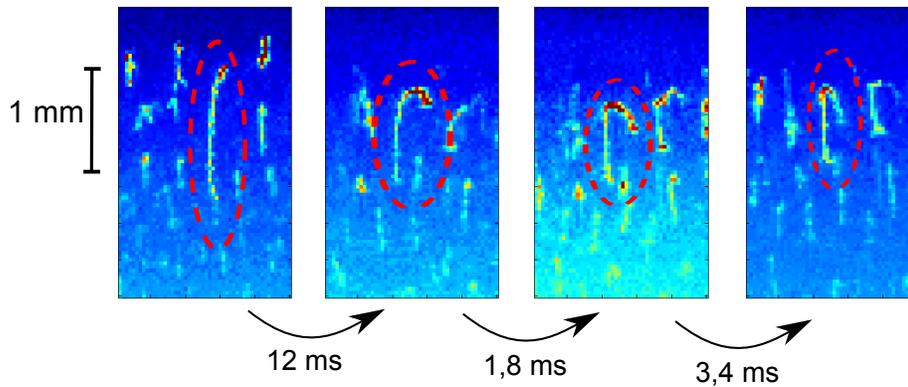


Figure 6.16 – Photographies d'une particule linéaire de longueur supérieure à 1 mm et subissant des déformations (échelle de couleur artificielle).

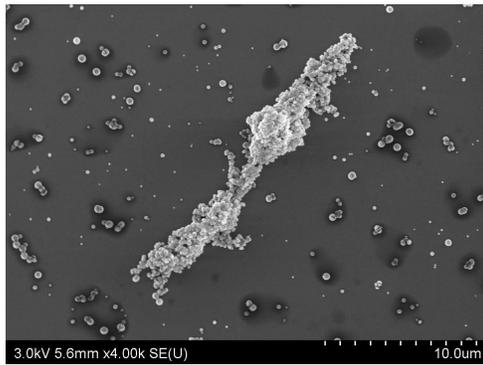
25 W. La décharge a été initiée en argon pur puis de l'acétylène a été injecté pendant 30 s avec un débit de 2 sccm. L'injection d'acétylène a ensuite été interrompue. Un temps d'attente de 6 minutes a ensuite été respecté. Cette durée est nécessaire pour permettre à la majeure partie des particules submicroniques de disparaître par agglomération ou parce que les conditions nécessaires à leur confinement au sein de la gaine cathodique n'étaient plus réalisées. Cela permet de ne collecter principalement que les gros agglomérats qui font l'objet de cette étude. L'azote liquide a ensuite été introduit dans le tube métallique afin de créer le gradient de température nécessaire à l'extraction des poussières. La figure 6.17 donne des exemples de photographies MEB ainsi obtenues.

On y retrouve les structures linéaires (images 6.17(a) et (b)) et ramifiées (images 6.17(c)) des particules telles qu'elles avaient pu être observées in-situ lors de certaines expériences à l'aide de la caméra rapide. Les photographies 6.17(e) et (f) représentent bien la véritable nature de ces grosses particules. Ce sont des agglomérats constitués d'un très grand nombre (probablement plusieurs milliers) de particules submicroniques. Dans le cas présent, leur diamètre moyen est de 250 nm et le diamètre de Sauter de 263 nm. La photographie 6.17(d) illustre une situation fréquemment observée lors de l'utilisation de la technique d'extraction faisant appel au point froid. On observe la formation d'un "réseau" d'agglomérats enchevêtrés. La morphologie de ceux-ci, linéaires ou ramifiés, confère au "réseau" son aspect segmenté.

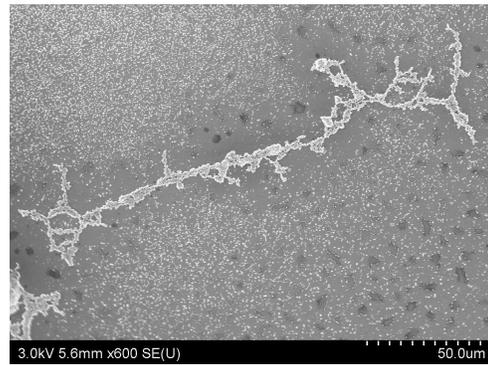
6.5 Influence des conditions expérimentales sur le processus d'agglomération

6.5.1 Définition des paramètres morphologiques

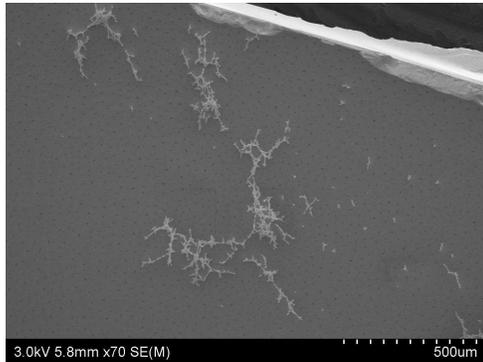
La partie 6.3 a présenté de manière détaillée les mécanismes à l'origine de la formation des agglomérats sous l'action des DDWs. Dans la partie 6.4, différentes morphologies d'ag-



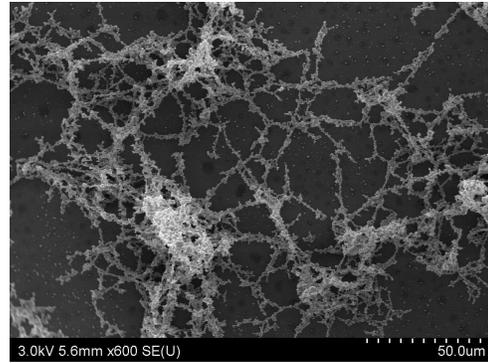
(a) Particule linéaire de longueur 21 μm .



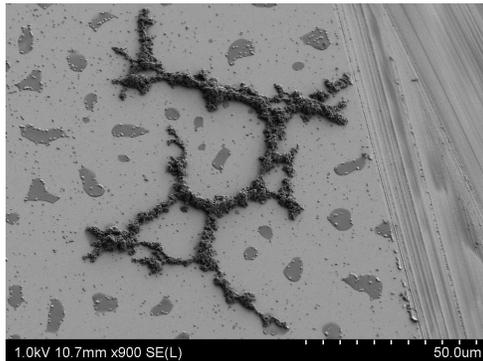
(b) Particule linéaire de longueur 200 μm .



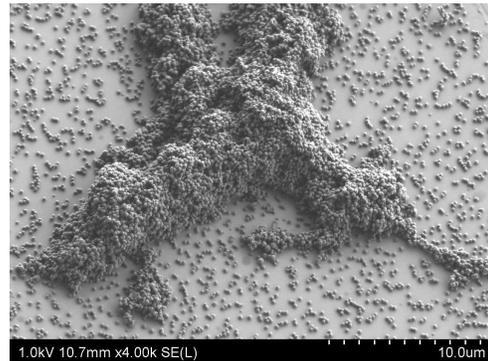
(c) Particules ramifiées.



(d) Ensemble de particules ramifiées et/ou linéaires enchevêtrées.



(e) Photographie d'un agglomérat prise sous inclinaison.



(f) Photographie d'un agglomérat prise sous inclinaison.

Figure 6.17 – Photographies MEB d'agglomérats extraits de la gaine cathodique.

glomérats ont été présentées. L'objectif de cette nouvelle section est d'étudier l'influence des conditions expérimentales sur la taille et la morphologie des agglomérats formés. Cette étude sera faite à l'aide des données fournies par l'analyse des films réalisés à la caméra rapide. De multiples informations sont ainsi obtenues pour chaque agglomérat, notamment :

- la largeur X de la boîte contenant l'agglomérat,
- la hauteur Y de la boîte contenant l'agglomérat,

- la surface S de l'agglomérat.

Ces paramètres sont illustrés par la figure 6.18. Comme cela a été explicité au paragraphe 6.4, les agglomérats peuvent présenter des morphologies très diverses : particules allongées, ramifiées... Afin d'être en mesure de retranscrire ces caractéristiques morphologiques, deux paramètres ont été définis :

- la compacité C qui s'exprime comme le rapport de la surface apparente S de l'agglomérat par la surface $X \times Y$ de la boîte contenant l'agglomérat : $C = \frac{S}{X \times Y}$. Pour un agglomérat compact, $C \rightarrow 1$ tandis que pour un agglomérat présentant une structure ramifiée, $C \rightarrow 0$ (cf figure 6.18).
- L'élongation El est le rapport entre la hauteur Y de l'agglomérat et sa largeur X : $El = \frac{Y}{X}$. Un agglomérat de forme allongée présentera une élongation El importante.

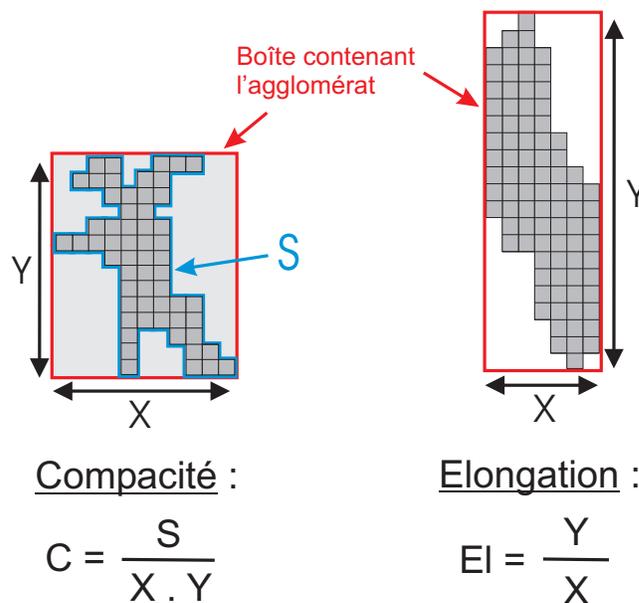


Figure 6.18 – Caractéristiques géométriques d'un agglomérat.

6.5.2 Influence de la pression et de la puissance RF

Deux séries d'expériences ont été réalisées en fonction de la pression, pour deux valeurs de la puissance RF : 10 W et 25 W. Le protocole expérimental adopté pour chaque expérience est identique à celui de l'expérience présentée dans la partie 6.3. La vanne de pompage est en position fermée. Une pression partielle d'argon P donnée est établie dans l'enceinte. Le plasma est ensuite allumé puis l'acétylène est injecté dans l'enceinte à $t=0$ s avec un débit de 2 sccm.

Une augmentation de la pression P de travail modifie, par plusieurs aspects, l'environnement dans lequel sont formés les agglomérats. Cette modification se traduit notamment par trois aspects essentiels :

- la fréquence des collisions électron-neutre augmente. L'énergie gagnée dans le champ électrique par les électrons entre deux collisions est donc plus faible, ce qui se traduit, dans ces conditions⁵, par une diminution de l'ionisation. Les densités plasma sont alors plus faibles et la valeur absolue de la tension d'auto-polarisation $|V_{bias}|$ diminue. Le champ électrique moyen E dans la gaine cathodique est alors plus faible (cf figure 4.20 chapitre 4).
- La baisse des densités plasma a également pour conséquence de diminuer la charge négative portée par les poussières. Cet effet est renforcé par l'augmentation des collisions entre les ions piégés autour des poussières et les molécules de gaz neutres, ce qui a pour conséquence d'augmenter le flux d'ions à la surface des poussières [108].
- La fréquence de collisions neutre-poussière augmente, ce qui se traduit par une augmentation de la force de frottements des neutres.

L'évolution de la surface moyenne des agglomérats à la fin de chaque expérience ($t \simeq 70$ s) est présentée figure 6.19(a) pour les deux séries d'expériences réalisées. Comme on peut le constater, la surface moyenne des agglomérats diminue nettement lorsque la pression augmente. Comme cela a été expliqué précédemment, les processus d'agglomération sont fortement conditionnés par la compétition entre les répulsions électrostatiques liées à la charge portée par les poussières, et leur énergie cinétique. Cette dernière leur est transmise par les DDWs qui les emportent au passage de chaque front d'onde. Cependant, il est difficile de déterminer les vitesses de phase des DDWs dans le cas cathodique comme cela a pu être fait au chapitre 5 pour l'étude des DDWs se propageant au sein de la gaine anodique. Ceci s'explique par la présence simultanée des fluctuations basse fréquence (cf chapitre 5) et des gros agglomérats qui rendent inutilisables les outils d'analyse développés lors de l'étude précédente. Pour palier ces difficultés, la vitesse moyenne des agglomérats a été directement déterminée à l'aide du code TRACE.

La figure 6.19(b) présente l'évolution de la vitesse moyenne des agglomérats à $t \simeq 25$ s pour la série d'expériences réalisées à $P_{RF} = 10$ W. On observe que celle-ci diminue de 20 cm.s^{-1} à 5 cm.s^{-1} entre $P = 50$ mTorr et $P = 200$ mTorr. Les études portant sur les DDWs dans la gaine anodique avaient par ailleurs révélé que la vitesse de phase des DDWs diminuait avec la pression. Cela conforte la tendance observée, si l'on admet que l'évolution des paramètres des DDWs est similaire dans les cas anodique et cathodique. Cette dernière hypothèse a été confirmée par l'ensemble des expériences réalisées. L'agglomération des poussières, qu'elle soit de nature agglomérat-particule ou agglomérat-agglomérat est donc favorisée par l'augmentation des vitesses des particules à basse pression.

Lorsque la pression diminue, la charge portée par les poussières devrait augmenter, accentuant ainsi les répulsions entre poussières. Cependant, cet effet semble dominé par l'augmentation de la vitesse des particules.

5. L'effet inverse pourrait être observé à très basse pression (faible densité de neutres). La probabilité d'une collision électron-neutre serait alors très faible et une augmentation de la pression permettrait d'augmenter cette probabilité. Dans ces conditions, le facteur limitant serait la probabilité de rencontre et non l'énergie acquise par les électrons (Loi de Paschen).

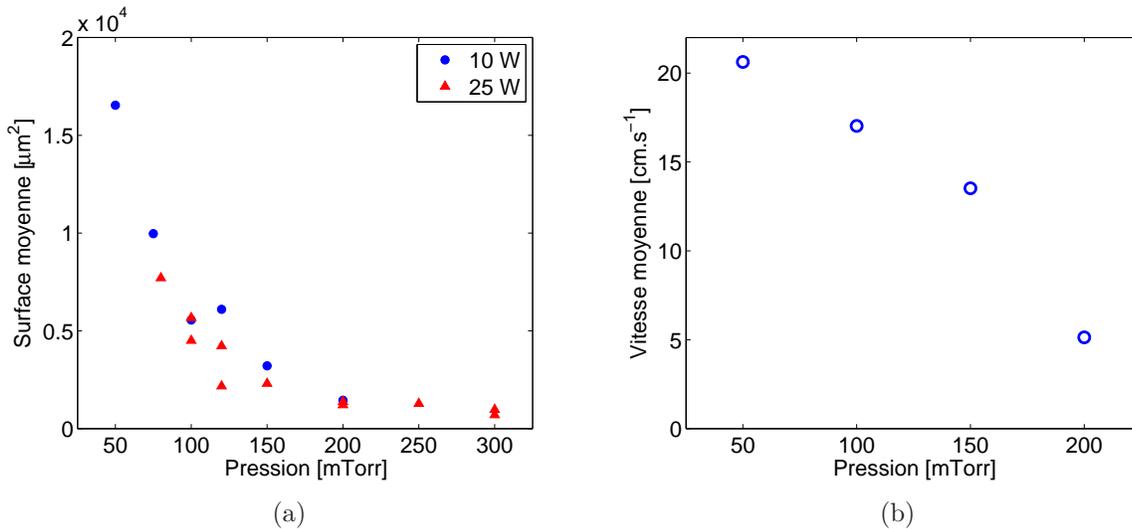


Figure 6.19 – (a) Surface moyenne des agglomérats à $t \simeq 70$ s pour $P_{RF} = 10$ W et 25 W et (b) vitesse moyenne des agglomérats à $t \simeq 25$ s pour $P_{RF} = 10$ W.

Les conditions expérimentales ont également une influence notable sur la morphologie des agglomérats formés. La compacité des agglomérats et leur élongation à $t \simeq 70$ s sont respectivement présentées figure 6.20 (a) et (b).

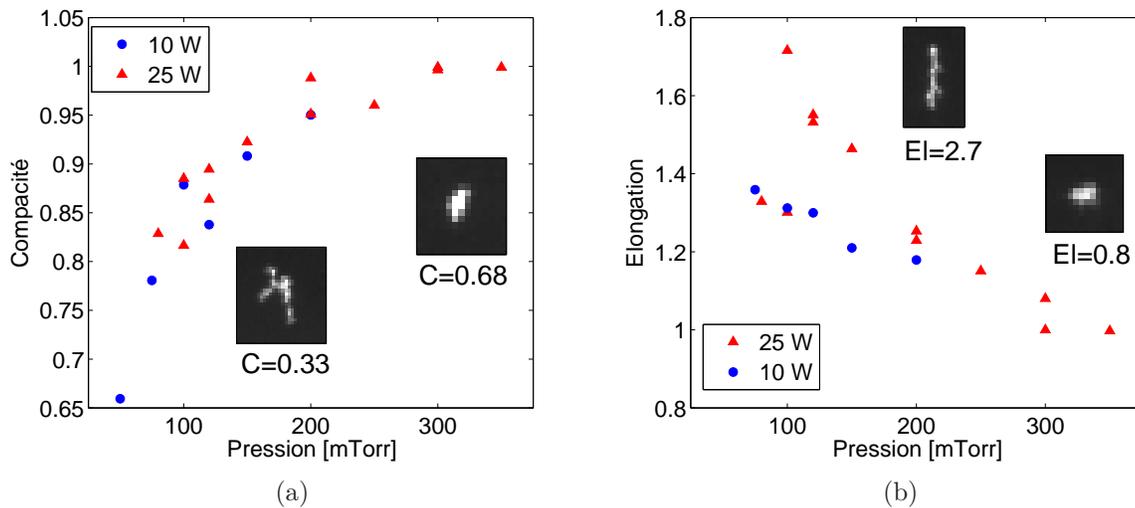


Figure 6.20 – (a) Compacité et (b) élongation des agglomérats à $t \simeq 70$ s.

Quelle que soit la puissance P_{RF} , la compacité augmente avec la pression. Cela signifie qu'à basse pression les agglomérats présentent une structure ramifiée tandis qu'à haute pression ils sont plus compacts. Par ailleurs, l'élongation diminue lorsque la pression augmente, indiquant que les agglomérats les plus allongés sont observés à basse pression tandis

qu'à haute pression leur forme est isotrope. Ces tendances pourraient être expliquées par la conjonction de plusieurs effets :

- A basse pression, les poussières submicroniques et les agglomérats ont une vitesse importante dans la direction verticale ce qui accentue l'anisotropie du processus d'agglomération. Les agglomérats formés possèdent ainsi une élongation prononcée. De plus, l'augmentation de la vitesse des agglomérats à plus basse pression pourrait favoriser leur agglomération entre eux. Ce mode de croissance a tendance à former des agglomérats à structure lâche, présentant une faible dimension fractale et un caractère ramifié (6.2.2.0). L'élongation prononcée que présentent les agglomérats formés à basse pression pourrait aussi s'expliquer par les importantes vitesses verticales acquises localement par les poussières submicroniques composant les fronts d'onde des DDWs.
- Lorsque le champ électrique moyen E dans la gaine est important (cas des basses pressions), les agglomérats pourraient avoir tendance à s'orienter verticalement dans la direction du champ électrique. Les poussières, mises en mouvements verticalement par les DDWs, s'agglomèrent préférentiellement à leur extrémité. A cette position, les répulsions électrostatiques sont minimisées car les poussières ne "voient" qu'une partie de la charge totale portée par l'agglomérat (voir §6.2.2.0). Au contraire pour un champ E plus faible (cas des hautes pressions), il est probable que les agglomérats changent davantage d'orientation grâce à l'agitation transmise par les DDWs. D'une manière générale, l'orientation des particules dans le champ électrique a d'importantes conséquences sur leur morphologie puisqu'elle définit par nature une direction privilégiée pour leur croissance (direction verticale). Ceci explique que pour la totalité des résultats obtenus, l'élongation moyenne El soit supérieure à 1.
- L'évolution, avec la pression, de la charge portée par les poussières peut également avoir une influence. Il est possible qu'à basse pression, les poussières étant plus chargées, leur tendance à s'agglomérer à l'extrémité de la particule (effet décrit au point précédent) soit renforcée.

6.6 Régime cyclique de formation des poussières

La formation rapide de "super-agglomérats" composés d'un grand nombre de particules submicroniques peut avoir des conséquences importantes sur la dynamique de formation des poussières. Une des conséquences notable de ce mécanisme original d'agglomération, est l'existence de régimes de formation cyclique des poussières. Ce type de régime de formation des poussières a été particulièrement observé dans des mélanges argon/air/C₂H₂. Les résultats présentés dans cette section sont issus d'une expérience réalisée à P=140 mTorr et P_{RF}=25 W, avec les débits de gaz Q_{Ar}/Q_{Air}/Q_{C₂H₂}=12/5/2 sccm. La figure 6.21 représente les évolutions de la valeur absolue de la tension d'auto-polarisation $|V_{bias}|$ et de la transmittance Tr_{300} à $\lambda=300$ nm. Ces deux grandeurs évoluent en phase de manière périodique, traduisant une évolution cyclique de la granulométrie des poussières.

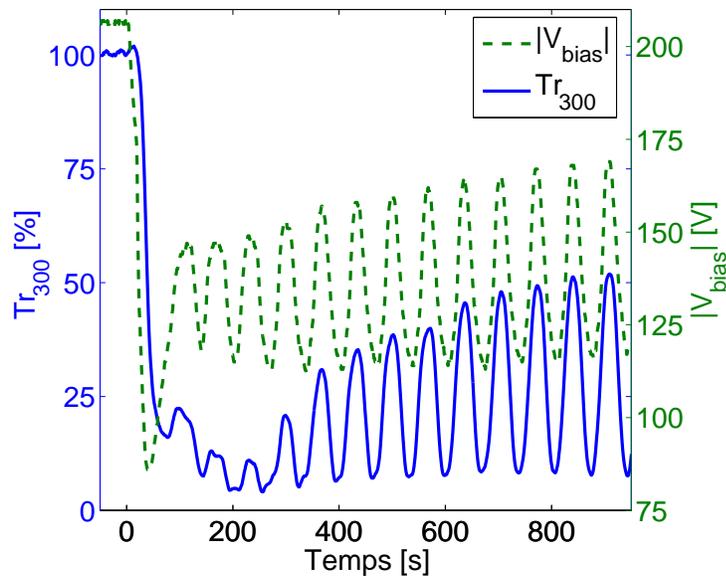


Figure 6.21 – Évolutions de $|V_{bias}|$ et de la transmittance à $\lambda=300$ nm.

Chacune des périodes composant ces cycles se déroule de manière identique. Les descriptions et interprétations qui suivent s'appuient sur la figure 6.22 :

- Lorsque $|V_{bias}|$ et Tr_{300} sont maximales, seule une faible quantité de poussières submicroniques est présente au sein de la gaine cathodique.
- Phase I : formation et accumulation de poussières submicroniques dans la gaine. Aucune onde de densité de poussières n'est observée.
- Phase II : lorsque la densité de poussières submicroniques devient suffisante, des DDWs apparaissent. Elles prennent rapidement une amplitude importante. Il en résulte une agglomération soutenue des poussières submicroniques sur les "super-agglomérats".
- Phase III : la densité de poussières diminue sous l'effet du processus d'agglomération, se qui se traduit par une augmentation de la transmittance Tr_{300} . Avec la baisse de la densité de poussières, la surface totale présentée par l'ensemble des poussières diminue également. La collection d'électrons étant un phénomène de surface, ceci pourrait avoir comme conséquence d'augmenter la densité électronique et ainsi $|V_{bias}|$. Il en résulte que les forces, électrique F_e et de frottement ionique F_i , augmentent (cf chapitre 5) comprimant ainsi le nuage de poussières dans un espace plus restreint. Ce mécanisme est illustré par les trois photographies présentées figure 6.22 a). La force électrique F_e peut ainsi atteindre des valeurs importantes, en particulier aux extrémités de la cathode, et causer l'expulsion de poussières et d'agglomérats hors de la gaine (cf photographie figure 6.22 c)).

La densité de poussières submicroniques diminuant fortement, les DDWs disparaissent progressivement au cours de cette phase, permettant alors une nouvelle formation et accumulation de poussières submicroniques et le démarrage d'un nouveau cycle.

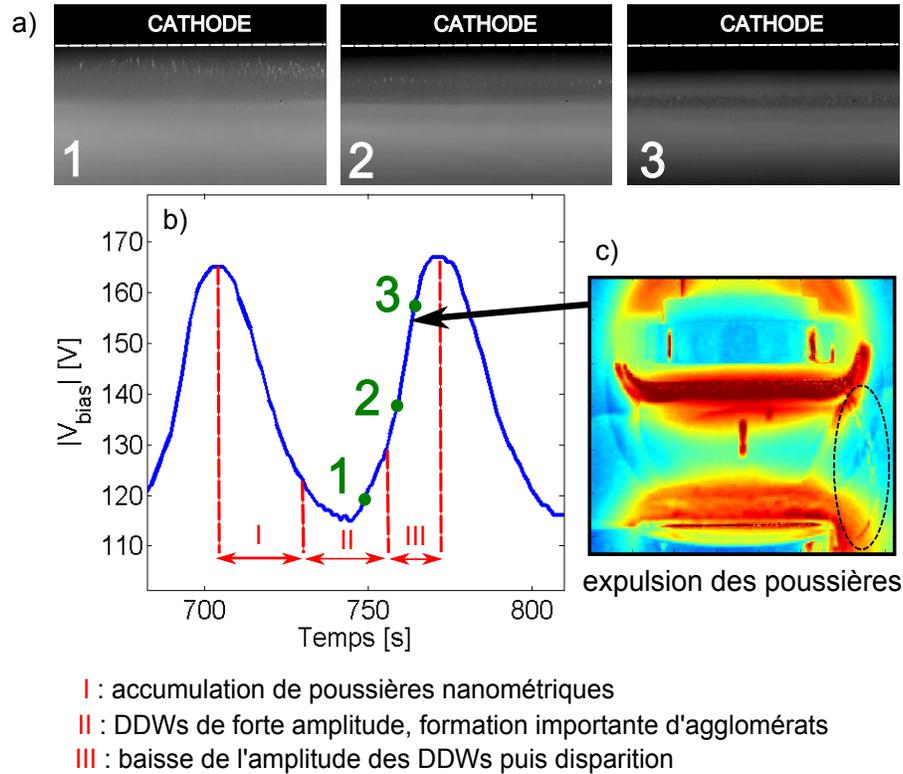


Figure 6.22 – Évolution du nuage de poussières.

D'autres effets peuvent également intervenir au cours du mécanisme décrit précédemment. Johnson *et al.* [129] suggèrent par exemple que de tels cycles de formation puissent être causés par l'inhibition du processus de nucléation due au manque d'électrons libres, lorsqu'une quantité importante de poussières est déjà présente au sein du plasma. La formation de nouvelles poussières ne peut alors intervenir que lorsque les particules précédentes ont été évacuées sous l'action des forces externes et du pompage des gaz, permettant ainsi à la densité électronique d'augmenter à nouveau et au processus de nucléation de reprendre.

Il est probable que le mécanisme précédemment décrit joue un rôle dans les cycles de formation observés dans nos expériences. Cependant les DDWs ayant un tel impact sur le processus d'agglomération des poussières, il semble que cela demeure la cause principale de l'évolution cyclique de la population des poussières dans nos conditions.

Bien que ce type de régime cyclique d'agglomération ait pu être observé dans diverses conditions expérimentales, il est plus facilement rencontré lorsque la phase gazeuse est composée d'un mélange argon/air. Il a par ailleurs été vérifié que la présence d'azote seule ne suffisait pas à retrouver ces cycles de formation. Il semble donc que l'oxygène y joue un rôle privilégié. Différentes hypothèses permettant d'expliquer son influence peuvent être suggérées :

- De part son caractère électronégatif, l'oxygène peut être responsable d'une baisse

de la densité électronique par attachement d'électrons sur les molécules et atomes d'oxygène. La charge portée par les poussières peut ainsi s'en trouver diminuée, ce qui favorise la phase d'agglomération rapide. Par ailleurs, la valeur absolue de la tension d'auto-polarisation $|V_{bias}|$ est plus faible comparée à la situation sans air. Il en résulte que la force électrique F_e s'exerçant sur les poussières, et à l'origine de leur éjection hors de la gaine cathodique, est diminuée. Ceci permet d'accentuer l'amplitude des phases d'accumulation et d'expulsion des poussières.

- L'oxygène et l'azote jouent par ailleurs un rôle direct dans les processus physico-chimiques mis en jeu lors de la formation des poussières. L'injection d'air se traduirait donc également par un apport supplémentaire de gaz réactif participant à la production des poussières.

6.7 Conclusion

Dans ce chapitre, la formation de “super-agglomérats”, composés d'un grand nombre de poussières submicroniques, a été décrite. Si l'on peut supposer que le mécanisme de formation des poussières submicroniques les composant est semblable à celui décrit au §6.2.1, la formation de ces “super-agglomérats” relève en revanche d'un mécanisme original [128]. L'importante énergie cinétique transmise par les DDWs aux poussières, leur permet de se rapprocher suffisamment les unes des autres pour que les forces attractives à courte portée deviennent importantes, et provoquent leur agglomération.

Au stade final de leur croissance, ces agglomérats peuvent présenter des dimensions de plusieurs centaines de microns et certaines particules allongées peuvent même atteindre une longueur de l'ordre du millimètre. La morphologie des agglomérats formés dépend fortement des conditions expérimentales. A haute pression, ils présentent une structure compacte. Au contraire, plus la pression est basse et plus ils présentent une forme allongée et une structure ramifiée.

Leur temps de formation est de l'ordre de quelques dizaines de secondes. Les mesures effectuées indiquent qu'ils peuvent atteindre des vitesses ascendante et descendante de l'ordre de la dizaine de cm.s^{-1} , leur permettant de s'agglomérer entre eux.

La formation de ces agglomérats résulte de la conjonction de trois mécanismes : des processus d'agglomération initiaux entre particules submicroniques, des processus d'agglomérations agglomérat-particule, et également des processus d'agglomération agglomérat-agglomérat.

Les DDWs étant présentes au sein de la gaine cathodique dans une très large gamme de conditions expérimentales, la formation de ce type d'agglomérats est observée de manière quasi systématique. Ce type de mécanisme pourrait donc se produire dans de multiples configurations expérimentales et être responsable de la formation de gros agglomérats, jusqu'alors inexplicables à notre connaissance. Il modifie donc fondamentalement la manière dont sont formées les poussières au sein du plasma et peut notamment jouer un rôle central dans l'existence de régimes cycliques de formation des poussières. Ce phénomène pourrait donc s'avérer particulièrement important pour la communauté des plasmas poussiéreux.

Conclusion générale

Ce travail s'inscrit dans le contexte général des plasmas poussiéreux, rencontrés dans de multiples domaines de recherche tels que l'astrophysique, l'industrie micro-électronique ou encore dans le cadre de la fusion thermonucléaire contrôlée par confinement magnétique. Dans ce dernier cas, la formation des poussières résulte de l'interaction entre le plasma et les parois du réacteur.

L'objectif principal de cette thèse était d'étudier l'influence des ondes de densité de poussières sur le processus d'agglomération des poudres, en plasma Ar/C₂H₂. Pour atteindre cet objectif, la mise au point de nouveaux diagnostics s'est avéré nécessaire et a constitué la première partie du travail réalisé.

Différents diagnostics ont ainsi été développés, dont les caractéristiques principales sont les suivantes :

- Afin de pouvoir suivre l'évolution de la population de poussières nanométriques, une méthode de diagnostic des poussières basée sur des mesures d'extinction du rayonnement dans la gamme proche UV-visible-proche IR a été développée. De part la gamme de longueurs d'onde utilisées, ce diagnostic est sensible à des tailles de particules comprises entre 100 nm et 1 micron environ. L'estimation des tailles et des densités de particules, à partir des mesures d'extinction, a nécessité la mise au point d'une méthode d'inversion de type Monte Carlo. Afin de vérifier la validité de cette méthode inverse, celle-ci a été préalablement appliquée à des données d'extinction générées numériquement. Celles-ci ont été obtenues grâce à l'utilisation d'un deuxième code Monte Carlo dédié à la simulation du diagnostic d'extinction utilisé expérimentalement. Cette étape de validation a démontré le bon fonctionnement de la méthode d'inversion et a permis d'en établir les limites. Cet outil a également été appliqué à des résultats expérimentaux afin d'étudier l'influence du jeu d'indices optiques utilisés. Il a été observé que malgré des différences au regard des tailles et des densités de particules retrouvées par la méthode, les tendances relatives à l'évolution de leur population restaient similaires.
- L'étude des poussières de tailles supérieures a nécessité la mise au point d'un autre diagnostic : l'imagerie rapide. Celle-ci est basée sur l'utilisation simultanée d'un faisceau laser plan permettant d'illuminer les poussières en suspension, et d'une caméra rapide. Les films réalisés apportent des informations sur le nombre et la taille des plus grosses poussières (à partir d'environ $d=10 \mu\text{m}$), et également sur

leur dynamique. Afin d'extraire ces informations, le code TRACE, dédié au suivi des poussières, a été amélioré.

L'imagerie rapide constitue également un diagnostic adapté à l'étude des ondes de densité de poussières. Les films réalisés permettent notamment de déterminer leurs caractéristiques. Pour cela, des outils d'analyse numérique ont été développés.

- Une méthode d'extraction des poussières basée sur l'utilisation de la force de thermophorèse a également été mise au point. Le dispositif utilisé, appelé "point froid", consiste en un tube métallique refroidi à l'aide d'azote liquide. Des substrats de silicium placés sur la surface du tube permettent de collecter les poussières pour pratiquer des analyses ex-situ. Ce dispositif présente donc un double intérêt : il peut être utilisé comme diagnostic car il permet la collection des poussières piégées, notamment dans les gaines, et il permet également de limiter la pollution du réacteur. Une étude de l'influence des conditions expérimentales sur la formation des poussières a été menée. Il a notamment été observé que grâce à l'utilisation de ce dispositif, il était possible de collecter des poussières sphériques mono-disperses de taille contrôlée, en régulant la pression dans l'enceinte.

Une fois la mise au point des différents diagnostics achevée, l'étude s'est tournée vers les ondes de densité de poussières (DDWs) observées au sein des gaines anodique et cathodique. Cette partie de l'étude a été menée grâce à l'utilisation de l'imagerie rapide et des outils numériques dédiés au traitement des films réalisés. Des phénomènes particuliers ont ainsi été mis en évidence :

- Dans la gaine anodique, il a été observé que sous certaines conditions, les fronts d'onde se regroupaient entre eux de manière quasi-systématique. Ce phénomène pourrait être provoqué par une modification du profil de potentiel dans la gaine lors de la dislocation du front d'onde arrivant à l'anode. Ce phénomène de regroupement des fronts d'onde a pour conséquence l'apparition de domaines spatiaux au sein desquels les fréquences apparentes des DDWs sont constantes. Celles-ci varient en revanche notablement d'un domaine à l'autre. Ce phénomène pourrait s'expliquer par une modification notable du profil de potentiel à travers la gaine lors de la dislocation du front d'onde arrivant à l'anode. Il a été observé que le processus de regroupement des fronts d'onde était fortement dépendant de la pression. A basse pression, de nombreux regroupements sont ainsi observés, définissant les domaines de fréquence précédemment énoncés. A plus haute pression, un nombre beaucoup plus faible de regroupements a lieu et les domaines fréquentiels disparaissent.
- Au sein de la gaine cathodique, d'importantes fluctuations lumineuses associées à des variations périodiques de l'épaisseur du nuage de poussières sont observées. Elles sont probablement causées par à une modification périodique de l'impédance de la décharge se traduisant par une modulation de la puissance RF couplée au plasma.

Lors de l'étude des DDWs au sein de la gaine cathodique, la présence de "super-agglomérats", présentant de grandes dimensions, a été systématiquement constatée. Ces observations ont motivé l'étude du processus conduisant à leur formation.

Il est très probable que la formation de tels agglomérats, qui se produit sur des temps très courts, inférieurs à la minute, soit directement liée à la présence des DDWs. Les ondes transfèrent en effet une certaine énergie cinétique aux poussières chargées négativement. Ceci leur permet de s’approcher suffisamment les unes des autres pour que leurs interactions attractives à courte portée (comme les interactions de van der Waals) deviennent significatives, permettant leur agglomération. L’étude de ce mécanisme d’agglomération a fait l’objet de la dernière partie de ce travail. Elle a été menée à l’aide de l’ensemble des diagnostics précédemment développés.

Les mesures d’extinction, ainsi que l’utilisation du code TRACE, ont permis de déterminer précisément la dynamique de formation des populations de “super-agglomérats”. Grâce à la technique d’extraction des poussières, des agglomérats ont pu être collectés et analysés au MEB, révélant ainsi leur nature exacte : ils sont composés de milliers de poussières nanométriques agglomérées. Trois mécanismes ayant lieu simultanément ont été identifiés comme responsables de la formation et de la croissance de ces agglomérats :

- des évènements d’agglomération poussière-poussière,
- des évènements d’agglomération agglomérat-poussière,
- des évènements d’agglomération agglomérat-agglomérat, dont un exemple a pu être directement observé.

L’influence des conditions expérimentales sur la taille et la morphologie des agglomérats formés a également été étudiée. A haute pression, ils présentent une structure compacte tandis qu’à plus basse pression, ils sont allongés et ramifiés. Enfin, il a été observé que la formation rapide de ces “super-agglomérats” se traduisait, dans certaines conditions expérimentales, par l’existence d’un régime cyclique de formation des poussières.

Perspectives

Les travaux réalisés ouvrent la voie à de nombreuses perspectives dont quelques unes sont données ci-après.

L’amélioration du diagnostic d’extinction nécessiterait de mesurer les indices optiques des poussières formées dans la gamme de longueur d’onde utilisée. En effet, les indices optiques utilisés jusqu’à présent sont issus de la littérature, pour des échantillons dont la nature diffère inévitablement de ceux réalisés dans cette étude. Des mesures d’extinction réalisées simultanément dans les domaines visibles et infrarouges permettraient d’étendre la sensibilité de ce type de diagnostic à des tailles de particules supérieures au micromètre. En effet, les diagnostics utilisés actuellement (extinction UV-visible et imagerie rapide) ne permettent pas de suivre l’évolution des populations de poussières ayant des tailles comprises entre 1 et 20 micromètres. Cela offrirait notamment la possibilité de suivre la formation des premiers agglomérats composés d’un petit nombre de monomères.

La technique développée pour l’extraction des poussières pourrait être améliorée notamment en polarisant le point froid ce qui pourrait permettre de réaliser un filtrage sélectif des tailles de particules collectées. Ceci pourrait permettre, à terme, la réalisation de dépôts maîtrisés de poussières calibrées sur une surface, notamment pour des applications dans le domaine des nanotechnologies.

Une compréhension plus fine des ondes de densité de poussières se propageant au sein des gaines cathodique et anodique pourrait être recherchée. Pour cela, il pourrait être utile de disposer des caractéristiques électriques de la décharge avec une résolution temporelle élevée. Par ailleurs, une modélisation numérique de la propagation des ondes au sein des gaines permettrait d'explorer les hypothèses proposées pour expliquer les phénomènes observés. En particulier, il pourrait être utile d'étudier l'effet de la condition à la limite que constitue l'électrode sur la propagation des ondes.

Enfin, l'étude de l'influence des ondes de densité de poussières sur le processus d'agglomération pourrait être davantage approfondie. Une collection systématique des agglomérats formés dans les différentes conditions à l'aide du point froid pourrait apporter des informations plus fines sur la structure des agglomérats formés. Dans cette même perspective, il pourrait être utile de disposer d'une meilleure résolution spatiale pour les films réalisés à la caméra rapide, par exemple en utilisant d'autres objectifs. De plus, le développement d'un outil de détection systématique des collisions entre agglomérats permettrait une étude statistique de ces événements. Un module permettant cette détermination est actuellement en cours d'implémentation dans le code TRACE.

Annexe A

ANNEXE 1

A.1 Grandeurs caractéristiques : pulsation plasma, longueur de Debye et charge d'une poussière

A.1.1 Pulsation plasma

La pulsation plasma $\omega_{p,j}$, dont l'expression est donnée dans l'équation A.1, est représentative du temps caractéristique que met une particule d'une espèce j (électron e , ion i ou poussière d) pour répondre à une perturbation du milieu comme par exemple l'apparition d'un champ électrique.

Dans cette expression, m_j représente la masse, Q_j la charge et n_j la densité de l'espèce j à l'équilibre.

La dépendance vis à vis de la masse de la particule considérée a pour conséquence que électrons, ions et poussières vont présenter des pulsations plasma très différentes. Par exemple si l'on considère des ions argon, on aura $\omega_{p,e} \simeq 270\omega_{p,i}$. Seuls les électrons beaucoup plus légers que les ions sont donc capables de répondre instantanément à un champ électrique oscillant à 13,56 MHz. Il en est de même pour les poussières, dont la masse est très supérieure à celle des ions. On a donc les inégalités suivantes : $\omega_{p,d} \ll \omega_{p,i} \ll \omega_{p,e}$.

$$\omega_{p,j} = \sqrt{\frac{n_j Q_j^2}{\epsilon_0 m_j}} \quad (\text{A.1})$$

avec $Q_j = \pm e$ s'il s'agit d'ions positifs ou d'électrons et $Q_j = -Z_j \times e$ s'il s'agit de poussières portant un nombre Z_j de charges électroniques.

A.1.2 Longueur de Debye électronique et ionique

La longueur de Debye $\lambda_{D,j}$ est définie pour une espèce j ($j = i, e$) par l'équation A.2 :

$$\lambda_{D,j} = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T_j}{n_j Q_j^2}} \quad (\text{A.2})$$

avec T_j la température de l'espèce j .

Elle peut être interprétée comme suit : lorsque des particules d'une espèce j s'écartent de leur position d'équilibre sous l'effet de leur agitation thermique, il se crée une séparation de charge (rupture de la quasi-neutralité) à l'origine de l'apparition d'un champ électrique. Celui-ci tend alors à limiter le déplacement des particules afin d'instaurer un équilibre. La longueur de Debye exprime cette compétition entre la force électrostatique et la force de pression.

De part sa nature, la longueur de Debye intervient également comme paramètre caractéristique du phénomène d'écrantage dans les plasmas. Si l'on considère un ion fixe, le potentiel électrostatique de celui-ci est écranté par les électrons situés autour de l'ion sur une distance de l'ordre de $\lambda_{D,e}$. Les particules plasma situées en dehors de la sphère de rayon $\lambda_{D,e}$ centrée sur l'ion seront insensibles à son potentiel électrostatique. Plus la densité d'électrons est importante, et plus l'écrantage est efficace et s'effectue sur une courte distance. Une augmentation de la température électronique diminue au contraire leur capacité à s'organiser autour de l'ion, diminuant de fait l'efficacité de l'écrantage.

A.2 Généralités sur les décharges Radio-fréquence

A.2.1 Amorçage de la décharge

La polarisation de la cathode par la tension radiofréquence génère un champ électrique alternatif entre les deux électrodes. Celui-ci permet alors l'accélération des quelques électrons libres du milieu permettant à l'ionisation de débiter. Chaque processus d'ionisation se traduit par l'apparition d'un nouvel électron qui est accéléré à son tour par le champ électrique produisant de nouveaux processus d'ionisation. C'est l'effet d'avalanche, à l'origine de l'ignition du plasma.

A.2.2 Auto-polarisation de la cathode, loi des aires et structure de la décharge

La polarisation appliquée à la cathode peut être décrite par une sinusoïde $V_{RF}(t) = V_0 \sin(\omega_{RF}t)$ avec $\omega_{RF} = 2\pi\nu_{RF}$ et $\nu_{RF} = 13,56$ MHz. Celle-ci est représentée en pointillés sur la figure A.1. Cependant, comme nous allons l'expliquer par la suite, le potentiel $V_{cathode}$ de la cathode ne peut se résumer à la seule tension appliquée V_{RF} . Dans le cas d'une décharge RF capacitive asymétrique, une composante continue V_{bias} , appelée tension bias ou encore tension d'auto-polarisation, s'ajoute à la composante oscillante à 13,56 MHz V_{RF} et la décale vers des valeurs négatives. L'équation A.3 résume l'expression du potentiel $V_{cathode}$.

$$V_{cathode}(t) = V_{RF}(t) + V_{bias} = V_0 \sin(\omega_{RF}t) + V_{bias} \quad (\text{A.3})$$

Cette composante continue de la tension apparaît en raison de la présence d'une capacité de blocage dans le circuit (la capacité en série de la boîte d'accord). Celle-ci impose

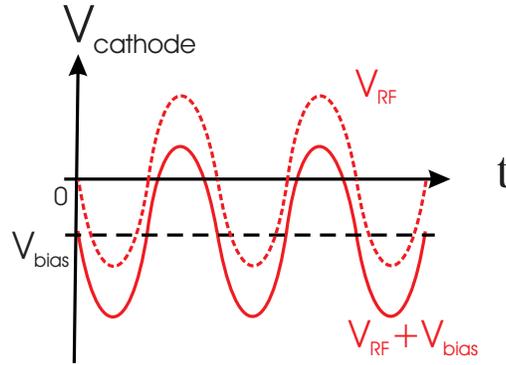


Figure A.1 – Tension radiofréquence V_{RF} (en pointillés) et tension de la cathode $V_{cathode}$ (tracé continu).

que le courant soit nul en moyenne sur une période RF. Afin de satisfaire à cette condition, et en raison de la différence de surface que présentent l'anode et la cathode, le potentiel moyen de la cathode doit être négatif. Ceci est réalisé grâce à une accumulation de charges électroniques sur la capacité de blocage.

Afin de mieux comprendre l'origine de la composante continue V_{bias} , décrivons qualitativement le comportement de la décharge lors de son allumage.

Aux premiers instants, le potentiel de la cathode ne comporte pas de composante continue ($V_{cathode}(t) = V_{RF}(t)$, courbe en pointillés figure A.1).

Si l'on considère un plasma électropositif, les charges négatives (électrons) sont beaucoup plus mobiles que les charges positives (cations).

Un cycle RF se compose d'une demi-période où la cathode chargée positivement attire les électrons et repousse les ions du plasma. Lors de la demi-période suivante, la cathode est chargée négativement attirant ainsi les ions et repoussant les électrons. Cependant, en raison de la grande différence de mobilité entre charges positives et négatives, le courant électronique traversant la cathode au cours d'une période RF sera plus important que le courant ionique.

En raison de la présence de la boîte d'accord entre la cathode et le générateur, cette différence de courant se traduit par l'apparition d'une charge négative sur l'armature de la capacité en série qui perdure à l'issue du cycle RF.

Ce processus transitoire qui tend à polariser négativement la cathode se poursuit pendant les cycles RF suivants. Plus la valeur moyenne du potentiel de la cathode est négative, plus la période au cours de laquelle les électrons sont attirés ($V_{cathode} > 0$) est courte et plus celle où les ions sont attirés ($V_{cathode} < 0$) est grande.

A l'état stationnaire ($V_{cathode}(t) = V_{RF}(t) + V_{bias}$, courbe en traits pleins figure A.1), la somme des courants ioniques et électroniques à la cathode est nulle sur un cycle RF et le processus d'accumulation de charge s'estompe. Une composante négative continue s'est donc ajoutée de manière permanente à la polarisation RF de la cathode afin d'assurer un courant moyen nul sur une période RF.

Cette tension négative permet ainsi d'obtenir un flux ionique à la cathode suffisant pour compenser sa faible surface vis à vis de l'anode.

Ce raisonnement très approximatif permet de comprendre intuitivement l'origine de la tension d'auto-polarisation V_{bias} .

Ce résultat peut être retrouvé de manière plus rigoureuse en considérant le schéma électrique équivalent au plasma. La figure A.2 représente schématiquement la décharge asymétrique précédemment décrite (figure A.2 b)) ainsi que le profil moyen du potentiel à travers la décharge (figure A.2 c)) et le schéma électrique équivalent du plasma (figure A.2 a)) tiré de la référence [130].

La décharge est principalement composée de trois zones distinctes :

- la gaine cathodique,
- la gaine anodique de dimension inférieure,
- le plasma central.

La résistance R_p du plasma est faible et peut donc être négligée devant les impédances des gaines.

Ces dernières peuvent être considérées comme composées d'une capacité et d'une résistance en parallèle ainsi que d'une diode empêchant la potentiel plasma de descendre en dessous du potentiel de l'électrode [131]. Lorsque la pulsation ω_{RF} est grande devant $\omega_{p,i}$, les gaines ont un comportement essentiellement capacitif ($RC \rightarrow \infty$). Leur impédance est alors assimilable à celle d'un condensateur plan dont l'expression est donnée dans l'équation A.4.

$$C = \frac{\epsilon_0 A}{\bar{d}} \quad (\text{A.4})$$

avec A l'aire de l'électrode, et \bar{d} l'épaisseur moyenne de gaine.

Les tensions moyennes aux bornes des gaines cathodique (\bar{U}_c) et anodique (\bar{U}_a) valent alors respectivement :

$$\bar{U}_c = V_{bias} - V_p = \frac{I}{C_c \omega_{RF}} \quad \text{et} \quad \bar{U}_a = V_p = \frac{I}{C_a \omega_{RF}} \quad (\text{A.5})$$

avec C_c et C_a les capacités respectives des gaines anodique et cathodique, V_p le potentiel plasma moyen, V_{bias} le potentiel moyen de la cathode, et I le courant.

Le rapport des tensions à travers les gaines $\frac{\bar{U}_c}{\bar{U}_a}$ s'écrit donc :

$$\frac{\bar{U}_c}{\bar{U}_a} = \frac{V_{bias} - V_p}{V_p} = \frac{C_a}{C_c} = \frac{A_a \bar{d}_c}{A_c \bar{d}_a} \quad (\text{A.6})$$

Il reste ensuite à exprimer les épaisseurs moyennes de gaines dans l'expression précédente. En fonction des modèles et des hypothèses utilisés [132], on aboutit à la relation A.7 appelée loi des aires.

$$\frac{\bar{U}_c}{\bar{U}_a} = \left(\frac{A_a}{A_c} \right)^n \quad (\text{A.7})$$

avec $n \in [1, 3; 4]$.

La tension d'auto-polarisation est donc directement conditionnée par la configuration géométrique de la décharge. Ce sont principalement les ions qui, en raison de leur faible mobilité, sont à l'origine de ce phénomène, les densités de courant ionique à travers les gaines dépendant fortement des caractéristiques (surface et longueur moyenne) de celles-ci.

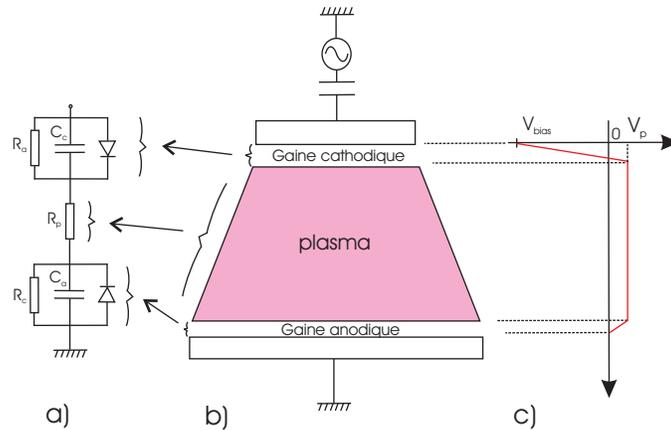


Figure A.2 – *Modèle électrique équivalent (a), structure (b) et profil de potentiel moyen (c) de la décharge.*

Comme on peut le voir sur la figure A.2 c), c'est au sein de la gaine cathodique que la différence de potentiel moyenne est la plus importante. C'est donc également dans cette zone que le champ électrique est le plus intense. Il en résulte que l'ionisation est principalement localisée dans cette partie de la décharge, comme expliqué au paragraphe suivant.

A.2.3 Mécanismes d'entretien d'une décharge RF capacitive

On appelle communément entretien d'une décharge la compensation des pertes de particules chargées (ions et électrons) par des mécanismes de création (ionisation). Lorsque la création de particules chargées par ionisation par impact électronique compense les pertes, le plasma est dit auto-entretenu.

Ce sont principalement les recombinaisons électron-ion aux parois et en volume (à suffisamment haute pression) qui sont responsables des pertes de particules dans un plasma classique. Précisons cependant que dans le cas d'un plasma contenant des poussières en suspension, la collection des électrons par ces poussières peut excéder les pertes aux parois ce qui peut aller jusqu'à provoquer l'arrêt de la décharge.

La création de nouvelles particules chargées a lieu au cours des collisions électron-neutre ionisantes. Dans ce cas, l'énergie cinétique de l'électron doit être supérieure au potentiel d'ionisation de l'atome pour que le transfert d'énergie de l'électron à l'atome permette l'ionisation. Dans le cas contraire, la collision pourra se traduire simplement par une excitation de l'atome. D'une manière générale, cela se traduit pour l'électron par une baisse

de son énergie cinétique qui au grès des collisions (ionisantes ou non) peut devenir insuffisante pour assurer de nouveaux processus d'ionisation. Il est donc nécessaire de fournir en permanence de l'énergie aux électrons du plasma : c'est le chauffage.

Dans une décharge RF à couplage capacitif, on distingue principalement deux mécanismes de chauffage : le chauffage ohmique et le chauffage stochastique [133]. Le chauffage ohmique résulte du transfert de quantité de mouvement des électrons vers les neutres lors des collisions électron-neutre dans le plasma central. Néanmoins comme l'amplitude du champ électrique oscillant demeure faible dans la région centrale, ce mécanisme n'apporte qu'une contribution minoritaire dans ce type de décharge. Ainsi, la majeure partie du chauffage est de nature stochastique. A l'approche de la cathode, les électrons incidents sont réfléchis et accélérés par le champ électrique intense qui règne dans la gaine cathodique en expansion. A pression plus importante, le mouvement des électrons est collectif, ceux-ci "surfent" alors sur la gaine oscillante, on parle de "wave riding" [134]. L'ionisation résultante est dans ce cas localisée à l'interface plasma-gaine.

Les mécanismes précédemment décrits suffisent à l'entretien du plasma et sont caractéristiques du régime α de la décharge RF capacitive. Remarquons qu'ils résultent dans les deux cas du champ électrique dont les variations se font à une pulsation ω_{RF} . C'est la raison pour laquelle seuls les électrons y sont soumis (cf §A.1.1).

Les ions présents dans la gaine cathodique peuvent cependant avoir un rôle à jouer s'ils sont suffisamment accélérés vers la cathode, provoquant ainsi l'émission d'électrons secondaires lors de leur impact sur l'électrode. Ces électrons secondaires sont alors accélérés dans la gaine permettant d'augmenter encore le taux d'ionisation. On parle de régime γ , caractérisé par des densités plasma plus importantes.

A.3 Paramètres des poussières

A.3.1 Charge d'une poussière

Dans un plasma froid, la température des électrons est généralement très supérieure à la température des ions ($T_e \gg T_i$). Si un objet est immergé dans un plasma, comme une poussière par exemple, les électrons vont donc avoir tendance à quitter le plasma plus facilement et être ainsi collectés par la poussière. Si cette dernière est constituée d'un matériau diélectrique, les charges électroniques vont s'accumuler en surface diminuant ainsi son potentiel. Le champ électrique résultant entre le plasma et la surface de la poussière, est orienté de manière à limiter le départ des électrons du plasma vers la surface. Les ions positifs seront au contraire accélérés. A l'équilibre, la charge de la poussière Q_d cesse d'évoluer. Les courants électronique I_e et ionique I_i à la surface de la poussière s'équilibrent : $\frac{dQ_d}{dt} = \sum_{j=i,e} I_j = 0$. Le potentiel de surface est alors égal au potentiel flottant V_f . La région située entre la surface et le plasma est appelée gaine électrostatique. Elle est caractérisée par une charge d'espace positive et par la présence d'un champ électrique non nul. Son extension spatiale est de l'ordre de la longueur de Debye généralisée λ_D , définie dans la suite au §A.3.2.

La différence de potentiel $\Phi_d = V_f - V_p$ entre le potentiel du plasma V_p et le potentiel flottant V_f peut être calculée à l'aide du modèle OML [74] (“Orbital Motion Limited”), dont le développement est donné dans la suite.

Modèle OML

Le développement du modèle OML s'appuie sur le schéma présenté figure A.3. Il représente l'interaction coulombienne d'une particule plasma (ion $\Leftrightarrow j = i$ ou électron $\Leftrightarrow j = e$) de vitesse incidente \vec{v}_j (vitesse à l'infini) avec une poussière. La vitesse de la particule plasma après la collision avec la poussière est notée \vec{v}_{gj} .

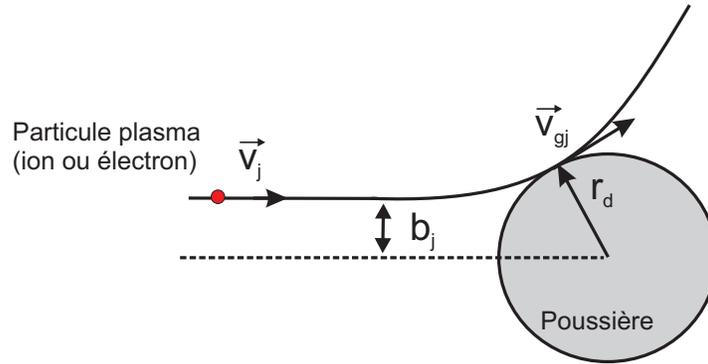


Figure A.3 – Schéma de l'interaction coulombienne d'une particule plasma avec une poussière.

Le modèle OML permet le calcul de la charge d'une poussière isolée. Ce modèle considère les courants ionique et électronique reçus par la poussière et ne tient donc pas compte de la nature discrète du processus de charge. Pour que le modèle OML soit valide, plusieurs conditions doivent être vérifiées :

- Les poussières doivent être isolées les unes des autres ce qui signifie que la distance inter-particule a doit être grande devant λ_D : $\lambda_D \ll a$.
- Les ions et les électrons sont en interaction coulombienne directe (non échantée) avec la poussière : $r_d \ll \lambda_D$.
- Les ions et les électrons ne subissent pas de collisions avec les neutres durant leur interaction avec la poussière [116]. Cela implique que le libre parcours moyen des ions et des électrons avec les atomes de gaz doit être grand devant la longueur de Debye généralisée : $\lambda_D \ll \lambda_{lpm}$.

On fait l'hypothèse que le paramètre d'impact maximum correspond à une trajectoire tangentielle de la particule. La section efficace de collection est donnée par : $\sigma_j^d = \pi b_j^2$.

On suppose que les lois de conservation suivantes sont respectées pour la particule incidente :

◦ conservation de la quantité de mouvement :

$$m_j b_j v_j = m_j v_{gj} r_d \quad (\text{A.8})$$

◦ conservation de l'énergie :

$$\frac{1}{2} m_j v_j^2 = \frac{1}{2} m_j v_{gj}^2 + \frac{q_j Q_d}{4\pi\epsilon_0 r_d} \quad (\text{A.9})$$

En utilisant les équations A.8 et A.9, la section efficace de collection peut être estimée :

$$\sigma_j^d = \pi r_d^2 \left(1 - \frac{2q_j \Phi_d}{m_j v_j^2} \right) \quad (\text{A.10})$$

Le courant de particules de l'espèce j collecté par la poussière se calcule à l'aide de l'équation A.11 :

$$I_j = q_j \int_{v_{j,min}}^{\infty} v_j \sigma_j^d f_j(v_j) dv_j^3 \quad (\text{A.11})$$

avec $v_{j,min}$ la vitesse minimale d'approche pour que la particule soit collectée par la poussière, et $f_j(v_j)$ la fonction de distribution en vitesse pour la particule j .

Deux cas de figure sont à considérer selon le signe du produit $q_j \times \Phi_d$:

– si $q_j \times \Phi_d < 0$ le potentiel de la poussière est attractif pour la particule incidente.

Dans ce cas, la vitesse minimale est nulle : $v_{j,min} = 0$,

– si $q_j \times \Phi_d > 0$ le potentiel de la poussière est répulsif pour la particule incidente. La vitesse minimale d'approche de la particule est donc donnée par l'égalité : $\frac{1}{2} v_{j,min}^2 =$

$q_j \Phi_d$. On en déduit $v_{j,min} = \sqrt{\frac{2q_j \Phi_d}{m_j}}$.

On considère une distribution en vitesse de Maxwell pour les particules plasma :

$$f_j(v_j) = n_j \left(\frac{m_j}{2\pi k_B T_j} \right)^{3/2} \exp \left(-\frac{m_j v_j^2}{2k_B T_j} \right) \quad (\text{A.12})$$

En utilisant les équations A.11 et A.12, les expressions des courants de particules collectées par la poussières peuvent être obtenues.

Dans le cas où le potentiel Φ_d est attractif :

$$I_j = 4\pi r_d^2 n_j q_j \left(\frac{k_B T_j}{2\pi m_j} \right)^{1/2} \left(1 - \frac{q_j \Phi_d}{k_B T_j} \right). \quad (\text{A.13})$$

Si le potentiel Φ_d est répulsif :

$$I_j = 4\pi r_d^2 n_j q_j \left(\frac{k_B T_j}{2\pi m_j} \right)^{1/2} \exp \left(-\frac{q_j \Phi_d}{k_B T_j} \right). \quad (\text{A.14})$$

Le potentiel Φ_d peut désormais être calculé en utilisant le fait qu'à l'équilibre, la somme des courants ionique et électronique à la surface de la poussière doit être nulle :

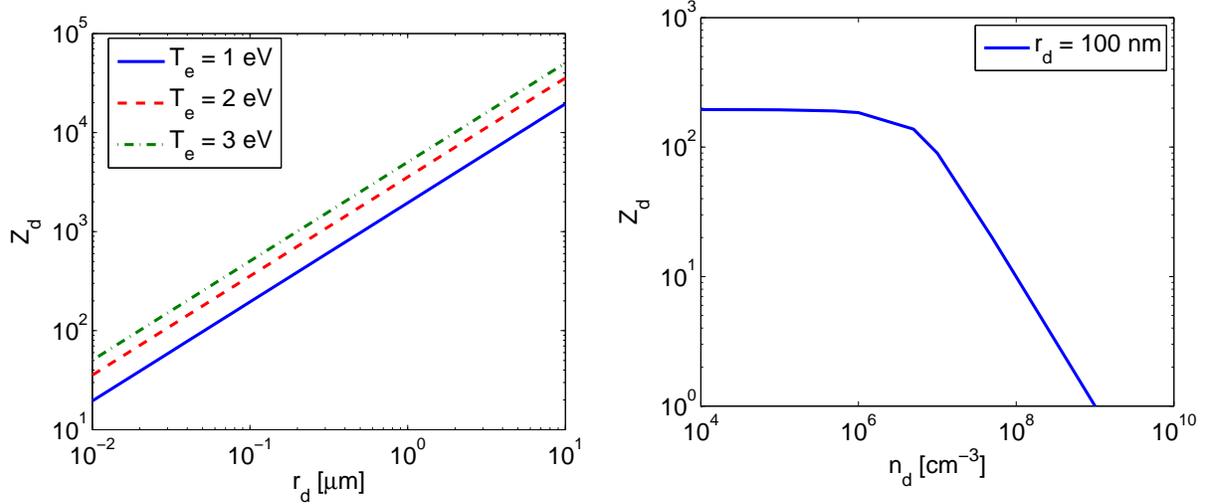
$\sum_{j=i,e} I_j=0$. En considérant une poussière chargée négativement ($\Phi_d < 0$) et $q_i=-q_e=e$, l'équation à résoudre s'écrit :

$$4\pi r_d^2 n_i e \left(\frac{k_b T_i}{2\pi m_i} \right)^{1/2} \left(1 - \frac{e\Phi_d}{k_B T_i} \right) + 4\pi r_d^2 n_e (-e) \left(\frac{k_b T_e}{2\pi m_e} \right)^{1/2} \exp \left(-\frac{(-e)\Phi_d}{k_B T_e} \right) = 0 \quad (\text{A.15})$$

En utilisant l'équation de quasi-neutralité : $n_i=n_e$, cette équation peut être mise sous la forme :

$$\left(\frac{T_i m_e}{T_e m_i} \right)^{1/2} \left(1 - \frac{e\Phi_d}{k_B T_i} \right) \exp \left(-\frac{e\Phi_d}{k_B T_e} \right) = 1 \quad (\text{A.16})$$

La résolution de l'équation A.16 permet d'estimer la valeur de Φ_d . La charge Q_d portée par une poussière de rayon r_d peut alors être obtenue en considérant qu'elle se comporte comme un condensateur sphérique : $Q_d = 4\pi\epsilon_0 r_d \Phi_d$. La figure A.4(a) donne un exemple du nombre de charges électroniques portées par une poussière isolée en fonction de son rayon r_d , calculé à l'aide du modèle OML (équation A.16).



(a) $Z_d=f(r_d)$ pour une poussière isolée.

(b) Influence de la densité de poussières sur leur charge : $Z_d=f(n_d)$, avec $r_d=100$ nm.

Figure A.4 – Application du modèle OML : $T_e=1$ eV, $T_i=0,03$ eV, $n_i=n_e=10^9$ cm^{-3} .

Remarque :

L'anisotropie des flux de particules et l'inhomogénéité des densités ionique et électronique rendent le modèle OML inapplicable dans une gaine électrostatique.

Influence de l'environnement sur la charge des poussières

La charge portée par une poussière dépend directement de son environnement : plus la température électronique T_e est grande, et plus la charge Q_d de la poussière est négative. On peut s'en convaincre à l'aide de la figure A.4(a) où Z_d a été calculé pour différentes valeurs de T_e . Ainsi, une augmentation de la puissance P_{RF} (à pression constante) aura pour conséquence d'augmenter T_e et donc $|Q_d|$.

A l'inverse, la charge $|Q_d|$ d'une poussière diminue lorsque celle-ci est située dans une des gaines de la décharge, en raison du faible nombre d'électrons présents dans ces régions. Ceci est d'autant plus vrai que la poussière est située profondément dans la gaine (loin du plasma).

La charge $|Q_d|$ portée par les poussières diminue également si celles-ci sont présentes à une forte densité [116]. Une manière de prendre en compte cet effet est de considérer la charge portée par la population de poussières dans l'équation de quasi-neutralité [74, 115], qui devient alors :

$$n_i = n_e + n_d Z_d \quad (\text{A.17})$$

avec Z_d le nombre de charges électroniques portées par une poussière, soit $Q_d = (-e) \times Z_d$.

En utilisant les équations A.15 et B.10, l'équation à résoudre donnant Φ_d devient :

$$\left(\frac{T_i m_e}{T_e m_i} \right)^{1/2} \left(1 - \frac{e \Phi_d}{k_B T_i} \right) \exp \left(- \frac{e \Phi_d}{k_B T_e} \right) = 1 - \frac{Z_d n_d}{n_i} \quad (\text{A.18})$$

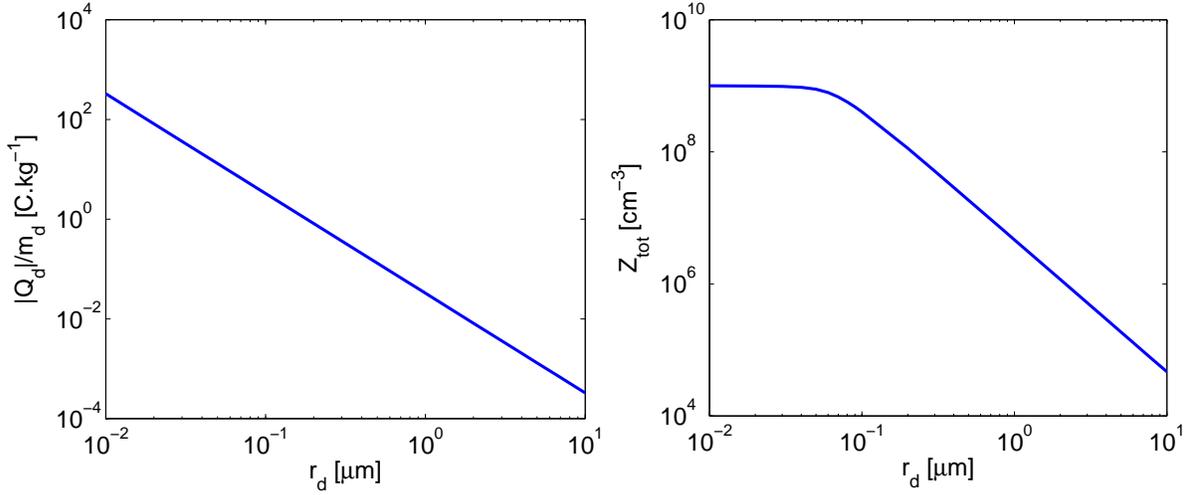
La figure A.4(b) présente l'évolution du nombre de Z_d en fonction de la densité de poussière n_d , en considérant des poussières de rayon $r_d=100$ nm. Ces résultats ont été obtenus en résolvant l'équation A.18.

La figure A.5(a) représente quant à elle l'évolution du rapport $|Q_d|/m_d$ en fonction de la taille des poussières. Comme on peut le constater, avec l'augmentation de la taille des poussières, ce ratio diminue.

Influence du processus de charge des poussières sur la tension d'auto-polarisation

Lorsque des poussières sont présentes au sein de la décharge, celles-ci collectent des électrons. L'origine de la tension d'auto-polarisation V_{bias} étant directement liée à la population électronique, la collection d'électrons par les poussières a une influence notable sur la valeur de $|V_{bias}|$. Plus la quantité de poussières présentes dans la décharge sera importante, et plus la valeur de $|V_{bias}|$ sera faible.

Considérons une masse totale $M_{tot}=10^{-2}$ mg fixe de poussières de rayon r_d et de masse volumique $\rho_d=2200$ kg.m⁻³. Si cette masse M_{tot} est répartie en un grand nombre de petites poussières, la quantité totale d'électrons collectés Z_{tot} sera importante et la valeur de $|V_{bias}|$ sera fortement diminuée. En revanche, si cette même masse M_d est répartie sur des tailles de poussières plus importantes, une quantité plus faible d'électrons sera collectée. Ceci est illustré par la figure A.5(b) qui représente l'évolution du nombre total d'électrons collectés Z_{tot} en fonction de la taille des poussières considérée pour répartir la masse M_{tot} .



(a) Influence de la taille des poussières sur le rapport $|Q_d|/m_d$. (b) Influence de la taille des poussières sur le nombre total de charges électroniques portées Z_{tot} .

Figure A.5 – Application du modèle OML : $M_{tot}=10^{-2}$ mg, $T_e=1$ eV, $T_i=0,03$ eV, $n_i=n_e=10^9$ cm $^{-3}$.

A.3.2 Écrantage d'une poussière : longueur de Debye généralisée

La poussière chargée est entourée d'une gaine électrostatique (modèle de la particule habillée). Au-delà de la gaine, la perturbation induite par la charge de la poussière est écrantée et celle-ci demeure invisible pour le reste du plasma. Le processus d'écrantage de la poussière est assuré par les ions et les électrons. Il s'effectue sur une distance caractéristique égale à la longueur de Debye λ_D :

$$\lambda_D = \frac{\lambda_{D,i}\lambda_{D,e}}{\sqrt{\lambda_{D,i}^2 + \lambda_{D,e}^2}} \quad (\text{A.19})$$

Dans un plasma froid, on a généralement $T_e \gg T_i$ c'est-à-dire $\lambda_{D,e} \gg \lambda_{D,i}$. Il en résulte que $\lambda_D \simeq \lambda_{D,i}$. L'écrantage de la poussière est donc essentiellement assuré par les ions du plasma [74].

Annexe B

ANNEXE 2

Cette annexe a pour objectif d'établir, par une approche fluide, la relation de dispersion des DDWs (équation 5.3) présentée au chapitre 5. Son développement s'inspire directement des travaux de R. Merlino [104]. On considère les trois espèces suivantes : électrons (indice e), ions (indice i) et poussières (indice d). Le système est choisi unidimensionnel selon l'axe x . Le plasma est supposé quasi-neutre. D'une manière générale, les quantités à l'équilibre sont notées avec l'indice "0" et les quantités perturbées avec l'indice "1".

Dans le cadre des DDWs, le champ électrique externe E_0 joue un rôle majeur puisqu'il est à l'origine du flux d'ions responsable de l'instabilité. La présence d'un tel champ électrique peut par exemple être observé au sein d'une gaine électrostatique. Il est donc nécessaire de le prendre en compte dans le bilan des forces s'exerçant sur les différentes espèces. On considèrera que E_0 est uniforme et constant.

- La conservation de la masse est assurée pour les trois espèces par les équations de continuité B.1, B.2 et B.3 :

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (n_e u_e) = 0 \quad (\text{B.1})$$

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (n_i u_i) = 0 \quad (\text{B.2})$$

$$\frac{\partial n_d}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (n_d u_d) = 0 \quad (\text{B.3})$$

Les forces prises en compte pour chaque espèce sont :

- **I** : la force de gradient de pression,
- **II** : la force électrique liée au champ électrique total E ,
- **III** : la force de frottements avec les neutres.

- La conservation de la quantité de mouvement s'exprime alors pour chacune des espèces considérées à l'aide des équations B.4, B.5 et B.6 :

$$m_e n_e \left(\frac{\partial u_e}{\partial t} + u_e \frac{\partial u_e}{\partial x} \right) + \underbrace{k_B T_e \frac{\partial n_e}{\partial x}}_{\text{I}} + \underbrace{e n_e E}_{\text{II}} = \underbrace{-m_e n_e \nu_{en} u_e}_{\text{III}} \quad (\text{B.4})$$

$$m_i n_i \left(\frac{\partial u_i}{\partial t} + u_i \frac{\partial u_i}{\partial x} \right) + k_B T_i \frac{\partial n_e}{\partial x} - e n_i E = -m_i n_i \nu_{in} u_i \quad (\text{B.5})$$

$$m_d n_d \left(\frac{\partial u_d}{\partial t} + u_d \frac{\partial u_d}{\partial x} \right) + k_B T_d \frac{\partial n_d}{\partial x} + e Z_d n_d E = -m_d n_d \nu_{dn} u_d \quad (\text{B.6})$$

Les fréquences de collision avec les neutres sont données par :

$$\begin{aligned} \nu_{en} &= N \sigma_{en} v_{th,e} \\ \nu_{in} &= N \sigma_{in} v_{th,i} \\ \nu_{dn} &= \frac{4\pi}{3} r_d^2 N v_{th,n} \frac{m_n}{m_d} \quad (\text{formule d'Epstein}) \end{aligned}$$

où N est la densité de neutres et σ_{jn} la section efficace de collision entre l'espèce j et les neutres.

• Les vitesses d'entraînement des différentes espèces dans le champ externe E_0 sont données par les équations B.7, B.8 et B.9 :

$$u_{e0} = \mu_e E_0 = \frac{-e}{m_e \nu_{en}} E_0 \quad (\text{B.7})$$

$$u_{i0} = \mu_i E_0 = \frac{e}{m_i \nu_{in}} E_0 \quad (\text{B.8})$$

$$u_{d0} = \mu_d E_0 = \frac{-Z e}{m_d \nu_{dn}} E_0 \quad (\text{B.9})$$

• L'hypothèse de quasi-neutralité à l'équilibre se traduit par l'équation B.10 :

$$n_{i0} = n_{e0} + Z n_{d0} \quad (\text{B.10})$$

• La dernière équation nécessaire à la description du système est l'équation de Poisson permettant d'exprimer le lien entre la distribution spatiale de charges et le champ électrique. Elle est donnée par l'équation B.11 :

$$\frac{\partial E}{\partial x} = \frac{e}{\epsilon_0} (n_i - n_e - Z n_d) \quad (\text{B.11})$$

Les équations B.1 à B.11 constituent un système d'équations différentielles couplées. Il est résolu en considérant l'hypothèse des ondes planes progressives monochromatiques (OPPM). De cette façon, une quantité X donnée s'écrit sous la forme d'une somme composée de la quantité à l'équilibre X_0 et de la quantité perturbée $X_1 \exp(i(kx - \omega t))$: $X = X_0 + X_1 \exp(i(kx - \omega t))$.

En injectant cette solution dans les équations préalablement établies, il vient :

• équations de continuité

$$\text{Eqn. B.1} \rightarrow n_{e1} = \frac{n_{e0} k}{\omega - k u_{e0}} u_{e1} \quad (\text{B.12})$$

$$\text{Eqn. B.2} \rightarrow n_{i1} = \frac{n_{i0}k}{\omega - ku_{i0}}u_{i1} \quad (\text{B.13})$$

$$\text{Eqn. B.3} \rightarrow n_{d1} = \frac{n_{d0}k}{\omega - ku_{d0}}u_{d1} \quad (\text{B.14})$$

• équations de conservation de la quantité de mouvement

$$\text{Eqn. B.4} \rightarrow im_en_e u_{e1} (-\omega + u_{e0}k) + ik_B T_e n_{e1} k + en_{e0} E_1 = -m_e n_{e0} \nu_{en} u_{e1} \quad (\text{B.15})$$

$$\text{Eqn. B.5} \rightarrow im_i n_i u_{i1} (-\omega + u_{i0}k) + ik_B T_i n_{i1} k - en_{i0} E_1 = -m_i n_{i0} \nu_{in} u_{i1} \quad (\text{B.16})$$

$$\text{Eqn. B.6} \rightarrow im_d n_d u_{d1} (-\omega + u_{d0}k) + ik_B T_d n_{d1} k + eZn_{d0} E_1 = -m_d n_{d0} \nu_{dn} u_{d1} \quad (\text{B.17})$$

• équation de Poisson

$$\text{Eqn. B.10} + \text{Eqn. B.11} \rightarrow ikE_1 = \frac{e}{\epsilon_0} (n_{i1} - n_{e1} - Zn_{d1}) \quad (\text{B.18})$$

En insérant les équations B.12 à B.14 respectivement dans les équations B.15 à B.17, on obtient :

$$\text{Eqn. B.12} + \text{Eqn. B.15} \rightarrow n_{e1} = \frac{1}{A_e} \times \frac{-iken_{e0}E_1}{m_e} \quad (\text{B.19})$$

$$\text{Eqn. B.13} + \text{Eqn. B.16} \rightarrow n_{i1} = \frac{1}{A_i} \times \frac{iken_{i0}E_1}{m_i} \quad (\text{B.20})$$

$$\text{Eqn. B.14} + \text{Eqn. B.17} \rightarrow n_{d1} = \frac{1}{A_d} \times \frac{iken_{d0}ZE_1}{m_d} \quad (\text{B.21})$$

avec $A_j = (\omega - ku_{j0})(\omega - u_{j0}k + i\nu_{jn}) - v_{th,j}^2 k^2$ pour l'espèce j et $v_{th,j}^2 = \frac{k_B T_j}{m_j}$.

Finalement, en introduisant les équations B.19 à B.21 dans l'équation de Poisson linéarisée B.18, on obtient la relation de dispersion des DDWs donnée par l'équation B.22 :

$$\boxed{1 = \frac{\omega_{pi}^2}{A_i} + \frac{\omega_{pe}^2}{A_e} + \frac{\omega_{pd}^2}{A_d}} \quad (\text{B.22})$$

Cas limite :

Si le champ électrique E_0 est très faible de telle manière que les vitesses d'entraînement u_j des trois espèces j deviennent négligeables, et que l'on néglige les collisions avec les neutres, alors $A_j \rightarrow \omega^2 - k^2 v_{th,j}^2$. On a donc :

$$1 = \frac{\omega_{pi}^2}{\omega^2 - k^2 v_{th,i}^2} + \frac{\omega_{pe}^2}{\omega^2 - k^2 v_{th,e}^2} + \frac{\omega_{pd}^2}{\omega^2 - k^2 v_{th,d}^2} = \frac{1}{\underbrace{\frac{\omega^2}{\omega_{p,i}^2}}_{\rightarrow 0} - k^2 \lambda_{D,i}^2} + \frac{1}{\underbrace{\frac{\omega^2}{\omega_{p,e}^2}}_{\rightarrow 0} - k^2 \lambda_{D,e}^2} + \frac{\omega_{pd}^2}{\omega^2 - k^2 v_{th,d}^2}$$

En considérant que $\omega_{p,e} \gg \omega_{p,i} \gg \omega$, on retrouve la relation de dispersion générale des ondes acoustiques de poussières DAWs donnée par l'équation B.23 :

$$\boxed{\omega^2 = k^2 \frac{\omega_{p,d}^2 \lambda_D^2}{1 + k^2 \lambda_D^2} + k^2 v_{th,d}^2} \quad (\text{B.23})$$

avec λ_D la longueur de Debye généralisée et $\frac{1}{\lambda_D} = \frac{1}{\lambda_{D,i}} + \frac{1}{\lambda_{D,e}}$

Liste des acronymes

Acronyme	Signification
UV	Ultra-Violet
FIL	Fluorescence induite par laser
FCM	Fusion par confinement magnétique
FCI	Fusion par confinement inertiel
ITER	International Thermonuclear Experimental Reactor
JET	Joint European Torus
ASDEX	Axially Symmetric Divertor EXperiment
DSMF/LCFS	Dernière Surface Magnétique Fermée/Last Closed Magnetic Flux Surface
CFP	Composant Face au Plasma
SOL	Scrape Off Layer
ELM	Edge Localized Mode
VDE	Vertical Displacement Event
MEB	Microscope Electronique à Balayage
TEM	Transmission Electron Microscopy
TRACE	TRACKing and Classification of pinpoint Events - algorithme de détection et de suivi des poussières
RF	Radio Fréquence
FWHM	Full Width at Half Maximum
HAC	Hydrogenated Amorphous Carbon
DIAW	Dust-Ion Acoustic Waves
DAW	Dust Acoustic Wave
DDW	Dust Density Wave
DLW	Dust Lattice Wave
PIFA	Polarization-induced Ion Flux Asymmetry
DLA	Diffusion Limited Aggregation
DLCA	Diffusion-Limited Cluster Aggregation
RLCA	Reaction-Limited Cluster Aggregation
vdW	van der Waals
OML	Orbital Motion Limited

Liste des symboles

Symbole	Signification
T	température du gaz
P	pression du gaz
V	volume de gaz dans l'enceinte
Q_x	débit du gaz <i>x</i>
t_{res}	temps de résidence
V_{bias}	tension d'auto-polarisation
P_{RF}	puissance RF
λ	longueur d'onde
m	indice optique complexe
n	indice optique de réfraction
k	indice optique d'absorption
α	paramètre de taille
a-C :H	carbone amorphe hydrogéné
Q_{ext,abs,diff}	efficacité d'extinction, absorption, diffusion
C_{ext,abs,diff}	section efficace d'extinction, absorption, diffusion
σ	coefficient de diffusion
κ	coefficient d'absorption
β	coefficient d'extinction
F(r,λ,η)	fonction de phase de diffusion, avec <i>r</i> le rayon de la particule, <i>λ</i> la longueur d'onde et <i>η</i> l'angle de diffusion
I₀/I	intensité incidente/transmise lors d'une mesure d'extinction
Tr	Transmittance
Abs	Absorbance
N_{tot}	nombre total de marcheurs (méthode inverse)
(nw)	vecteur indiquant la répartition des marcheurs (méthode inverse)
R	résidu, erreur relative entre données expérimentales et numériques (méthode inverse)
n_{iter}	nombre total d'itérations (méthode inverse)
N₀	densité totale de particules (méthode inverse)
M	nombre total de tailles de particules considérées (méthode inverse)

Symbole	Signification
$\lambda_{min}/\lambda_{max}$	bornes basse/haute en longueur d'onde considérée (méthode inverse)
J	nombre total de longueurs d'onde considérées (méthode inverse)
l_{diff}	longueur de diffusion (méthode de lancé de rayon)
f_v	fraction volumique
d_{Sauter}	diamètre de Sauter
F_g	force de gravité
F_E	force électrique
F_i	force de frottement ionique
F_n	force de frottement des neutres
F_{Th}	force de thermophorèse
r_d	rayon d'une poussière
Kn	nombre de Knudsen
$\omega_{pe,i,d}$	pulsation plasma électronique, ionique et des poussières
$n_{e,i,d}$	densité électronique, ionique et des poussières
$m_{e,i,d}$	masse de l'électron, de l'ion et d'une poussière
ω	pulsation (onde)
\vec{E}/E	champ électrique/module
\vec{k}	vecteur d'onde
λ_D	longueur de Debye linéarisée
$\lambda_{Di,e}$	longueur de Debye ionique, électronique
$\lambda_{D,eff}$	longueur de Debye effective
u_{j0}	vitesse d'entraînement de l'espèce j
$v_{j,th}$	vitesse thermique de l'espèce j
X/Y	dimension spatiale horizontale/verticale sur une image (imagerie rapide)
I_{tot}	intensité d'une image
f_p	fréquence de passage des fronts d'onde à une position donnée dans la gaine
C_{DDW}	vitesse de propagation (célérité) des ondes de densité de poussières
Q_d	charge d'une poussière
Z_d	nombre de charges électroniques portées par une poussière
Φ_d	potentiel de surface d'une poussière par rapport au potentiel plasma
F_{BF}	fluctuation basse fréquence
R_g	rayon de giration d'un agglomérat
D_f	dimension fractale d'un agglomérat
S	Surface d'un agglomérat
C	Compacité d'un agglomérat
E_l	Élongation d'un agglomérat

Liste des constantes physiques

Constante	Valeur	Dénomination
g	9,81 m.s ⁻²	accélération de la pesanteur
ϵ_0	$8,85 \times 10^{-12}$ kg ⁻¹ .m ⁻³ .A ² .s ⁴	permittivité diélectrique du vide
k_B	$1,38 \times 10^{-23}$ m ² .kg.s ⁻² .K	constante de Boltzmann
e	$1,6 \times 10^{-19}$ C	charge électrique élémentaire

Liste des figures

1.1	<i>Spokes</i> dans l’anneau B de Saturne.	5
1.2	Poussières en suspension illuminées par un faisceau laser.	6
1.3	Génération du champ magnétique dans un tokamak.	10
1.4	(a) Schéma de la configuration divertor (coupe poloïdale d’un tokamak) d’après [25] et (b) vue intérieure du tokamak JET.	11
1.5	Images TEM de poussières collectées en tokamak [31].	12
1.6	Structure générale de l’étude.	17
2.1	Schéma du dispositif.	20
2.2	Réacteur utilisé lors des expériences.	20
2.3	Schéma du circuit électrique et de la configuration des électrodes.	22
2.4	Évolution de $ V_{bias} $ (a) en fonction de P_{RF} et (b) lorsque des poussières apparaissent dans la décharge.	24
2.5	Principe des mesures d’extinction réalisées.	25
2.6	Schéma de principe des acquisitions vidéo.	26
2.7	Exemple de photographie MEB.	28
2.8	Principe du seuillage lors de la phase de détection des <i>particules potentielles</i>	30
2.9	Recouvrements des surfaces de deux poussières.	31
2.10	Ondes de poussières dans la gaine anodique. Les fronts d’onde, correspondant à des zones de forte densité de poussières submicroniques, apparaissent comme des bandes lumineuses en raison de l’éclairage par la lumière laser.	33
2.11	Periodogram représentant la propagation des ondes de poussière dans la gaine anodique.	35
2.12	Schéma de principe pour la détermination des longueurs d’onde.	36
3.1	Schéma représentant l’interaction d’une onde électromagnétique avec des particules sphériques.	38
3.2	Photographies MEB de particules carbonées obtenues en plasma argon/acétylène. Leur forme générale est proche de la sphère. La surface des particules peut présenter un aspect irrégulier dont le motif évoque celui d’un chou-fleur.	41
3.3	Photographies MEB d’agglomérats. Ceux-ci sont constitués de particules dont le diamètre est de quelques centaines de nanomètres. Leur rayon de giration peut atteindre plusieurs centaines de micromètres.	42
3.4	Indices optiques de réfraction et d’absorption proposés par différents auteurs dans le domaine visible et proche IR.	43

3.5	Efficacités d'extinction obtenues par le calcul de Mie et en utilisant les indices optiques tirés de [56] pour le matériau ACH2.	44
3.6	Fonctions de phase pour les trois régimes de diffusion différents. Les indices optiques utilisés pour leur calcul sont issus de [56] et concernent le matériau ACH2.	46
3.7	Schéma de principe de la mesure d'extinction.	48
3.8	Schéma de principe de la procédure d'inversion. Le déplacement d'un marcheur d'une section à l'autre permet de faire évoluer la distribution en taille des particules. Le nombre de marcheurs par classe est donné par le vecteur (nw)	50
3.9	Schéma de principe du code de Monte Carlo de lancer de rayons.	52
3.10	Distributions en taille de particules utilisées pour les simulations. Distribution <i>I</i> : $\bar{d} = 150 \text{ nm}$, distribution <i>II</i> : $\bar{d} = 300 \text{ nm}$, distribution <i>III</i> : $\bar{d} = 800 \text{ nm}$	53
3.11	Influence du nombre total de marcheurs N_{tot} et du nombre total d'itérations n_{iter} sur le résidu final de l'inversion.	54
3.12	Comparaison des transmittances et des distributions de particules exactes et obtenues par la méthode d'inversion. Distribution <i>I</i> . $R=4,72 \times 10^{-4}$	55
3.13	Comparaison des transmittances et des distributions de particules exactes et obtenues par la méthode d'inversion. Distribution <i>II</i> . $R=5,9 \times 10^{-4}$	56
3.14	Comparaison des transmittances et des distributions de particules exactes et obtenues par la méthode d'inversion. Distribution <i>III</i> . $R=6,48 \times 10^{-4}$. . .	56
3.15	Informations statistiques sur les évènements de diffusion subis par les quanta détectés lors de la simulation de suivi de rayon effectuée pour la distribution <i>II</i>	58
3.16	Transmittance calculée pour la distribution <i>II</i> : loi de Beer-lambert (trait continu), suivi de rayon avec et sans considérer les photons diffusés (triangles). .	58
3.17	Influence de la distribution initiale des marcheurs.	59
3.18	Application de la méthode inverse au cas d'une population de particules à deux modes.	60
3.19	Application de la méthode inverse au cas d'une population de particules de type log-normale.	61
3.20	Application de la méthode inverse sur des données d'extinction bruitées. . . .	62
3.21	Photographie MEB des poussières produites.	63
3.22	Application de la méthode inverse sur des données expérimentales.	64
3.23	Influence du jeu d'indices optiques utilisé sur les résultats fournis par la méthode inverse.	67
4.1	Schéma illustrant le principe de la force de thermophorèse.	73
4.2	Formation des poussières dans la décharge.	76
4.3	Schéma des forces agissant sur les poussières dans les gaines cathodique et anodique.	77
4.4	Poussières présentes dans l'espace inter-électrodes et en périphérie de la décharge.	78
4.5	Schémas du dispositif expérimental.	79

4.6	Schéma des forces agissant sur les poussières en présence du point froid.	79
4.7	Évolution de la tension d'auto-polarisation (valeur absolue).	81
4.8	Évolutions de la densité totale et du diamètre de Sauter des poussières.	82
4.9	Évolution de la fraction volumique en particules.	82
4.10	Poussières présentes dans la décharge.	83
4.11	Expulsion de poudres hors de la gaine cathodique.	84
4.12	Comportement des poussières avant et après le refroidissement du tube. Photographie originale (à gauche) et composante rouge en échelle de couleur logarithmique artificielle (à droite).	86
4.13	Extraction des poussières de la gaine cathodique.	87
4.14	Photographie d'un substrat placé au point froid et recouvert de poudres.	88
4.15	Photographies MEB de particules collectées au point froid.	89
4.16	Frittage de deux particules sphériques.	90
4.17	Dislocation des agglomérats lors de la montée en température du substrat.	91
4.18	Exemple de particules collectées lorsque le tube est refroidi avant l'injection d'acétylène.	92
4.19	Temps nécessaire à l'extraction des poudres en fonction de la pression.	94
4.20	Évolution de $ V_{bias} $ en fonction de la pression. $P_{RF}=25$ W.	95
4.21	(a) Évolution du diamètre de Sauter des particules de type 2 en fonction de la pression, obtenue grâce aux clichés MEB et (b) exemple de distribution en taille mesurée au MEB (100 mTorr).	96
5.1	Domaine d'existence des DAWS dans le plan (E_0, P_0) [104].	103
5.2	Localisation des ondes de poussières dans la décharge.	104
5.3	Ondes de densité de poussières au sein de la gaine anodique à $t=60$ s. Conditions expérimentales : $P=270$ mTorr, $P_{RF}=25$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm.	106
5.4	Évolution temporelle de l'épaisseur de la zone active. Conditions expéri- mentales : $P=260$ mTorr, $P_{RF}=25$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm.	107
5.5	Ondes de densité de poussières au sein de la gaine anodique à $t=120$ s. Conditions expérimentales : $P=240$ mTorr, $P_{RF}=25$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm.	108
5.6	Évolution de f_p en fonction de la position.	109
5.7	Évolution de la longueur d'onde λ et de la vitesse de propagation C_{DDW} des DDWs à travers la gaine anodique.	111
5.8	Periodgram et intensité lumineuse totale de l'image I_{tot} . Conditions expé- rimentales : $P=170$ mTorr, $P_{RF}=25$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm.	112
5.9	(a) Fragmentation d'un front d'onde arrivant à l'anode (b) agrandissement sur le periodgram de la figure 5.8.	113
5.10	Periodgram réalisé à $t=60$ s. Conditions expérimentales : $P=320$ mTorr, $P_{RF}=25$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm.	113
5.11	Évolution de l'épaisseur de la zone active en fonction de la pression.	117
5.12	Évolution de (a) la fréquence f_p et (b) la vitesse de propagation des DDWs en fonction de la pression.	118

5.13	Propriétés des DDWs en fonction de la puissance RF. Conditions expérimentales : $P=230$ mTorr, $P_{RF}=[20;100]$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm.	119
5.14	Évolutions en fonction de P_{RF} (a) du diamètre de Sauter et de la densité totale de particules ; (b) de la tension d'auto-polarisation $ V_{bias} $ à $t=150$ s après l'injection d'acétylène.	120
5.15	Ondes de poussières dans la gaine cathodique. Conditions expérimentales : $P=200$ mTorr, $P_{RF}=10$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm.	122
5.16	Periodgrams montrant un exemple de DDWs dans la gaine cathodique. Conditions expérimentales : $P=200$ mTorr, $P_{RF}=10$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm.	122
5.17	Photographies du nuage de poudres en présence des F_{BF}	123
5.18	Periodgram illustrant la mise en mouvement des particules micrométriques par les DDWs. Conditions expérimentales : $P=180$ Torr, $P_{RF}=25$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm. $t=150$ s après l'injection de C_2H_2	124
5.19	Milieu poussiéreux présentant deux phases. Conditions expérimentales : $P=100$ mTorr, $P_{RF}=10$ W, $Q_{Ar}/Q_{C_2H_2}=12/2$ sccm. $t=44$ s après l'injection de C_2H_2	125
5.20	Évolution de la tension d'auto-polarisation (valeur absolue) et de la densité totale de particules en fonction du temps. L'injection d'acétylène est interrompue à $t=330$ s.	126
5.21	Image représentant un arrangement de particules micrométriques. Elles sont alignées verticalement. Le film a été réalisé 7 minutes après l'arrêt de l'injection d'acétylène.	126
6.1	Structure des agglomérats en fonction du régime d'agglomération [81].	133
6.2	Évolution de la population de particules submicroniques.	136
6.3	Évolution du nombre total d'agglomérats et de la surface totale cumulée que représentent ces agglomérats.	137
6.4	Images du nuage de poussières dans la gaine cathodique en fonction du temps après l'injection de l'acétylène.	138
6.5	Distributions en taille (surface) des agglomérats.	139
6.6	Évolution temporelle de la vitesse moyenne des agglomérats.	139
6.7	Distributions en taille des particules submicroniques d'après les mesures d'extinction.	140
6.8	Distributions des vitesses des agglomérats.	141
6.9	(a) Vitesses moyennes descendante et ascendante des agglomérats à $t=36$ s et (b) periodgram issu du film réalisé à $t=26$ s.	141
6.10	Évènement d'agglomération entre deux agglomérats. Conditions expérimentales : $P=100$ mTorr, $P_{RF}=25$ W.	143
6.11	Distributions en vitesse des agglomérats.	145
6.12	Profils des vitesses moyennes des agglomérats à travers la gaine à différents instants.	146
6.13	Zoom d'une photographie MEB d'un agglomérat.	149
6.14	Schéma récapitulant la formation des agglomérats.	150

6.15	Particules dans la gaine cathodique. $P=120$ mTorr, $P_{RF}=25$ W, Ar/C ₂ H ₂ =12/2 sccm, $t=60$ s après injection de C ₂ H ₂	151
6.16	Photographies d'une particule linéaire de longueur supérieure à 1 mm et subissant des déformations (échelle de couleur artificielle).	152
6.17	Photographies MEB d'agglomérats extraits de la gaine cathodique.	153
6.18	Caractéristiques géométriques d'un agglomérat.	154
6.19	(a) Surface moyenne des agglomérats à $t \simeq 70$ s pour $P_{RF}=10$ W et 25 W et (b) vitesse moyenne des agglomérats à $t \simeq 25$ s pour $P_{RF}=10$ W.	156
6.20	(a) Compacité et (b) élongation des agglomérats à $t \simeq 70$ s.	156
6.21	Évolutions de $ V_{bias} $ et de la transmittance à $\lambda=300$ nm.	158
6.22	Évolution du nuage de poussières.	159
A.1	Tension radiofréquence V_{RF} (en pointillés) et tension de la cathode $V_{cathode}$ (tracé continu).	163
A.2	Modèle électrique équivalent (a), structure (b) et profil de potentiel moyen (c) de la décharge.	165
A.3	Schéma de l'interaction coulombienne d'une particule plasma avec une poussière.	167
A.4	Application du modèle OML : $T_e=1$ eV, $T_i=0,03$ eV, $n_i=n_e=10^9\text{cm}^{-3}$. . .	169
A.5	Application du modèle OML : $M_{tot}=10^{-2}$ mg, $T_e=1$ eV, $T_i=0,03$ eV, $n_i=n_e=10^9\text{cm}^{-3}$. . .	171

Bibliographie

- [1] S. Bardin. *Etude des interactions plasma-paroi par imagerie rapide : application aux plasmas de laboratoire et de tokamak*. PhD thesis, Université de Lorraine, 2012.
- [2] I. Langmuir, C. G. Found, and A. F. Detmer. A new type of electric discharge : the streamer discharge. *Science*, 60 :392–394, 1924.
- [3] H. M. Mott-Smith and I. Langmuir. The theory of collectors in gaseous discharges. *Phys. Rev. E.*, 28 :727–763, 1926.
- [4] J. R. Hill and D. A. Mendis. On the braids and spokes in saturn’s ring system. *Moon and Planets*, 24 :431–436, 1981.
- [5] C. K. Goertz and G. Morfill. A model for the formation of spokes in saturn’s ring. *Icarus*, 53 :219–229, 1983.
- [6] W. F. Huebner. Origins of cometary materials. *Space Sci. Rev.*, 138 :5–25, 2008.
- [7] J. Blum, G. Wurm, S. Kempf, T. Poppe, H. Klahr, T. Kozasa, M. Rott, T. Henningand, J. Dorschner, R. Schrapler, H. U. Keller, W. J. Markiewicz, I. Mann, B. A. S. Gustafson, F. Giovane, D. Neuhaus, H. Fechtig, E. Grun, B. Feuerbacher, H. Kochan, L. Ratke, A. El Goresy, G. Morfill, S. J. Weidenschilling, G. Schwehm, K. Metzler, and W.-H. Ip. Growth and form of planetary seedlings : Results from a microgravity aggregation experiment. *Phys. Rev. Lett.*, 85(12) :2426–2429, 2000.
- [8] J. Blum. Dust growth in protoplanetary disks - a comprehensive experimental / theoretical approach. *Research in Astron. Astrophys.*, 10(12) :1199–1214, 2010.
- [9] E. Sciamma-O’Brien, N. Carrasco, C. Szopa, A. Buch, and G. Cernogora. Titan’s atmosphere : An optimal gas mixture for aerosol production ? *Icarus*, 209 :704–714, 2010.
- [10] N. Carrasco, I. Schmitz-Afonso, J-Y. Bonnet, E. Quirico, R. Thissen, O. Dutuit, A. Bagag, O. Laprevote, A. Buch, A. Giuliani, G. Adande, F. Ouni, E. Hadamcik, C. Szopa, and G. Cernogora. Chemical characterization of titan’s tholins : solubility, morphology and molecular structure revisited. *J. Phys. Chem. A*, 113 :11195–11203, 2009.
- [11] G. E. Moore. Cramming more components onto integrated circuits. *Electronics*, 38(8), 1965.
- [12] G. S. Selwyn, J. Singh, and R. S. Bennett. In situ laser diagnostic studies of plasma generated particulate contamination. *J. Vac. Sci. Technol.*, 7 :2758, 1989.

- [13] A. Bouchoule, A., A. Plain, A., L. Boufendi, L., J. P. Blondeau, and C. Laure. Particle generation and behavior in a silane-argon low-pressure discharge under continuous or pulsed radiofrequency excitation. *Journal of Applied Physics*, 70(4) :1991–2000, August 1991.
- [14] G. M. Jellum, J. E. Daugherty, and D.B. Graves. Particle thermophoresis in low pressure glow discharge. *J. Appl. Phys.*, 69(10) :6923–6934, 1991.
- [15] W. W. Stoffels, E. Stoffels, G. M. W. Kroesen, M. Haverlag, J. H. W. G. den Boer, and F. J. de Hoog. Infrared spectroscopy of a dusty rf plasma. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 3 :320–324, 1994.
- [16] A. Bouchoule, L. Boufendi, J. Hermann, A. Plain, T. Hbid, G. Kroesen, E. Stoffels, and W. W. Stoffels. Formation of dense submicronic clouds in low pressure ar-sih4 rf reactor : Diagnostics and growth processes from monomers to large size particulates. *Pure & Appl. Chem.*, 68(5) :1121–1126, 1996.
- [17] H. Kersten. Micro-disperse particles in plasmas : From disturbing side effects to new applications. *Contrib. Plasma Phys.*, 41 :598–609, 2001.
- [18] H. Kersten, H. Deutsch, E. Stoffels, W.W. Stoffels, and G.M.W. Kroesen. Plasma-powder interaction : trends in applications and diagnostics. *International Journal of Mass Spectrometry*, 223-224 :313–325, 2003.
- [19] L. Boufendi and A. Bouchoule. Particle nucleation and growth in a low-pressure argon-silane discharge. *Plasma Sources Science & Technology*, 3(3) :262–267, August 1994.
- [20] U. Kortshagen. Nonthermal plasma synthesis of semiconductor nanocrystals. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 42 :113001, 2009.
- [21] C. Arnas and A. A. Moubéri. Thermal balance of carbon nanoparticles in sputtering discharges. *Journal of Applied Physics*, 105(6) :063301, March 2009.
- [22] H. R. Maurer and H. Kersten. On the heating of nano- and microparticles in process plasmas. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 44 :174029, 2011.
- [23] H. Kersten, U. H. Deutsch, M. Otte, G. H. P. M. Swinkels, and G.M.W. Kroesen. Micro-disperse particles as probes for plasma surface interaction. *Thin Solid Films*, 377-378 :530–536, 2000.
- [24] G. H. P. M. Swinkels, H. Kersten, H. Deutsch, and G. M. W. Kroesen. Microcalorimetry of dust particles in a radio-frequency plasma. *J. Appl. Phys.*, 88(4) :1747–1755, 2000.
- [25] A.W. Kleyn, W. Koppers, and N. Lopes Cardozoa. Plasma-surface interaction in iter. *Vacuum*, 80(10) :1098–1106, 2006.
- [26] H. Zohm. Edge localized modes (elms). *Plasma Phys. Control. Fusion*, 38 :105–128, 1996.
- [27] F. Wagner, G. Becker, K. Behringer, D. Campbell, A. Eberhagen, W. Engelhardt, G. Fussmann, O. Gehre, J. Gernhardt, G. v. Gierke, G. Haas, M. Huang, F. Karger, M. Keilhacker, O. Klüber, M. Kornherr, K. Lackner, G. Lisitano, G. G. Lister, H. M. Mayer, D. Meisel, E. R. Müller, H. Murmann, H. Niedermeyer, W. Poschenrieder,

-
- H. Rapp, H. Röhr, F. Schneider, G. Siller, E. Speth, A. Stäbler, K. H. Steuer, G. Venus, O. Vollmer, and Z. Yü. Regime of improved confinement and high beta in neutral-beam-heated divertor discharges of the asdex tokamak. *Phys. Rev. Lett.*, 49 :1408–1412, 1982.
- [28] P. Starke, U. Fantz, and M. Balden. Investigations of chemical erosion of carbon materials in hydrogen and deuterium low pressure plasmas. *Journal of Nuclear Materials*, 337-339 :1005–1009, 2005.
- [29] M.V. Ramana Murty. Sputtering : the material erosion tool. *Surface Science*, 500 :523–544, 2002.
- [30] J. Linke, M. Akiba, R. Duwe, A. Lodato, H. J. Penkalla, M. Rodig, and K. Schopflin. Material degradation and particle formation under transient thermal loads. *Journal of Nuclear Materials*, 290-293 :1102–1106, 2001.
- [31] J. P. Sharpe, D. A. Petti, and H. W. Bartels. A review of dust in fusion devices : Implications for safety and operational performance. *Fusion Engineering and Design*, 63-64 :153–163, 2002.
- [32] J. Winter. Dust in fusion devices - a multi-faceted problem connecting high- and low-temperature plasma physics. *Plasma Phys. Control. Fusion*, 46 :B583–B592, 2004.
- [33] C. Arnas, C. Dorninque, P. Roubin, C. Martin, C. Brosset, and B. Pegourie. Characterisation of carbon dust produced in sputtering discharges and in the core supra tokamak. *Journal of Nuclear Materials*, 353(1-2) :80–88, July 2006.
- [34] M. Rubel, M. Cecconello, J.A. Malmberg, G. Sergienko, W. Bielb, J.R. Drake, A. Hedqvist, A. Huber, and V. Philipps. Dust particles in controlled fusion devices : morphology, observations in the plasma and influence on the plasma performance. *Nucl. Fusion*, 41(8) :1087–1099, 2001.
- [35] G. Federici, C. H. Skinner, J. N. Brooks, J. P. Coad, C. Grisolia, A. A. Haasz, A. Hassanein, V. Philipps C. S. Pitcher, J. Roth, W. R. Wampler, and D. G. Whyte. Plasma-material interactions in current tokamaks and their implications for next step fusion reactors. *Nucl. Fusion*, 41 :1967–2137, 2001.
- [36] F. Onofri, K.F. Ren, and C. Grisolia. Development of an in situ iter dust diagnostic based on extinction spectrometry : Dedicated light scattering models. *Journal of Nuclear Materials*, 390-391 :1093–1096, 2009.
- [37] A.L. Roquemore, N. Nishino, C.H. Skinner, C. Bush, R. Kaita, R. Maqueda, W. Davis, A.Yu Pigarov, and S.I. Krashennnikov. 3d measurements of mobile dust particle trajectories in nstx. *Journal of Nuclear Materials*, 363-365 :222–226, 2007.
- [38] J.H. Yu, D.L. Rudakov, A.Yu. Pigarov, R.D. Smirnov, N.H. Brooks, S.H. Muller, and W.P. West. Fast camera imaging of dust in the diii-d tokamak. *Journal of Nuclear Materials*, 390-391 :216–219, 2009.
- [39] S. Ratynskaia, C. Castaldo, E. Giovannozzi, D. Rudakov, G. Morfill, M. Horanyi, J.H. Yu, and G. Maddaluno. In situ dust detection in fusion devices. *Plasma Phys. Control. Fusion*, 50 :124046, 2008.

- [40] C. Castaldo. Novel diagnostics for dust in space, laboratory and fusion plasmas. *Contrib. Plasma Phys.*, 51(2-3) :207–217, 2011.
- [41] B. M. Annaratone, W. Jacob, C. Arnas, and G.E. Morfill. Critical review of complex plasma (dusty plasma) diagnostics and manipulation techniques for the fusion community and others. *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 37(1) :270–280, 2009.
- [42] B. M. Annaratone, M. Glier, T. Stuffer, M. Raif, H. M. Thomas, and G. E. Morfill. The plasma-sheath boundary near the adaptive electrode as traced by particles. *New J. Phys.*, 5 :92, 2003.
- [43] B. M. Annaratone, T. Antonova, D. D. Goldbeck, H. M. Thomas, and G. E. Morfill. Complex-plasma manipulation by radiofrequency biasing. *Plasma Phys. Control. Fusion*, 46 :B495–B509, 2004.
- [44] Y. Peng. *Synthèse et caractérisation de poussières carbonées dans une décharge radiofréquence*. PhD thesis, Faculté des Sciences et Techniques, Insitut Jean Lamour, décembre 2009.
- [45] V. Nosenko, S.K. Zhdanov, S.-H. Kim, J. Heinrich, R.L. Merlino, and G.E. Morfill. Measurements of the power spectrum and dispersion relation of self-excited dust acoustic waves. *EPL*, 88(6) :65001, 2009.
- [46] C. F. Bohren and D. R. Huffman. *Absorption and scattering of light by small particles*. John Wiley and Sons, New York., 1983.
- [47] M.F. Modest. *Radiative Heat Transfer*. Academic Press, San Diego, second edition, 2003.
- [48] M. Kerker. *The scattering of light and other electromagnetic radiation*. New York Academic Press, 1969.
- [49] H. C. van de Hulst. *Light scattering by small particles*. Dover Publications, New York, 1981.
- [50] Anthony Collin. *Transfert de chaleur couplés rayonnement - conduction - convection. Application à des rideaux d'eau soumis à une intense source radiative*. PhD thesis, Faculté des Sciences et Techniques, Laboratoire d’Énergétique et de Mécanique Théorique Appliquée, Juillet 2006.
- [51] M. I. Mishchenko, L. D. Travis, and D. W. Mackowski. T-matrix computations of light scattering by nonspherical particles : A review. *JQSRT*, 55(5) :535–575, 1996.
- [52] P. C. Waterman. Symmetry, unitarity, and geometry in electromagnetic scattering. *Phys. Rev. D*, 3(4) :825–839, 1971.
- [53] F. Onofri, M. Wozniak, and S. Barbosa. On the optical characterisation of nanoparticle and their aggregates in plasma systems. *Contrib. Plasma Phys.*, 51(2-3) :228–236, 2011.
- [54] H. Chang and T. T. Charalampopoulos. Determination of the wavelength dependence of refractive indices of flame soot. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 430 :577–591, 1990.
- [55] François Rouleau and P.G. Martin. Shape and clustering effects on the optical properties of amorphous carbon. *ApJ*, 377 :526–540, 1991.

-
- [56] V. G. Zubko, V. Mennella, L. Colangeli, and E. Bussoletti. Optical constants of cosmic analogue grains - i. simulation of clustering by a modified continuous distribution of ellipsoids. *Mon. Not. R. Astron. Soc.*, 282(4) :1321–1329, 1996.
- [57] Douglas G. Furton, John W. Laiho, and Adolf N. Witt. The amount of interstellar carbon locked in solid hydrogenated amorphous carbon. *ApJ*, 526 :752–763, 1999.
- [58] D. Sunil, V. D. Vankar, and K. L. Chopra. Infrared and ellipsometric studies of amorphous hydrogenated carbon films. *J. Appl. Phys.*, 69(6) :3719–3722, 1990.
- [59] Ted L. Roush. Optical constants of amorphous carbon in the mid-ir (2.5-25 μm , 4000-400 cm^{-1}). *Planet. Space Sci.*, 43 :1297–1301, 1995.
- [60] Napoleon Maron. Optical properties of fine amorphous carbon grains in the infrared region. *Astrophysics and Space Science*, 172 :21–28, 1990.
- [61] T. Schwarz-Selinger, A. von Keudell, and W. Jacob. Plasma chemical vapor deposition of hydrocarbon films : The influence of hydrocarbon source gas on the film properties. *J. Appl. Phys.*, 86(7) :3988–3996, 1999.
- [62] Suk-Ho Hong and Jörg Winter. Size dependence of optical properties and internal structure of plasma grown carbonaceous nanoparticles studied by *in situ* rayleigh-mie scattering ellipsometry. *J. Appl. Phys.*, 100 :064303, 2006.
- [63] David A. Ligon, James B. Gillespie, and Paul Pellegrino. Aerosol properties from spectral extinction and backscatter estimated by an inverse monte carlo method. *Appl. Opt.*, 39(24) :4402–4410, 2000.
- [64] Y. Peng, R. Hugon, F. Brochard, J.L. Vasseur, D. Lacroix, C. Brosset, and J. Bougdira. Carbon dust growth in a radiofrequency discharge. *AIP Conf. Proc.*, 993 :419–422, 2008.
- [65] Y. Peng, D. Lacroix, R. Hugon, C. Brosset, and J. Bougdira. Experimental and theoretical investigations of absorbance spectra for edge-plasma monitoring in fusion reactors. *JQSRT*, 109 :1549–1562, 2008.
- [66] Adarsh Deepak and Michael A. Box. Forwardscattering corrections for optical extinction measurements in aerosol media. 1 : Monodispersions. *Appl. Opt.*, 17(18) :2900–2908, 1978.
- [67] Adarsh Deepak and Michael A. Box. Forwardscattering corrections for optical extinction measurements in aerosol media. 2 : Polydispersions. *Appl. Opt.*, 17(19) :3169–3176, 1978.
- [68] H. Rothermel, T. Hagl, G. E. Morfill, M. H. Thoma, and H. M. Thomas. Gravity compensation in complex plasmas by application of a temperature gradient. *Phys. Rev. Lett.*, 89(17) :175001, 2002.
- [69] M. Schwabe, M. Rubin-Zubic, S. Zhdanov, H.M. Thomas, and G. E. Morfill. Highly resolved self-excited density waves in a complex plasma. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :095002, 2007.
- [70] V. E. Fortov, V. I. Vladimirov, L. V. Deputatova, A. P. Nefedov, V. A. Rykov, and A. V. Khudyakov. Removal of dust particles from technological plants. *Dokl. Phys.*, 384(2) :181–184, 2002.

- [71] L. M. Vasilyak, S. P. Vetchinin, V. S. Zimnukhov, D. N. Polyakov, and V. E. Fortov. Dust particles in a thermophoretic trap in a plasma. *JETP*, 96(3) :436–439, 2003.
- [72] V. V. Balabanov, L. M. Vasilyak, S. P. Vetchinin, A. P. Nefedov, D. N. Polyakov, and V. E. Fortov. The effect of the gas temperature gradient on dust structures in a glow-discharge plasma. *JETP*, 92(1) :86–92, 2001.
- [73] L. M. Vasilyak, S. P. Vetchinin, D. N. Polyakov, and V. E. Fortov. Formation of complex structures in dusty plasmas under temperature gradients. *JETP*, 100(5) :1029–1034, 2005.
- [74] P. K. Shukla and A. A. Mamun. *Introduction to dusty plasma physics*. Institute of Physics Publishing, 2002.
- [75] R. N. Varney. Drift velocities of ions in krypton and xenon. *Phys. Rev.*, 88(2) :362–364, 1952.
- [76] M. A. Gallis, D. J. Rader, and J. R. Torczynski. Thermophoresis in rarefied gas flows. *Aerosol Sci. Technol.*, 36 :1099–1117, 2002.
- [77] S. Hong, J. Berndt, and J. Winter. Growth precursors and dynamics of dust particle formation in the ar/ch4 and ar/c2h2 plasmas. *Plasma Sources Science & Technology*, 12(1) :46–52, February 2003.
- [78] J. Winter, J. Berndt, S. H. Hong, E. Kovacevic, I. Stefanovic, and O. Stepanovic. Dust formation in ar/ch4 and ar/c2h2 plasmas. *Plasma Sources Science & Technology*, 18(3) :034010, August 2009.
- [79] J. Benedikt. Plasma-chemical reactions : low pressure acetylene plasmas. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 43 :043001, 2010.
- [80] R. M. German. *Sintering theory and practice*. 1996.
- [81] S. Friedlander. *Smoke, Dust and Haze : Fundamentals of aerosol Dynamics SECOND EDITION*. Oxford University Press, 2000.
- [82] Anne-Gwenaëlle Guezennec. *La formation des poussières de four électrique d’acierie : de la genèse des particules à leur évolution morphologique*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2004.
- [83] M. Rosenberg. Ion- and dust-acoustic instabilities in a dusty plasma. *Planet. Space Sci.*, 41(3) :229–233, 1993.
- [84] N. D’Angelo and R. L. Merlino. Current-driven dust-acoustic instability in a collisional plasma. *Planet. Space Sci.*, 44(12) :1593–1598, 1996.
- [85] Robert L. Merlino. Dust-acoustic waves : Visible sound waves. *AIP Conf. Proc.*, 1188 :141–152, 2009.
- [86] A. Piel. Some thoughts about dust density waves. In *6th International Conference on the Physics of Dusty Plasmas (ICPDP) - Garmisch-Partenkirchen, GERMANY - AIP Conference Proceedings*, 2011.
- [87] N. N. Rao, P. K. Shukla, and M. Y. Yu. Dust-acoustic waves in dusty plasmas. *Planet. Space Sci.*, 38(4) :543–546, 1990.
- [88] J. H. Chu, Ji-Bin Du, and Lin I. Coulomb solids and low-frequency fluctuations in rf dusty plasmas. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 27 :296–300, 1994.

-
- [89] N. D'Angelo. Comment coulomb solids and low-frequency fluctuations in rf dusty plasmas. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 28 :1009–1010, 1995.
- [90] V. I. Molotkov, A. P. Nefedov, V. M. Torchinskii, V. E. Fortov, and A. G. Khrapak. Dust acoustic waves in a dc glow discharge plasma. *JETP*, 89(3) :477–480, 1999.
- [91] V. E. Fortov, O. F. Petrov, V. I. Molotkov, M. Y. Poustylnik, V. M. Torchinsky, A. G. Khrapak, and A. V. Chernyshev. Large-amplitude dust waves excited by the gas-dynamic impact in a dc glow discharge plasma. *Phys. Rev. E.*, 69 :016402, 2004.
- [92] E. Thomas, R. Fisher, and R. L. Merlino. Observations of dust acoustic waves driven at high frequencies : Finite dust temperature effects and wave interference. *Phys. Plasmas*, 14 :123701, 2007.
- [93] A. Homann, A. Melzer, S. Peters, and A. Piel. Determination of the dust screening length by laser-excited lattice waves. *Phys. Rev. E.*, 56(6) :7138–7141, 1997.
- [94] C. Thompson, A. Barkan, N. D'Angelo, and R. L. Merlino. Dust acoustic waves in a direct current glow discharge. *Phys. Plasmas*, 4 :2331–2335, 1997.
- [95] R. L. Merlino, A. Barkan, C. Thompson, and N. D'Angelo. Laboratory studies of waves and instabilities in dusty plasmas. *Phys. Plasmas*, 5(5) :1607–1614, 1998.
- [96] I. Pilch, T. Reichstein, and A. Piel. Synchronization of dust density waves in anodic plasmas. *Phys. Plasmas*, 16 :123709, 2009.
- [97] W. D. Suranga Ruhunusiri and J. Goree. Synchronization mechanism and arnol tongues for dust density waves. *Phys. Rev. E.*, 85 :046401, 2012.
- [98] Jean-Loup Delcroix and Abraham Bers. *Physique des Plasmas 1*. 1994.
- [99] A. Barkan, R. L. Merlino, and N. D'Angelo. Laboratory observation of the dust-acoustic wave mode. *Phys. Plasmas*, 2 :3563, 1995.
- [100] C M Ticos, A Dyson, P W Smith, and P K Shukla. Pressure triggered collective oscillations of a dust crystal in a capacitive rf plasma. *Plasma Phys. Control. Fusion*, 46 :B293–B299, 2004.
- [101] V. E. Fortov, A.G. Khrapak, S.A. Khrapak, V.I. Molotkov, A.P. Nefedov, and O.F. Petrov. Mechanism of dust-acoustic instability in a direct current glow discharge plasma. *Phys. Plasmas*, 7(5) :1374, 2000.
- [102] A. V. Zobnin, A. D. Usachev, O. F. Petrov, and V. E. Fortov. Dust-acoustic instability in a n inductive gas-discharge plasma. *JETP*, 95(3) :429–439, 2002.
- [103] V. E. Fortov, A.D. Usachev, A.V. Zobnin, V.I. Molotkov, and O.F. Petrov. Dust-acoustic wave instability at the diffuse edge of radio frequency inductive low-pressure gas discharge plasma. *Phys. Plasmas*, 10(5) :1199, 2003.
- [104] Robert L. Merlino. Dust-acoustic waves driven by an ion-dust streaming instability in laboratory discharge dusty plasma experiments. *Phys. Plasmas*, 16 :124501, 2009.
- [105] K. O. Menzel, O. Arp, and A. Piel. Frequency clusters and defects structures in non-linear dust-density waves under microgravity conditions. *Phys. Rev. E.*, 83 :016402, 2011.
- [106] K. O. Menzel, O. Arp, and A. Piel. Chain of coupled van der pol oscillators as model system for density waves in dusty plasmas. *Phys. Rev. E.*, 84 :016405, 2011.

- [107] E. Thomas and R. L. Merlino. Dust particle motion in the vicinity of dust acoustic waves. *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 29 :152–157, 2001.
- [108] A. V. Zobnin, A. P. Nefedov, V. A. Sinel'shchikov, and V. E. Fortov. On the charge of dust particles in a low-pressure gas discharge plasma. *JETP*, 91 :483–487, 2000.
- [109] V. E. Fortov, A. G. Khrapak, S. A. Khrapak, V. I. Molotkov, and O. F. Petrov. Dusty plasmas. *Phys. Usp.*, 47 :447–492, 2004.
- [110] B.M. Annaratone, A.G Khrapak, A.V. Ivlev, G. Söllner, P. Bryant, R. Sütterlin, U. Konopka, K.Yoshino, M. Zuzic, H.M. Thomas, and G.E. Morfill. Levitation of cylindrical particles in the sheath of an rf plasma. *Phys. Rev. E.*, 63 :364061–364066, 2001.
- [111] A. V. Ivlev, A. G. Khrapak, S. A. Khrapak, B. M. Annaratone, G. Morfill, and K. Yoshino. Rodlike particles in gas discharge plasmas : Theoretical model. *Phys. Rev. E.*, 68 :026403, 2003.
- [112] Martin Lampe, Glenn Joyce, and Gurudas Ganguli. Interactions between dust grains in a dusty plasma. *Phys. Plasmas*, 7(10) :3851, 2000.
- [113] W. J. Miloch, S. V. Vladimirov, H. L. Pécseli, and J. Trulsen. Interaction of two elongated dust grains in flowing plasmas studied by numerical simulations. *Phys. Plasmas*, 16 :023703, 2009.
- [114] G. Lapenta. Nature of the force field in plasma wakes. *Phys. Rev. E.*, 66 :026409, 2002.
- [115] Y. Watanabe. Formation and behaviour of nano/micro-particles in low pressure plasmas. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 39 :R329–R361, 2006.
- [116] J. Goree. Charging of particles in a plasma. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 3 :400–406, 1994.
- [117] Y. Watanabe. Dust phenomena in processing plasmas. *Plasma Phys. Control. Fusion*, 39 :A59–A72, 1997.
- [118] G. E. Morfill, V. N. Tsytovich, and H. Thomas. Complex plasmas : Ii. elementary processes in complex plasmas. *Plasma Phys. Rep.*, 29(1) :3–36, 2003.
- [119] U. Kortshagen and U. Bhandarkar. Modeling of particulate coagulation in low pressure plasmas. *Phys. Rev. E.*, 60(1) :887–898, 1999.
- [120] I. Stefanovic, J. Berndt, D. Maric, V. Samara, M. Radmilovic-Radjenov, Z. Lj. Petrovic, E. Kovacevic, and J. Winter. Secondary electron emission of carbonaceous dust particles. *Phys. Rev. E.*, 74 :026406, 2006.
- [121] R. Bingham and V. N. Tsytovich. New mechanism of dust growth and gravitation-like instabilities in astrophysical plasmas. *Astron. Astrophys.*, 376 :43–47, 2001.
- [122] R. Bingham and V. N. Tsytovich. The criteria for dust agglomeration in plasmas. *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 29(2) :158–163, 2001.
- [123] Y. A. Mankelevich, M. A. Olevanov, and T. V. Rakhimova. Dust particle coagulation mechanism in low-pressure plasma : rapid growth and saturation stage modeling. *Plasma Sources Sci. Technol*, 17 :015013, 2008.

-
- [124] Y. A. Mankelevich, M. A. Olevanov, A. F. Pal', T. V. Rakhimova, A. N. Ryabinkin, A. O. Serov, and A. V. Filippov. Coagulation of dust grains in the plasma of an rf discharge in argon. *Plasma Phys. Rep.*, 35(3) :191–199, 2009.
- [125] D. Samsonov and J. Goree. Instabilities in a dusty plasma with ion drag and ionization. *Phys. Rev. E.*, 59(1)(1) :1047–1058, 1999.
- [126] F. Y. Huang, H. H. Hwang, and M. J. Kushner. A model for transport and agglomeration of particles in reactive ion etching plasma reactors. *J. Vac. Sci. Technol.*, 14(2) :562–566, 1995.
- [127] F. Y. Huang and M. J. Kushner. Shapes of agglomerates in plasma etching reactors. *J. Appl. Phys.*, 81(9) :5960–5965, 1997.
- [128] C-R. Du, H. M. Thomas, A. V. Ivlev, U. Konopka, and G. E. Morfill. Agglomeration of microparticles in complex plasmas. *Phys. Plasmas*, 17 :113710, 2010.
- [129] E. V. Johnson, Y. Djeridane, A. Abramov, and P Roca i Cabarrocas. Experiment and modelling of very low frequency oscillations in rf-pecvd : a signature for nanocrystal dynamics. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 17 :035029, 2008.
- [130] K. Köhler, J.W. Coburn, D.E. Horne, and E. Kay. Plasma potentials of 13.56-mhz rf argon glow discharge in a planar system. *J. Appl. Phys.*, 57 :59, 1985.
- [131] A-M Pointu, J. Perrin, and J. Jolly. *Plasmas froids de décharge - Propriétés Applications et diagnostics*.
- [132] M. Mohamed Salem and J F Loiseau. Experiments to sort out theoretical models concerning the area ratio law for plasma reactors. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 29 :1181–1187, 1996.
- [133] M.A. Lieberman and A.J. Lichtenberg. *Principles of Plasma Discharges and Materials Processings*. John Wiley & Sons, 2005.
- [134] A-M Pointu, J. Perrin, and J. Jolly. *Plasmas froids de décharge - Propriétés électriques*.

Étude numérique et expérimentale de la détection et la formation de poussières carbonées dans un plasma radio fréquence en mélange Ar/C₂H₂

La présence de poussières au sein des plasmas est rencontrée dans de multiples environnements tels que les plasmas de laboratoires ou les plasmas de fusion. Les processus conduisant à leur formation constituent un vaste champ d'études depuis plusieurs années. Ce travail de thèse a pour objectif d'étudier un nouveau mécanisme de croissance des poussières dans un plasma radiofréquence capacitif en mélange argon/acétylène. Dans certaines conditions, il a été observé que des ondes de densité de poussières apparaissaient spontanément au sein des nuages de poussières. Elles peuvent grandement favoriser l'agglomération des particules grâce à l'importante énergie cinétique qu'elles leur transfèrent.

Pour réaliser cette étude, différents outils diagnostics ont été développés. Pour sonder les populations de poussières nanométriques, un premier diagnostic basé sur des mesures d'extinction dans le domaine visible associé à une méthode inverse a été mis au point. Un second diagnostic permettant l'étude des populations d'agglomérats supra-microniques a été utilisé. Il est basé sur l'utilisation de l'imagerie rapide et l'analyse automatique des films à l'aide d'un algorithme adapté (TRACE). Enfin, une méthode d'extraction des poussières en vue d'analyses ex-situ et utilisant la force de thermophorèse a été développée.

Ces diagnostics ont ensuite été appliqués à l'étude des ondes de poussières et des processus d'agglomération. Nous avons montré que des agglomérats de plusieurs centaines de microns pouvaient être formés en quelques dizaines de secondes. L'influence des conditions expérimentales sur les caractéristiques des ondes et des agglomérats formés a également été étudiée.

Experimental and numerical study of carbonaceous dust detection and formation in a radio-frequency plasma in the mixture Ar/C₂H₂.

The dust particle growth in plasmas is of major concern for safety issues in fusion reactors, and conversely has important industrial impacts. Dusty plasmas produced in laboratory, fusion, and in astrophysical environments have been therefore widely studied for many years to better understand the involved physical phenomena. In this thesis work, we have investigated a new dust-growing mechanism in a capacitive radio-frequency plasma of argon/acetylene mixture, with developing necessary diagnostic tools.

The population of nano-particles was probed using visible-wavelength range extinction measurements combined with an inverse method. The motions and the collisions in enlarging agglomerates were followed through a fast-imaging device and the images were then analyzed using a compatible algorithm (TRACE). Ex-situ studies were also carried out on dust particles collected with an extraction technique based on the thermophoresis force.

These diagnostic tools allowed us to observe a spontaneous emergence of dust density waves (DDWs) under specific experimental conditions. These waves impart substantial kinetic energy to the dust particles and thus enhance their agglomeration rate. Large agglomerates up to several hundreds of microns may thus be produced in a few tens of seconds. We have also studied the influence of experimental conditions (power, pressure?) on the waves and the agglomerate characteristics.

Mots-clés : plasma poussiéreux, RF, extinction, diffusion, méthode inverse, imagerie rapide, algorithme de détection, ondes de poussières, agglomération, MEB.