



HAL
open science

Décharge couronne dans l'hélium liquide et gaz dense sous champ électrique intense : pré-claquage, transport de charge, spectroscopie d'émission

Zhiling Li

► **To cite this version:**

Zhiling Li. Décharge couronne dans l'hélium liquide et gaz dense sous champ électrique intense : pré-claquage, transport de charge, spectroscopie d'émission. Physique [physics]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2008. Français. NNT : . tel-00325797

HAL Id: tel-00325797

<https://theses.hal.science/tel-00325797>

Submitted on 30 Sep 2008

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.

UNIVERSITE JOSEPH FOURIER – GRENOBLE 1
Ecole Doctorale Physique

THESE

En vue de l'obtention du titre de
DOCTEUR DE L'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER
Discipline : Physique pour l'instrumentation

Par

Zhiling LI

Décharge couronne dans l'hélium liquide et gaz dense sous champ électrique intense : pré-claquage, transport de charge, spectroscopie d'émission

Directeurs de thèse : **Nelly BONIFACI** et **André DENAT**

Soutenue le 21 Mars 2008 devant la commission composée de

Nader SADEGHI	President
Alain GLEIZES	Rapporteur
Dimitrios KARABOURNIOTIS	Rapporteur
Vladimir ATRAZHEV	Examineur
Franck THIBAUT	Examineur
Frédéric AITKEN	Examineur

Thèse effectuée au Laboratoire Grenoble Génie Electrique (G2Elab) – CNRS, Grenoble

À mes parents et mon frère

Remerciements

Je voudrais ici remercier tous ceux qui m'ont permis d'aller jusqu'au bout de cette thèse. Ils sont nombreux, et j'espère que ceux qui ne seraient pas nommés ici savent que je ne les oublie pas!

Tout d'abord je remercie sincèrement Monsieur André DENAT (Directeur de recherche au CNRS) et Madame Nelly BONIFACI (Chargé de recherche au CNRS) qui ont su encadrer et diriger ce travail avec beaucoup de compétences et de sympathie. Sous leurs directions, j'ai pu apprécier leur rigueur et leur franchise qui ont grandement contribué à la réussite de ce travail. De la même façon, je tiens à souligner la patience qu'ils ont su témoigner lors de l'écriture d'articles pour corriger mon français scolaire.

Mes remerciements s'adressent également à Alain GLEIZES et Dimitrios KARABOURNIOTIS pour avoir manifesté un grand intérêt pour le sujet en acceptant d'être rapporteurs de cette thèse.

Je tiens également à remercier Monsieur Vladimir ATRAZHEV pour ses compétences professionnelles et tous les échanges qui ont souvent dépassés le cadre scientifique.

J'exprime sincèrement Monsieur Frédéric AITKEN pour sa disponibilité et toute ma reconnaissance pour ses précieux conseils en mécanique des fluides.

Je remercie vivement les autres membres du jury : Nader SADEGHI, Franck THIBAUT.

Je souhaite également exprimer toute ma gratitude aux divers services technique et informatique du laboratoire : notamment François MONTANVERT, Christophe POLLET.

J'adresse toute ma gratitude à Monsieur M. DELEGLISE, qui a réalisé tous les dessins ; G. PERROUX trouve ici toute ma reconnaissance pour m'avoir épaulée lors des diverses mesures expérimentales.

Je remercie tous les membres du laboratoire, que je ne cite pas mais à qui je pense, chercheurs, techniciens, secrétaires..., pour leur participation de près ou de loin à la réalisation de ce travail.

Il me reste à remercier tous les thésards pour tous les bons moments passés ensemble. Pour finir, mes pensées vont vers mes parents et mon frère sans qui je n'aurai jamais effectué toutes ces années d'études, et qui m'ont toujours soutenu et fait confiance. C'est un grand plaisir pour moi de leur dédier ce travail.

Table des matières

NOTATION.....	1
INTRODUCTION.....	7
CHAPITRE 1 GENERATION ET TRANSPORT DE CHARGES DANS UN LIQUIDE ISOLANT.....	13
1.1 INTRODUCTION.....	15
1.2 GEOMETRIE POINTE–PLAN.....	15
1.3 CARACTERISTIQUES COURANT MOYEN - TENSION.....	17
1.4 MECANISMES DE CREATION DE CHARGE EN CONFIGURATION POINTE–PLAN.....	17
1.4.1 Emission d'électrons à la cathode.....	18
1.4.2 Ionisation de champ (pointe positive).....	18
1.4.3 Mécanisme de multiplication électronique (avalanche).....	19
1.4.4 Conséquence d'une avalanche en géométrie pointe - plan.....	21
1.5 TRANSPORT DES CHARGES.....	22
1.6 MOBILITE DES CHARGES DANS L'HELIUM LIQUIDE.....	23
1.6.1 Mobilité des électrons –modèle de la bulle électronique.....	24
1.6.2 Théorie de la boule de neige « snow ball » pour les porteurs positifs He ⁺	27
1.6.3 Influence de la densité et de la température.....	28
CHAPITRE 2 SPECTRES ATOMIQUES ET MOLECULAIRES.....	31
2.1 RAIES ATOMIQUES.....	33
2.1.1 Introduction.....	33
2.1.2 Propriétés radiatives locales d'un milieu.....	33
2.2 ELARGISSEMENT ET DEPLACEMENT DES RAIES.....	34
2.2.1 Elargissement naturel.....	35
2.2.2 Elargissement Doppler.....	35
2.2.3 Elargissement de pression.....	35
2.3 SPECTROSCOPIE MOLECULAIRE DIATOMIQUE.....	47
2.3.1 Introduction.....	47
2.3.2 Description de l'état électronique dans la bande moléculaire.....	48
2.3.3 Simulation des spectres moléculaires.....	50
2.3.4 Spectres des molécules He ₂	52
CHAPITRE 3 METHODES EXPERIMENTALES.....	57
3.1 INTRODUCTION.....	59
3.2 GAZ HELIUM UTILISE.....	59
3.3 L'HELIUM LIQUIDE : QUELQUES PARAMETRES IMPORTANTS.....	59
3.3.1 Diagramme de phase de ⁴ He.....	59
3.4 LA CELLULE D'ESSAI.....	61
3.5 CRYOSTAT ET SYSTEMES DE REMPLISSAGE ET DE VIDE.....	62
3.5.1 Cryostat.....	63
3.5.2 Mesures du vide et de la pression.....	64
3.5.3 Mesure de la température et dispositif de chauffage.....	64
3.6 MESURES ELECTRIQUES.....	67
3.6.1 Les électrodes.....	68
3.6.2 Circuit haute tension.....	69
3.7 ANALYSE SPECTROSCOPIQUE.....	69
3.7.1 Spectrographe.....	70
3.7.2 Calibration.....	71
CHAPITRE 4 PHENOMENES DE CONDUCTION ELECTRIQUE EN CHAMP INTENSE DANS L'HELIUM LIQUIDE..	75

4.1	INTRODUCTION.....	77
4.2	CARACTERISTIQUES ELECTRIQUES ET PHENOMENES INDUITS DANS L'HELIUM LIQUIDE	78
4.2.1	<i>Caractéristiques courant moyen-tension.....</i>	79
4.2.2	<i>Erosion de la pointe.....</i>	81
4.2.3	<i>Analyse des tensions seuils d'apparition et d'extinction</i>	81
4.2.4	<i>Phénomènes induits dans le liquide par le régime de décharge couronne.....</i>	84
4.2.5	<i>Mobilité des porteurs de charge dans l'hélium liquide.....</i>	92
4.3	INFLUENCE DE LA TEMPERATURE	99
4.3.1	<i>Seuil de tension.....</i>	99
4.3.2	<i>Mobilité</i>	100
4.3.3	<i>Régime d'impulsions de courant</i>	106
4.4	CONCLUSION	107
CHAPITRE 5	RESULTATS EXPERIMENTAUX DE LA SPECTROSCOPIE D'EMISSION	109
5.1	INTRODUCTION.....	111
5.2	CONSIDERATIONS GENERALES.....	111
5.2.1	<i>Emission de 380nm à 540nm.....</i>	113
5.2.2	<i>Emission de 560nm à 740nm.....</i>	116
5.3	INFLUENCE DE LA TEMPERATURE	118
5.4	INFLUENCE DE LA POLARITE	121
5.5	EFFET DE LA PRESSION.....	122
5.5.1	<i>Etude à T=4,2K et 6K.....</i>	122
5.5.2	<i>Etude à T=300K.....</i>	124
5.5.3	<i>Déplacement des raies atomiques.....</i>	125
5.5.4	<i>Elargissement des raies atomiques</i>	127
5.5.5	<i>Déplacements des bandes moléculaires.....</i>	129
5.6	CONCLUSION	131
CHAPITRE 6	DISCUSSION DES RESULTATS SPECTROSCOPIQUES	133
6.1	INTRODUCTION.....	135
6.2	RAIES ATOMIQUES.....	135
6.2.1	<i>Effet Doppler.....</i>	137
6.2.2	<i>Effet Stark.....</i>	138
6.2.3	<i>Effet van der Waals</i>	139
6.2.4	<i>Effet résonant et Lennard-Jones.....</i>	139
6.3	BANDES MOLECULAIRES	156
6.3.1	<i>Température rotationnelle</i>	156
6.4	ANALYSE DE DYNAMIQUE DE REACTION	159
6.5	CONCLUSION	164
CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	167	
ANNEXES.....	171	
	ANNEXE 1 COURBES D'ENERGIE POTENTIELLE DE He ₂ (GINTER, ET AL., 1970).....	173
	ANNEXE 2 DIAGRAMME D'ENERGIE DE L'HELIUM	175
	ANNEXE 3 BIBLIOGRAPHIE SUR HELIUM LIQUIDE	177
	ANNEX 4 NOMENCLATURE	178
	ANNEX 5 REGLES DE SELECTION.....	180
	ANNEX 6 LES DIFFERENTS COUPLAGES ENONCES PAR HUND	181
	ANNEX 7 LONGUEUR D'ONDE (GINTER, 1965)	184
BIBLIOGRAPHIE	189	
LISTE D'ILLUSTRATION.....	197	
TABLE DE FIGURE	199	
LISTE DE TABLEAU	203	
RESUME	204	

Notation

r_p	μm	Courbure de la pointe
$A_{ul}(v', v'')$		Probabilité d'émission d'Einstein entre les états
c	m/s	Vitesse de la lumière
C_p	J/mol/K	Chaleur spécifique à pression constante
C_p^v ou C_p^ω		Constante dépendant de la nature de l'interaction entre atome ou molécule
d		Distance inter-électrodes
D_e		Constante de distorsion centrifuge d'équilibre
D_v		Constante rotationnelle dans un certain état vibrationnel
E	V/cm	Champ électrique
e	C	Charge d'électron $e=1,6 \times 10^{19}\text{C}$
E_{dC}	V/cm	Interaction coulomb
E_e	eV	Energie d'électron
E_k	eV	Energie cinétique
E_l	eV	Energie excitée d'électron dans l'état inférieur
E_p	V/cm	Champ électrique sur la pointe
E_r	eV	Energie de rotation
E_s	V/cm	Champ électrique seuil
E_u	eV	Energie excitée d'électron dans l'état supérieur
E_v	eV	Energie de vibration
$F_v(v)$	cm^{-1}	Terme d'énergie rotationnelle
g		Poids statistique
$G(v)$	cm^{-1}	Terme d'énergie vibrationnelle
h		Constante de Planck
I	A	Courant moyen
I_{gaz}	eV	Energie d'ionisation dans le gaz
I_{li}	eV	Energie d'ionisation dans le liquide
j		Densité du courant
k_B		Constante de Boltzmann $k_B=1,38 \times 10^{-16}\text{erg/K}$
L		Moment angulaire orbital
L_v	J/mol	Chaleur latente
m	kg	Masse de l'électron
N		Moment de rotation des noyaux qui est toujours perpendiculaire à l'axe passant par les deux noyaux
N	cm^{-3}	Densité de fluide
N_e	cm^{-3}	Densité électronique
N_p	cm^{-3}	Densité de plasma
N_u	cm^{-3}	Densité locale des atomes au niveau supérieur u

P	MPa	Pression dans le milieu
P^+		Energie de polarisation
r	m	Distance entre le perturbateur et l'émetteur
R		Constante des gaz parfaits $R=8,314 \text{ JK}^{-1}\text{mol}^{-1}$
R ou K		Moment angulaire de rotation nucléaire
S	nm	Déplacement de longueur d'onde
S		Spin électronique
T	K	Température
T_b	K	Température d'ébullition
T_p	K	Température du plasma
T_r	K	Température rotationnelle
V_0	eV	Niveau le plus bas de la bande de conduction du diélectrique
v_D	cm/s	Vitesse de dérive
E_{Val}	eV	Changement de niveau de valence
I_{li}	eV	Energie d'ionisation dans le liquide
N_0		Nombre d'électrons initiaux
N_l		Densité du liquide
N_s		Densité du solide
P_m		Pression de solidification
P_s		Pression de vapeur saturante
R_{clus}		Rayon de cluster
R_m	m	Rayon maximum de la bulle de vapeur
W_i		Energie déposée dans la bulle
N_u	cm^{-3}	Densité locale des atomes au niveau supérieur u
P_λ		Profil local d'émission
h		Constante de Planck
F_H		Champ de Holtsmark
w	m/s	Vitesse relative entre l'émetteur et l'atome
v		Nombre de vibration
T_v	K	Température de vibration
T_r	K	Température de rotation
S		Facteur de Höln-London
V_s	V	Tension de seuil pour générer des charges
V_{ex}	V	Tension d'extinction de courant
E_b	V/cm	Champ de claquage
E_s	V/cm	Champ de seuil
I_{max}	A	Amplitude de courant maximum
V_{in}^b	V	Tension de seuil pour l'impulsion de courant
V_{ex}^b	V	Tension d'extinction pour l'impulsion de courant

F	s^{-1}	Fréquence d'impulsion de courant
Q_i	C	Charge moyenne d'une impulsion de courant
Q	C	Charge moyenne
R_w	m	Rayon de la bulle de vapeur
N_{tr}	cm^{-3}	Densité de transition
N_{lib}	cm^{-3}	Densité d'électron dans l'état libre
N_{loc}	cm^{-3}	Densité d'électron dans l'état localisé
R_e	m	Rayon de la pseudo-bulle électronique
μ^-	$cm^2/V.s$	Mobilité de négatif porteur chargé
μ^+	$cm^2/V.s$	Mobilité de positif porteur chargé
α	cm^{-1}	Coefficient d'ionisation
$\Delta\lambda$	nm	Elargissement
$\Delta\lambda_D$	nm	Elargissement de Doppler
$\Delta\lambda_n$	nm	Elargissement naturel
ϵ_0		Permittivité du vide
ϵ_r		Permittivité du milieu
η		Viscosité du fluide
φ_0	eV	Travail de sortie
φ_{vac}	eV	Travail de sortie dans le vide
Λ		Moment angulaire orbital d'électron
λ	nm	Longueur d'onde de transition (u, l)
λ_{ul}	nm	Longueur d'onde de la transition
ρ	cm^{-3}	Densité de fluide
ρ_D	m	Rayon de Debye
ρ_w	m	Paramètre d'impact type de la porte du potentiel d'interaction
σ	N/m	Tension superficielle
τ	s	Temps de collision
τ_i	ns	Durée de vie de l'état i
Δt	s	Première explosion de la bulle de vapeur
λ_0	nm	Longueur d'onde au maximum du profil de raie non perturbé
$\Delta\omega$	s^{-1}	Demi-largeur à mi-hauteur
ρ		Paramètre d'impact
λ_e		Longueur d'onde de l'électron

Introduction

Depuis sa découverte en 1919 par K. Onnes, l'hélium liquide a fasciné les scientifiques et conduit à de nombreuses recherches. La raison de cet intérêt élevé réside dans son comportement quantique, sa petite masse et, à l'interaction faible entre les atomes d'hélium.

D'un point de vue physique, il est le représentant le plus simple de l'état liquide. Ses propriétés physiques sont intimement reliées à la structure électronique de l'atome d'hélium. La couche électronique K est entièrement occupée par les deux électrons. Etant donné que les orbitales de l'état fondamental sont proches du noyau, la polarisabilité électronique de l'atome hélium est très petite et l'énergie d'ionisation est très élevée par rapport aux autres atomes. Dans la phase liquide, ceci conduit à une permittivité relative très faible (1,05 à 4,2K) et à une énergie d'ionisation encore plus élevée que celle du gaz. La répulsion entre les atomes provoque une chaleur de vaporisation très faible. C'est également la raison du fait que l'hélium solide n'existe que pour des pressions supérieures à 2,5MPa à $T=0K$.

Les liquides isolants sont utilisés traditionnellement dans les dispositifs électriques de puissance comme fluide caloporteur (pour évacuer les pertes d'énergie) et comme diélectrique (pour assurer l'isolation électrique). Dans le cas des dispositifs mettant en jeu des matériaux supraconducteurs (limiteurs de courant, transformateurs, etc.), la température de fonctionnement est, actuellement, soit celle de l'hélium liquide (supraconducteurs classiques) soit celle de l'azote liquide (supraconducteurs à haute température critique). Une des solutions pour assurer les rôles de réfrigérant et de diélectrique est d'utiliser des gaz liquéfiés (hélium ou azote). L'hélium liquide a ainsi été largement étudié du point de vue de ses propriétés électriques et diélectriques en vue d'applications en cryoélectrotechnique. L'isolation de dispositifs à supraconducteurs à basse température est basée sur 4He , dans sa phase liquide, supercritique, ou simplement gazeuse froide.

Etant donné l'importance de la compréhension, pour les applications, des phénomènes se produisant en champ électrique intense dans les diélectriques liquides, une approche originale s'est développée au laboratoire basée sur l'étude, en géométrie pointe/plan, des phénomènes de génération et de transport des charges en fonction de la densité du milieu (du gaz à pression atmosphérique à l'état liquide). Le premier objectif de nos études est d'identifier et d'expliquer les mécanismes de création de charge, en vue d'explicitier les phénomènes de préclaquage et de claquage précédemment décrits dans l'hélium liquide et

supercritique. Il est en effet primordial de comprendre les mécanismes à l'origine de la création des charges dans un milieu parfaitement isolant et pur. L'hélium liquide à 4,2K ne contient aucune impureté pouvant modifier ses propriétés contrairement au cas des liquides isolants organiques généralement étudiés.

En règle générale, la génération de charges dans un diélectrique liquide requiert un champ électrique très élevé (\sim MV/cm). L'utilisation d'une géométrie pointe/plan permet d'obtenir localement, près de la pointe, ce champ de génération sans que cela entraîne la rupture diélectrique du liquide du fait d'un champ moyen de faible valeur entre les électrodes. Nous pouvons ainsi distinguer deux régions différentes dans l'espace pointe/plan : une région, localisée près de la pointe sur une distance de l'ordre du rayon de courbure de la pointe (\sim μ m), où se produit la création des charges et, le reste de la distance pointe/plan (\sim mm) où les charges, précédemment créées, sont transportées sous un champ moyen faible (\sim kV/cm).

Notre travail sera donc présenté en fonction de la région étudiée.

La région de création des charges est analysée à l'aide de mesures électriques et de la spectroscopie d'émission de la lumière émise.

- Tout d'abord, le seuil d'apparition de la charge est mesuré en fonction de la densité, du rayon de courbure de la pointe et de la polarité de la tension. Le mécanisme le plus probable de création des charges est ensuite déduit de ces mesures ;
- L'analyse spectrale de la lumière émise par les phénomènes de création des charges est un outil de diagnostic de ces phénomènes. Elle doit permettre d'explicitier le ou les mécanisme(s) mis en jeu : émission ou ionisation de champ, avalanches électroniques, etc. Si une zone ionisée apparaît près de la pointe (plasma ?), l'analyse spectrale doit permettre l'évaluation des paramètres comme la densité des électrons, la densité et la température du plasma, etc. ;
- Au-dessus du seuil de création des charges, des micro-décharges électriques peuvent se produire qui induisent la formation d'ondes de choc/pression et de bulles de vapeur transitoires. Ces phénomènes seront analysés dans le cas de l'hélium liquide.

La région de transport des charges conditionne les caractéristiques courant moyen – tension. L'analyse de ces caractéristiques en fonction de différents paramètres (pression, température, polarité de la tension appliquée) va servir à établir la nature et les propriétés des

porteurs de charge dans l'hélium liquide et supercritique dans une large gamme de pression et de température.

Les principaux objectifs de mon travail sont :

D'étudier l'évolution de la décharge en fonction de la pression (la densité), et d'examiner l'influence de la température ;

Des méthodes de diagnostic spectroscopique devaient être mises au point et/ou améliorées de façon à déterminer les paramètres caractéristiques de la décharge tels que les différentes températures dans la zone d'ionisation.

Dans le chapitre 1, nous rappelons les principaux mécanismes de génération et de transport des charges dans un liquide isolant. Les principaux concepts utiles à l'analyse de nos résultats expérimentaux sont ensuite résumés brièvement. La décharge couronne dont une des conséquences est la production d'un plasma froid, et un aperçu général sur les mécanismes d'ionisation sont également présentés. Le modèle utilisé pour déterminer la mobilité des porteurs dans la zone de transport est rappelé. Enfin, les modèles pour décrire la mobilité des porteurs dans l'hélium liquide sont introduits.

Dans le chapitre 2, nous présentons les principes de la spectroscopie d'émission. Tout d'abord pour les raies atomiques, les effets d'élargissement et de déplacement en fonction de la densité (neutres, électrons, etc.) sont présentés. Ensuite, les notions de base sur les spectres de molécules diatomiques sont rappelées, et la méthode utilisée pour déterminer la température rotationnelle (T_r) et, éventuellement vibrationnelle (T_v), d'un état moléculaire donné est présentée. Enfin, certaines transitions de la molécule d'hélium He_2 sont présentées.

Le chapitre 3 présente notre dispositif expérimental et les différentes techniques que nous avons utilisées au cours de ce travail.

Dans le chapitre 4, nous présentons nos résultats des mesures électriques : les phénomènes induits dans la zone de décharge (érosion, bulle) et l'analyse de la région de transport des porteurs de charge dans l'hélium liquide. Les caractéristiques électriques courant moyen -tension et la mobilité des porteurs sont présentées. Le régime d'impulsions de courant est analysé en fonction de la tension et de la pression. La formation d'une bulle de vapeur corrélée à chaque impulsion de courant est étudiée.

Dans le chapitre 5, nous présentons les spectres de la lumière émise près de la pointe en fonction de la pression et de la température dans l'hélium liquide, supercritique et gazeux.

Dans le chapitre 6, nous abordons l'analyse des spectres et plus particulièrement l'influence de la pression et de la température sur les raies et les bandes observées. Dans le cas de l'hélium, des méthodes d'analyses originales des spectres atomiques et moléculaires sont proposées et discutées en vue de déterminer les paramètres caractéristiques de la zone de création des charges. La température et la densité dans la zone ionisée sont déduites de ces mesures pour différentes pressions et températures d'essais.

En conclusion, nous présentons une synthèse des résultats pertinents obtenus et nous discutons de l'intérêt de poursuivre ces études dans des directions données.

Chapitre 1 Génération et transport de charges dans un liquide isolant

1.1 Introduction

Un liquide isolant non auto-dissocié ne contient aucune charge électrique intrinsèque. Lorsqu'il est soumis à un champ électrique, un courant ne pourra le traverser que si une génération de charges se produit. Plusieurs mécanismes de création de charge ont été mis en évidence dans ces milieux. On peut citer l'injection de charge aux électrodes (par exemple l'émission ou l'ionisation de champ), l'ionisation en volume, etc. Cependant ces mécanismes nécessitent des valeurs de champ électrique très élevées ($\gg 1\text{MV/cm}$) pour pouvoir se produire.

Il a été montré qu'un mécanisme d'avalanche électronique (i.e. une ionisation en volume) pouvait exister dans un liquide. Comme il n'apparaît que pour des champs très élevés ($\sim 5\text{MV/cm}$) qui conduiraient immédiatement au claquage du liquide, sa mise en évidence a été obtenue en utilisant une géométrie d'électrodes pointe-plan avec des pointes de rayon de courbure r_p très faible ($\sim 1\mu\text{m}$). Dans ce cas on obtient une séparation nette entre la zone d'ionisation se produisant très près de la pointe (c'est la zone de champ très intense) et la zone de transport de la charge ainsi produite dans le reste de l'espace interélectrodes. Ce mécanisme de génération de charge en phase liquide se produisant près d'une électrode pointe de faible rayon de courbure s'apparente au phénomène de décharge couronne observé dans les gaz.

Une décharge couronne peut être *positive* ou *négative* selon la polarité de l'électrode pointe. Si elle est positive, on parle de décharge *couronne positive*, sinon, de décharge *couronne négative*.

Dans ce chapitre, nous allons résumer brièvement les principaux concepts utiles à l'analyse de nos résultats expérimentaux. Tout d'abord, nous rappelons comment décrire analytiquement la configuration pointe-plan. Nous indiquons ensuite les différents mécanismes de génération de charge pouvant exister dans un liquide isolant. Puis nous résumons les mécanismes de transport de la charge. Enfin nous rappelons les propriétés physiques et électriques spécifiques de l'hélium liquide.

1.2 Géométrie pointe-plan

Dans cette géométrie, la région de champ élevé où la génération de charge se produit, est confinée près de la pointe, ce qui évite le phénomène de claquage. La plus grande partie de la distance pointe-plan d est par contre soumise à un champ suffisamment faible (car $d \gg r_p$) pour qu'aucune génération de charge n'y soit possible, seul le transport de la charge créée près de la pointe pourra s'y produire. Il est ainsi possible d'avoir accès au mécanisme de génération de charge et à celui de son transport. La distance sur laquelle le champ électrique est supérieur à une certaine valeur critique est d'autant plus faible (et en conséquence la

région de création de charge est d'autant plus localisée) que le rayon de courbure de la pointe est plus petit. Cette distance est de l'ordre du rayon de courbure de la pointe.

Dans nos conditions expérimentales (pointe de faible rayon de courbure produite par électroérosion d'un fil), l'électrode pointe peut être assimilée à un hyperboloïde de révolution. La géométrie pointe-plan peut donc être décrite analytiquement dans un système de coordonnées curvilignes orthogonales (i.e. des ellipsoïdes et hyperboloïdes de révolution, Figure 1-1).

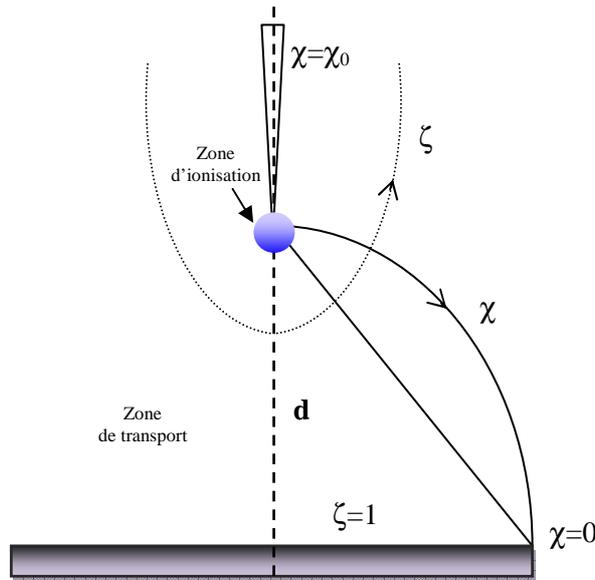


Figure 1-1 Configuration pointe-plan des électrodes.

On utilise ce système de coordonnées pour calculer analytiquement la distribution du champ électrique harmonique (sans charge d'espace) en géométrie pointe-plan. Par exemple, la variation du champ électrique sur l'axe du système pointe-plan dont l'origine $x=0$ se trouve au sommet de la pointe, est donnée par :

$$E(x) = \frac{2dV}{(2dx - x^2 + dr_p - xr_p) \ln\left(\frac{4d}{r_p}\right)}$$

1-1

Où d est la distance interélectrodes, V la tension appliquée sur la pointe et r_p son rayon de courbure. Sur le sommet de la pointe $x=0$, le champ électrique est égal à :

$$E(0) = \frac{2V}{r_p \ln\left(\frac{4d}{r_p}\right)}$$

1-2

Ces expressions ne sont valables que si $r_p/d \ll 1$.

1.3 Caractéristiques courant moyen - tension

En géométrie pointe-plan sous tension continue, nous avons vu que, suivant les conditions, le courant moyen qui traverse le liquide peut être représentatif soit du mécanisme de génération de la charge soit de son transport. Suivant la mobilité des porteurs de charge créés, la limitation par le transport interviendra plus ou moins vite. Une caractéristique typique courant moyen-tension présente en général trois régions, une à tension faible (région I) où le courant représente le mécanisme de génération de la charge, une autre à tension élevée (région III) où intervient la limitation par charge d'espace (i.e. le transport) et enfin une région intermédiaire (région II) où les deux phénomènes cohabitent (Figure 1-2).

Rappelons que l'analyse de la première région est souvent très difficile et ne permet pas toujours de remonter au mécanisme de création de la charge. Par contre, celle de la région III est plus facile, elle conduit à évaluer la vitesse des porteurs de charge en géométrie pointe-plan (ou fil-cylindre), la variation du courant moyen I_m en fonction de la tension appliquée dépend de la vitesse des porteurs de charge, c'est-à-dire que le courant est limité par la charge d'espace.

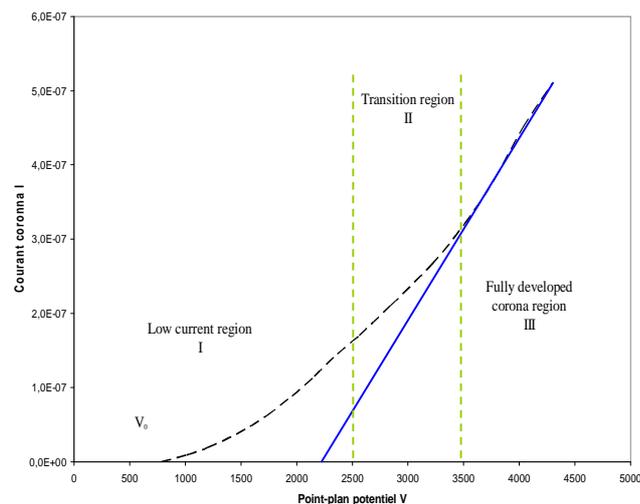


Figure 1-2 Caractéristique typique courant-tension.

1.4 Mécanismes de création de charge en configuration pointe-plan

Dans les liquides isolants en géométrie pointe-plan, les mécanismes de génération de charge suivants ont été mis en évidence. Tout d'abord, les mécanismes d'injection de charges aux électrodes, i.e. l'émission de champ lorsque l'électrode pointe est cathode et l'ionisation de champ lorsque la pointe est anode. Puis le mécanisme de multiplication électronique (avalanche) qui se produit dans la région de champ intense près de la pointe. Nous allons présenter rapidement ces mécanismes de génération de charge.

1.4.1 Emission d'électrons à la cathode

L'émission d'un électron à travers la barrière de potentiel créée à l'interface métal–diélectrique peut se faire soit par passage par-dessus cette barrière (effet thermoélectronique) soit par passage à travers cette barrière (effet tunnel). Cependant, le seul mécanisme d'injection d'électrons mis en évidence dans un liquide isolant est l'effet tunnel. Nous rappelons brièvement les caractéristiques de l'émission de champ.

A l'interface métal–diélectrique, en l'absence de champ appliqué, la hauteur de la barrière ϕ_L que doit franchir l'électron est égale à $\phi_L = \phi_{Vac} + V_0$ où ϕ_{Vac} est le travail de sortie de l'électron lorsque le diélectrique est le vide et V_0 est le niveau le plus bas de la bande de conduction du diélectrique. Par exemple, pour l'hélium liquide à 4,2K, $V_0=1,05\text{eV}$ alors que pour l'argon à 84K, $V_0=-0,2\text{eV}$. Ceci montre que la hauteur de barrière sera plus élevée avec l'hélium liquide et donc l'injection d'électrons plus difficile. Le caractère ondulatoire de l'électron lui permet de traverser cette barrière de potentiel à énergie constante. Cet effet est indépendant de la température, il dépend seulement du champ appliqué. En effet, la largeur de la barrière diminue avec l'augmentation du champ appliqué.

Pour l'interface métal–vide, Fowler et Nordheim (Folwer, et al., 1928) ont établi une expression entre la densité de courant j , le champ appliqué E et le travail de sortie ϕ_{Vac} . Lorsque le vide est remplacé par un liquide, ϕ_{Vac} est remplacé par ϕ_L et en utilisant les grandeurs mesurables que sont le courant I et la tension V on obtient l'expression 1-3 (Van OOSTROM, 1966):

$$I = 1,54 \times 10^{-6} \frac{\beta^2 V^2 A}{\phi_L t^2(y)} \exp \left[-6,83 \times 10^7 \frac{\phi_L^{3/2}}{BV} f(y) \right]$$

1-3

A est la surface émettrice en cm^2 , $\beta(E=\beta V)$ un facteur géométrique en cm^{-1} ; $f(y)$ un terme de correction tenant compte de la force image avec $y = (e^3 E)^{1/2} / \phi_L$. Ainsi, si la courbe $\ln(I/V^2)$ en fonction $1/V$ est une droite sur un certain domaine de tension, on peut établir la validité de l'effet tunnel (dans la mesure où la pente et l'ordonné à l'origine de cette droite conduisent à des valeurs correctes de A , β et ϕ_L).

Les valeurs de courant calculées avec l'équation 1-3 pour des conditions représentatives de nos essais ($\phi_L \sim 4\text{eV}$, $r_p = 1\mu\text{m}$), montrent que le courant devient mesurable ($>10^{-13}\text{A}$) pour un champ sur la pointe de $E > 10^7\text{V/cm}$.

1.4.2 Ionisation de champ (pointe positive)

Ce mécanisme correspond à l'ionisation de champ des molécules ou des atomes avec passage de l'électron du liquide au métal par effet tunnel. Près de la surface de la pointe anode, les électrons, venant des niveaux de valence des atomes, entrent dans le métal, laissant une

charge positive dans le liquide. La probabilité de transfert est déterminée par la hauteur et la largeur de la barrière. La hauteur de la barrière est donnée par :

$$I_{li} = I_{gaz} + P_+ + V_0 + E_{Val}$$

1-4

I_{li} indique l'énergie d'ionisation dans le liquide, P_+ énergie de polarisation du porteur de charge positive, E_{Val} changement du niveau de valence produit par la condensation. La largeur de la barrière est déterminée par le champ appliqué.

Halpern et Gomer (Halpern, et al., 1969) ont proposé un modèle d'ionisation de champ et l'ont vérifié expérimentalement dans quelques liquides (argon, hydrogène, les essais avec l'hélium liquide ont montré qu'une multiplication de la charge était superposée à l'ionisation de champ). Il conduit à la caractéristique $I(V)$ suivante:

$$\ln I = \ln B - \left[1,02 \times 10^8 \frac{\varphi_L^{1/2} (I_{li} - \varphi_L) \varepsilon}{\beta V} \right]$$

1-5

B est un terme indépendant du champ mais fonction du liquide, I_{li} (en eV) est l'énergie d'ionisation des molécules en phase liquide, φ_L (en eV) est le travail de sortie des électrons du métal en présence du liquide.

Comme pour l'émission de champ, l'ionisation de champ exige un champ électrique très intense ($>10^7$ V/cm) pour conduire à une valeur de courant mesurable.

La barrière d'énergie pour l'ionisation de champ ($I_{li} - \varphi_L \sim 20$ eV) dans l'hélium liquide est bien plus grande que celle pour l'émission de champ ($\varphi_L \sim 5,5$ eV). L'ionisation de champ exigera une plus grande tension appliquée sur la pointe par rapport à l'émission de champ.

1.4.3 Mécanisme de multiplication électronique (avalanche)

Le processus de multiplication électronique a été proposé par TOWNSEND pour décrire les phénomènes de claquage dans les gaz. Ce processus est une conséquence de l'accélération d'un ou plusieurs électrons, par le champ, sur une distance égale au libre parcours moyen suffisamment longue pour que le gain d'énergie permette l'ionisation, à la suite de collisions, d'une ou plusieurs molécules. Cependant, si dans les gaz, les phénomènes d'ionisation sont bien établis, il n'en est pas de même dans les liquides. En effet, la densité d'un liquide étant environ 10^3 fois plus élevée que celle d'un gaz, le libre parcours moyen de l'électron dans le liquide serait 10^3 fois plus faible (\sim nm), si on appliquait la théorie cinétique des gaz. Toutefois, il n'est pas justifié d'extrapoler simplement les bases de la théorie cinétique en phase liquide.

Si le champ est suffisamment intense, l'électron acquiert une énergie suffisante pour ioniser les atomes du gaz lorsqu'il entre en collision avec eux. Les collisions créent de nouveaux électrons qui pourront être accélérés et ioniser à leur tour les atomes du gaz. Ensuite,

il apparaît des processus secondaires qui correspondent à la formation d'électrons dits secondaires lesquels vont produire de nouvelles avalanches qui vont s'ajouter à l'ionisation directe, etc. qui peuvent conduire au claquage du gaz. Suivant les conditions expérimentales (densité et nature du fluide, nature des électrodes, etc.), différents processus secondaires peuvent intervenir, on peut citer : action des ions positifs et des métastables à la cathode, la photoémission à la cathode par l'action des photons créés par la décharge, la photoionisation du gaz sous l'action de photons, etc.

Si on considère des électrodes planes et parallèles séparées par une distance d , N étant le nombre d'électrons dans un plan d'abscisse x , N_0 le nombre d'électrons initiaux (dans le plan de la cathode à $x=0$) et α le coefficient d'ionisation (appelé aussi premier coefficient de Townsend), on obtient :

$$dN = N\alpha dx \tag{1-6}$$

Par la suite, le courant est donné par :

$$I = I_0 \exp(\alpha d) \tag{1-7}$$

avec $I_0=eN_0$.

Il faut ensuite introduire le coefficient généralisé d'ionisation secondaire γ associé aux différents phénomènes secondaires. Il est alors facile de montrer que le courant en régime stationnaire suit la relation :

$$I = I_0 \frac{\gamma \exp(\alpha d)}{1 - \gamma \exp(\alpha d) - 1} \tag{1-8}$$

Le dénominateur de cette expression, qui peut être nul, explique la divergence du courant et donc le claquage du fluide. Cette divergence du courant n'a évidemment pas de réalité physique, dans la pratique, le courant est limité par la résistance du circuit électrique. Le critère de claquage est alors exprimé par la relation suivante :

$$1 - \gamma(\exp(\alpha d) - 1) = 0 \tag{1-9}$$

Dans le cas d'une décharge couronne où le champ est fortement divergent (géométrie pointe-plan), la multiplication des électrons s'arrête au bout d'un certain parcours, le champ appliqué sur les électrons n'étant plus assez important pour qu'il y ait ionisation. La condition de décharge est vérifiée uniquement si le champ est assez grand sur une certaine profondeur. Le critère précédent correspond alors au cas d'une décharge autoentrenue. Dans ces

conditions, αd est remplacé par $\int_0^d \alpha(E(x))dx$ et, en considérant que le terme en exponentiel est grand devant 1, le critère 1-9 s'écrit :

$$\int_0^d \alpha(E(x))dx = \ln\left(\frac{1}{\gamma}\right) \cong \text{const}$$

1-10

1.4.4 Conséquence d'une avalanche en géométrie pointe - plan

Une avalanche se produisant près de l'électrode pointe en phase liquide conduit le plus souvent à la formation d'une impulsion de courant. Chaque impulsion de courant correspond à un dépôt localisé d'énergie qui entraîne la formation d'une onde de pression puis d'une bulle de vapeur transitoire. Ces phénomènes ont été observés dans tous les liquides isolants étudiés: cyclohexane, décane, argon liquide, azote liquide, etc.(Aitken, et al., 2002)

Dans le cas des liquides de faible viscosité, la dynamique de la bulle suit le modèle de Rayleigh (Rayleigh, 1917). La durée de vie Δt du premier cycle expansion/implosion de la bulle est donnée par l'équation 1-11 où R_m est le rayon maximum de la bulle, ρ est la densité du liquide, et P la pression hydrostatique appliquée.

$$\Delta t = 2 \times 0,915 R_m \sqrt{\frac{\rho}{P}}$$

1-11

D'autre part la valeur de R_m peut être déduite d'un modèle énergétique simple considérant que toute l'énergie déposée par la décharge sert à vaporiser le liquide. Ce modèle nécessite la connaissance de l'énergie déposée W_i et des propriétés physiques du liquide étudié (Kattan, et al., 1991). On obtient la relation suivante :

$$R_m = R_w = k \left(\frac{W_i}{P} \right)^{1/3}$$

1-12

k est un coefficient qui dépend des conditions initiales (P_∞ , T_∞) ainsi que des propriétés thermodynamiques du liquide selon l'expression :

$$k(P, T) = \left[\frac{3}{4} \pi R \frac{T_b(P)}{W_{eb}} \right]^{1/3}$$

1-13

et,

$$W_{eb} = \int_{T_\infty}^{T_b} C_p(T) dT + L_v(T_b)$$

1-14

$R (=8,314 \text{ JK}^{-1}\text{mol}^{-1})$ est la constante des gaz parfaits, $C_p(T)$ est la capacité calorifique du liquide à pression constante P et L_V est sa chaleur latente de vaporisation à la température d'ébullition T_b à P_∞ .

La Figure 1-3 montre l'évolution du coefficient k en fonction de la pression pour hélium liquide à $T_\infty=4,2\text{K}$.

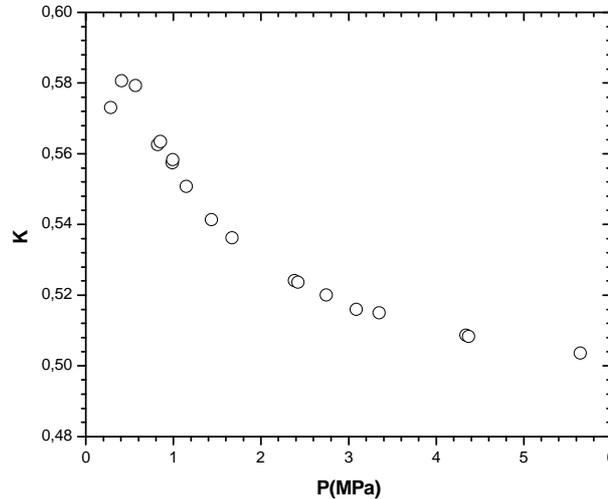


Figure 1-3 Variation du coefficient k en fonction de la pression dans l'hélium liquide à $T=4,2\text{K}$.

1.5 Transport des charges

Dans un liquide isolant en géométrie pointe-plan, nous avons montré que la création de charge se produit toujours dans la région de champ fort près de la pointe. Suivant la vitesse des porteurs de charge, la limitation par ce transport interviendra plus ou moins vite. Le courant devient alors contrôlé ou limité par la charge d'espace. Nous allons décrire rapidement ce phénomène.

Il est bien établi, en géométrie divergente (pointe-plan, fil-cylindre, etc.) et pour une injection unipolaire de charge, que la variation du courant moyen I en fonction de la tension appliquée dépend de la vitesse des porteurs de charge, c'est-à-dire que le courant est contrôlé (le champ sur la pointe E_p est alors non nul) ou limité (dans ce cas $E_p=0$) par la charge d'espace. Dans le cas du courant limité par la charge d'espace on obtient $I \propto V^2$, et pour le cas du courant contrôlé par la charge d'espace (Figure 1-4): $I \propto (V - V_0)^2$

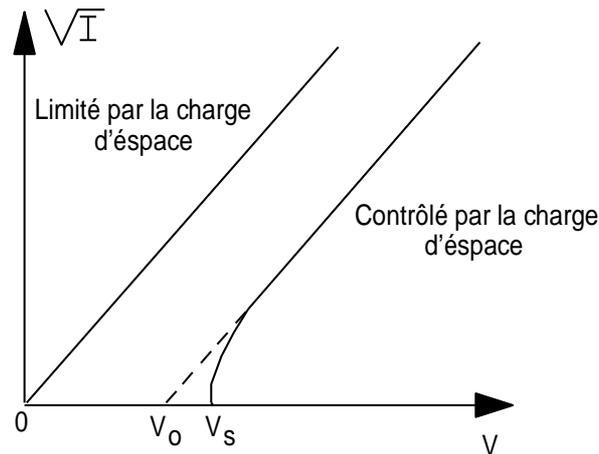


Figure 1-4 Représentation du courant limité et contrôlé par la charge d'espace.

Dans le cas d'une géométrie pointe-plan, plusieurs modèles ont été proposés pour décrire les caractéristiques courant moyen-tension. La mobilité des porteurs de charge est ensuite déduite de l'analyse de ces caractéristiques, c'est une méthode dite « indirecte » pour évaluer la mobilité des porteurs de charge.

Si la mobilité μ des porteurs est constante, la relation courant moyen-tension s'écrit (Coelho, et al., 1971; Sigmond, 1986) :

$$I \cong C_t \mu \varepsilon \frac{V^2}{d}$$

1-15

C_t est une constante qui dépend de la géométrie et du modèle utilisé et $\varepsilon (= \varepsilon_0 \varepsilon_r)$ est la permittivité du liquide. Si le courant est contrôlé par la charge d'espace, la relation devient :

$$I \cong C_t \mu \varepsilon \frac{(V - V_0)^2}{d}$$

1-16

En utilisant les relations 1-15 et 1-16, on peut en déduire la mobilité des porteurs qui est ensuite comparée à celle mesuré par des méthodes directes (temps de vol par exemple). Le meilleur accord est obtenu en utilisant le coefficient $C_t=2$ proposé par Sigmond (Sigmond, 1986). Par la suite nous utiliserons uniquement ce coefficient.

1.6 Mobilité des charges dans l'hélium liquide

L'hélium liquide ne contenant pas de charges intrinsèques, sa conductivité est nulle. Les porteurs de charge doivent donc être générés par différentes méthodes (injection aux électrodes, photoconduction, irradiation, etc.).

Plusieurs études de l'hélium liquide en géométrie pointe-plan ont été publiées. On peut citer les travaux de Halpern et Gomer (Halpern, et al., 1965; Halpern, et al., 1969) qui ont

étudié des processus d'émission et d'ionisation de champ, de McClintock (McClintock, 1971) qui a montré la complexité des phénomènes (formation de bulles) se produisant près de la pointe, de Gavin et al. (Gavin, et al., 1973) etc..

D'autres travaux concernent la détermination de la mobilité des porteurs de charge dans l'hélium liquide par différentes méthodes et dans différentes conditions (pression, température) : Blaisse et al (Blaisse, et al., 1966), Meyer et al ((Meyer, et al., 1962), et Levine, et al. (Levine, et al., 1967). Par exemple, Meyer et al. ont mesuré la dépendance en pression et en température de la mobilité des porteurs de charge positifs et négatifs au dessus du point de transition λ par mesure directe du temps de vol de la dérive des ions dans ^4He et ^3He liquides. Levine et al. ont déterminé la mobilité des électrons à la densité la plus élevée du gaz près du point d'ébullition normal, la mobilité obtenue est inférieure à la valeur prévue par la théorie cinétique par 4 ordres de grandeurs.

La rupture diélectrique (=claquage) d'une isolation à l'hélium liquide a été également très étudiée dans différentes conditions, dans le cadre de l'utilisation de supraconducteurs : (Gerhold, 1972; Gerhold, 1989; Gerhold, 1994; Goldschvartz, et al., 1966; Fujii, et al., 1979), etc..

Dans ce chapitre, nous résumerons les principaux résultats concernant les mesures de la mobilité des charges positives et négatives et des modèles qui ont été développés pour les expliquer. Nous discuterons également l'influence de la température et de la pression sur les mobilités.

Expérimentalement on constate que, dans les gaz liquéfiés comme l'argon et le krypton, la mobilité des électrons injectés dans le liquide est très élevée, par exemple $500\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ pour l'argon liquide et $2000\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ pour le xénon liquide ceci au point d'ébullition normal. Par contre, dans l'hélium liquide la mobilité électronique mesurée est très faible. Ceci provient du fait que, dans le premier cas, les électrons se déplacent dans des états délocalisés (bande de conduction) tandis que dans le cas de l'hélium liquide, le transport des électrons fait intervenir des états localisés. Ce phénomène est lié à l'interaction électron-atome dans l'hélium liquide qui est dominée par les forces répulsives à courte distance et une longueur de diffusion positive.

1.6.1 Mobilité des électrons –modèle de la bulle électronique

Un traitement théorique de l'interaction électron–atome d'hélium proposé par Kuper (Kuper, 1961) et amélioré par Jortner, et al. (Jortner, et al., 1965) a montré que l'interaction répulsive à courte portée atteignait une quantité de l'ordre de 1eV. Cette interaction électron–atome a été expérimentalement mesurée en comparant l'énergie d'extraction d'électrons d'une photocathode dans le vide ou immergée dans le liquide. Cette différence représente l'énergie de l'état fondamental de l'électron dans le liquide (soit l'énergie du niveau le plus bas de la bande de conduction). Une valeur positive $V_0=+1,02\text{eV}$ a été obtenu par Woolf (Woolf, et al.,

1965; Northby, et al., 1967). Cette valeur positive a été interprétée comme correspondant à un état d'énergie liée (bound) dû à la formation d'une pseudo-bulle autour de l'électron.

Par suite, ce modèle de pseudo-bulle, qui correspond à une région sphérique autour d'un ou plusieurs électron(s) exempte d'atomes d'hélium, a été approfondi par plusieurs auteurs (Levin, et al., 1967).

Dans ce modèle un électron en excès induit une variation de la densité du fluide par une interaction répulsive entre l'électron et les atomes. La variation de densité produit ainsi un piégeage de l'électron ce qui diminue sa mobilité.

Le modèle considère l'existence d'une bulle creusée dans le liquide à l'intérieur de laquelle se localise l'électron. Comme le rayon de la pseudo-bulle est supposé grand, l'effet d'électrostriction doit être négligeable. L'énergie totale de la cavité est la somme de l'énergie électronique dans l'état fondamental, de la tension superficielle de la bulle et de son énergie potentielle qui est proportionnelle à la pression appliquée P , soit :

$$E = \frac{\hbar^2}{8mR^2} + 4\pi R^2 \sigma + \frac{4}{3}\pi R^3 P$$

1-17

Où R est le rayon de la bulle, m est la masse de l'électron et, σ est la tension superficielle. Le rayon de la bulle est déterminé en minimisant cette énergie. On peut noter que Grimé et Adams (Grim, et al., 1990; Grim, et al., 1992) ont obtenu un rayon de bulle électronique $R=17\text{\AA}$ ($T=4,2\text{K}$, $P=0,1\text{MPa}$) à partir de leur expériences optiques, ce qui conforte l'hypothèse de départ postulant un rayon de la pseudo-bulle élevé.

1.6.1.1 Prédiction des mobilités dans l'hélium liquide

Nous rappelons ici le modèle de Krapak utilisé pour calculer la mobilité des électrons dans hélium liquide.

Le rayon de la bulle est déterminé en minimisant l'énergie totale du système donnée par l'équation 1-17 soit $\frac{\partial E}{\partial R} = 0$ ce qui conduit à la relation :

$$P - \frac{\pi\hbar^2}{4mR^5} + \frac{2\sigma}{R} = 0$$

1-18

En raison du grand rayon de la bulle électronique, l'influence de l'électrostriction sur les variations de densité et de viscosité autour de la pseudo-bulle est négligeable et la pseudo-bulle peut être considérée comme ayant une surface libre. Et l'équation de Stokes peut être utilisée pour calculer la mobilité des porteurs de charge soit :

$$\mu^- = \frac{e}{4\pi\eta R}$$

1-19

La détermination de la mobilité en fonction de P et T , nécessite la connaissance de terme tension superficielle et viscosité en fonction des mêmes paramètres. Cependant, la variation de $\sigma(P,T)$ n'est disponible que le long de la courbe de vapeur saturante (i.e. pour $P < 0,22\text{MPa}$). Pour des pressions plus élevées on peut utiliser l'expression proposée par Bachinsky (Hirshfelder, et al., 1964), soit :

$$\sigma \cong \sigma_0 \left(\frac{N_l}{N_0} \right)^4$$

1-20

Où N_l est la densité du liquide et, σ_0 et N_0 sont la tension superficielle et la densité du liquide au point triple. Dans le cas de He^4 , on prend pour $\sigma_0 (=0.3544 \times 10^{-3} \text{ N/m})$ la valeur à $T=0\text{K}$. L'estimation du rayon de la bulle électronique pour He^4 au point d'ébullition donne $R \approx 22\text{\AA}$. Une telle bulle est créée par le déplacement d'environ 10^3 atomes d'hélium.

La dépendance en pression du rayon de la pseudo-bulle électronique a été expérimentalement mesurée par Springett (Springett, et al., 1966). Différentes théories ont été utilisées pour expliquer cette variation (Figure 1-5) (Springett, et al., 1967).

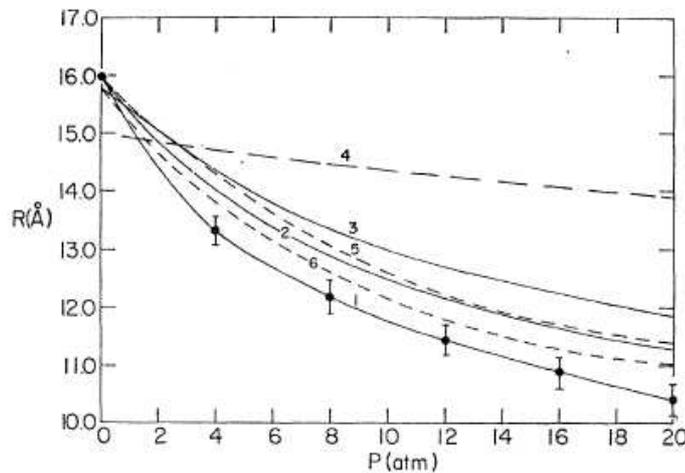


Figure 1-5 Dépendance de rayon de la bulle de la pression : 1 résultat expérimental (Springett, et al., 1966); 2 le modèle Winger-Seits avec $\sigma=0,57\text{dyn/cm}$ à $P=0$; 3 la particule dans la boîte; 4 le formule Clark (Clark, 1965); 5 Méthode de variation avec $\sigma=0,53\text{dyn/cm}$ à $P=0$ et $\sigma \propto \text{densité } \rho_0^2$ à pression plus élevée; 6 Méthode de variation avec $\sigma=0,53\text{dyn/cm}$ à $P=0$ et $\sigma \propto 0,7C\rho_0$ (C : vitesse de son) à pression plus élevée.

1.6.2 Théorie de la boule de neige « snow ball » pour les porteurs positifs He⁺

Dans l'hélium à 4,2K, la mobilité des charges positives μ^+ est plus grande que la mobilité μ^- des négatives. Cette situation est rare dans les liquides diélectriques et soulève des questions intéressantes concernant la structure des ions He⁺ dans LHe.

Un ion dans l'hélium liquide, du fait de son rayon très faible, produit un champ électrique très élevé dans son voisinage. Les propriétés de l'ion seront principalement déterminées par les forces d'interaction ion-atomes d'hélium. Du fait de l'électrostriction, la pression et donc la densité du liquide dans le voisinage de l'ion seront renforcées. Et, suivant les conditions initiales (P et T), la pression d'électrostriction pourra dépasser la pression de solidification. Dans le cas de LHe, les forces de polarisation induisent une pression d'électrostriction qui peut atteindre 2,5MPa, ce qui est très important et peut être suffisant pour solidifier les atomes d'hélium entourant l'ion. L'ion se déplace alors sous l'effet du champ électrique comme une particule (cluster) de rayon et de densité élevé (Atkins, 1959).

Comme pour la bulle formée autour d'un électron, la taille du cluster R_{clus} est déterminée par la condition de minimisation de l'énergie libre totale. Cette énergie se compose de 3 termes : travail de volume, tension superficielle et électrostriction, soit :

$$F = (P_m - P_s) \frac{N_s - N_l}{N_l} \frac{4\pi}{3} R^3 + 4\pi\sigma_{sl} R^2 - \frac{\epsilon_l - \epsilon_s}{\epsilon_l \epsilon_s} \frac{e^2}{2} \frac{1}{R}$$

1-21

P_m et P_s sont les pressions de solidification et de vapeur saturante, N_s et N_l sont la densité de solide et du liquide, ϵ_s et ϵ_l les permittivités du solide et du liquide et, σ_{sl} la tension interfaciale entre les deux phases. La condition de stabilité du cluster est donnée par :

$$\partial F / \partial R = 0.$$

1-22

L'équation 1-21 est utilisée pour calculer le rayon du cluster. Près du point triple, le travail volumique est négligeable, et le rayon du cluster est donné par :

$$R^3(T) \cong \frac{\alpha e^2 (N_s - N_l)}{4\epsilon_l \epsilon_s \sigma_{sl}}$$

1-23

α est la polarisabilité des atomes ou molécules, σ_{sl} peut être évalué à partir des données expérimentales de σ_{gl} par la formule dérivée par Bachinsky (Hirshfelder, et al., 1964):

$$\sigma_{sl} \cong \sigma_{gl} \left(\frac{N_s - N_l}{N_l} \right)^4$$

1-24

Dans les plupart cas, la mobilité positive dans le liquide peut être ensuite calculée en utilisant la loi de Stokes :

$$\mu^+ = \frac{e}{6\pi\eta R}$$

1-25

1.6.3 Influence de la densité et de la température

Le piégeage de l'électron a non seulement lieu dans le liquide mais également dans le gaz à haute densité. L'existence de bulles d'électron dans l'hélium gazeux dense a été découverte par Levine et al. (Levine, et al., 1967) en mesurant la mobilité des électrons dans l'hélium, en fonction de la température et de la densité, par la méthode du temps de vol. Ils ont constaté qu'à faible densité la mobilité correspond à la mobilité des électrons libres, mais à densité élevée, la mobilité de l'électron devient proche de celle mesurée dans l'hélium liquide. Le changement de mobilité intervient dans un domaine très réduit de densité. Ainsi à $T=4,2\text{K}$, l'augmentation de la densité par un facteur 2 conduit à une diminution de la mobilité par un facteur de l'ordre de 10^4 (Figure 1-6).

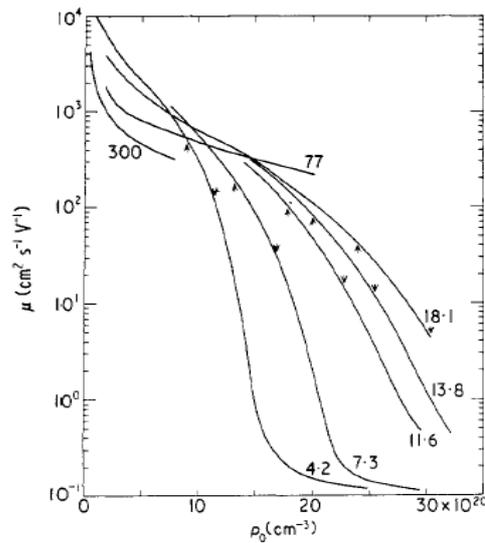


Figure 1-6 Mobilité des électrons en fonction de la densité de l'hélium pour différentes températures.

Pour expliquer cet effet, Levine et al. (Levine, et al., 1967) ont supposé que, à densité élevée du gaz, les électrons sont localisés aussi dans des pseudo-bulles, semblables à celles postulées dans l'hélium liquide. La mobilité de la pseudo-bulle est faible ($\mu_0=0,1\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$), et elle dépend très faiblement de la densité et de la température du gaz. Avec la réduction de densité, la formation de la pseudo-bulle devient énergétiquement moins favorable, et les électrons sont alors libres avec une mobilité élevée ($\mu_f=10^3-10^4\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$) et une dépendance très importante en fonction de la densité et de la température.

La transition des électrons de l'état localisé à l'état libre se produit dans une région très étroite de densité. La position et la largeur de cette transition dépendent du caractère de

l'interaction électron-atome et atome-atome. Les résultats montrés dans la Figure 1-7 indiquent que la localisation de l'électron a lieu également aux températures supercritiques. Les points de transition sont donnés dans la Figure 1-7 qui présente la dépendance en température de la densité de la transition, on remarque que $N \propto T^{2/3}$ dans toute la région examinée.

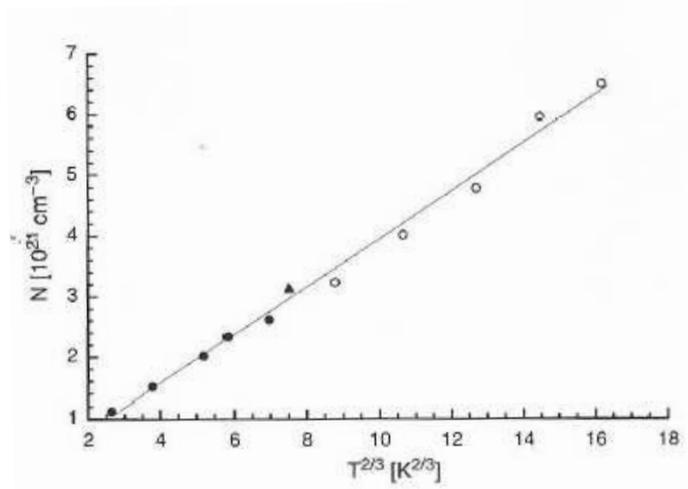


Figure 1-7 Densité de ^4He dans la transition d'électron de l'état localisé à l'état libre en fonction de la température. Les points expérimentaux sont pris de (Harrison, et al., 1973)(●), (Jahnke, et al., 1975) (▲), et (Borghesani, et al., 2002)(○).

D'autre part, dans l'hélium, l'influence de la température a été également étudiée dans tout le domaine correspondant à l'état liquide.

Les mobilités des électrons et des ions He^+ pour $T > 2,17\text{K}$ (i.e. LHe normal) à la pression de vapeur saturante sont tracées sur la Figure 1-8.

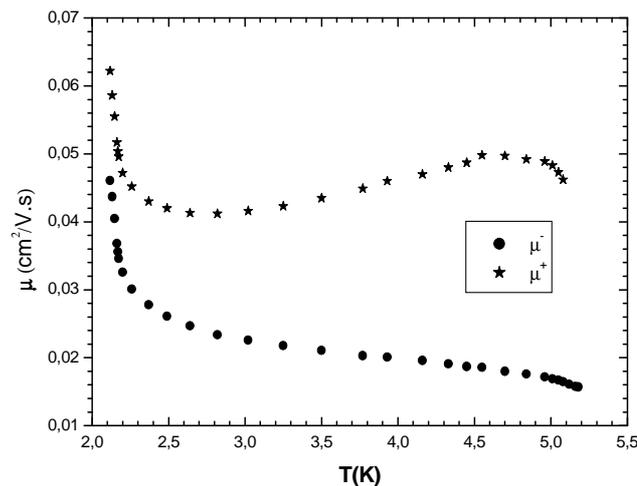


Figure 1-8 Mobilité à la pression de vapeur saturante dans LHe normal en fonction de T . (Schwarz, 1972).

On remarque une différence très sensible de comportement entre les porteurs négatifs et positifs en fonction de T qui correspond à la structure différente des porteurs de charge.

Chapitre 2 Spectres atomiques et moléculaires

Nous allons présenter quelques rappels sur les mécanismes d'émission du rayonnement d'une décharge permettant de comprendre les bases des techniques employées pour l'analyse des raies atomiques et des bandes moléculaires. Rappelons que l'analyse du spectre de la lumière émise par une décharge est utilisée comme outil de diagnostic du plasma afin d'en déterminer les grandeurs physiques. Ainsi, dans de nombreux cas, elle permet de déterminer la densité des électrons, la température dans la zone de décharge, la densité du milieu ionisé, etc.

Ensuite, des modèles spécifiques aux phénomènes particuliers rencontrés dans l'hélium liquide seront présentés.

2.1 Raies atomiques

Malgré l'origine quantique du rayonnement électromagnétique qui prend naissance au sein des plasmas on peut dans une certaine mesure introduire les conceptions de base de la théorie du profil des raies spectrales par le biais d'outils classiques comme la mécanique statistique. C'est le point de vue que nous adopterons ici afin de dégager les bases de cette physique. En effet le profil des raies spectrales résulte d'un double problème : d'une part, un aspect collisionnel qui modifie la phase du train d'onde émis par l'atome excité et, d'autre part, un aspect statique lié à la nature du gaz ou du plasma dans lequel est plongé l'atome rayonnant. Mais ce paragraphe n'a pas pour but de rappeler toute la théorie de la spectroscopie atomique puisqu'il existe plusieurs ouvrages disponibles sur ce sujet (Sobelman, et al., 1995; Traving, 1968; Griem, 1974). Par contre il est nécessaire de rappeler les différentes approches directement applicables à l'analyse spectrale de la lumière émise par les décharges électriques dans l'hélium liquide qui permettront de mieux exploiter nos résultats.

2.1.1 Introduction

Le rayonnement émis au sein d'un plasma a des origines physiques diverses. L'étude d'un enregistrement spectroscopique nous relève la présence de raies et d'un fond continu. Un électron excité sur un niveau E_u de l'atome peut revenir spontanément vers un niveau d'énergie inférieure E_l en émettant un photon, dont la fréquence est liée à la différence d'énergie par la relation : $E_u - E_l = h\nu$. La transition inverse est aussi possible, le photon est alors absorbé.

Le fond continu provient des transitions libres-libres (rayonnement de freinage) et libres-liées (recombinaison radiative).

2.1.2 Propriétés radiatives locales d'un milieu

Dans le cas d'une raie qui correspond à une transition d'un niveau supérieur (u) vers un niveau inférieur (l), le coefficient d'émission ϵ_λ est proportionnel à la probabilité de transition

(coefficient d'Einstein) $A_{ul}(s^{-1})$ pour l'émission spontanée, à la densité locale des atomes au niveau supérieur u , N_u et au profil local d'émission P_λ avec :

$$\int P_\lambda(\lambda) d\lambda = 1$$

2-1

$$\varepsilon_\lambda = \frac{hc}{4\pi\lambda} A_{ul} P_\lambda(\lambda) N_u$$

2-2

avec $\frac{hc}{\lambda} = E_u - E_l$, h est la constante de Planck, c la vitesse de la lumière, λ la longueur d'onde de transition (u, l).

Certaines raies ne sont pas absorbées, c'est-à-dire qu'elles traversent le milieu sans être absorbées. D'autres raies sont très fortement absorbées (raies résonantes ou raies dont le niveau inférieur est couplé avec l'état fondamental). Cela entraîne non seulement une réduction d'intensité mais aussi une modification de la forme de la raie car l'auto-absorption est au maximum d'intensité de la raie.

2.2 Elargissement et déplacement des raies

Une raie, quelle soit observée en absorption ou en émission n'est pas infiniment mince, elle présente un profil qui donne la répartition de l'intensité autour de la fréquence (ou longueur d'onde) centrale. La raie émise dans le plasma est supposée symétrique par rapport à son maximum d'intensité. Elle présente une certaine largeur et déplacement sous l'influence de perturbations créées par les électrons libres, les ions, et les atomes neutres environnants présents dans le plasma.

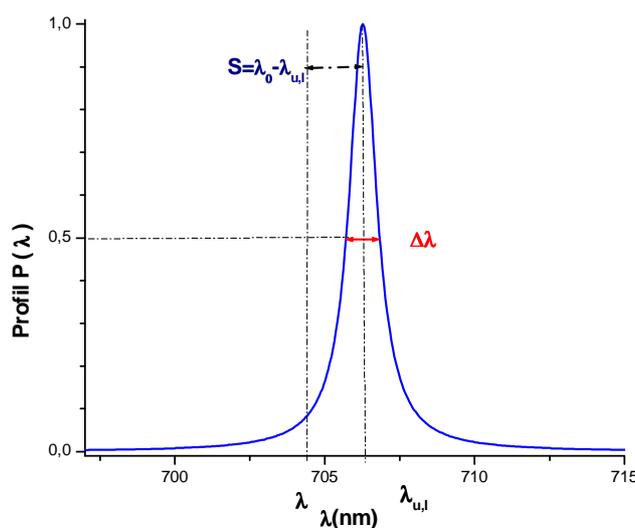


Figure 2-1 Profil de raie, $\Delta\lambda$ est la largeur à mi-hauteur de la raie, le maximum de la raie est déplacé d'une grandeur S .

Le profil de la raie est une fonction $P(\lambda)$ ou $P(\omega)$ normalisée à 1. Nous caractériserons donc la raie spectrale par sa longueur d'onde centrale $\lambda_{u,l} = \frac{2\pi c}{\omega_{u,l}}$, sa largeur à mi hauteur

$$\Delta\lambda = \left(\frac{\lambda_{u,l}^2}{2\pi c}\right)\Delta\omega \text{ et son déplacement } S_\lambda = \lambda_0 - \lambda_{u,l} = -\left(\frac{\lambda_{u,l}^2}{2\pi c}\right)S_\omega \text{ avec } \lambda_0 \text{ la longueur d'onde au}$$

maximum du profil de raie non perturbé. Le profil de la raie en émission en fonction de la longueur d'onde, ainsi que les grandeurs caractéristiques, sont présentés dans la Figure 2-1.

Le profil d'une raie est le résultat de la superposition de plusieurs phénomènes d'élargissement. Les principaux sont : l'élargissement naturel, l'effet Doppler statique, l'élargissement par collision soit avec des atomes neutres (force de van der Waals, résonance) soit avec des particules chargées, ions et électrons (effet Stark).

Il faudra également prendre en compte l'élargissement produit par l'instrumentation.

2.2.1 Elargissement naturel

Le niveau d'excitation de l'émetteur a une durée de vie Δt finie. D'après la relation d'incertitude d'Heisenberg, cette durée de vie finie conduit à un élargissement. ΔE du niveau d'énergie de l'émetteur qui est donné par :

$$\Delta E \Delta t = \hbar$$

2-3

ΔE et Δt représentent respectivement l'énergie et la durée de vie du niveau considéré. Ceci conduit à un élargissement de ces niveaux du fait du principe d'incertitude. La largeur d'une raie $\Delta\lambda_n$ dépend de la durée de vie des états considérés. Cette largeur naturelle est toujours négligeable devant la largeur due à l'effet Doppler et à l'élargissement de pression.

2.2.2 Elargissement Doppler

L'effet Doppler est dû au mouvement thermique des atomes ou des ions. Pour une distribution de vitesse Maxwellienne, la forme des raies est Gaussienne : la largeur totale à mi-hauteur (FWHM) est donnée par:

$$\Delta\lambda_D = 2\lambda \sqrt{\frac{2kT \ln 2}{mc^2}}$$

2-4

T est la température des émetteurs en K, et m la masse atomique. Dans le cas de l'hélium, $\Delta\lambda_D$ reste très petite par rapport aux autres effets.

2.2.3 Elargissement de pression

Sur l'élargissement de pression des raies spectrales, c'est Michelson (1895) qui a apporté la première contribution importante à ce sujet, il a identifié le mécanisme de l'élargissement par effet de pression comme une interruption de la vibration de rayonnement

atomique par des collisions avec les atomes voisins. L'idée fondamentale a été proposée par Lorentz (1905) qui s'est concentré sur l'absorption plutôt que l'émission et montré que l'effet des collisions aléatoires et instantanées est équivalent à une force d'atténuation additionnelle, proportionnelle à la vitesse, exercée sur les oscillateurs atomiques, le profil de raie est alors Lorentzien.

La conception qu'une interaction entre l'émetteur et le perturbateur, définie en fonction de leur séparation, pourrait être liée directement au profil des raies spectrales de l'émetteur a été introduite en 1932 par Weisskopf (1932,1933). Une grande partie du travail des théoriciens a été consacré à la détermination de ce potentiel d'interaction, afin de prédire l'élargissement et le profil des raies spectrales. Deux approches ont été proposées pour décrire l'élargissement de pression : l'approximation d'impact qui néglige entièrement le rayonnement émis pendant la collision, et l'approximation quasi-statique qui prend en compte tout le rayonnement émis. Dans les sections suivantes, nous les présenterons.

2.2.3.1 Approximations d'impact et quasi-statique

L'élargissement par l'effet de pression est dû à l'interaction entre un atome émetteur et les particules environnantes. Dans ce type d'élargissement, il est souvent admis de représenter l'interaction de longue portée entre l'émetteur et le perturbateur par une expression multipolaire en $1/r$ qui aura la forme : (Peach, 1984).

$$V_p(r) = \frac{hC_p^v}{r^p} = \frac{\hbar C_p^\omega}{r^p}$$

2-5

Le profil de dispersion est lié au potentiel des forces interatomiques V_p , en fonction de la distance r entre le perturbateur et l'émetteur. C_p^v ou C_p^ω (en m^p/s) sont des constantes ($C_p^v = \frac{1}{2\pi} C_p^\omega$) qui peuvent être positives ou négatives, elles dépendent du niveau d'excitation de l'émetteur et de la nature des perturbateurs. p est déterminé par le type d'interaction. Par la suite, nous n'utiliserons que C_p^ω que nous écrirons plus simplement C_p .

2.2.3.1.1 Approximation d'impact

L'approximation d'impact à l'origine due à Baranger, a été largement et avec succès utilisé pour traiter l'élargissement et le déplacement des raies.

L'approximation d'impact considère que la durée de l'interaction est négligeable (l'atome émetteur est la plupart du temps non perturbé sauf au moment de l'impact) et les perturbations bien séparées dans le temps. Son domaine de validité est limité aux densités faibles et au centre de la raie. Le profil de la raie est bien décrit par un profil Lorentzien.

En considérant que le mouvement du perturbateur s'effectue sur une trajectoire rectiligne et, que la vitesse relative w entre le perturbateur et l'atome émetteur suit une

distribution Maxwellienne, le déphasage de l'onde produit par une collision est donné par (Allard, et al., 1982) :

$$\eta(\rho) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{V(\sqrt{\rho^2 + w^2 t^2})}{\hbar} dt \quad 2-6$$

$$\Delta\omega = Nw \int_0^{\infty} 2\pi\rho (1 - \cos \rho) d\rho \quad 2-7$$

$$\sigma_{\omega} = Nw \int_0^{\infty} 2\pi\rho \sin \rho d\rho \quad 2-8$$

Où $\Delta\omega$ est la demi-largeur à mi-hauteur (HWHM, half width at half maximum) et σ_{ω} le déplacement.

Dans l'équation 2-6, ρ est le paramètre d'impact (impact entre l'émetteur et la trajectoire du perturbateur pendant une collision), N est la densité, w la vitesse relative entre l'émetteur et le perturbateur, $w = \sqrt{\frac{8kT}{\pi\mu}}$ est la vitesse moyenne des particules neutres et,

$\mu = \frac{m_{em}m_{pe}}{m_{em} + m_{pe}}$ est la masse réduite du système émetteur/perturbateur.

Si le potentiel d'interaction est de la forme 2-5, $\eta(\rho)$ est donné par (Traving, 1968):

$$\eta(\rho) = \frac{\alpha_p C_p}{w\rho^{p-1}} \quad 2-9$$

La relation entre le paramètre d'impact et la vitesse du perturbateur nous donne le temps de collision $\tau = \rho/w$, l'expression de α_p est alors donnée par :

$$\alpha_p = \sqrt{\pi} \frac{\Gamma(\frac{1}{2}(p-1))}{\Gamma(\frac{1}{2}p)} \quad 2-10$$

Le tableau 2-1 donne le paramètre α_p dans le cas de l'approximation d'impact pour les différents potentiels.

Tableau 2-1 Constant α_p

Potentiel d'interaction	p	α
Résonant	3	2
Stark	4	$0,5\pi$
Van der Waals	6	$0,375\pi$

Pour $p=3, 4$, et 6 les valeurs de $\Delta\omega$ et σ_0 peuvent être calculées analytiquement (Traving, 1968). Le profil d'intensité est la transformée de Fourier complexe de la fonction d'autocorrélation de $\eta(\rho)$. A partir de l'équation on normalise le profil d'intensité, l'approximation d'impact donne un profil Lorentzien pour l'intensité de la raie :

$$P(\lambda) = \frac{2}{\pi} \frac{\Delta\lambda}{(\Delta\lambda^2 + 4(\lambda - \lambda_{ul} \pm S_\lambda)^2)}$$

2-11

Le déplacement S_λ et l'élargissement $\Delta\lambda$

2.2.3.1.2 Approximation quasi-statique

Stark, Deber, et Holtmark ont décrit l'effet de pression par une approche entièrement différente. Dans ce cas, les perturbateurs sont considérés comme pratiquement au repos, la perturbation peut être considérée comme constante sur l'intervalle de temps considéré. Elle est valide seulement aux densités élevées ou sur les ailes de la raie. Ici, on considère 2 cas :

Si la densité n'est pas trop élevée, c'est-à-dire si l'approximation d'une collision binaire est toujours applicable, la perturbation est surtout influencée par la particule la plus proche (approximation du plus proche voisin ou « nearest neighbor approximation » désigné par QSNNA), le traitement est amplement simplifié et conduit à une expression simple pour la distribution d'intensité des ailes de la raie (Traving, 1968):

$$P_{QSNNA}(\lambda) = \frac{3}{p} \left(\frac{\Delta\lambda_0}{\lambda - \lambda_{u,l}} \right)^{(p+3)/p} \exp \left(- \left(\frac{\Delta\lambda_0}{\lambda - \lambda_{u,l}} \right)^{3/p} \right) \frac{1}{\Delta\lambda_0}$$

2-12

Pour un potentiel d'interaction comme celui de l'équation 2-5, nous avons :

$$\Delta\lambda_0 = \left(\frac{\lambda_{u,l}^2}{2\pi c} \right) \left(\frac{4\pi N}{3} \right)^{p/3} C_p$$

2-13

A densité très élevée, l'hypothèse des collisions binaires n'est plus vérifiée, nous devons alors utiliser des théories quasi-statiques plus complexes à utiliser et qui aboutissent à des prévisions différentes selon le potentiel d'interaction envisagé.

2.2.3.1.3 Limite de validité de ces approximations

Les domaines de validité de ces différentes approximations sont définis en termes de densité et de fréquence.

Un critère de validité de la théorie d'impact a été établi par Hindmarsh (Traving, 1968) basé sur le rayon de Weisskopf ρ_w qui est le paramètre d'impact type de la portée du potentiel d'interaction.

$$\rho_w = \left(\frac{\alpha_p C_p}{w} \right)^{1/(p-1)} \ll \left(\frac{1}{N} \right)^{1/3}$$

2-14

Il faut noter que ρ_w dépend, à la fois des forces d'interaction entre les atomes (α_p), de la nature de l'atome rayonnant (C_p), du perturbateur et la vitesse relative (w) entre le perturbateur et l'émetteur. Weisskopf classe les collisions élastiques en 2 catégories. Celles qui ont lieu à l'intérieur d'une sphère de rayon ρ_w amortissent l'onde, celles qui ont lieu à une distance $r > \rho_w$ sont sans action sur l'élargissement de la raie.

Donc pour des pressions faibles ou des vitesses élevées w , tant que l'inégalité 2-15 est remplie, le mécanisme l'élargissement par impact joue un rôle décisif.

$$h = \rho_w^3 N \ll 1$$

2-15

De plus, d'après Holstein et Sobel'man (Sobl'man, et al., 1995), pour l'approximation d'impact, la durée de l'interaction τ entre l'atome rayonnant et le perturbateur doit être courte, cette durée τ sera définie comme le temps que met le perturbateur pour traverser le rayon de Weisskopf :

$$\tau = \frac{\rho_w}{w}$$

2-16

D'autre part, en considérant l'élargissement de la raie $\Delta\omega$ (s^{-1}) on est conduit à un critère de validité en terme de fréquence, soit :

$$\tau \ll \frac{1}{\Delta\omega}$$

2-17

Ou, encore :

$$\Delta\omega \ll \left(\frac{w^p}{C_p} \right)^{1/(p-1)}$$

2-18

On peut alors introduire une longueur d'onde limite λ_{Lim} qui marque la séparation entre les deux descriptions :

$$\lambda_{ul} - \lambda_{Lim} = \Delta\lambda_{Lim} = \frac{\lambda_{ul}^2}{2\pi c} \left(\frac{w^p}{\alpha_p C_p} \right)^{1/(p-1)} = \frac{\lambda_{ul}^2}{2\pi c} \frac{w}{\rho_w}$$

2-19

Par conséquent, la théorie d'impact décrit correctement le centre de la raie, tandis que la théorie quasi-statique s'applique sur les ailes.

Par contre, aux pressions élevées ou à faibles vitesses, h approche 1 et l'approximation d'impact est inapplicable même pour la partie centrale de la raie. Quand $N \gg \rho_w^{-3}$, l'approximation quasi-statique est applicable pratiquement sur tout le profil de raie.

2.2.3.2 Déplacement et élargissement par effet de pression

Dans la section suivante, nous discuterons les profils de raie en fonction des différents potentiels.

2.2.3.2.1 Effet Stark ($p=2$ et $p=4$)

Les théories de l'effet Stark ont été élaborées par des chercheurs de plusieurs générations dont Griem (Griem, 1974). L'effet Stark résulte d'une perturbation de l'atome émetteur par le champ électrique des particules chargé du plasma (ions et électrons). La perturbation est en $1/r^2$ pour l'atome d'hydrogène ou les atomes hydrogénoïdes (effet Stark linéaire) tandis que pour les autres atomes, un potentiel d'interaction en $1/r^4$ (effet Stark quadratique) s'applique. Ici r est la distance entre le perturbateur et l'émetteur.

Effet Stark linéaire : atomes hydrogénoïdes

Griem a calculé le profil normalisé et la largeur des raies de l'hydrogène en fonction de la température T_e et de la densité électronique N_e définie par

$$\alpha(N_e, T_e) = \frac{|\lambda - \lambda_0|}{F_H}$$

$$I(\Delta\lambda) = \frac{S(\alpha)}{F_H}$$

2-20

$$F_H = \frac{e}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{4\pi N_e}{3} \right)^{2/3} \text{ est le champ de Holtsmark}$$

La relation entre la densité électronique (en m^{-3}) et l'élargissement $\Delta\lambda$ (en Å) s'écrit :

$$N_e = 8.02 * 10^{18} \Delta\lambda^{3/2} \alpha_{1/2} (N_e, T_e)^{-3/2}$$

2-21

Effet Stark quadratique

En appliquant la théorie quasi-statique de Holtsmark aux ions et la théorie de l'impact aux électrons, le profil de la raie est quasi Lorentzien avec une largeur à mi-hauteur et un déplacement calculés par Griem (Griem, 1974) pour de nombreuses raies atomiques de différents éléments.

$$\begin{aligned} \Delta\lambda_{Stark} &= 2[1 + 1.75\alpha(1 - c_0r)]\omega \\ S_{Stark}(\lambda) &= d \pm 2\alpha(1 - 0.75r)\omega \end{aligned}$$

2-22

ω est la demi-largeur à mi-hauteur due aux électrons : $\omega = \frac{N_e}{N_e^0} \omega_n(T)$ et α caractérise

l'élargissement quasi-statique dû aux ions : $\alpha = \left(\frac{N_e}{N_e^0} \right)^{1/4} \alpha(T)$.

$N_e^0 = 10^{22} \text{m}^{-3}$ et N_e en m^{-3} , $C_0=0,75$ pour un émetteur neutre, $C_0=1,2$ pour un émetteur ionique, $\alpha(T)$ et $\omega(T)$ sont donnés par Griem (Griem, 1974). Le paramètre r mesure l'importance de l'écrantage de Debye et de la corrélation ion-ion, il est donné par la relation suivante :

$r = \frac{\rho_m}{\rho_D}$ où $\rho_D = \left(\frac{\epsilon_0 kT}{e^2 N_e} \right)^{1/2}$ est le rayon de Debye, rayon à partir duquel les électrons, de densité

N_e , au voisinage de l'atome émetteur font un écran aux perturbations induites par les perturbateurs éloignés. $\rho_m = \left(\frac{4}{3} \pi N_i \right)^{1/3}$ est la distance moyenne entre deux ions, avec N_i la

densité des ions. Le signe \pm dans l'expression donnant le déplacement est celui de d . Ces équations ne sont valables que pour les conditions : $0,05 < \alpha < 0,5$ et $r \leq 0,8$.

2.2.3.2.2 Effet de résonance ($p=3$)

Il se produit seulement entre des espèces identiques et il est confiné aux transitions possédant un niveau supérieur ou inférieur couplé au niveau fondamental par une force d'oscillateur importante (raie de résonance).

La constante C_3 (Sobl'man, et al., 1995) est donnée par :

$$C_3 = \frac{e^2 f_{jj'} \lambda_{jj'}}{4\pi^2 \epsilon_0 m_e c^2}$$

L'élargissement est estimé comme :

$$\Delta\lambda_R \cong K_{jj'} \frac{1}{\pi} \left(\frac{2j+1}{2j'+1} \right)^{1/2} \frac{e^2 \lambda_{ul}^2 f_{jj'} N \lambda_{jj'}}{4\pi\epsilon_0 m_e c^2}$$

Où λ_{ul} est la longueur d'onde de la raie observée, j est le moment cinétique du niveau fondamental, j' du niveau résonant, $f_{jj'}$ et $\lambda_{jj'}$ désigne la force d'oscillateur et la longueur d'onde de la raie de résonance et N est la densité d'atome dans l'état fondamental.

$K_{jj'}$ est une constante numérique qui dépend des moments cinétiques j et j' . Sa valeur varie quelque peu avec les diverses approches théoriques. Les valeurs correspondantes sont entre 0,9 et 1,8. La valeur 0,96 est la plus souvent utilisée.

Dans l'approximation quasi-statique, pour certains auteurs, l'interaction résonante conduit toujours à un profil de raie Lorentzien mais avec une largeur et un déplacement de raie différent, pour d'autres il s'en écarte et la largeur varie de façon non linéaire avec N , généralement comme \sqrt{N} .

2.2.3.2.3 Effet van der Waals ($p=6$)

L'élargissement de van der Waals est dû aux forces de van der Waals entre les particules neutres et les atomes émetteurs. Le potentiel de van der Waals produit par des perturbation du second ordre de l'interaction attractive dipôle - dipôle et, s'écrit : $V_6 = -\frac{\hbar C_6}{r^6}$.

Dans l'approximation d'impact, $\Delta\lambda_{VDW}$ est proportionnel à la densité N des neutres et le déplacement, généralement vers le rouge, est proportionnel à $\Delta\lambda_{VDW}$.

$$\Delta\lambda_{VDW} = A \left(\frac{\lambda_{ul}^2}{2\pi c} \right) C_6^{2/5} \omega^{3/5} N$$

$$S_{\lambda_{VDW}} = \frac{\Delta\lambda_{VDW}}{2,75}$$

Avec A une constante égale à 8,08 ou 8,16 suivant les auteurs. L'estimation de C_6 peut être obtenue à l'aide de la relation suivante (Sobl'man, et al., 1995) :

$$C_6 = \frac{1}{2h\epsilon_0} e^2 \alpha \left| \langle r_u^2 \rangle - \langle r_l^2 \rangle \right| \text{ en } m^6 s^{-1}$$

Où α est la polarisabilité de l'atome perturbateur en m^3 . Le calcul des rayons carrés moyens isotropes peut être fait à l'aide du modèle hydrogénoïde d'Unsold :

$$\langle r^2 \rangle = a_0^2 \frac{n^{*2}}{2Z_a^2} (5n^{*2} + 1 - 3L(L+1))$$

2-27

Où a_0 est le rayon de Bohr ($0,53\text{\AA}$), Z_a la charge de l'atome hydrogénoïde équivalent qui vaut 1 pour un atome neutre. L est le nombre quantique orbital du niveau considéré, n^* est le nombre quantique effectif $n^* = Z_a \left(\frac{E_H}{E_i - E_e} \right)^{1/2}$. E_e est l'énergie d'excitation de l'atome émetteur, E_i l'énergie d'ionisation, E_H l'énergie d'ionisation de l'hydrogène ($13,59\text{eV}$), ($Z_a - 1$) : la charge de l'atome rayonnant ($Z_a=1$ pour un atome neutre).

Dans l'approximation quasi-statique, le cas le plus simple des interactions additives scalaires est l'interaction van der Waals, étudiée par Margenau (Margenau, 1935). En prenant en compte plusieurs perturbateurs, Margenau a calculé le profil de la raie qui conduit à un profil de Holtsmark dont l'expression est donnée par la relation 2-28 (Traving, 1968) (Margenau, 1935):

$$P_{OS} = \frac{1}{2} \left(\frac{\Delta\lambda_0}{(\lambda - \lambda_{ul})^3} \right)^{1/2} \exp\left(-\frac{\pi}{4} \frac{\Delta\lambda_0}{(\lambda - \lambda_{ul})} \right) \quad \text{pour } \lambda > \lambda_0$$

$$P_{OS} = 0 \quad \text{pour } \lambda \leq \lambda_0$$

2-28

Avec l'élargissement caractéristique $\Delta\lambda_0 = \left(\frac{\lambda_{ul}^2}{2\pi c} \right) \left(\frac{4\pi n}{3} \right)^2 C_6$.

L'élargissement à mi hauteur est donné par Margenau :

$$\Delta\lambda_{VDW} = 0,411\pi^2 C_6 \frac{\lambda_{ul}^2}{c} N^2$$

2-29

Le déplacement (Traving, 1968):

$$S_{VDW} = \frac{\lambda_{ul}^2}{2\pi c} \frac{8\pi^3}{27} C_6 N^2$$

2-30

L'élargissement et le déplacement sont proportionnels au carré de la densité des perturbateurs pour l'interaction de van der Waals. Ceci diffère de la dépendance linéaire de l'approximation d'impact.

2.2.3.2.4 Potentiel de Lennard Jones

Le potentiel de van der Waals ne peut pas représenter l'interaction à courte distance. Pour améliorer de façon semi-empirique le modèle inter atomique, la méthode utilisée consiste à ajouter aux termes de dispersion de van der Waals un terme répulsif :

$$V = U(r) - \frac{\hbar C_6}{r^6} \quad 2-31$$

Le terme $U(r)$ le plus usité est C^{12}/r^{12} , on obtient ainsi le potentiel Lennard Jones.

$$V = \hbar \left(\frac{C_{12}}{r^{12}} - \frac{C_6}{r^6} \right) \quad 2-32$$

Approximation d'impact :

Behmenburg (Behmenburg, et al., 1964) et Hindmarsh (Hindmarsh, et al., 1970) donnent les expressions analytiques des élargissements et les déplacements produits par ce potentiel :

$$\Delta\lambda_{LJ} = 4 \left(\frac{\lambda_{ul}^2}{2\pi c} \right) \left(\frac{3}{8} \pi \right)^{2/5} (w)^{3/5} |C_6|^{2/5} B(\alpha) N \quad 2-33$$

$$S_{LJ} = \left(\frac{\lambda_{ul}^2}{2\pi c} \right) \left(\frac{3}{8} \pi \right)^{2/5} (w)^{3/5} |C_6|^{2/5} S(\alpha) N \quad 2-34$$

Les fonctions $S(\alpha)$ et $B(\alpha)$ ont été calculées numériquement par Hindmarsh (Hindmarsh, et al., 1970).

$$B(\alpha) = \int_0^{\infty} x \sin^2 \left(\frac{1}{2} \left(\frac{\alpha}{x^{11}} - \frac{1}{x^5} \right) \right) dx \quad 2-35$$

$$S(\alpha) = \int_0^{\infty} x \sin \left(\frac{1}{2} \left(\frac{\alpha}{x^{11}} - \frac{1}{x^5} \right) \right) dx \quad 2-36$$

Avec $x = \rho \left(\frac{3}{8} \pi \frac{|C_6|}{w} \right)^{-1/5}$ et $\alpha = 0,536(w)^{6/5} \frac{C_{12}}{|C_6|^{11/5}}$

Ici, ρ est le paramètre d'impact, et w la vitesse relative entre l'émetteur et l'atome.

Les fonctions de $B(\alpha)$ et $S(\alpha)$ ont été tabulées et sont représentées dans la Figure 2-2. $S(\alpha)/2B(\alpha)$ est le rapport entre déplacement et demi largeur à mi-hauteur.

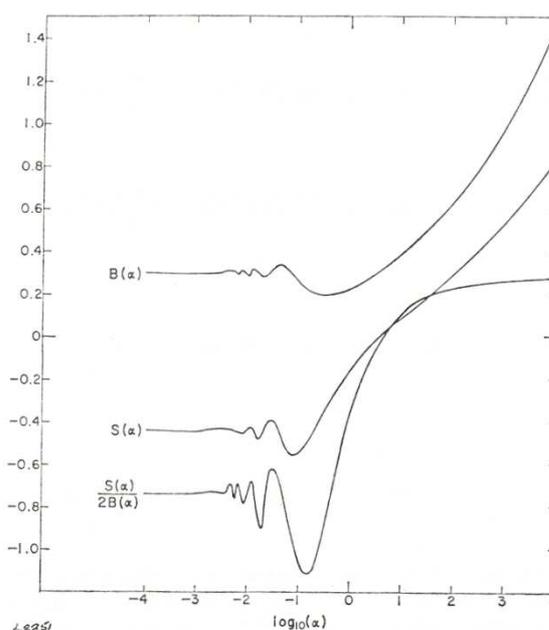


Figure 2-2 Les fonctions $S(\alpha)$, $B(\alpha)$ et $S(\alpha)/2B(\alpha)$ calculé pour le potentiel Lennard-Jones (Hindmarsh, et al., 1970).

Il faut toutefois bien remarquer l'aspect empirique du terme en r^{-12} , le choix de la puissance 12 est arbitraire et, d'autre part le coefficient C_{12} est un paramètre qui ne peut pas être calculé explicitement. Néanmoins, Hindmarsh et al. ont simplement suggéré que la force de répulsion C_{12} peut être donnée par :

$$C_{12} = qr^{12} \quad \text{en } m^{12}s^{-1}$$

2-37

Où q est une constante égale à $0,9 \times 10^{-23} \text{J}$ (Hindmarsh, et al., 1970) et $r = r_A + r_B$, étant les distances de l'atome A(ou B) au delà de laquelle la densité radiale de charge est tombée à 0,012 unité atomique. Le plus souvent ce paramètre est simplement ajusté sur les résultats expérimentaux.

Notons que suivant la valeur de α , le déplacement de la raie peut être dans le rouge ou le bleu.

D'autres potentiels peuvent être ajoutés à ces approximations empiriques. Des calculs plus sophistiqués ont inclus l'ordre multipolaire en C_8/r^8 et C_{10}/r^{10} .

2.2.3.3 Conclusion sur l'effet de pression

Dans l'approximation d'impact, suivant le type d'interaction défini par la valeur de p , les élargissements et les déplacements sont montrés dans le Tableau 2-1 (sauf le cas $p=2$). Nous voyons que le rapport entre élargissement et déplacement dépend seulement du type d'interaction et non de la densité ou de la vitesse des perturbateurs.

Tableau 2-2 Elargissement et déplacement selon la théorie d'impact (Traving, 1968)

<i>p</i>	3	4	6	6+12
cas	Résonance	Stark quadratique	Van der Waal	Lennard-Jones
$\Delta\lambda$	$K_{jj'} \frac{1}{\pi} \left(\frac{2j+1}{2j'+1} \right)^{1/2} \frac{e^2 \lambda_{ul}^2 f_{jj'} n \lambda_{jj'}}{4\pi\epsilon_0 m_e c^2}$	$11,37 C_4^{2/3} w^{1/3} N$	$8,08 \left(\frac{\lambda_{ul}^2}{2\pi c} \right) C_6^{2/5} w^{3/5} N$	$\Delta\lambda_{LJ} = 4 \left(\frac{\lambda_{ul}^2}{2\pi} \right) \left(\frac{3}{8\pi} \right)^{2/5} (w)^{3/5} C_6 ^{2/5} B(\alpha) N$
S_λ		$9,94 C_4^{2/3} w^{1/3} N$	$-\Delta\lambda/2,75$	$S_{LJ} = \left(\frac{\lambda_{ul}^2}{2\pi} \right) \left(\frac{3}{8\pi} \right)^{2/5} (w)^{3/5} C_6 ^{2/5} S(\alpha) N$
$\Delta\lambda/S_\lambda$		1,16	2,75	Voir la Figure 2-2

Pour l'approximation quasi-statique, il n'est pas possible de résumer les résultats sur un tableau.

2.3 Spectroscopie moléculaire diatomique

Dans ce paragraphe, nous rappelons les notions de base sur les spectres produits par des molécules diatomiques. Ensuite, nous présentons plus en détail les transitions de la molécule He_2 et les méthodes pour simuler les spectres observés.

2.3.1 Introduction

En partant d'une molécule diatomique, il est possible d'observer différentes transitions correspondant aux différents états de la molécule. Elles sont présentées sur la Figure 2-3 :

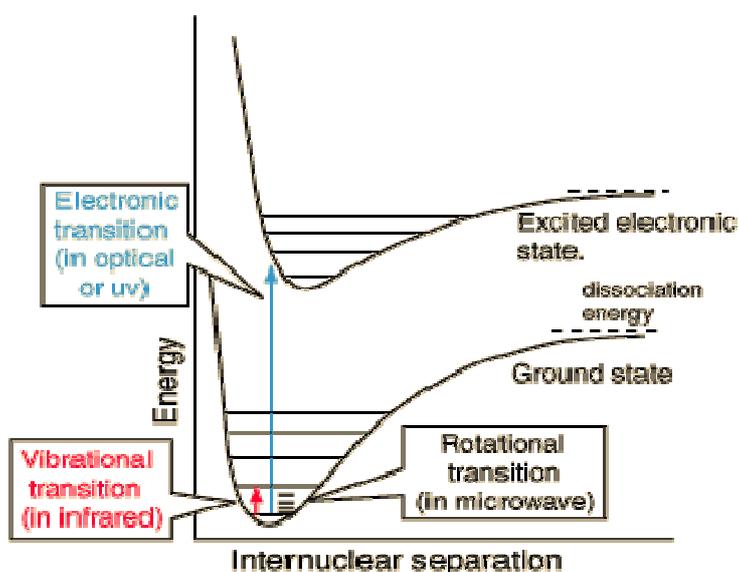


Figure 2-3 Diagramme représentant les niveaux d'énergie d'une molécule et quelques transitions. a : transition du spectre de rotation ; b : transition d'une bande de vibration - rotation ; c : transition d'un système de bande.

Des transitions purement rotationnelles au sein d'un état électronique et d'un niveau de vibration donnés peuvent avoir lieu ; c'est ce que l'on appelle un spectre de rotation. Lorsque des transitions s'effectuent entre deux niveaux de vibration, au sein d'un même état électronique, ce spectre est dit de vibration-rotation. Enfin, des transitions entre deux niveaux électroniques peuvent être observées, le plus souvent dans le domaine du visible ou du proche visible. Ces transitions représentent des transitions rotationnelles entre deux niveaux électroniques de la molécule, suivant l'état de vibration de chacun des états électroniques, on définit alors ce que l'on appelle une bande du système étudié. Les spectres étudiés dans ce manuscrit font partie de cette troisième catégorie.

2.3.2 Description de l'état électronique dans la bande moléculaire

2.3.2.1 Energie totale de la molécule diatomique

L'énergie totale d'une molécule diatomique, dans l'approximation de Born Oppenheimer (Herzberg, 1950) est donnée par :

$$E = E_e + E_v + E_r$$

2-38

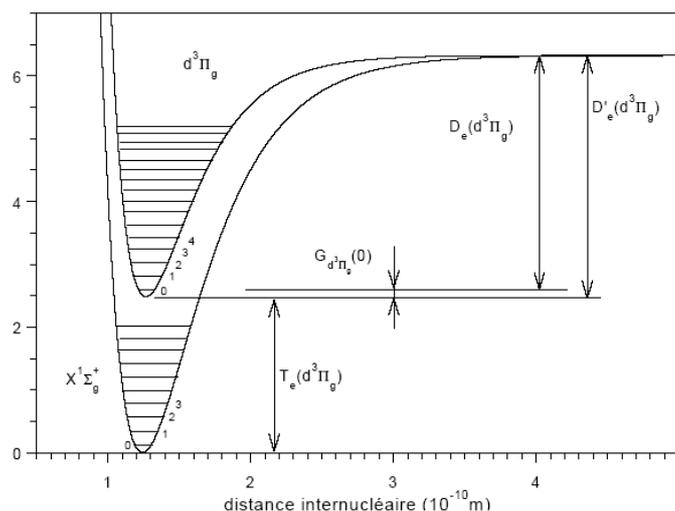


Figure 2-4 Représentation des différents notations utilisées. Etat $X^1\Sigma_g^+$ et $d^3\Pi_g$ sont des exemples. Dans cette figure la référence est celle du puits de potentiel.

Où E_e , E_v et E_r sont, respectivement, les énergies d'excitation électronique, de vibration et de rotation. On peut écrire l'expression précédente en terme spectral, nous obtenons:

$$T = T_e + G(v) + F_v(J)$$

2-39

Avec $T_e \gg G(v) \gg F(J)$, v et J sont respectivement les nombres de vibration et de rotation. $T = E/hc$, T s'exprime en cm^{-1} .

On définit un niveau d'énergie moléculaire par ses nombres quantiques n , v , K ou J et la parité P du niveau considéré :

- ☀ Le principal nombre quantique n indique la nature de l'état électronique. Il est caractérisé par le terme spectral électronique T_e .
- ☀ Le nombre quantique de vibration v indique l'état de vibration de la molécule, dans l'état électronique n considéré. Il caractérise le terme spectral de vibration $G(v)$.
- ☀ Le nombre quantique de moment angulaire total J (ou K) indique l'état de rotation de la molécule dans l'état électronique n et de vibration v . il caractérise le terme spectral de rotation $F_v(J)$ (ou $F_v(N)$).

Le spectre formé par une transition entre deux états électronique est donné par les nombres d'ondes suivants :

$$\nu = E' - E'' = (T' - T'') + (G' - G'') + (F' - F'') = \nu_e + \nu_v + \nu_r \quad 2-40$$

Où les lettres avec « ' » se rapportent à l'état supérieur et les lettres avec « '' » se rapportent à l'état inférieur. Pour une transition électronique donnée, ν_e est une constante. La différence essentielle est que G' et G'' appartiennent maintenant à la série des termes vibrationnels. Similairement, F' et F'' appartiennent à la série des termes de rotation.

2.3.2.2 Structure vibrationnelle de la transition électronique

$G(\nu)$ est le terme spectral de vibration, son expression est spécifique à chaque état électronique étudié n .

$$G(\nu) = \omega_e \left(\nu + \frac{1}{2}\right) - \omega_e x_e \left(\nu + \frac{1}{2}\right)^2 + \omega_e y_e \left(\nu + \frac{1}{2}\right)^3 + \dots \quad 2-41$$

ω_e , $\omega_e x_e$, et $\omega_e y_e$ sont des constantes pour une molécule donnée.

Si on pose $(F' - F'')=0$, la structure vibrationnelle est alors donnée par :

$$\begin{aligned} \nu = & \nu_e + \omega_e' \left(\nu + \frac{1}{2}\right) - \omega_e' x_e' \left(\nu + \frac{1}{2}\right)^2 + \omega_e' y_e' \left(\nu + \frac{1}{2}\right)^3 + \dots \\ & - \left[\omega_e'' \left(\nu + \frac{1}{2}\right) - \omega_e'' x_e'' \left(\nu + \frac{1}{2}\right)^2 + \omega_e'' y_e'' \left(\nu + \frac{1}{2}\right)^3 \dots \right] \end{aligned} \quad 2-42$$

Cette équation représente toutes les transitions vibrationnelles possibles entre deux états électroniques donnés. Les transitions vibrationnelles n'obéissent à aucune règle stricte, tout état vibrationnel d'un niveau électronique supérieur peut se combiner avec tout état vibrationnel d'un niveau électronique inférieur. La transition $\nu'=0 \rightarrow \nu''=0$ est notée (0-0) et ν_e est l'origine du système de bande.

2.3.2.3 Structure rotationnelle d'une bande

Dans l'équation 2-39, $F_\nu(J)$ est le terme spectral de rotation, son expression est spécifique de chaque état électronique étudié défini par n et ν . Il s'exprime d'une façon générale par:

$$F_\nu(J) = B_\nu J(J+1) - D_\nu J^2(J+1)^2 \dots \quad 2-43$$

Où B_ν est la constante de rotation et D_ν la constante de distorsion centrifuge qui dépend de la rigidité de la liaison. Elle s'exprime par les formules de Dunham (Herzberg, 1950) :

$$B_v = B_e - \alpha_e(v + 1/2) + \gamma_e(v + 1/2)^2 + \dots$$

2-44

$$D_v = D_e - \beta_e(v + 1/2) + \dots$$

2-45

B_e , α_e , γ_e , D_e et β_e sont des constantes pour un état électronique donné. B_e est une constante dépendant de l'état d'équilibre de la molécule, α_e et γ_e traduisent l'interaction rotation - vibration dans B_v . D_e est la constante traduisant la distorsion centrifuge et β_e traduit l'interaction rotation - vibration dans D_v . Ces constantes spectroscopiques ont été données par (Herzberg, 1950).

$$B_e = \frac{h}{8\pi^2 c \mu r_e^2}$$

2-46

Où r_e est la distance internucléaire d'équilibre et μ est la masse réduite de la molécule.

$$D_e = \frac{4 B_e^3}{\omega_e^2}$$

2-47

L'expression 2-44 est en fait une expression simplifiée. Pour faire un traitement plus rigoureux, il faut se référer à l'ouvrage de Kovacs (Kovacs) où il donne les formules générales applicables à tout type d'état électronique mais aussi tous les termes de correction qui tiennent compte de diverses interactions.

Les différentes définitions concernant les termes spectraux et les niveaux d'énergie des molécules sont présentées sur la Figure 2-4. E_e' , $E_{e'v'}$, et $E_{e'v'J'}$ sont respectivement les énergies électroniques, de vibration, et de rotation de l'état moléculaire e' , et T_e , F_v et $G(v')$ sont les termes spectraux de cet état.

2.3.3 Simulation des spectres moléculaires

Dans ce paragraphe, nous rappelons la méthode utilisée pour déterminer la température rotationnelle (T_r) et, éventuellement vibrationnelle (T_v), d'un état donnée de la molécule d'hélium qui consiste à effectuer une comparaison entre un spectre expérimental et un spectre simulé, en tenant compte de la fonction d'appareil, d'une ou plusieurs bandes successives. L'obtention du spectre simulé se fait en plusieurs étapes. La première consiste à calculer les longueurs d'onde de toutes les transitions rotationnelles possibles d'un état n' , v' vers un état n'' , v'' . Ensuite, l'intensité de chaque transition est calculée pour une valeur de T_r choisie. Enfin, le profil final de la bande est obtenu après la convolution du signal calculé par la fonction d'appareil. Dans la suite, les lettres primées correspondent à l'état électronique supérieur tandis que les lettres doublement primées représentent l'état inférieur. En spectroscopie d'émission, l'état supérieur est l'état initial de la transition.

2.3.3.1 Les branches

Les longueurs d'onde sont obtenues suivant les valeurs de $\Delta J = J' - J''$, ceci permet de définir les branches Q, R et P d'une séquence pour $\Delta J = 0, \pm 1$ respectivement.

Si, cependant, $A=0$ dans les deux états électroniques, la transition avec $\Delta J=0$ est interdite, et seule $\Delta J = \pm 1$ apparaît. Ainsi, nous devons attendre trois ou deux branches, respectivement, dont les nombres de longueur d'onde sont indiquées par les formules suivantes :

$$R: \nu = \nu_0 + F'_v(J') - F''_v(J' - 1) \quad 2-48$$

$$Q: \nu = \nu_0 + F'_v(J') - F''_v(J') \quad 2-49$$

$$P: \nu = \nu_0 + F'_v(J') - F''_v(J' + 1) \quad 2-50$$

Ici, J est le nombre quantique de rotation dans l'état inférieur ($J=J'$). ν_0 représente ce que l'on appelle la branche origine ou raie zéro :

$$\nu_0 = (T'_e - T''_e) + (G(v') - G(v'')) \quad 2-51$$

2.3.3.2 Intensité

Les raies spectrales sont caractérisées non seulement par leur position à l'intérieur du spectre mais aussi par leur intensité. En d'autres termes, si la transition produisant la raie en question est admise par les règles de sélection, le problème réside dans le calcul de la probabilité de transition. Considérons la transition (n', v', J') vers (n'', v'', J'') , l'intensité de la raie rotationnelle émise lors de cette transition est l'énergie émise par unité de temps et dans 4π stéradians, elle est donnée par l'équation 2-52:

$$I_{n''v''J''}^{n'v'J'} = h\nu \frac{n'v'J'}{n''v''J''} A_{n''v''J''}^{n'v'J'} N(n', v', J') \quad 2-52$$

$N(n', v', J')$ est la densité de l'état émetteur en m^{-3} , $A_{n''v''J''}^{n'v'J'}$ est la probabilité de transition en s^{-1} et ν est la longueur d'onde de la transition (n', v', J') vers (n'', v'', J'') en cm^{-1} . h est la constante de Plank. $I_{n''v''J''}^{n'v'J'}$ s'exprime donc en W/m^3 .

- Si on considère le cas d'un équilibre de Boltzmann, caractérisé par la température de rotation T_r pour un état électronique n' , le nombre N de molécules dans l'état initial est donné par :

$$N(n', v', J') = \frac{N(n', v')}{Q_r(T)} (2J'+1) \exp\left[-\frac{hc}{kT_r} (F_v'(J'))\right]$$

2-53

Où $Q_r(T)$ est la fonction de partition de rotation.

La probabilité de transition peut se décomposer en deux termes (Herzberg, 1950) (Kovacs) :

$$A_{n'', v'', J''}^{n', v', J'} = A_{n'', v''}^{n', v'} A_{J''}^{J'}$$

2-54

Où le premier terme dans l'équation 2-54 est le coefficient d'Einstein en s^{-1} ; le second terme est la probabilité de transition rotationnelle qui s'exprime en fonction du facteur de Hönl-London $S_{J''}^{J'}$ qui est calculé à l'aide des tableaux donnés par (Herzberg, 1950) (Kovacs) :

$$A_{J''}^{J'} = \frac{v_{J', J''}^3}{v_{v', v''}^3} \frac{S_{K'', J''}^{K', J'}}{2J' + 1}$$

2-55

Alors, l'émission d'une raie de rotation suit la relation suivante :

$$I_{em.} = \frac{2C_{em.} v_{J', J''}^4}{Q_r} S_{J'', K''}^{J', K'} \exp\left[-\frac{hc}{KT} (F(J'))\right]$$

2-56

Un facteur constant correspondant à l'importance du moment dipolaire ou de son changement est inclus dans $C_{em.}$

2.3.4 Spectres des molécules He₂

Comme ⁴He possède un spin zéro, seuls les transitions entre les niveaux totalement symétriques sont permises (voir annexe 2).

Les différents moments dans la molécule (spin électronique S , projection de moment angulaire orbital d'électron sur l'axe internucléaire A , moment angulaire de rotation nucléaire N) forment une résultante qui est toujours désignée J . Suivant les niveaux d'interaction de rotation nucléaire avec le moment de l'électron, différents modes de couplage du moment angulaire existent et nous allons les décrire dans la suite de ce chapitre (voir annexe 6).

2.3.4.1 Transition $C^1\Sigma_g^+ \rightarrow A^1\Sigma_u^+$ et $c^3\Sigma_g^+ \rightarrow a^3\Sigma_u^+$

Ces transitions suivent le cas b de Hund, et comme $\Delta K=0$ est interdit, $\Delta J=0$ est aussi interdit. Ainsi seulement les transitions avec $\Delta J=\Delta K = \pm 1$ apparaissent et nous obtenons uniquement les branches P et R.

Tableau 2-3 Constantes moléculaires pour $C^1\Sigma_g^+$ et $A^1\Sigma_u^+$ en cm^{-1} (Ginter, 1965)

	$C^1\Sigma_g^+$	$A^1\Sigma_u^+$
T_e	157415	146365
r_e	1,091	1,04
ω_e	1653,4	1861,3
$\omega_e x_e$	41,0	35,3
$\omega_e y_e$		-0,13
B_e	7,05	7,78
α_e	0,21	0,217

Tableau 2-4 Constantes moléculaires pour $c^3\Sigma_g^+$ et $a^3\Sigma_u^+$ en cm^{-1}

	$c^3\Sigma_g^+$	$a^3\Sigma_u^+$
T_e	155053	144048
r_e	1,1	1,05
ω_e	1583,8	1808,6
$\omega_e x_e$	52,7	38,2
$\omega_e y_e$	-0,197	
B_e	7,01	7,7
α_e	0,310	0,228

2.3.4.2 Transition $D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$

Il s'agit de la transition entre le niveau $D^1\Sigma_u^+$ situé à 20,57eV et le niveau $B^1\Pi_g$ à 18,70eV. Pour l'état $D^1\Sigma_u^+$, le spin et le moment angulaire orbital ($\Lambda=0$) de l'électron sont égales à zéro, c'est un état singulet ($2S+1=1$). Pour $B^1\Pi_g$, le moment angulaire orbital $\Lambda=1$, donc J prend les valeurs : $J=1, 2, 3, \dots$. La transition entre ces deux états suit le Hund **b** de. Les raies permises sont montrées sur la Figure 2-5. On note que les transitions P(0), R(0), et Q(0) sont absentes. Les raies avec le nombre quantique de rotation impair sont absentes dans ^4He .

Tableau 2-5 Constantes moléculaires pour $D^1\Sigma_u^+$ et $B^1\Pi_g$ en cm^{-1} (Ginter, 1965)

	$D^1\Sigma_u^+$	$B^1\Pi_g$
T_e	165085	149914
r_e	1,069	1,066
ω_e	1746,43	1765,76
$\omega_e x_e$	35,54	34,39
$\omega_e y_e$		-0,026
B_e	7,365	7,403
α_e	0,218	0,216

Tous les paramètres utilisés pour calculer l'énergie dans cette transition sont donnés dans le Tableau 2-5. Les facteurs de Höln-London sont présentés dans le Tableau 2-6.(Herzberg, 1950).

Tableau 2-6 Facteurs de Höln-London pour la transition $D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$

Raie	R	Q	P
$S(J',J'')$	$\frac{J'-1}{2}$	$\frac{2J'+1}{2}$	$\frac{J'+2}{2}$

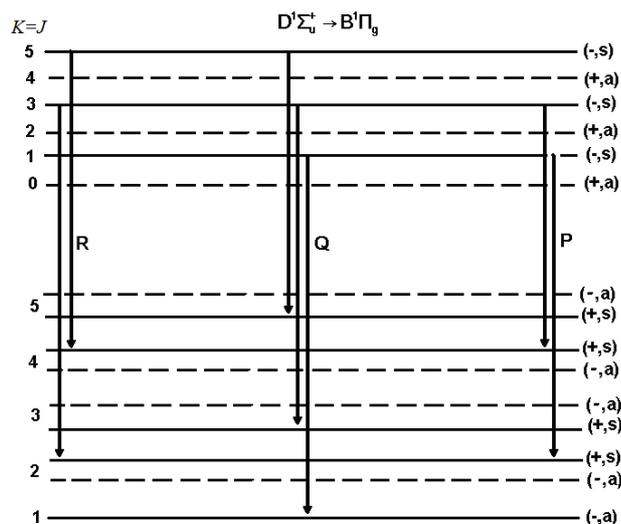


Figure 2-5 Structure de la transition $D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$

2.3.4.3 Transition $d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g^+$

Il s'agit de la transition entre le niveau $d^3\Sigma_u^+$ situé à 20,38eV et $b^3\Pi_g^+$ à 18,44eV. La transition se fait entre un état Σ et un état Π . L'état électronique $d^3\Sigma_u^+$ est tel que $\Lambda=0$ et $S=1$, il appartient strictement au cas b de Hund. Le spin de ^4He est zéro, donc, la fonction d'onde électronique est symétrique. Dans le cas impair (u), $K=\Lambda+N$ est impair, donc, $K=\Lambda+1, \Lambda+3, \Lambda+5\dots$ et le moment total $J=K+S$. Chaque niveau K est détripilé en 3 sous niveaux tels que $J=K-1, K, K+1$.

Tableau 2-7 Constantes moléculaires pour $d^3\Sigma_u^+$ et $b^3\Pi_g$ en cm^{-1}

	$d^3\Sigma_u^+$	$b^3\Pi_g$
T_e	164479	148835
r_e	1,07	1,063
ω_e	1728,01	1769,09
$\omega_e x_e$	36,13	35,02
$\omega_e y_e$	-0,126	-0,048
B_e	7,341	7,447
α_e	0,219	0,219

Kovac (Kovacs) p72 donne les expressions pour tous les niveaux de découplage de spin dans l'état $^3\Sigma$:

$$F_1(K) = B_v K(K+1) - D_v K^2 (K+1)^2 - \varepsilon \frac{K}{2K+3} + \gamma K$$

2-57

$$F_2(K) = B_v K(K+1) - D_v K^2 (K+1)^2 - \varepsilon + \gamma$$

2-58

$$F_3(K) = B_v K(K+1) - D_v K^2 (K+1)^2 - \varepsilon \frac{K+1}{2K-1} - \gamma(K+1)$$

2-59

F_1 , F_2 et F_3 correspondent respectivement aux niveaux $K+1$, K , et $K-1$ et où ε et γ sont les constantes des structure fines. Dans le cas b, $\varepsilon=0$, d'où les équations se simplifient :

$$F_1(K) = F_2(K) = F_3(K) = B_v K(K+1) + D_v K^2 (K+1)^2$$

2-60

Pour l'état électronique $^3\Pi$: $\Lambda=1$, c'est un état triplet, donc $S=1$. L'état $^3\Pi$ suit également le cas b, la règle de sélection $\Delta K=0, \pm 1$ fonctionne et les transitions avec $\Delta K \neq \Delta J$ sont très faibles (elles forment des transitions satellites) sauf pour les faibles valeurs de J . Les moments angulaires K et S forment le moment résultant J incluant le spin. Les valeurs possibles de J pour une valeur donnée de K sont, d'après le principe de l'addition des vecteurs, données par : $J = (K+S), (K+S-1), \dots, |K-S|$. Donc, dans le cas $^3\Pi$, $J=K+1, K, K-1$.

Il apparaît alors 19 branches : 9 branches principales et 10 branches satellites. Nous présentons la structure de cette transition sur la Figure 2-6.

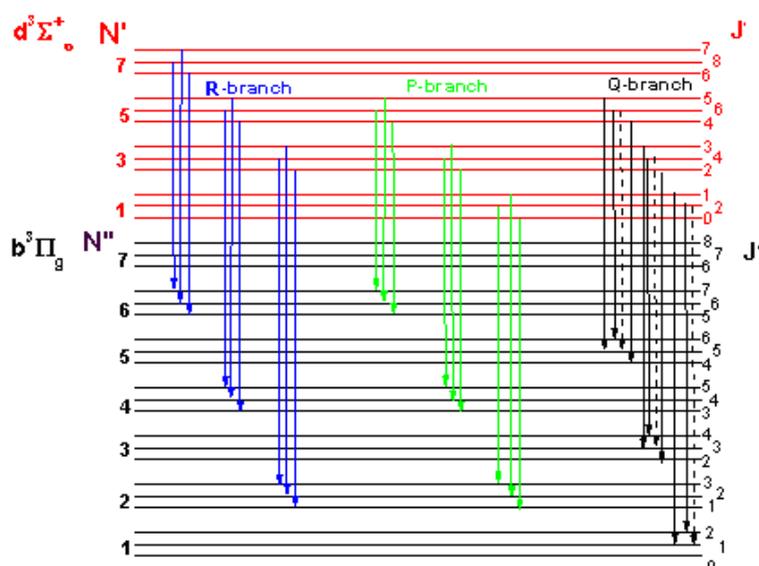


Figure 2-6 structure de la transition $d^3\Sigma^+_u \leftarrow b^3\Pi_g$.

Les facteurs de Höln-London $S_{K',J''}^{K',J'}$ sont donnés dans le Tableau 2-8 (Budo, 1935).

Tableau 2-8 Facteurs de Höln-London pour la transition $d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$

<i>Raie</i>	R_1	Q_1	P_1	QR_{12}
$S_{K',J''}^{K',J'}$	$\frac{(J'-1)(2J'+3)}{2(2J'+1)}$	$\frac{(J'-1)(2J'+1)(J'-1)}{2J'^2}$	$\frac{J'(2J'+1)}{2(2J'-1)}$	$\frac{(2J'+3)}{2(J'+1)^2}$
<i>Raie</i>	PQ_{12}	PR_{13}	R_2	Q_2
$S_{K',J''}^{K',J'}$	$\frac{J'+1}{2J'^2}$	$\frac{(2+J')}{2(J'+1)^2(2J'+1)(2J'+3)}$	$\frac{J'^2(J'+2)}{2(J'+1)^2}$	$\frac{(2J'+1)(J'^2+J'-1)}{2J'^2(J'+1)^2}$
<i>Raie</i>	P_2	RQ_{21}	RQ_{23}	PQ_{23}
$S_{K',J''}^{K',J'}$	$\frac{(J'-1)(J'+1)^2}{2J'^2}$	$\frac{J'-1}{2J'^2}$	$\frac{2J'+1}{2(J'+1)^2}$	$\frac{2J'+1}{2(J'+1)^2}$
<i>Raie</i>	R_3	P_3	Q_3	RP_{31}
$S_{K',J''}^{K',J'}$	$\frac{(J'+1)(2J'+1)}{2(2J'+3)}$	$\frac{J'(J'+2)(2J'+1)}{2(J'+1)^2}$	$\frac{(J'+2)(2J'-1)}{2(2J'+1)}$	$\frac{J'-1}{2J'^2(2J'-1)(2J'+1)}$
<i>Raie</i>	QP_{32}	RQ_{32}		
$S_{K',J''}^{K',J'}$	$\frac{2J'-1}{2J'^2}$	$\frac{J'}{2(J'+1)}$		

Chapitre 3 Méthodes expérimentales

3.1 Introduction

Au cours de ce travail de recherche, nous avons utilisé différentes techniques et montages expérimentaux que nous allons décrire dans ce chapitre. Tout d'abord, nous donnons quelques informations sur le gaz hélium utilisé. Puis nous présentons le dispositif expérimental principal comprenant la cellule d'essai pointe-plan haute tension ($\leq 20\text{kV DC}$) et haute pression ($\leq 11\text{MPa}$) et le cryostat optique permettant de liquéfier le gaz. Enfin nous décrivons les différentes techniques utilisées pour mesurer les grandeurs physiques (électrique, lumière émise, etc.) associées à l'application de la haute tension sur l'électrode pointe.

3.2 Gaz hélium utilisé

L'hélium est un élément monoatomique incolore, inodore, non toxique et pratiquement inerte. Il n'existe qu'en tant que gaz, sauf dans des conditions extrêmes. L'hélium ($M=4,00026\text{u}$) utilisé pour nos expériences est fourni par Air liquide (Alphagaz), avec la composition suivante (Tableau 3-1).

Tableau 3-1 Composition du gaz initial N50 (99,99990%) d'Alphagaz

O ₂	CO	CO ₂	N ₂
$\leq 0,1\text{ppm}$	$\leq 0,1\text{ppm}$	$\leq 0,1\text{ppm}$	$\leq 0,1\text{ppm}$
CH ₄	C _n H _m	H ₂	H ₂ O
$\leq 0,05\text{ppm}$	$\leq 0,1\text{ppm}$	$\leq 0,1\text{ppm}$	$\leq 0,5\text{ppm}$ à 10bar

Certaines des impuretés présentes dans le gaz hélium pouvant influencer les phénomènes électriques et optiques observés, nous avons utilisé le système de purification suivant pour les éliminer. Avant remplissage de la cellule d'essai, le gaz traverse un piège refroidi à l'azote liquide (77K) contenant un mélange de tamis moléculaire de 3Å à 10Å et de charbon actif. Le circuit de purification est préalablement dégazé sous vide pendant plusieurs jours à une température supérieure à 350K. Ce système permet l'élimination totale de l'eau, de l'oxygène, des hydrocarbures, du CO et du CO₂ qui sont des impuretés électronégatives.

3.3 L'hélium liquide : quelques paramètres importants

Le gaz hélium se compose du mélange de deux isotopes ⁴He et ³He dans des concentrations relatives 10⁶/1.

3.3.1 Diagramme de phase de ⁴He

⁴He est l'isotope le plus répandu de l'hélium. La Figure 3-1 montre le diagramme de phase de ⁴He à basse température. ⁴He reste liquide à la température de 0K si la pression est inférieure à 2,5MPa. Il présente une transition à une phase superfluide, également connu sous le nom de HeII, à la température de 2,17K (à la pression de vapeur saturante). La phase solide

présente une symétrie cubique (hcp) ou corps centrée étroite hexagonal (bcc). Le point normal d'ébullition vaut 4,23K.

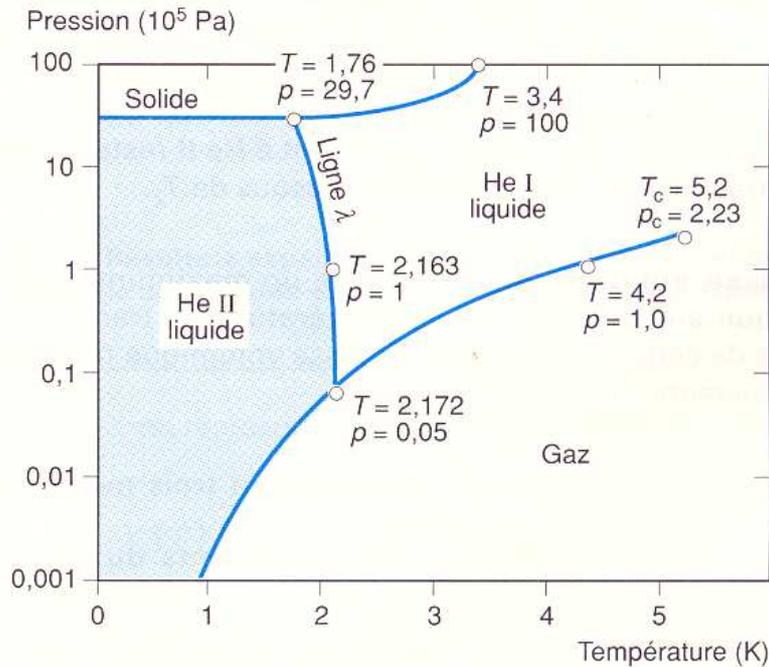


Figure 3-1 Diagramme de phase de ^4He .

L'hélium est non-polaire. L'équation de Clausius-Mossotti peut être utilisé afin d'évaluer sa permittivité relative pour n'importe quel état thermodynamique particulier. Ses principales propriétés sont rassemblées dans le Tableau 3-2. (Khrapak, et al., 2005)

Tableau 3-2 Propriétés physiques de l'hélium liquide ^4He

	Hélium
Point d'ébullition	4,2K
Point critique	5,2K
Densité	$0,13 \text{ g.cm}^{-3}$; $1,95 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$
Masse d'atome hélium	$6,69 \times 10^{-27} \text{ kg}$
Chaleur latente de vaporisation	$2,7 \text{ J.cm}^{-3}$; $0,87 \text{ meV/atome}$
Energie d'ionisation (gaz)	24,46eV
Energie d'ionisation (liquide)	25,5eV
Niveau d'électron délocalisé	+1eV
Permittivité relative	1,05
Rayon de Wigner-Seitz	0,2nm
Energie de polarisation d' He^+	-0,17ev
$k_B T(4,2\text{K})$	0,36meV
Perte d'énergie élastique partielle d'électron	2m/A

Les variations de densité, permittivité et viscosité de l'hélium liquide à 4,2K en fonction de la pression sont tracées sur la Figure 3-2 a, b, et c (NIST).

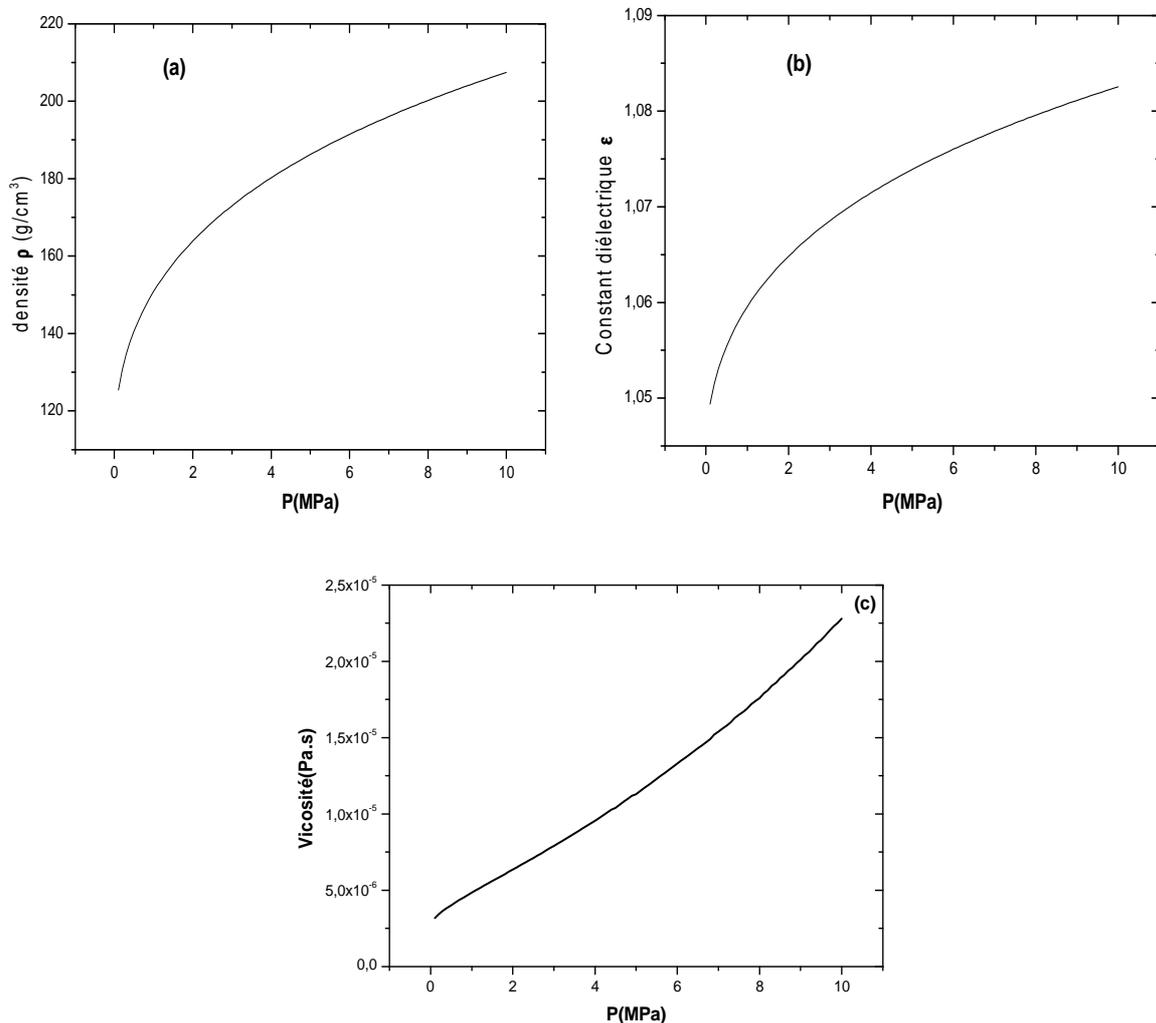


Figure 3-2 Quelques propriétés de l'hélium à $T=4,2\text{K}$ en fonction de la pression : (a) densité, (b) permittivité et, (c) viscosité.

3.4 La cellule d'essai

La cellule coaxiale, de configuration pointe-plan, a une impédance caractéristique d'environ 50Ω adaptée à celle de l'ensemble de mesure électrique (câble coaxial et oscilloscope) afin d'éviter la réflexion des signaux électriques à haute fréquence générés par la décharge couronne. Elle peut supporter une pression de 11MPa et une tension continue de $\pm 20\text{kV}$. La cellule est constituée d'un corps en cuivre béryllium, de traversées isolantes en Macor, et de deux hublots en saphir (Reymond et Co Sa ; 22mm de diamètre et 10mm d'épaisseur) pour permettre des mesures optiques. L'étanchéité est assurée par des joints indium et des brides inox. La cellule est montée avec des rondelles élastiques de type Belleville qui permettent de compenser les différences de dilatation thermique des différents matériaux. La cellule est cylindrique de longueur 23mm et de diamètre 40mm, son volume utile est de 29cm^3 .

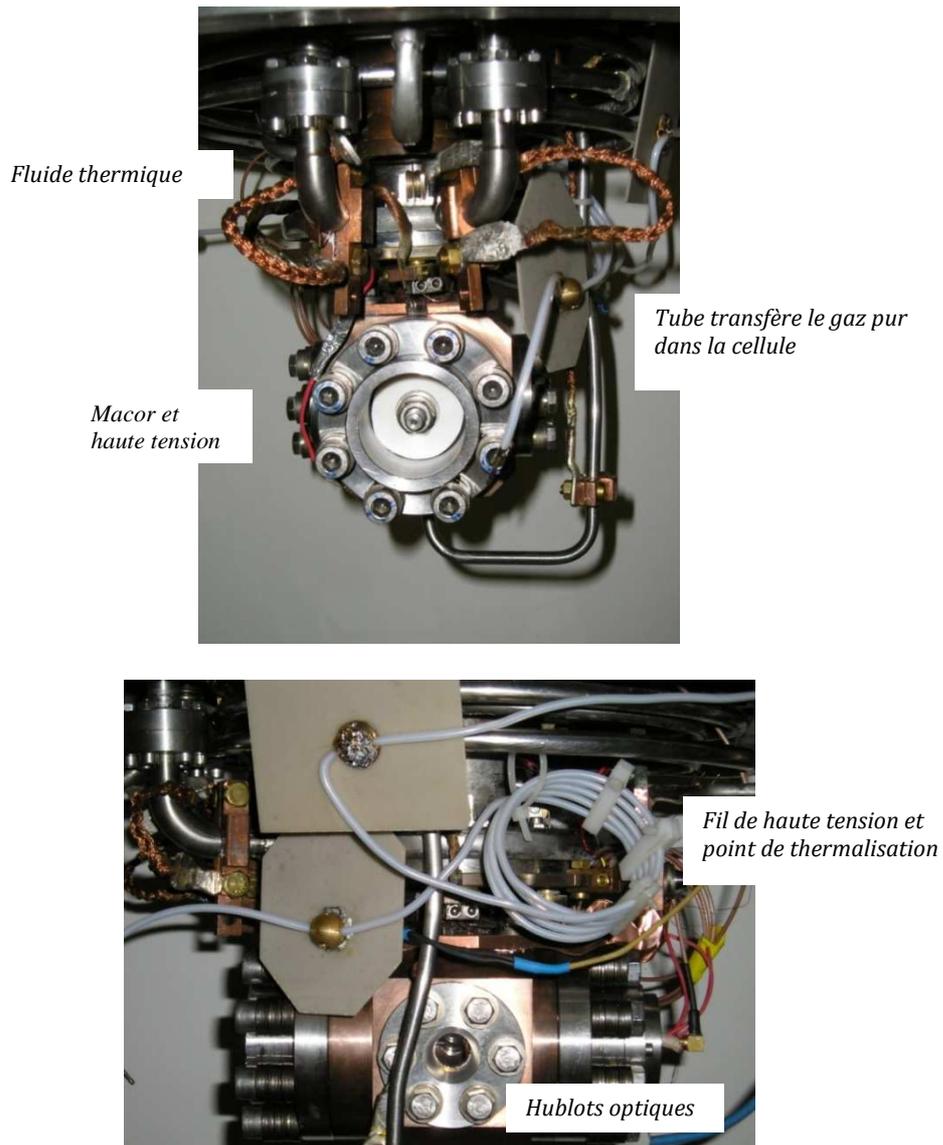


Figure 3-3 La cellule d'essais.

La pointe et le plan sont fixés dans des supports isolants en Macor qui sont bloqués par 8 rondelles Belleville à 0,6mkg sur le corps de la cellule.

3.5 Cryostat et systèmes de remplissage et de vide

Un grand nombre de nos mesures devant être faites à basse température, l'atelier central du C.N.R.S (SERAS) de Grenoble a conçu et réalisé un cryostat permettant un refroidissement jusqu'à 4,2K.

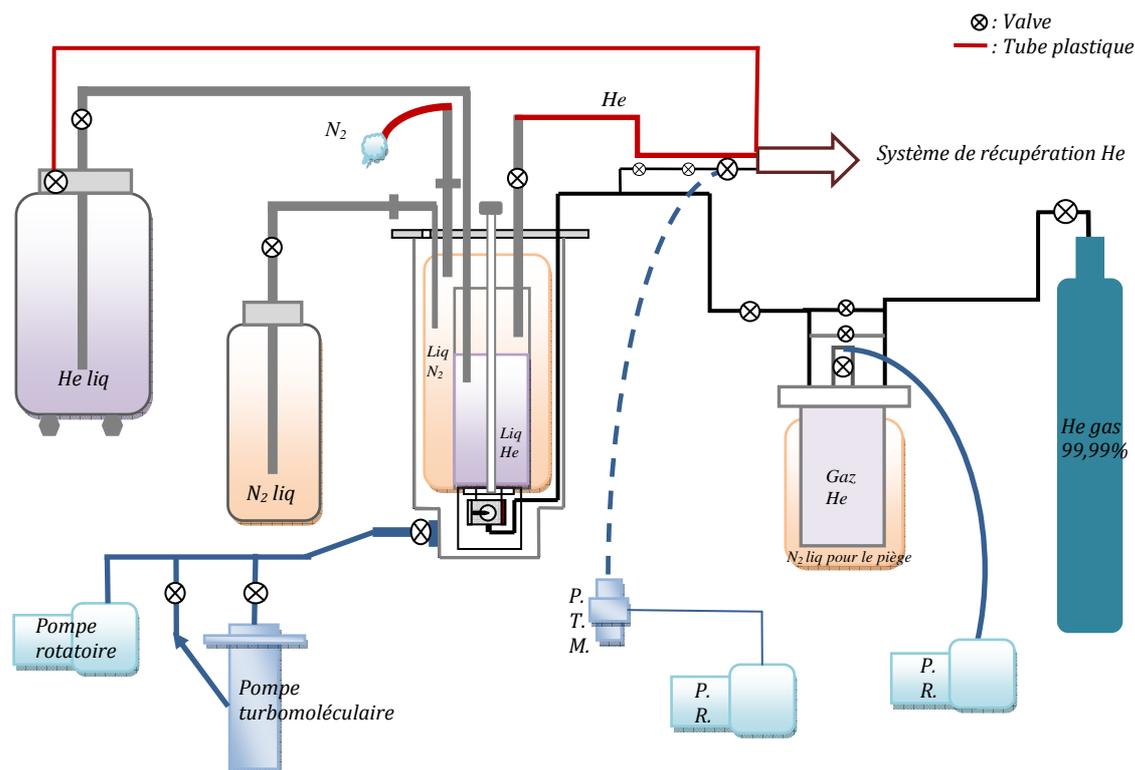


Figure 3-4 Schéma d'ensemble du cryostat.

3.5.1 Cryostat

Le cryostat optique comprend une enveloppe sous vide, un réservoir intermédiaire rempli d'azote liquide ($V=28L$), un réservoir central rempli d'hélium liquide ($V=0,75L$) et une fuite thermique reliée à la cellule d'essai (Figure 3-3). Suivant la fuite thermique utilisée, la température de la cellule peut être ajustée entre 4,2K et 77K. Dans la gamme 4,2 -10 K, la température est stabilisée à 0,1K.

Nous disposons de deux écrans thermiques pour limiter la perte de chaleur par rayonnement : un écran cuivre refroidi à environ 77 K vissé au bain d'azote liquide, et un écran fixé au bain d'hélium liquide. Une super-isolation est réalisée avec 20 couches d'aluminium d'épaisseur 0,2mm enroulées autour de l'écran d'azote liquide, séparées par un filet de nylon. Les deux écrans comprennent également deux hublots en quartz qui permettent de limiter la perte par rayonnement.

Le cryostat est relié à des réservoirs de stockage d'azote liquide et l'hélium liquide ainsi qu'à un système de pompage secondaire comprenant une pompe primaire et une pompe turbomoléculaire. Le cryostat comporte également les traversées haute tension et basse tension, les différentes prises de température et la vanne de remplissage ou de mise sous vide de la cellule. Les connexions électriques aboutissant à la cellule sont thermalisées en 3 points : un point à l'azote liquide, puis un point à l'hélium liquide, et enfin un point sur la masse

thermique, ceci à l'aide de plaques d'AlN (Figure 3-3), matériau qui est un bon conducteur thermique mais un isolant électrique.

Avant le remplissage de la cellule, un test de vide est effectué pour s'assurer que les fuites de la cellule sont $< 10^{-8} \text{ Pa}\cdot\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$, qui est la sensibilité maximale de notre appareil de contrôle à fuite d'hélium.

3.5.2 Mesures du vide et de la pression

Nous utilisons 3 systèmes de pompage (Figure 3-4) :

- Un ensemble de pompage de la cellule comprenant une pompe turbomoléculaire et un pompe primaire pour atteindre $P < 10^{-4} \text{ Pa}$, avant le remplissage en hélium pur ;
- Une pompe primaire à 2 étages pour atteindre $P < 10^{-2} \text{ Pa}$ dans le circuit de purification et dans le piège porté à une température de 350°C ;
- Un deuxième ensemble de pompage (pompe turbomoléculaire + pompe primaire) relié au cryostat afin d'obtenir un vide inférieur à 10^{-5} Pa dans les volumes du cryostat situés entre les écrans.

Dans nos expériences, il est indispensable de connaître la pression dans la cellule. Celle-ci pouvant varier de 10^{-4} Pa à 11 MPa suivant les étapes, différents capteurs ont été utilisés. Pour les pressions inférieures à environ 10^3 Pa , nous utilisons les sondes classiques de type Penning et Pirani. Pour les pressions supérieures à 10^3 Pa , elle est mesurée par un capteur de pression absolue MKS Type 870B 33PCB 2 GA1 avec une gamme de pression jusqu'à 21 MPa . La pression dans la cellule est ajustée par une vanne se trouvant sur le tube d'alimentation connecté à la cellule. A chaque modification des conditions (pression ou température), il faut attendre au moins 30 minutes avant d'obtenir une pression stable dans la cellule.

3.5.3 Mesure de la température et dispositif de chauffage

Nous utilisons 3 différentes sondes de température—une à résistance de germanium (fabriquée par LakeShore), une à résistance de carbone et une à résistance de platine. Leurs caractéristiques sont rassemblées dans le Tableau 3-3.

Tableau 3-3 Caractéristiques des sondes de température

Type de résistance	Modèle	Domaine de T	précision
Germanium	GR-200A-2500	3,6-100K	$\pm 0,5 \text{ mK}$ à $4,2 \text{ K}$
Platine	PT-102	30-873K	$\pm 5 \text{ mK}$ à 77 K
Carbone	CGR-1-1000	1,4K-100K	

Le Germanium est utilisé pour mesurer les températures de $3,6$ à 40 K . La courbe de sa résistance en fonction de T est montrée sur la **Erreur ! Source du renvoi introuvable.** A $4,2 \text{ K}$, la résistance de cette sonde vaut 2557Ω . Trois sondes à germanium calibrées sont

insérées dans le plan en cuivre de la cellule, sur le corps de la cellule et la dernière sur la masse thermique.

D'autre part, une sonde à résistance de platine de 100Ω est également installée dans l'électrode plane pour mesurer la température dans la gamme 40-300K. Sa caractéristique résistance – température est tracée sur la Figure 3-5. Pour chaque sonde, leur résistance est mesurée à l'aide du multimètre PREMA 5017.

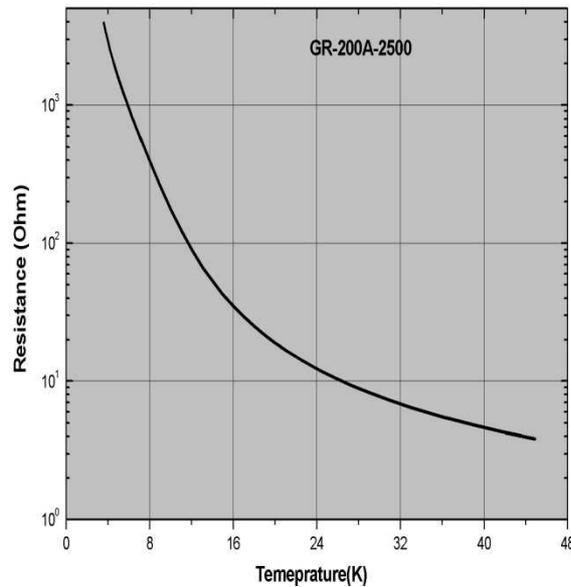


Figure 3-5 Résistance de la sonde de germanium en fonction de la température.

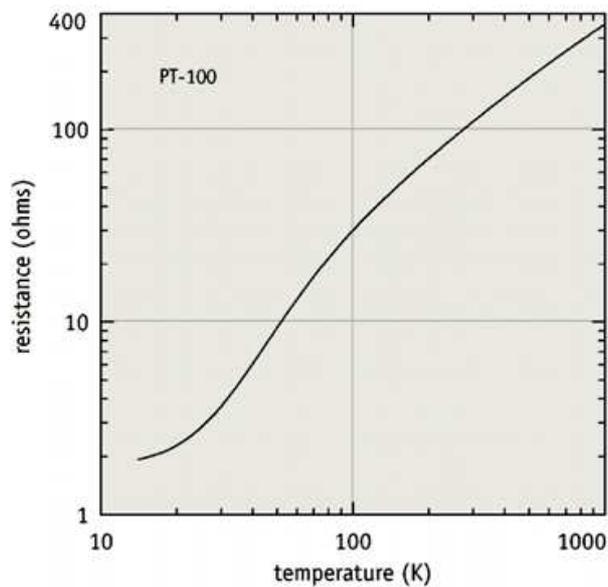


Figure 3-6 Résistance de la sonde de platine en fonction de la température.

Pour changer la température de la cellule, nous pouvons actionner 4 fuites thermiques différentes reliées à la masse thermique (réservoir d'hélium liquide) et commandées de l'extérieur du cryostat.

De 4,2 à 10K, la cellule est connectée directement au réservoir d'hélium par un clinquant en cuivre, au doigt cuivre OFHC soudé au réservoir d'hélium. Pour ajuster la température de la cellule à une valeur donnée, nous avons utilisé une résistance de chauffe de 250Ω qui est connectée à une alimentation CN7B4000 qui peut fournir une tension continue jusqu'à 35V. Un exemple de l'évolution de la température en fonction du temps pour une tension appliquée de 12,27V est montré sur la Figure 3-7 (a). Nous pouvons voir que ce système permet de chauffer rapidement la cellule et d'obtenir une température constante bien stabilisée en un temps court. Le domaine de température constante stabilisée accessible en fonction de la valeur de la tension continue appliquée à la résistance est montré sur Figure 3-7 (b). La puissance nécessaire pour une température donnée est montrée sur la Figure 3-8.

Dans la gamme de 10-77K, 4 fuites thermiques de différentes valeurs L/S (L étant la longueur, S la section) sont connectées à la masse thermique par des ressorts. Les vapeurs d'hélium peuvent être contraintes à passer dans un tuyau inox qui est placé juste au-dessus de la masse thermique. On peut comprimer ces ressorts de l'extérieur.

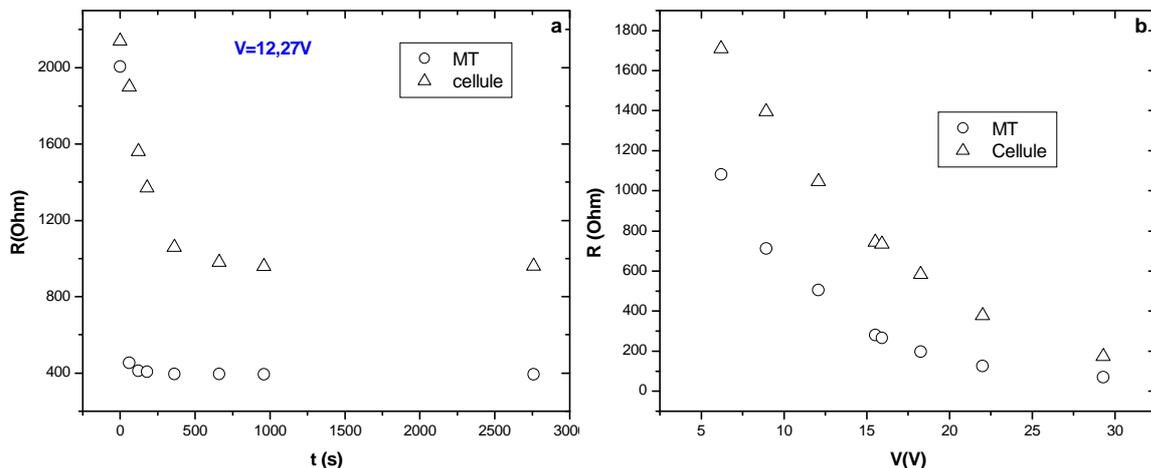


Figure 3-7 (a) Température en fonction du temps pour une tension de chauffage de 12,27V. (b) Température stabilisée en fonction de la tension appliquée.

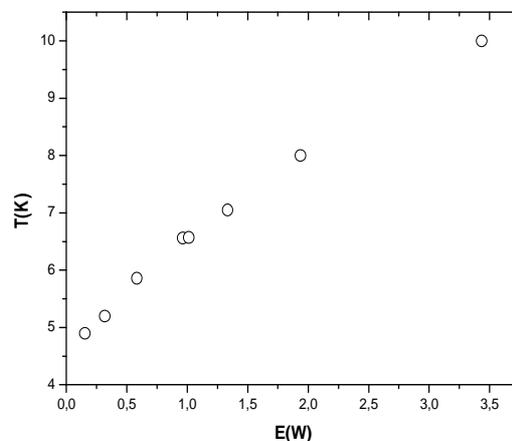


Figure 3-8 Température obtenue en fonction de la puissance électrique.

3.6 Mesures électriques

Les mesures électriques (courant moyen, courant en fonction du temps, charge et fréquence des décharges, etc.) sont effectuées par un dispositif mis au point au laboratoire.

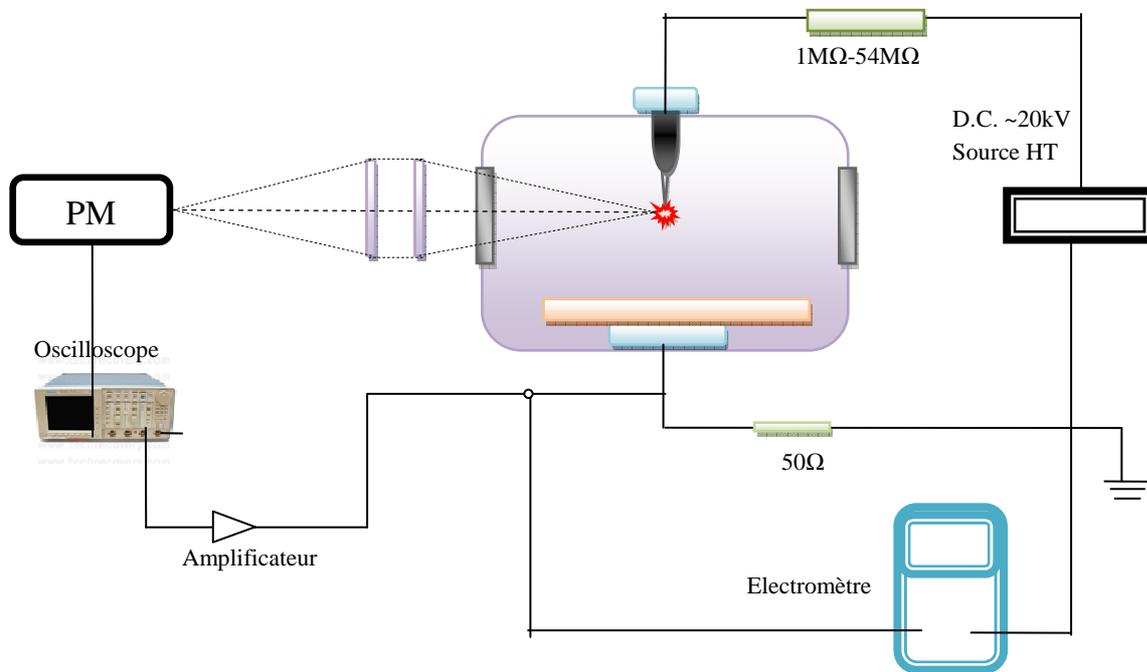


Figure 3-9 Schéma du dispositif de mesures électriques et optique.

L'étude des phénomènes induits dans le liquide par les décharges i.e. la formation de bulles a été faite à l'aide d'un montage optique enregistrant la variation de l'intensité lumineuse d'un faisceau laser (He-Ne, 40 mW), focalisé près de la pointe. La dynamique de la bulle est déduite de la variation de l'intensité lumineuse mesurée à l'aide d'une photodiode rapide (Figure 3-10). Les signaux simultanés de la photodiode et de l'impulsion de courant sont enregistrés à l'aide d'un oscilloscope numérique.

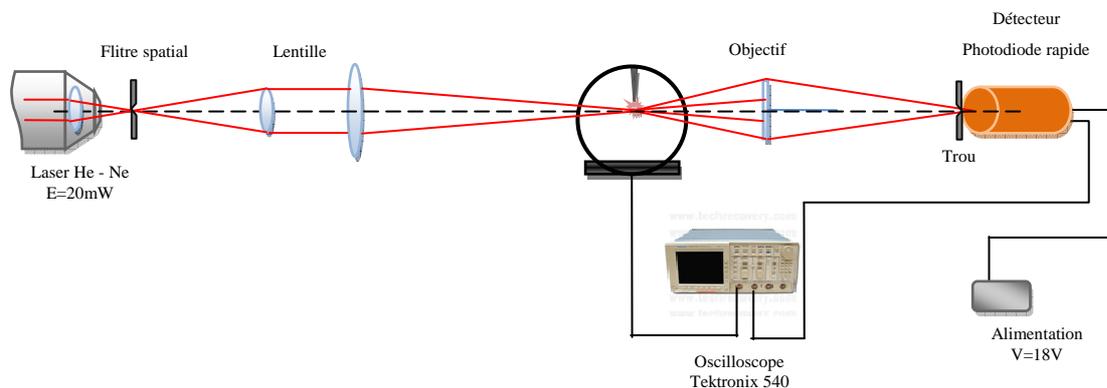


Figure 3-10 Schéma du système de détection des bulles

3.6.1 Les électrodes

L'électrode plane est en cuivre ($\Phi=20\text{mm}$). La pointe est une aiguille en tungstène qui est préparée par électrolyse d'un fil de 1mm ou 0,75mm de diamètre. Les pointes ainsi préparées, subissent un nettoyage à l'eau déminéralisée et à l'acétone avant d'être placées à une température de 200°C à l'intérieur d'une étuve. Le rayon de courbure des pointes, qui peut varier de 0,1 μm à quelques μm , est mesuré avec un microscope électronique à balayage. L'image d'une pointe ($r_p=0,45\mu\text{m}$) est présentée sur la Figure 3-11 **Erreur ! Source du renvoi introuvable.** Dans nos expériences, nous avons utilisé deux configurations d'essai différentes. Dans la première configuration, le rayon de courbure initial est de 0,45 μm et la distance pointe-plan de 6mm. Dans la seconde, le rayon de courbure initial est de 2,5 μm et la distance pointe-plan de 8mm. La Figure 3-12 montre la région située entre la pointe et le plan photographiée à travers les hublots de la cellule.

Le choix d'une pointe de rayon de courbure aussi faible s'explique par le fait que nous voulons une zone d'amorçage de la décharge très bien définie spatialement, dans le but de réaliser une étude spectroscopique de la lumière émise et du courant de décharge, sans jamais atteindre un claquage qui détruirait la pointe et les appareils de mesure.

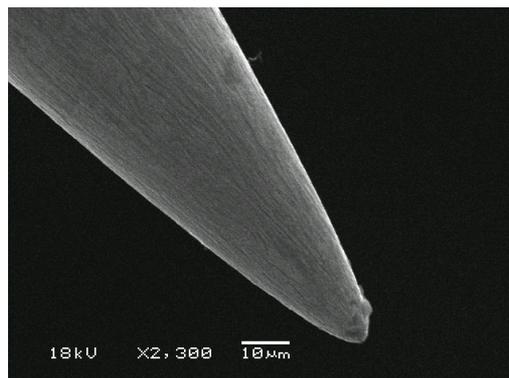


Figure 3-11 Image MEB de la pointe fabriquée par électrolyse avec $r_p=0,45\mu\text{m}$.

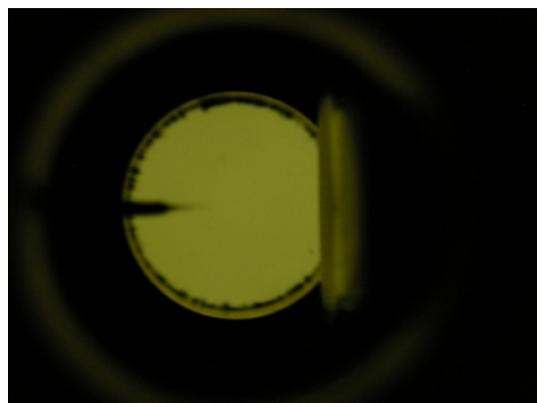


Figure 3-12 Région pointe-plan vue à travers les hublots de la cellule.

3.6.2 Circuit haute tension

Le fil amenant la haute tension sur la cellule est constitué d'une âme en cuivre de 1 mm de diamètre entourée d'une gaine en téflon. Comme indiqué précédemment, il est thermalisé en 3 points. Pour cela on a dénudé le fil en 3 endroits différents puis on l'a soudé à une plaque de nitrure d'aluminium AlN (Mastercards Curamik) (Figure 3-13 a). Dans la cellule, les électrodes métalliques (pointe et plan) sont supportées par des isolateurs en Macor (Figure 3-13 b).

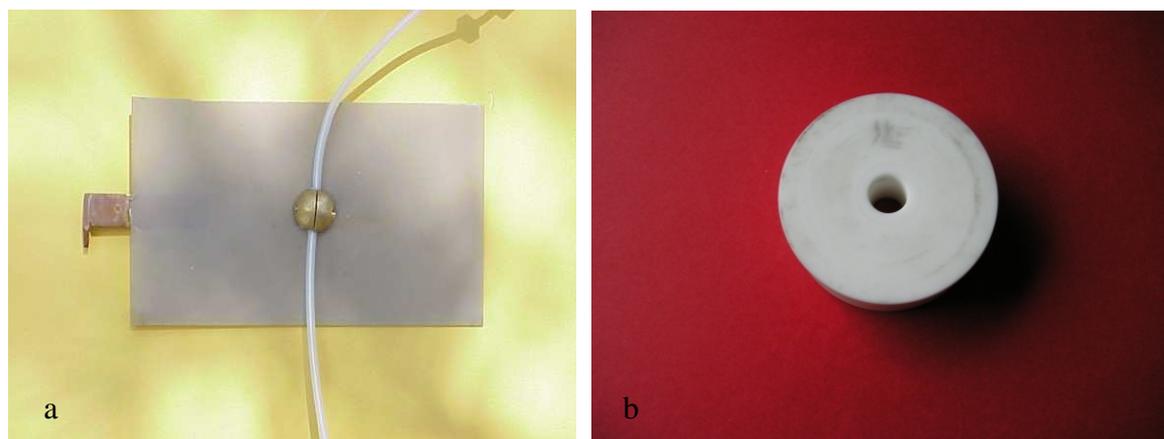


Figure 3-13(a) Dispositif de connexion du fil haute tension à la plaque d'ALN : (b) Traversée isolante en Macor pour supporter l'électrode pointe ou plan :

La haute tension continue, fournie par un générateur $0\pm 20\text{kV}$ Spellman RHSR/20PN60, est appliquée à l'électrode pointe et mesurée par une sonde HT connectée à un multimètre. Le circuit haute tension comprend une résistance (de 1 à $54\text{M}\Omega$) en série entre le générateur et la cellule afin de limiter le courant en cas de décharge haute énergie. La pointe en tungstène et les appareils de mesure sont ainsi protégés.

Le fil base tension reliant le plan aux appareils de mesure du courant est un câble coaxial blindé dont seul le blindage métallique est thermalisé. Le courant moyen induit par les différents phénomènes pouvant se produire dans le liquide est mesuré par un électromètre Keitley 610C (gamme 10^{-13}A à 10^{-3}A). La variation temporelle du courant est mesurée à l'aide d'un dispositif adapté en impédance (50Ω) comprenant un préamplificateur ($\times 46$, bande passante 100MHz) connecté à un oscilloscope Tektronix TDS540. L'émission de lumière est détectée simultanément à l'aide d'un photomultiplicateur (Modele 56A VP DARIO) dont la réponse spectral est comprise entre 300 et 650nm (maximum de sensibilité à 400nm) relié à l'oscilloscope. Si un régime d'impulsion de courant est observé, la fréquence des impulsions est mesurée à l'aide d'un fréquencemètre Philips.

3.7 Analyse spectroscopique

La lumière émise par les phénomènes, se produisant dans la zone à champ élevé près de l'électrode pointe, est analysée à l'aide d'un ensemble comprenant un spectrographe plan Acton Research Corporation (ARC) et un détecteur optique multicanal. Le détecteur 2D-

CCDTKB-UV/AR est situé directement dans le plan de sortie du spectrographe. Une ou deux lentilles sont utilisées pour focaliser la lumière sur la fente d'entrée du spectrographe. Le dispositif de mesure spectroscopique est schématisé sur la Figure 3-14.

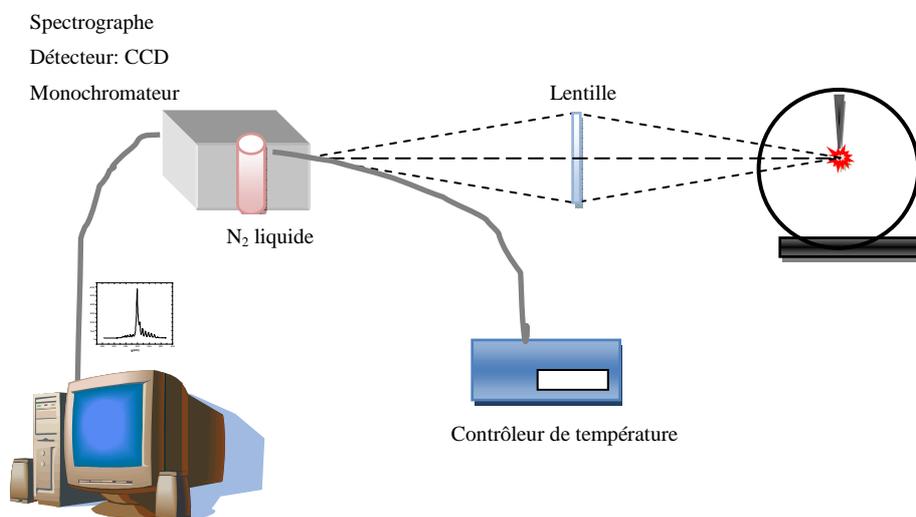


Figure 3-14 Schéma du dispositif de mesure spectroscopique.

3.7.1 Spectrographe

La lumière émise est analysée à l'aide d'un spectrographe ARC, modèle Spectra Pro-300i-de focale 300mm et ouverture f/4,0, équipé d'une tourelle de trois réseaux dont les caractéristiques sont rassemblées dans le Tableau 3-4. Sa résolution maximale est 0,12nm avec un réseau de 1200 traits/mm.

Tableau 3-4 Caractéristiques des réseaux pour le spectrographe "Acton reseach Corporation"

Réseaux (traits/mm)	Fenêtre spectrale (nm)	Blazé (nm)	Dispersion (nm/élément)
150	260	500	0,507
1200	33	300	0,065
1200	33	750	0,065

La détection de la lumière sortant du spectrographe est effectuée par un détecteur CCD-2D refroidi à l'azote liquide, appelé « LN/CCD », travaillant à la température de -120°C. Le détecteur LN/CCD est piloté par un contrôleur (modèle ST-138, Princeton Instrument, Inc) qui permet de contrôler l'acquisition et la gestion du détecteur. Le détecteur 2D (modèle LN/CCD 512F&SB, Princeton Instruments, Inc) comprend un ensemble de 512×512 pixels (dimension de chaque pixel 24×24 µm) dont la hauteur et largeur totale est 12,3mm. Le bruit de fond est faible (≈1 photoélectron/heure), ce qui permet l'acquisition de spectres sans la nécessité de les corriger du bruit de fond même pour des acquisitions de longue durée.

L'acquisition des spectres est pilotée par un ordinateur en utilisant le logiciel d'acquisition des données « Winspec ».

Dans la plupart des cas, l'acquisition des spectres de la lumière émise a été effectuée par accumulation sur des durées longues afin d'obtenir des spectres exploitables.

Pour éliminer les effets de second ordre qui apparaissent pour des longueurs d'onde supérieures à 400nm, on place des filtres large bande à l'entrée du monochromateur (Lot-Oriel).

3.7.2 Calibration

Le détecteur permet une analyse spectrale dans le domaine 200-1100nm. Le signal de sortie du détecteur nous donne le nombre de photoélectrons par pixel. Il est donc indispensable d'effectuer une calibration en longueur d'onde et en intensité du détecteur. La calibration en longueur d'onde s'effectue à l'aide de lampes étalons. La calibration en intensité de l'ensemble lentilles, spectrographe et détecteur est plus complexe. Nous avons effectué une correction en intensité relative de la fenêtre spectrale étudiée et donc les spectres mesurés seront corrigés en valeur relative.

3.7.2.1 Calibration en longueur d'onde et fonction d'appareil

Nous avons utilisé une lampe étalon basse pression argon et hélium pour calibrer un spectre dans une certaine fenêtre spectrale et pour un réseau donné. On fait l'acquisition des spectres de la lampe, puis la calibration en longueur d'onde du détecteur est effectuée connaissant les longueurs d'onde des raies émises par la lampe dans la fenêtre spectrale choisie. On peut ensuite identifier la longueur d'onde des différents constituants de la lumière émise par la décharge. Dans la fenêtre spectrale souhaitée, l'élargissement instrumental est déterminé en mesurant le profil d'une raie émise par une lampe étalon basse pression. En effet dans ces conditions, l'élargissement mesuré de la raie ne dépend que de l'ensemble de mesure. Par exemple pour une raie d'hélium à 728nm (Figure 3-15), nous avons déterminé un élargissement instrumental de $\Delta\lambda=0,1\text{nm}$.

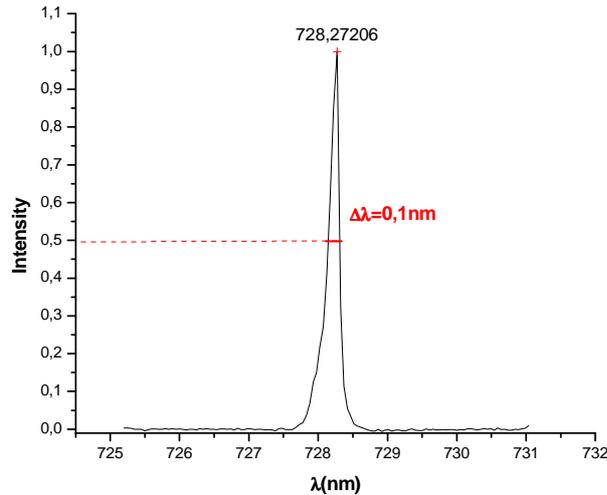


Figure 3-15 Lampe étalon basse pression à gaz hélium

3.7.2.2 Sensibilité du montage optique

Pour une fenêtre spectrale donnée, l'intensité mesurée en fonction de la longueur d'onde dépend de la source d'émission mais également des différents éléments de la chaîne de mesure (réseau, photocathode, etc.). Une calibration en intensité est donc nécessaire, c'est-à-dire que le spectre mesuré devra être corrigé afin de prendre en compte tous les éléments de la chaîne de mesure. Pour effectuer cette calibration nous avons utilisé une lampe étalon à filament de tungstène (LW) calibrée en intensité (NIST). Le spectre mesuré de cette lampe étalon dans nos conditions expérimentales est ensuite comparé à son spectre en intensité réelle afin d'en déduire les courbes de correction relative correspondant à chaque fenêtre spectrale souhaitée. Les spectres de la lampe étalon pour chaque réseau du spectrographe ARC sont montrés sur les Figure 3-16, Figure 3-17 et Figure 3-18.

L'ensemble de la procédure utilisée est la suivante :

- Etalonnage en longueur d'onde de la fenêtre spectrale choisie (réseau et longueur d'onde centrale) ;
- Acquisition du spectre de la lampe étalon en intensité et détermination de la courbe de correction en fonction de la longueur d'onde, connaissant les valeurs de l'intensité données par le fabricant de la lampe.

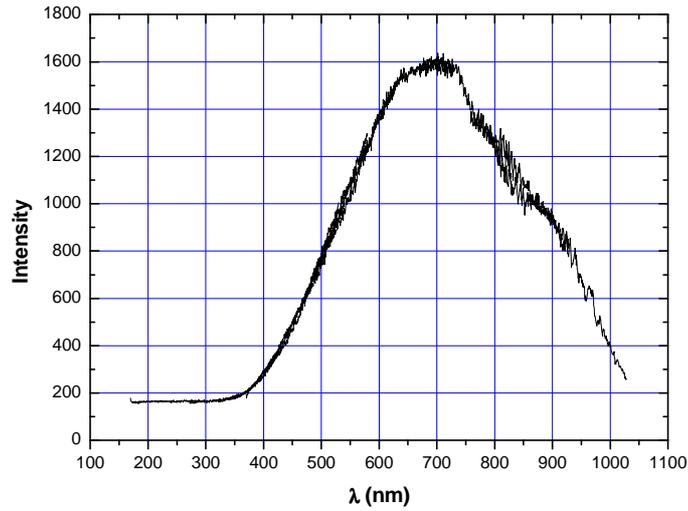


Figure 3-16 Spectre mesuré de la lampe étalon LW avec le réseau 150tr/mm.

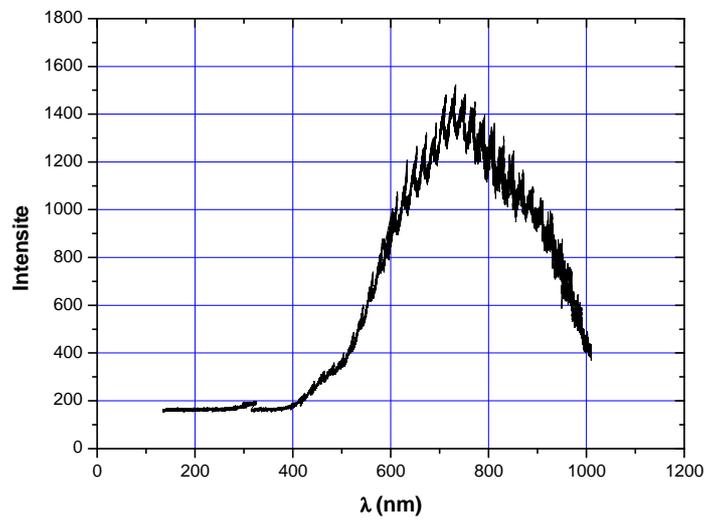


Figure 3-17 Spectre mesuré de la lampe étalon LW avec le réseau 1200tr/mm et 750nm de blaze.

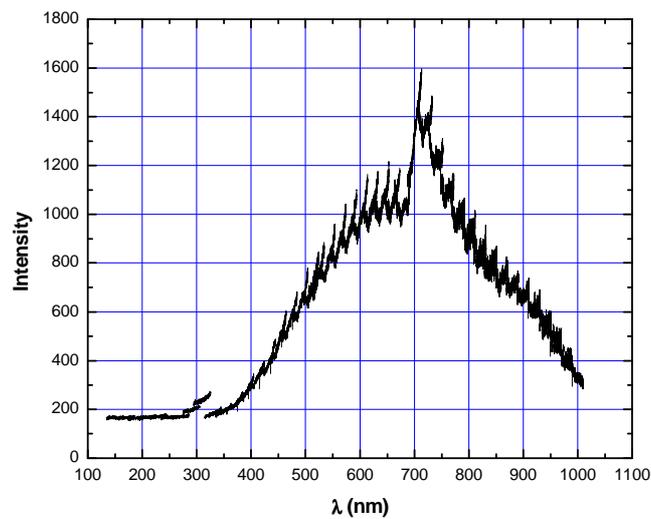


Figure 3-18 Spectre mesuré de la lampe étalon LW avec le réseau 1200tr/mm et 300nm de blaze.

Chapitre 4 Phénomènes de conduction électrique en champ intense dans l'hélium liquide

4.1 Introduction

Ce chapitre présente les caractéristiques électriques (courant moyen-tension, courant en fonction du temps, etc.), les phénomènes induits dans la zone de décharge (érosion, bulles) et l'analyse de la région de transport des porteurs de charge produits par une décharge couronne dans l'hélium liquide. Nos résultats sur le transport des charges sont ensuite comparés à ceux issus d'autres études. Enfin, l'influence de la température sur les phénomènes observés - et donc du passage de l'état liquide au fluide supercritique - est présentée.

Avant de décrire les résultats expérimentaux, nous rappelons que, en géométrie pointe-plan avec un très faible rayon de courbure de la pointe et une densité élevée du fluide, les phénomènes observés se répartissent en deux régions distinctes : une région d'ionisation confinée près de la pointe et une région de transport (voir chapitre I).

Ces deux régions présentent les caractéristiques suivantes :

- I. Région d'ionisation. Le champ électrique, très intense au voisinage de la pointe, conduit à l'ionisation du fluide et, à une émission de lumière, sur une longueur maximale beaucoup plus faible (de l'ordre de r_p) que la distance pointe-plan. Le calcul montre que toute la charge est créée dans cette région. La température T_p de cette région, assimilée à un plasma, est inconnue. Par contre, sa pression est égale à la pression hydrostatique P appliquée sur le liquide. La densité N_p ne pourra être calculée qu'après avoir déterminée T_p à partir de l'analyse spectrale de la lumière émise par la région d'ionisation ;
- II. La région de transport ne présente aucune luminosité. Le champ y est insuffisant pour pouvoir créer de la charge. Dans ces conditions, sa température et sa pression correspondent à la température T et la pression P de l'essai.

Sur la Figure 4-1, nous avons schématisé les deux régions et leurs conditions de température et pression. La densité $N=f(T, P)$ est donc connue.

Nous avons effectué des mesures dans le cryostat en faisant varier la température de 4,2 à 10K et la pression hydrostatique de 0,1 à 10MPa, ce qui correspond à un domaine de densité (N) de $1,3 \times 10^{21}$ à $3,12 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$. Pour les essais avec l'hélium gazeux à 300K, nous avons travaillé dans la gamme de pression 0,1-4MPa.

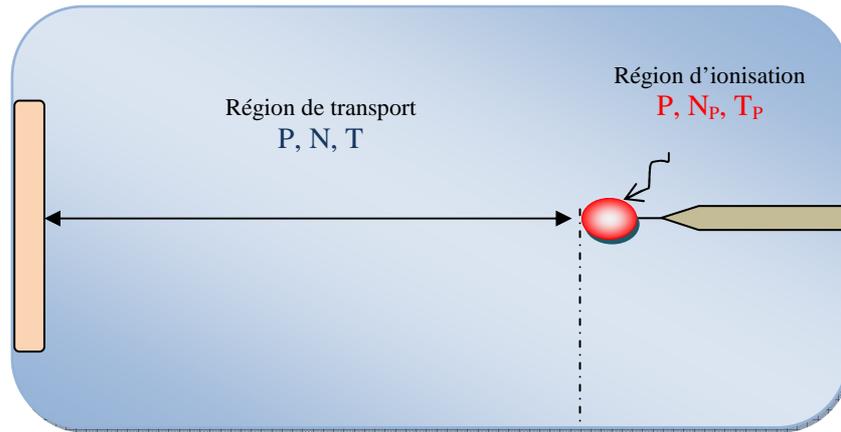


Figure 4-1 Illustration des deux régions de la décharge couronne.

4.2 Caractéristiques électriques et phénomènes induits dans l'hélium liquide

Aucun courant n'est mesurable au-dessous d'une tension seuil V_s . Au-dessus de V_s , un courant est détecté ($\sim 10^{-12}$ A) qui augmente rapidement avec la tension. Le courant mesurable est toujours corrélé avec une émission de lumière près de la pointe.

Si la pointe est portée à un potentiel négatif, il y a injection d'électrons par la pointe et formation d'une zone ionisée autour de la pointe. Pour une pointe portée à une tension positive, l'apparition d'une zone d'ionisation nécessite l'existence d'électrons germes dans le volume autour de la pointe où le champ dépasse un certain champ critique. Les mécanismes de création des électrons germes sont très divers (rayonnement, radioactivité, détachement d'ions négatifs, ionisation d'impuretés, etc.) et difficiles à prédire.

Dans la zone de champ intense autour de la pointe, les charges de signe opposé à celui de la pointe (e.g. les ions positifs pour la pointe cathode) sont très rapidement collectées par celle-ci et il reste les charges du même signe que celui de la pointe qui migrent vers le plan sous l'action du champ électrique. Cette zone de charge unipolaire est appelée région de dérive.

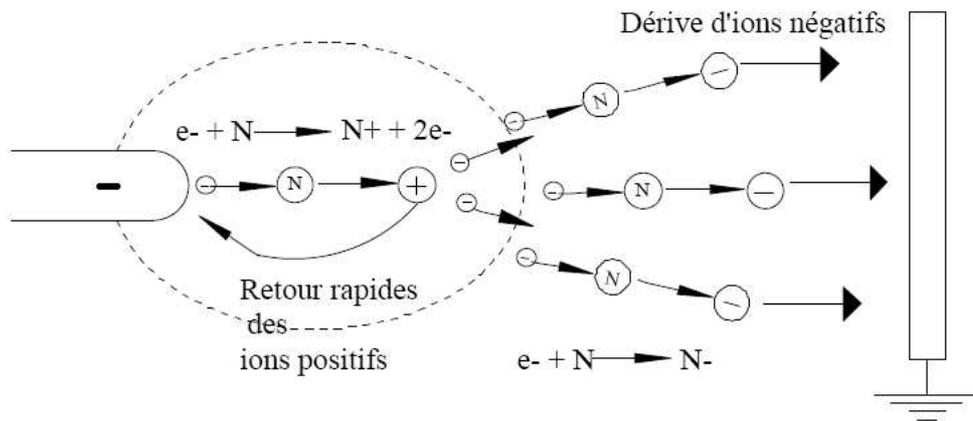


Figure 4-2 Descriptif de la décharge couronne négative.

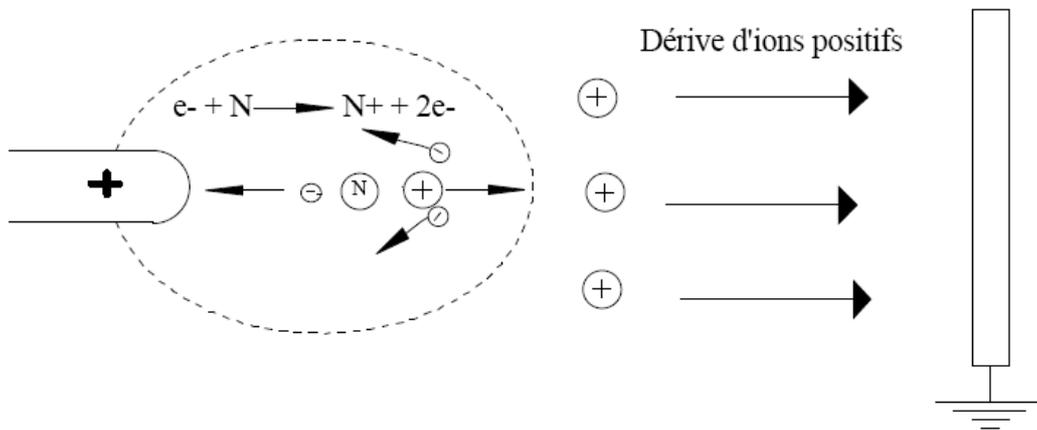


Figure 4-3 Descriptif de la décharge couronne positive.

4.2.1 Caractéristiques courant moyen-tension

Les Figure 4-4 et Figure 4-5 montrent les caractéristiques courant moyen-tension de l'hélium liquide pour les polarités négative et positive obtenues avec $r_p=0,45\mu\text{m}$ et $d=6\text{ mm}$. Les caractéristiques $I(V)$ correspondant à ces différentes polarités sont similaires.

Pour la polarité négative ou positive, un courant moyen mesurable apparaît quand V dépasse une valeur seuil V_s qui est notée par une flèche rouge vers le haut sur les Figure 4-4 et Figure 4-5, correspondant au champ électrique E_s sur la pointe. Ensuite, le courant augmente rapidement avec V puis plus lentement. Quand le courant atteint une valeur d'environ 10^{-7} A , il devient limité par la charge d'espace. Avec la diminution de la tension appliquée, l'extinction du courant se produit à une tension V_{ex} , plus faible que V_s (flèche rouge vers le bas, **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**). Cette différence entre V_s et V_{ex} a été également observée par Goncharov et al. (Goncharov, et al., 1974). Quand la tension appliquée diminue, nous obtenons une courbe $I(V)$ différente de celle obtenue en augmentant la tension.

Pour la polarité négative, nous observons un courant très faible (quelques 10^{-12} A) à partir d'une valeur seuil de la tension et ensuite une transition rapide à 10^{-8} A - 10^{-7} A (Li, et al., 2005; Li, et al., 2006). Dans cette région, il est possible d'obtenir des points intermédiaires et la caractéristique $I(V)$ montre un courant qui fluctue dans le temps. Quand le courant atteint la valeur de 10^{-7} A, il devient stable et correspond à la région de limitation par la charge d'espace (Figure 4-4).

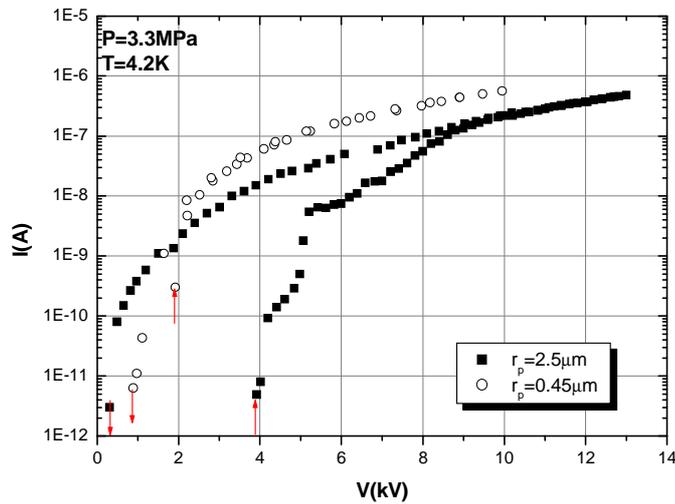


Figure 4-4 Caractéristique courant moyen-tension pour la polarité négative ; (\circ) $r_p = 0,45 \mu\text{m}$, $d = 6 \text{ mm}$ et, (\bullet) $r_p = 2,5 \mu\text{m}$, $d = 8 \text{ mm}$ dans LHe à $T = 4,2 \text{ K}$, $P = 3,3 \text{ MPa}$.

Pour la polarité positive, nous observons un courant très faible dans un large domaine de tension (qq 10^{-13} A) puis, à une certaine tension seuil V_s , une transition brutale apparaît et le courant saute à une valeur de 10^{-8} - 10^{-7} A sans qu'il soit possible d'obtenir des points intermédiaires (Figure 4-5). Lorsque la tension diminue, comme pour la pointe cathode, l'extinction du courant se produit à une tension V_{ex} inférieure à V_s , et plus aucun courant n'est alors détectable. (Li, et al., 2006)

Dans toutes nos expériences, nous avons vérifié que la valeur du courant mesurée correspond bien à un courant unipolaire, c'est-à-dire qu'il est toujours inférieure au courant de saturation calculé pour un courant complètement limité par la charge d'espace (voir chapitre 1)

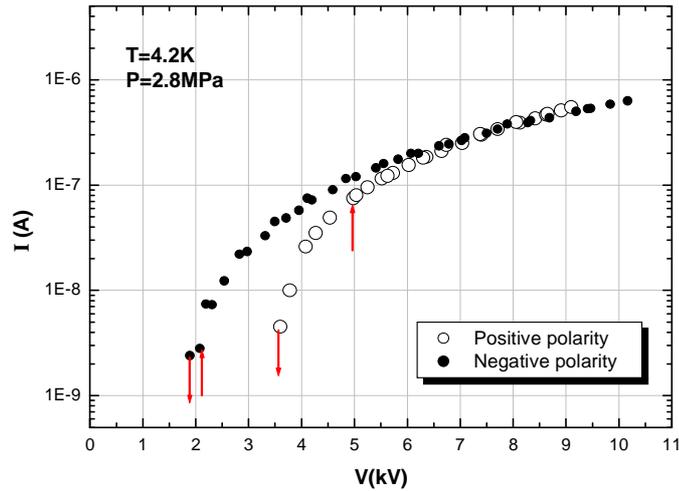


Figure 4-5 Caractéristique courant moyen-tension pour la polarité positive (○) et négative (●). $r_p=0,45\mu\text{m}$, $T=4,2\text{K}$, et $P=2,8\text{MPa}$.

4.2.2 Erosion de la pointe

Comme observé précédemment dans d'autres liquides, la tension seuil V_s dépend du rayon r_p de la pointe. D'autre part, pour une pointe d'un rayon de courbure initial donné, la tension seuil augmente aussi avec le nombre d'essais du fait de l'augmentation de son rayon de courbure au cours du temps par un phénomène d'érosion. Cette érosion doit provenir des phénomènes se produisant dans la région de décharge couronne près de la pointe : micro-plasma à température élevée, onde de choc émise au moment de la formation du plasma, etc.

Après une série de mesures sur une longue durée, l'inspection par microscopie électronique (MEB) de la pointe de tungstène montre non seulement que le rayon de courbure a considérablement évolué mais également que la surface est très endommagée (Figure 4-6).

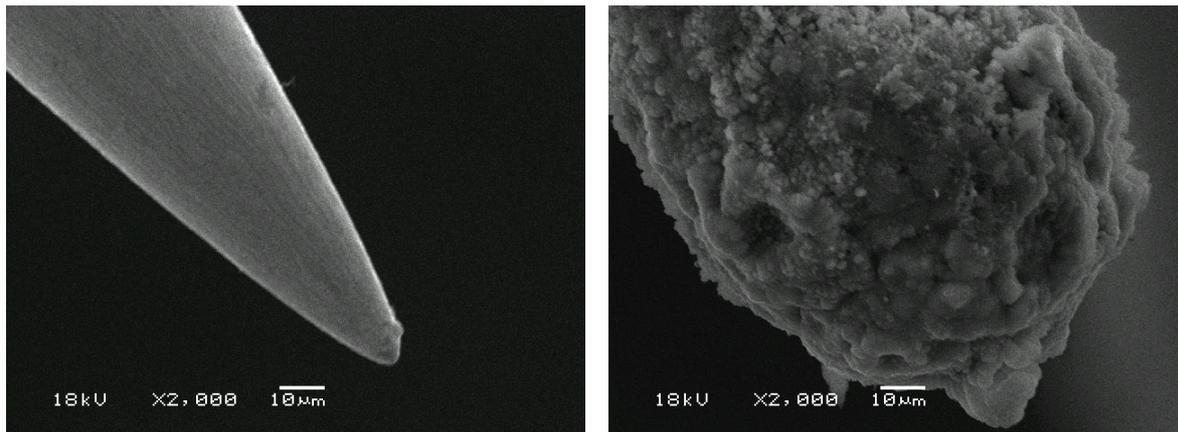


Figure 4-6 Profil de la pointe avant et après les essais.

4.2.3 Analyse des tensions seuils d'apparition et d'extinction

Le phénomène d'ionisation apparaît lorsque la tension appliquée est supérieure à une certaine valeur V_s ; V_s correspond à la génération de charge et à l'émission de lumière. La

tension d'extinction V_{ex} correspond au passage à un courant nul lorsque la tension diminue. (Li, et al., 2006; Goldschvartz, et al., 1966; Goncharov, et al.; Goncharov, et al., 1974).

Les mesures de V_s et V_{ex} ont été effectuées en fonction du rayon de courbure de la pointe et de la pression hydrostatique appliquée sur le liquide (Figure 4-7). La pression n'a pas d'influence évidente. Notons que sur la **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**, les points correspondent à la première utilisation de la pointe. On peut en conclure que V_s est pratiquement indépendant de la pression au moins jusqu'à 8MPa et que sa valeur moyenne est $V_s=3,0kV$ pour $r_p=2,5\mu m$ et $V_s=0,4kV$ pour $r_p=0,45\mu m$. Comme attendu, la tension seuil V_s croît avec r_p , ce qui explique pourquoi V_s augmente au cours du temps puisque l'érosion de la pointe fait croître progressivement son rayon de courbure.

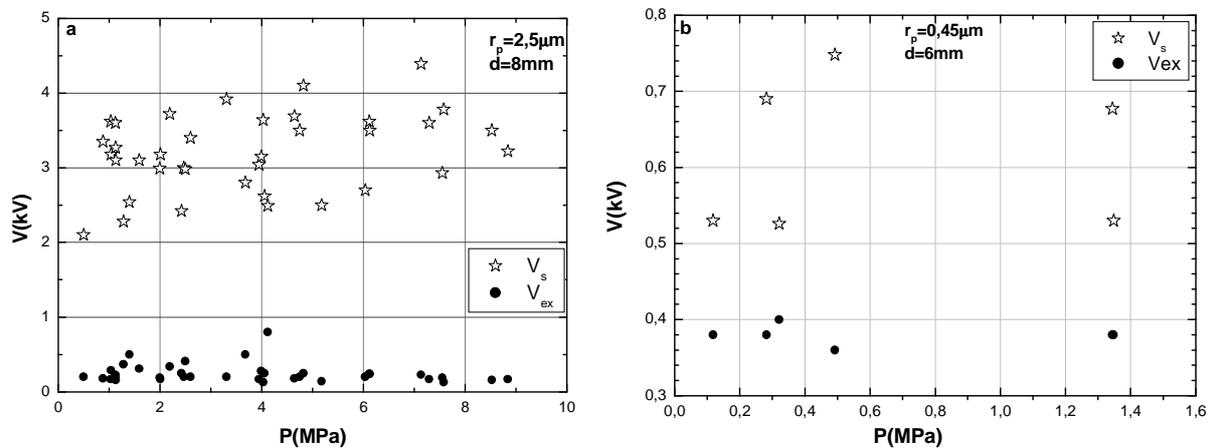


Figure 4-7 Tensions seuils V_s et V_{ex} en fonction de la pression P appliquée sur LHe en polarité négative à $T=4,2K$; (a) $r_p=2,5\mu m$ et (b) $r_p=0,45\mu m$.

Pour la pointe positive, la valeur moyenne de V_s est d'environ 4 fois plus élevée que celle de la pointe négative (Figure 4-8), Ces valeurs étant également déterminées lors de la première utilisation de la pointe. Pour des pressions $P > 8,0MPa$, il semble que la valeur de V_s augmente légèrement avec P (Figure 4-9).

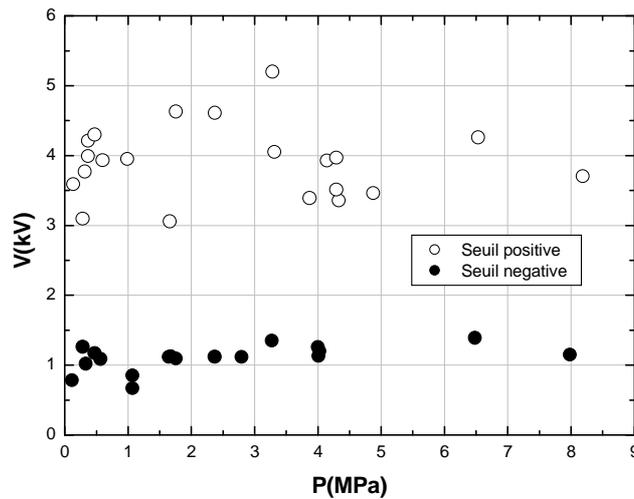


Figure 4-8 Comparaison de la tension V_s entre polarité négative et positive pour les conditions $r_p=0,45\mu\text{m}$, $d=6\text{mm}$ et $T=4,2\text{K}$.

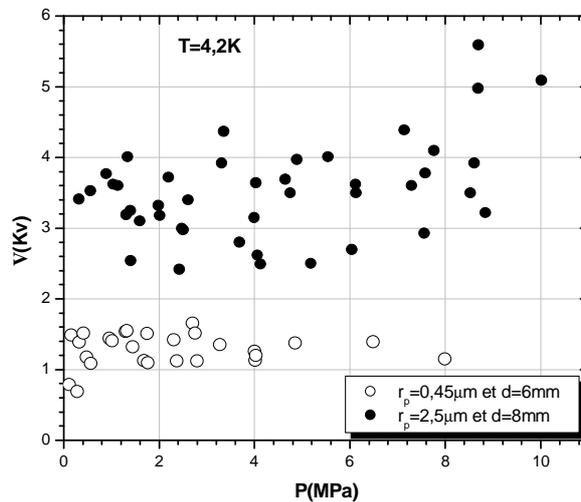


Figure 4-9 Comparaison des seuils de tension V_s en négatif en fonction de P pour $r_p=0,45\mu\text{m}$, $d=6\text{mm}$ et $r_p=2,5\mu\text{m}$, $d=8\text{mm}$ dans LHe à $T=4,2\text{K}$.

Dans l'approximation hyperboloïdale, le champ électrique E_s sur la pointe est donné par l'équation 1-2. En polarité négative, on en déduit une valeur $E_s \sim 3\text{-}4\text{MV/cm}$ et pour la polarité positive, $E_s \sim 15\text{ MV/cm}$.

Ces valeurs de champ seuil E_s pour le déclenchement d'un régime de décharges couronnes peuvent être comparées à des valeurs de champ E_b de claquage déterminées dans différentes expériences (Tableau 4-1). Goncharov et Levitov (Goncharov, et al.) ont étudié le claquage DC de l'hélium liquide en géométrie pointe-plan et ont constaté qu'en pointe positive la tension de claquage est environ 2 fois plus élevée qu'en pointe négative et que les valeurs de E_b^+ (champ sur la pointe positive pour obtenir le claquage) et de E_b^- (champ sur la pointe négative pour obtenir le claquage) sont proches de nos valeurs respectives de E_s . Le claquage en géométrie sphère-plan (champ quasi-uniforme) provient toujours de la cathode et

$E_b = E_b^-$ augmente avec la diminution de la distance sphère-plan (Goldschvartz, et al., 1966). En utilisant une géométrie pointe-plan, avec une distance pointe-plan d comparable au rayon de courbure r_p , on obtient également les conditions d'un champ très peu divergent et on observe à nouveau un champ de claquage E_b^+ 2 à 3 fois plus élevé que E_b^- et des valeurs comparables à nos valeurs de E_s .

Tableau 4-1 Champ seuil et champ de claquage dans l'hélium à $T=4,2K$

<i>Champ non-uniforme (géométrie pointe-plan)</i>								
r_p (μm)	d (mm)	Tension	P (MPa)	E_b^- (MV/cm)	E_b^+ (MV/cm)	E_s^- (MV/cm)	E_s^+ (MV/cm)	Ref
0,45	6	DC	0,1-8			3,4	15	(Li, et al., 2006)
2,5	8	DC	0,1-8			3,0		
10	9	DC	0,1	4,4	9,8			(Goncharov, et al.)
<i>Champ quasi-uniforme</i>								
2-3	0,03	impulsion 0,1 μs	0,1	9	18,30	$d \sim 10 r_p$		(Fujii, et al., 1979)
Sphère $\Phi=5mm$	0,1	DC	0,1	1,25				(Goldschvartz, et al., 1966)
	0,01	DC	0,1	3,2				
2-3	0,05	impulsion 6 μs	0,1	1,2	3	$d \sim 10-15 r_p$		(Yoshino, et al., 1970; Yoshino, et al., 1982)
	0,05	impulsion 0,1 μs	0,1	1,3	4			
	0,02	impulsion 6 μs	0,1	1,2	3			

De tous ces résultats (V_s indépendant de P et de la durée de l'impulsion de tension, etc.), nous pouvons conclure que le processus de décharge couronne se produit initialement dans la phase liquide et non pas dans une cavité gazeuse préalablement créée par un mécanisme quelconque.

4.2.4 Phénomènes induits dans le liquide par le régime de décharge couronne

Comme pour tous les liquides précédemment étudiés (Bonifaci, 1992), pour $V > V_s$, nous avons observé les phénomènes suivants dans l'hélium liquide à 4,2K.

- Il est constitué d'impulsions sur une certaine gamme de tension dont l'amplitude augmente avec V_s et la fréquence avec la tension appliquée. La durée de l'impulsion positive est plus grande que celle de l'impulsion négative (Figure 4-10) ;
- Les impulsions sont également corrélées à des impulsions de lumière émise (Figure 4-11) ;
- Chaque impulsion induit également la formation systématique d'une bulle de vapeur près de la pointe (montrée en utilisant le montage optique décrit chapitre 3) (Figure 4-12).

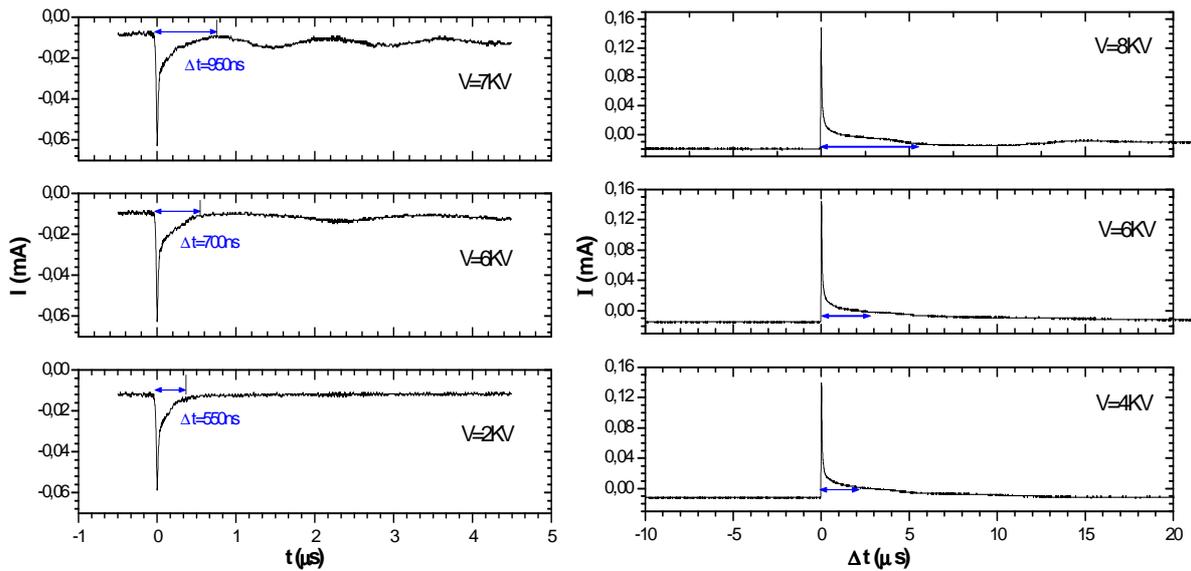


Figure 4-10 Impulsions de courant en fonction de la tension négative ou positive appliquée sur la pointe dans LHe à $P=2,7\text{MPa}$.

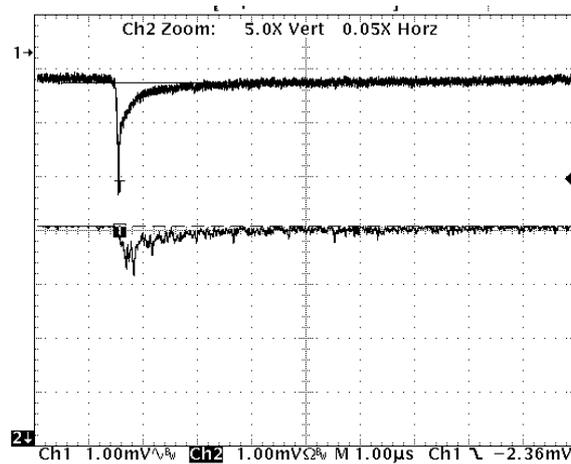


Figure 4-11 Oscillogramme du signal de courant (en haut) et de lumière émise mesurée par photomultiplicateur(en bas).

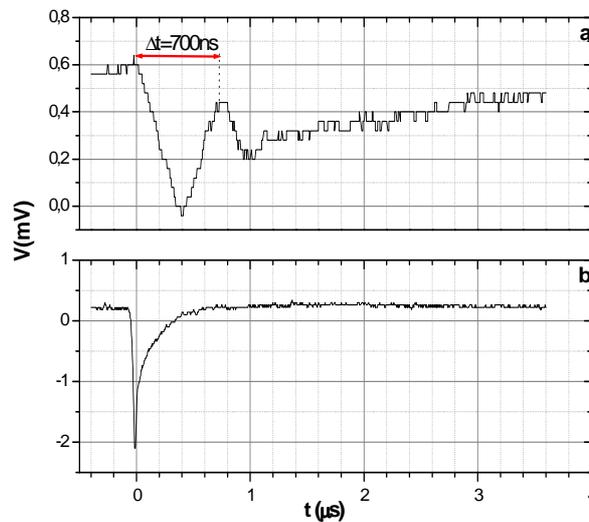


Figure 4-12 Oscillogramme du signal de la photodiode (a) et de l'impulsion de courant (b).

Cependant dans l'hélium liquide, contrairement aux résultats dans les autres liquides (e.g. les gaz liquéfiés comme l'azote ou l'argon) les impulsions de courant sont toujours superposées à un courant continu de valeur importante (l'amplitude maximale I_{\max} de l'impulsion de courant est comparable à celle du courant moyen I_m , $I_{\max} \cong I_m$) et, le domaine où apparaissent les impulsions, dépend fortement de la tension appliquée et de la pression P . Nous allons décrire plus en détail ces particularités observées dans l'hélium liquide.

4.2.4.1 Régime d'impulsions de courant dans LHe

Le régime d'impulsions de courant n'existe que sur un certain domaine de tension appliquée et celui-ci dépend de la pression P . Nous avons défini les différents paramètres que nous allons utiliser par la suite sur la **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**

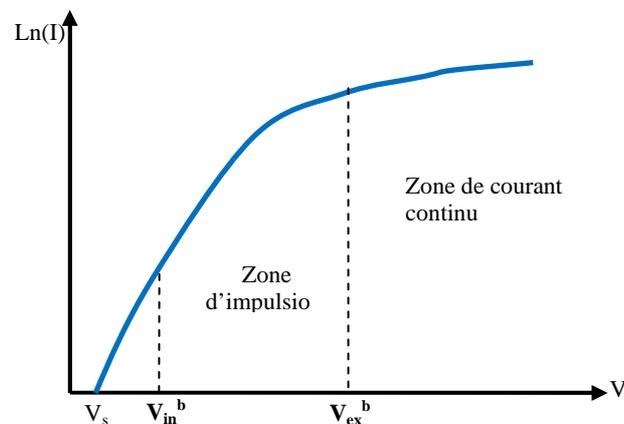


Figure 4-13 Zone d'impulsions pour une pression donnée.

Lorsque V augmente au delà de V_s , le régime d'impulsions apparaît à V_{in}^b puis disparaît à V_{ex}^b . En effet, pour $V > V_{ex}^b$ le courant devient continu. Les variations de V_{in}^b et V_{ex}^b avec P sont montrées sur la Figure 4-14 pour la polarité négative et pour la polarité positive avec $r_p = 0,45 \mu\text{m}$.

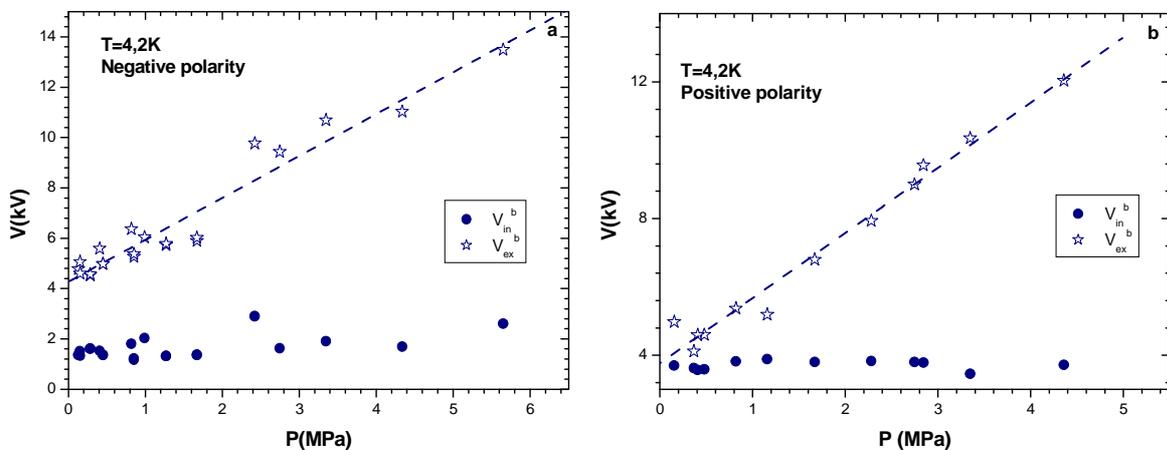


Figure 4-14 Tensions V_{in}^b et V_{ex}^b en fonction de P pour (a) la polarité négative et ; (b) la polarité positive, $T=4,2\text{K}$.

Dans nos essais, nous avons établi que V_{in}^b est pratiquement égal à V_s , bien que nous ne puissions pas mesurer simultanément V_{in}^b (déduit de $I(t)$) et V_s (déduit de I moyen(V)). Si une différence existe elle est de toute façon inférieure à quelques centaines de volts. D'autre part, lorsque la tension appliquée est décroissante, l'hystérésis observée sur le courant moyen (définie par les seuils V_s et V_{ex}) et également observée sur le régime d'impulsions de courant.

En tension croissante, le régime d'impulsions apparaît dans l'intervalle de tension ($V_{ex}^b - V_{in}^b$), et cet intervalle croît de façon importante avec P (Figure 4-14). Comme chaque impulsion de courant produit une bulle près de la pointe, la disparition des impulsions pour $V > V_{ex}^b$ pourrait indiquer que plus aucune bulle transitoire n'est formée (avec le montage optique utilisé nous n'avons plus détecté de dynamique de bulles) mais qu'une cavité permanente près de la pointe apparaît. Cette hypothèse reste à être vérifiée expérimentalement.

4.2.4.2 Fréquence des impulsions de courant

Comme attendu, la fréquence F des impulsions croît avec la tension appliquée et donc avec le courant moyen. En régime de décharges couronne, il est bien établi que le courant moyen I_m est proportionnel à la fréquence F des impulsions, soit :

$$I_m = QF$$

4-1

Cette relation est approximativement vérifiée dans le cas de l'hélium liquide (Figure 4-15). On remarque également que la pression appliquée n'a pas d'influence sensible sur la relation $I_m(F)$. La constante Q correspond à une charge moyenne par impulsion. On peut alors comparer la charge par impulsion Q_i , déterminée par intégration du signal $I(t)$ de l'oscilloscope, et la charge moyenne Q . On obtient un rapport Q_i/Q d'environ 0,1-0,3, et ce rapport croît faiblement avec la pression. Tous ces résultats sont comparables à ceux obtenus dans les autres liquides précédemment étudiés (gaz liquéfiés, hydrocarbures purifiés) (Denat, et al., 1988; Bonifaci, 1992; Haidara, 1988). A l'exception du fait que le régime d'impulsions disparaît à tension élevée.

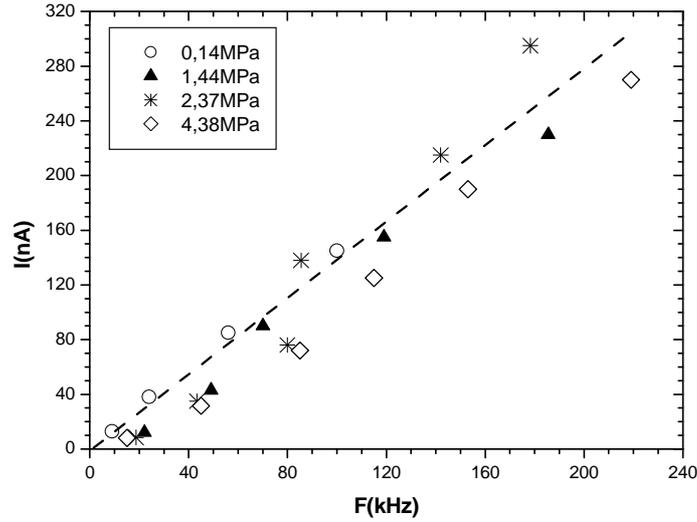


Figure 4-15 Courant moyen I_m en fonction de la fréquence F des impulsions pour différentes pressions P , $T=4,2K$.

4.2.4.3 Détermination du rayon de la bulle formée près de la pointe

Comme il a été montré dans une étude antérieure (Kattan, et al., 1989), chaque impulsion de courant dans un liquide correspond à une injection rapide et localisée d'énergie W_i qui produit l'émission d'une onde de choc/pression puis d'une bulle de vapeur transitoire. W_i est estimée, connaissant la charge par impulsion Q_i et le seuil en tension V_{in}^b par $W_i \cong Q_i V_{in}^b$.

Le rayon maximum de la bulle peut être calculé en employant un modèle thermodynamique simple qui postule que toute l'énergie injectée électriquement est entièrement utilisée pour chauffer et évaporer une certaine masse m de liquide ($m = (4/3)\pi R_w^3 \rho_\infty$; ρ_∞ étant la masse volumique à P et T) de rayon R_w donné par :

$$R_w = K \left(\frac{W_i}{P} \right)^{1/3}$$

4-2

où K est un coefficient prenant en compte la transformation thermodynamique. Il a l'expression suivante (Qotba):

$$K = \left[\left(\frac{3}{4\pi} \right) \frac{R_g T_b}{W_{eb}} \right]^{1/3}$$

4-3

et,

$$W_{eb} = \int_{T_\infty}^{T_b} C_p(T) dT + L_v(T_b)$$

4-4

Où W_{eb} est l'énergie requise pour vaporiser 1 mole de liquide, R_g est la constante des gaz parfaits ($8,31JK^{-1}mol^{-1}$), C_p la capacité calorifique du liquide à pression constante, et T_b et L_v sont respectivement, la température d'ébullition du liquide et, la chaleur latente de

vaporisation, à la pression P appliquée. Ces dernières quantités n'étant définies que pour un changement de phase à $T < T_c$ et $P < P_c$, la modèle ne peut être utilisé qu'à la condition que la pression appliquée soit inférieure à la pression critique du liquide. Dans le cas de l'hélium, comme $T_c = 5,2\text{K}$ et $P_c = 0,223\text{MPa}$, le domaine de validité du modèle est donc excessivement réduit.

Il a été cependant montré (Qotba, 2005) pour $P > P_c$, qu'il est possible d'estimer l'énergie W_{eb} par la méthode suivante. Si on trace les coordonnées (P, T) du maximum de $C_p(T/T_c)$ pour $P > P_c$ (Figure 4-16), on obtient des valeurs des maximums qui prolongent rigoureusement la courbe de pression de vapeur saturante dans le domaine supercritique (Figure 4-17).

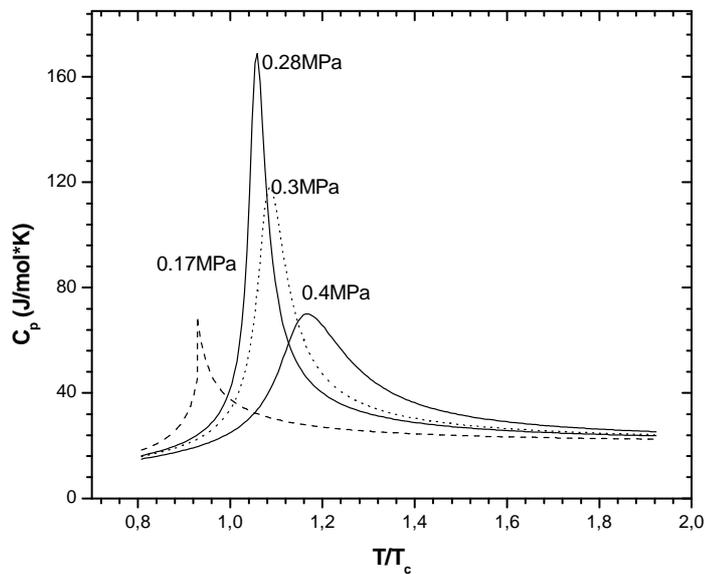


Figure 4-16 Evolution de la capacité calorifique C_p en fonction de la température pour différentes pressions dans l'hélium.

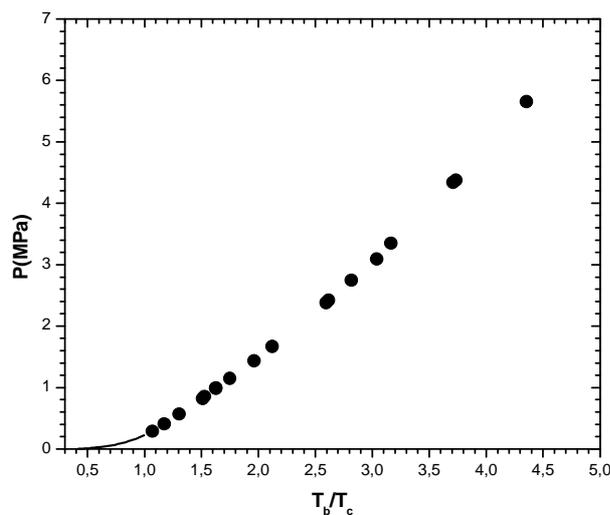


Figure 4-17 Courbe de pression de vapeur saturante (pour $T < T_c$) et les points correspondants au maximum de C_p dans la région supercritique de l'hélium.

Le maximum du C_p représente une transition liée à un changement de densité du milieu dans la région supercritique, transition qui peut être assimilée à un changement de phase d'ordre supérieur dans le domaine $P > P_c$. On peut ensuite supposer que la courbe de pression de vapeur saturante et son prolongement dans le domaine supercritique représente les conditions de l'équilibre local que la bulle va atteindre lorsque $R=R_w$ (Figure 4-17)

Pour le domaine super critique (où $L_v=0$), nous pouvons alors évaluer approximativement W_{eb}^* par l'expression : $W_{eb}^* = \int_{T_\infty}^{T_b^*} C_p(T) dT$ avec T_b^* déduit de la courbe de la

Erreur ! Source du renvoi introuvable. pour $P > P_c$. Une nouvelle évaluation du coefficient K , appelé K_c , est ensuite effectuée en utilisant une équation d'état modifiée du type Amagat, qui conduit à l'expression suivante (Qotba, 2005) :

$$K_c = \left[\frac{RT_b^* Z_A + PM / \rho_\lambda}{(4\pi/3) W_{eb}^*} \right]^{1/3}$$

4-5

Avec M la masse molaire (4g/mol) et ρ_λ la masse volumique (0,1785kg/mol) de l'hélium au point λ ($T=2,17K$). Z_A est le facteur de compressibilité donné par $Z_A = 1 - \frac{2,172}{T_b^*}$.

Nous avons alors calculé K (avec W_{eb} si $P \leq P_c$ et W_{eb}^* si $P > P_c$) et K_c à l'aide de l'équation 4-5 en fonction de P . On remarque que, les variations avec P , de K et K_c sont semblables et que K_c est toujours légèrement inférieure à K (Figure 4-18 (a)). Le rayon R_w de la bulle est ensuite évalué avec les valeurs de K puis de K_c en fonction de P . Une différence appréciable entre les rayons apparaît uniquement aux pressions inférieures à 1MPa (Figure 4-18(b)).

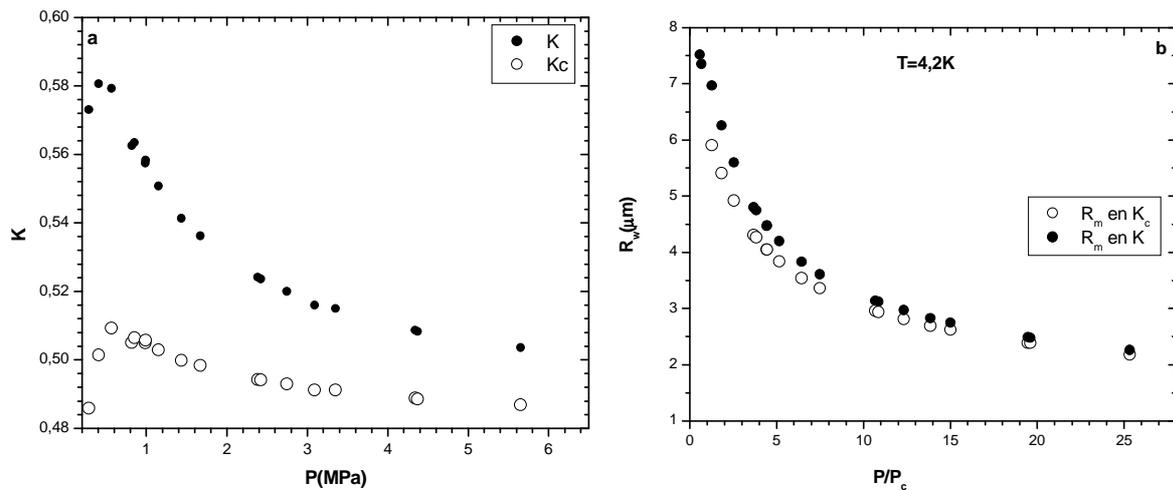


Figure 4-18 (a) K et K_c calculés en fonction de la pression P et (b) rayon de la bulle R_w calculé avec les valeurs respectives de K et K_c en fonction de P/P_c .

Dans les liquides faiblement visqueux, il a été établi par de nombreux auteurs que le rayon maximum de la bulle (appelé R_m pour le distinguer de R_w) est relié à la durée de vie Δt du premier cycle expansion-implosion de la bulle (voir Figure 4-11(a) par l'équation de Rayleigh:

$$\Delta t = 1,83 R_m \sqrt{\frac{\rho_\infty}{P}}$$

4-6

Le rayon R_m est alors déduit de la détermination expérimentale de Δt (Figure 4-12 (a)). En remplaçant R_m dans l'équation 4-5 par R_w donné par l'équation 4-2, on en déduit que $\Delta t \propto P^{-5/6}$. Ce résultat a été bien vérifié dans tous les liquides précédemment étudiés (Kattan, et al., 1989; Qotba, 2005). Dans l'hélium liquide, bien que le nombre de points expérimentaux soit faible et leur dispersion importante, on peut estimer que la variation $\Delta t(P)$ suit approximativement la loi attendue (**Erreur ! Source du renvoi introuvable.**)

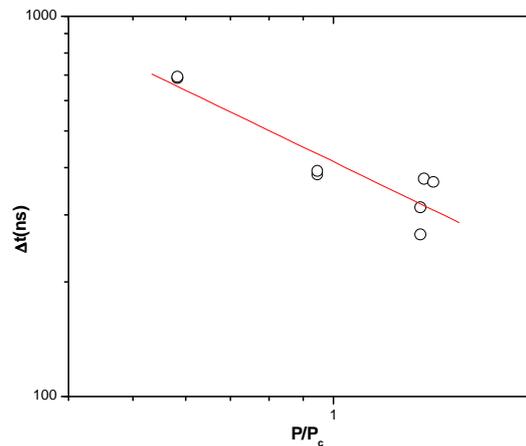


Figure 4-19 Durée expérimentale du premier cycle de la bulle en fonction de P/P_c . La droite représente la variation en $(P/P_c)^{-5/6}$.

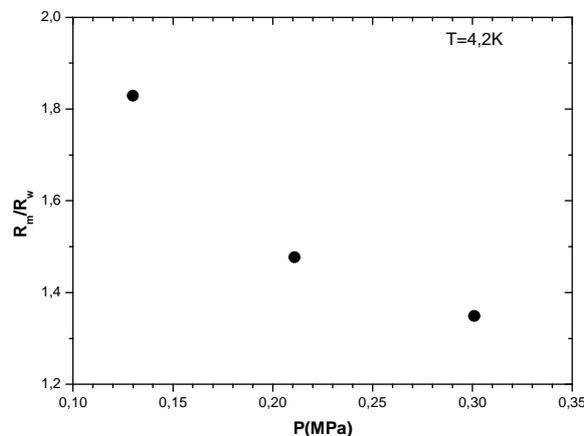


Figure 4-20 Rapport R_m/R_w en fonction de la pression pour LHe à 4,2K

R_m , déduit de Δt , est ensuite comparé à R_w calculé d'après l'énergie déposée. On observe sur la Figure 4-20, où nous avons tracé le rapport R_m/R_w en fonction de P , que ce

rapport qui vaut environ 1,5, diminue légèrement avec l'augmentation de la pression. Rappelons que dans les autres liquides étudiés ce rapport est indépendant de P et il est toujours inférieur à 1 ($\sim 0,8-0,9$). Ceci provient du fait que toute l'énergie déposée est supposée chauffer le liquide alors qu'une partie de cette énergie est dissipée dans l'émission d'une onde de choc. Cette anomalie observée dans l'hélium peut provenir de plusieurs causes. Tout d'abord, nous avons calculé l'énergie par intégration de l'impulsion de courant qui ne prend pas en compte le fort courant continu, l'énergie est donc sous-estimée. Ensuite, la durée de l'impulsion de courant n'est pas négligeable devant la durée de vie de la bulle, ceci peut modifier sa dynamique. Enfin, le modèle énergétique de changement de phase que nous avons utilisé n'est peut-être pas entièrement extrapolable à l'hélium liquide où le domaine liquide est excessivement réduit ($\sim 1\text{K}$). De nouvelles expériences sont nécessaires pour confirmer puis expliquer ces résultats.

4.2.5 Mobilité des porteurs de charge dans l'hélium liquide

Comme nous l'avons indiqué dans l'introduction, la génération des porteurs de charge se produit dans le volume confiné près de la pointe, par contre le reste de l'espace pointe/plan est la région de leur transport. Comme nous avons montré au paragraphe 4.2.1 que le courant moyen mesuré est toujours unipolaire, la mobilité des porteurs pourra être déduite de l'analyse des caractéristiques courant moyen –tension.

Dans les liquides, les caractéristiques courant moyen –tension sont décrites par l'équation I-16. D'autre part, le champ moyen dans la zone de transport étant faible, de l'ordre de V/d ($\sim 10\text{kV/cm}$ dans nos essais), la mobilité déduite des courbes $\sqrt{I}(V)$, sera pratiquement égale à la mobilité extrapolée à champ nul. En effet, Schwarz et al (Schwarz, 1972) ont montré que la mobilité reste constante jusqu'à un champ de quelques kV/cm dans l'hélium à $4,2\text{K}$.

La mobilité des charges négatives et positives a été étudiée en fonction de la pression appliquée sur l'hélium liquide à $4,2\text{K}$. Nous présentons maintenant les résultats obtenus

4.2.5.1 Mobilité de porteurs de charge négative

Il est connu que les porteurs de charge dans l'hélium liquide ne sont pas simplement des électrons libres ou des ions He^+ . En effet, un électron injecté dans l'hélium liquide est thermalisé en quelques picosecondes en créant une pseudo-bulle chargée dont le rayon varie entre 10\AA et 17\AA selon la pression appliquée sur le liquide. Le porteur positif He^+ , en revanche, forme une petite sphère d'hélium solidifié par le champ d'électrostriction ou éventuellement forme un ion moléculaire du type : He_n^+ .

La mobilité électronique ($0,02\text{cm}^2/\text{Vs}$) mesurée dans l'hélium liquide à $T=4,2\text{K}$ est de 4 ordres de grandeur plus faible que la valeur prédite par la théorie cinétique pour la même densité $N=2,2\times 10^{22}\text{cm}^{-3}$.

Pour la polarité négative, les courbes $I_m(V)$, pour la région contrôlée par la charge d'espace ($V \gg V_s$), sont montrées sur la Figure 4-21. Avec l'augmentation de la pression, les courbes courant moyen-tension sont déplacées vers des tensions plus élevées. Les courants mesurés à $P=0,1\text{MPa}$ sont parfois instables, mais ce phénomène disparaît rapidement lorsque la pression augmente.

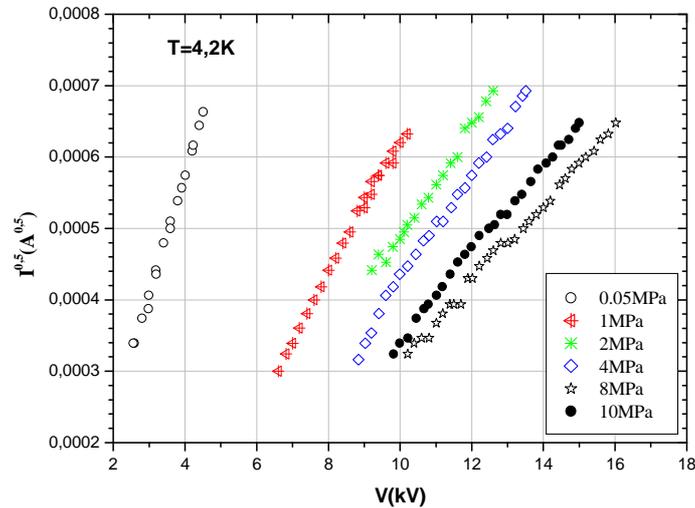


Figure 4-21 Caractéristiques courant moyen-tension en fonction de la pression. $T=4,2\text{K}$, $r_p=2,5\mu\text{m}$ et $d=6\text{mm}$.

Ensuite, les courbes $\sqrt{I_m(V)}$ étant toujours des droites, nous avons calculé, à l'aide de l'équation 1-16, les valeurs des mobilités des porteurs négatifs en fonction de P (Figure 4-22).

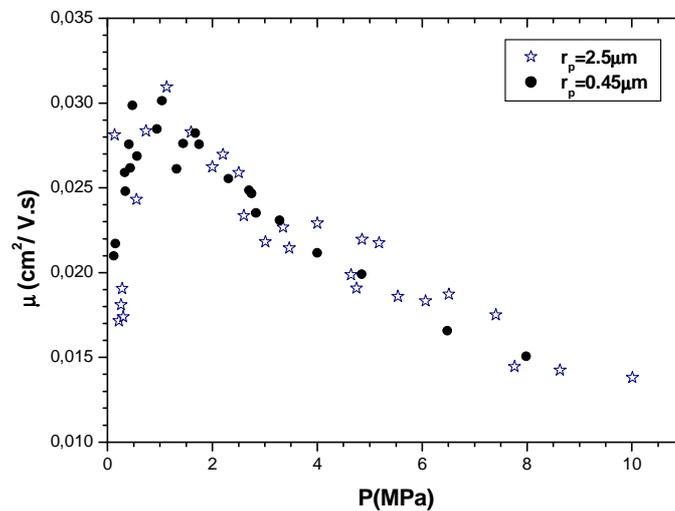


Figure 4-22 Mobilité de porteurs négatifs dans ^4He liquide à $4,2\text{K}$ en fonction de P pour les rayons de pointe : $r_p=2,5\mu\text{m}$ et $0,45\mu\text{m}$.

La mobilité est indépendante de r_p mais elle varie de façon non-monotone en fonction de la pression hydrostatique. Aux faibles pressions ($<1\text{MPa}$), la mobilité augmente avec P , puis lorsque $P > 1\text{MPa}$, la mobilité diminue avec l'augmentation de pression. Aux pressions les

plus élevées ($P > 8 \text{MPa}$), la valeur de la mobilité semble atteindre une valeur limite constante $\sim 0,013 \text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$.

4.2.5.1.1 Comparaison avec des mesures directes

La méthode directe de détermination des mobilités consiste à mesurer le temps de transit de la charge entre deux électrodes planes et parallèles en fonction de la tension et de la distance entre les électrodes, la mobilité est alors déduite directement de ces mesures. Meyer (Meyer, et al., 1962) et Keshishev (Keshishev, et al., 1969) ont mesuré la mobilité des électrons dans l'hélium liquide à 2,2K, 3,0K et 4,2K, en fonction de la pression hydrostatique. Les valeurs de mobilité qu'ils ont obtenues sont comparées à nos résultats (Figure 4-23). On remarque que nos valeurs sont identiques à celles de Meyer mais plus élevées que celles de Keshishev. Par contre, les variations observées en fonction de la pression sont similaires.

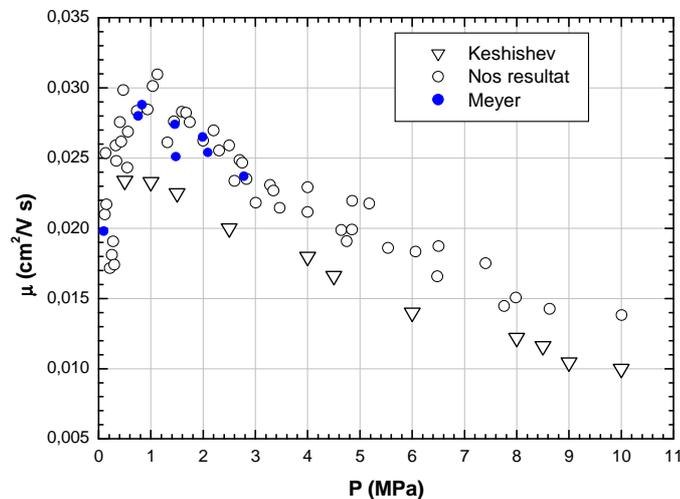


Figure 4-23 Comparaison entre les mobilités négatives mesurées par Meyer (Meyer, et al., 1962), Keshishev (Keshishev, et al., 1969) et nos résultats.

4.2.5.1.2 Modèle de la pseudo-bulle électronique

Cette variation de la mobilité avec P a été expliquée par la compétition entre l'effet de la pression sur le rayon de la pseudo-bulle et celui sur la viscosité du liquide. Cette diminution semble, au premier abord, étonnante ; on s'attendrait à ce que le rayon de la pseudo-bulle électronique diminue lorsque P augmente et donc à une augmentation de la mobilité. Mais, du fait des propriétés de l'hélium, si le rayon de la bulle diminue avec P , cette réduction est compensée par une augmentation de la viscosité avec P . Rappelons que le modèle de la pseudo-bulle a été présenté en détail dans le chapitre 1.

Nous avons tracé sur la Figure 4-24 la mobilité théorique, calculée à l'aide du modèle de la pseudo-bulle, ainsi que les points expérimentaux à 4,2K de Meyer, Keshishev et les nôtres. On remarque que la courbe théorique est située nettement au-dessous de tous les points expérimentaux et que la valeur de pression pour laquelle la mobilité est maximale est située à une pression nettement inférieure (0,1MPa au lieu de 10MPa).

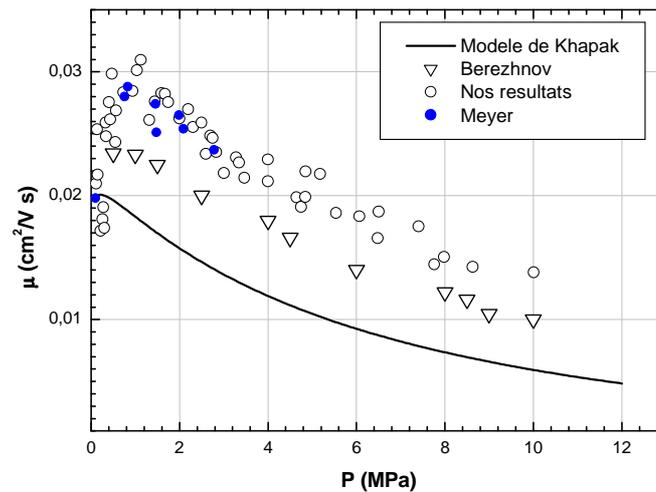


Figure 4-24 Comparaison entre les valeurs expérimentales et la mobilité déduite du modèle de pseudo-bulle à $T=4,2K$.

Il semble donc que le modèle de la pseudo-bulle ne soit pas entièrement satisfaisant. Pour obtenir une meilleure prédiction des mobilités dans l'hélium, un modèle heuristique, basé sur la notion de volume libre, a été développé au laboratoire par F. Aitken, nous allons le décrire rapidement.

4.2.5.1.3 Modèle d'Aitken

Dans ce modèle, on considère que les particules se déplacent approximativement dans l'espace « libre » entre les atomes en mouvement, cet espace est le volume libre du fluide V_{libr} (i.e. covolume). Il est déduit d'une équation d'état du fluide de type $(P_{\text{ext}} + \Pi)V_{\text{libr}} = kT$, équation générale de Hirn) qui conduit à l'évaluation du rayon du porteur de charge R_p , du fait que $V_{\text{libr}} = (4\pi/3)R_p^3$, soit :

$$R_p = \sqrt[3]{\frac{3kT}{4\pi(P_{\text{ext}} + \Pi)}}$$

4-7

L'interprétation du terme Π correspond à une pression interne liée à des forces d'attraction. Π est une fonction de la densité et de T , mais dans le cas des mobilités négatives, cette pression est faible et elle ne dépend pratiquement que de la température. Dans l'état actuel du modèle, Π n'a pas encore été évalué théoriquement. Aussi la valeur du paramètre Π a été ajustée de telle sorte que les courbes expérimentales et théoriques coïncident ; le modèle reste donc semi-empirique.

Le rayon R_p , une fois calculé, est introduit dans l'équation de Millikan-Cunningham qui est l'adaptation de l'équation de Stokes pour de petites particules, afin de pouvoir calculer la mobilité. On obtient l'équation suivante :

$$\mu = \frac{e}{4\pi \left(\frac{R_p}{C}\right) \eta}$$

4-8

où η est la viscosité du fluide et C est une constante intrinsèque au liquide :

Nous avons utilisé ce modèle pour calculer la mobilité des porteurs de charge dans l'hélium liquide en fonction de la pression pour différentes températures. A chaque température (2,2K, 3K, et 4,2K), la variation théorique est en bon accord avec la variation observée expérimentalement en fonction de la pression. Et, si on ajuste la constante C à une température donnée (par exemple à 3K sur les points de Meyer), les valeurs expérimentales et théoriques et leurs variations sont en très bon accord. Notons également que la position du maximum est prédite (Figure 4-25).

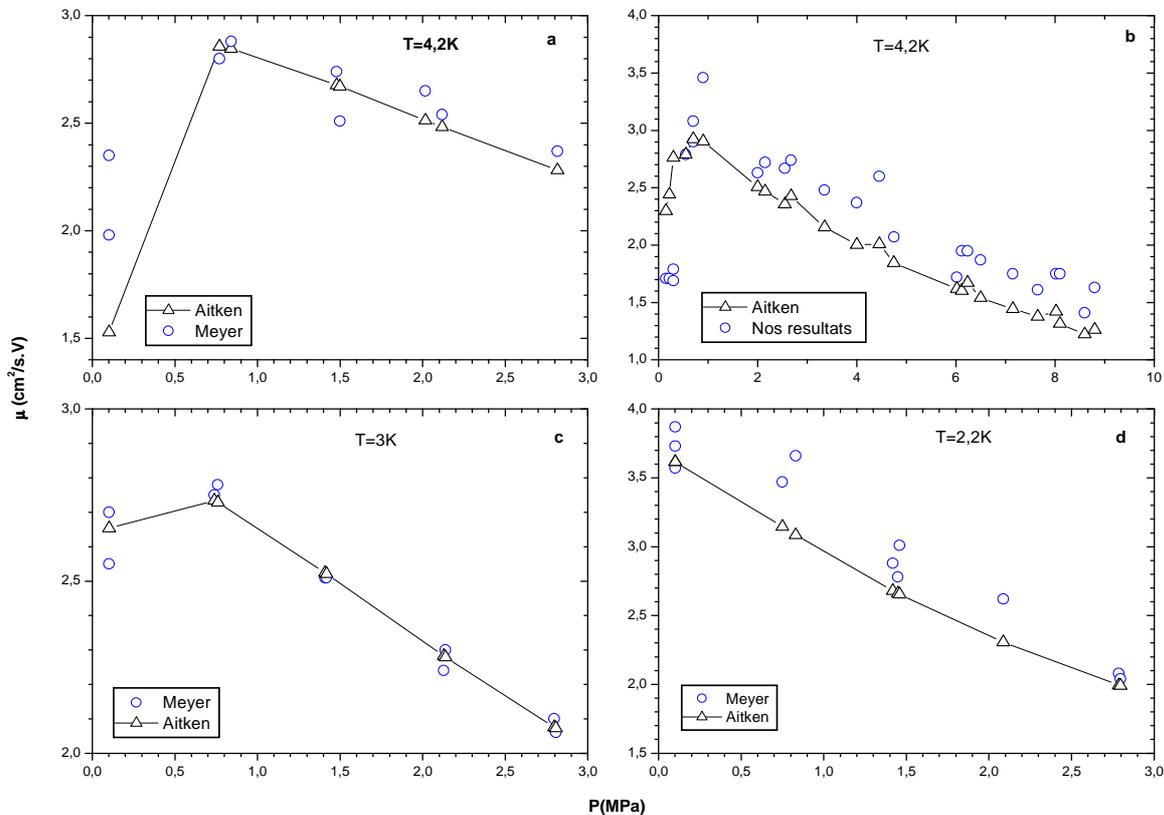


Figure 4-25 Comparaison entre les valeurs expérimentales de Meyer et les nôtres et la mobilité déduite du modèle d'Aitken pour les températures de (a,b) 4,2K, (c) 3K et (d) 2,2K.

4.2.5.2 Mobilité de la charge positive

Pour la polarité positive appliquée sur la pointe, de rayon de courbure $r_p=2,5\mu\text{m}$, et jusqu'à une tension de 8,3kV à $P=0,1\text{MPa}$, le courant n'est pas mesurable. De peur d'atteindre la tension de claquage, nous n'avons pas augmenté la tension au-delà de cette valeur. En conséquence, tous les résultats que nous allons décrire concerneront des essais effectués avec la pointe de $r_p=0,45\mu\text{m}$ avec $d=6\text{mm}$. Comme pour la polarité négative, dans la région où

$V \gg V_s$, la courbe $\sqrt{I_m}(V)$ est une droite dont la pente et l'ordonnée à l'origine varient avec P (Figure 4-26).

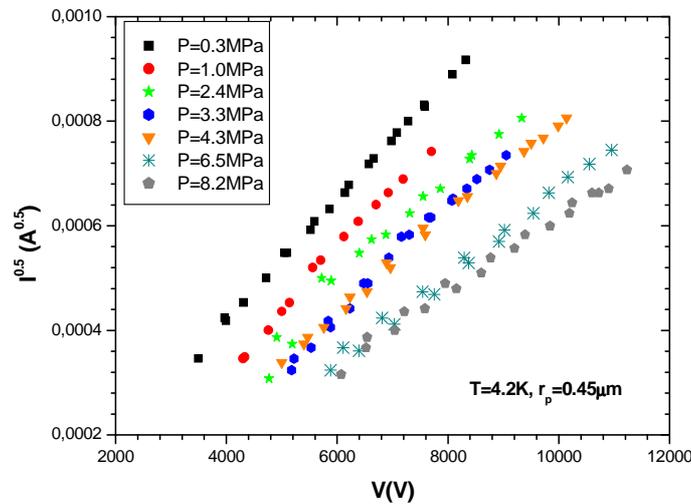


Figure 4-26 Caractéristiques courant moyen-tension pour différentes pressions. Polarité positive $T=4,2K$, $r_p=0,45\mu m$ et $d=6mm$.

La mobilité de porteurs positifs est ensuite déduite de la valeur de la pente des droites $\sqrt{I_m}(V)$. La variation de la mobilité μ^+ en fonction de P est représentée sur la Figure 4-27).

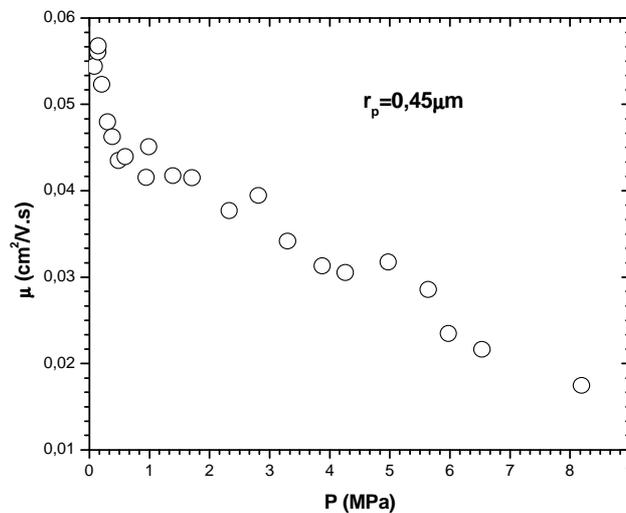


Figure 4-27 Mobilité des porteurs positifs dans ${}^4\text{He}$ à $T=4,2K$ en fonction de P . $r_p=0,45\mu m$ et $d=6mm$.

En comparant les **Erreur ! Source du renvoi introuvable.** et **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**, on observe que la mobilité positive est toujours supérieure à la mobilité négative et qu'elle décroît de façon monotone avec l'augmentation de P . La variation $\mu^+(P)$ est différente de celle observée pour la mobilité négative qui présente un passage par un maximum à une pression de 1MPa à 4,2K.

4.2.5.2.1 Comparaison avec les mesures directes

Des mesures de la mobilité positive, par la méthode du temps de transit, ont été effectuées par Meyer (Meyer, et al., 1962) et Keshishev (Keshishev, et al., 1969). Sur la Figure 4-28, nous avons rassemblé les résultats des auteurs précédents ainsi que nos mesures. On remarque que les courbes $\mu^+(P)$ présentent une allure similaire. Aux pressions $P < 0,8 \text{ MPa}$, les valeurs de Meyer sont identiques à nos valeurs alors que celles de Keshishev sont toujours inférieures. Pour $P > 0,8 \text{ MPa}$, nos valeurs sont toujours plus élevées que celles de Meyer et Keshishev.

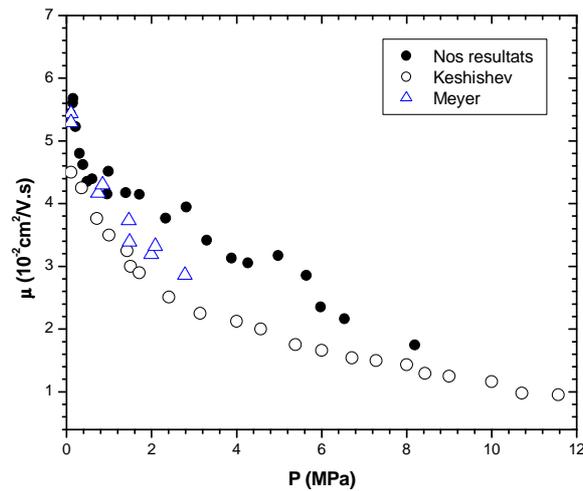


Figure 4-28 Comparaison de nos résultats sur les mobilités positives avec ceux de Keshishev et Meyer.

Un modèle théorique a bien été proposé par Atkins et al. Pour décrire les variations de $\mu^+(P)$ mais faute de précisions sur les paramètres intervenant dans ce modèle, nous n'avons pas pu l'utiliser. Par contre, en utilisant l'approche d'Aitken, modifiée avec libre parcours moyen, nous pouvons décrire de façon très satisfaisante la courbe $\mu^+(P)$ à 4,2K (Figure 4-29). Remarquons que dans le cas des ions He^+ , la force d'attraction ion/atome est importante.

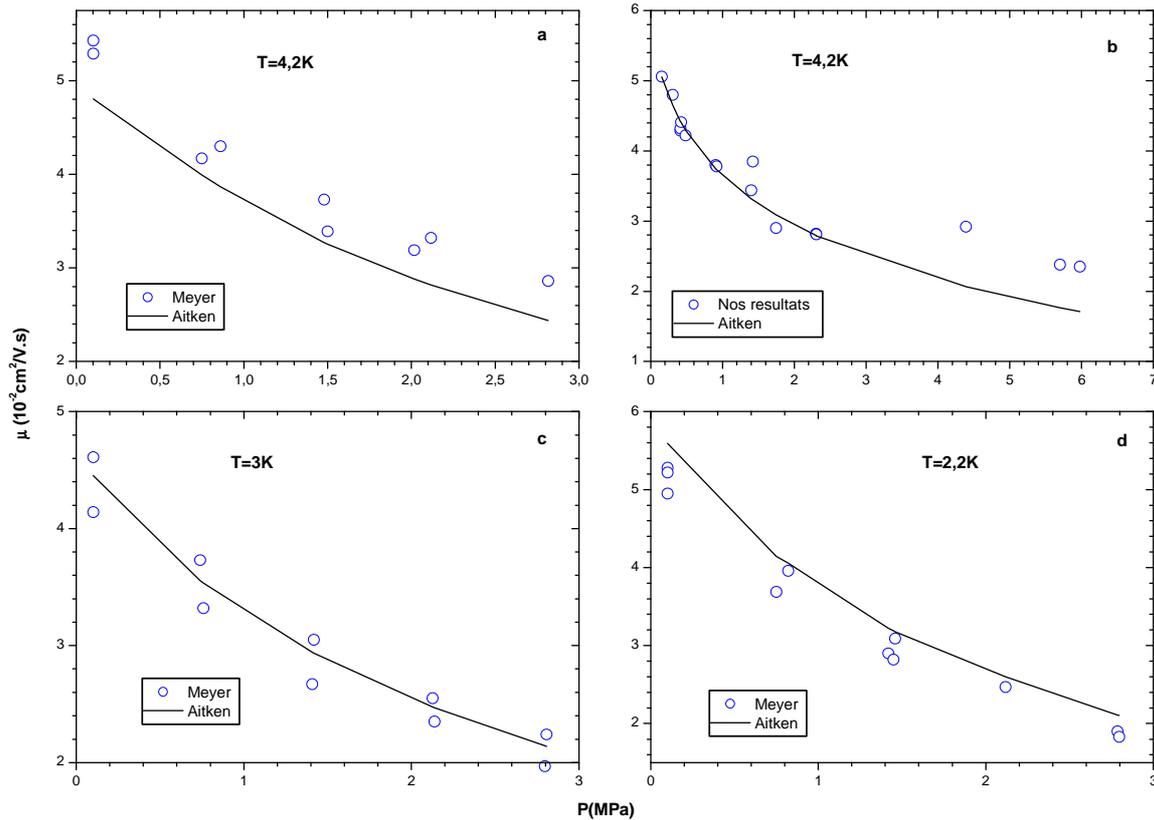


Figure 4-29 Comparaison entre les valeurs expérimentales de Meyer et les nôtres et la mobilité positive déduite du modèle d'Aitken pour les températures de (a,b) 4,2K, (c) 3K et (d) 2,2K.

4.3 Influence de la température

Nous avons étudié l'effet du passage de l'état liquide à un fluide supercritique sur les phénomènes précédemment décrits pour l'hélium liquide à 4,2K. Nous avons effectué des essais à 7K et 10K, températures supérieures à la température critique de l'hélium ($T_c=5,2K$). Nous allons présenter les résultats obtenus.

4.3.1 Seuil de tension

Comme pour les essais à 4,2K, le courant est mesurable à partir d'une tension seuil V_s et, lorsqu'on diminue la tension, le courant devient indétectable à une tension d'extinction V_{ex} . La différence ($V_s - V_{ex}$) est importante et de l'ordre de 1kV (Figure 4-30). Les valeurs de V_s sont très dispersées et il est donc difficile d'analyser l'influence de la pression sur ces valeurs avec certitude. En effet, dans un fluide, la densité augmente avec P et, en conséquence, le seuil de décharge couronne devrait augmenter avec la pression. Rappelons que dans le cas d'un liquide, la densité évolue très peu avec la pression, et V_s est donc indépendant de P , comme nous l'avons toujours observé. Dans l'hélium, comme attendu, les points à 4,2K (= hélium liquide) ne varient pas de façon appréciable avec la pression, et les points à 10K (= fluide supercritique), montrent l'augmentation avec P . Par contre, les points à 7K ne montrent

pas cette tendance. Les valeurs de V_s mesurées à 4,2K, 7K et 10K, sont rassemblées sur la Figure 4-31.

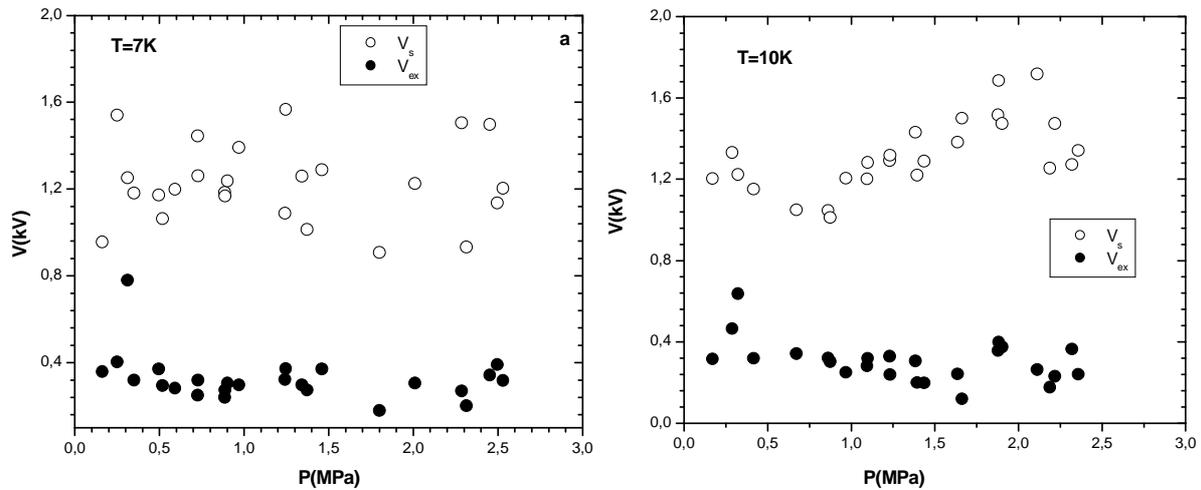


Figure 4-30 Tensions seuils V_s et V_{ex} en fonction de P pour (a) $T=7K$ et (b) $T=10K$.

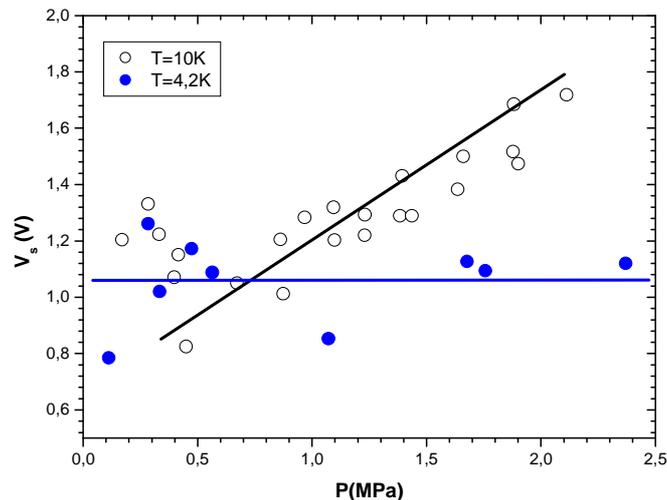


Figure 4-31 Tensions seuils V_s en fonction de P pour $T=4,2, 7$ et $10K$ en polarité négative de la pointe avec $r_p=0,45\mu m$.

La détermination précise de V_s en fonction de P , dans le fluide supercritique, devra être effectuée pour vérifier sans ambiguïté l'influence de la densité sur le seuil d'apparition du régime de décharge couronne.

4.3.2 Mobilité

Pour $T=7$ et $10K$, on mesure un courant très faible (quelques $10^{-12}A$) à partir d'une valeur seuil de la tension et ensuite une transition l'amenant à 10^{-8} - $10^{-7}A$ comme nous l'avons déjà observé à $4,2K$. (Figure 4-32)

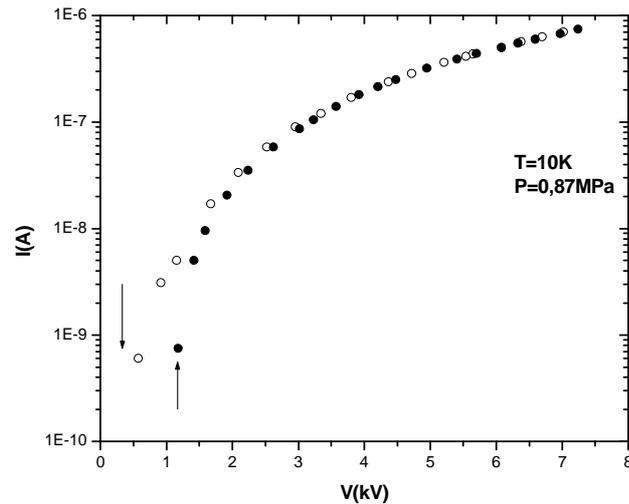


Figure 4-32 Caractéristique courant moyen –tension pour la polarité négative de la pointe à $T=10\text{K}$, $r_p=0,45\mu\text{m}$ et $P=0,87\text{MPa}$.

La Figure 4-33 montre que, comme pour les essais dans LHe, les courbes $\sqrt{I_m}(V)$ sont des droites pour $V \gg V_s$. Nous en avons déduit la mobilité des porteurs de charge négative et positive pour les températures de 7 et 10K et pour des pressions allant de 0,1 à 3,5MPa (soit des densités variant de 10^{21} à 10^{22}cm^{-3}).

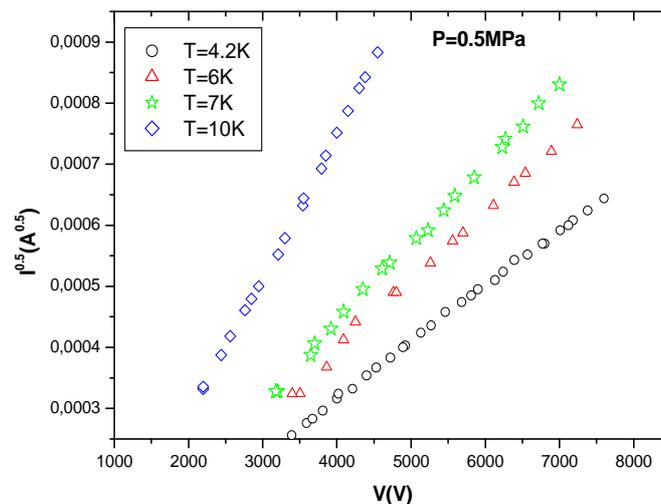


Figure 4-33 Courbes $\sqrt{I_m}$ en fonction de la tension V pour $T=10\text{k}$, 7K , 6K , et $4,2\text{K}$ à $P=0,5\text{MPa}$.

Pour une pression donnée, la mobilité varie très peu entre 4,2 et 5,9K puis plus rapidement pour $T > 6,6\text{K}$ (Figure 4-34(a) pour les charges négatives). Si on trace la variation de la mobilité en fonction de la densité N , pour une pression donnée, on observe, comme attendu, que la mobilité décroît lorsque la densité augmente (Figure 4-34(b)) pour les charges négatives).

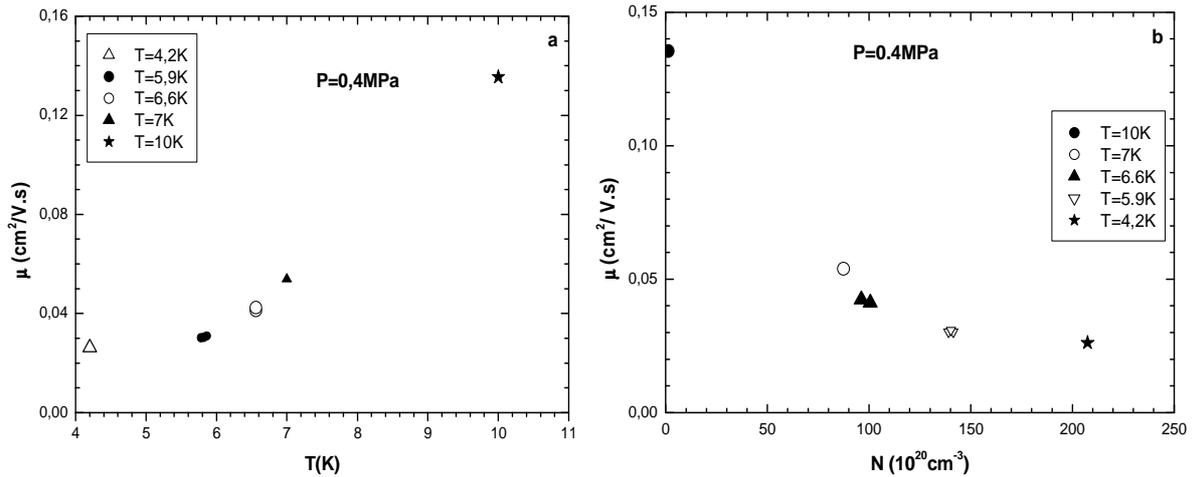


Figure 4-34 Mobilité des charges négatives μ en fonction de : (a) la température et, (b) la densité, pour une pression donnée de 0,4MPa avec $r_p=0,45\mu\text{m}$ et $d=6\text{mm}$.

Sur la **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**, nous avons tracé la mobilité des charges négatives en fonction de la densité et de la pression pour trois températures différentes $T=6, 7$ et 10K . On remarque que la variation de la mobilité μ avec N comporte deux régions : une pour $N>5\times 10^{21}\text{cm}^{-3}$ où la diminution de μ avec l'augmentation de N est faible (un facteur d'environ 3 quand N varie de $5\times 10^{21}\text{cm}^{-3}$ à $2,2\times 10^{22}\text{cm}^{-3}$) et, une autre pour $N<5\times 10^{21}\text{cm}^{-3}$, où une très forte augmentation de μ est observée lorsque N décroît (μ augmente de 3 décades lorsque N passe de $5\times 10^{21}\text{cm}^{-3}$ à $2\times 10^{21}\text{cm}^{-3}$).

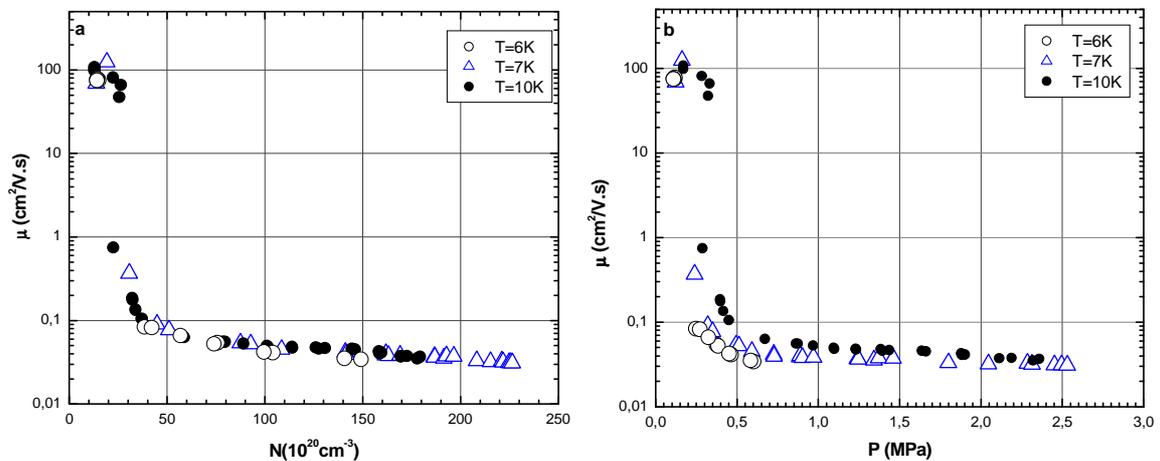


Figure 4-35 Mobilité des charges négatives μ en fonction de : (a) la densité et, (b) la pression, pour les températures de 6K, 7K et 10K.

Sur la Figure 4-35, nous avons comparé les mobilités négatives mesurées dans LHe à 4,2K et dans le fluide supercritique à 7K et 10K, ceci en fonction de la densité. Nous pouvons observer que, dans l'hélium liquide à 4,2K, la variation de mobilité avec la densité est relativement faible (dans ce cas, N est fixée par la valeur de la pression hydrostatique) et que les points correspondant au fluide supercritique sont dans le prolongement des points obtenus

dans le liquide tant que $N > 5 \times 10^{21} \text{cm}^{-3}$. Comme indiqué précédemment, lorsque $N < 5 \times 10^{21} \text{cm}^{-3}$ la mobilité augmente très rapidement avec la diminution de N .

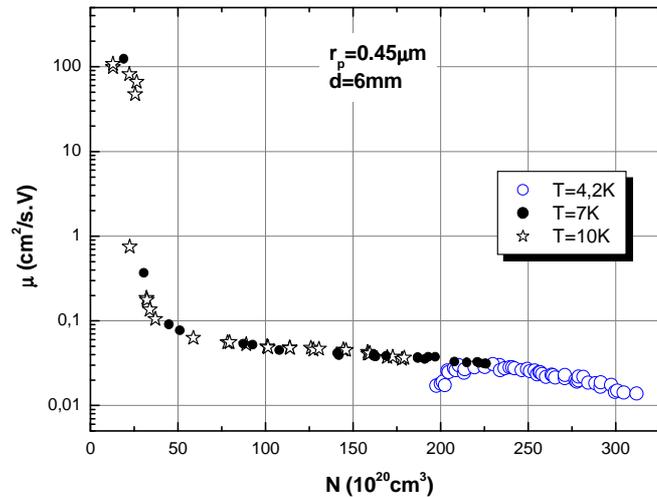


Figure 4-36 Mobilité d'électron μ en fonction de N à $T=10\text{K}$, 7K et $4,2\text{K}$.

Pour les densités faibles, $N \leq 210^{21} \text{cm}^{-3}$, les électrons sont libres et la mobilité ($\sim 100 \text{cm}^2/\text{Vs}$) est déterminée par la théorie cinétique. Par contre, pour les densités élevées, $N > 5 \times 10^{21} \text{cm}^{-3}$, les interactions électron/atomes deviennent grandes et la mobilité ($\sim 0,02 \text{cm}^2/\text{Vs}$) correspond à celle d'une pseudo-bulle électronique que ce soit pour le liquide ou pour le fluide supercritique.

Nous avons ensuite comparé notre variation de $\mu(N)$ aux faibles densités, à celle publiée par Jahnke (Jahnke, et al., 1975) à des températures de mesures comparables (Figure 4-36). On observe que, pour une température donnée, nos valeurs sont en général plus élevées que celles de Jahnke mais que les variations de μ avec N sont similaires.

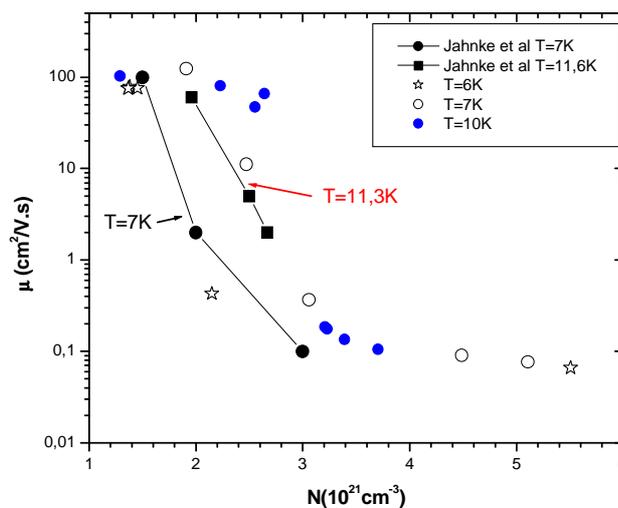


Figure 4-37 μ en fonction de N dans une région de faible densité.

On peut ainsi estimer qu'il existe une densité critique N_{tr} pour laquelle l'électron passe d'une transition d'un état libre à un état localisé. Les points tracés sur la Figure 4-37 présente

la dépendance en température de cette densité critique de transition, qui est de l'ordre de 10^{21}cm^{-3} , en comparaison avec les résultats de Harrison (Harrison, et al., 1973). Cette variation suit une loi $N_{tr} \sim T^{2/3}$.

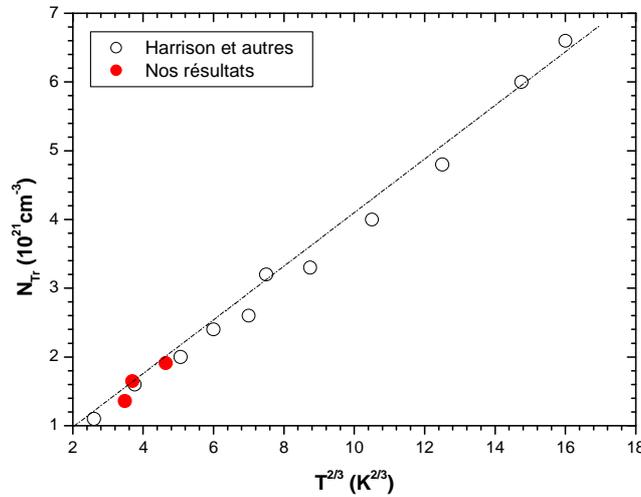


Figure 4-38 Densité critique de transition -état localisé/état libre- en fonction de la température. La droite en trait plein correspond à la loi $N_{tr} \sim T^{2/3}$

Dans le domaine de transition, entre l'état libre à faible densité et l'état localisé à forte densité, les états libre et localisé coexistent et la mobilité est alors décrite par l'équation suivante.

$$\mu(N) = \frac{\mu_{li} n_{li} + \mu_{loc} n_{loc}(N)}{n_{li} + n_{loc}(N)}$$

4-9

Où n_{li} et $n_{loc}(N, T)$ est la densité d'électron qui se trouve dans l'état libre et localisé. Tous les électrons se trouvent dans l'état localisé lorsque $N > 5 \times 10^{21} \text{cm}^{-3}$ à $T = 7 \text{K}$ et $P = 0,5 \text{MPa}$.

Il est possible de calculer le rayon de la bulle électronique à partir de l'équation de Stokes modifiée (pour tenir compte du fait que le rayon de la pseudo-bulle est proche de la distance moyenne entre les atomes) soit :

$$\mu(P) = \frac{e}{4\pi R_e(P) \eta(P)} \left(1 + \frac{3\pi \eta(P)}{2NR_e(P) \sqrt{2MkT}} \right)$$

4-10

L'équation 4-10 permet de calculer le rayon de la pseudo-bulle R_e en fonction de la pression appliquée sur le liquide. Les valeurs calculées pour $T = 4,2 \text{K}$ et $T = 7 \text{K}$ sont présentées sur la Figure 4-39. Aux pressions élevées, les rayons calculés pour le fluide supercritique et pour le liquide sont très proches et ils deviennent pratiquement indépendants de P .

Notons que les mêmes variations de $R_e(P)$ sont obtenues en utilisant le modèle de Aitken mais avec des valeurs de R_e plus faibles pour une pression donnée.

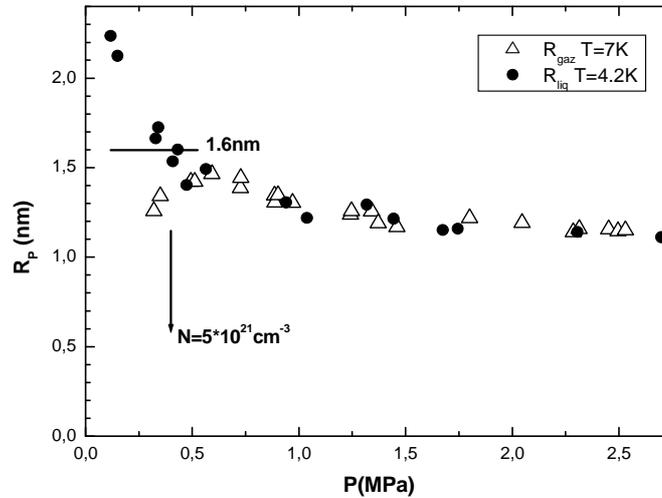


Figure 4-39 Rayon calculé de la pseudo-bulle électronique dans le liquide ($T=4,2\text{K}$) et dans le fluide supercritique ($T=7\text{K}$).

Dans le fluide supercritique, pour $N < 5 \times 10^{21}\text{cm}^{-3}$, le rayon calculé de la pseudo-bulle croît très rapidement avec la diminution de pression ceci indique que la mobilité mesurée est un mélange de l'électron localisé et libre. La transition entre les deux états a lieu quand la longueur d'onde de l'électron $\lambda_e = \frac{h}{\sqrt{2m_e T}}$ devient comparable avec le libre parcours moyen. On peut alors écrire un nombre sans dimension afin d'estimer cette transition (Atrazhev 1984):

$$\zeta = \lambda_e^{0,8} a N^{0,6}$$

4-11

Où $a = 6,4 \times 10^{-9}\text{cm}$ est la longueur de diffusion de l'électron liée à l'interaction entre l'électron et l'atome hélium. ζ correspond à un paramètre de localisation de l'électron. Une courbe de la mobilité en fonction de ζ est tracée sur la Figure 4-40 à $T=7\text{K}$ et $T=10\text{K}$. La transition électron libre/électron localisé apparaît clairement sur la Figure 4-40 pour $\zeta \sim 0,5$.

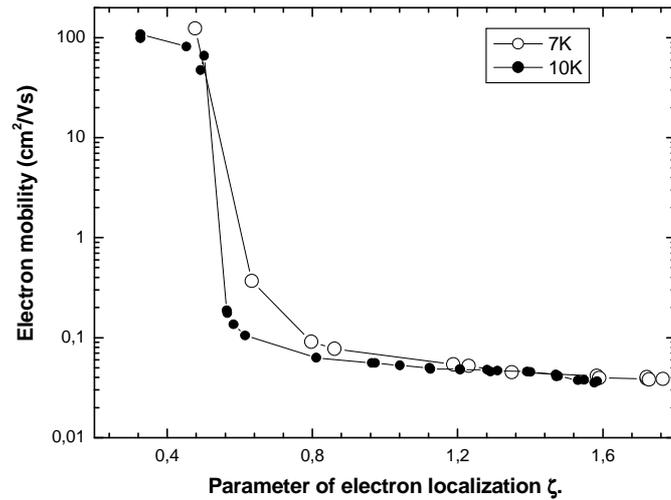


Figure 4-40 Mobilité de l'électron en fonction de ζ .

Les résultats obtenus par les autres auteurs (Levin, et al., 1967; Harrison, et al., 1973; Schwarz, 1980; Jahnke, et al., 1975) pour des températures allant de 4,2K à 20,3K, indique que la valeur du paramètre ζ pour laquelle la transition état libre/état localisé est observée, est d'environ 0,5 quelles que soient la température et la pression.

4.3.3 Régime d'impulsions de courant

Nous avons analysé si, dans le fluide supercritique, on observe comme dans le liquide un régime d'impulsions de courant.

Pour $T=7K$, nous avons effectué des essais avec les pressions suivantes, $P=0,12, 0,27$ et $0,6MPa$. Des impulsions de courant sont effectivement détectées mais dans un petit domaine de tension. Par contre, pour $P<0,12MPa$, aucune impulsion n'a été détectée. Le régime d'impulsions de courant est donc une fonction de la pression et de la tension appliquée.

Le seuil de tension, pour l'apparition du régime d'impulsion de courant à $T=7K$ est pratiquement identique à celui observé à $T=4,2K$, par contre, la tension d'extinction est plus faible qu'à $T=4,2K$.

Nous n'avons pas poursuivi plus loin l'analyse des impulsions de courant.

4.4 Conclusion

Nous pouvons résumer les principaux résultats de ce chapitre par :

Pour la polarité négative de la pointe dans l'hélium liquide à 4,2K.

- Le seuil V_s d'apparition du courant correspond à un champ seuil E_s sur la pointe d'environ 3-4MV/cm qui est indépendant du rayon de la pointe et de la pression hydrostatique appliquée sur le liquide. Rappelons que les expériences concernent les conditions suivantes, $r_p < 5\mu\text{m}$ et $P \leq 10\text{MPa}$;
- La mobilité est une fonction de la pression. Si on augmente la température au-dessus de la température critique (5,2K) de l'hélium, il existe une densité critique, $N \sim 3 \times 10^{21} \text{cm}^{-3}$, pour laquelle une transition électron localisé/électron libre intervient et où la mobilité croît de plusieurs ordres de grandeurs ;
- Un régime d'impulsions de courant est observé dans un certain domaine de tension appliquée sur la pointe. Chaque impulsion de courant induit la formation d'une bulle de vapeur transitoire dont la durée de vie dépend de l'énergie électrique de la décharge et de la pression appliquée sur le liquide.

Pour la polarité positive de la pointe dans l'hélium liquide à 4,2K.

- Le seuil V_s d'apparition du courant correspond à un champ seuil E_s sur la pointe d'environ 15MV/cm, seuil qui est de nouveau indépendant du rayon de la pointe et de la pression hydrostatique appliquée sur le liquide.
- La mobilité est une fonction monotone décroissante avec la pression. L'augmentation de pression entraîne l'augmentation de la densité et du rayon du porteur positif et en conséquence la mobilité diminue.

Chapitre 5 Résultats expérimentaux de la spectroscopie d'émission

5.1 Introduction

Ce chapitre a pour objet la présentation spectroscopique de la lumière émise par une décharge couronne dans l' ^4He gazeux et liquide. Le but de cette étude est d'obtenir des renseignements complémentaires sur les mécanismes mis en jeu dans une décharge couronne en milieu très dense. Nous commencerons ce chapitre par une description générale des spectres d'émissions obtenues et plus particulièrement de l'élargissement et du déplacement des raies atomiques et des bandes moléculaires. Nous montrerons également l'influence importante de la densité du milieu sur ces phénomènes.

5.2 Considérations générales

La décharge couronne dans l' ^4He gazeux ou liquide s'accompagne de la formation d'une zone d'émission de lumière près de la pointe qui correspond à la zone d'ionisation et d'excitations des atomes ou molécules (Figure 5-1). Une lumière de coloration *rouge* est observée dans cette zone d'excitation pour l' ^4He liquide et le gaz dense de 7 à 10K. Par contre, à $T=300\text{K}$, la lumière émise montre une couleur blanche au bord et bleu au centre de la zone.

L'analyse spectrale de la lumière émise met en évidence des raies atomiques et des bandes moléculaires. Ceci est observé aussi bien dans l' ^4He gazeux que dans l' ^4He liquide.

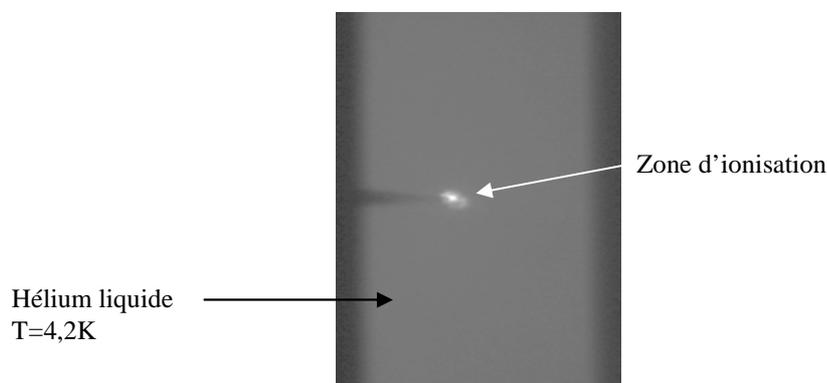


Figure 5-1 Photographie de la décharge produite au voisinage de la pointe par une décharge couronne négative dans l' ^4He liquide

Nos expériences sont effectuées pour 3 températures différentes en faisant varier la pression (Tableau 5-1). La densité du milieu varie donc de façon très importante (du gaz au liquide). D'après la définition sur fluide supercritique dans les conditions $P > P_c = 0,22\text{MPa}$ et $T > T_c = 5,2\text{K}$. Dans ^4He , comme $P_c = 0,22\text{MPa}$ et $T_c = 5,2\text{K}$, on voit que pour $T = 6\text{K}$ et 300K , le domaine supercritique existe que $P > 0,22\text{MPa}$ et pour $T = 300\text{K}$.

Tableau 5-1 Domaine d'étude

<i>T(K)</i>	<i>P(MPa)</i>	<i>Phase</i>
300	0,1-4,0	Gaz ou supercritique
6-7	0,1-0,6	Vapeur et supercritique
4,2	0,1-10,1	Liquide

Un nombre de raies atomiques plus important est observé dans le gaz à 300K par rapport au liquide et au gaz supercritique (Bonifaci, et al., 2006; Li, et al., 2007). Toutes les raies et les bandes identifiées à ces 3 différentes températures sont présentées dans les Tableau 5-2 et Tableau 5-3.

Tableau 5-2 Raies d'⁴He observées et identifiées à *T=300K*, *6K*, *4,2K*.

<i>λ (nm)</i>	<i>Niveau supérieur</i>	<i>Niveau inférieur</i>	<i>T=4,2K</i>	<i>T=6K</i>	<i>T=300K</i>
388,86	3p ³ P	2s ³ S		389,15	388,7
396,47	4p ¹ P	2s ¹ S		396,73	
447,15	4d ³ D	2p ³ P		447,36	446,98
471,31	3s ³ S	2p ³ P	471	471,12	470,91
492,19	4d ¹ D	2p ¹ P	490,6	492,3	492,11
501,57	3p ¹ P	2s ¹ S	501,52	501,53	500,8
504,77	4s ¹ S	2p ¹ P		504,64	503,98
587,56	3d ³ D	2p ³ P	587,46	586,38	587,35
667,82	3d ¹ D	2p ¹ P		667,9	667,41
706,52	3s ³ S	2p ³ P	706,27	706,33	706,4
728,13	3s ¹ S	2p ¹ P	727,72	728	728,024
1083,02	2p ³ P	2s ³ S	1082,3	1082,76	1082,8

Tableau 5-3 Bandes moléculaires d'⁴He₂ observées à T=300K, 6K, 4,2K.

λ (nm)	Niveau supérieur	Niveau inférieur	T=4,2K	T=6K	T=300K
462,24	J ¹ Δ_u	B ¹ Π_g	462,2	462,65	
464,95	e ³ Π_g	a ³ Σ_u^+	464,95	464,92	465,11
513,47	E ¹ Π	A ¹ Σ_u^+		513,49	513,6
573,49	f ³ $\Delta(v=0)$	b ³ $\Pi_g(v=0)$	573,75	572,72	573,06
575	f ³ $\Delta_u(v=1)$	b ³ $\Pi_g(v=1)$	574,98	574,98	575,2
577	f ³ $\Delta_u(v=2)$	b ³ $\Pi_g(v=2)$	576,96	576,96	
588,7	f ³ Π_u^-	b ³ Π_g	587,46	587,03	
595,9	f ³ Σ_u^+	b ³ Π_g	595,45	596,6	595,9
609,6	j ³ Π_u^+	c ³ Σ_g^+		610,37	610,29
612,89	j ³ Σ_u^+	c ³ Σ_g^+		612,79	
621,98	F ¹ $\Pi_u^+(R)$	B ¹ Π_g		621,91	621,33
626,6	F ¹ $\Pi_u(v=1)$	B ¹ $\Pi_g(v=1)$		626,16	
631,43	F ¹ Σ_u^+	B ¹ Π_g		631,64	631
639,6	d ³ Σ_u^+	b ³ Π_g	639,66	639,7	639,92
659,55	D ¹ Σ_u^+	B ¹ Π_g	658,93	659,19	659,04
913,61	C ¹ Σ_g^+	A ¹ Σ^+	914,19	913,5	912,02
918,3	c ³ Σ^+	a ³ Σ_u^+	918,987	917,06 ?	
920,3	f ³ Δ^u	c ³ Σ_g^+		919,75	920,3
1052,3	d ³ Σ_u^+	c ³ Σ_g^+	1041,9 1058		1045(P)

Nous allons maintenant présenter les spectres dans les différents domaines de longueurs d'onde pour les 3 températures : aucune émission mesurable n'a été mise en évidence pour $\lambda < 380\text{nm}$ et notre système optique n'est plus assez sensible pour $\lambda > 1100\text{nm}$. Les déplacements et les élargissements des raies atomiques seront ensuite déduits de nos mesures.

5.2.1 Emission de 380nm à 540nm

Les spectres sont montrés dans les Figure 5-2 à Figure 5-4 pour les différentes températures avec les 2 réseaux à 1200tr/mm. Ils ont été enregistrés sans correction en

intensité de la réponse spectrale. La plupart des bandes observées ont été identifiées en comparant nos spectres avec ceux obtenues à la température ambiante par Ginter (Ginter, 1965). Les raies atomiques et les bandes qui ont pu être identifiées sont indiquées sur les figures.

Les Figure 5-2, Figure 5-3 et Figure 5-4, montrent des exemples de spectres observés dans le liquide et le gaz dans le domaine de 400nm à 540nm. Pour 6K et 4,2K, dans ce domaine, on observe peu de raies, alors qu'à 300K, il apparaît de nombreuses raies qui ne peuvent pas être identifiées ou qui appartiennent à des impuretés comme le 2^{ème} positif de l'azote et des raies de l'hydrogène H_{α} (656nm) et H_{β} (486nm).

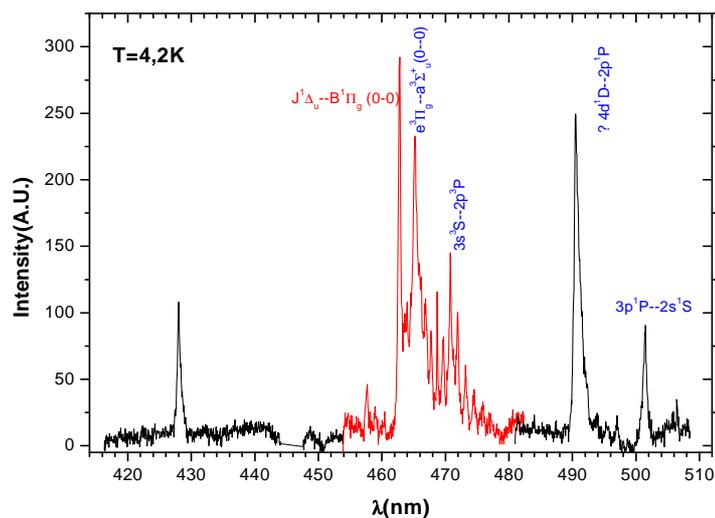


Figure 5-2 Spectre de la lumière émise dans l'⁴He liquide. $P=0,1\text{MPa}$ et $T=4,2\text{K}$.

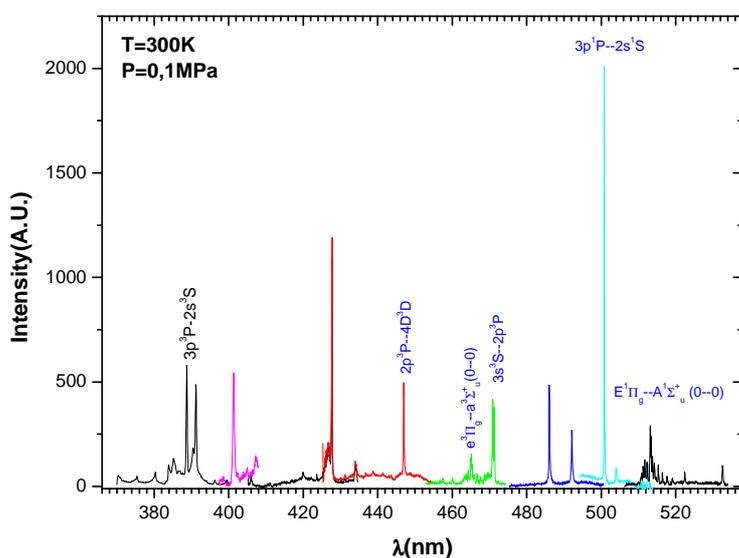


Figure 5-3 Spectre de la lumière émise dans l'⁴He supercritique. $P=0,1\text{MPa}$ et $T=6\text{K}$.

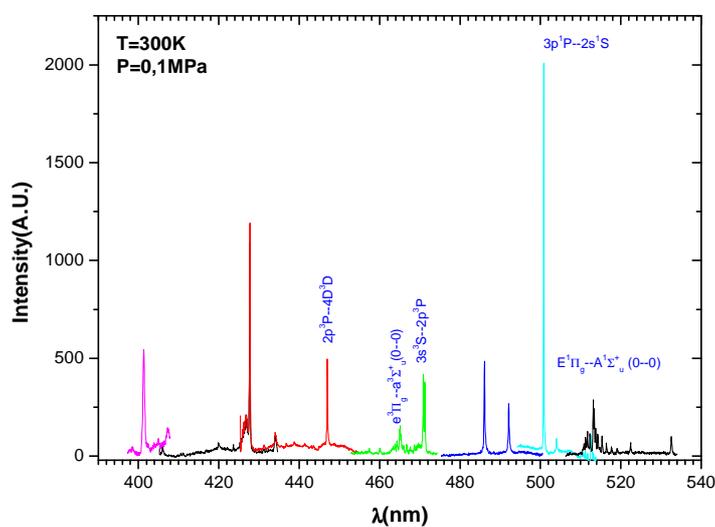
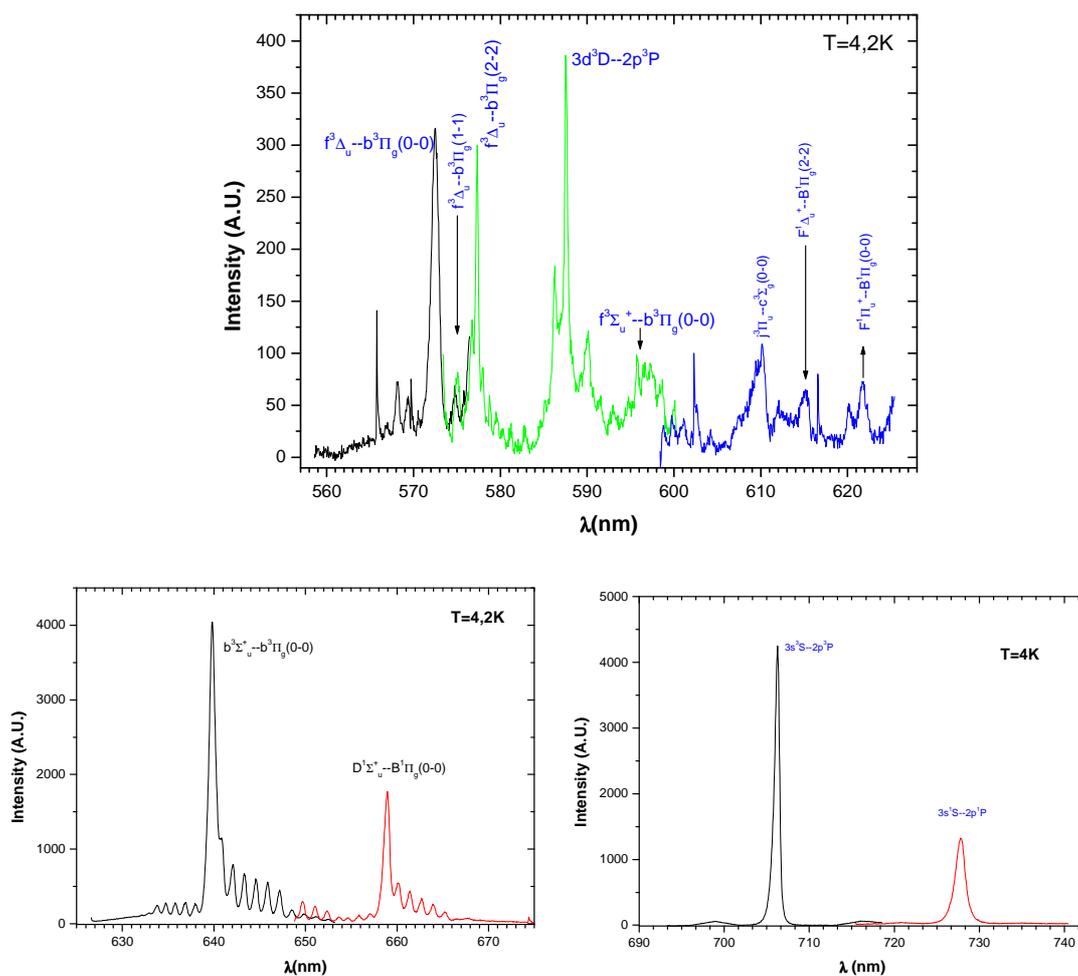
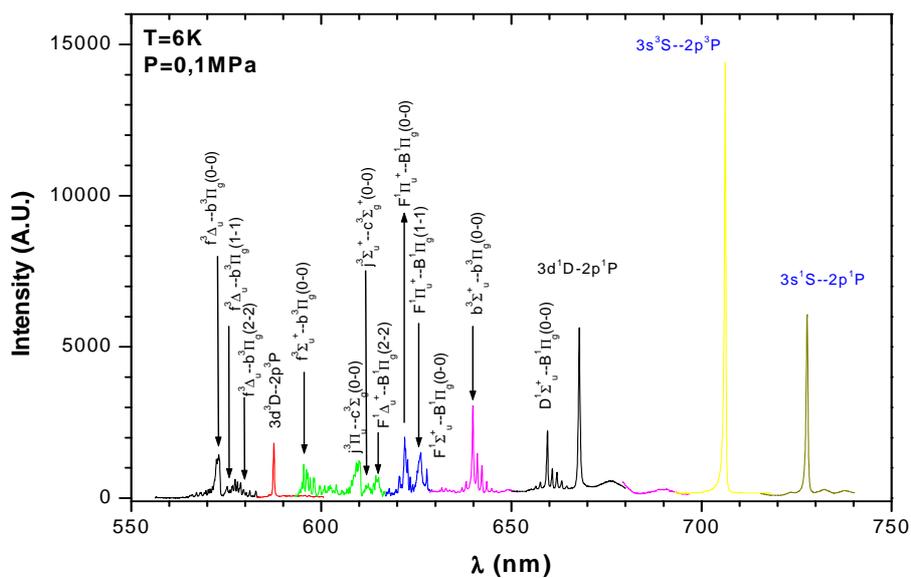


Figure 5-4 Spectre de la lumière émise dans l'⁴He gazeux. $P=0,1\text{MPa}$ et $T=300\text{K}$.

5.2.2 Emission de 560nm à 740nm


 Figure 5-5 Spectre de la lumière émise dans l'⁴He liquide. $P=0,1\text{MPa}$ et $T=4,2\text{K}$.

 Figure 5-6 Spectre de la lumière émise dans l'⁴He supercritique. $P=0,1\text{MPa}$ et $T=6\text{K}$.

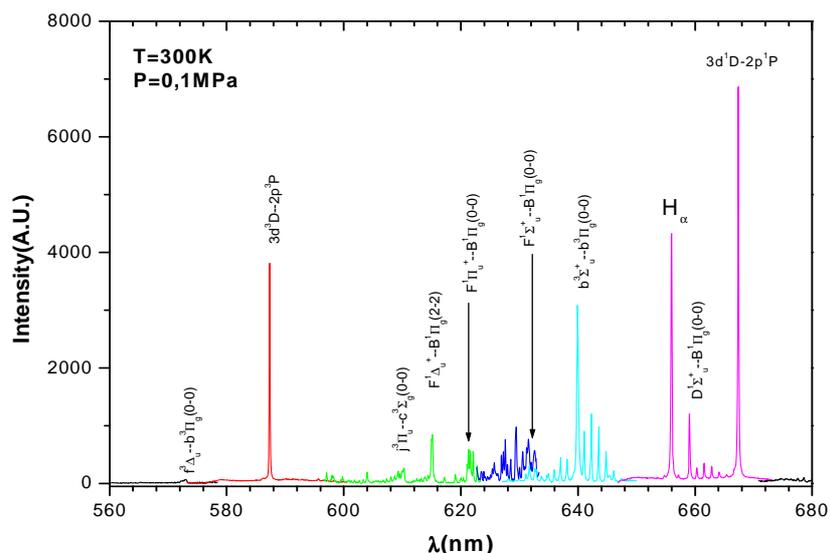


Figure 5-7 Spectre de la lumière émise dans l' ^4He gazeux. $P=0,1\text{MPa}$ et $T=300\text{K}$

A 6K, de nombreuses raies restent non identifiées (Figure 5-6). En particulier, au voisinage de deux ensembles de raies près de 840nm et de 950nm l'identification des raies est difficile et certains auteurs les ont désignés comme des bandes moléculaires avec une vibration élevée $d^3\Sigma_u^+ - c^3\Sigma_g^+$ ($v'=4 \rightarrow v''=4$) pour la longueur d'onde entre 930nm et 960nm (Tokaryk, et al., 1995). On peut seulement identifier les bandes moléculaires de $C^1\Sigma_g^+ \rightarrow A^1\Sigma_u^+$ et $c^3\Sigma_g^+ \rightarrow a^3\Sigma_u^+$ ($v'=0 - v''=0$). Pour les vibrations élevées de ces bandes, nos longueurs d'onde ne correspondent pas aux valeurs de Tokaryk.

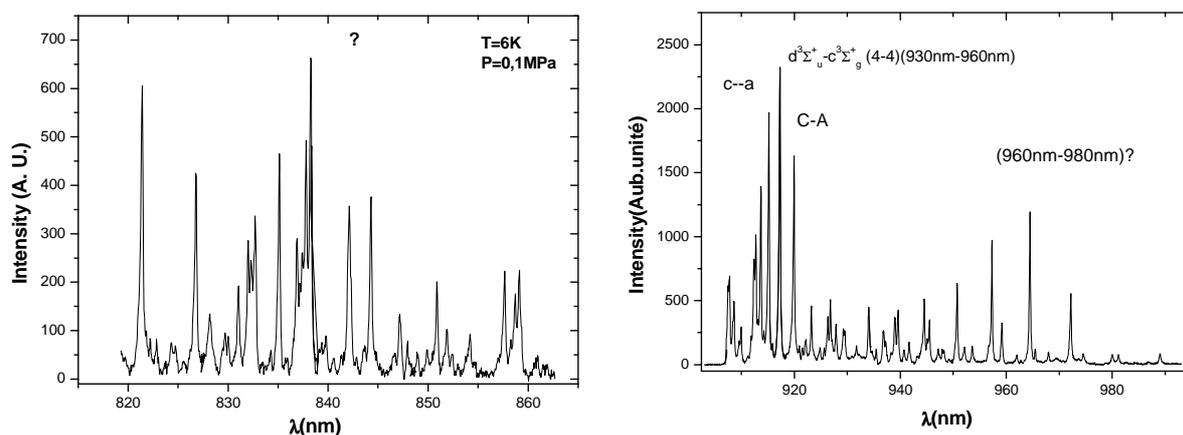


Figure 5-8 Spectre de la lumière émise dans l' ^4He supercritique pour λ entre 815nm et 990nm. $P=0,1\text{MPa}$ et $T=6\text{K}$.

Ensuite, nous allons étudier l'influence de la température, de la polarité, et de la pression sur les spectres d'émission. Sur le tableau, nous montrons les conditions électriques dans la puissance dissipée moyenne déposée dans la décharge.

Tableau 5-4 Condition électrique pour observer les spectres d'émission

<i>T(K)</i>	<i>P(MPa)</i>	<i>Négative (mW)</i>	<i>Positive (mW)</i>
4,2		0,7-1	0,6
6	<0,2	10-40	0,52
6	≥0,2	1-3	
300	1-3	20-100	

A 4,2K quelque soit la pression d'essai et à 6K pour $P > 0,2$ MPa, les spectres sont obtenus pour un courant de l'ordre de 0,1 à 0,5 μ A, ce qui correspond à une puissance dissipée moyenne d'environ 0,5 à 3 mW.

A 300K, le courant est plus élevé et les spectres sont obtenus pour des courants variant de 20 à 50 μ A et donc une puissance d'environ de 20 à 100mW suivant la pression appliquée.

Rappelons que les spectres observés pour une température et une pression données, ne dépendent pas de la puissance imposée. La distribution des raies et des bandes moléculaires est la même, bien que leur amplitude augmente avec le courant.

5.3 Influence de la température

Suivant les 3 températures, les spectres observés sont très différents. Dans les Figure 5-9 à Figure 5-11 nous donnons des exemples où certaines bandes moléculaires sont observées en phase liquide à $T=4,2$ K avec le niveau de vibration (0-0) (Figure 5-9), n'apparaissent dans le gaz à $T=6$ K que avec des niveaux vibrationnels et rotationnels élevés et, de plus, certaines des ces bandes ne sont plus observées à 300K (Figure 5-10 et Figure 5-11).

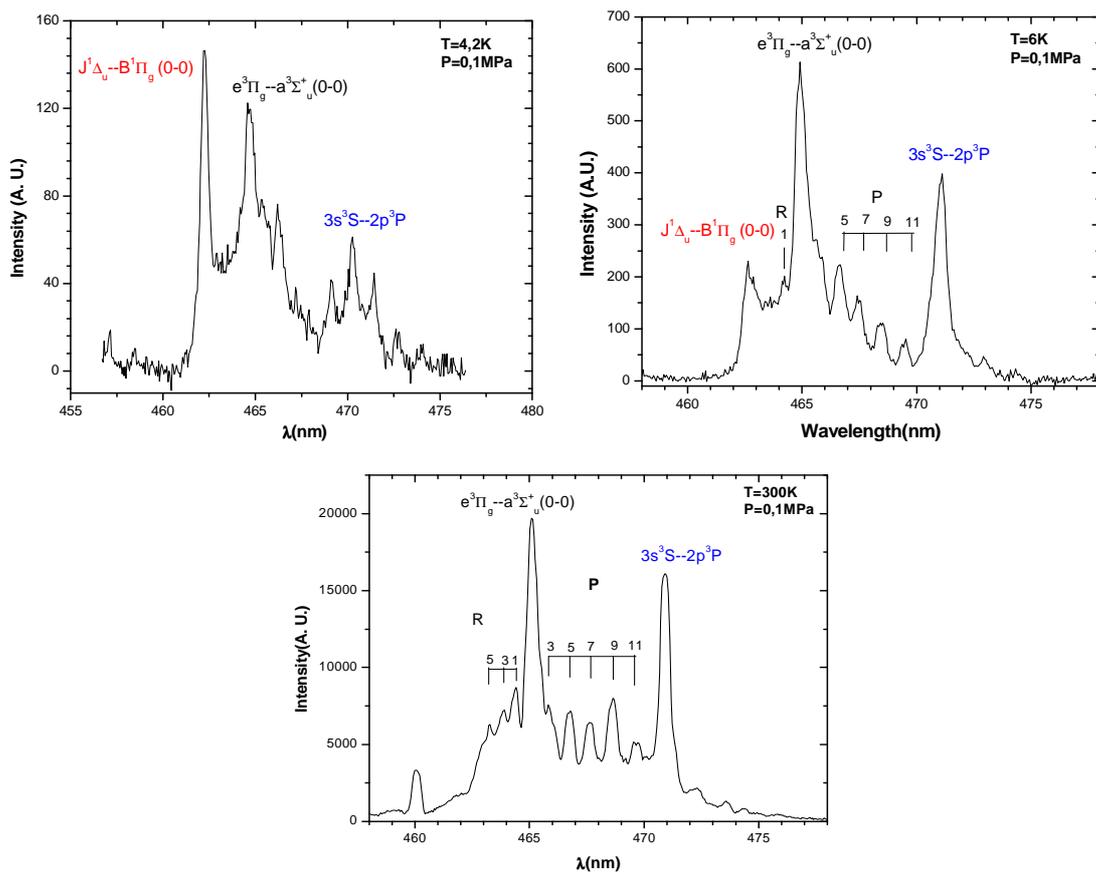
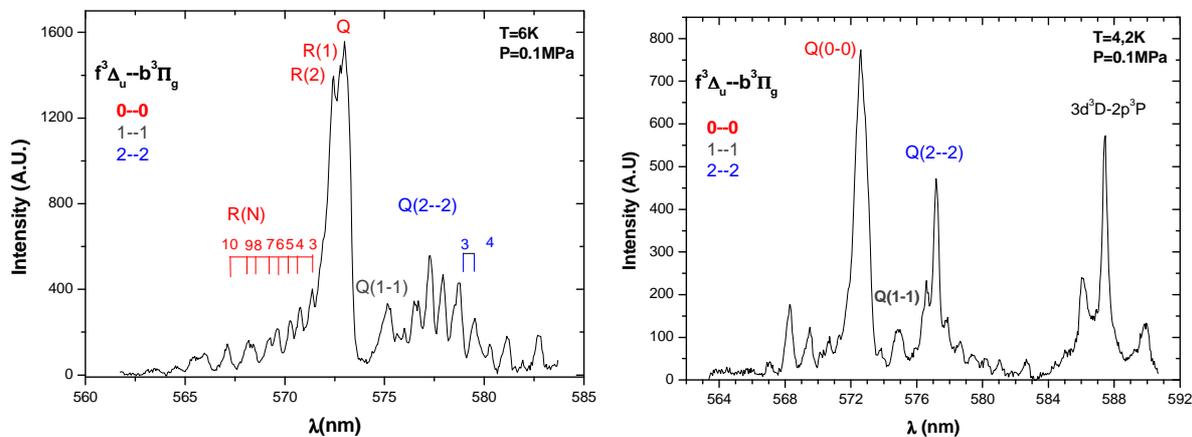


Figure 5-9 Bande $e^3\Pi_g - a^3\Sigma_u^+$ (464,9nm) et bande $J^1\Delta_u - B^1\Pi_g(0-0)$ (462nm) à $T=4,2, 6,$ et $300K, P=0,1MPa$.



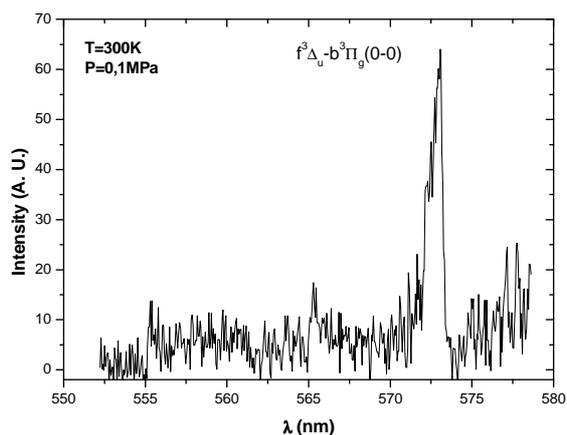


Figure 5-10 Raies rotationnelles des bandes moléculaires $f^3\Delta_u - b^3\Pi_g(0-0)$, (1-1) et (2-2) à $T=4,2, 6$ et 300K pour $P=0,1\text{MPa}$.

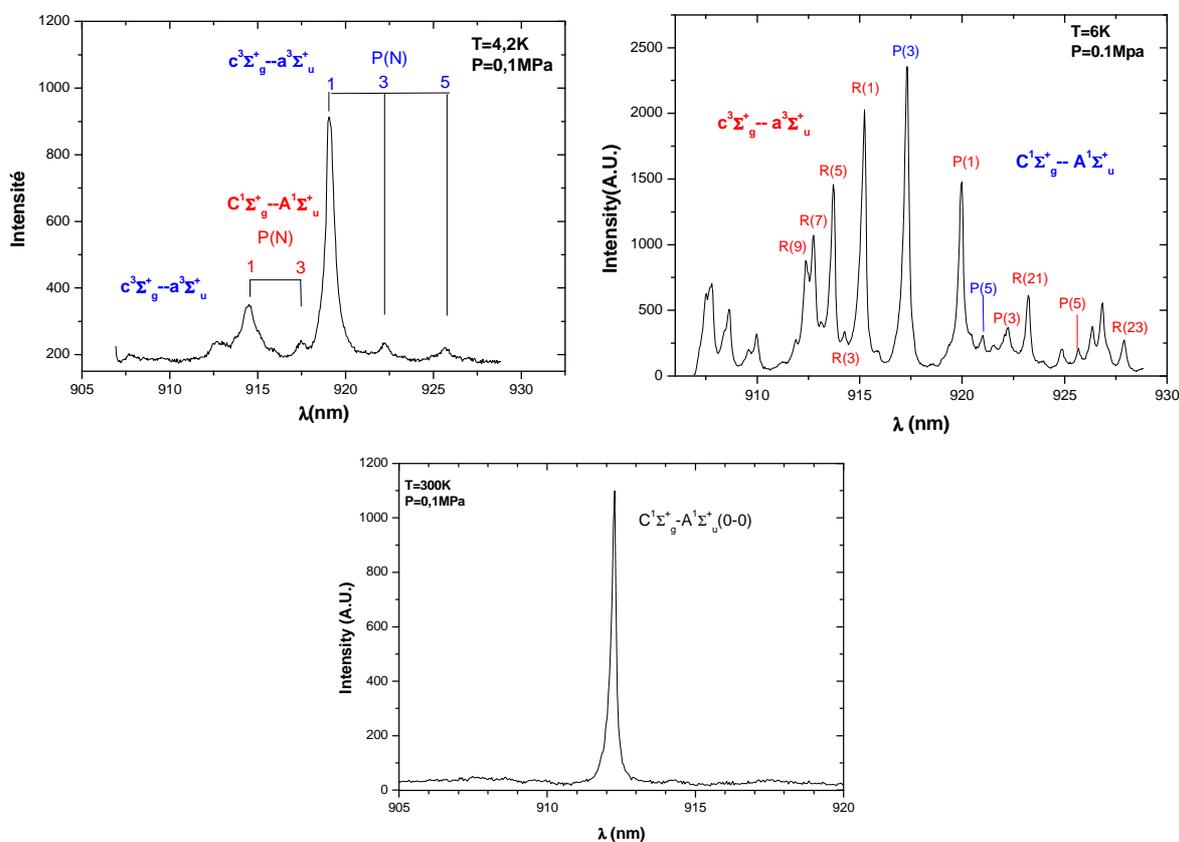


Figure 5-11 La bande moléculaire (0-0) de $c^3\Sigma_g^+ - a^3\Sigma_u^+$ et $C^1\Sigma_g^+ - A^1\Sigma_u^+$ de He_2 à $T=4,2, 6\text{K}$ et 300K pour $P=0,1\text{MPa}$.

Nous donnons 2 exemples pour une pression $P=0,1\text{MPa}$, pour une raie atomique dans la Figure 5-12 et une bande moléculaire dans la Figure 5-13. Il est évident que le déplacement et la forme d'une raie atomique et d'une bande moléculaire dépendent fortement de la température T . Par exemple, l'intensité des branches P et R est très différente suivant la température. De plus dans la Figure 5-12(b) la raie à 667 nm n'apparaît pas à $4,2\text{K}$ et à 300K , nous observons la raie de l'hydrogène H_α à 656nm .

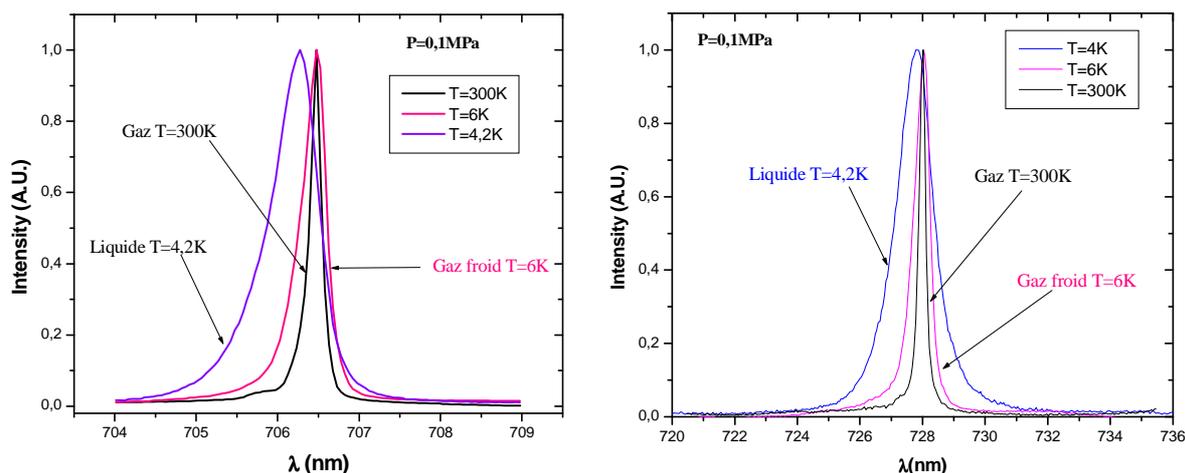


Figure 5-12 Enregistrement du profil expérimental des raies atomiques 706nm et 728nm à $P=0,1\text{MPa}$, pour différentes températures $T=300, 4,2$ et 6K .

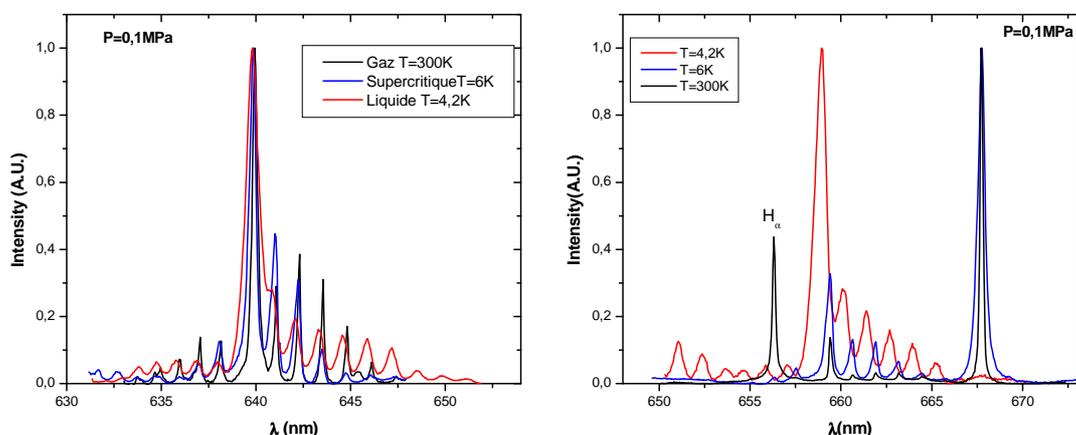


Figure 5-13 Enregistrement du profil expérimental de la bande moléculaire à 639nm et de la raie atomique à 667,8nm à $P=0,1\text{MPa}$, pour différentes températures $T=300, 4,2$ et 6K .

5.4 Influence de la polarité

Nous avons aussi effectué des expériences avec une polarité positive sur la pointe. Sur la Figure 5-14, la bande moléculaire à 640nm dans le cas liquide à $T=4,2\text{K}$ est tracée dans le cas d'une pointe positive puis d'une pointe négative. Dans l'aile rouge, l'intensité de la branche P de rotation est plus élevée que celle en polarité négative.

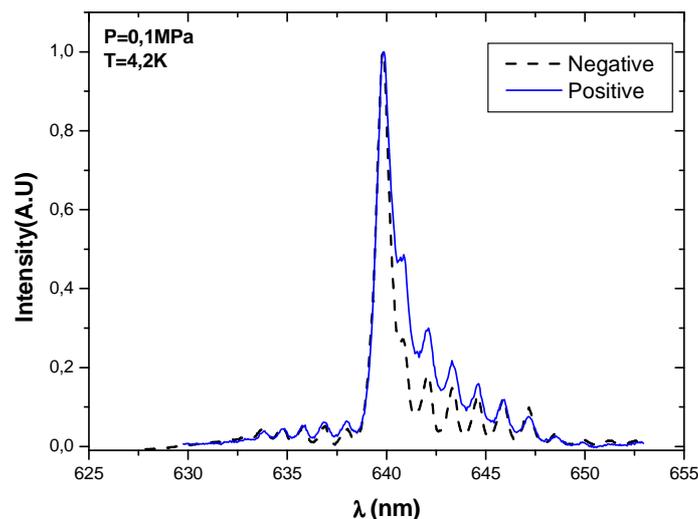


Figure 5-14 Comparaison des spectres de $d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$ (640nm) à $T=4,2K$ et $P=0,1MPa$ pour une décharge négative et positive.

En polarité positive, sur les raies à 706nm et 728nm, nous observons un satellite dans l'aile rouge. (Figure 5-15).

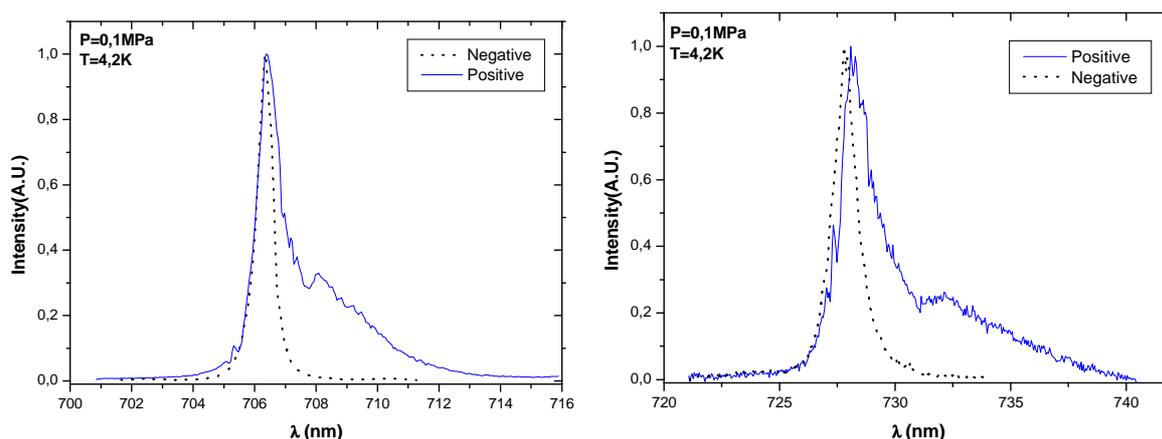


Figure 5-15 Comparaison des raies à 706nm et 728nm à $T=4,2K$ et $P=0,1MPa$ pour une décharge négative et positive.

5.5 Effet de la pression

5.5.1 Etude à $T=4,2K$ et $6K$

En augmentant la pression dans la cellule, les raies atomiques deviennent de plus en plus larges, et un déplacement vers le bleu est souvent observé (Figure 5-16). D'autre part, les raies disparaissent progressivement avec l'augmentation de la pression. La raie $3s^3S-2p^3P$ à 706nm peut être observée jusqu'à 3,5MPa, la raie $1s^1S-1p^1P$ à 728,13nm jusqu'à 0,655MPa, la bande moléculaire $D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$ jusqu'à 0,6MPa, et enfin la bande moléculaire $d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$ jusqu'à 2,5MPa. Les autres raies disparaissent à des pressions plus faibles et certaines raies ne sont détectables qu'à $P=0,1MPa$. La raie de $2p^3P-2s^3S$ à 1083nm est observée seulement à pression faible pour la phase supercritique à 6K et pour le liquide à 4,2K.

Pour les bandes moléculaires, la variation en fonction de la pression n'est pas simple, la structure rotationnelle va disparaître en augmentant la pression.

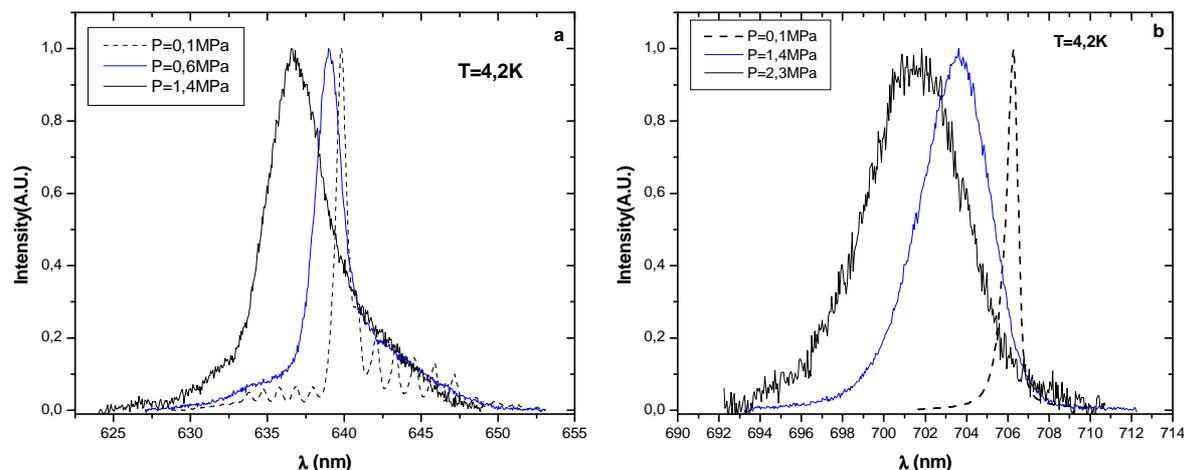


Figure 5-16 Enregistrement du profil expérimental de la bande moléculaire à 639nm et de la raie atomique à 706nm à $T=4,2K$, pour différentes pressions P .

En polarité positive, la forme de la raie varie aussi en fonction de la pression comme en polarité négative. La raie devient de plus en plus large et nous avons aussi observé un déplacement en fonction de la pression (Figure 5-17).

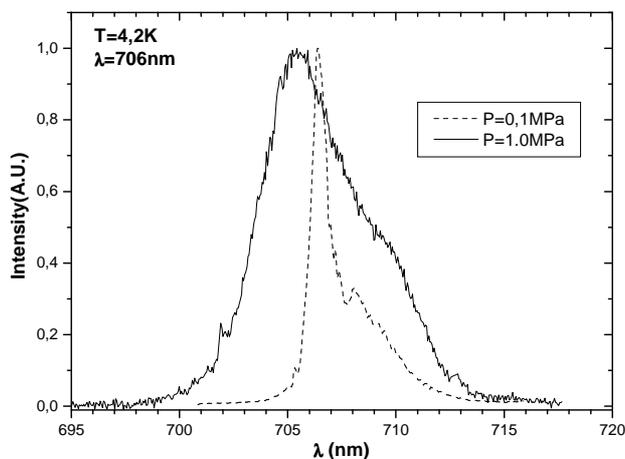
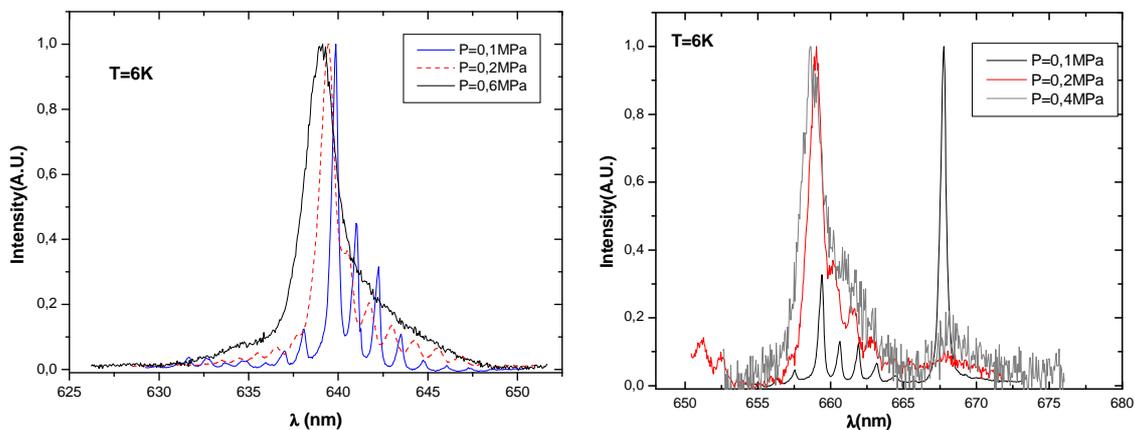


Figure 5-17 Profil de la raie 706nm pour 2 pressions différentes P en polarité positive.



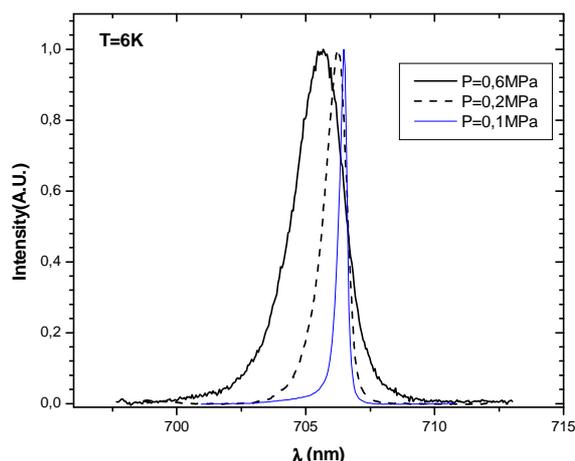


Figure 5-18 Enregistrement du profil expérimental des bandes moléculaires à 639nm, et 660nm et, de la raie atomique à 706nm à $T=6K$, pour différentes pressions P .

A 6K, la raie à 706nm a une légère dissymétrie sur l'aile bleue (Figure 5-18).

5.5.2 Etude à $T=300K$

Pour les raies à $\lambda=706nm$ et $728nm$, quand la pression augmente, les raies deviennent asymétriques sur l'aile bleue et des nouvelles raies sont observées pour les deux polarités : 696,5 ; 715,4 nm et 738 nm (Figure 5-20). On peut observer qu'en polarité positive, l'effet de la pression est beaucoup plus marqué qu'en polarité négative, et plusieurs bandes ou raies apparaissent qui n'ont pas pu être identifiées pour l'instant (Figure 5-21).

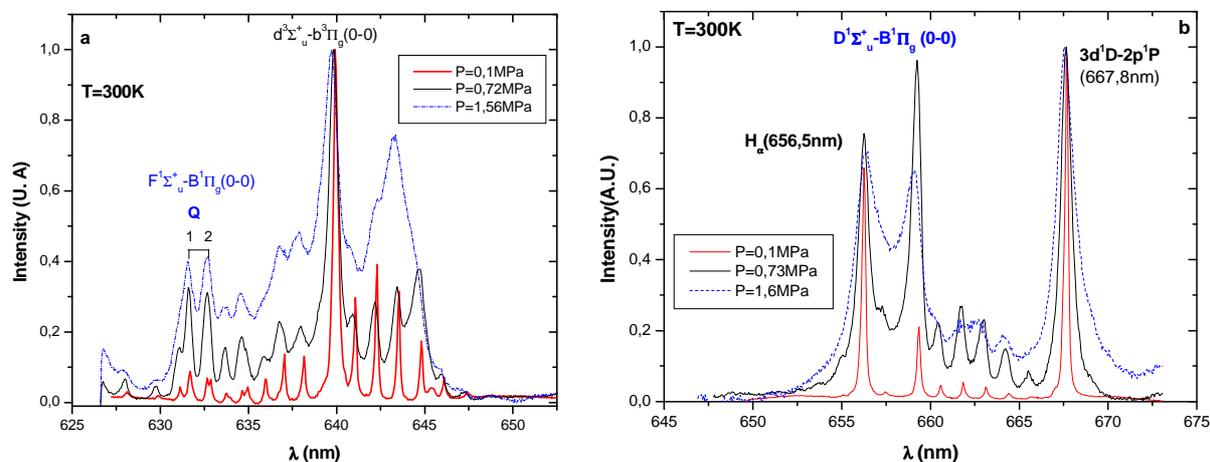


Figure 5-19 Effet de la pression sur (a) $\lambda=639nm$ et (b) $\lambda=659nm$ $P=0,1, 0,72$ et $1,56MPa$.

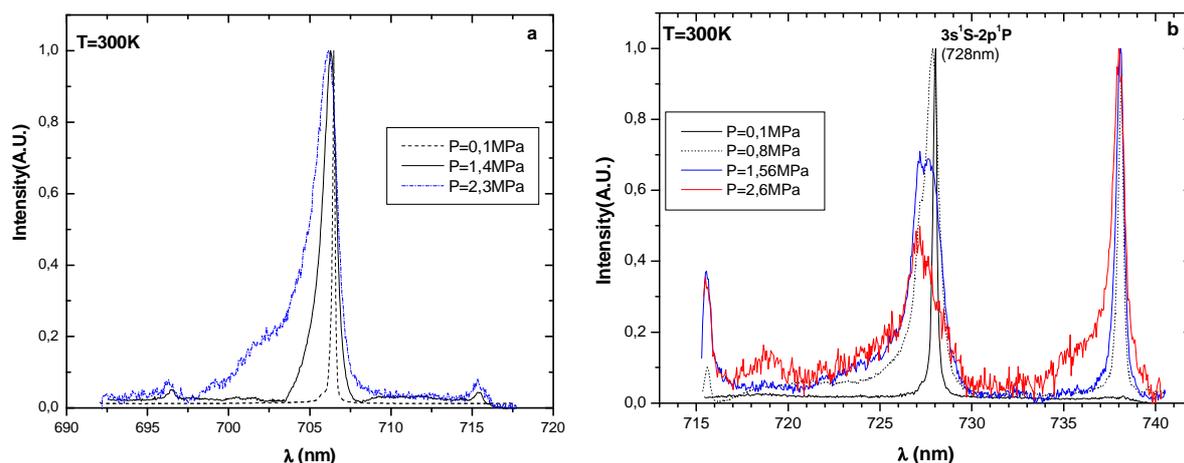


Figure 5-20 Effet de la pression sur (a) $\lambda=706\text{nm}$ à $P=0,1, 1,4$ et $2,3\text{MPa}$; (b) $\lambda=728\text{nm}$ à $P=0,1, 0,8, 1,56$ et $2,6\text{MPa}$ à $T=300\text{K}$ en polarité négative.

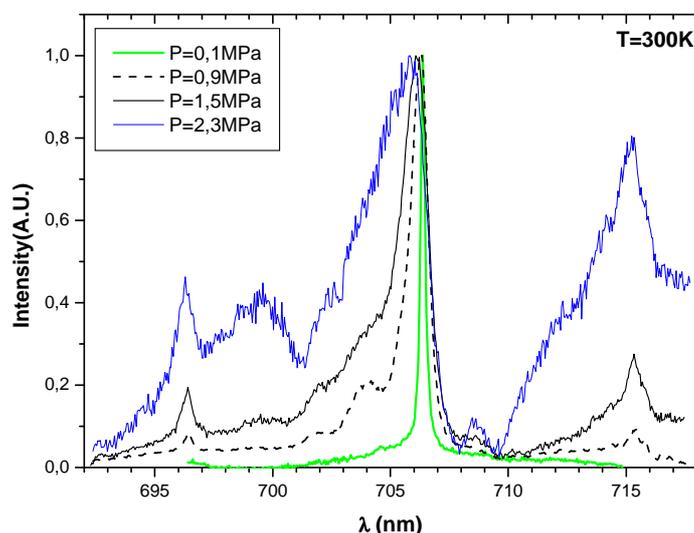


Figure 5-21 Effet de la pression pour $\lambda=706\text{nm}$ $P=0,1, 0,9, 1,56$ et $2,3\text{MPa}$ en polarité positive.

5.5.3 Déplacement des raies atomiques

Pour la mesure du déplacement, nous n'avons pas pu faire des mesures relatives par rapport à la même raie avec une lampe basse pression d'hélium (nous n'avons pas de lampe à l'époque des mesures), c'est pourquoi une incertitude sur nos valeurs de déplacement de $\pm 0,1\text{nm}$ doit être considérée.

Nous avons enregistré les déplacements des raies en fonction de la pression pour le cas du gaz et du liquide. Dans nos conditions expérimentales, le déplacement en fonction de la pression pour les 3 températures étudiées est toujours vers le bleu. C'est un déplacement négatif ($\Delta\lambda_d < 0$) par rapport à une longueur d'onde de référence correspondant à la pression de vapeur saturante ($P=0,1\text{MPa}$ pour $T=300\text{K}$).

Nous montrons nos résultats de déplacement en fonction de la pression pour deux raies dans la Figure 5-22 à $4,2\text{K}$ et Figure 5-23 à 6K et 300K .

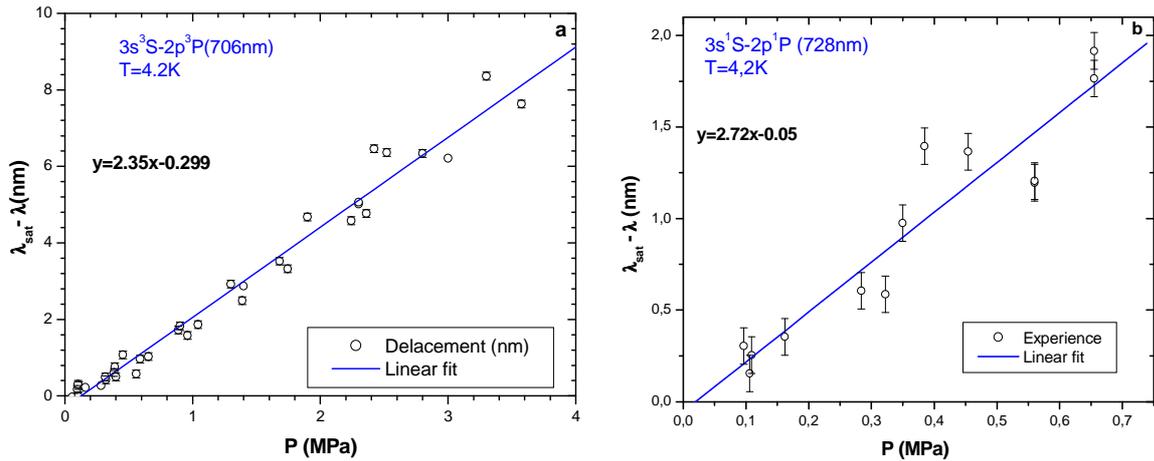


Figure 5-22 Déplacement en fonction de la pression à $T=4,2\text{K}$, pour (a) 706,5nm et (b) 728nm.

Un déplacement a été observé pour les raies à 706nm et 728nm, mais pour les raies $3d^3D-2p^3P$ (587nm), $3d^1D-2p^1P$ (667,8nm) et $2p^3P-2s^3S$ (1083nm), on observe aucun déplacement mais seulement un élargissement.

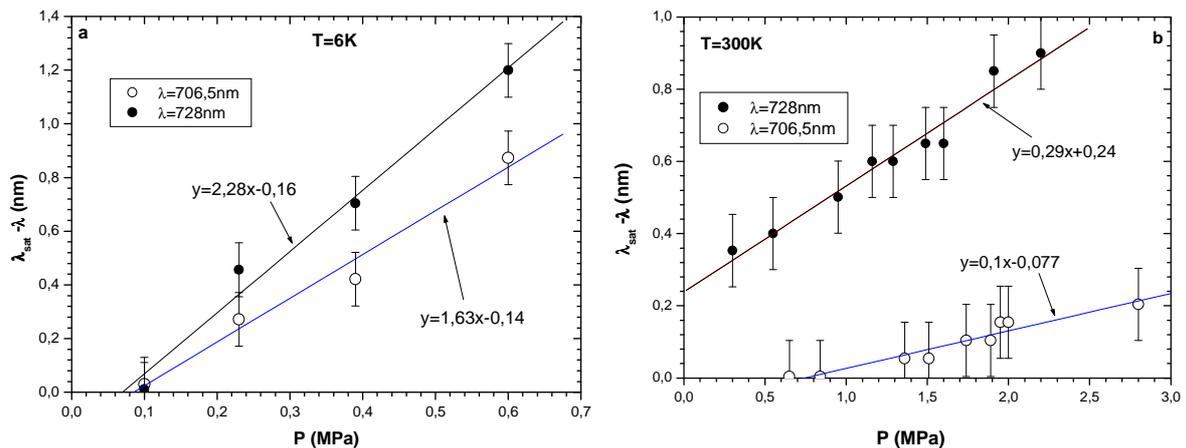


Figure 5-23 Déplacement en fonction de la pression (a) $T=6\text{K}$, (b) $T=300\text{K}$ pour $\lambda=706$ et 728nm .

Pour une température donnée, le déplacement augmente avec P (Figure 5-22 et Figure 5-23).

Dans l' ^4He gazeux dense et froid à $T=6\text{K}$, il semble exister une corrélation entre le déplacement et la pression appliquée dans le gaz. Malheureusement, nous n'avons pas effectué suffisamment de mesures en faisant varier la pression pour quantifier précisément ce résultat. Pour l'instant, nous pouvons seulement affirmer que la variation du déplacement en fonction de la pression est linéaire jusqu'à $P=0,6\text{MPa}$.

Nous avons tracé la variation des déplacements en fonction de la densité N du milieu pour $T=4,2, 6$ et 300K pour les raies à 706nm et 728nm (Figure 5-24). Ce qui n'est pas forcément correct puisque la densité qui doit être considérée est la densité réelle dans la zone d'ionisation N_p mais qui est inconnue pour le moment.

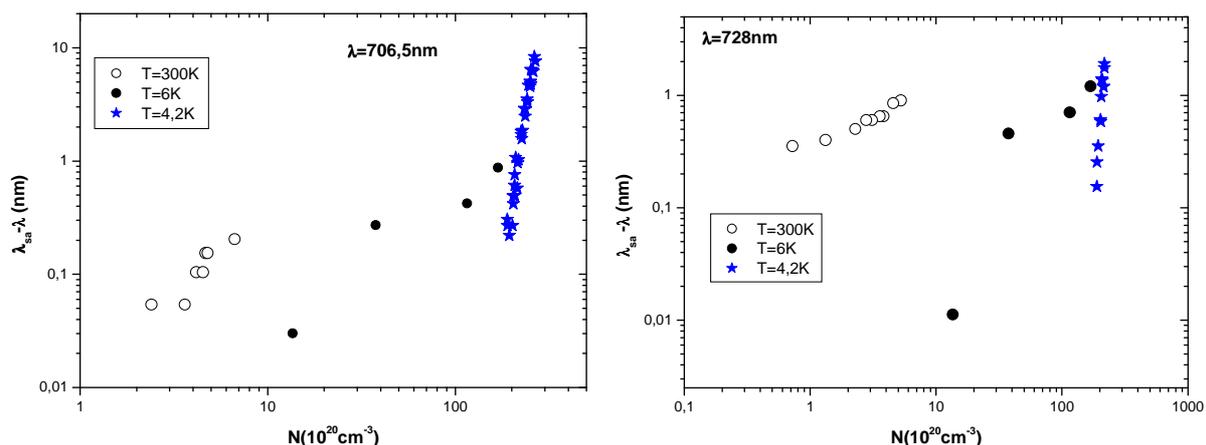


Figure 5-24 Déplacement en fonction de N pour différentes températures à $\lambda=706,5\text{nm}$ et 728nm .

Si la pointe est en polarité positive, on observe un déplacement semblable à celui observé en polarité négative (Figure 5-25).

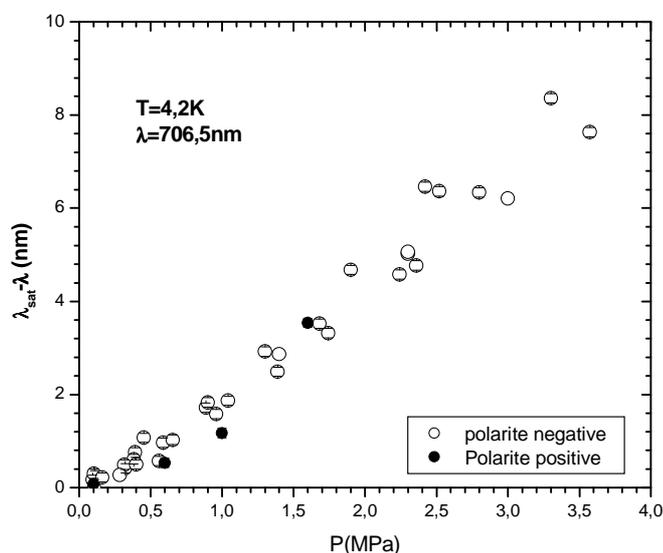


Figure 5-25 Déplacement en fonction de P pour la polarité positive et négative à $\lambda=706,5\text{nm}$ et $T=4,2\text{K}$.

5.5.4 Elargissement des raies atomiques

Pour remonter à la contribution de l'effet dû à la pression seule sur l'élargissement d'une raie, il faut déconvoluer le profil expérimental par la fonction d'appareil. Par simplification, on utilise la formule classique suivante d'où on en déduit la valeur de l'élargissement dû aux collisions :

$$\Delta\lambda = \Delta\lambda_{\text{exp}} - \frac{\Delta\lambda_{\text{ins}}^2}{\Delta\lambda_{\text{exp}}}$$

Dans notre cas, $\Delta\lambda_{\text{ins}}=0,1\text{nm}$.

A partir de l'équation 5-1 et en considérant un profil Lorentzien pour l'effet de pression, les élargissements des raies atomiques à 667,8nm, 706nm et 728nm, en fonction de la pression, pour $T=4,2, 6$ et 300K sont tracés dans les Figure 5-26 et Figure 5-27.

Pour 300K, les profils enregistrés sont dissymétriques ce qui peut introduire une erreur sur les élargissements pour les pressions élevées.

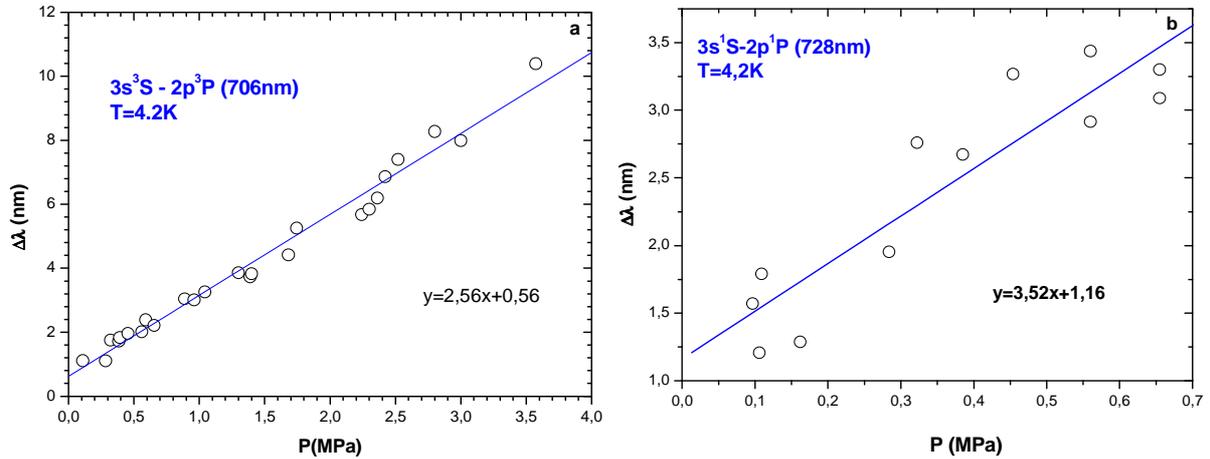


Figure 5-26 Elargissement en fonction de la pression $T=4,2K$, pour (a) 706,5 et (b) 728nm.

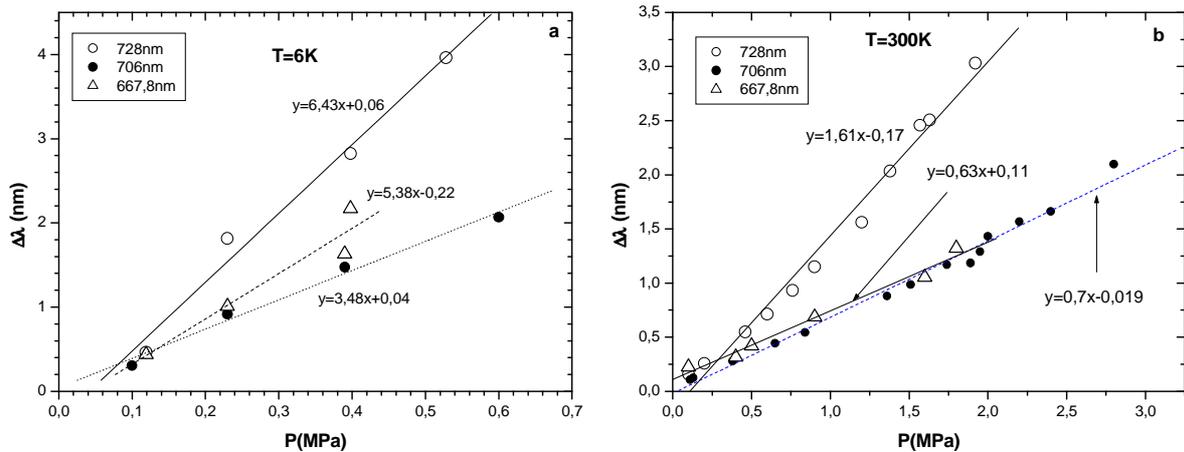


Figure 5-27 Elargissement en fonction de la pression pour $\lambda=667,8nm, 706,5nm$ et 728nm à (a) $T=6K$ et (b) $T=300K$.

Nous avons tracé la variation des déplacements en fonction de la densité N du milieu pour $T=4,2, 6$ et 300K pour les raies à 706nm et 728nm dans la Figure 5-28.

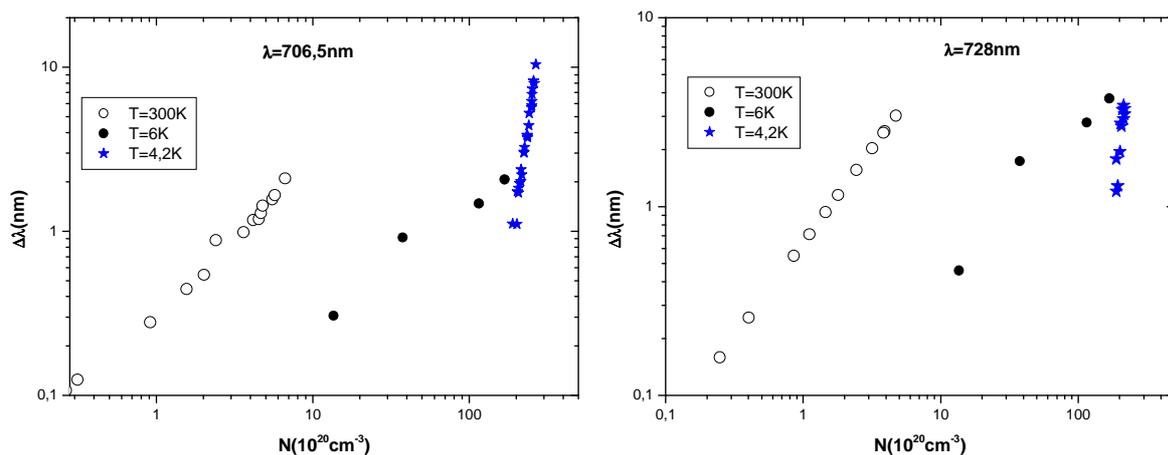


Figure 5-28 Elargissement en fonction de N pour différentes températures à $\lambda=706,5\text{nm}$ et 728nm .

A $T=4,2\text{K}$, nous n'avons jamais pu observer la raie à 667nm quelque soit la pression, et pour $T=6$ et 300K , nous n'avons pas pu détecter de déplacement, nous avons donc uniquement tracé l'élargissement en fonction de la pression P (Figure 5-27) et la densité N (Figure 5-29).

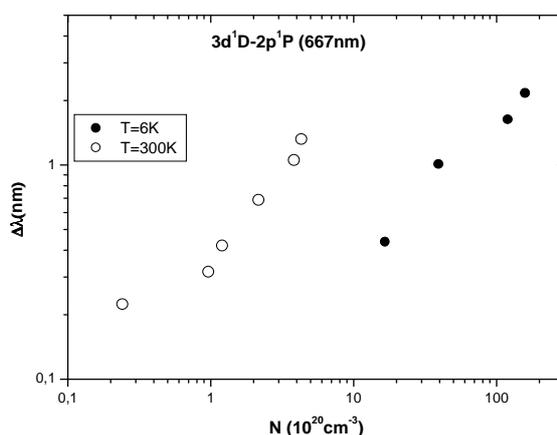


Figure 5-29 Elargissement de la raie $3d^1D-2p^1P$ à $T=6$ et 300K en fonction de N , après soustraction de la largeur instrumentale.

5.5.5 Déplacements des bandes moléculaires

Dans cette section, on présente le déplacement des bandes moléculaires $d^3\Sigma_u^+-b^3\Pi_g$ (639nm) et $D^1\Sigma_u^+-B^1\Pi_g$ (659nm) en variant la pression pour les trois températures étudiées (Figure 5-30 et Figure 5-31).

A $4,2\text{K}$, la bande triplet à 639nm peut être observé jusqu'à $2,5\text{MPa}$, par contre la bande singulet à 659nm n'est observable que jusqu'à $0,65\text{MPa}$.

Pour 300K , la bande à 659nm apparaît jusqu'à 2MPa .

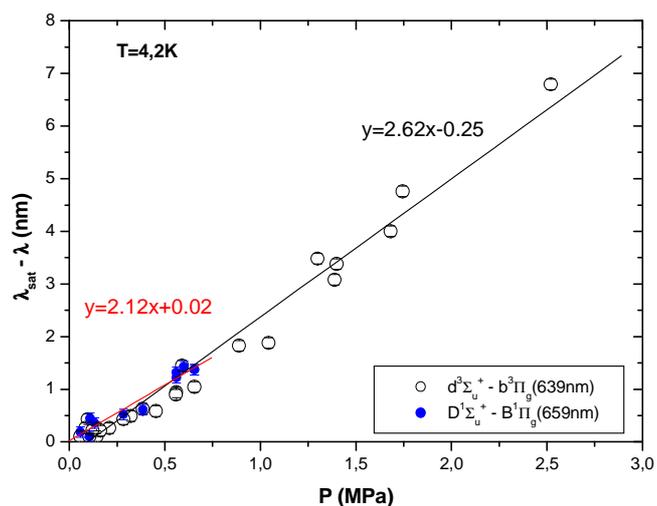


Figure 5-30 Déplacement de $d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$ et $D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$ en fonction de P à $T=4,2K$.

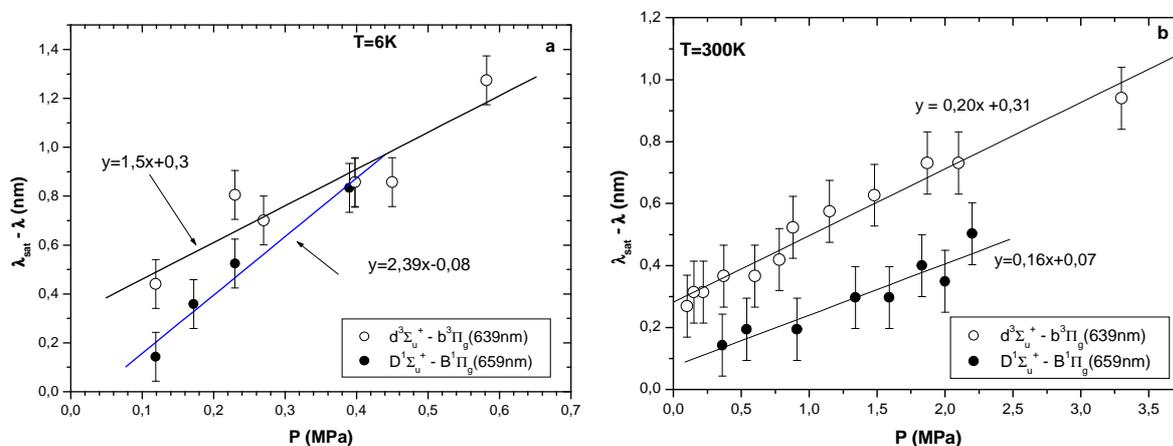


Figure 5-31 Déplacement en fonction de P pour $d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$ (639nm) et $D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$ (659nm) à (a) $T=6K$ et (b) $T=300K$.

5.6 Conclusion

Pour les raies atomiques ou pour les bandes moléculaires, les états singulets disparaissent à une pression plus faible que les états triplets. Nous résumons les pressions de « disparition » dans le Tableau 5-5. A 6K, comme les expériences ont été effectuées jusqu'à seulement 0,6MPa, nous avons uniquement observé la disparition de la raie à 667nm à $P=0,6\text{MPa}$.

Tableau 5-5 Pression(en MPa) de disparition pour différentes raies à $T=4,2$ et 300K .

$T(K)$ λ (nm)	4,2	300
706,5	3,5	3,5
728	0,65	2,2
639	2,3	2,3
659	0,65	2,2
667,8		0,1
913,5	0,2	>2,0
918,3	0,2	
1082,7	0,1	2,2

Un résumé des résultats observés pour ces élargissements et déplacements en fonction de P et T en considérant une variation linéaire est présenté dans les Tableau 5-6 et on remarque d'après le Tableau 5-6 que seul les raies et les bandes dont l'état initial est sphérique (s et Σ) ont un déplacement détectable.(Tableau 5-7)

Pour l'élargissement, le coefficient le plus élevé est toujours obtenu pour $T=6\text{K}$ (par exemple 6,43 nm/MPa pour la raie à 728nm). Les valeurs à $T=300\text{K}$ sont les plus faibles, d'un facteur 4 à 20 suivant les raies.

Tableau 5-6 Variation du déplacement avec T et P en nm/MPa

$T(K)$ λ (nm)	4,2	6,0	300
706,5	2,35	1,63	0,1
728	2,72	2,28	0,29
639	2,62	1,5	0,20
659	2,12	2,39	0,16
913,5			0,19
587,5			
667	Pas de déplacement détectable		
1083			

On remarque d'après le Tableau 5-6 que seuls les raies et les bandes dont l'état initial est sphérique (s ou Σ) ont un déplacement détectable.

Tableau 5-7 Variation de l'élargissement en nm/MPa pour différentes températures.

$T(K)$ λ (nm)	4,2	6,0	300
706	2,56	3,48	0,73
728	3,52	6,43	1,61
667		5,38	0,63

Dans le chapitre suivant, nous présenterons une discussion sur notre étude spectroscopique.

Chapitre 6 Discussion des résultats spectroscopiques

6.1 Introduction

Nous avons vu précédemment (c.f. chap 2) que l'étude du spectre optique est un remarquable outil de diagnostic de la décharge, elle peut permettre d'obtenir un grand nombre d'informations comme la densité ou la température du milieu émissif, c'est pourquoi dans ce chapitre, nous analysons des spectres obtenus dans l'hélium liquide et gazeux. D'abord, nous analyserons le déplacement et l'élargissement des raies en fonction de la pression, pour les différentes températures étudiées, et enfin les bandes moléculaires seront simulées pour obtenir des informations comme la température rotationnelle dans la zone d'ionisation autour de la pointe.

Dans nos expériences, nous avons montré que la zone d'ionisation occupe une faible partie de la distance pointe-plan, la zone d'ionisation est donc très localisée (voir chapitre 4). Nous considérerons par la suite que la pression dans la zone d'ionisation est égale à la pression P du gaz (essais dans le gaz) ou à la pression hydrostatique appliquée sur le liquide (essais dans le liquide).

Dans les sections suivantes, nous ferons aussi une comparaison entre nos résultats et d'autres résultats déjà publiés.

6.2 Raies atomiques

Dans ce paragraphe, nous n'analysons que les raies à 667nm, 706nm, et 728nm. (Figure 6-1) Le principal intérêt de ce choix est lié au fait que ces raies sont suffisamment intenses, qu'elles apparaissent sur un grand domaine de pression et, qu'elles ont été étudiées par de nombreux auteurs. Les transitions de ces raies se trouvent dans le domaine d'énergie 20-23eV.

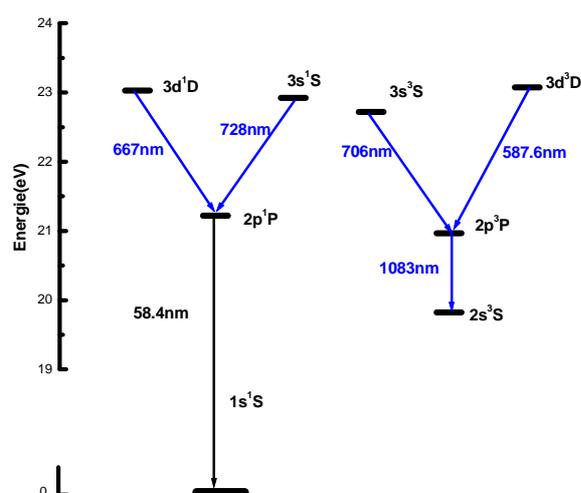


Figure 6-1 Diagramme des niveaux d'énergie des raies observées (en bleu).

Raie à 706,5nm

Cette raie a une structure fine (Figure 6-2), la différence entre les 3 niveaux d'énergie est très faible.

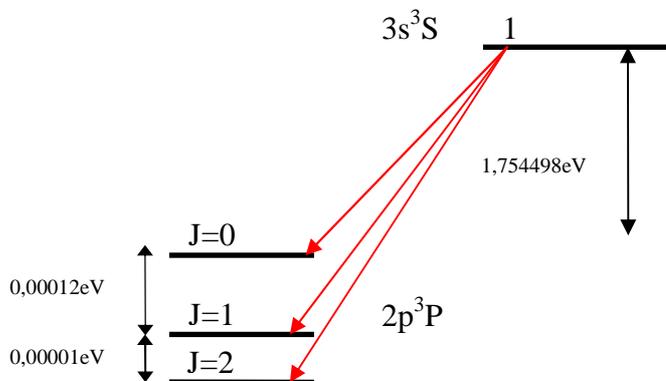


Figure 6-2 Niveau d'énergie dans la transition $3s^3S-2p^3P$

Raie à 667,8nm et 728nm

Le niveau inférieur des raies à 728nm et 667,8nm est un état relié au niveau fondamental par la raie résonante $\lambda (1p^2P^1-1s^2,1S^0)=584,33\text{\AA}$ (Figure 6-3), donc l'interaction est principalement due aux forces de résonance.

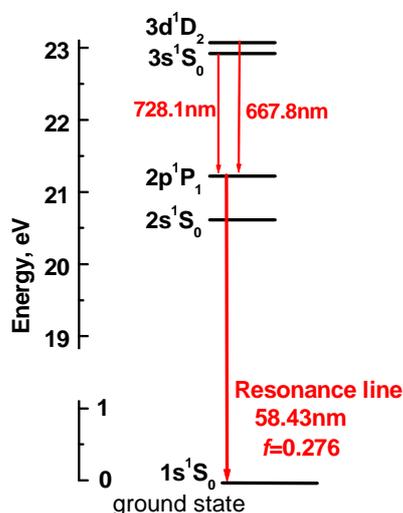


Figure 6-3 Diagramme d'énergie des raies à 728 et 667,8nm.

Les coefficients pour la simulation intervenant dans le calcul des différentes causes d'élargissement et de déplacement sont donnés dans le Tableau 6-1.

Tableau 6-1 Principales données intervenant dans le calcul de l'élargissement et du déplacement des transitions $3s^3S-2p^3P$, $3s^1S-2p^1P$ et $3d^1D-2p^1P$.

λ (nm)	706,51769 $3s^3S_1-2p^2P_2$	706,5214 $3s^3S_1-2p^2P_1$	706,5707 $3s^3S_1-2p^2P_0$	728 $3s^1S-2p^1P$	667,8 $3d^1D-2p^1P$
<i>Energie du niveau u (eV)</i>	22,718			22,923	23,076
<i>Energie du niveau l (eV)</i>	20,965513			21,2195	
<i>Probabilité de transition $A_{u,l}(10^6s^{-1})$</i>	15,44	9,2371	3,079	18,09	63,77
<i>Poids statistique g_u</i>	3			1	5
<i>Poids statistique g_l</i>	5	3	1	3	
<i>Polarisabilité d'He (m^{-3})</i>	0,2 $\times 10^{-30}$				
<i>$J_{\text{fondamental}}$</i>	0				
<i>$f_{jj'}$</i>	0,276				
<i>$\lambda_r(\text{\AA})$</i>	584,33				
<i>$C_3(10^{-23}m^3s^{-1})$</i>	1,44 Déduit de l'équation 2-23				
<i>$C_6(10^{-43}m^6s^{-1})$</i>	1,38 Déduit de l'équation 2-26				
<i>$C_6(10^{-43}m^6s^{-1})$</i>	1,54	1,73	1,546	2,277	1,688
	(Su, et al., 1992)			(Mullamphy, et al., 1991)	
<i>$C_{12}(10^{-97}m^{12}s^{-1})$</i>	6,6	9,4	10,4		
	(Su, et al., 1992)				

Nous devons évaluer l'importance des différentes contributions à l'élargissement et au déplacement des raies. Nous commencerons par étudier l'effet Doppler.

6.2.1 Effet Doppler

Tout d'abord, nous estimons l'élargissement Doppler (Equation 2-4) pour deux raies à différentes températures arbitraires. Les valeurs d'élargissement $\Delta\lambda$ sont calculées pour deux températures dans le Tableau 6-2.

Tableau 6-2 Elargissement Doppler en nm pour $T=300$ et $1000K$

<i>T(K)</i>	<i>706nm</i>	<i>728nm</i>
300	0,004	0,0045
1000	0,008	0,0082

Ces élargissements, même pour une température de 1000K restent très faibles. Donc nous négligerons toujours cet effet.

6.2.2 Effet Stark

Le déplacement des raies de l'hélium dû à l'effet Stark a été calculé par Griem (Griem, 1974). Il est montré dans le Tableau 6-3 pour différentes températures électroniques T_e . Les valeurs négatives correspondent à des déplacements vers le bleu.

Tableau 6-3 Déplacement en Å par effet Stark pour une densité électronique $N_e=10^{16}\text{cm}^{-3}$.

$T_e(K)$ $\lambda (nm)$	5000	10000	20000	40000
667,8	0,275	0,233	0,196	0,161
706,5	0,215	0,231	0,227	0,203
728,1	0,374	0,382	0,355	0,303
1083,1	-0,0518	-0,0557	-0,0540	-0,0465

Les prévisions de déplacement des raies à 667,8nm, 706nm et 728nm par effet Stark sont vers le rouge (Griem, 1974). Ceci est à l'inverse de nos observations où nous avons obtenu un déplacement vers le bleu pour toutes ces raies. De plus, par simulation de la raie H_α à $T=300\text{K}$ (Figure 6-4), nous avons obtenu une densité électronique $N_e=1*10^{15}\text{cm}^{-3}$ à $P=0,1\text{MPa}$ qui est une densité relativement faible et donne un élargissement Stark pour 706 nm de 0,03nm qui est plus faible que notre largeur instrumentale (0,1nm).

Dans le cas du liquide nous n'observons pas la raie H_α , mais le courant de la décharge est plus faible ($\sim 0,1\mu\text{A}$) que dans le cas du gaz à 300K ($\sim 40\mu\text{A}$). Par conséquent, l'effet couronne dans le liquide doit correspondre à une densité électronique inférieure à celle mesurée dans le gaz.

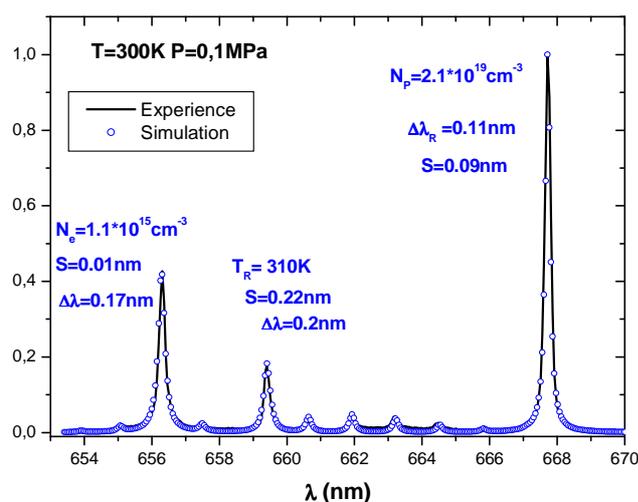


Figure 6-4 Simulation du spectre pour H_α à 656,3nm, He_2 à 659nm et He à 667nm à $T=300\text{K}$, et $P=0,1\text{MPa}$.

Ceci nous conduit à considérer que l'élargissement de raies par l'effet Stark est négligeable par rapport aux autres effets (résonance ou/et van der Waals et Lennard-Jones).

6.2.3 Effet van der Waals

Pour l'effet van der Waals, les raies sont théoriquement toujours déplacées vers le rouge (chapitre 2), ce qui est contraire à nos observations, par conséquent nous ne pouvons interpréter l'élargissement comme une pure interaction van der Waals.

Il ne reste plus à considérer que les deux effets : l'effet résonant : C_3 et l'effet Lennard-Jones : C_6 et C_{12}

6.2.4 Effet résonant et Lennard-Jones

6.2.4.1 Analyse de raies atomiques à $T=300K$

6.2.4.1.1 Interprétation avec le potentiel résonant pour 667 et 728nm

L'élargissement de résonance est observé pour les transitions $3d^1D$ et $3s^1S$ qui aboutissent sur l'état $2p^1P$ (Figure 6-3). Nous avons calculé la constante $C_3=1,44 \times 10^{-23} m^3/s$ (Tableau 6-1), et nous obtenons pour l'élargissement $\Delta\lambda_R$ en nm l'équation 6-1:

$$\Delta\lambda_R = K 8,33 \times 10^{-27} \lambda_{ul}^2 N_p$$

6-1

Ici $\Delta\lambda_R$ et λ_{ul} sont en nm, N_p en cm^{-3} est la densité dans la zone d'ionisation. Une densité de plasma, en considérant l'effet résonant avec $K=0,96$, pour 667,8nm et 728nm est calculée et tracée dans la Figure 6-5. (Pour K , c.f Chapitre 2)

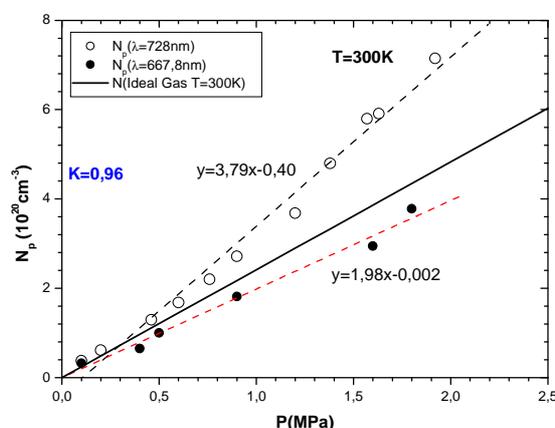


Figure 6-5 Densité du plasma N_p en fonction de P pour $\lambda=728nm$ (○) et $667,8nm$ (●) à $T=300K$, déduite de l'effet résonant pour $0,96$.

Nous nous apercevons que les densités N_p déduites de l'élargissement des raies à 667,8nm et 728nm, ne sont proches que pour les faibles valeurs de pression. D'autre part, la densité N_p déduite de la raie à 728nm est plus élevée que la densité N du milieu à 300K ce qui est irréaliste. De plus, cette raie présente un déplacement vers le bleu qui ne peut pas être expliqué par l'effet résonant seul.

Plusieurs auteurs se sont intéressés à l'étude des raies singulets de l'hélium. Vaughan (Vaughan, 1966) n'a observé aucun déplacement pour cette raie. Il suppose donc, que

l'élargissement est dû seulement à l'effet résonant. Par contre, les investigations de Malvern (Malvern, et al., 1980) sur la raie à 728nm ont montré que cette raie a un léger déplacement, qui a été traité comme une contribution non résonante.

D'un point de vue théorique pour les raies à 667,8nm et 728nm, Mullamphy (Mullamphy, et al., 1991) a calculé la contribution non résonante pour ces raies singulet (c'est-à-dire les termes en r^{-p} avec $p > 3$ dans le potentiel V_p) et il prévoit que la raie singulet a non seulement un élargissement mais aussi un déplacement en fonction de la pression (Mullamphy, et al., 1991).

Nous présentons les prédictions théoriques et les résultats expérimentaux pour les déplacements et les élargissements dans le Tableau 6-4 (v_{in} : vitesse d'intégration, v_{moy} : vitesse moyenne, et v_{rms} : vitesse quadratique moyenne).

Tableau 6-4 Déplacement et élargissement observés et prévus par les différents auteurs ($T=300K$)

<i>Déplacement</i>					
		667,8nm		728nm	
		$S/N(nm.cm^3)$	$S/P(nm/MP)$	$S/N(nm.cm^3)$	$S/P(nm/MP)$
(Mullamphy, et al., 1991)	v_{in}	$1,0 \times 10^{-22}$	0,023	$5,24 \times 10^{-22}$	0,125
	<i>Théorique</i>	$0,79 \times 10^{-22}$	0,019	$4,07 \times 10^{-22}$	0,09
	<i>(non résonant)</i>	$1,2 \times 10^{-22}$	0,02	$4,6 \times 10^{-22}$	0,11
(Vaughan, 1966)		0	$0 \pm 0,25$	0	$0 \pm 0,25$
expérimental					
Sullivan		$2,11 \times 10^{-22}$	0,03	$1,42 \times 10^{-22}$	0,05
Nos résultats				$0,29 \pm 0,1$	
<i>Elargissement</i>					
		667,8nm		728nm	
		$\Delta\lambda/N(nm.cm^3)$	$\Delta\lambda/P(nm/MPa)$	$\Delta\lambda/N(nm.cm^3)$	$\Delta\lambda/P(nm/MPa)$
(Vaughan, 1966)		$3,6 \times 10^{-21}$	0,86	$4,3 \times 10^{-21}$	1,0
(Malvern, et al., 1980)				$4,9 \times 10^{-21}$	1,2
(Atiola, et al., 1988)		$3,7 \times 10^{-21}$	0,89	$5,0 \times 10^{-21}$	1,2
(Mullamphy, et al., 1991)					
<i>Contribution non résonante théorique</i>		$1,6 \times 10^{-21}$	0,4	$3,5 \times 10^{-21}$	0,9
Nos résultats			$0,633 \pm 0,1$	$1,61 \pm 0,1$	

Donc pour les 2 raies, un élargissement Lennard-Jones vient se superposer à l'élargissement par l'effet résonant. D'après les travaux de Lewis (Lewis, 1980), ces élargissements ne sont pas additifs (l'élargissement totale d'une raie est notablement inférieure a la somme des élargissements des interactions individuelles). Mais, en première approximation, nous allons considérer les deux effets comme additifs et écrire pour l'élargissement total l'équation 6-2 qui considère la contribution résonante avec $K=0,96$ (équation 6-1) et la contribution non résonante de Mullamphy qui a été calculé plus haut pour les raies à 728 et 667,8nm :

$$\Delta\lambda_{667,8nm} = (1,6 + 3,56) \times 10^{-21} N_p$$

$$\Delta\lambda_{728nm} = (3,5 + 4,24) \times 10^{-21} N_p$$

6-2

Ici, $\Delta\lambda$ est en nm et N_p en cm^{-3}

A faible pression, les densités N_p déduites de l'élargissement des raies à 728 et 667,8nm sont pratiquement identiques. Mais à pression élevée $P > 1\text{MPa}$, on observe une différence notable entre ces densités. (Figure 6-6)

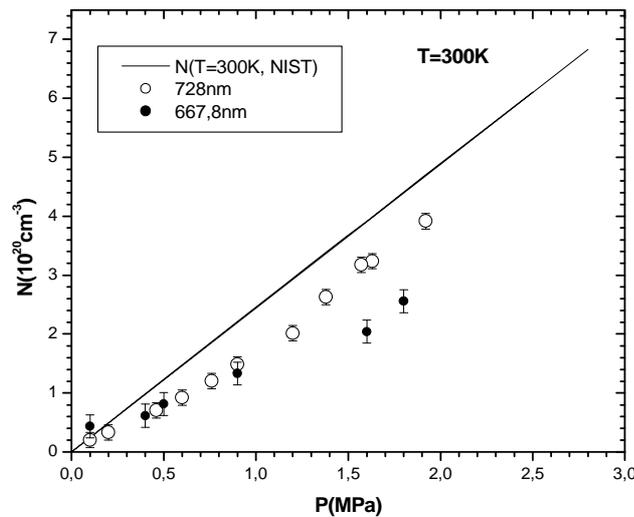


Figure 6-6 Densité N_p déduite de l'équation 6-2 pour la raie à 667,8nm (●) et celle à 728nm (○), et comparaison avec la densité initiale N à $T=300\text{K}$ (—)(NIST).

Les températures T_p peuvent ensuite être calculées connaissant les densités N_p , en supposant que la pression dans la zone d'ionisation est égale à la pression appliquée. Les valeurs obtenues sont tracées sur la Figure 6-7. Comme attendu pour une décharge couronne dans un gaz à 300K, l'élévation de température dans la zone ionisée est faible, $\sim 100\text{K}$.

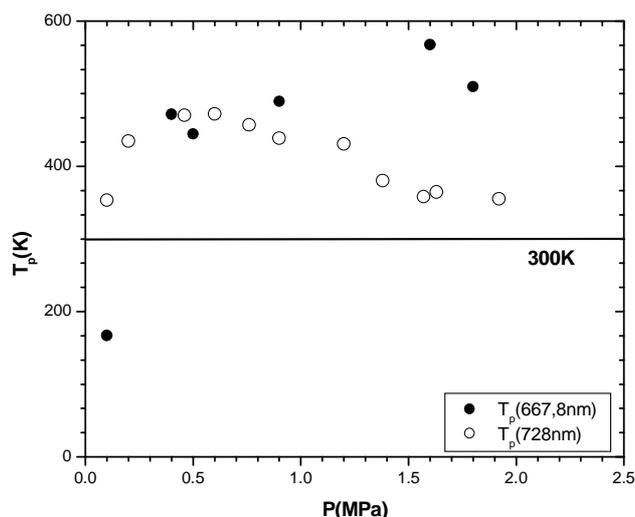


Figure 6-7 Température T_p dans la zone d'ionisation déduite de la densité N_p .

6.2.4.1.2 Interprétation pour $\lambda=706,5\text{nm}$

Le déplacement et l'élargissement, observés pour la raie à $\lambda=706,5\text{nm}$ à $T=300\text{K}$, en fonction de la pression, sont tracés dans la Figure 6-8.

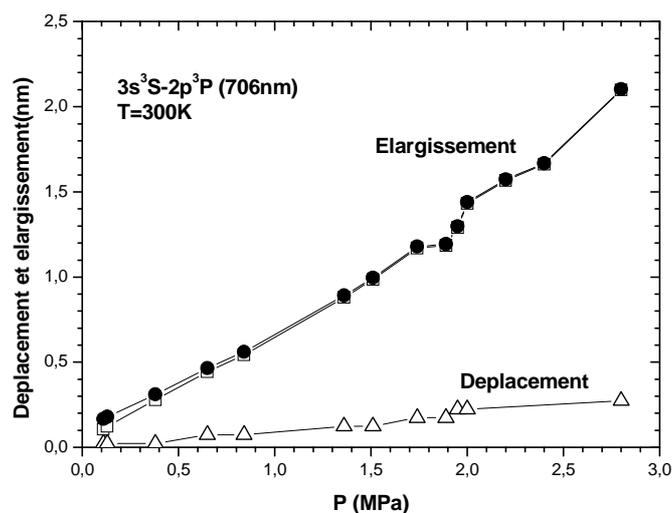


Figure 6-8 Déplacement et élargissement de la raie à $\lambda=706\text{nm}$ à $T=300\text{K}$ en fonction de la pression.

Nous allons analyser cette raie à l'aide de deux méthodes différentes.

1^{ère} méthode : potentiel répulsif

Le rapport du déplacement sur l'élargissement est proche de 0,15 et ce rapport devient pratiquement indépendant de la pression pour $P>0,5\text{MPa}$ (Figure 6-9). Dans l'approximation d'impact, ce rapport tend vers la valeur 0,145 lorsque l'interaction devient répulsive ($\alpha\rightarrow\infty$) (Figure 2-2). Cette valeur est très proche de nos résultats expérimentaux.

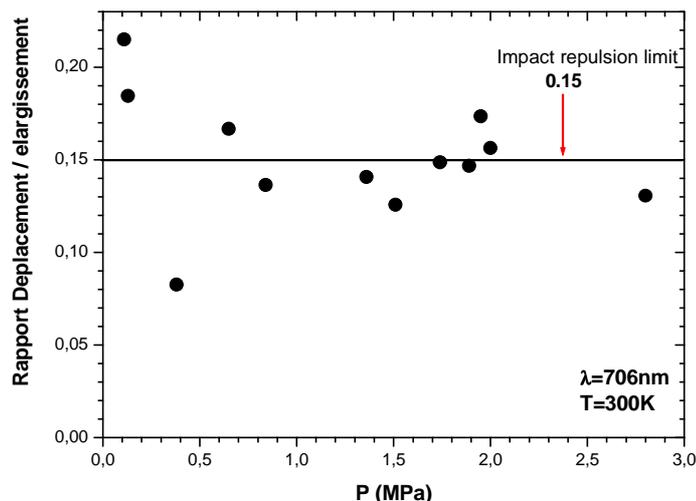


Figure 6-9 rapport déplacement /élargissement pour $\lambda=706\text{nm}$ à $T=300\text{K}$.

Cette constatation nous conduit à analyser le déplacement et l'élargissement de la raie à 706nm en utilisant la méthode du potentiel répulsif dans l'approximation d'impact (Hindmarsh, et al., 1970; Allard, et al., 1982). Si l'interaction répulsive (C_{12}) est plus importante que l'interaction attractive (C_6) dans le potentiel de Lennard-Jones, le paramètre $\alpha = 0,536w^{6/5} \frac{C_{12}}{|C_6|^{11/5}}$ est important, et les fonctions sans dimension $S(\alpha)$ et $B(\alpha)$ se simplifient :

$$B(\alpha) = \int_0^{\infty} x \sin^2\left(\frac{\alpha}{2x^{11}}\right) dx = 2,56\alpha^{2/11}$$

$$S(\alpha) = \int_0^{\infty} x \sin\left(\frac{\alpha}{2x^{11}}\right) dx = 1,49\alpha^{2/11}$$

6-3

Dans ce cas, l'élargissement et le déplacement peuvent être approximés par les relations:

$$\Delta\lambda_{12} = 9,14 \left(\frac{\lambda_{ul}^2}{2\pi c}\right) w^{9/11} |C_{12}|^{2/11} N_p$$

$$\Delta S_{12} = 1,42 \left(\frac{\lambda_{ul}^2}{2\pi c}\right) w^{9/11} |C_{12}|^{2/11} N_p$$

6-4

Ici, $w=10^2 \times T^{0,5}$ (en cm/s) est la vitesse relative qui est une fonction de la température du gaz . Pour $\lambda=706,5\text{nm}$, on prend la constante $C_{12}=9 \times 10^{-97} \text{ m}^{12}/\text{s}$ (Su, et al., 1992) et en utilisant l'équation 6-4, on obtient les expressions suivantes pour l'élargissement et le déplacement dans le cas du potentiel répulsif :

$$\Delta\lambda_{12} = 3,72 \times 10^{-21} N_p$$

$$\Delta S_{12} = 5,67 \times 10^{-22} N_p$$

6-5

La densité N_p est en cm^{-3} , le déplacement et l'élargissement $\Delta\lambda$ en nm.

On en déduit la densité du plasma et on la compare avec la densité du gaz parfait à 300K (Figure 6-10).

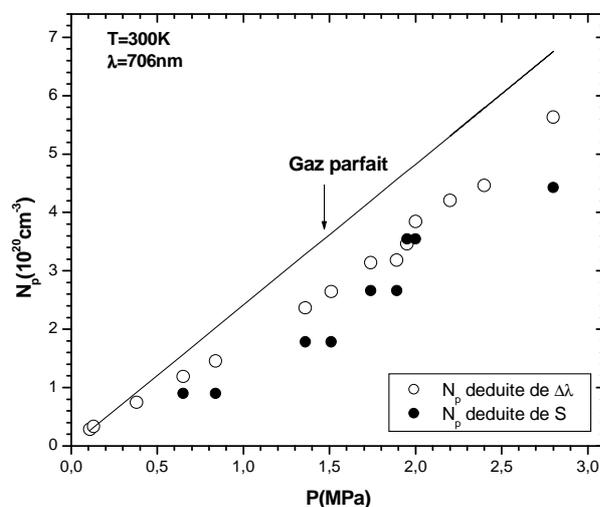


Figure 6-10 N_p déduite du potentiel répulsif pour $\lambda=706\text{nm}$ à $T=300\text{K}$.

2^{ème} méthode : Théorie de Leo

A $T=300\text{K}$, Leo (Leo, et al., 1992) a étudié théoriquement le déplacement et l'élargissement de la raie atomique triplet à 706,5nm (Tableau 6-5). Il décrit la collision de l'atome excité et de l'atome dans l'état fondamental en terme de potentiel moléculaire adiabatique dans l'approximation d'impact.s

Tableau 6-5 Elargissement et déplacement en fonction de la densité en 10^{21} nm/cm^3

Raie	Théorie (Leo, et al., 1992)				Expérience			
	Vitesse d'intégration		Vitesse moyenne		(Su, et al., 1992)		Nos résultats	
	$\Delta\lambda$	S	$\Delta\lambda$	S	$\Delta\lambda$	S	$\Delta\lambda$	S
$3^3S_1-2^3P_0$	2,87	0,384	2,861	0,2828	2,163			
$3^3S_1-2^3P_1$	2,87	0,384	2,861	0,2828	2,11		2,9	0,41
$3^3S_1-2^3P_2$	2,87	0,384	2,861	0,2828	2,27			

Nous comparons les valeurs théoriques avec nos résultats expérimentaux. Nos valeurs sont très proches de celles de Léo quand il calcule le déplacement avec la vitesse d'intégration (Figure 6-11).

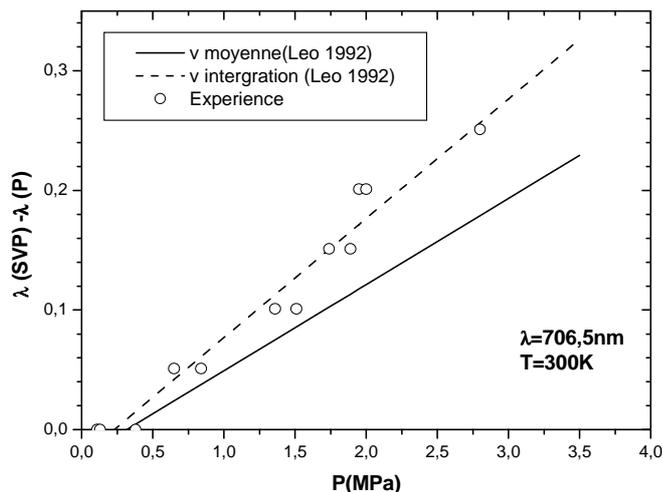


Figure 6-11 Comparaison entre l'expérience et la théorie (Leo, et al., 1992) à $T=300\text{K}$ pour $\lambda=706\text{nm}$ (a).

Leo (Leo, et al., 1992) donne une relation linéaire pour la densité N_p en fonction du déplacement et de l'élargissement:

$$\Delta\lambda = 2,87 \times 10^{-21} N_p$$

$$S = 0,384 \times 10^{-21} N_p$$

6-6

Ici, N_p est la densité du plasma en cm^{-3} .

Cette équation est utilisée pour calculer dans la zone d'ionisation la densité N_p qui est tracée en fonction de la pression. Dans la Figure 6-12, nous comparons les densités de la zone d'ionisation déduites du potentiel répulsif et de la théorie de Leo.

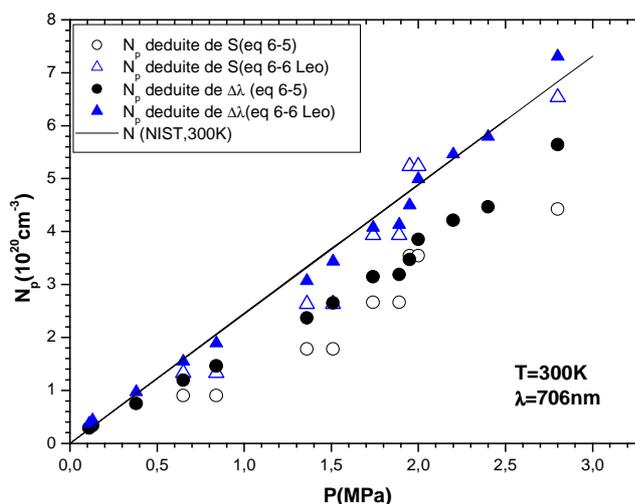


Figure 6-12 Densité N_p déduite du déplacement (Δ) et de l'élargissement (\blacktriangle) par la méthode de Leo et du déplacement (\circ) et de l'élargissement (\bullet) par la méthode du potentiel répulsif.

La densité déduite de la théorie de Leo est en général plus élevée que celle déduite de l'approximation simpliste du potentiel répulsif.

En utilisant les densités N_p précédentes et en considérant le gaz parfait à la pression P de l'essai, on peut en déduire la température T_p dans la zone de décharge (Figure 6-13). Les températures ainsi obtenues sont en général $\geq 300\text{K}$ et, elles sont plus élevées lorsqu'on utilise la théorie du potentiel répulsif. Il est évident que les températures inférieures à 300K ne sont pas réalistes. Comme nous l'avons noté précédemment, l'élévation de température dans la zone ionisée par une décharge couronne dans un gaz doit être faible. Nos résultats sont conformes à cette hypothèse. Ils dépendent essentiellement de la méthode utilisée pour déterminer N_p et pratiquement pas de la pression d'essai. Les valeurs obtenues sont dans la gamme $300\text{-}500\text{K}$.

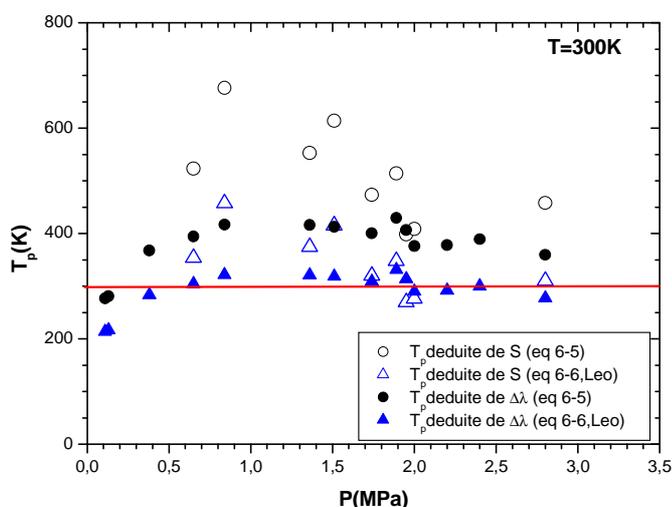


Figure 6-13 Températures T_p calculées à partir des valeurs de N_p déduites du déplacement (Δ) et de l'élargissement (\blacktriangle) par la méthode de Leo et du déplacement (\circ) et de l'élargissement (\bullet) par la méthode du potentiel répulsif

6.2.4.2 Analyse de raies atomiques à $T=6\text{K}$

Comme pour $T=300\text{K}$, nous analysons les raies par deux méthodes.

6.2.4.2.1 Interprétation par le potentiel résonant pour les raies à 667,8 et 728nm

Comme précédemment, la simulation de ces spectres conduit à une estimation de la densité dans la zone ionisée autour de la pointe (élargissement par l'effet résonant). Les simulations et les valeurs de N_p sont présentées sur les Figure 6-14 et Figure 6-15 :

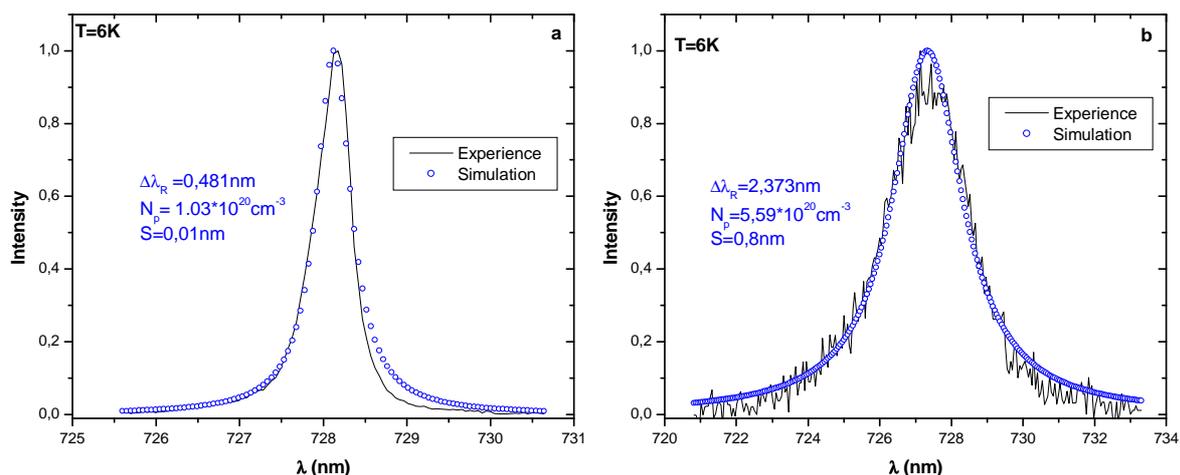


Figure 6-14 Simulation numérique pour 728nm à $T=6K$ et $P=0,1(a)$ et $0,4 (b)$ MPa.

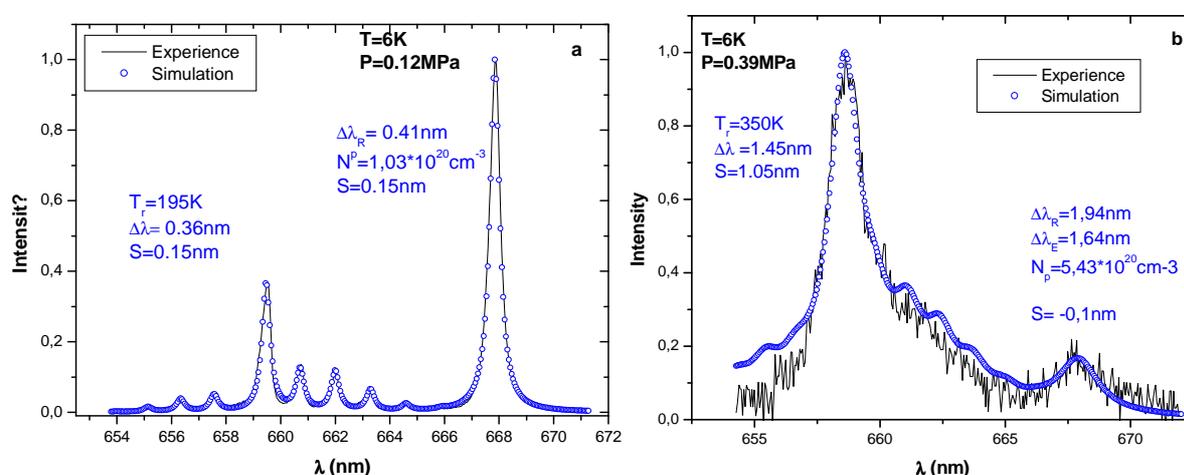


Figure 6-15 Simulation numérique pour 667,8nm à $T=6K$ et $P=0,12(a)$ et $0,4 (b)$ MPa.

Les valeurs de N_p , déduites de l'effet résonnant, augmentent avec la pression puis tendent vers une valeur constante à pression élevée (Figure 6-16). Une comparaison entre les densités N_p obtenues à partir des raies à 728nm et 667,8nm par l'effet résonnant à $T=6K$ est montrée sur la Figure 6-16. Les densités N_p sont très proches et sont de l'ordre de 10^{20} cm^{-3} , ce qui est environ de l'ordre de grandeur plus faible que la densité N du fluide supercritique loin de la zone d'ionisation $N(\text{NIST})$. Ce calcul ne tient pas compte de la contribution non résonante, par conséquent, nous surestimons la densité dans la zone d'ionisation.

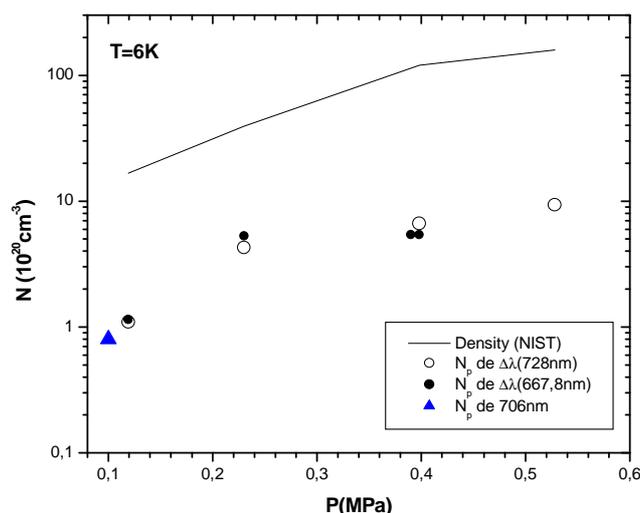


Figure 6-16 Densité N_p en fonction de P déduite de l'effet résonant pour les raies à $\lambda=728,13\text{nm}$ (\circ) et $\lambda=667,8\text{nm}$ (\bullet), et à partir du potentiel répulsif pour la raie à $\lambda=706\text{nm}$ (\blacktriangle). Comparaison avec la densité N du fluide (—) à $T=6\text{K}$ et P .

Si nous considérons que, dans la zone d'ionisation, le gaz est parfait, sa température dans cette zone est calculée et tracée sur la Figure 6-17. Nous trouvons une température T_p toujours inférieure à 120K.

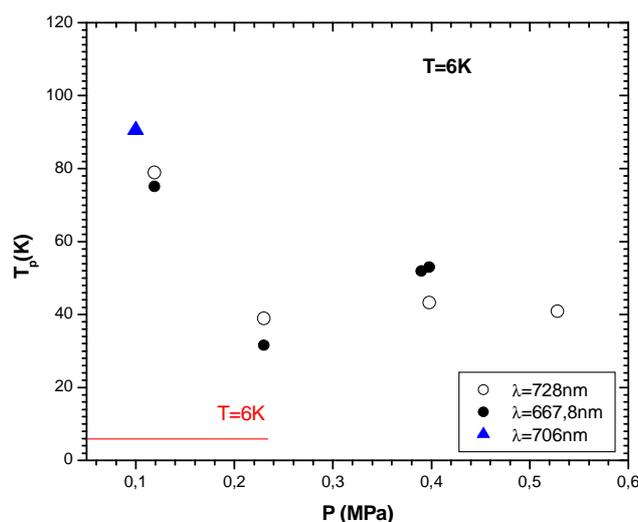


Figure 6-17 Température T_p dans la zone ionisée déduite de N_p pour $\lambda=667\text{nm}$ (\bullet), 728nm (\circ) et 706nm (\blacktriangle) par l'effet résonant.

La température déduite de N_p étant proche de 77K, nous pouvons, en première approximation, comme précédemment ajouter à la contribution résonante, le calcul de la contribution non résonante de Mullamphy pour 77K :

$$\Delta\lambda_{667,8\text{nm}} = (1,05 + 3,56) \times 10^{-21} N_p$$

$$\Delta\lambda_{728\text{nm}} = (2,1 + 4,24) \times 10^{-21} N_p$$

Ici, $\Delta\lambda$ est en nm et N_p en cm^{-3} .

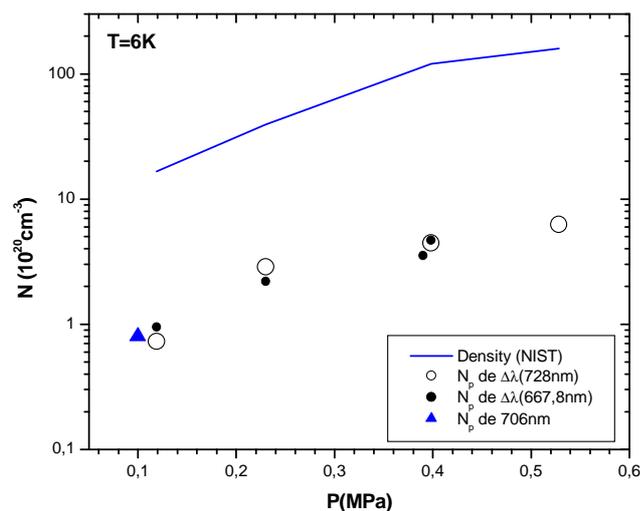


Figure 6-18 Densité N_p en fonction de P déduite de l'équation 6-7 pour les raies à $\lambda=728,13\text{nm}$ (○) et $\lambda=667,8\text{nm}$ (●), et à partir du potentiel répulsif pour la raie à $\lambda=706\text{nm}$ (▲). Comparaison avec la densité N du fluide (—) à $T=6\text{K}$ et P .

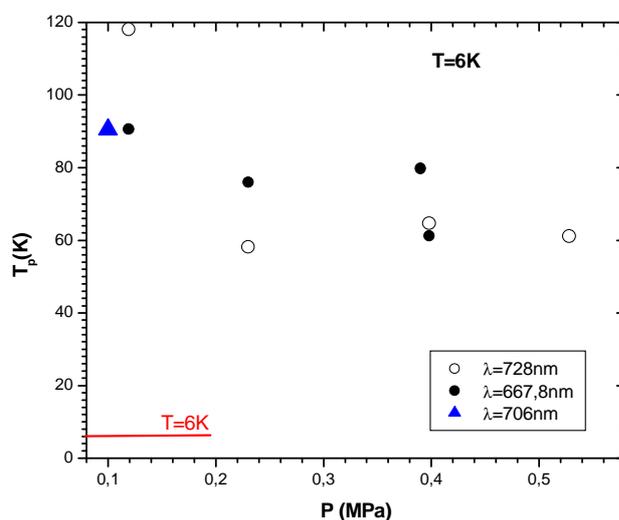


Figure 6-19 Température T_p dans la zone ionisée déduite de N_p pour $\lambda=667\text{nm}$ (●), 728nm (○) et 706nm (▲) à partir de l'équation 6-7.

6.2.4.2 Interprétation par le potentiel répulsif pour la raie à 706nm

Le rapport entre le déplacement et l'élargissement pour les raies à 706nm est présenté sur la Figure 6-20. Comme présenté dans le chapitre 2, le déplacement vers le bleu est une conséquence de l'interaction répulsive entre l'atome et l'émetteur, qui perturbe l'émetteur.

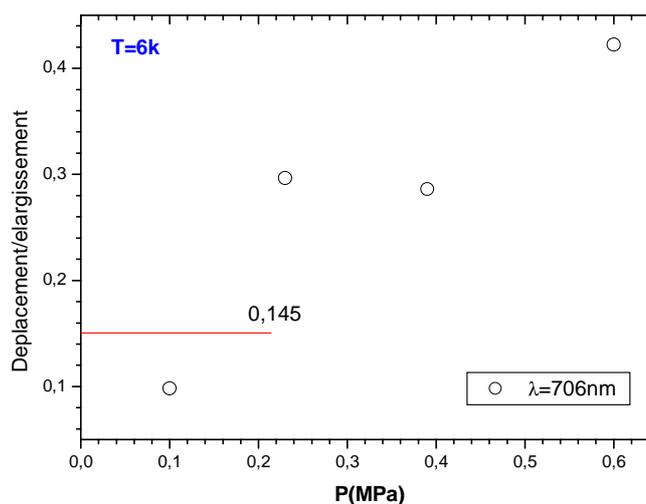


Figure 6-20 Rapport déplacement/élargissement pour les raies à $\lambda=706\text{nm}$ à $T=6\text{K}$.

Cependant à $T=6\text{K}$, le rapport déplacement/élargissement n'est proche de 0,145 que pour la pression $P=0,1\text{MPa}$. Aussi nous ne calculerons la densité N_p à l'aide du potentiel répulsif dans l'approximation d'impact que pour cette pression.

En utilisant l'équation 6-4 et les valeurs $S(0,1\text{MPa})=0,03\text{nm}$ et $\Delta\lambda(0,1\text{MPa})=0,2\text{nm}$, nous avons obtenu une densité $N_p=8\times 10^{19}\text{cm}^{-3}$, correspondant à une température $T_p=90\text{K}$ (Figure 6-16 et Figure 6-17).

6.2.4.3 Analyse des raies atomiques à $T=4,2\text{K}$

Nous pouvons supposer, du fait que l'on observe des raies atomiques et des bandes moléculaires avec une structure rotationnelle, que le régime stationnaire de décharge couronne observé dans l' ^4He liquide produit une région lumineuse qui correspond à un gaz (chaud) et non à un état liquide. Les conditions de température et de pression dans cette région très lumineuse correspondent alors à un plasma que l'on peut supposer hors équilibre (plasma froid). Il est défini par une température T_p et une pression qui sera égale à la pression hydrostatique P appliquée sur le liquide. Le reste du volume, loin de la zone d'ionisation, est, lui, défini par la température T de l'essai et une densité $N=f(P,T)$ qui est connue.

Cependant à $T=4,2\text{K}$, nous avons été surpris du décalage important de nos raies atomiques vers le bleu. Des études antérieures sur l'effet couronne dans l'argon liquide avaient montré un décalage faible des raies atomiques vers le rouge (Nur, 1997). Après une recherche bibliographique, nous nous sommes aperçus que les spectres et les déplacements des raies que nous avons obtenus étaient très proches de ceux observés dans l'hélium superfluide excité par bombardement électronique ou protonique.

Par exemple, Soley et al. (Soley, et al., 1974) ont effectué des mesures sur la raie à $706,5\text{nm}$ excitée par faisceau d'électron à $T=1,75\text{K}$. Ils ont observé que cette raie était déplacée vers le bleu avec une valeur de déplacement en fonction de la pression proche de la nôtre bien que plus élevée soit: $3,2\text{nm/MPa}$ pour Soley et $2,35\text{nm/MPa}$ pour nos mesures.

(Figure 6-21) (Li, et al., 2007). Par contre, nos résultats sont concordants avec ceux de Zimmermann (Zimmermann, et al., 1977) qui a enregistré des spectres produits par émission de champ dans l'hélium superfluide à 1,7K.

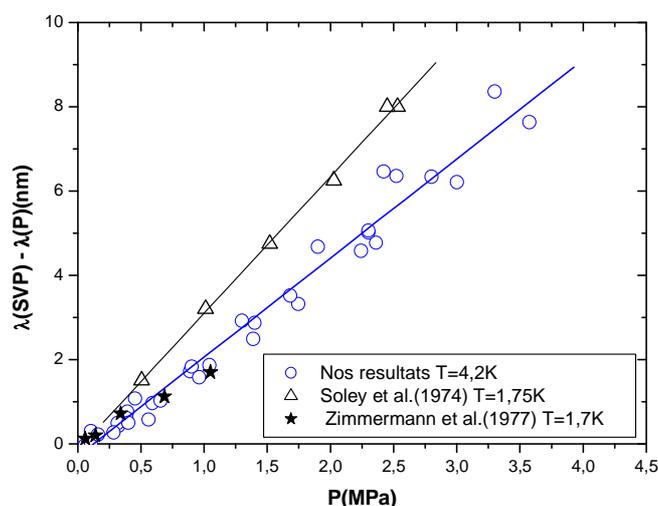


Figure 6-21 Déplacement expérimental de la raie $3s^3S-2p^3P$ à 706,5nm dans l'hélium liquide à 4,2K et 1,7K.

On peut également remarquer que nos spectres d'émission des bandes moléculaires $D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$ et $d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$ observées à $P=0,4\text{MPa}$ et $T=4,2\text{K}$ ($N=2,07 \times 10^{22}\text{cm}^{-3}$) sont très proches de celles obtenus, sous faisceau d'électron à 160keV par Dennis et al. à $T=1,75\text{K}$ (Dennis, et al., 1969) (Figure 6-22).

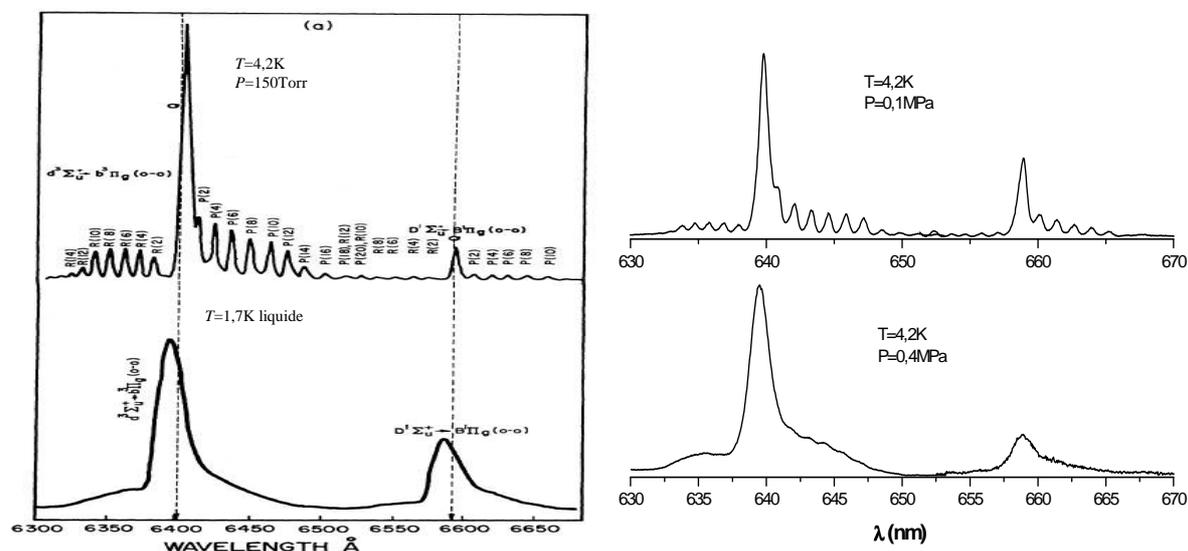


Figure 6-22 Comparaison des bandes $D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$ et $d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$ obtenues par Dennis (Dennis, et al., 1969) (à gauche, (a) pour $T=4.2\text{K}$ et $P=150\text{ torr}$ $N=3,63 \times 10^{20}\text{ at/cm}^3$) et par notre méthode (à droite).

D'autres études spectroscopiques ont été faites sur l'hélium et nous les avons résumées dans l'Annexe 3.

Dans tous ces travaux expérimentaux concernant l'hélium superfluide, la lumière émise n'a jamais été interprétée comme provenant de la formation d'un plasma très localisé (dans ces expériences le courant de bombardement étant faible, ils considèrent que l'hélium

superfluide ne peut pas être chauffé localement) mais provenant d'un atome ou d'une molécule excitée entourés de liquide.

Dans ces expériences, ils ont constaté que :

- Le déplacement des raies observées (même s'il est important) est beaucoup plus faible que le déplacement prévu en considérant la densité du liquide par l'effet de pression.
- Et qu'il existe une différence de déplacement entre l'émission et l'absorption de la même raie (Ref).
- Que seules les transitions moléculaires originaires d'un état sphérique Σ ont été observées (en émission et en absorption)

Ces constatations expérimentales ont suggéré la création d'une bulle autour de l'atome, ou de la molécule, excitée similaire à la bulle électronique (chapitre 1). La formation de la bulle a été expliquée comme suit : après excitation, l'électron externe interagit fortement avec les atomes environnants. Cette interaction cause une forte répulsion sur les atomes environnant et ils sont repoussés loin de l'atome, ou de la molécule, excité. L'atome excité est donc représenté par un noyau He^+ et un électron externe E_{ec} . L'énergie totale pour atome excité est donnée par Hickman et al. (Hickman, et al., 1971; Hickman, et al., 1975)

Le fort champ Coulombien du noyau He^+ et la dispersion attractive à longue portée mènent à un rayon plus petit pour la bulle de l'atome excité ($\sim 10\text{\AA}$) que pour à la bulle électronique ($\sim 17\text{\AA}$). (Figure 6-23). (Hickman, et al., 1971; Hickman, et al., 1975)

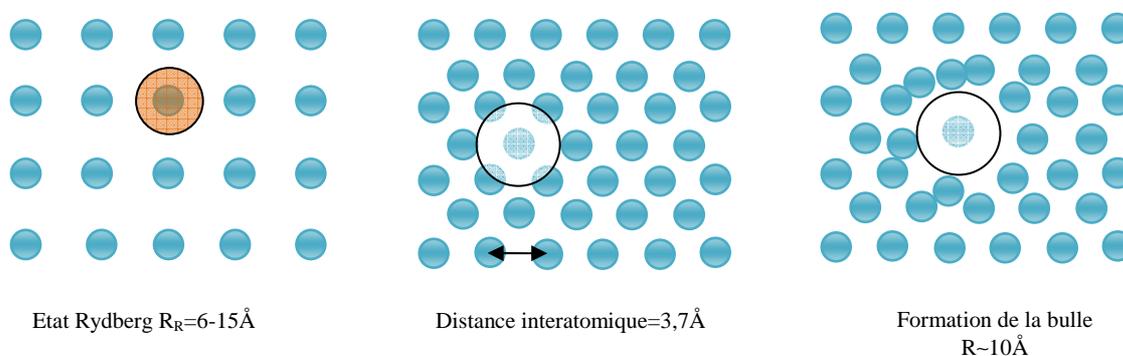


Figure 6-23 Formation de la bulle autour d'un état excité atomique ou moléculaire dans l'hélium liquide.

Nous avons donc considéré les deux hypothèses qui s'offrent à nous pour interpréter nos résultats.

Soit on considère qu'on chauffe localement près de la pointe et que cette zone ionisée est un gaz permanent avec une densité $N_p < N_{liq}$ et une température $T_p > 4,2\text{K}$ et on essaye de déduire la densité N_p et température T_p du plasma de la lumière émise.

Soit on considère que l'émission est produite en phase liquide, c'est-à-dire que les atomes et molécules excités sont entourés de liquide.

6.2.4.3.1 Modèle du plasma

A $T=4,2\text{K}$, nous ne pouvons pas appliquer la méthode du potentiel répulsif pour la raie à 706nm . En effet, le rapport déplacement sur élargissement ($S/\Delta\lambda$) est plus grand que $0,145$ et il augmente avec la pression jusqu'à atteindre une valeur constante pour $P>2,5\text{MPa}$ (Figure 6-24). Nous ne pouvons donc pas déduire la densité N_p par cette méthode.

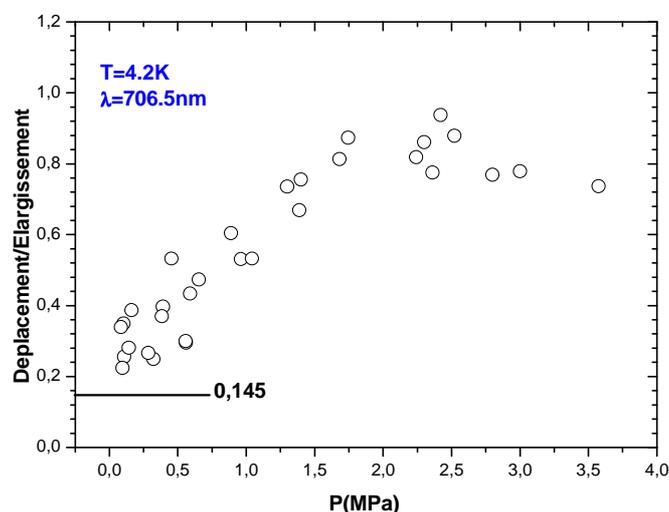


Figure 6-24 Rapport déplacement/élargissement en fonction de la pression pour la raie à 706nm à $T=4,2\text{K}$.

Nous considérerons seulement l'effet résonant pour la raie à 728nm .

Interprétation du potentiel de résonance pour $\lambda=728\text{nm}$

A partir de l'équation 2-24 du chapitre 2 pour l'effet résonant, on peut obtenir la densité du plasma N_p . La simulation de ce spectre donne une estimation de la densité atomique au sein de notre plasma.

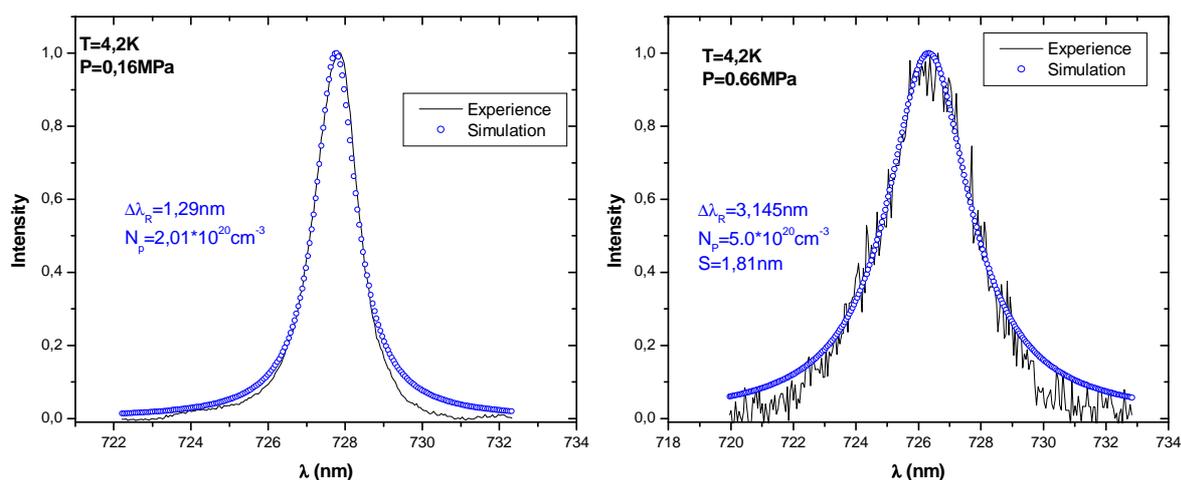


Figure 6-25 Simulation numérique pour la raie à 728nm à $T=4,2\text{K}$ et $P=0,16$ (a) et $0,66$ (b) MPa.

La densité du plasma N_p , obtenue à partir de l'effet résonant de la raie à 728nm , en fonction de la pression P et de la densité du milieu N à $T=4,2\text{K}$, est tracée dans la Figure 6-26.

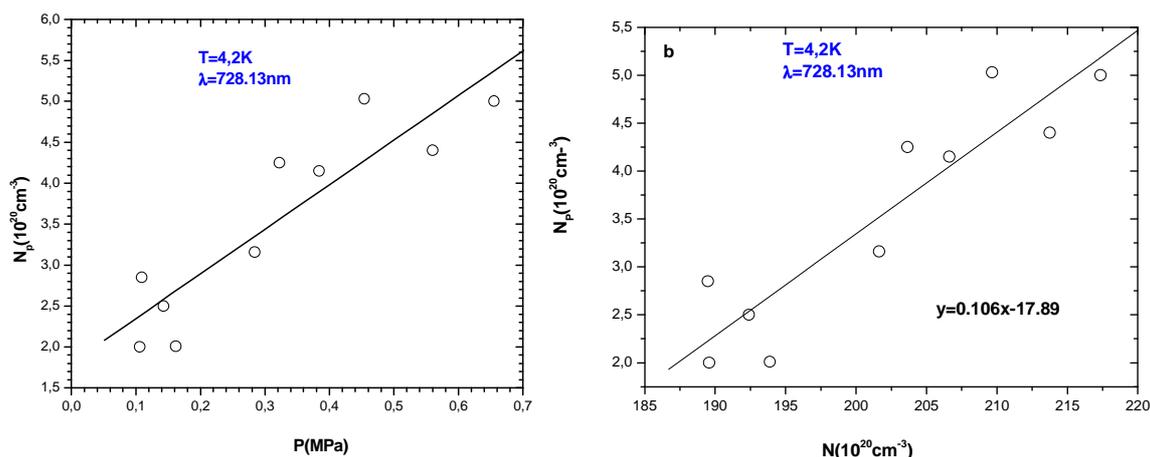


Figure 6-26 N_p en fonction de P (a) et N (b) par effet de résonance sur la raie à 728nm à $T=4,2\text{K}$.

On observe que la densité N_p est bien plus faible que la densité de l'hélium liquide (10^{22}cm^{-3}). La température dans cette zone est ensuite calculée et tracée en fonction de la pression (Figure 6-27).

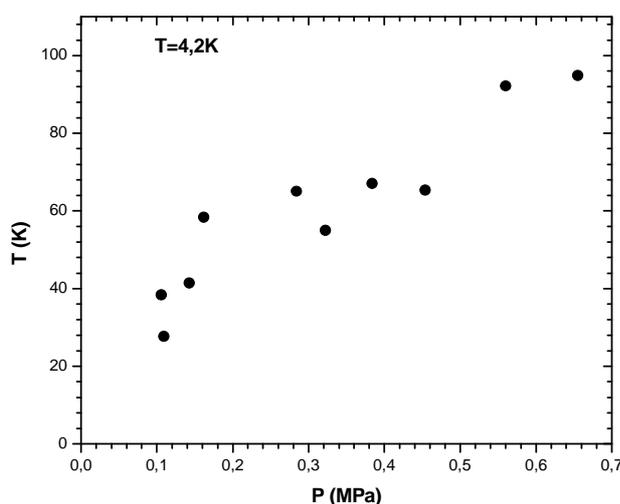


Figure 6-27 Température T_p déduite de N_p pour $\lambda=728\text{nm}$ à $T=4,2\text{K}$.

6.2.4.3.2 Comparaison avec le modèle de la pseudo-bulle

Les résultats théoriques sont montrés dans la Figure 6-28 pour l'émission $3^3\text{S}-2^3\text{P}$ pour une pression variant de 0 à 2,5MPa en utilisant les modèles de la bulle de Steets et al (Steets, et al., 1974) et de Hickman (Hickman, et al., 1971; Hickman, et al., 1975). Suite aux calculs de Hickman et al, le déplacement de l'énergie des états 3S et 1S (les états supérieurs des raies à 706nm et 728nm) est très sensible aux choix de la tension superficielle et elle peut varier de 30%, de plus suivant le choix du pseudopotentiel utilisé, et le déplacement peut varier d'un facteur 2, c'est-à-dire, de 0,7 à 16 nm. Par conséquent nous avons pour le déplacement théorique une très grande imprécision d'au moins un facteur 2. Les valeurs expérimentales de l'élargissement de la raie à 706nm de Soley sont prises dans la publication de Hickman (Hickman, et al., 1975), dont nous avons enlevé la largeur instrumentale $\Delta\lambda_{\text{in}}=1,7\text{nm}$. Les

déplacements sont vers le bleu et sont donnés en nm relativement à la longueur d'onde à la pression $P=0,1\text{MPa}$.

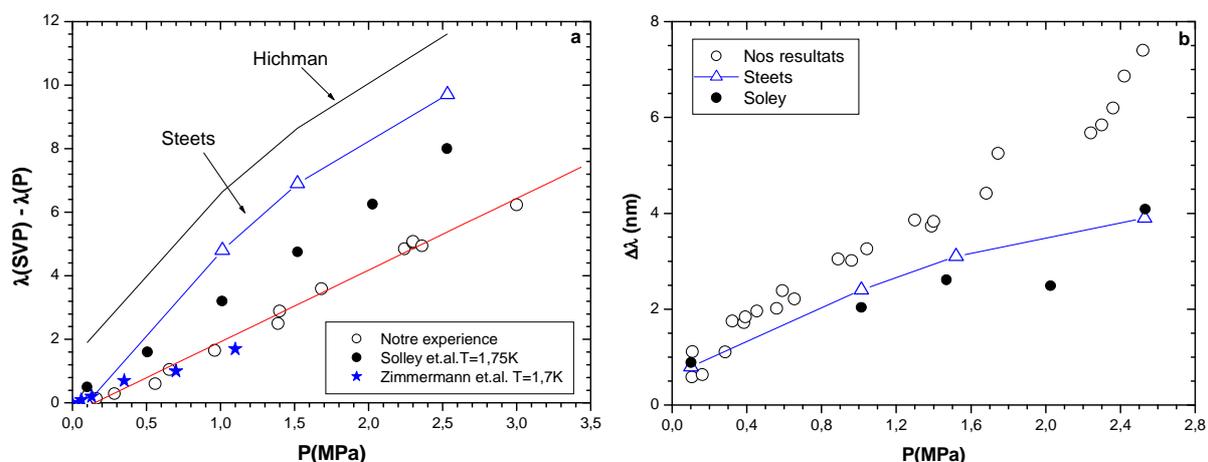


Figure 6-28 Comparaison entre les prédictions théoriques de Steets et al (Steets, et al., 1974) et de Hickman (Hickman, et al., 1975), et les résultats expérimentaux de Soley et al (Soley, et al., 1974) et nos résultats pour le déplacement (a) et l'élargissement (b) de la raie à 706nm.

Nous comparons les valeurs expérimentales avec les valeurs théoriques déduites du modèle de la bulle. Les valeurs théoriques du déplacement sont plus grandes que nos valeurs expérimentales Figure 6-28 (a) alors que pour l'élargissement (Figure 6-28 (b)) on observe l'inverse. On peut noter que nos valeurs d'élargissement sont très proches de celles déduites du modèle de la bulle pour $P < 1,5\text{MPa}$.

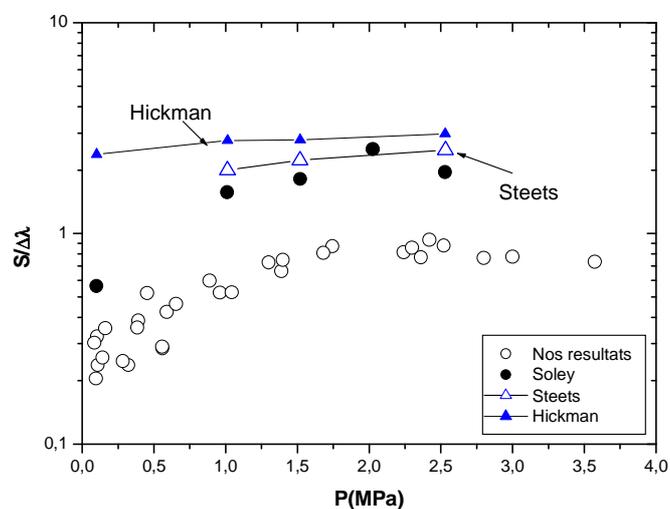


Figure 6-29 Comparaison du rapport $S/\Delta\lambda$ entre la théorie de la bulle et les résultats expérimentaux.

De même, le rapport expérimental ($S/\Delta\lambda$) est loin de celui prévu par le modèle de la bulle (Figure 6-29). Rappelons cependant qu'il ne peut pas être expliqué par le modèle du potentiel répulsif dans l'approximation d'impact.

6.3 Bandes moléculaires

Nous présentons un diagramme des niveaux d'énergie pour toutes les transitions moléculaires observées et identifiées dans nos expériences. (Figure 6-30).

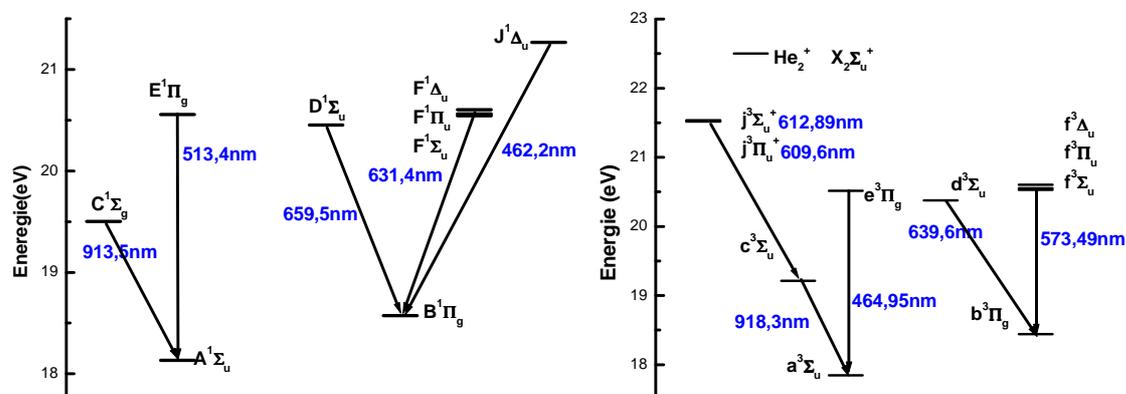


Figure 6-30 Niveau d'énergie des bandes moléculaires singulet et triplet.

Nous avons observé les transitions de bandes moléculaires $D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$, $d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$, $C^1\Sigma_g^+ \rightarrow A^1\Sigma_u^+$ et $c^3\Sigma_g^+ \rightarrow a^3\Sigma_u^+$ avec la vibration $v'-v''$ (0-0), ainsi que les transitions $e^3\Pi_g \rightarrow a^3\Sigma_u^+$, $f^3\Pi_u \rightarrow b^3\Pi_g$ et $J^1\Delta \rightarrow B^1\Pi_g$ dans l'hélium liquide à $T=4,2K$ (Li, et al., 2006) (Li, et al., 2007) (Bonifaci, et al., 2006). Ces dernières bandes moléculaires ont été identifiées d'après Ginter (Ginter, 1965; Ginter, et al., 1970). Certaines des bandes moléculaires observées correspondent à des niveaux vibrationnels $v>0$, par exemple pour: $f^3\Pi_u \rightarrow b^3\Pi_g$ (Li, et al., 2007). De plus, pour les bandes moléculaires $D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$, et $d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$, les transitions rotationnelles jusqu'à $J=16$ pour les branches P et R ont été détectées à faible pression. Leur structure est cependant différente de celle décrite par Dennis (Dennis, et al., 1969) qui ont utilisé une excitation par un faisceau d'électrons à 160kV et obtenu des spectres d'émission entre 600nm et 1100nm. Ils ont ainsi identifié 6 des états excités des états moléculaires singulet et triplet que nous avons observés dans l'hélium liquide.

A partir des principes énoncés dans le chapitre 2, nous pouvons déterminer la température rotationnelle de l'état moléculaire excité. Et nous pouvons aussi analyser l'interaction dynamique qui a lieu dans la zone d'ionisation.

6.3.1 Température rotationnelle

6.3.1.1 Bande singulet $D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$

Une simulation de la bande singulet à 659,5nm a été effectuée avec les coefficients présentés dans le chapitre 2. On considère que la population suit une distribution de Boltzman et que le profil est Lorentzien. Le facteur S est donné dans le chapitre 2 d'après Budo (Budo, 1935). La simulation dans le cas de l'hélium gazeux ($T=6K$) est en bon accord avec

l'expérience (Figure 6-31). Par contre, dans le cas de l'hélium liquide ($T=4,2\text{K}$), il est très difficile de simuler l'intensité de la branche R, et les transitions les plus élevées de la branche P. (Figure 6-31)

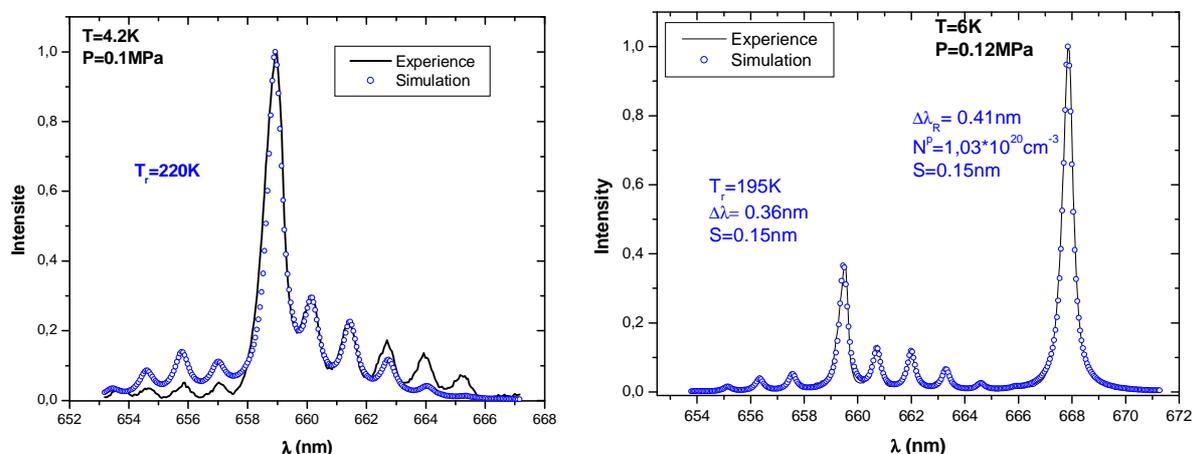


Figure 6-31 Simulation de $\text{He}_2^* \text{D}^1\Sigma_u^+ \rightarrow \text{B}^1\Pi_g$ $\lambda=659,5\text{nm}$ à $P=0,1\text{MPa}$ et $T=4,2\text{K}$ et 6K .

La température rotationnelle T_r de cet état singulet, déduite de la simulation, est de l'ordre de 210K. Si cette température est représentative de celle existante dans la zone d'ionisation, elle indiquerait la formation d'une phase gazeuse près de la pointe. Rappelons qu'à $T=300\text{K}$, la température rotationnelle T_r du même état singulet était de 310K. (Figure 6-4)

6.3.1.2 Bande triplet $d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$

La simulation de la bande triplet est plus complexe. Si on compare la structure rotationnelle pour les différentes températures d'essai, on trouve que l'ordre rotationnel de la bande moléculaire à 4K peut atteindre $J=16$, mais, à 6K et 300K, les valeurs de J observées sont plus petites.

A $T=4,2\text{K}$, pour obtenir une bonne simulation, il faut considérer une température T_r plus élevée que pour la bande singulet (de l'ordre de 700K au lieu de 210K) et, de plus, la branche R est toujours très difficile à simuler (Figure 6-32).

Pour 6K, nous obtenons une température T_r de 135K qui est plus faible que celle déduite de la bande singulet.

Pour 300K, les températures rotationnelles obtenues à l'aide des bandes triplet et singulet sont très proches.

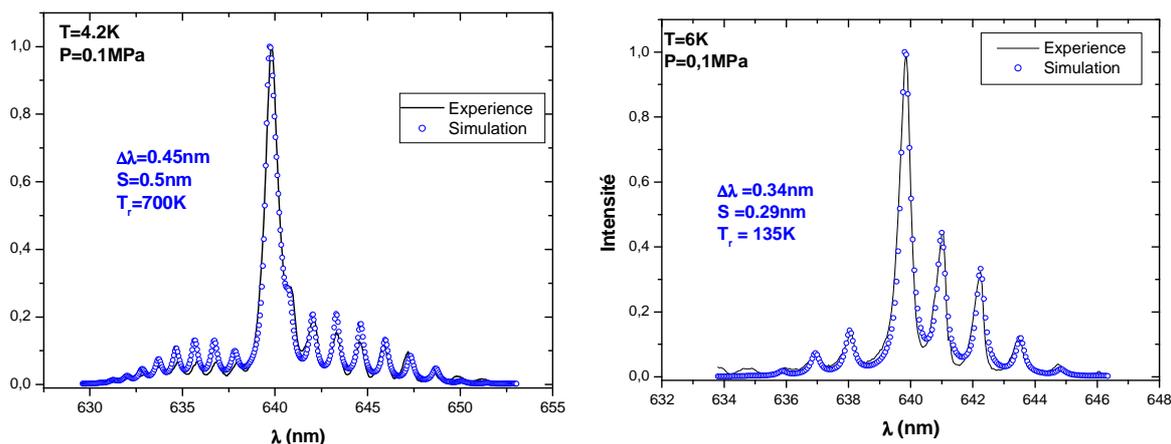


Figure 6-32 Simulation de $\text{He}_2^* d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$ à 639,6nm à $P=0,1\text{MPa}$ et $T=4,2\text{K}$ et 6K.

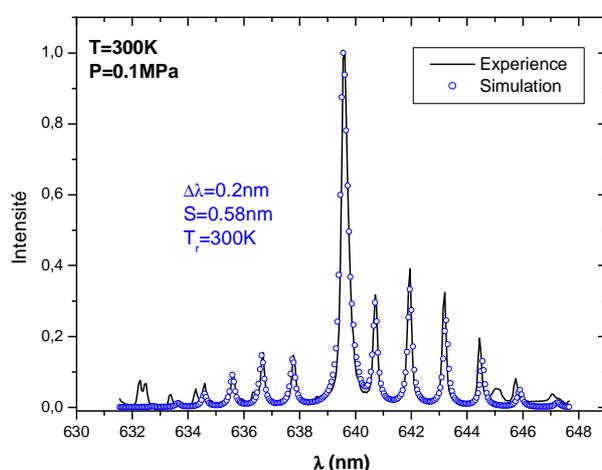


Figure 6-33 Simulation de $\text{He}_2^* d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$ à 639,6nm à $T=300\text{K}$ et $P=0,1\text{MPa}$.

Il semble donc que, dans le cas de l'hélium liquide, la répartition des populations en fonction du niveau rotationnel ne suit pas une distribution de Boltzmann (Figure 6-34). Alors, que dans l'hélium gazeux à 300K, la distribution de Boltzmann est bien vérifiée.

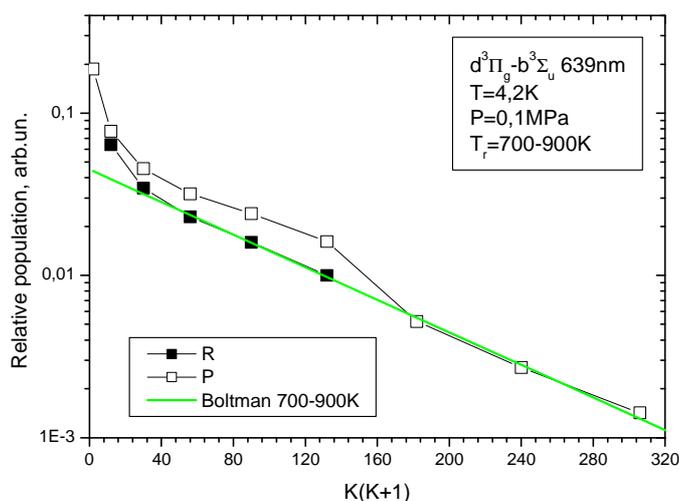


Figure 6-34 Intensité des transitions rotationnelle en fonction du niveau rotationnelle pour $d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$.

Les températures T_r obtenues pour $T=4,2, 6, \text{ et } 300\text{K}$, sont montrées dans le Tableau 6-6. A $T=6$ et 300K , les températures rotationnelles déduites des bandes singulet et triplet sont proches ; mais, à $T=4,2\text{K}$, la différence entre les deux déterminations est grande.

Tableau 6-6 Température rotationnelle T_r simulé dans $P=0,1\text{MPa}$

	$T=4,2\text{K}$	$T=6\text{K}$	$T=300\text{K}$
639,6nm	700K	135K	300K
659,5nm	220K	190K	310K

6.4 Analyse de dynamique de réaction

L'analyse spectroscopique peut fournir, non seulement les paramètres du plasma, tels que la densité et la température des électrons et du plasma, mais aussi des informations sur les réactions dynamiques se produisant dans la zone ionisée. Nous allons présenter l'analyse des transitions atomiques puis moléculaires.

Etats atomiques

A $T=4,2\text{K}$, seul les transitions à 706,5nm ($3s^3S-2p^3P$), 728,1nm ($1s^1S-2p^1P$), 1082,3 ($2p^3P-2s^3S$) et 587nm ($3d^3D-2p^3P$), i.e. avec $n < 3$, sont observées à pression élevée. Ceci peut être la conséquence de la réaction associative d'ionisation (processus Hornbech-Molnar) (Decloche, et al., 1976) qui, dans le cas d'une concentration très élevée d'atomes neutres dans l'état fondamental, s'écrit:



6-8

Ce processus (Equation 6-8) se produit pour des atomes excités de niveau $n > 2$ ce qui expliquerait que dans l'hélium liquide, on n'observe que des raies avec $n < 3$.

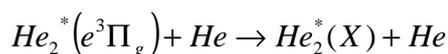
D'autre part, tant que l'énergie des états se trouve au-dessus du seuil d'ionisation de He_2^+ (22,4eV), la population des états triplets peut provenir du processus de recombinaison dissociative où, lorsqu'un électron se recombine avec un ion moléculaire, les spins peuvent se coupler soit en configuration triplet soit en configuration singulet (Equation 6-9).



6-9

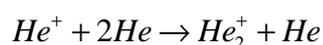
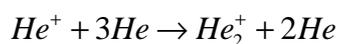
Etats moléculaires

Les transitions $e^3\Pi_g-a^3\Pi_g$ et $e^3\Pi_g-d^3\Sigma_u^+$ sont des chemins de désexcitation. La réaction de collision (relation 6-10) cause la diminution de la population de $e^3\Pi_g$ et donc celle de l'intensité de la transition $e^3\Pi_g-a^3\Pi_g$:


6-10

Où X désigne différents états excités de la molécule. Pour X, les états les plus probables sont $f^3\Sigma_u^+$, $f^3\Pi_u$, et $f^3\Delta_u$, dont les niveaux rotationnels et vibrationnels les plus bas se trouvent, respectivement à 41,6, 246,8 et 698,3 cm^{-1} au-dessus de He_2^* dans l'état $e^3\Pi_g$, $J=1$ et $v=0$. Ces états sont optiquement reliés avec l'état $b^3\Sigma_u^+$ par les transitions autour de 596, 588,5 et 573nm, respectivement. Pour les 3 températures étudiées, nous avons observé les transitions $e^3\Pi_g$ - $a^3\Pi_g$ (464nm), $f^3\Sigma_u^+$ - $b^3\Sigma_u^+$ 596(nm), et $f^3\Delta_u$ - $b^3\Sigma_u^+$ (573nm) et les branches R et P de la transition $f^3\Delta_u$ - $b^3\Sigma_u^+$ (588nm), mais l'émission de la tête de bande à 588,5nm est masquée par la raie atomique très intense se produisant à 587,6nm à 300K. (Figure 5-9 et Figure 5-10).

La source la plus probable des molécules excitées nous semble provenir de la neutralisation des ions He_2^+ . En effet, aucune observation expérimentale ou explication théorique pour la formation de He_2^* par d'autres processus que celui-ci n'a jamais été proposée. L'espèce ionique principale est He_2^+ ; dans le plasma, l'ion He^+ est rapidement converti en ion He_2^+ par les processus :


6-11

6-12

Avec le processus d'association de l'équation 6-8, il est généralement estimé que l'ion He_2^+ est formé dans un état vibrationnel élevé.(Tokaryk, et al., 1993; Decloche, et al., 1976). Toutefois, les spectres de He_2^* , que nous avons observés à température faible, correspondent à des niveaux rotationnels élevés ($N=16$) mais des niveaux vibrationnels bas ($v=0, 1$) (Figure 6-35). L'ion He_2^+ relaxe probablement à son état fondamental de vibration très rapidement en raison de la forte densité des atomes neutres et en conséquence de la capture de l'électron dans un état électronique de Rydberg de très haute excitation suivie par l'autoionisation. Il est par contre très difficile de décrire un mécanisme pour expliquer la formation de He_2^* , He_2^+ dans des états rotationnels élevés.

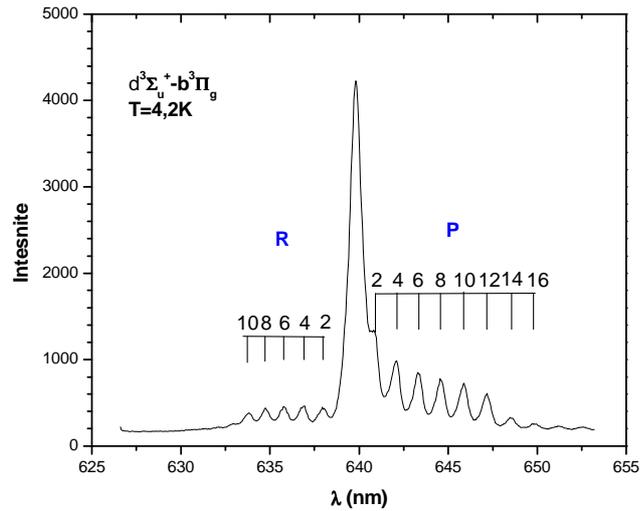


Figure 6-35 Distribution des états rotationnels pour la transition $v=0$ pour 640nm.

A $T=6K$, dans la gamme 780-1000nm, les raies sont très nombreuses. Il est difficile de les identifier toutes. Dans la même fenêtre spectrale, Keto a également observé, dans l'hélium superfluide, des nombreuses raies (Keto, et al., 1974), bien qu'en nombre plus faible. Une comparaison des spectres est montrée dans la Figure 6-36.

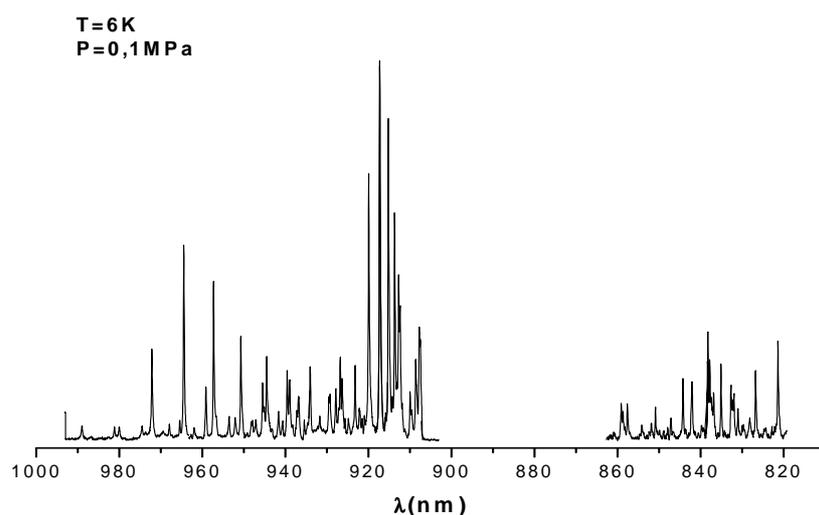
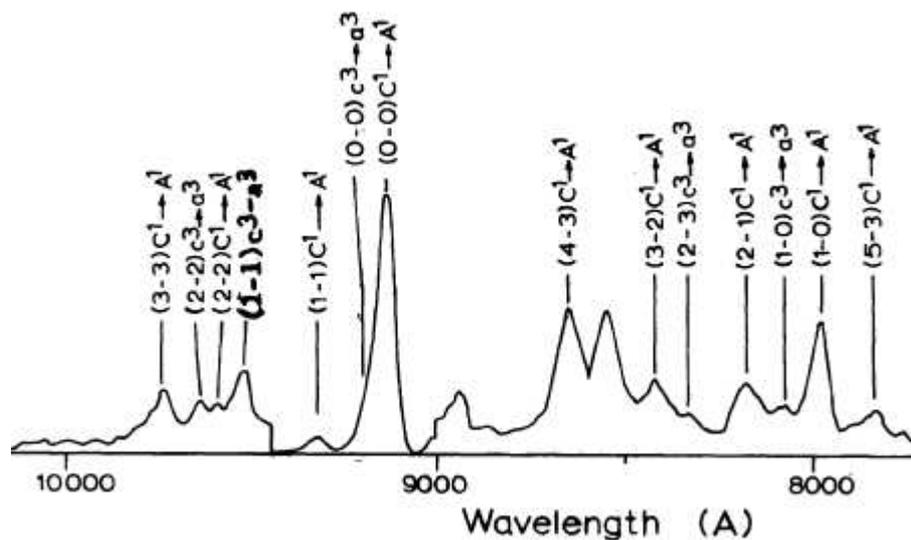


Figure 6-36 Comparaison des spectres dans la gamme 820-1000nm observés par (a) Keto dans l'hélium superfluide, et (b) nos résultats à $T=6\text{K}$.

La Figure 6-37 montre le spectre que nous avons obtenu pour ces bandes moléculaires avec l'indication de leur indice rotationnel. En comparant ce résultat avec celui de Tokaryk (Figure 6-38), nous voyons que la température rotationnelle de cette bande doit être proche de 4,2K.

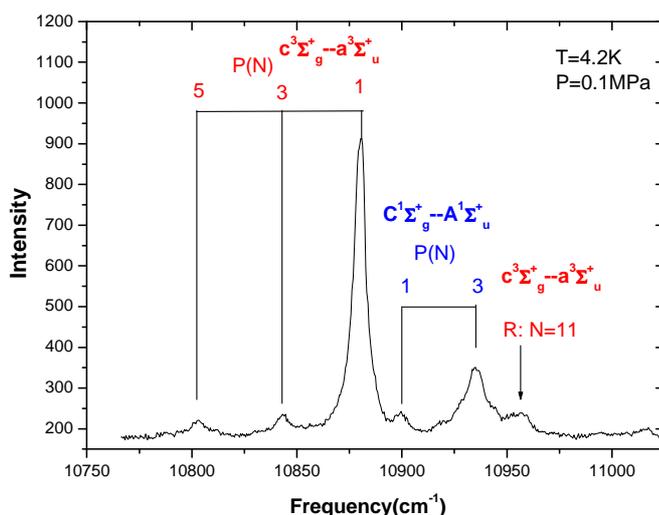


Figure 6-37 La bande moléculaire (0-0) de $c^3\Sigma_g^+ - a^3\Sigma_u^+$ et $C^1\Sigma_g^+ - A^1\Sigma_u^+$ de LHe à $T=4,2K$.

Brook, Hunt et Tokaryk (Tokaryk, et al., 1993; Tokaryk, et al., 1995) ont observé que la distribution de l'état vibration-rotation de $a^3\Sigma_u^+$ est loin de l'équilibre thermique (Figure 6-38).

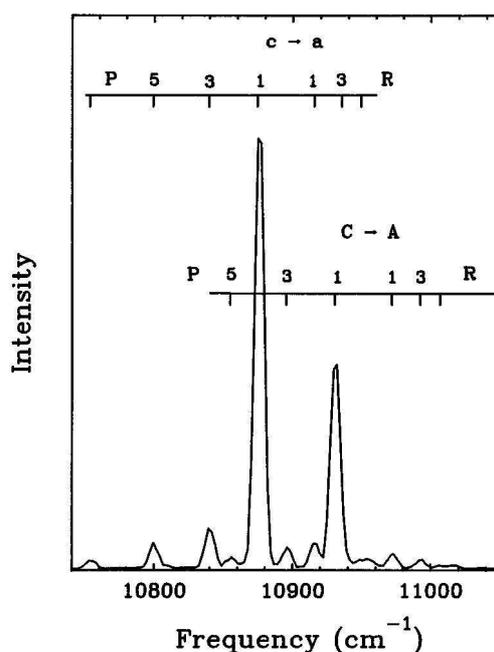


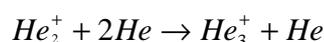
Figure 6-38 Bande moléculaire (0-0) de $c^3\Sigma_g^+ - a^3\Sigma_u^+$ et $C^1\Sigma_g^+ - A^1\Sigma_u^+$ de He₂ gaz à $T=4,2K$ et $P=150$ Torr (Tokaryk, et al., 1995).

Dans les deux cas, la raie P(1) est significativement plus intense que les autres raies rotationnelles. Ces raies intenses ont leur origine au niveau rotationnel $N=0$ de leurs états supérieurs respectifs ; pour He₂ à 4,2K ceci devient le niveau aisément observable si les molécules sont à l'équilibre thermique à cette température. Ainsi, il semble y avoir deux distributions de niveaux rotationnels différents pour les populations des états $C^1\Sigma_g^+$ et $c^3\Sigma_g^+$ ($v=0$) ; un pour $N=0$ et l'autre pour des valeurs plus élevées de N .

Ils ont ainsi montré qu'il existe 3 différents types de répartition rotation-vibration des niveaux:

- Un, avec l'équilibre thermique où $v=0$, et $N=1$;
- Un autre avec des molécules excitées rotationnellement avec $v=0$, et $9 \leq N \leq 21$;
- Et, enfin, un dernier avec des molécules excitées vibrationnellement où $10 \leq v \leq 12$ et $N=1$.

En étudiant l'évolution temporelle de ces répartitions, ils ont suggéré que les molécules excitées rotationnellement proviennent de la neutralisation des ions He_3^+ . La preuve de l'existence des ions He_3^+ à basse température a été donnée par Patterson. Il a été proposé que la réaction conduisant à la formation des ions He_3^+ est la suivante :



6-13

La formation de He_3^+ est plus rapide que celle de He_2^+ (réactions 6-11 et 6-12). L'étude de Gerber (Gerber, et al., 1971) a ainsi montré que He_3^+ est l'ion dominant à 76K. Nous pouvons utiliser ce mécanisme pour expliquer les spectres moléculaires observés.

6.5 Conclusion

L'émission dans la gamme 200-1100nm due aux transitions entre des états électroniquement excités présente des caractéristiques spécifiques dans l'hélium liquide. Elles ne sont pas observées dans d'autres gaz rares liquéfiés comme l'argon. Généralement, en milieu dense, les processus non-radiatifs dominent les phénomènes de relaxation d'énergie et seule la luminescence correspondant au niveau d'énergie le plus bas est observée (Schwentner, 1985).

Le déplacement vers le bleu des raies atomiques ne peut pas être expliqué par les effets classiques : effets de résonance, Stark, et van der Waals ou Lennard-Jones. En effet, l'approche par potentiel répulsif est seulement adaptée pour $T=6\text{K}$ ou 300K (fluide supercritique), mais pour le liquide à $4,2\text{K}$, l'approximation d'impact n'est plus valide. Le modèle pseudo-bulle d'états excités peut qualitativement expliquer le déplacement vers le bleu, mais quantitativement, la différence reste importante.

En analysant l'élargissement de la raie à 728nm , par l'effet de résonance, nous avons déterminé la densité N_p et la température T_p du plasma mais qui reste une estimation très rudimentaire puisqu'on n'a pas pu ajouter la contribution non résonante. La valeur de T_p est différente de la température rotationnelle T_r des états moléculaires de He_2^* . De plus, les états moléculaires singulet et triplet conduisent à des valeurs très différentes de T_r . Ce résultat est la conséquence d'une distribution de la population sur les niveaux rotationnels qui ne suit pas une distribution de Boltzmann.

La raison du comportement particulier dans l'hélium liquide est certainement due à la formation d'une zone d'ionisation avec une température T_p plus élevée que 4,2K et une densité plus faible que la densité du liquide mais assez dense pour que les états excités soient stabilisés dans des pseudo- bulles.

A $T=6K$ et 300K nous avons obtenu un bon accord entre les températures rotationnelles T_r (états singulet et triplet) et la température T_p déduite de l'élargissement de la raie à 706nm.

Nous avons résumé pour $P=0,1MPa$, dans le Tableau 6-7, les valeurs de T_p et N_p que nous avons obtenues à partir de l'analyse de différentes raies d'émission ainsi que les valeurs de T_r déduites des bandes moléculaires.

Tableau 6-7 N_p , T_p et T_r déduites des différentes raies et bandes par différents modèles, $P=0,1MPa$.

Raies atomiques (nm)		N_p (10^{20} cm^{-3})			T_p (K)		
		300K	6K	4K	300K	6K	4K
706	C ₁₂	0,28	0,8		277	90	
	Leo	0,37			213		
728(K=0,96) (Effet résonant)		0,37	1,0	2,4		78,9	20-100
667,8(K=0,96) (Effet résonant)		0,31	1,15			75,1	
728 (Résonant+non résonant)		0,25	0,73		353	118	
667,8 (Résonant+non résonant)		0,43	0,95		167	90,6	
Bandes moléculaires (nm)					T_r (K)		
659					310	190	220
639					300	135	700

Conclusions et perspectives

Conclusions

Ce travail nous a permis de mettre en évidence l'influence de la température et de la pression sur les phénomènes de génération et de transport des charges dans l'hélium liquide et l'hélium supercritique.

Les caractéristiques électriques. Les variations courant moyen-tension ont été mesurées en fonction de la température, de la pression et, de la polarité de la pointe en vue de déterminer la nature des porteurs de charge créés dans la région de champ intense près de la pointe dans l'hélium liquide et supercritique.

Les phénomènes se produisant dans la zone de création des charges ont été déduits de l'analyse des champs seuils d'apparition et d'extinction du courant et des caractéristiques courant-temps. Le champ seuil d'apparition a été étudié expérimentalement et comparé avec le champ de claquage. Les caractéristiques courant-temps montrent que, dans un certain domaine de tension, le courant est de type impulsionnel et que chaque impulsion est corrélée à la formation d'une bulle de vapeur transitoire.

La mobilité des porteurs de charges, déduite des caractéristiques courant moyen-tension est en accord avec celle mesurée par la méthode directe (mesure du temps de transit des charges entre deux électrodes planes et parallèles), dans un grand domaine de densité du fluide et pour tous les types de porteurs de charge (ions positifs et électrons).

La spectroscopie d'émission. Une partie importante de la thèse a été consacrée à l'étude qualitative et quantitative des spectres moléculaires et atomiques émis par le plasma produit par décharge couronne dans l'hélium dense et liquide en fonction de la température et de la pression. Le but de cette étude est d'obtenir des renseignements complémentaires sur les mécanismes mis en jeu dans une décharge couronne en milieu très dense.

Les spectres d'émission à 4,2K, 6K et 300K ont été observés. Pour ces 3 températures, on remarque que, non seulement les formes, mais aussi le nombre de raies ou de bandes observées sont différents. En utilisant les raies atomiques à 4,2K, nous avons essayé d'évaluer la densité du plasma dans la zone de décharge à partir de l'élargissement de la raie de l'hélium à 728nm (élargie par l'effet résonant). Ce travail a soulevé un certain nombre d'interrogations. En particulier, le déplacement vers le bleu des raies produites par notre décharge couronne à 4.2K est très proche du déplacement des raies observées dans l'hélium superfluide, ce qui est très étonnant puisque dans le cas des expériences sur l'hélium super fluide, les atomes excités sont piégés dans des bulles de rayon 10 à 8 Å ce qui semblait très improbable dans notre cas. Pour l'instant, notre interprétation, qui reste très qualitative, est la formation d'une zone d'ionisation avec une température T_p plus élevée que 4,2K et une densité plus faible que la densité du liquide mais assez dense pour que les états excités soient aussi stabilisés dans des

pseudo- bulles. Rappelons que les bulles électroniques existent aussi dans l'hélium gazeux à 20K pour une densité de $5 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$.

De plus, les formules semi-classiques très simples et très utiles qui déterminent la densité du plasma par l'élargissement des raies dans la plupart des cas (décharge couronne dans l'Argon liquide, streamers dans l'azote liquide) s'avèrent décevantes dans le cas de l'hélium ; de nos résultats spectroscopiques, il est évident que les potentiels *ab initio* deviennent nécessaires ainsi qu'un traitement quantique correct de la collision pour analyser le profil des raies.

De même, nous avons obtenu les températures rotationnelles T_r de l'état $d^3\Sigma_u^+ - b^3\Pi_g$ (639nm) et $D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$ (659nm) en fonction de la température d'essai. La température ainsi obtenue est comparable à celle déduite de l'analyse de l'élargissement des raies de résonance. Mais la différence des populations des branches rotationnelles P et R produites par la décharge couronne à 4,2K reste à expliquer.

Perspectives

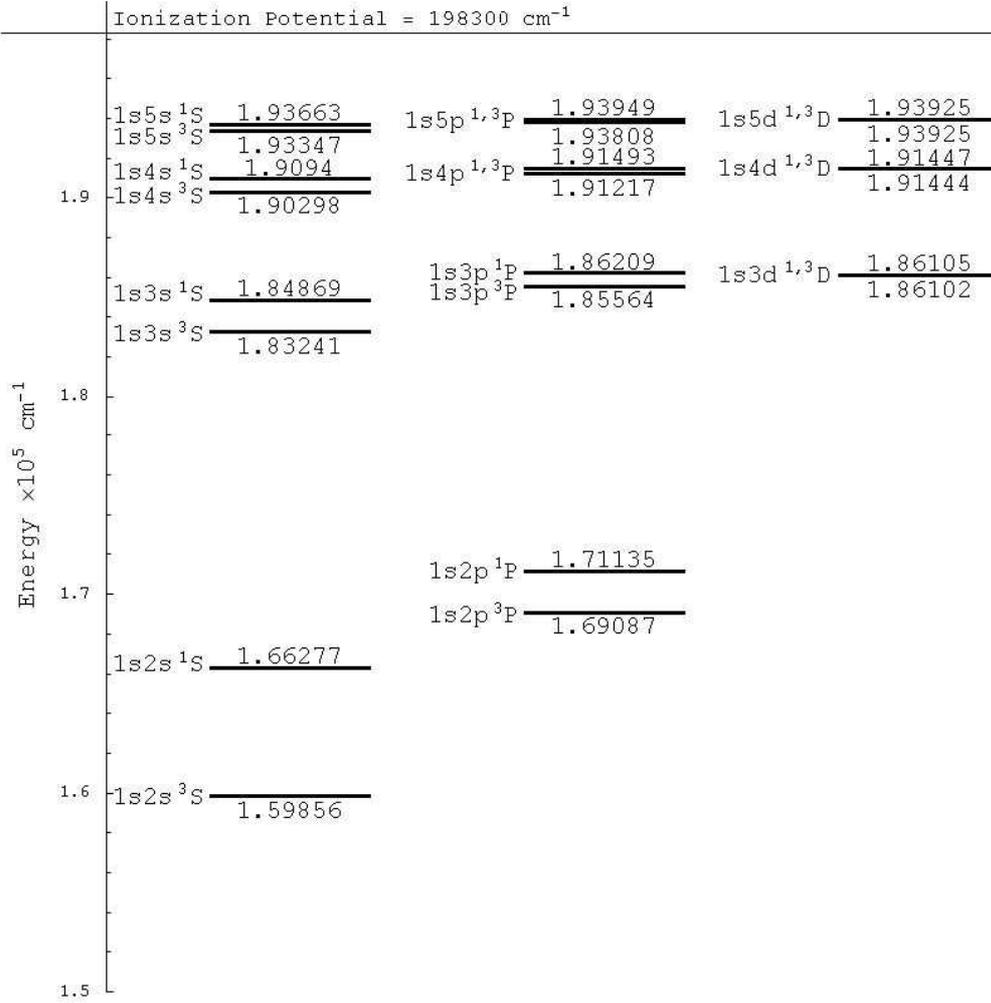
Le travail exposé dans ce manuscrit devrait être poursuivi pour répondre à un certain nombre d'interrogations soulevées par nos résultats. En particulier, l'étude du déplacement des raies et de la répartition des populations entre les branches rotationnelles reste à faire. La nouvelle distribution de la population devrait être étudiée à 4,2K. Le spectre observé à 6K au voisinage de 900nm devrait être identifié.

Expérimentalement, une modification du cryostat est envisagée en 2008 en vue de poursuivre l'étude précédente dans l'hélium superfluide.

De nouvelles expériences par diffusion de lumière (strioscopie, interférométrie) pour déterminer l'état du liquide (bulle de vapeur transitoire, cavité permanente, etc.) près de la pointe devraient être entreprises prochainement.

Annexes

Annexe 2 Diagramme d'énergie de l'hélium



<i>nm</i>	<i>A_{ul}(s⁻¹)</i>	<i>E_i(eV)</i>	<i>J''</i>	<i>E_u(eV)</i>	<i>J'</i>	<i>Supérieur</i>	<i>Inférieur</i>
388,8605	9,56E+06	19,820963	1	23,008673	0	3p 3P	2s 3S
388,8646	9,40E+06	19,820963	1	23,008639	1	3p 3P	2s 3S
388,8649	9,36E+06	19,820963	1	23,008637	2	3p 3P	2s 3S
447,1469	7,05E+05	20,965513	2	23,737707	1	4d 3D	2p 3P
447,1473	6,25E+06	20,965513	2	23,737704	2	4d 3D	2p 3P
447,1473	2,51E+07	20,965513	2	23,737704	3	4d 3D	2p 3P
447,1485	1,04E+07	20,965523	1	23,737707	1	4d 3D	2p 3P
447,1488	1,89E+07	20,965523	1	23,737704	2	4d 3D	2p 3P
447,1682	1,41E+07	20,965645	0	23,737707	1	4d 3D	2p 3P
471,3139	5,85E+06	20,965513	2	23,595562	1	3s 3S	2p 3P
471,3156	3,53E+06	20,965523	1	23,595562	1	3s 3S	2p 3P
471,3376	1,19E+06	20,965645	0	23,595562	1	3s 3S	2p 3P
492,1931	2,02E+07	21,219467	1	23,737949	2	4d 1D	2p 1P
501,5678	1,34E+07	20,617179	0	23,088589	1	3p 1P	2s 1S
504,7738	6,54E+06	21,219467	1	23,675181	0	4s 1S	2p 1P
587,5599	1,99E+06	20,965513	2	23,075225	1	3d 3D	2p 3P
587,5614	1,76E+07	20,965513	2	23,07522	2	3d 3D	2p 3P
587,5615	7,07E+07	20,965513	2	23,075219	3	3d 3D	2p 3P
587,5625	2,94E+07	20,965523	1	23,075225	1	3d 3D	2p 3P
587,564	5,32E+07	20,965523	1	23,07522	2	3d 3D	2p 3P
587,5966	3,96E+07	20,965645	0	23,075225	1	3d 3D	2p 3P
667,8154	6,38E+07	21,219467	1	23,075644	2	3d 1D	2p 1P
706,2281	4,89E+04	22,720011	1	24,475229	1	11p 3P	3s 3S
706,5176	1,54E+07	20,965513	2	22,720011	1	3s 3S	2p 3P
706,5214	9,24E+06	20,965523	1	22,720011	1	3s 3S	2p 3P
706,5707	3,08E+06	20,965645	0	22,720011	1	3s 3S	2p 3P
728,1349	1,81E+07	21,219467	1	22,921877	0	3s 1S	2p 1P
1082,9088	1,02E+07	19,820963	1	20,965645	0	2p3P	2s3S
1082,0247	1,02E+07	19,820963	1	20,965523	1	2p3P	2s3S
1083,0336	1,02E+07	19,820963	1	20,965513	2	2p3P	2s3S

<http://www.pmp.uni-hannover.de/cgi-bin/ssi/test/kurucz/sekur.html>

Annexe 3 Bibliographie sur hélium liquide

Auteurs	Domaine étudié	Méthodes d'excitation	Phase
(Surko, et al., 1968)		Source radiative	Superfluide
(Fischboch, et al., 1969)		Source radiative	Superfluide
(Dennis, et al., 1969)	600-1100nm	Faisceau d'électrons (160keV)	Superfluide
(Surko, et al., 1970)	UV	Faisceau d'électrons	Superfluide
(Hill, et al., 1971)	1083nm $a^3\Sigma_u^+ - c^3\Sigma_g^+$ $b^3\Sigma_u^+ - c^3\Sigma_g^+$	Faisceau d'électrons (160keV)	Superfluide
(Keto, et al., 1974)	600-1100nm	Faisceau d'électrons	Superfluide
(Soley, et al., 1974)	706nm, 912nm, 917nm, 659nm, 639nm, 1083nm...	faisceau d'électron	Liquide
(Tokaryk, et al., 1995)	750nm-1000nm	Faisceau de Proton	Gaz à 4,2K
(Qin, et al., 1997)	visible	Décharge pulsé	4,2K
(Benderskii, et al., 1999)		Laser femtoseconde	Superfluide
(Parshin, et al., 2000)	1083nm ($a^3\Sigma_u^+ - c^3\Sigma_g^+$)	Emission de champ	Liquide
(Trottier, et al., 2000)	400-1600nm	Faisceau de proton	Liquide
(Haefen, et al., 2002)	659nm et 667nm	Rayonnement synchrotron	Clusters
(Haefen, et al., 2005)	VIS/IR	Rayonnement synchrotron	Clusters

Annex 4 Nomenclature

Une molécule diatomique possède plusieurs états électroniques d'où une classification semblable à celle utilisée pour les atomes. Les différents moments angulaires intervenant dans la molécule diatomique sont :

\vec{L} : moment cinétique angulaire des électrons ;

\vec{S} : moment angulaire de spin électronique, le moment quantique S est entier ou demi-entier suivant le nombre d'électron (paire ou impair) ;

\vec{N} : moment de rotation des noyaux qui est toujours perpendiculaire à l'axe passant par les deux noyaux ;

$\bar{\Lambda}$: projection du moment angulaire orbital \vec{L} sur l'axe internucléaire. Le nombre quantique Λ peut être prendre les valeurs 0, 1, 2,L. on nomme les états correspondants aux valeurs de Λ par des lettres grecques majuscules ;

\pm exposant est utilisé pour spécifier la parité des états $\Sigma(\Lambda=0)$;

g/u représente la symétrie électronique ;

+/- suivant la permutation des noyaux dans le cas de molécule mononucléaire.

L'état le plus général s'écrira :

$$\text{Lettre}^{2S+1} \Lambda_{(g,u)\Omega}^{\pm}$$

La « lettre » symbolise un état électronique d'énergie T_e . On utilise une lettre latine pour moment angulaire total dans la configuration.

Λ	0	1	2	3
états	Σ	Π	Δ	Φ

Le moment angulaire total le long de l'axe internucléaire note est appelé : $\Omega=\Lambda+\Sigma$, il désigne les composantes de spin-orbite du multiplet en valeur algébrique pour $\Lambda \neq 0$.

Les différents moments angulaires-spin d'électron, moment angulaire d'orbitale électronique, moment angulaire de rotation nucléaire - forment une résultante qui est toujours noté \vec{J}

$$\vec{J} = \vec{L} + \vec{S} + \vec{N}$$

Quand nous analysons des bandes moléculaires, la molécule n'est pas statique, elle présente toujours un mouvement de vibration et de rotation. Les deux mouvements doivent

être couplés au mouvement des atomes dans la direction de l'axe inter-atomique. De même, nous devons considérer l'influence mutuelle des mouvements de rotation et vibration sur l'un l'autre.

Annex 5 Règles de sélection

Les règles de transition entre deux états électroniques sont très complexes puisqu'elles dépendent du cas de couplage auquel appartient chacun des deux états électroniques, et que souvent le type de couplage dépend de la valeur de J . néanmoins et quels que soient les cas de couplage des deux états, la règle :

$$\Delta J=0, \text{ avec } J'=0 \leftarrow/\rightarrow J''=0 \text{ est impérative.}$$

En outre, les règles de transition concernant les propriétés de symétrie sont généralement respectées :

$$+ \leftarrow/\rightarrow +, -\leftarrow/\rightarrow -, + \leftrightarrow -$$

Et, lorsque la molécule est homonucléaire :

$$s \leftrightarrow s, a \leftrightarrow a, s \leftarrow/\rightarrow a$$

et enfin lorsque les deux noyaux portent la même charge :

$$g \leftrightarrow u, g \leftarrow/\rightarrow g, \text{ et } u \leftarrow/\rightarrow u$$

Lorsque les deux états électroniques appartiennent au cas a ou au cas b, il faut ajouter les règles :

$$\Delta \Lambda = 0, \pm 1$$

$$\Delta S = 0$$

Les règles de transition qui ne sont respectées que lorsque les états électroniques appartiennent tout les deux au cas a. alors $\bar{\Sigma}$ est défini pour l'un et l'autre des états électroniques et les deux règles $\Delta \Lambda = 0, \pm 1$ et $\bar{\Sigma} = 0$ sont équivalents à la seule règle :

$$\Delta \Omega = 0, \pm 1$$

Si les deux états électronique sont tel que $\Omega=0$, la règle $\Delta J=0, \pm 1$ se réduit à:

$$\Delta J = \pm 1 \text{ pour } \Omega=0 \rightarrow \Omega=0$$

Les règles de transition qui ne sont respectées que lorsque les états électroniques appartiennent tout les deux au cas b. alors \bar{K} est défini pour l'un et l'autre des états électroniques et les transitions obéissent à la règle :

$$\Delta K = 0, \pm 1 \text{ avec la restriction } \Delta K = \pm 1 \text{ pour les transitions } \Sigma \rightarrow \Sigma.$$

Annex 6 Les différents couplages énoncés par Hund

Dans la molécule, il existe plusieurs moments angulaires. Suivant le mode de leur association, on peut distinguer plusieurs cas de couplage, mais aussi plusieurs cas de découplage suivant la valeur du nombre quantique de rotation J . De plus toutes ces interactions entre les différents moments angulaires de la molécule jouent un rôle important dans les expressions des énergies de rotations $F_v(J)$.

Dans la molécule diatomique, les différents moments angulaires tels que le spin électroniques S , le moment orbital électronique L , et le moment de rotation pure de la molécule N , forme une résultante que l'on note J . Le cas le plus simple, qui ne demande pas de traitement particulier, est l'état électronique $^1\Sigma$ puisque dans ce cas, $L=0$ et $S=0$ d'où comme $J=N$, on a affaire à un rotateur simple. Pour les autres états, il faut distinguer les différents modes de couplages qui ont été étudiés par Hund.

Suivant le couplage les nombre quantique qui décrivent le système sont différents telles que :

- ④ Les interactions spin-orbite : interaction entre le moment magnétique associé au moment angulaire orbital électronique et moment magnétique associé au spin ;
- ④ Les interactions spin – spin : interaction entre les moments magnétiques dipolaires de spin électroniques ;
- ④ Les interactions spin – rotation : interaction entre le spin des électrons et le champ magnétique créé par la rotation des noyaux ;
- ④ Le passage d'un mode de couplage à un autre est fonction de la vitesse de rotation de la molécule (le cas intermédiaire)

Dans le tableau sont illustrés les différents cas de Hund avec les nombres quantiques associés.

Tableau 0-1 Cas de Hund et nombre quantiques

<i>Couplage</i>	<i>Nombres quantiques</i>
Cas a	n, J, Λ, Σ, S
Cas b	n, J, N, Λ, S
Cas c	n, J, Ω
Cas d	n, J, N, S, ℓ

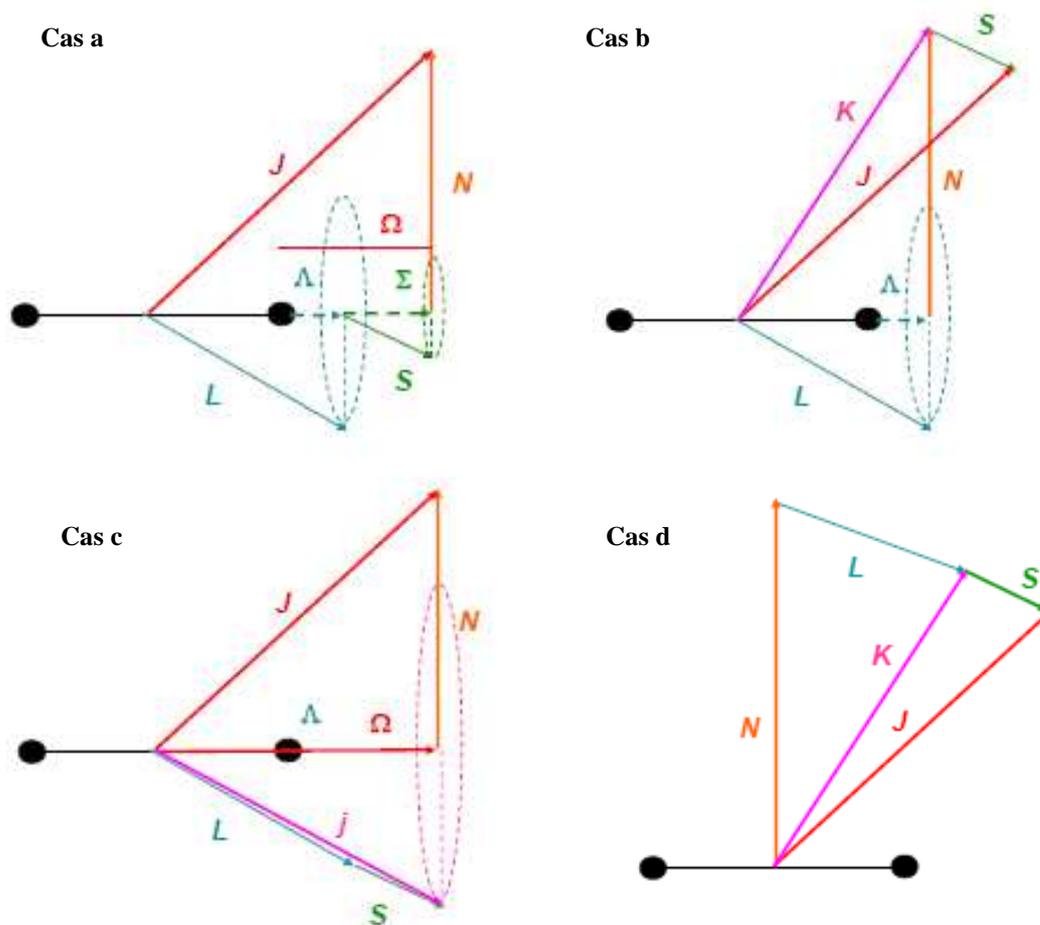


Figure 0-1 Représentation vectorielle du couplage de type (a), (b), (c) et (d).

Les cas de couplage a et b sont les plus communément rencontrés et nous allons les décrire par la suite, les autres cas c et d sont plus rares et ne seront pas présentés.

- **Cas a.** Il correspond aux molécules ayant une faible vitesse de rotation d'où un mouvement de rotation du noyau peu lié au mouvement des électrons autour du noyau. Les vecteurs L et S sont ainsi fortement couplés au champ électrostatique créé par le noyau le long de son axe internucléaire : le moment angulaire électronique est fortement couplé avec l'axe internucléaire Figure 0-1(a) :

$$\begin{aligned}\Omega &= \Lambda - S, \dots, \Lambda + S \\ J &= \Omega, \Omega + 1, \Omega + 2, \dots\end{aligned}$$

0-1

- **Cas b.** Il s'applique aux états Σ et aux molécules légères ayant une grande vitesse de rotation. Dans ce cas, l'effet de rotation de la molécule devient important, et le vecteur de spin n'est plus couplé à l'axe internucléaire. Λ et N forment alors un vecteur K qui représente le moment angulaire total par conséquent, Σ n'existe pas et Ω n'est pas défini Figure 0-1(b):

$$\vec{K} = \vec{\Lambda} + \vec{N}$$

$$K = \Lambda, \Lambda + 1, \Lambda + 2 \dots$$

$$J = K + S, K + S - 1, \dots, |K - S|$$

0-2

Par conséquence, chaque niveau K est composé de 2S+1 sous niveaux.

- Cas intermédiaire **a-b**. En fait, les cas a et b correspondent aux cas limites. Les premiers niveaux rotationnels des états électroniques Π , Δ ...appartiennent au cas a alors que les états rotationnels élevés correspondent au cas b. On parle ainsi d'une transition de a vers b. Mais dans le cas de la molécule He₂, l'influence de la rotation prédomine et nous serons toujours dans le cas b pour l'état Π de He₂ (p 231 (Herzberg, 1950)).

Certains auteurs (**Kovacs et Budo**) ont défini des critères pour différencier les cas(a) et (b) .Soit Y la constante de couplage définie telle que $Y=A/B_v$ où A est la constante de couplage qui mesure la force de couplage entre S et Λ . Suivant la valeur absolue de Y, deux critères ont été établis :

Si $|Y|$ est égale à zero ou très faible alors le couplage est de type b (le cas de He₂)

Si $|Y|$ est grande alors le couplage est de type a

Annex 7 Longueur d'onde (Ginter, 1965) $e^3 \Pi_g - a^3 \Sigma_u^+$

$v'-v''(0-0)$			
K	R	Q	P
1	464,36746	464,977218	
3	463,862771	465,06696	466,00798
5	463,447437	465,229016	466,81309
7	463,121625	465,461153	467,697534
9	462,883244	465,764016	468,66132
11	462,73331	466,136142	469,700115
13	462,674648	466,575249	470,811566
15			471,991995
17			473,237026
19			474,541332
21			475,900857
23			477,310565

$d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$

$V^1-V''(0-0)$				
K	R	Q	P	
1		640,046288		
2	638,291625		641,246378	
3		640,092173		
4	637,1736		642,483585	
5		640,172078		
6	63,8076989		643,743394	
7		640,288898		
8	635,05813		645,022714	
9		640,440623		
10	634,07882		646,319244	
11		640,628533		
12	633,150226		647,629804	
13		640,853514		
14	632,276715		648,952429	

 $D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$

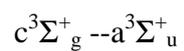
$V^1-V''(0-0)$				
K	R	Q	P	
1	657,67061	659,555776		
2			660,820607	
3	656,443651	659,571872		
4			662,099943	
5	655,235	659,604501		
6			663,382921	
7	654,058597	659,651493		
8			664,667347	
9	652,916677	659,715465		
10			665,951435	
11	651,819522	659,799474		
12			667,230254	
13	650,772206	659,902229		
14				
15	649,789468	660,033767		
16			669,782495	

$f^3D_u - b^3\Pi_g$

$v^I-v^{II}(0-0)$				$v^I-v^{II}(1-1)$				$v^I-v^{II}(2-2)$			
K	R	Q	P	K	R	Q	P	K	R	Q	P
1	572,499636			1	574,591121			1	576,688631		
2	571,973417	573,458944		2	574,094667	575,328306		2	576,23337	577,600647	
3	571,450776	573,418169	574,913533	3	573,604006	575,507108	576,947486	3	575,768219	577,610322	578,98482
4	570,878245	573,353729	575,335924	4	573,084951	575,463379	577,38154	4	575,288924	577,58063	579,42396
5	570,371917			5	572,608472	575,432265	577,835613	5	574,855366	577,593975	579,893694
6	569,724931			6	572,038855	575,374986	578,224527	6	574,358786	577,55361	580,307946
7	569,283511			7	571,618022	575,32467	578,698345	7	573,971758		580,796318
8	568,5197			8		575,270722	579,024379	8	573,426718		581,17099
9	568,20926			9			579,543505	9	573,124365		
10	567,27611										
11	567,167362										
12	566,008474										
13	566,174472										

$C^1\Sigma^+ - A^1\Sigma^+ u$

$v^1-v''(0-0)$			$v^1-v''(1-1)$			$v^1-v''(2-2)$		
K	R	P	K	R	P	K	R	P
1	911,425816	914,898853	1	930,072499	933,532487	1	950,538718	
3	909,731857	917,835377	3	928,413731	936,550572	3	948,925958	953,443361
5	908,537527	921,260764	5	927,288525	940,075808	5	947,89605	960,738462
7	907,844686	925,199473	7	926,705045	944,134611	7	947,452395	964,95291
9	907,655164	929,627219	9	926,664684	948,729698	9	947,601431	969,757153
11	907,976574	934,554984	11	927,173317	953,868078	11	948,359906	975,162608
13	908,811656	939,989209	13	928,240511	959,551084	13	949,728045	
15	910,165732	945,93508	15	929,875313	965,786996	15	951,73015	
17	912,050929	952,391837	17	932,088064	972,596131			
19	914,466308							
21	917,452235							



v'-v''(0-0)		
K	R	P
1	916,134316	919,598577
3	914,466308	922,542416
5	913,310403	925,997091
7	912,671902	929,960923
9	912,56113	934,438837
11	912,981038	939,439943
13	913,944787	944,965225
15	915,465881	951,029585
17	917,559988	957,645265
19	920,245963	964,828154
21	923,552908	972,596131
23	927,507842	980,979783
25	932,148883	990,014712
27	937,526075	
29	943,706047	
31	950,763749	

Bibliographie

- Aitken, J. F., et Denat, A. (2002). Investigation of behavior of microscopic bubble in insulation liquids: transition from the inertial regime to the viscous one. *Proc. IEEE International conference on dielectric liquid* , pp. 194-198.
- Allard, N., et Kielkopf, J. (1982). The effect of neutral non resonant collisions on atomic spectral lines. *Rev. Mod. Phys.* , 54, p. 1103.
- Anderson, P. W. (1952). A method of synthesis of the statistical and impact theories of pressure broadening. *Phys. Rev.* , 86, p. 809.
- Atiola, A., Gibson-Wilde, B. C., Lindsay, A. C., Nicol, J. L., et Whittingham, I. B. (1988). Temperature dependence of self-broadening at low densities in singlet spectral lines of helium. *J. Phys.B: At. Mol. Opt. Phys.* , 21, pp. 249-257.
- Atkins, K. R. (1959). Ions in liquid helium. *Phys. Rev.* , 116, p. 1339.
- Behmenburg, W., (1964). Pressure broadening and shift of argon emission lines. *J. Quant. spectrosc. radiat. transfer* , 4, p. 177.
- Benderskii, A. V., Zadoyan, R., et Apakari V., V. A. (1999). Photodynamics in superfluid helium: femtosecond laser-induced ionization, charge recombination, and preparation of molecular Rydberg states. *J. Chem. Phys.* , 110, p. 1542.
- Blaisse, B. S., et Goldschvartz, J. M. (1966). A method of measuring ionic mobility in high field in isolating liquids. *Cryogenic* , 10, p. 163.
- Blank, C., et Edwards, M. H. (1960). Dielectric breakdown of liquid helium. *Phys. Rev.* , 119, p. 50.
- Bonifaci, N. (1992). *Analyse spectrale de la lumière émise dans les diélectriques liquides sous champ électrique intense*. Grenoble: Institut national polytechnique de Grenoble.
- Bonifaci, N., Denat, A., Li, Z., Atrazhev, V., et Shakhmatov, V. (2006). Spectroscopic study of negative corona discharge in liquid helium. *18th Europhys. Conf. on the atomic and Molec. Phys. of Ionized Gases* , pp. 343-345.
- Borghesani, A. F., et Santini, M. (2002). High-electron localization in dense He gas. *Phys. Rev. E* , 65, p. 056403.
- Budo, A. (1935). *Z. Physik* , 96, p. 219.
- Clark, R. C. (1965). Self-trapped electrons in liquid helium II. *Phys. Lett.* , 16, p. 42.
- Coelho, R., et Debeau, J. (1971). Properties of the tip-plane configuration. *J. Phys. D: Appl. Phys.* , 4, p. 1266.
- Damelincourt, J. J., Aubes, M., Fragnac, P., et Karabouriniotis, D. (1983). Effect of modulated high-pressure mercury discharges on the shape of self-reversed lines. *J. Appl. Phys.* , 54, p. 3084.
- Davis, H. T., Stuart, A. R., et Meyer, L. (1962). Theory of electron and ionic mobility in liquid He4 and liquid He3. *Phys. Rev. Lett.* , 9, p. 81.
- Decloche, R., Monchicourt, P., Cheret, M., et Lambert, F. (1976). High-pressure He afterglow at room temperature. *Phys. Rev. A* , 13, p. 1140.
- Denat, A., Gosse, J. P., et Gosse, B. (1988). Electrical conduction of purified cyclohexane in a divergent electric field. *I.E.E.E. Trans. Elect. Insul.* , EI-23, pp. 545-554.
- Dennis, W. S., Durbin, E. J., Fitzsimmons, W. A., Heybey, O., et Walters, G. K. (1969). Spectroscopic identification of excited atomic and molecular states in electron-bombarded liquid helium. *Phys. Rev. Lett.* , 23, p. 1083.
- Dexter, D. L., et Beall Fowler, W. (1969). Instability of two electron bubbles and bubble formation in liquid helium. *Phys. Rev.* , 183, p. 307.

- Doake, C. M., et Gribbon, P. F. (1969). Fast ions in liquid helium. *Phys. Lett. A* , 30, p. 251.
- Fischboch, M. R., Roberts, H. A., et Hereford, F. L. (1969). Persistent metastable states and the inhibited scintillation of He II. *Phys. Rev. Lett.* , 23, p. 462.
- Folwer, R. H., et Nordheim, L. (1928). Electron emission in intense electric field. *Proc. R. Soc. London A* , 119, p. 173.
- Fujii, H., Kaizaki, I., Yoshini, K., et Inuishi, Y. (1979). Anomalous polarity effect of dielectric breakdown voltages. *J. Phys. D. Appl. Phys.* , 12, p. 1555.
- Gavin, P. J., et McClintock, P. E. (1973). Field emission and field ionization in liquid helium under pressure. *Phys. Lett. A* , 43.
- Gerber, R. A., et Gusinow, M. A. (1971). Helium ions at 76K: their transport and formation properties. *Phys. Rev. A* , 4, p. 2027.
- Gerhold, J. (1989). Breakdown phenomena in liquid helium. *IEEE Transaction on Electrical Insulation* , 24, p. 155.
- Gerhold, J. (1972). Dielectric breakdown of helium at low temperature. *Cryogenics* , 12, p. 370.
- Gerhold, J. (1994). Liquid helium breakdowns as function of temperature and electrode roughness. *IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical insulation* , 1, pp. 432-439.
- Gerhold, J. (1998). Properties of cryogenic insulants. *Cryogenics* , 38, pp. 1063-1081.
- Ginter, M. L. (1965). Spectrum and structure of He₂ molecule I: Characterization of states associated with united atomic orbitals 3ps and 2ss. *J. Chem. Phys.* , 42, p. 561.
- Ginter, M. L. (1965). The spectrum and structure of the He₂ molecule Part III Characterization of the triplet states associated with the UAO 1s3S and 2pP. *J. Mol. Spectros.* , 18, pp. 321-43.
- Ginter, M. L., et Battino, R. (1970). Potential energy curve of the He₂ molecule. *J. Chem. Phys.* , 52, p. 4469.
- Goldman, M., et Sigmond, R. S. (1982). Corona insulation. *IEEE Trans. Elec. Ins.* , 12/2, pp. 90-105.
- Goldschvartz, J. M., et Blaisse, B. S. (1966). Electric breakdown of liquid helium. *J. Appl. Phys.* , 17, p. 1083.
- Gomer, R. (1972). Field emission and field ionization in condensed phases. *Acc. Chem. Res.* , 5, p. 41.
- Goncharov, V. A., et Levitov, V. I. (n.d.). Corona discharge and electrical breakdown in helium at non-uniform field at temperatures 4.2K-10K at pressure 1-10atm.
- Goncharov, V. A., et Levitov, V. I. (1974). Some characteristics of corona discharge in liquid helium. *Izvestiya akademii nauk SSSR. Energetika i Transport* , 12 (2), pp. 145-148.
- Griem, H. R. (1974). *Spectral line broadening by plasma* . London: Academic Press INC.
- Grim, C. C., et Adams, G. (1992). Infrared absorptive spectrum of electron bubble in liquid helium. *Phys. Rev. B* , 45, p. 2305.
- Grim, C. C., et Adams, G. (1990). Infrared spectrum of electron in liquid helium. *Phys. Rev. B* , 41, p. 6366.
- Haefliger, K. V., Laarmann, T., et Wabnitz, H. (2005). The electronically excited states of helium clusters: an unusual example for the presence of Rydberg states in condensed matter. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* , 38, p. S386.
- Haefliger, K. V., Laarmann, T., Wabnitz, H., et Moller, T. (2002). Bubble formation and decay in ³He and ⁴He clusters. *Phys. Rev. Lett.* , 88, pp. 233401-1.
- Haidara, M. (1988). *Impulsion de trichel dans le cyclohexane liquide et les gaz comprimés*. Grenoble: Université Joseph Fourier.

- Halpern, B., et Gomer, R. (1965). Field emission in liquid. *J. chem. Phys.* , 43, p. 1065.
- Halpern, B., et Gomer, R. (1969). Field ionization in liquid. *J. Chem. Phys.* , 51, p. 5709.
- Halpern, B., et Gomer, R. (1969). Field of ionization in liquid. *J. Chem. Phys.* , 51, p. 1031.
- Hara, M., Suehiro, J., et Matsumoto, H. (1990). Breakdown characteristics of cryogenic gaseous helium in uniform electric field and space charge modified non-uniform field. *Cryogenics* , 30, p. 787.
- Harrison, H. R., Sander, L. M., et Springett, B. E. (1973). Electron mobility and localization in the dense He4 gas. *J. Phys. B* , 6, p. 908.
- Herzberg, G. (1950). *Molecular spectra and molecular structure I. spectrum of diatomic molecules*. New York: D. Van Nostrand Company.
- Hickman, A. P., et Neal, F. L. (1971). Localized excited states of helium in liquid helium. *Phys. Rev. Lett.* , 26, p. 1216.
- Hickman, A. P., Steets, W., et Neal, F. L. (1975). Nature of excited atoms in liquid helium: a theoretical model. *Phys. Rev. B* , 12, p. 3705.
- Hill, J. C., Hetbey, O., et Walters, G. K. (1971). Evidence of metastable atomic and molecular bubble states in electron bombarded superfluid liquid helium. *Phys. Rev. Lett.* , 26, p. 1213.
- Hindmarsh, W. R., et Junith, M. F. (1972). *Collision broadening of spectral lines by neutral atoms* (Vol. 2). Pergamon press oxford.
- Hindmarsh, W. R., du Plessis, A. N., et Farr, J. M. (1970). Determination of dispersion force from the collision broadening of spectral lines. *Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.* , 3, p. L5.
- Hirshfelder, J. O., Curtis, C. F., et Bird, R. B. (1964). *Molecular theory of gases and liquids*. New York: Wiley.
- Jahnke, J. A., Sliver, M., et Hernandez, J. P. (1975). Mobility of excess electrons and O₂- formation in dense fluid helium. *Phys. Rev. B* , 12, p. 3420.
- Jortner, J., Kestner, N. K., Rice, S. A., et Cohen, M. H. (1965). Study of the properties of an excess electron in liquid helium. I. the nature of the electron-helium interactions. *J. Chem. Phys.* , 43, p. 2614.
- Kattan, R., Denat, A., et Lesaint, O. (1991). Formation of vapor bubbles in non-polar liquids initiated by current pulsed. *IEEE Trans. on Electrical insulation* , 26, pp. 656-662.
- Kattan, R., Denat, A., et Lesaint, O. (1989). Generation, growth, and collapse of vapor bubbles in hydrocarbon liquids under a high divergent electric field. *J. Appl. Phys.* , 66, pp. 4062-4066.
- Kenneth, W. K., et Feng, L. L. (1987). Structure of multielectron bubbles in liquid helium. *Phys. Rev. B* , 45, p. 7491.
- Keshishev, K. O., Kovdrya, Y. Z., Mezhev-Deglin, A. G., et Shalnikov, A. I. (1969). Mobility of charge in liquid helium up to its solidification. *Sov. Phys. JEPT* , 29, p. 53.
- Keto, J. W., Soley, F. J., Stockton, M., et Fitzsimmons, W. A. (1974). Dynamic properties of neutral excitation produced in electron-bombarded superfluid helium. I. The He(23S) and He2(a3S atomic and molecular metastable). *Phys. Rev. A* , 10, p. 872.
- Keto, J. W., Soley, F. J., Stockton, M., et Fitzsimmons, W. A. (1974). Dynamic properties of neutral excitations in electron-bombarded superfluid helium. II. Afterglow fluorescence of excited helium molecules. *Phys. Rev. A* , 10, p. 887.
- Khrapak, A. G., Schmidt, W. F., et Illenberger, E. (2005). *Localized electrons, holes and ion in electronic excitations in liquefied rare gases* (Vol. chapter 7). (W. F. Schmidt, et E. Illenberger, Eds.) Spring.
- Kovacs, I. *Rotational structure in the spectra of diatomic molecule*. London: ADAM HILGER LTD.
- Kuper, C. (1961). Theory of negative ions in liquid helium. *Phys. Rev.* , 122, p. 1007.

- Kurucz. (n.d.). Retrieved from <http://www.pmp.uni-hannover.de/cgi-bin/ssi/test/kurucz/sekur.html>.
- Leo, P. J., Mullamphy, D. F., Peach, G., et Whittingham, I. B. (1992). Self-broadening of triplet lines of helium. *J. Phys. B: At. Opt. Phys.* , 25, pp. 1161-1173.
- Levine, J. L., et Sanders, T. M. (1967). Mobility of electron in low-temperature helium gas. *Phys. Rev.* , 154, p. 154.
- Levine, J. L., et Sander, J. T. (1967). Anomalous electron mobility and complex negative ion formation in low temperature helium. *Phys. Rev.* , 154, p. 138.
- Lewis, E. L. (1980). Collision relaxation of atomic excited states line broadening and interatomic interaction. *Phys. Reports* , 58, pp. 1-71.
- Li, Z., Bonifaci, N., Denat, A., et Atrachev, V. (2007). Ionization and charge transport phenomena in liquid helium induced by the corona discharge. *J. electrostatics* .
- Li, Z., Bonifaci, N., Denat, A., et Atrachev, V. (2006). Ionization phenomena in liquid helium by the corona discharge. *IEEE Trans, Dielectrics and Electrical insulation* , 13, pp. 624-631.
- Li, Z., Bonifaci, N., Denat, A., et Atrazhev, V. (2005). High field transport phenomena in point-plan geometry in liquid helium. *IEEE 15th Intern. Conf. on Dielect. Liquids, ICDL-2005* , pp. 151-154.
- Li, Z., Bonifaci, N., Denat, A., Atrazhev, V., et Shakhmatov, V. (2006). Spectroscopic study of the negative corona discharge in liquid 4He. *18th Intern. Conf. on Spectral Line Shapes, ICSLS* , pp. 217-220.
- Li, Z., Bonifaci, N., Denat, A., Atrazhev, V., et Shakhmatov, V. (2007). Spectroscopic study of the negative corona discharge in liquid and supercritique 4He. *28th Intern. Conf. on Phenomena in Ionized Gases ICPIC* .
- Malvern, A. R., Pinder, A. C., stacey, D. N., et Thompsom, R. C. (1980). Self-broadening in singlet spectral lines of helium. *Proc. R. Soc. A* , 371, pp. 259-278.
- Margenau, H. (1935). Theory description of pressure shift and quenching of excited states in liquid helium. *Phys. Rev.* , 45, p. 755.
- McClintock, P. E. (1971). Field - emission in liquid He3. *Phys. Lett. A* , 35, p. 211.
- McClintock, P. E. (1969). Field - emission in liquid helium. *Phys. Lett. A* , 29, p. 453.
- Meyer, L., Davis, H. T., Rice, S. A., et Donnelly, R. J. (1962). Mobility of ions in liquid He4I and He3 as a function of pressure and temperature. *Phys. Rev.* , 126, p. 1927.
- Mullamphy, D. F., Peach, G., et Whittingham, I. B. (1991). Self-broadening of singlet lines of helium. *J. Phys. B: Mol. Opt. Phys.* , 24, pp. 3709-3726.
- NIST. (n.d.). <http://webbook.nist/chemistry/fluid/>. Retrieved from NIST.
- Northby, J. A., et Sanders, T. M. (1967). Photoelectrons of electrons from bubble states in liquid helium. *Phys. Rev. Let.* , 18, p. 1185.
- Nur, M. (1997). *Etude des décharges couronne dans l'argon et l'azote très purs: transport des charges, spectroscopie et influence d la densité*. Grenoble.
- Ostermerier, R. M., et Schwarz, K. W. (1972). Motion of charge carrier in normal He4. 5, p. 2510.
- Parshin, A., Igor, A., et Sergei, G. K. (2000). Optical spectra of the triplet He2* excitations in various phases of liquid 3He and 4He under high pressures. *Phys. B* , 284-288, p. 91.
- Peach, G. (1984). Unified theories of the pressure broadening and shift of spectral lines: I general formulation for multipole. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* , 17, p. 2599.
- Qin, W., Minnami, K., Desilva, W., Tomimoto, F., et Sato, K. (1997). Emission spectra from pulsed discharges in liquid helium. *Jpn. J. Appl. Phys.* , 36, p. 4474.

- Qotba, R. (2005). *Etude expérience des phénomènes induits dans un liquide par injection fortement localisée d'énergie*.
- Rayleigh, L. (1917). On the pressure developed in a liquid during the collapse of a spherical cavity. *Phil. Mag.* , 34, p. 94.
- Schwarz, K. W. (1972). Charge-carrier mobility in liquid helium at vapor pressure. *Phys. Rev. A* , 6, p. 837.
- Schwarz, K. W. (1980). Electron localization in dense helium gas: new experimental results. *Phys. Rev. B* , 21, p. 5125.
- Schwentner, N. (1985). *Electronic excitations in condensed rare gases*. Berlin: Springer.
- Sigmond, R. S. (1986). The unipolar corona space charge flow problem. *J. Electro* , 18, p. 249.
- Sobl'man, I. I., Vainshtein, L. A., et Yukov, E. A. (1995). *Excitation of atoms and broadening of spectral line*. Springer.
- Soley, F. J., et Fitzsimmons, W. A. (1974). Pressure shifts and quenching of atomic and molecular states produced in electron-bombarded liquid helium. *Phys. Rev. Lett.* , 32, p. 988.
- Springett, B. E., et Donnelly, R. J. (1966). Pressure dependence of radius of negative ion in helium II. *Phys. Rev. Lett.* , 17, p. 364.
- Springett, B. E., Cohen, M. H., et Jortner, J. (1967). Properties of an excess electron in liquid helium: the effect of pressure on the properties of the negative ion. *Phys. Rev.* , 159, p. 183.
- Steets, W., Hickman, A. P., et Lane, N. F. (1974). Theoretical description of pressure shift and quenching of excited states in liquid helium. *Chemical Phys. Lett.* , 28, p. 31.
- Stormberg, H. P. (1980). Axial and radial segregation in metal halide arcs. *J. App. Phys.* , 51, pp. 1963-1969.
- Stormberg, H. P., et Schafer, R. (1983). Time-dependent behavior of high-pressure mercury discharges. *J. Appl. Phys.* , 54, p. 4338.
- Su, J. F., et Nicol, J. L. (1992). Pressure effect of the helium triplet line 706.5nm. *J. Phys. B: At. Mol. Opt.* , 26, pp. 255-260.
- Surko, C. M., et Reif, F. (1968). Investigation of a new kind of energetic neutral excitation in superfluid helium. *Phys. Rev.* , 175, p. 175.
- Surko, C. M., et Reif, F. (1970). Spectroscopic study of luminance of liquid helium in UV. *Phys. Rev. Lett.* , 24, p. 675.
- Surko, C. M., Dick, G. J., Reif, F., et Walker, W. C. (1969). Spectroscopic study of liquid helium in the vacuum ultraviolet. *Phys. Rev. Lett.* , 23, p. 843.
- Tokaryk, D. W., Wagner, G. R., Brooks, R. L., et Hunt, J. L. (1995). Infrared emission spectra from cryogenic proton-irradiated helium gas. *J. Chem. Phys.* , 103, p. 10439.
- Tokaryk, D., Brooks, R. L., et Hunt, J. L. (1993). Reaction dynamics of metastable helium molecules and atoms near 4,2K. *Phys. Rev. A* , 48, pp. 363-381.
- Traving, G. (1968). *Interpretation of line broadening and line shift in plasma diagnostic*. Amsterdam: W. Loch-Holtgreven, North-Holland publishing company.
- Trottier, A., Jirasek, A. I., Tiedje, H. F., et Brooks, R. L. (2000). Spectra of liquid helium and hydrogen-doped liquid helium. *61*, p. 052504.
- Tsao, C. I., et Curnutte, B. (1962). Line-widths of pressure-broadened spectral lines . *J. Quant. Spectry. radiative transfer* , 2, p. 41.
- Van OOSTROM, A. G. (1966). Validity of the flower-Nordtherim model for field electron emission. *Phillips Res. Rep.Suppl.* , 1, pp. 1-102.

- Vaughan, J. M. (1966). *Proc. R. Soc. A*, 295, pp. 164-181.
- Vrinceanu, D., Kotochigova, S., et Sadwghpour, H. R. (2004). Pressure broadening and shift of He(2P_{0,1,2})-He(23S)lines. *Phys. Rev. A*, 69, p. 022714.
- Wellenstein, H. F., et Robertson, W. W. (1972). Collision relaxation processes for the n=3 states of helium : II associative ionization. *J. Chem. Phys.*, 56, p. 1072.
- Woolf, M. A., et Rayfield, G. W. (1965). Energy of negative ion in liquid helium by photoelectric injection. *Phys. Rev. Lett.*, 15, p. 235.
- Yoshino, K., Fujii, H., Takahashi, R., Inuishi, Y., Hayashi, K., et Kubo, U. (1970). Electrical breakdown in cryogenic liquids. *J. Electrostatics*, 7, pp. 103-112.
- Yoshino, K., Ohseko, K., Shiraishi, M., Terauchi, M., et Inuishi, Y. (1982). Dielectric breakdown of cryogenic liquids in terms of pressure, polarity, puls width and impurity. *J. Electrostatics*, 12, p. 305.
- Zimmermann, P. H., et Reichert, J. F. (1977). Study of the electron spin resonance of negative ions field emitted into liquid helium. *Phys. Rev. B*, 15, p. 2630.

Liste d'illustration

Table de figure

Figure 1-1 Configuration pointe–plan des électrodes.16

Figure 1-2 Caractéristique typique courant–tension.17

Figure 1-3 Variation du coefficient k en fonction de la pression dans l'hélium liquide à $T=4,2K$22

Figure 1-4 Représentation du courant limité et contrôlé par la charge d'espace.23

Figure 1-5 Dépendance de rayon de la bulle de la pression : 1 résultat expérimental (Springett, et al., 1966); 2 le modèle Winger-Seits avec $\sigma=0,57\text{dyn/cm}$ à $P=0$; 3 la particule dans la boîte ; 4 le formule Clark (Clark, 1965); 5 Méthode de variation avec $\sigma=0,53\text{dyn/cm}$ à $P=0$ et $\sigma \propto$ densité ρ_0^2 à pression plus élevée; 6 Méthode de variation avec $\sigma=0,53\text{dyn/cm}$ à $P=0$ et $\sigma \propto 0,7C\rho_0$ (C :vitesse de son) à pression plus élevée.26

Figure 1-6 Mobilité des électrons en fonction de la densité de l'hélium pour différentes températures.28

Figure 1-7 Densité de ^4He dans la transition d'électron de l'état localisé à l'état libre en fonction de la température. Les points expérimentaux sont pris de (Harrison, et al., 1973)(●), (Jahnke, et al., 1975) (▲), et (Borghesani, et al., 2002)(○).29

Figure 1-8 Mobilité à la pression de vapeur saturante dans LHe normal en fonction de T . (Schwarz, 1972).29

Figure 2-1 Profil de raie, $\Delta\lambda$ est la largeur à mi-hauteur de la raie, le maximum de la raie est déplacé d'une grandeur S34

Figure 2-2 Les fonctions $S(\alpha)$, $B(\alpha)$ et $S(\alpha)/2B(\alpha)$ calculé pour le potentiel Lennard-Jones (Hindmarsh, et al., 1970).45

Figure 2-3 Diagramme représentant les niveaux d'énergie d'une molécule et quelques transitions. a : transition du spectre de rotation ; b : transition d'une bande de vibration - rotation ; c : transition d'un système de bande.47

Figure 2-4 Représentation des différentes notations utilisées. Etat $X^1\Sigma_g^+$ et $d^3\Pi_g$ sont des exemples. Dans cette figure la référence est celle du puits de potentiel.48

Figure 2-5 Structure de la transition $D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$54

Figure 2-6 structure de la transition $d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$55

Figure 3-1 Diagramme de phase de ^4He60

Figure 3-2 Quelques propriétés de l'hélium à $T=4,2K$ en fonction de la pression : (a) densité, (b) permittivité et, (c) viscosité.61

Figure 3-3 La cellule d'essais.62

Figure 3-4 Schéma d'ensemble du cryostat.63

Figure 3-5 Résistance de la sonde de germanium en fonction de la température.65

Figure 3-6 Résistance de la sonde de platine en fonction de la température.65

Figure 3-7 (a) Température en fonction du temps pour une tension de chauffage de 12,27V. (b) Température stabilisée en fonction de la tension appliquée.66

Figure 3-8 Température obtenue en fonction de la puissance électrique.66

Figure 3-9 Schéma du dispositif de mesures électriques et optique.67

Figure 3-10 Schéma du système de détection des bulles67

Figure 3-11 Image MEB de la pointe fabriquée par électrolyse avec $r_p=0,45\mu\text{m}$68

Figure 3-12 Région pointe-plan vue à travers les hublots de la cellule.68

Figure 3-13(a)Dispositif de connexion du fil haute tension à la plaque d'ALN : (b) Traversée isolante en Macor pour supporter l'électrode pointe ou plan :69

Figure 3-14 Schéma du dispositif de mesure spectroscopique.70

Figure 3-15Lampe étalon basse pression à gaz hélium.....72

Figure 3-16 Spectre mesuré de la lampe étalon LW avec le réseau 150tr/mm.73

Figure 3-17 Spectre mesuré de la lampe étalon LW avec le réseau 1200tr/mm et 750nm de blaze.73

Figure 3-18 Spectre mesuré de la lampe étalon LW avec le réseau 1200tr/mm et 300nm de blaze.73

Figure 4-1 Illustration des deux régions de la décharge couronne.78

Figure 4-2 Descriptif de la décharge couronne négative.79

Figure 4-3 Descriptif de la décharge couronne positive.79

Figure 4-4 Caractéristique courant moyen-tension pour la polarité négative ; (○) $r_p=0,45\mu\text{m}$, $d=6\text{mm}$ et, (●) $r_p=2,5\mu\text{m}$, $d=8\text{mm}$ dans LHe à $T=4,2K$, $P=3,3\text{MPa}$80

Figure 4-5 Caractéristique courant moyen-tension pour la polarité positive (○) et négative (●). $r_p=0,45\mu\text{m}$, $T=4,2\text{K}$, et $P=2,8\text{MPa}$.	81
Figure 4-6 Profil de la pointe avant et après les essais.	81
Figure 4-7 Tensions seuils V_s et V_{ex} en fonction de la pression P appliquée sur LHe en polarité négative à $T=4,2\text{K}$; (a) $r_p=2,5\mu\text{m}$ et (b) $r_p=0,45\mu\text{m}$.	82
Figure 4-8 Comparaison de la tension V_s entre polarité négative et positive pour les conditions $r_p=0,45\mu\text{m}$, $d=6\text{mm}$ et $T=4,2\text{K}$.	83
Figure 4-9 Comparaison des seuils de tension V_s en négatif en fonction de P pour $r_p=0,45\mu\text{m}$, $d=6\text{mm}$ et $r_p=2,5\mu\text{m}$, $d=8\text{mm}$ dans LHe à $T=4,2\text{K}$.	83
Figure 4-10 Impulsions de courant en fonction de la tension négative ou positive appliquée sur la pointe dans LHe à $P=2,7\text{MPa}$.	85
Figure 4-11 Oscillogramme du signal de courant (en haut) et de lumière émise mesurée par photomultiplimetreur(en bas).	85
Figure 4-12 Oscillogramme du signal de la photodiode (a) et de l'impulsion de courant (b).	85
Figure 4-13 Zone d'impulsions pour une pression donnée.	86
Figure 4-14 Tensions V_{in}^b et V_{ex}^b en fonction de P pour (a) la polarité négative et ; (b) la polarité positive, $T=4,2\text{K}$.	86
Figure 4-15 Courant moyen I_m en fonction de la fréquence F des impulsions pour différentes pressions P , $T=4,2\text{K}$.	88
Figure 4-16 Evolution de la capacité calorifique C_p en fonction de la température pour différentes pressions dans l'hélium.	89
Figure 4-17 Courbe de pression de vapeur saturante (pour $T < T_c$) et les points correspondants au maximum de C_p dans la région supercritique de l'hélium.	89
Figure 4-18 (a) K et K_c calculés en fonction de la pression P et (b) rayon de la bulle R_w calculé avec les valeurs respectives de K et K_c en fonction de P/P_c .	90
Figure 4-19 Durée expérimentale du premier cycle de la bulle en fonction de P/P_c . La droite représente la variation en $(P/P_c)^{-5/6}$.	91
Figure 4-20 Rapport R_m/R_w en fonction de la pression pour LHe à $4,2\text{K}$.	91
Figure 4-21 Caractéristiques courant moyen-tension en fonction de la pression. $T=4,2\text{K}$, $r_p=2,5\mu\text{m}$ et $d=6\text{mm}$.	93
Figure 4-22 Mobilité de porteurs négatifs dans ^4He liquide à $4,2\text{K}$ en fonction de P pour les rayons de pointe : $r_p=2,5\mu\text{m}$ et $0,45\mu\text{m}$.	93
Figure 4-23 Comparaison entre les mobilités négatives mesurées par Meyer (Meyer, et al., 1962), Keshishev(Keshishev, et al., 1969) et nos résultats.	94
Figure 4-24 Comparaison entre les valeurs expérimentales et la mobilité déduite du modèle de pseudo-bulle à $T=4,2\text{K}$.	95
Figure 4-25 Comparaison entre les valeurs expérimentales de Meyer et les nôtres et la mobilité déduite du modèle d'Aitken pour les températures de (a,b) $4,2\text{K}$, (c) 3K et (d) $2,2\text{K}$.	96
Figure 4-26 Caractéristiques courant moyen-tension pour différentes pressions. Polarité positive $T=4,2\text{K}$, $r_p=0,45\mu\text{m}$ et $d=6\text{mm}$.	97
Figure 4-27 Mobilité des porteurs positifs dans ^4He à $T=4,2\text{K}$ en fonction de P . $r_p=0,45\mu\text{m}$ et $d=6\text{mm}$.	97
Figure 4-28 Comparaison de nos résultats sur les mobilités positives avec ceux de Keshishev et Meyer.	98
Figure 4-29 Comparaison entre les valeurs expérimentales de Meyer et les nôtres et la mobilité positive déduite du modèle d'Aitken pour les températures de (a,b) $4,2\text{K}$, (c) 3K et (d) $2,2\text{K}$.	99
Figure 4-30 Tensions seuils V_s et V_{ex} en fonction de P pour (a) $T=7\text{K}$ et (b) $T=10\text{K}$.	100
Figure 4-31 Tensions seuils V_s en fonction de P pour $T=4,2, 7$ et 10K en polarité négative de la pointe avec $r_p=0,45\mu\text{m}$.	100
Figure 4-32 Caractéristique courant moyen-tension pour la polarité négative de la pointe à $T=10\text{K}$. $r_p=0,45\mu\text{m}$ et $P=0,87\text{MPa}$.	101
Figure 4-33 Courbes $\sqrt{I_m}$ en fonction de la tension V pour $T=10\text{K}$, 7K , 6K , et $4,2\text{K}$ à $P=0,5\text{MPa}$.	101
Figure 4-34 Mobilité des charges négatives $\bar{\mu}$ en fonction de : (a) la température et, (b) la densité, pour une pression donnée de $0,4\text{MPa}$ avec $r_p=0,45\mu\text{m}$ et $d=6\text{mm}$.	102
Figure 4-35 Mobilité des charges négatives $\bar{\mu}$ en fonction de : (a) la densité et, (b) la pression, pour les températures de 6K , 7K et 10K .	102
Figure 4-36 Mobilité d'électron μ en fonction de N à $T=10\text{K}$, 7K et $4,2\text{K}$.	103
Figure 4-37 μ en fonction de N dans une région de faible densité.	103

Figure 4-38 Densité critique de transition -état localisé/état libre- en fonction de la température. La droite en trait plein correspond à la loi $N_{tr} \sim T^{2/3}$	104
Figure 4-39 Rayon calculé de la pseudo-bulle électronique dans le liquide ($T=4,2K$) et dans le fluide supercritique ($T=7K$).	105
Figure 4-40 Mobilité de l'électron en fonction de ζ	106
Figure 5-1 Photographie de la décharge produite au voisinage de la pointe par une décharge couronne négative dans l^4He liquide.....	111
Figure 5-2 Spectre de la lumière émise dans l^4He liquide. $P=0,1MPa$ et $T=4,2K$	115
Figure 5-3 Spectre de la lumière émise dans l^4He supercritique. $P=0,1MPa$ et $T=6K$	115
Figure 5-4 Spectre de la lumière émise dans l^4He gazeux. $P=0,1MPa$ et $T=300K$	115
Figure 5-5 Spectre de la lumière émise dans l^4He liquide. $P=0,1MPa$ et $T=4,2K$	116
Figure 5-6 Spectre de la lumière émise dans l^4He supercritique. $P=0,1MPa$ et $T=6K$	116
Figure 5-7 Spectre de la lumière émise dans l^4He gazeux. $P=0,1MPa$ et $T=300K$	117
Figure 5-8 Spectre de la lumière émise dans l^4He supercritique pour λ entre 815nm et 990nm. $P=0,1MPa$ et $T=6K$	117
Figure 5-9 Bande $e^3 \Pi_g - a^3 \Sigma_u^+$ (464,9nm) et bande $J^1 \Delta_u - B^1 \Pi_g$ (0-0) (462nm) à $T=4,2, 6,$ et $300K$, $P=0,1MPa$	119
Figure 5-10 Raies rotationnelles des bandes moléculaires $f^3 \Delta_u - b^3 \Pi_g$ (0-0), (1-1) et (2-2) à $T=4,2, 6$ et $300K$ pour $P=0,1MPa$	120
Figure 5-11 La bande moléculaire (0-0) de $c^3 \Sigma_g^+ - a^3 \Sigma_u^+$ et $C^1 \Sigma_g^+ - A^1 \Sigma_u^+$ de He_2 à $T=4,2, 6K$ et $300K$ pour $P=0,1MPa$	120
Figure 5-12 Enregistrement du profil expérimental des raies atomiques 706nm et 728nm à $P=0,1MPa$, pour différentes températures $T=300, 4,2$ et $6K$	121
Figure 5-13 Enregistrement du profil expérimental de la bande moléculaire à 639nm et de la raie atomique à 667,8nm à $P=0,1MPa$, pour différentes températures $T=300, 4,2$ et $6K$	121
Figure 5-14 Comparaison des spectres de $d^3 \Sigma_u^+ \rightarrow b^3 \Pi_g$ (640nm) à $T=4,2K$ et $P=0,1MPa$ pour une décharge négative et positive.	122
Figure 5-15 Comparaison des raies à 706nm et 728nm à $T=4,2K$ et $P=0,1MPa$ pour une décharge négative et positive.	122
Figure 5-16 Enregistrement du profil expérimental de la bande moléculaire à 639nm et de la raie atomique à 706nm à $T=4,2K$, pour différentes pressions P	123
Figure 5-17 Profil de la raie 706nm pour 2 pressions différentes P en polarité positive.	123
Figure 5-18 Enregistrement du profil expérimental des bandes moléculaires à 639nm, et 660nm et, de la raie atomique à 706nm à $T=6K$, pour différentes pressions P	124
Figure 5-19 Effet de la pression sur (a) $\lambda=639nm$ et (b) $\lambda=659nm$ $P=0,1, 0,72$ et $1,56MPa$	124
Figure 5-20 Effet de la pression sur (a) $\lambda=706nm$ à $P=0,1, 1,4$ et $2,3MPa$; (b) $\lambda=728nm$ à $P=0,1, 0,8, 1,56$ et $2,6MPa$ à $T=300K$ en polarité négative.	125
Figure 5-21 Effet de la pression pour $\lambda=706nm$ $P=0,1, 0,9, 1,56$ et $2,3MPa$ en polarité positive.	125
Figure 5-22 Déplacement en fonction de la pression à $T=4,2K$, pour (a) 706,5nm et (b) 728nm.	126
Figure 5-23 Déplacement en fonction de la pression (a) $T=6K$, (b) $T=300K$ pour $\lambda=706$ et 728nm.	126
Figure 5-24 Déplacement en fonction de N pour différentes températures à $\lambda=706,5nm$ et 728nm.	127
Figure 5-25 Déplacement en fonction de P pour la polarité positive et négative à $\lambda=706,5nm$ et $T=4,2K$	127
Figure 5-26 Elargissement en fonction de la pression $T=4,2K$, pour (a) 706,5 et (b) 728nm.	128
Figure 5-27 Elargissement en fonction de la pression pour $\lambda=667,8nm, 706,5nm$ et 728nm à (a) $T=6K$ et (b) $T=300K$	128
Figure 5-28 Elargissement en fonction de N pour différentes températures à $\lambda=706,5nm$ et 728nm.	129
Figure 5-29 Elargissement de la raie $3d^1D-2p^1P$ à $T=6$ et $300K$ en fonction de N , après soustraction de la largeur instrumentale.	129
Figure 5-30 Déplacement de $d^3 \Sigma_u^+ \rightarrow b^3 \Pi_g$ et $D^1 \Sigma_u^+ \rightarrow B^1 \Pi_g$ en fonction de P à $T=4,2K$	130
Figure 5-31 Déplacement en fonction de P pour $d^3 \Sigma_u^+ \rightarrow b^3 \Pi_g$ (639nm) et $D^1 \Sigma_u^+ \rightarrow B^1 \Pi_g$ (659nm) à (a) $T=6K$ et (b) $T=300K$	130
Figure 6-1 Diagramme des niveaux d'énergie des raies observées (en bleu).	135
Figure 6-2 Niveau d'énergie dans la transition $3s^3S-2p^3P$	136
Figure 6-3 Diagramme d'énergie des raies à 728 et 667,8nm.	136
Figure 6-4 Simulation du spectre pour H_α à 656,3nm, He_2 à 659nm et He à 667nm à $T=300K$, et $P=0,1MPa$	138
Figure 6-5 Densité du plasma N_p en fonction de P pour $\lambda=728nm$ (O) et 667,8nm (●) à $T=300K$, déduite de l'effet résonant pour 0.96.	139

Figure 6-6 Densité N_p déduite de l'équation 528H6-2 pour la raie à 667,8nm (●) et celle à 728nm (○), et comparaison avec la densité initiale N à $T=300K$ (-)(NIST).....	141
Figure 6-7 Température T_p dans la zone d'ionisation déduite de la densité N_p	142
Figure 6-8 Déplacement et élargissement de la raie à $\lambda=706nm$ à $T=300K$ en fonction de la pression.	142
Figure 6-9 rapport déplacement /élargissement pour $\lambda=706nm$ à $T=300K$	143
Figure 6-10 N_p déduite du potentiel répulsif pour $\lambda=706nm$ à $T=300K$	144
Figure 6-11 Comparaison entre l'expérience et la théorie (Leo, et al., 1992) à $T=300K$ pour $\lambda=706nm$ (a).	145
Figure 6-12 Densité N_p déduite du déplacement (Δ) et de l' élargissement (\blacktriangle) par la méthode de Leo et du déplacement (\circ) et de l' élargissement (\bullet) par la méthode du potentiel répulsif.	145
Figure 6-13 Températures T_p calculées à partir des valeurs de N_p déduites du déplacement (Δ) et de l' élargissement (\blacktriangle) par la méthode de Leo et du déplacement (\circ) et de l' élargissement (\bullet) par la méthode du potentiel répulsif.....	146
Figure 6-14 Simulation numérique pour 728nm à $T=6K$ et $P=0,1$ (a) et 0,4 (b) MPa.	147
Figure 6-15 Simulation numérique pour 667,8nm à $T=6K$ et $P=0,12$ (a) et 0,4 (b) MPa.	147
Figure 6-16 Densité N_p en fonction de P déduite de l'effet résonant pour les raies à $\lambda=728,13nm$ (○) et $\lambda=667,8nm$ (●), et à partir du potentiel répulsif pour la raie à $\lambda=706nm$ (\blacktriangle). Comparaison avec la densité N du fluide (—) à $T=6K$ et P	148
Figure 6-17 Température T_p dans la zone ionisée déduite de N_p pour $\lambda=667nm$ (●), 728nm (○) et 706nm (\blacktriangle) par l' effet résonant.	148
Figure 6-18 Densité N_p en fonction de P déduite de l'équation 543H6-7 pour les raies à $\lambda=728,13nm$ (○) et $\lambda=667,8nm$ (●), et à partir du potentiel répulsif pour la raie à $\lambda=706nm$ (\blacktriangle). Comparaison avec la densité N du fluide (—) à $T=6K$ et P	149
Figure 6-19 Température T_p dans la zone ionisée déduite de N_p pour $\lambda=667nm$ (●), 728nm (○) et 706nm (\blacktriangle) à partir de l' équation 544H6-7.....	149
Figure 6-20 Rapport déplacement/élargissement pour les raies à $\lambda=706nm$ à $T=6K$	150
Figure 6-21 Déplacement expérimental de la raie $3s^3S-2p^3P$ à 706,5nm dans l'hélium liquide à 4,2K et 1,7K. ...	151
Figure 6-22 Comparaison des bandes $D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$ et $d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$ obtenues par Dennis (Dennis, et al., 1969) (à gauche, (a) pour $T=4.2K$ et $P=150$ torr $N=3,63 \times 10^{20}$ at/cm ³) et par notre méthode (à droite).....	151
Figure 6-23 Formation de la bulle autour d'un état excité atomique ou moléculaire dans l'hélium liquide.	152
Figure 6-24 Rapport déplacement/élargissement en fonction de la pression pour la raie à 706nm à $T=4,2K$	153
Figure 6-25 Simulation numérique pour la raie à 728nm à $T=4,2K$ et $P=0,16$ (a) et 0,66 (b) MPa.....	153
Figure 6-26 N_p en fonction de P (a) et N (b) par effet de résonance sur la raie à 728nm à $T=4,2K$	154
Figure 6-27 Température T_p déduite de N_p pour $\lambda=728nm$ à $T=4,2K$	154
Figure 6-28 Comparaison entre les prédictions théoriques de Steets et al (Steets, et al., 1974) et de Hickman (Hickman, et al., 1975), et les résultats expérimentaux de Soley et al (Soley, et al., 1974) et nos résultats pour le déplacement (a) et l'élargissement (b) de la raie à 706nm.....	155
Figure 6-29 Comparaison du rapport $S/\Delta\lambda$ entre la théorie de la bulle et les résultats expérimentaux.	155
Figure 6-30 Niveau d'énergie des bandes moléculaires singulet et triplet.	156
Figure 6-31 Simulation de $He_2^* D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$ $\lambda=659,5nm$ à $P=0,1MPa$ et $T=4,2K$ et 6K.	157
Figure 6-32 Simulation de $He_2^* d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$ à 639,6nm à $P=0,1MPa$ et $T=4,2K$ et 6K.	158
Figure 6-33 Simulation de $He_2^* d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$ à 639,6nm à $T=300K$ et $P=0,1MPa$	158
Figure 6-34 Intensité des transitions rotationnelle en fonction du niveau rotationnelle pour $d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$	158
Figure 6-35 Distribution des états rotationnels pour la transition $v=0$ pour 640nm.	161
Figure 6-36 Comparaison des spectres dans la gamme 820-1000nm observés par (a) Keto dans l'hélium superfluide, et (b) nos résultats à $T=6K$	162
Figure 6-37 La bande moléculaire (0-0) de $c^3\Sigma_g^+ \rightarrow a^3\Sigma_u^+$ et $C^1\Sigma_g^+ \rightarrow A^1\Sigma_u^+$ de LHe à $T=4,2K$	163
Figure 6-38 Bande moléculaire (0-0) de $c^3\Sigma_g^+ \rightarrow a^3\Sigma_u^+$ et $C^1\Sigma_g^+ \rightarrow A^1\Sigma_u^+$ de He_2 gaz à $T=4,2K$ et $P=150$ Torr (Tokaryk, et al., 1995).	163
Figure 0-1 Représentation vectorielle du couplage de type (a), (b), (c) et (d).	182

Liste de tableau

Tableau 2-1 Constant α_p	38
Tableau 2-2 Elargissement et déplacement selon la théorie d'impact (Traving, 1968)	46
Tableau 2-3 Constantes moléculaires pour $C^1\Sigma_g^+$ et $A^1\Sigma_u^+$ en cm^{-1} (Ginter, 1965)	53
Tableau 2-4 Constantes moléculaires pour $c^3\Sigma_g^+$ et $a^3\Sigma_u^+$ en cm^{-1}	53
Tableau 2-5 Constantes moléculaires pour $D^1\Sigma_u^+$ et $B^1\Pi_g$ en cm^{-1} (Ginter, 1965)	53
Tableau 2-6 Facteurs de Höln-London pour la transition $D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$	54
Tableau 2-7 Constantes moléculaires pour $d^3\Sigma_u^+$ et $b^3\Pi_g$ en cm^{-1}	54
Tableau 2-8 Facteurs de Höln-London pour la transition $d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$	56
Tableau 3-1 Composition du gaz initial N50 (99,99990%) d'Alphagaz	59
Tableau 3-2 Propriétés physiques de l'hélium liquide 4He	60
Tableau 3-3 Caractéristiques des sondes de température	64
Tableau 3-4 Caractéristiques des réseaux pour le spectrographe "Acton reseach Corporation"	70
Tableau 4-1 Champ seuil et champ de claquage dans l'hélium à $T=4,2K$	84
Tableau 5-1 Domaine d'étude	112
Tableau 5-2 Raies d' 4He observées et identifiées à $T=300K, 6K, 4,2K$	112
Tableau 5-3 Bandes moléculaires d' 4He_2 observées à $T=300K, 6K, 4,2K$	113
Tableau 5-4 Condition électrique pour observer les spectres d'émission	118
Tableau 5-5 Pression(en MPa) de disparition pour différentes raies à $T=4,2$ et $300K$	131
Tableau 5-6 Variation du déplacement avec T et P en nm/MPa	132
Tableau 5-7 Variation de l'élargissement en nm/MPa pour différentes températures.	132
Tableau 6-1 Principales données intervenant dans le calcul de l'élargissement et du déplacement des transitions $3s^3S-2p^3P, 3s^1S-2p^1P$ et $3d^1D-2p^1P$	137
Tableau 6-2 Elargissement Doppler en nm pour $T=300$ et $1000K$	137
Tableau 6-3 Déplacement en Å par effet Stark pour une densité électronique $N_e=10^{16}cm^{-3}$	138
Tableau 6-4 Déplacement et élargissement observés et prévus par les différents auteurs ($T=300K$)	140
Tableau 6-5 Elargissement et déplacement en fonction de la densité en $10^{21}nm/cm^3$	144
Tableau 6-6 Température rotationnelle T_r simulé dans $P=0,1MPa$	159
Tableau 6-7 N_p, T_p et T_r déduites des différentes raies et bandes par différents modèles, $P=0,1MPa$	165
Tableau 0-1 Cas de Hund et nombre quantiques	181

Résumé

Ce travail présente les résultats des études électriques et spectroscopiques des décharges couronne produites, en géométrie pointe–plan, dans l'hélium gazeux et liquide en fonction de la pression P de 0,1 à 10MPa pour les températures T de 4,2, 6-10 et 300K.

La mobilité des porteurs de charge (électrons et ions) en fonction de la pression et de la température a été déduite des caractéristiques courant moyen -tension. Les champs seuils d'apparition des phénomènes de création de charges (ionisation) près de la pointe en fonction de P et T ont été déterminés puis comparés aux champs de claquage mesurés dans différentes configurations.

L'émission de lumière produite par les phénomènes de génération de charges près de la pointe a été enregistrée à l'aide d'un ensemble spectrographe détecteur 2D CCD permettant une analyse spectrale dans le domaine 200-1100nm. Les spectres obtenus contiennent des dizaines de raies atomiques (He^*) et de bandes moléculaires (He_2^*) dont le nombre et le profil dépendent fortement de la pression et de la température d'essai. L'analyse spectrale de ces raies et bandes a été utilisée pour obtenir des renseignements complémentaires sur les mécanismes mis en jeu dans une décharge couronne en milieu très dense.

Le profil (élargissement, déplacement) des raies atomiques a été étudié en fonction de différents paramètres (P , T , etc.) afin d'évaluer les conditions de densité N_p et de température T_p dans la zone d'ionisation autour de la pointe. Bien que de nombreuses raies ont été observées, nous avons sélectionné, pour l'analyse, les trois raies suivantes : $3d^1D \rightarrow 2p^1P$, $3s^1S \rightarrow 2p^1P$, et $3s^3S \rightarrow 2p^3P$ correspondant aux longueurs d'ondes 667,8, 706 et 728nm, qui apparaissent sur le plus grand domaine de pression appliquée. Différentes approches de l'effet de pression sur le profil ont été considérées. Cependant, dans nos conditions expérimentales, nous avons montré que les effets à prendre en compte sont : l'effet résonant, le potentiel répulsif et la méthode de la bulle. Les résultats obtenus conduisent à des valeurs de densité N_p de 10^{19}cm^{-3} pour $T=6$ et 300K, et 10^{20}cm^{-3} pour $T=4,2\text{K}$ et les températures T_p dans la zone d'ionisation de 200-300K pour $T=300\text{K}$, 90-200K pour $T=6\text{K}$, et 20-100K pour $T=4,2\text{K}$.

L'analyse des bandes moléculaires $d^3\Sigma_u^+ \rightarrow b^3\Pi_g$ et $D^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_g$ à 640 et 660nm a été effectuée par la méthode classique pour des spectres insuffisamment résolus qui consistent à simuler un spectre ro-vibrationnel théorique et à le comparer au spectre expérimental. Après minimisation des différences de surface, on en déduit les températures vibrationnelle et rotationnelle des molécules. Nous avons obtenu un accord satisfaisant entre la température rotationnelle et la température T_p déduite du profil des raies atomiques pour $T=6\text{K}$.

Mots-Clés: Décharge couronne – Hélium liquide – Diagnostic spectroscopique d'un plasma – Profil des raies atomiques – Mobilité des électrons et des ions